

# Table des matières

<b>Liste des figures</b>	<b>7</b>
<b>Liste des tableaux</b>	<b>15</b>
<b>Introduction</b>	<b>17</b>
<b>1 Contexte de l'étude</b>	<b>19</b>
1.1 Généralités sur le domaine du nucléaire	19
1.1.1 Introduction	19
1.1.2 Le nucléaire civil en France	20
1.1.3 Fonctionnement général d'un REP	20
1.1.4 Le combustible nucléaire	21
1.2 Accident d'injection de réactivité	22
1.2.1 Contexte et problématique générale	22
1.2.2 Scénario et phénomènes présents	24
1.2.3 Conditions thermo-mécaniques dans le combustible	27
1.3 Propriétés physiques de l' $\text{UO}_2$	30
1.3.1 Structure cristallographique	30
1.3.2 Écart à la stœchiométrie	30
1.3.3 Dislocations et systèmes de glissement	32
1.4 Comportement mécanique de l' $\text{UO}_2$	32
1.4.1 Coefficients élastiques	33
1.4.2 Comportement de l' $\text{UO}_2$ en compression	33
1.4.3 Comportement de l' $\text{UO}_2$ en flexion	45
1.5 Modèles de fluage	50
1.5.1 Approches phénoménologiques	50
1.5.2 Fluage avec effet d'historique	52
1.5.3 Modèle de fluage compressible	54
1.6 Synthèse et objectif du travail	57
<b>2 Méthodes expérimentales</b>	<b>61</b>
2.1 Introduction	61
2.2 Caractérisations non destructives	62
2.2.1 Métrologie	62

2.2.2	Mesure de densité par pesée hydrostatique dans l'alcool	63
2.3	Imagerie au MEB	64
2.3.1	Préparation des échantillons pour observation au MEB	64
2.3.2	Observations au MEB	65
2.3.3	Analyse des images MEB	67
2.4	Essais mécaniques	68
2.4.1	Régulation de la température du four	71
2.4.2	Protocole des essais mécaniques	72
2.4.3	Résultats types	74
2.4.4	Reproductibilité	75
2.4.5	Grille d'essais	76
2.4.6	Mesure de l'endommagement	77
2.4.7	Essais à sauts de vitesse	80
2.5	Synthèse	82
<b>3</b>	<b>Étude du lot de référence</b>	<b>85</b>
3.1	Introduction	85
3.2	Aspects expérimentaux	86
3.2.1	Caractérisation des échantillons	86
3.2.2	Courbes contrainte-déformation	87
3.2.3	Fissuration et variation de volume	91
3.2.4	Évolution de la microstructure	93
3.3	Modélisation	98
3.3.1	Paramètres d'activation d'une loi de Norton	98
3.3.2	Loi de fluage	100
3.3.3	Identification des paramètres	101
3.3.4	Implémentation numérique	104
3.4	Simulation	108
3.4.1	Maillage et conditions aux limites	108
3.4.2	Essais expérimentaux	109
3.4.3	Essais de fluage	115
3.5	Synthèse	117
<b>4</b>	<b>Étude du lot forte densité</b>	<b>119</b>
4.1	Introduction	119
4.2	Aspects expérimentaux	121
4.2.1	Caractérisation des échantillons	121
4.2.2	Courbes contrainte-déformation	123
4.2.3	Fissuration et variation de volume	128
4.2.4	Évolution de la microstructure	132
4.2.5	Décohésion des joints de grain	136
4.3	Modélisation	136
4.3.1	Modèle initial	136

4.3.2	Dépendance à la porosité	141
4.3.3	Identification de la dépendance à la porosité	141
4.3.4	Modèle de fragmentation des joints de grain	146
4.3.5	Identification des paramètres plastiques	149
4.3.6	Implémentation numérique	150
4.4	Simulation	152
4.4.1	Maillage et conditions aux limites	152
4.4.2	Identification de $\sigma_c(T)$	154
4.4.3	Simulation des essais expérimentaux	158
4.5	Synthèse	163
<b>5</b>	<b>Modélisation des accidents d'injection de réactivité</b>	<b>165</b>
5.1	Introduction	165
5.2	Essais REP-Na	166
5.2.1	Programme d'essais	166
5.2.2	Déformations	168
5.2.3	Fissuration macroscopique	169
5.2.4	Fragmentation des joints de grains	172
5.2.5	Relâchement des gaz de fission	173
5.3	L3F : Loi Fluage Fragmentation Fissuration	174
5.3.1	Fluage d'irradiation	174
5.3.2	Fissuration macroscopique	175
5.3.3	Récapitulatif	178
5.3.4	Implémentation numérique	180
5.3.5	Réponse à un chargement biaxial	183
5.4	Simulation des essais REP-Na	188
5.4.1	Alcyone-RIA	188
5.4.2	Loi de comportement gaine	193
5.4.3	Simulations	194
5.4.4	REP-Na 2	196
5.4.5	REP-Na 3	199
5.4.6	REP-Na 5	200
5.4.7	REP-Na 4	202
5.4.8	Conclusion	202
5.5	Synthèse	207
	<b>Conclusion</b>	<b>209</b>
	<b>Perspectives</b>	<b>213</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>215</b>
	<b>Annexes</b>	<b>227</b>
A	Implémentation MFront	227

B	Productions scientifique	231
B.1	CFM2013	231
B.2	Journal of nuclear materials	238



# Liste des figures

1.1	Parc électronucléaire français	20
1.2	Schéma de fonctionnement d'un REP	21
1.3	Des pastilles combustibles (à gauche) à l'assemblage (à droite) en passant par le crayon (au centre)	22
1.4	Schéma d'un pulse de puissance caractéristique d'un RIA	24
1.5	Profil radial de densité de puissance en fin d'irradiation de base (proportionnel à la quantité d'éléments fissiles) ; issu de <b>(SUZUKI 2006a)</b>	25
1.6	Fissuration et fragmentation des joints de grains observées au sein d'une pastille après un pulse RIA ; issus de <b>(SCHMITZ 1999)</b>	26
1.7	Mise en évidence de la réouverture du jeu pastille-gaine en fin de pulse (diamètre extérieur pastille en pointillé et diamètre intérieur gaine en trait plein) ; issus de <b>(SERCOMBE 2010)</b>	27
1.8	Profil radial de température (à gauche) et de contrainte hydrostatique (à droite) dans le combustible à différents instants lors d'un pulse RIA ; d'après <b>(SUZUKI 2008)</b>	28
1.9	Macrographie d'un échantillon testé présentant un comblement des évidements interpastilles caractéristique du fluage du combustible ; issus de <b>(LESPIAUX 1997)</b>	28
1.10	Vitesse de déformation $\dot{\epsilon}_{\theta\theta}$ atteinte en fonction de la température en périphérie de pastille dans la simulation de l'essai REP-Na 5	29
1.11	Structure cristalline de l' $\text{UO}_2$ : atomes d'uranium en gris et d'oxygène en vert	30
1.12	Diagramme de phase du système U-O <b>(COLIN 2003)</b>	31
1.13	Schéma d'une courbe contrainte-déformation d'un essai mécanique	33
1.14	courbes contrainte-déformation dans l'étude de Byron <b>(BYRON 1968b)</b>	34
1.15	Dépendance de la limite d'élasticité à la température avec indication de l'apparition d'une fragmentation des joints de grain dans l'étude de Byron <b>(BYRON 1968b)</b>	35
1.16	Dépendance de l'énergie d'activation à la température dans l'étude de Byron <b>(BYRON 1968b)</b>	35
1.17	Dépendance de la limite d'élasticité à la vitesse de déformation dans l'étude de Nadeau <b>(NADEAU 1969)</b>	36
1.18	Synthèse des études montrant les 2 premiers modes de déformation ; issue de <b>(SELTZER 1971)</b>	37

1.19 Effet de la porosité (à gauche) et de la taille de grain (à droite) sur la contrainte à rupture dans l'étude de Igata ( <b>IGATA 1973</b> )	38
1.20 Influence de la vitesse de déformation sur la réponse en compression de l'UO <sub>2</sub> à 1500 °C dans l'étude de Guérin ( <b>GUÉRIN 1975</b> )	39
1.21 Effet de la température (à gauche) et de la vitesse de déformation (à droite) sur les courbes contrainte-déformations dans l'étude de Guérin ( <b>GUÉRIN 1975</b> )	40
1.22 Variation de la limite élastique avec la température (à gauche) et avec la vitesse de déformation (à droite) dans l'étude de Guérin ( <b>GUÉRIN 1975</b> )	41
1.23 Courbes contrainte-déformation pour une vitesse de déformation de 10 <sup>-1</sup> /min (à gauche) et dépendance de la contrainte d'écoulement à la température pour différentes vitesses de déformation (à droite) ; Figures issues de l'étude de Tachibana et al. ( <b>TACHIBANA 1976</b> )	43
1.24 Images MEB d'échantillons testés à 1465 °C montrant différents modes d'endommagement : (a) coalescence de bulle à faible contrainte (25 MPa) et (b) fragmentation des joints de grain à forte contrainte (50 MPa) ; Figures issues de ( <b>DHERBEY 2002a</b> )	44
1.25 Courbe vitesse d'évolution de la flèche en fonction de la charge appliquée d'après l'étude de ( <b>ARMSTRONG 1962</b> )	45
1.26 Contraintes à rupture dans des UO <sub>2</sub> stœchiométriques de taille de grain de 8 µm (à gauche) et 25 µm (à droite) en fonction de la température, d'après ( <b>EVANS 1969</b> )	46
1.27 Effet de la température, de la vitesse de déformation (à gauche) et de la porosité (à droite) sur la contrainte à rupture dans l'étude de ( <b>ROBERTS 1971</b> )	47
1.28 Contraintes à rupture dans l'UO <sub>2</sub> stœchiométrique en fonction de la température, pour différentes vitesses de déformation (à gauche) et différentes tailles de grain (à droite), d'après ( <b>CANON 1971</b> )	47
1.29 Comparaison entre les résultats des essais de relaxation et des résultats d'essais de fluage ; issue de ( <b>ROBERTS 1974</b> )	48
1.30 Influence de la taille de grain, de la porosité et de la taille moyenne des pores sur la contrainte à rupture, d'après ( <b>RADFORD 1979</b> )	49
1.31 Influence de la taille de grain, de la porosité et de la taille des pores sur la contrainte à rupture, d'après ( <b>OGUMA 1982</b> )	49
1.32 Loi de fluage stationnaire LPCC99 ; issue de ( <b>SLADKOFF 1999</b> )	51
1.33 Comportement caractéristique d'un matériau présentant un pic de compression lors d'essai à vitesse de déformation imposée (à gauche) et de fluage (à droite) d'après ( <b>SAUTER 2003</b> )	52
1.34 Dépendance des contraintes de sommet et de bas de pic à la température ; issus de ( <b>SAUTER 2003</b> )	53
1.35 Domaine de validité du modèle de fluage compressible ; issue de ( <b>MONERIE 2006</b> )	55

2.1	Méthode de mesure des caractéristiques géométriques des échantillons avant et après essai	62
2.2	Schéma de la préparation des échantillons pour observation au MEB	65
2.3	Zones d'observation des échantillons au MEB	66
2.4	Zoom sur une zone de $40 \times 45 \mu\text{m}$ d'une image MEB montrant les grains et les pores	66
2.5	Méthode des interceptes homogènes (à gauche) et avec direction préférentielle (à droite)	67
2.6	Images MEB (au dessus) avec les images binarisées correspondantes (en dessous) obtenues par seuillage du niveau de gris afin d'extraire la porosité pour la mesure de la porosité surfacique	68
2.7	Grandeurs issues d'un même échantillon accessibles par analyse d'image MEB avec POROPHASE	69
2.8	Schéma de la machine de compression avec un zoom sur le voisinage de l'échantillon	70
2.9	Schéma de la méthode d'étalonnage de la régulation de température au sein de la machine d'essai	71
2.10	Courbe d'étalonnage de la régulation de la température de l'échantillon dans la machine de compression	72
2.11	Évolution de la température et du déplacement de la traverse lors d'un essai de compression	73
2.12	Courbes contrainte-déformation types obtenues pour des essais de compression à vitesses de déplacements imposées	75
2.13	Essais de reproductibilités	76
2.14	Déplacement de la traverse dans un essai de charge-décharge à $1350^\circ\text{C}$ et $10^{-3} \text{ /s}$	78
2.15	Courbe contrainte-déformation lors d'un essai de charge-décharge à $1350^\circ\text{C}$ et $10^{-3} \text{ /s}$	78
2.16	Pentes des décharges successives lors d'un essai de charge-décharge à $1350^\circ\text{C}$ et $10^{-3} \text{ /s}$	79
2.17	Comparaison entre un essai à sauts de vitesse et les essais à vitesse de déplacement unique correspondants	80
2.18	Comparaison entre les essais à sauts de vitesse et les essais à vitesse de déplacement unique correspondants	81
3.1	Géométrie et microstructure des échantillons du lot de référence avant essai	86
3.2	Distribution des tailles de grain et fraction surfacique de porosité initiale du lot de référence	87
3.3	Influence de la vitesse dans les essais	89
3.4	Influence de la température dans les essais	89

3.5	Dépendance de la contrainte d'écoulement à la température et à la vitesse de déformation dans les essais de compression sur le lot de référence et dans les études de ( <b>CANON 1971, flexion ; GUÉRIN 1975, compression ; TACHIBANA 1976, compression</b> )	90
3.6	Écrouissage apparent dans les essais du lot de référence	91
3.7	Aspect des échantillons déformés avec et sans fissure	91
3.8	Déformation circonférentielle moyenne résiduelle en fonction de la déformation axiale résiduelle	92
3.9	Évolution de la porosité des pastilles du lot de référence au cours des essais	94
3.10	Porosité surfacique associée à chaque taille de pore avant et après les essais sur le lot de référence à 1700 °C	96
3.11	Microstructure des pastilles du lot de référence après essai	97
3.12	Sensibilité à la vitesse de déformation du lot de référence	99
3.13	Énergie d'activation déduite des essais sur le lot de référence	99
3.14	Comparaison entre les contraintes calculées et mesurées sur le lot de référence dans un intervalle de $\pm 10$ MPa	102
3.15	Maillage, conditions aux limites et chargement utilisés dans les simulations	109
3.16	Écrouissage apparent dans les simulations de essais du lot de référence	110
3.17	Comparaison simulation expérience des courbes contrainte-déformation du lot de référence	111
3.18	Comparaison simulation expérience des diamètres finaux du lot de référence	112
3.19	Répartition des déformations ( $\varepsilon_{\theta\theta}$ et $\varepsilon_{zz}$ ), des contraintes ( $\sigma_{\theta\theta}$ , $\sigma_{zz}$ et $\sigma_{eq}$ ) et de la porosité ( $f$ ) lors de l'essai à 1700 °C et $10^{-3}$ /s	113
3.20	Évolution simulée de la porosité des pastilles du lot de référence au cours des essais	114
3.21	Répartition du premier invariant des contraintes ( $\sigma_m$ ) et de la triaxialité ( $\eta$ ) lors de l'essai à 1700 °C et $10^{-3}$ /s	115
3.22	Comparaison calcul-mesure des contraintes appliquées dans les 231 essais de fluage de la base de données du CEA	116
4.1	Géométrie et microstructure des échantillons du lot forte densité avant essai	121
4.2	Distribution de la taille de grain et fraction surfacique de porosité initiale du lot forte densité	122
4.3	Influence de la vitesse dans les essais expérimentaux du lot forte densité	124
4.4	Influence de la température dans les essais expérimentaux du lot forte densité	124

4.5	Pente de l'écrouissage apparent sur les courbes contrainte-déformation expérimentales du lot forte densité	125
4.6	Détermination de la contrainte d'écoulement et des contraintes spécifiques à partir des courbes contrainte-déformation expérimentales des essais du lot forte densité	126
4.7	Dépendance de la contrainte d'écoulement à la température dans les essais du lot forte densité, du lot de référence et dans les études de <b>(GUÉRIN 1975 ; TACHIBANA 1976)</b>	127
4.8	Aspect des échantillons déformés du lot forte densité	129
4.9	Déformation circonférentielle moyenne résiduelle en fonction de la déformation axiale résiduelle des échantillons du lot forte densité	130
4.10	Porosité totale, ouverte et fermée après essais des échantillons du lot forte densité, d'après les mesures de densité relative	131
4.11	Évolution de la porosité des pastilles du lot forte densité au cours des essais	133
4.12	Microstructure du centre des pastilles du lot forte densité testées à $10^{-1}$ /s	134
4.13	Évolution de la porosité au centre des pastilles du lot forte densité au cours des essais (zoom arrière)	135
4.14	Synthèse des résultats des essais sur les 2 lots	137
4.15	Comparaison des contraintes d'écoulement expérimentales et estimées par le modèle initial sur le lot forte densité. Les traits horizontaux donnent l'incertitude associée à la forme complexe des courbes contrainte-déformation	140
4.16	Comparaison des contraintes d'écoulement expérimentales et estimées par le modèle initial sur le lot forte densité en utilisant $\sigma_0 = 7$ MPa	140
4.17	Facteur d'accroissement de la contrainte $x$ en fonction du coefficient d'ajustement $i$	142
4.18	Variation des fonctions $\alpha(f)$ et $\beta(f)$ en fonction de la porosité avec ou sans ajustement de la dépendance à la porosité	143
4.19	Comparaison des contraintes d'écoulement expérimentales du lot forte densité et estimées par le modèle avec dépendance marquée à la porosité	144
4.20	Validation du modèle avec dépendance à la porosité à partir des données d'Igata <b>(IGATA 1973)</b> et du CEA <b>(BASINI 2001)</b>	145
4.21	(a)-(d) : Mécanismes de fracturation en compression ; (e) : échantillon avec endommagement réparti causés par ces mécanismes ; issus de <b>(BAZANT 1997)</b>	146
4.22	Distribution des contraintes normales et tangentielles aux joints de grain en fonction de leur orientation par rapport à l'axe de compression ; issue de <b>(PACULL 2011)</b>	147

4.23	Distribution (à gauche) et répartition (à droite) de la contrainte principale maximale dans un agrégat polycristallin soumis à un essai de compression ; issues de <b>(MICHEL 2014)</b>	148
4.24	Maillage, conditions aux limites et chargement utilisés dans les simulations	153
4.25	Répartition des contraintes ( $\sigma_{zz}$ , $\sigma_{\theta\theta}$ et $\sigma_c^a$ ), des déformations ( $\varepsilon_{zz}$ , $\varepsilon_{\theta\theta}$ ) et de la porosité ( $f$ ) de l'essai à $1550\text{ }^{\circ}\text{C } 10^{-1} \text{ /s}$	155
4.26	Seuil de fragmentation des joints de grain. Les points noirs sont issus de simulation éléments finis	156
4.27	Conditions d'atteinte du seuil de fragmentation des joints de grain. Les courbes en pointillé sont issues d'un calcul numérique $1D$	157
4.28	Répartition des contraintes ( $\sigma_{zz}$ et $\sigma_{\theta\theta}$ ), de la déformation plastique équivalente associé à la fragmentation des joints de grain ( $pl$ ) et des déformations ( $\varepsilon_{zz}$ , $\varepsilon_{\theta\theta}$ ) et de la porosité ( $f$ ) de l'essai à $1550\text{ }^{\circ}\text{C } 10^{-1} \text{ /s}$	159
4.29	Comparaison simulation expérience des diamètres finaux du lot forte densité	160
4.30	Comparaison simulation expérience des courbes contrainte-déformation du lot forte densité	161
4.31	Évolution simulée de la porosité des pastilles du lot forte densité au cours des essais avec et sans prise en compte de la fragmentation des joints de grain	162
5.1	Schéma du réacteur expérimental CABRI	166
5.2	Diamètre résiduel de la gaine mesuré (en gris) et calculé (en noir) ainsi qu'une représentation schématique de la forme des pastilles après l'essai de REP-Na 2 à gauche et REP-Na 3 à droite ; Figures issues de <b>(SERCOMBE 2010)</b>	169
5.3	Macropgraphies de coupes radiales des essais REP-Na issus de <b>(LESPIAUX 1997)</b>	170
5.4	Macropgraphies de coupes axiales des essais REP-Na issus de <b>(LESPIAUX 1997)</b>	171
5.5	Fragmentation des joints de grains de l'essai REP-Na 2 issus de <b>(SCHMITZ 1999)</b>	172
5.6	Représentations schématiques de l'endommagement après les essais REP-Na 4 (à gauche) et REP-Na 5 (à droite)	174
5.7	Réponse de la loi de comportement de fissuration en $1D$	176
5.8	Description des états d'équilibre dans le plan "contrainte/déformation d'endommagement" caractérisant la loi de comportement DDIF2	181
5.9	Chargements biaxiaux ( $x, y$ ) utilisés pour l'étude de la surface de charge donnée par la loi L3F	183
5.10	Surface de charge ( $\sigma_{xx}$ , $\sigma_{yy}$ ) donnée par la loi L3F pour une vitesse de déformation équivalente de $10^{-1} \text{ /s}$	184

5.11 Surface de charge ( $\sigma_{xx}, \sigma_{yy}$ ) donnée par la loi L3F pour une vitesse de déformation équivalente de 1 /s	185
5.12 Surface de charge ( $\sigma_{xx}, \sigma_{yy}$ ) donnée par la loi L3F pour une vitesse de déformation équivalente de 10 /s	187
5.13 Schéma de calcul 1D du code ALCYONE	189
5.14 Schéma de calcul 2D du code ALCYONE	189
5.15 Schéma de calcul 3D du code ALCYONE	190
5.16 Schéma de résolution itératif du code ALCYONE-RIA	190
5.17 Discrétisation axiale du crayon et conditions de température et débit caloporteur au niveau de chaque tranche	191
5.18 Phénomènes physiques et modèles associés pour le calcul mécanique	192
5.19 Paramètres de la loi de gainage GPLS issus de <b>(LE SAUX 2008)</b>	195
5.20 Résultats de simulation 1D de REP-Na 2 au niveau du plan de flux maximum	197
5.21 Résultats de simulation 1D de REP-Na 3 au niveau du plan de flux maximum	199
5.22 Résultats de simulation 1D de REP-Na5 au niveau du plan de flux maximum	201
5.23 Résultats de simulation 1D de REP-Na4 au niveau du plan de flux maximum	203
5.24 Comparaison des déformations pastiques équivalentes calculées au cours des pulses REP-Na	205
A.1 Implémentation MFront de la loi de comportement : entête	227
A.2 Implémentation MFront de la loi de comportement : entrée-sortie	228
A.3 Implémentation MFront de la loi de comportement : variables locales	229
A.4 Implémentation MFront de la loi de comportement : contraintes	229
A.5 Implémentation MFront de la loi de comportement : intégration	230





# Liste des tableaux

2.1	Correspondance entre les températures souhaitées et les température de régulation à imposer	72
3.1	Répartition de la porosité du lot de référence	87
3.2	Grille d'essais indiquant la présence ou non de fissures macroscopiques à l'issu des essais sur le lot de référence	91
3.3	Variation de densité relative des échantillons du lot de référence pendant les essais	93
3.4	Porosités surfaciques mesurés par analyses d'images à l'extrémité supérieure des pastilles du lot de référence	95
3.5	Porosités surfaciques mesurées par analyses d'images à la périphérie du plan médian des pastilles du lot de référence	95
3.6	Porosités surfaciques mesurées par analyses d'images au centre des pastilles du lot de référence	95
4.1	Répartition de la porosité du lot forte densité	122
4.2	Grille d'essai du lot forte densité indiquant la présence ou non de fissures macroscopiques à l'issu des essais	123
4.3	Paramètres du modèle initial identifiés à partir des résultats expérimentaux du lot de référence et de la base de donnée d'essais de fluage du CEA	139
5.1	Caractéristiques des crayons et conditions expérimentales des essais REP-Na	167
5.2	Déformations circonférentielles maximales dans les essais REP-Na	168
5.3	Gaz de Fission Relâchés (GFR) dans les essais REP-Na	173
5.4	Paramètres du modèle L3F utilisés pour la modélisation du comportement mécanique de l'UO <sub>2</sub>	180
5.5	Synthèse des résultats de simulation des essais REP-Na	204



# Introduction

Afin de réduire les coûts d'exploitation des réacteurs, Électricité de France (EDF) souhaite augmenter la durée de vie du combustible en réacteur et donc son taux de combustion<sup>a</sup> final pour le faire passer de 52 GWj/t (limite autorisée depuis 1998) à 62 GWj/t. Ce changement ne peut être agréé par les autorités de sûreté qu'après s'être assuré, entre autre, du maintien de l'intégrité des barrières de confinement en situation accidentelle et en particulier lors d'un accident d'injection de réactivité (Reactivity Initiated Accident, RIA). Ainsi, une étude approfondie a été menée dans les années 2000 via la mise en œuvre d'essais expérimentaux reproduisant des RIA au sein de réacteurs expérimentaux (tels que le réacteur CABRI du CEA), ceci afin de définir des critères de sûreté pertinents. L'interprétation de ces essais est basée sur l'utilisation et le développement de codes de calculs capables de reproduire le comportement thermomécanique des crayons combustibles lors du transitoire. Pour alimenter ces codes de calculs, il est indispensable de disposer de lois de comportement pour le combustible et le matériau de gainage (Zircaloy). Le développement de ces outils requiert donc la caractérisation, en laboratoire, du comportement mécanique de ces matériaux dans des conditions représentatives d'un RIA (température pouvant atteindre la fusion et vitesse de déformation jusqu'à 1 /s). Alors que les matériaux de gainage ont fait l'objet d'une attention toute particulière (programme PROMETRA sur gaine irradiée), peu de travaux ont porté jusqu'ici sur les combustibles testés en RIA (UO<sub>2</sub>, MOX). Pourtant les phénomènes présents durant un transitoire sont nombreux et bien visibles : fluage caractérisé par le comblement des évidements des pastilles, fissurations radiale et axiale, fragmentation des joints de grain.

L'étude présentée dans ce manuscrit a donc pour objectif d'améliorer la simulation du comportement mécanique du dioxyde d'uranium dans les conditions spécifiques à un RIA. Pour cela, dans un premier chapitre, un état de l'art des connaissances sur le comportement mécanique de l'UO<sub>2</sub> est proposé et mis en relation avec les conditions de sollicitations (en température et vitesse de déformation) vues par le combustible durant un RIA. D'après les simulations faites avec le code combustible ALCYONE-RIA, la température, lors d'un RIA, augmente rapidement et de façon quasi adiabatique dans le combustible à

---

a. Énergie thermique produite par les fissions nucléaires par unité de masse de combustible, exprimée en GigaWatts jour par tonne (GWj/t)

l'exception de la zone périphérique où apparaît un pic de température pouvant dépasser les 2000 °C. Le combustible est soumis simultanément à des vitesses de déformation dépassant les 1 /s. En s'appuyant sur ces résultats et en prenant en compte les limitations induites par le matériel expérimental disponible au CEA, un programme de caractérisation du comportement mécanique de l'UO<sub>2</sub> vierge (non irradié) a été réalisé sur 2 lots d'échantillons. Des essais de compression simple à quatre températures (1100 °C, 1350 °C, 1550 °C et 1700 °C) et quatre vitesses de déformation ( $10^{-4}$  /s,  $10^{-3}$  /s,  $10^{-2}$  /s et  $10^{-1}$  /s) ont ainsi été mis en œuvre. Le chapitre 2 détaille donc les moyens expérimentaux utilisés ainsi que les analyses systématiques (densité, porosité ouverte, analyse d'images MEB pour déterminer le spectre poreux) effectuées sur les échantillons avant et après essai. Les résultats issus de la campagne expérimentale sur le lot de référence sont présentés dans le chapitre 3. Ils ont permis de proposer un modèle de fluage compressible valable en conditions accidentelles mais également dans les conditions usuelles de fonctionnement d'un réacteur. Dans le chapitre 4, les résultats issus de la campagne expérimentale sur le lot haute densité sont présentés ainsi que l'amélioration du modèle de fluage compressible vis-à-vis de la dépendance de la réponse du modèle à la porosité. Sur la base des essais, un critère de fragmentation des joints de grain a également été établi et a donné lieu à la définition d'un modèle de plasticité pour les joints de grain. Enfin, dans le dernier chapitre, ces modèles de fluage et de plasticité ont été couplés à un modèle de fissuration macroscopique en traction et introduits dans le code combustible ALCYONE-RIA. La simulation de plusieurs essais de pulse a permis de valider l'approche par comparaison aux observations post-irradiatoire portant sur la fragmentation des joints de grain.

# 1. Contexte de l'étude

## Table des matières

1.1	Généralités sur le domaine du nucléaire	19
1.1.1	Introduction	19
1.1.2	Le nucléaire civil en France	20
1.1.3	Fonctionnement général d'un REP	20
1.1.4	Le combustible nucléaire	21
1.2	Accident d'injection de réactivité	22
1.2.1	Contexte et problématique générale	22
1.2.2	Scénario et phénomènes présents	24
1.2.3	Conditions thermo-mécaniques dans le combustible	27
1.3	Propriétés physiques de l'UO <sub>2</sub>	30
1.3.1	Structure cristallographique	30
1.3.2	Écart à la stœchiométrie	30
1.3.3	Dislocations et systèmes de glissement	32
1.4	Comportement mécanique de l'UO <sub>2</sub>	32
1.4.1	Coefficients élastiques	33
1.4.2	Comportement de l'UO <sub>2</sub> en compression	33
1.4.3	Comportement de l'UO <sub>2</sub> en flexion	45
1.5	Modèles de fluage	50
1.5.1	Approches phénoménologiques	50
1.5.2	Fluage avec effet d'historique	52
1.5.3	Modèle de fluage compressible	54
1.6	Synthèse et objectif du travail	57

## 1.1. Généralités sur le domaine du nucléaire

### 1.1.1. Introduction

Le domaine du nucléaire inclut l'ensemble des techniques et des industries permettant de produire et d'exploiter l'énergie issue de la fission ou de la fusion d'atomes, ainsi que la gestion des déchets qui en résultent. Dans le domaine

civil, il comprend tout un ensemble de technologies permettant de construire, d'alimenter, de faire fonctionner et de démanteler des centrales nucléaires, mais aussi des savoir-faire relatifs à la médecine nucléaire. Dans le domaine militaire, sont développées les techniques relatives aux armes atomiques, à leur conception, leur production, leur stockage et leur utilisation. La propulsion nucléaire navale est essentiellement militaire, néanmoins quelques navires civils (tels que certains brise-glaces) utilisent ce procédé.

### 1.1.2. Le nucléaire civil en France

Le parc électronucléaire Français compte 58 Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) (**Figure 1.1**). En 2011 ces réacteurs ont produit 74 % de l'électricité Française et il est estimé que l'industrie électronucléaire génère environ 410 000 emplois pour une valeur ajoutée de 33,5 G€ par an (source : présentation PwC pour Areva "le poids socio-économique de l'électronucléaire en France").



Figure 1.1. – Parc électronucléaire français.

### 1.1.3. Fonctionnement général d'un REP

Le fonctionnement général d'un REP peut être décrit par le schéma suivant (**Figure 1.2**) :

- Dans la cuve du réacteur se trouve le combustible qui produit de la chaleur par des réactions de fissions nucléaires.
- Cette chaleur est récupérée par l'eau qui circule dans le circuit primaire et qui est maintenue liquide à 300 °C par une pression de 155 bar. Elle est ensuite transportée jusqu'à un échangeur thermique.
- L'eau du circuit secondaire y est vaporisée (à 270 °C et 55 bar). Cette vapeur va alors mettre en mouvement des turbines reliées à un alternateur, ce qui produit du courant alternatif. Par la suite la vapeur du circuit secondaire va être condensée au sein d'un condensateur et être transportée jusqu'à l'échangeur thermique pour y être vaporisée de nouveau.
- Au niveau du condensateur se trouve un circuit de refroidissement dit tertiaire qui évacue le surplus de chaleur. L'eau de ce circuit de refroidissement est à son tour refroidie dans des tours appelées aéroréfrigérant.

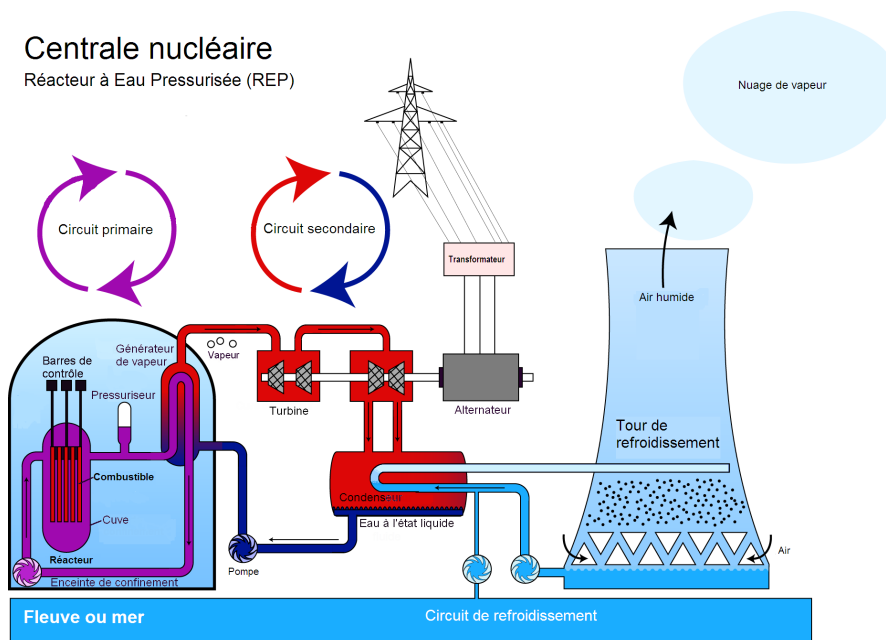


Figure 1.2. – Schéma de fonctionnement d'un REP.

#### 1.1.4. Le combustible nucléaire

Le combustible nucléaire est, comme son nom l'indique, le consommable utilisé dans les réacteurs nucléaires pour produire la chaleur nécessaire à son fonctionnement. Dans les REP, le combustible employé est principalement le dioxyde d'uranium ( $\text{UO}_2$ , une céramique) conditionné sous forme de petits cylindres (d'environ 13 mm de haut et 8 mm de diamètre appelés pastille combustible) à l'aide d'un procédé de frittage de poudres. Ces pastilles sont



Figure 1.3. – Des pastilles combustibles (à gauche) à l'assemblage (à droite) en passant par le crayon (au centre).

empilées dans une gaine d'environ 4 m de haut en alliage métallique à base de zirconium qui constitue la première barrière de confinement. Un jeu d'environ  $80\text{ }\mu\text{m}$  existe en début de vie entre les pastilles et la gaine. L'ensemble pastille plus gaine définit ce que l'on appelle le crayon combustible. Le volume libre contenu entre les pastilles et la gaine est rempli avec de l'hélium à une pression de 25 bar. Un assemblage est alors construit en regroupant un réseau carré de 264 crayons (**Figure 1.3**). Un REP 1300 MW comprend 193 assemblages dans son cœur.

## 1.2. Accident d'injection de réactivité

### 1.2.1. Contexte et problématique générale

Le 26 Avril 1986, l'accident de la centrale nucléaire de Tchernobyl a rappelé le potentiel destructeur d'une excursion de puissance. Les services publics et les organismes de sûreté ont alors entrepris un examen des accidents d'injection de réactivité possibles dans leurs propres centrales électriques. Par ailleurs, depuis les années 1990, plusieurs changements ont eu lieu dans la gestion de base des cœurs de réacteurs nucléaires :

- Le taux de combustion<sup>a</sup> maximal a augmenté.
- Le combustible MOX (Mixed OXyde constitué d'un mélange d' $\text{UO}_2$  et de dioxyde de plutonium) a fait son apparition.
- De nouveaux matériaux de revêtement ont été utilisés pour la fabrication des crayons combustibles (M5, Zirlo).

---

a. Énergie thermique produite par les fissions nucléaires par unité de masse de combustible, exprimée en GigaWatts jour par tonne ( $\text{GWj/t}$ )



Ces changements ont soulevé la question de la pertinence des critères de sûretés établis jusqu'ici pour l' $\text{UO}_2$  irradié jusqu'à des taux de combustion moyens (32 GWj/t) et pour des gainages en  $\text{Zr}_4$  détendu.

Notre étude se situe donc dans un contexte accidentel. Plus précisément, en situation accidentelle d'injection de réactivité (ou RIA pour Reactivity Initiated Accident). Cet accident hypothétique de dimensionnement (fréquence inférieure à  $10^{-4}$  par tranche et par an) est causé par l'éjection intempestive d'une grappe de contrôle hors du cœur du réacteur. Cette situation entraîne un emballement local de la réaction nucléaire qui génère un transitoire rapide de puissance (pulse de puissance) au cours duquel la température du combustible croît très rapidement (en quelques dizaines de ms) avec une déformation du gainage en résultant qui peut atteindre quelques % pendant cet intervalle de temps.

Il est naturellement impossible de reproduire un RIA en conditions réelles dans un réacteur commercial. Néanmoins, des essais représentatifs d'une excursion de réactivité et visant à simuler un RIA ont été réalisés en réacteurs expérimentaux. Entre 1969 et 1970 dans le réacteur SPERT (Special Power Excursion Reactor) aux USA, entre 1978 et 1980 dans le réacteur PBF (Power Burst Facility) aux USA, depuis 1980 dans le réacteur NSRR (Nuclear Safety Research Reactor) au Japon (FUKETA 1996 ; FUKETA 1997, 2001, 2006) et depuis 1993 dans le réacteur CABRI en France (SCHMITZ 1999 ; PAPIN 2007). En se basant sur les résultats des essais réalisés sur des crayons irradiés jusqu'à un taux de combustion de 32 GWj/t dans les réacteurs SPERT, PBF et NSRR, un critère de sûreté unique avait été établi pour garantir un dégagement d'énergie thermique limité et préserver le refroidissement du cœur. Il a également été montré que l'enthalpie déposée dans la pastille de combustible devait rester inférieure à une enthalpie limite de 200 cal/g (MACDONALD 1980). Plus tard, certains essais réalisés sur des combustibles à forts taux de combustion (jusqu'à 64 GWj/t) dans les réacteurs NSRR et CABRI ont révélé des ruptures prématurées des gaines pour des niveaux d'enthalpie nettement inférieurs à ceux fixés par le domaine de sûreté (30 cal/g pour le premier essai REP-Na 1 réalisé dans le réacteur CABRI) : le critère de sûreté établi pour les combustibles faiblement irradiés n'est donc pas adapté aux combustibles à forts taux de combustion (VITANZA 2006).

L'interprétation des essais réalisés en réacteurs expérimentaux repose sur des codes de calculs capables de reproduire le comportement thermomécanique des crayons combustibles lors du transitoire. Pour ne citer que les plus connus, les codes FALCON (RASHID 2004), FRAPTRAN (CUNNINGHAM 2001), RANNS (SUZUKI 2006b), SCANAIR (MOAL 2014 ; GEORGENTHUM 2014) et ALCYONERIA (SERCOMBE 2009 ; GOLDBRONN 2013) sont respectivement développés par l'Electric Power Research Institute (EPRI) aux USA, la Nuclear Regulatory Commission (NRC) aux USA, le Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI) au Japon, l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) en France et le commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives (CEA) en

France. Pour alimenter ces codes de calculs, il est indispensable de disposer de lois de comportement pour le combustible et le gainage. Le développement de ces outils requiert donc la caractérisation, en laboratoire, du comportement mécanique de ces matériaux dans des conditions de sollicitation représentatives d'un transitoire de puissance (température, vitesse de déformation). Alors que le comportement de la gaine en RIA a fait l'objet de nombreux travaux et d'un programme expérimental dédié au CEA (CAZALIS 2007 ; LE SAUX 2008 ; HELLOUIN DE MENIBUS 2012), très peu d'études de caractérisation ont porté sur le combustible en conditions représentatives d'un RIA (haute température et forte vitesse de déformation). Dans la plupart des codes, le comportement du combustible est ainsi considéré comme élastique ou élasto-plastique parfait avec un seuil constant indépendant de la température.

### 1.2.2. Scénario et phénomènes présents

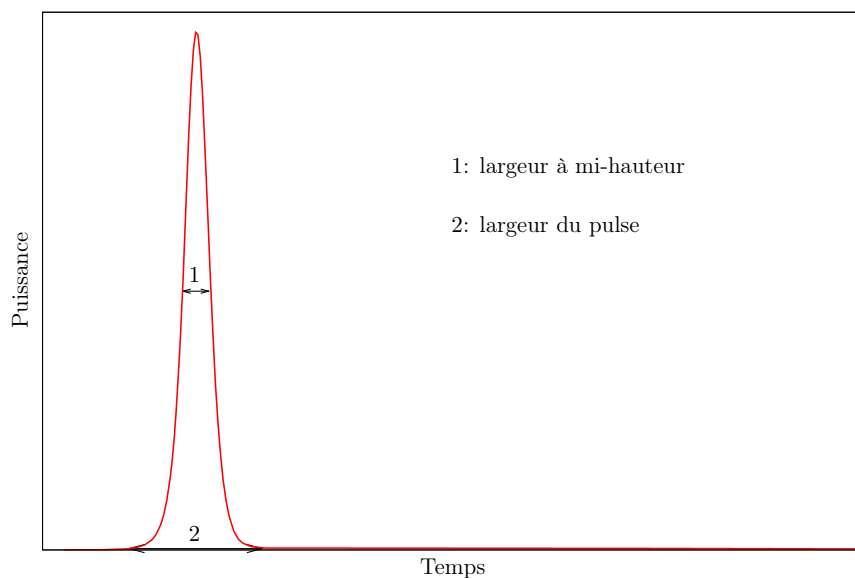


Figure 1.4. – Schéma d'un pulse de puissance caractéristique d'un RIA.

Le RIA le plus sévère à prendre en compte dans la conception d'un REP aurait lieu en condition d'arrêt à chaud, c'est-à-dire pour une température et une pression du réfrigérant normales mais pour une puissance du cœur quasi nulle. Ce scénario postule donc l'éjection d'une grappe de contrôle hors du réacteur du fait de la différence de pression de 150 bar entre le circuit primaire et l'enceinte de confinement. Il en résulte localement une augmentation rapide de la réactivité (sur quelques dizaines de millisecondes) susceptible d'enclencher un emballement de la réaction nucléaire (régime critique). Cet emballement reste cependant limité dans le temps par l'effet Doppler neutronique. Du fait

de l'augmentation de la température dans le combustible, la surface spécifique d'absorption des neutrons augmente, ce qui a pour effet de rapidement arrêter la réaction.

L'évolution de la puissance dans le combustible prend donc la forme d'un pulse caractérisé par sa largeur à mi-hauteur et l'énergie déposée pendant sa durée (voir **Figure 1.4**). Les caractéristiques du pulse dépendent :

- du scénario postulé,
- de la conception du cœur,
- de l'état du combustible (taux de combustion).

Seuls des calculs à l'échelle du cœur d'un réacteur peuvent définir les conditions locales réelles d'excursion de puissance au niveau d'un crayon combustible.

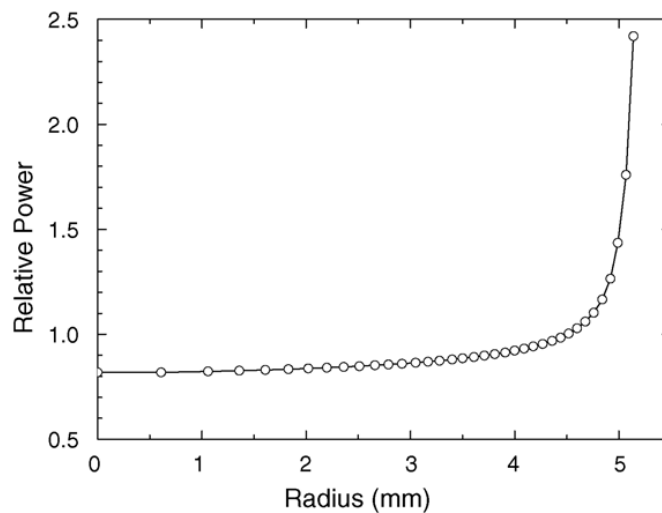


Figure 1.5. – Profil radial de densité de puissance en fin d'irradiation de base (proportionnel à la quantité d'éléments fissiles); issu de (**Suzuki 2006a**).

Les essais de RIA en réacteurs expérimentaux permettent de simplifier le problème et de ne tester qu'un seul crayon dans des conditions de puissance prédéfinies. Avant de décrire les conséquences qu'a un pulse sur le combustible, il est utile ici de rappeler brièvement le comportement du crayon combustible pendant le fonctionnement nominal (appelé irradiation de base) en réacteur commercial. Les crayons testés en réacteurs expérimentaux présentent en effet un état  $t_0$  avant pulse qu'il convient de décrire.

Lors de l'irradiation de base, la première montée en puissance et le premier cycle d'une année en réacteur ont pour effet de conduire à la fermeture du jeu pastille-gaine. Il s'ensuit une déformation de la gaine imposée par le gonflement

de la pastille. En fin d'irradiation de base, le profil radial d'éléments fissiles dans le combustible présente un pic en périphérie où se trouve une grande partie du plutonium produit par captation neutronique de l' $U^{238}$  (voir **Figure 1.5**). Pendant l'irradiation de base, les fissions nucléaires qui se produisent au sein du combustible créent des gaz de fission qui coalescent sous forme de bulles dans les grains, aux joints de grain ou dans les porosités déjà existantes. Plus le combustible a eu une durée d'irradiation importante, plus son taux de combustion et donc la quantité de gaz de fission qu'il contient sont importants. De plus, une migration des bulles de gaz de fission se fait progressivement vers les joints de grain. Ainsi, plus le combustible est resté longtemps en réacteur (et donc a un taux de combustion élevé), plus la quantité de gaz de fission présents aux joints de grain est importante.

Au début d'un pulse RIA, l'augmentation brutale de la puissance conduit à un échauffement quasi-adiabatique du combustible. La dilatation thermique a pour effet de rapidement refermer le jeu pastille-gaine et de conduire à une forte interaction mécanique entre les pastilles et la gaine (Pellet Clad Mechanical Interaction, PCMI) (**FUKETA 1996 ; FUKETA 1997, 2001, 2006 ; PAPIN 2007**). Dans certaines conditions, cette interaction peut conduire à la rupture de la gaine avec éjection du combustible.

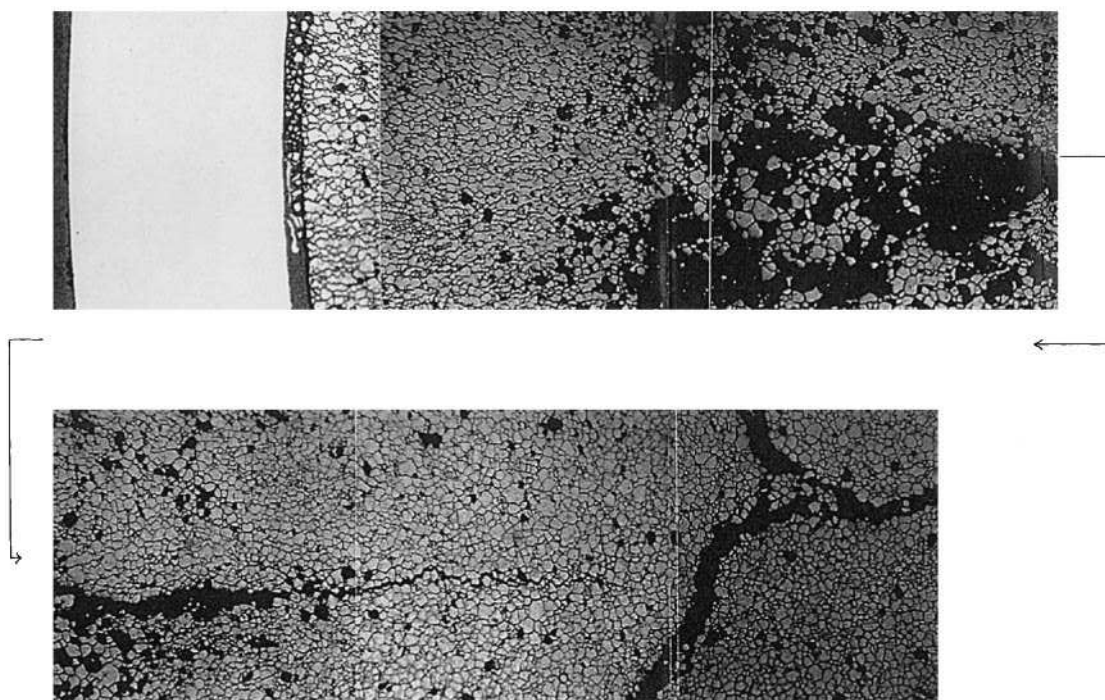


Figure 1.6. – Fissuration et fragmentation des joints de grains observées au sein d'une pastille après un pulse RIA ; issu de (**Schmitz 1999**).

L'apparition de fissures dans le combustible et d'une fragmentation des joints de grain (voir **Figure 1.6**) en début de pulse a pour effet de libérer les gaz de

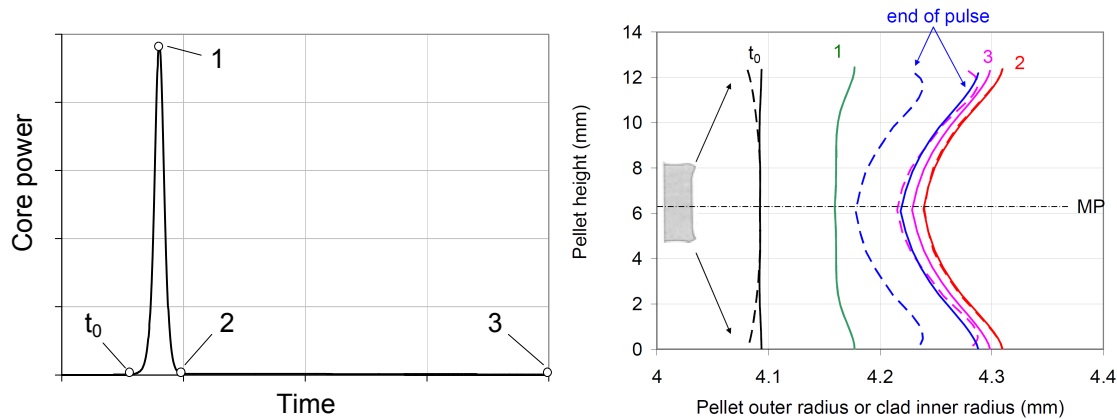


Figure 1.7. – Mise en évidence de la réouverture du jeu pastille-gaine en fin de pulse (diamètre extérieur pastille en pointillé et diamètre intérieur gaine en trait plein) ; issus de **(Sercombe 2010)**.

fission présents aux joints de grain (**FUKETA 1997 ; LEMOINE 1997 ; LEMOINE 1997 ; SASAJIMA 1999 ; SCHMITZ 1999 ; FUKETA 2001 ; PAPIN 2007**). La distinction entre fissures et fragmentation est liée à l'échelle des phénomènes : la pastille pour le premier, les grains pour le second. En fin de pulse, du fait d'un léger résidu de puissance, la température du combustible continue de croître mais le profil radial de température dans la pastille devient parabolique du fait du refroidissement du crayon par l'extérieur (**SERCOMBE 2010**). Le profil parabolique conduit alors à la mise en diabolo de la pastille (déformation en banane) avec un contact pastille gaine plus fort aux extrémités. Ce dernier peut conduire à une déformation de la gaine en vis-à-vis particulièrement importante (on parle alors de plis dans la gaine). Après quelques centaines de ms, le jeu pastille-gaine se réouvre (voir **Figure 1.7**) ce qui permet alors le relâchement des gaz de fission dans le volume libre du crayon. Ce relâchement, d'autant plus important que le taux de combustion est élevé et que la quantité de gaz de fission présent aux joints de grain l'est, peut atteindre 20 % de la totalité des gaz de fission créés.

### 1.2.3. Conditions thermo-mécaniques dans le combustible

Très peu d'études sur le comportement du combustible lors d'un RIA existent. Les caractérisations expérimentales se sont largement focalisées sur la gaine et l'étude de sa rupture (**LE SAUX 2008 ; CAZALIS 2007**). Seule la modélisation d'un RIA à l'aide d'un code de calcul permet de connaître l'état du combustible à tout instant du pulse. Actuellement, dans la majorité des codes de calcul permettant la modélisation des RIA le comportement mécanique du combustible lors d'un RIA est thermo-élastique, exception faite du code SCANAIR qui fait l'hypothèse d'un comportement thermo-plastique parfait basé sur les mesures de

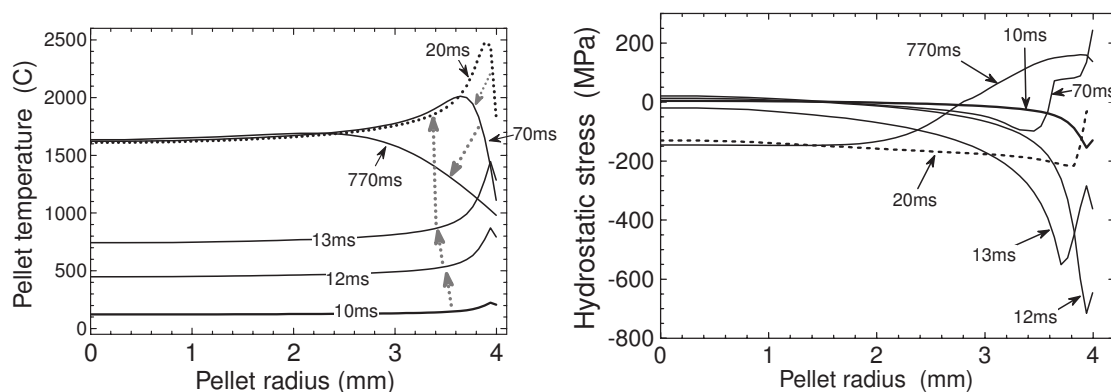


Figure 1.8. – Profil radial de température (à gauche) et de contrainte hydrostatique (à droite) dans le combustible à différents instants lors d'un pulse RIA ; d'après **(Suzuki 2008)**.

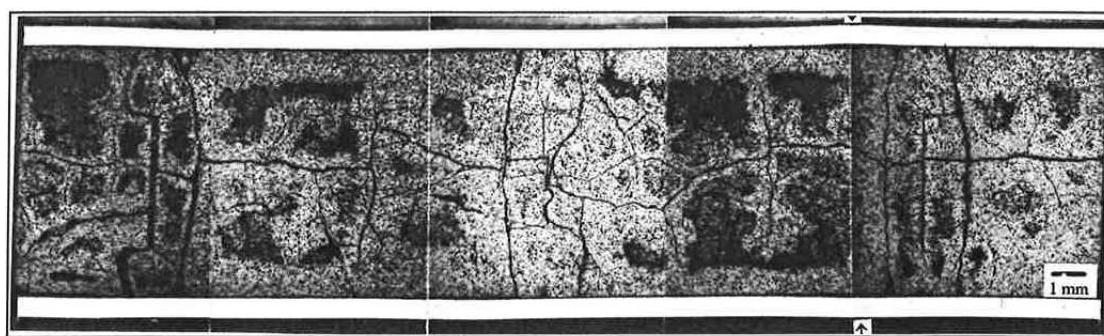


Figure 1.9. – Macrographie d'un échantillon testé présentant un comblement des évidements interpastilles caractéristique du fluage du combustible ; issus de **(Lespiaux 1997)**.

Canon (CANON 1971).

En 2008, Suzuki et al. (SUZUKI 2008) ont étudié l'état thermo-mécanique du combustible lors d'un pulse RIA dans le réacteur NSRR. Les évolutions de la température et de la contrainte hydrostatique calculées suivant le rayon de la pastille et pendant le pulse sont illustrées dans la **Figure 1.8**. Il apparaît un pic de contrainte et de température en périphérie de pastille dans les premiers instants du pulse ( $t = 12$  ms, 13 ms). La pastille combustible est ainsi fortement comprimée au voisinage de la gaine (contrainte hydrostatique supérieure à 600 MPa). Lorsque le profil de température parabolique est bien établi ( $t = 770$  ms), le centre de la pastille est comprimé, la périphérie est en traction. Les niveaux de contraintes sont de l'ordre de la centaine de MPa. Si la température est suffisante, le centre de la pastille peut fluer et venir combler les évidements (cavités hémisphériques issues de la fabrication) ainsi que le montrent les observations après essais (voir **Figure 1.9**). Le fluage du matériau  $\text{UO}_2$  est donc bien actif en RIA malgré la faible durée du pulse. Les contraintes de traction sont d'autre part à l'origine de la fissuration des pastilles en périphérie.

Afin de bien définir les conditions de sollicitation thermo-mécanique du combustible en RIA, nous présentons ci-dessous les résultats d'un calcul de l'essai REP-Na 5 (réacteur CABRI du CEA) effectué à l'aide du code ALCYONE-RIA et en utilisant une loi de comportement thermo-élastique pour le combustible (SERCOMBE 2010).

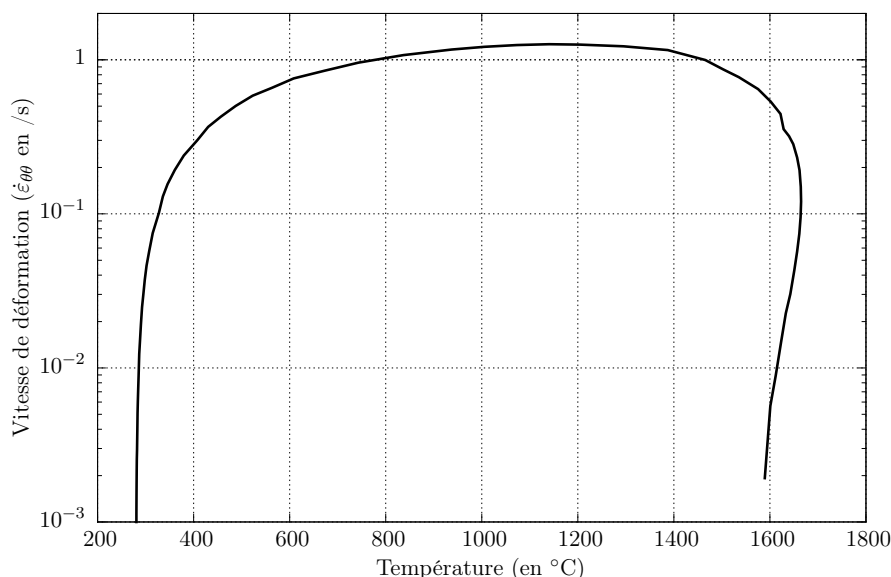


Figure 1.10. – Vitesse de déformation  $\dot{\epsilon}_{\theta\theta}$  atteinte en fonction de la température en périphérie de pastille dans la simulation de l'essai REP-Na 5.

La vitesse de déformation  $\dot{\epsilon}_{\theta\theta}$  en périphérie de pastille lors du calcul est tracée en fonction de la température sur la **Figure 1.10**. Le calcul montre que la

vitesse de déformation atteint 1 /s et dépasse les 0,1 /s sur une large gamme de température comprise entre 300 °C et 1650 °C. Ces vitesses vont bien au-delà du domaine de validation des modèles de fluage usuellement utilisés en régime nominal ou en rampe de puissance ( $\dot{\epsilon} < 10^{-5}$  /s) (MONERIE 2006). L'interprétation des résultats expérimentaux des essais RIA nécessite donc la caractérisation du comportement mécanique du combustible  $\text{UO}_2$  à forte vitesse de déformation.

## 1.3. Propriétés physiques de l' $\text{UO}_2$

### 1.3.1. Structure cristallographique

L' $\text{UO}_2$  stœchiométrique cristallise selon une structure de type fluorine. Ce réseau peut être décrit par un réseau cubique face centrée d'atomes d'uranium dont les sites tétraédriques sont occupés par un réseau cubique simple d'atomes d'oxygène (Figure 1.11). Le paramètre de maille est de 0,547 nm. Les liaisons de ce réseau sont partiellement ioniques.

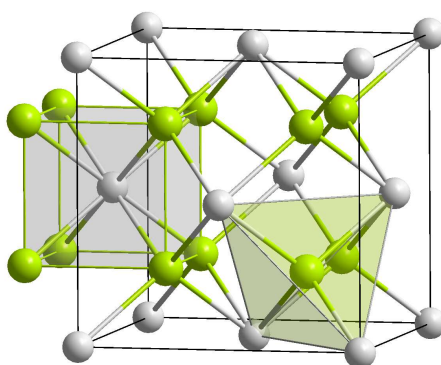


Figure 1.11. – Structure cristalline de l' $\text{UO}_2$  : atomes d'uranium en gris et d'oxygène en vert.

### 1.3.2. Écart à la stœchiométrie

À partir de la reconstitution du diagramme de phase du système U-O sur la gamme U- $\text{UO}_3$  tiré de (COLIN 2003) (voir Figure 1.12), il est remarquable, qu'à température ambiante, l' $\text{UO}_2$  n'existe que sous forme stœchiométrique. Par ailleurs, lorsque la température dépasse environ 400 °C, un large domaine de sur-stœchiométrie devient accessible. Ensuite, pour des températures supérieures à 1100 °C, la sous-stœchiométrie est possible. Finalement, le rapport O/U du dioxyde d'uranium à 2400 °C peut être compris entre des valeurs extrêmes de 1,6 à 2,3.



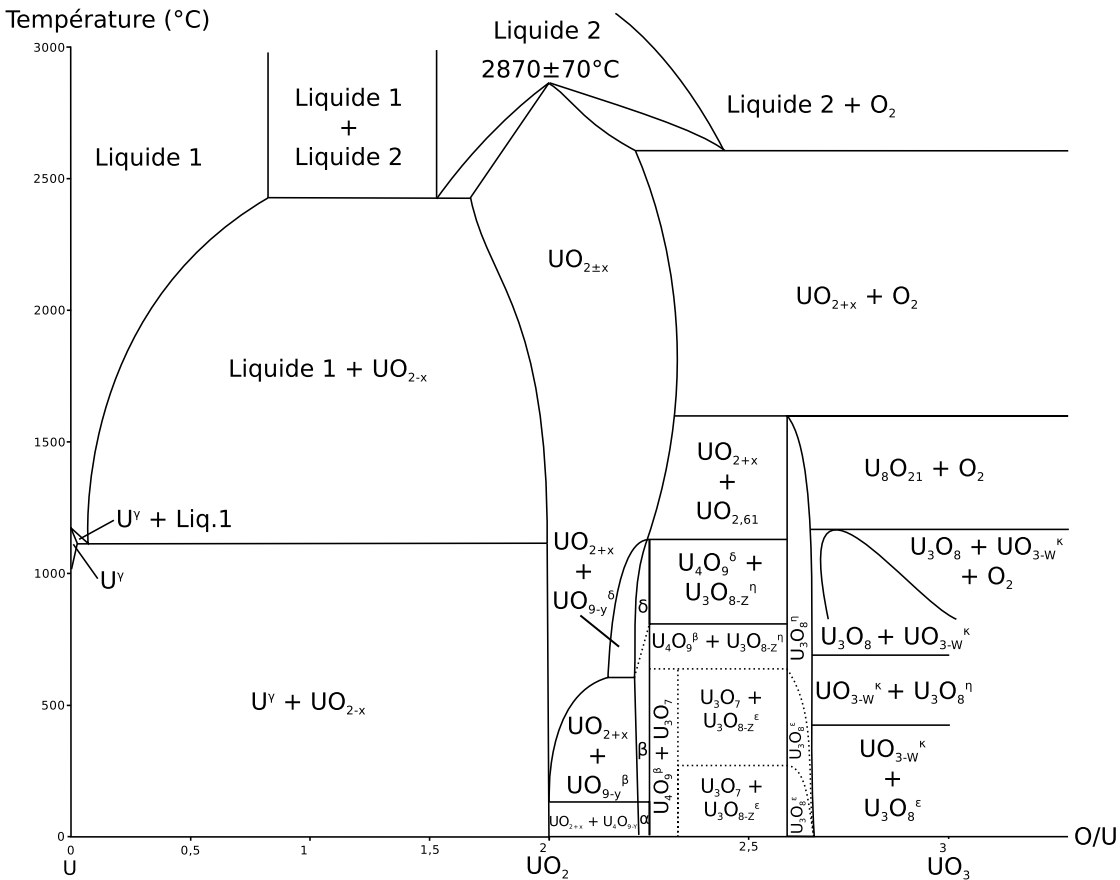


Figure 1.12. – Diagramme de phase du système U-O (**Colin 2003**).

### 1.3.3. Dislocations et systèmes de glissement

Au sein de l' $\text{UO}_2$  stœchiométrique, différents systèmes de glissement ont été étudiés dans une gamme de température comprise entre 400 K et 1 400 K (ALAMO 1978; LEFEBVRE 1977; RAPPERPORT 1960; SAWBRIDGE 1970). Les auteurs s'accordent à dire que le système  $\langle 110 \rangle \{100\}$  est le système de glissement le plus facile. Malgré tout, d'autres systèmes tels  $\langle 110 \rangle \{110\}$  et  $\langle 110 \rangle \{111\}$  ont également été observés permettant de supposer qu'une activation thermique ou encore qu'une déviation de la stœchiométrie joueraient un rôle dans ces glissements.

## 1.4. Comportement mécanique de l' $\text{UO}_2$

La déformation des matériaux est plus ou moins réversible. En début de sollicitation, l'énergie mécanique transmise au matériau est stockée sous forme d'allongement des liaisons inter-atomiques et peut être restituée à l'arrêt de toute sollicitation (déformation élastique réversible) ce qui se traduit par une relation linéaire entre la contrainte et la déformation. Ensuite, le chargement atteint un seuil critique qui se traduit soit par une rupture fragile (la limite à rupture est atteinte), soit par une déformation irréversible (la limite élastique est atteinte). Cette déformation irréversible est due à une dissipation de l'énergie mécanique par rupture de liaisons et réorganisation de la structure cristalline et peut être accompagnée d'un durcissement du matériau appelé écrouissage. Les valeurs de ces limites varient en fonction de plusieurs paramètres :

- La vitesse de sollicitation (le matériau est alors dit viscoplastique),
- La température (la déformation est alors thermiquement activée),
- Les propriétés du matériaux (taille de grain, porosité, vieillissement, etc...).
- Le type de sollicitation (traction, compression, flexion, ...)

Concernant l' $\text{UO}_2$ , la plupart des études expérimentales ont consisté à tester le matériau en flexion 3 ou 4 points (SCOTT 1959; ARMSTRONG 1962, 1963, 1966; CANON 1971; SELTZER 1970; ROBERTS 1974; COLIN 2003) ou en compression (RAPPERPORT 1960; BYRON 1968b,a; SELTZER 1972; BURTON 1973; GUÉRIN 1973; RADFORD 1975; LEFEBVRE 1977). L'impact de la température a été particulièrement étudié ainsi que dans une moindre mesure celle de la porosité ou la taille de grain. De ces études, il ressort que le comportement du matériau est très différent suivant le type de sollicitation et est très dépendant de la température.

### 1.4.1. Coefficients élastiques

Les coefficients élastiques d'un matériau sont donnés, dans les essais, par les pentes des parties linéaires des courbes contrainte-déformation en compression, traction (module d'Young) et en cisaillement (module de cisaillement) (voir **Figure 1.13**).

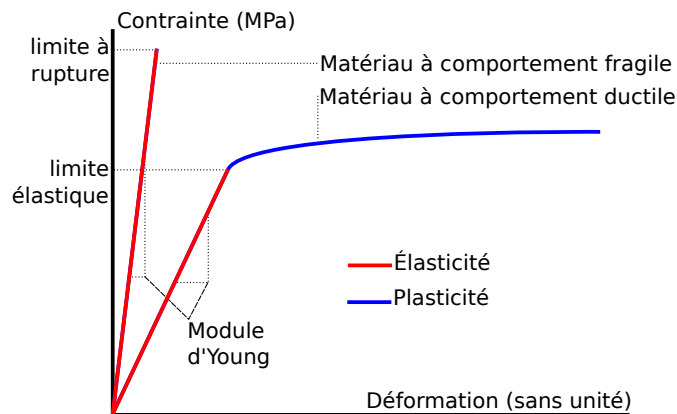


Figure 1.13. – Schéma d'une courbe contrainte-déformation d'un essai mécanique.

Ces modules ne sont pas faciles à mesurer car les méthodes expérimentales sont rarement précises et, de plus, ces coefficients varient énormément avec la température et la porosité. Néanmoins, Martin a en 1989 (**MARTIN 1989**) fait une synthèse des études de l'élasticité de l'UO<sub>2</sub> et a proposé les expressions suivantes :

$$\begin{cases} E(T, p) = (2,27 \cdot 10^2 - 1,54 \cdot 10^{-2}T - 9,60 \cdot 10^{-6}T^2) (1 - 2,5p) \text{ (GPa)} \\ G(T, p) = (85,83 - 5,16 \cdot 10^{-3}T - 3,75 \cdot 10^{-6}T^2) (1 - 2,25p) \text{ (GPa)} \end{cases} \quad (1.1)$$

Ces expressions montrent que la température et la porosité ont pour effet de diminuer les modules d'Young et de cisaillement du matériau.

### 1.4.2. Comportement de l'UO<sub>2</sub> en compression

L'UO<sub>2</sub> a été largement étudié en compression simple dans les gammes de sollicitation vues par le combustible en fonctionnement nominal ou incidentel en réacteur. Nous allons dans cette partie essayer de récapituler les études effectuées ainsi que les principaux résultats de chacune d'entre elles.

Byron a réalisé en 1968 des essais de compression à une vitesse de déformation imposée de  $10^{-3}$  /s et à des températures comprises entre 600 °C et 2000 °C (**BYRON 1968b**). Ces essais ont été menés sur un UO<sub>2</sub> stœchiométrique présentant une densité théorique de 97 % et une taille de grain de 19 µm. Les

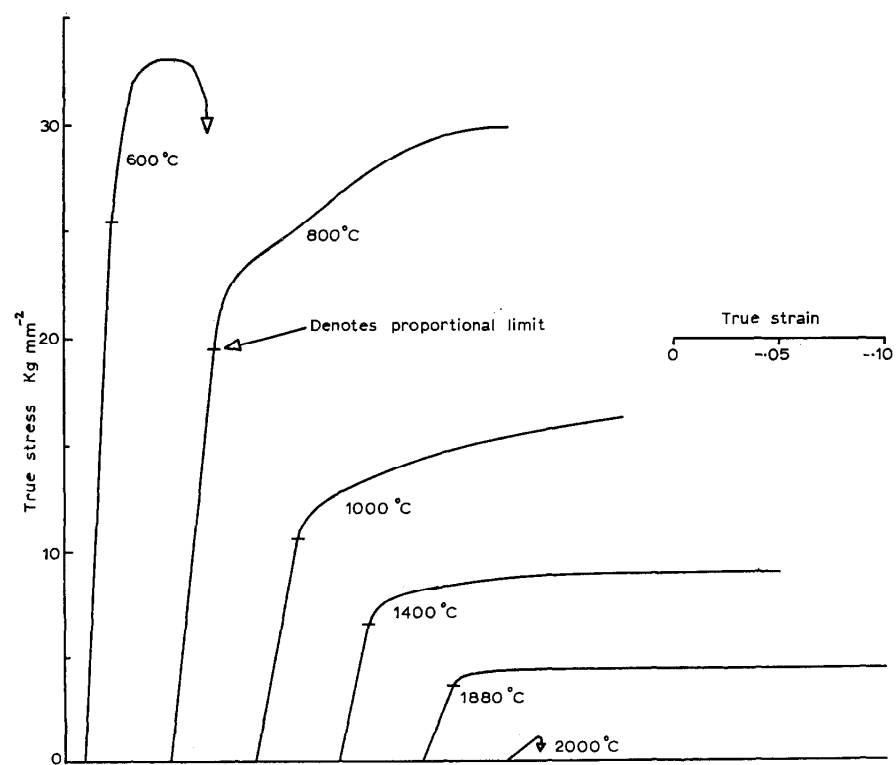


Figure 1.14. – courbes contrainte-déformation dans l'étude de Byron (**Byron 1968b**).

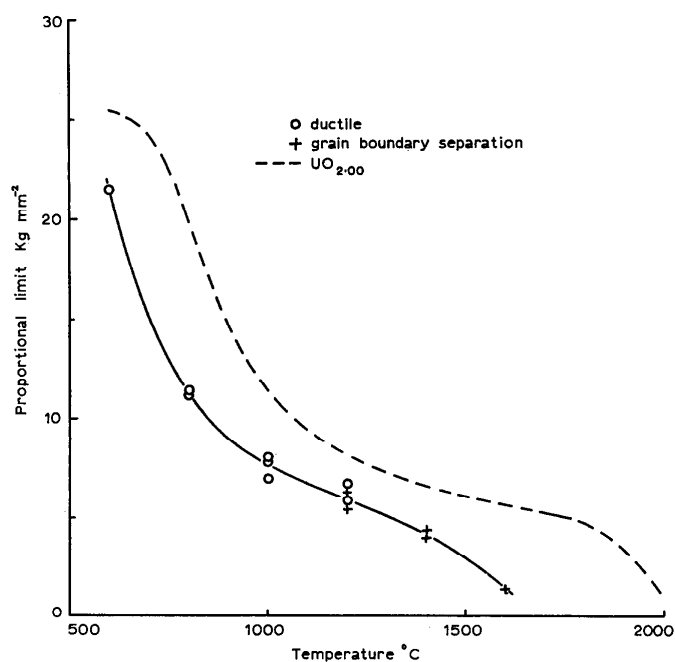


Figure 1.15. – Dépendance de la limite d'élasticité à la température avec indication de l'apparition d'une fragmentation des joints de grain dans l'étude de Byron (**Byron 1968b**).

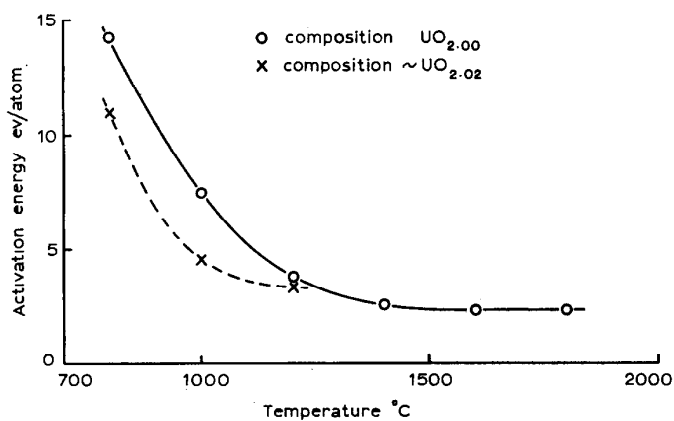


Figure 1.16. – Dépendance de l'énergie d'activation à la température dans l'étude de Byron (**Byron 1968b**).

résultats ont montré que la contrainte maximale décroît lorsque la température augmente (voir **Figures 1.15 et 1.14**). Cette décroissance est d'autant plus rapide que la température est faible. Les courbes contrainte vraie-déformation vraie montrent également un écroûissage de pente croissante lorsque la température diminue (voir **Figure 1.14**). En introduisant de l'oxygène dans l'atmosphère du four pour faire passer la stœchiométrie de 2 à 2,02, Byron a observé une température de transition de 1200 °C à partir de laquelle une rupture par fragmentation des joints de grain apparaît lors des essais (voir **Figure 1.15**). Enfin en faisant varier la vitesse de déformation d'un facteur 5 il a déterminé que l'énergie d'activation thermique décroît lorsque la température augmente (voir **Figure 1.16**).

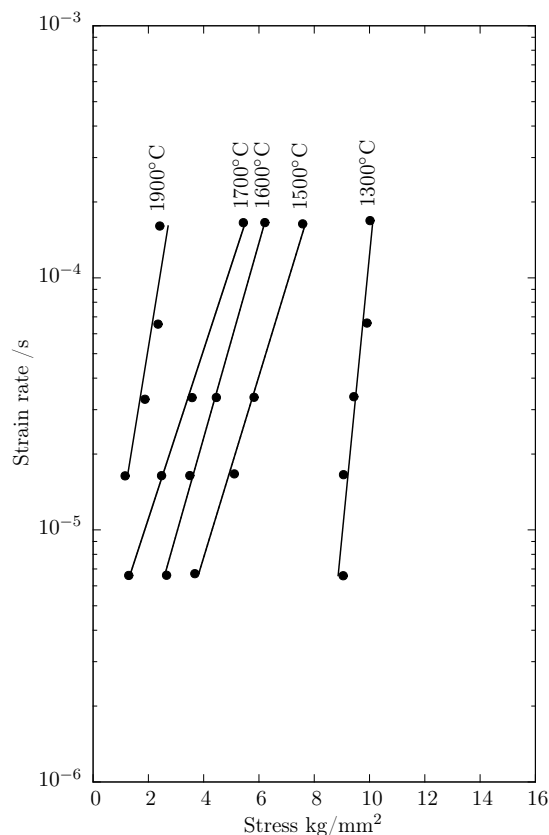


Figure 1.17. – Dépendance de la limite d'élasticité à la vitesse de déformation dans l'étude de Nadeau (**Nadeau 1969**).

En 1969, Nadeau (**NADEAU 1969**) montre qu'à faible vitesse de déformation, la relation entre le logarithme de la limite d'élasticité et le logarithme de la vitesse de déformation est quasi linéaire à forte température avec une pente qui varie entre 0,79 et 1,25. À 1300 °C en revanche, la dépendance est plus marquée avec une pente de 3 (voir **Figure 1.17**). La même année, Bohaboy et al. (**BOHABOY 1969**) ont utilisé une loi puissance pour relier la vitesse de déformation à la

contrainte avec un exposant de 4,5. Ils ont ainsi pu modéliser le fluage de l'UO<sub>2</sub> pour des contraintes jusqu'à 100 MPa et des températures comprises entre 1440 °C et 1760 °C. Cette loi, qui a la particularité de dépendre de l'inverse du carré de la taille de grain et de l'inverse de la densité est de la forme suivante :

$$\dot{\epsilon} = A \sigma \exp\left(\frac{-90\,000}{RT}\right) + B \sigma^{4,5} \exp\left(\frac{-132\,000}{RT}\right) \quad (1.2)$$

où :

$$A = \frac{9,728 \cdot 10^6}{(-87,7 + D) G^2} \quad (1.3)$$

$$B = \frac{1,376 \cdot 10^{-4}}{-90,5 + D} \quad (1.4)$$

avec  $\dot{\epsilon}$  la vitesse de fluage stationnaire /h,  $\sigma$  la contrainte de compression,  $R$  la constante des gaz parfait valant 1,986 cal/mol/K,  $T$  la température en K,  $D$  la densité théorique en % et  $G$  la taille de grain en  $\mu\text{m}$ .

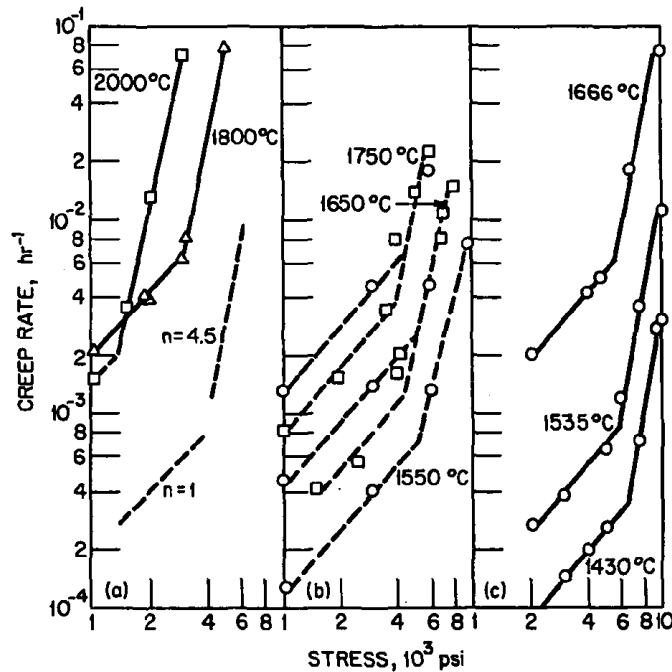


Figure 1.18. – Synthèse des études montrant les 2 premiers modes de déformation ; issue de (Seltzer 1971).

En 1971, Seltzer (SELTZER 1971) a proposé une synthèse des connaissances sur le fluage de l'UO<sub>2</sub> qui reste d'actualité même s'il convient de la compléter par les essais effectués à vitesse de déformations imposée. Seltzer décrit ainsi la vitesse de fluage  $\dot{\epsilon}$  de l'UO<sub>2</sub> par 2 lois puissances dépendantes de la contrainte  $\sigma$ , de la température  $T$ , de la taille de grain  $L$  et de l'écart à la stœchiométrie  $x$  (voir Figure 1.18) :

À faible contrainte :

$$\dot{\epsilon} \propto \frac{\sigma x}{L^2} \exp\left(-\frac{Q(x)}{RT}\right) \quad (1.5)$$

avec  $Q$  entre 90 kcal/mol (pour  $x = 0,0001$ ) et 45 kcal/mol (pour  $x = 0,05$ ).

À forte contrainte :

$$\dot{\epsilon} \propto \sigma^n x^2 \exp\left(-\frac{Q(x)}{RT}\right) \quad (1.6)$$

avec  $n$  entre 4 et 5 et  $Q$  entre 132 kcal/mol (pour  $x = 0,0001$ ) et 54 kcal/mol (pour  $x = 0,1$ ).

La première est associée à un mécanisme régi par la diffusion des lacunes. La vitesse de déformation est inversement proportionnelle au carré de la taille de grain. La seconde loi est associée au mouvement des dislocations et est indépendante de la taille de grain. La transition entre les 2 mécanismes est, d'après Seltzer, fonction de la contrainte et probablement de la taille de grain (la température jouant peu car les énergies d'activation des 2 mécanismes sont proches).

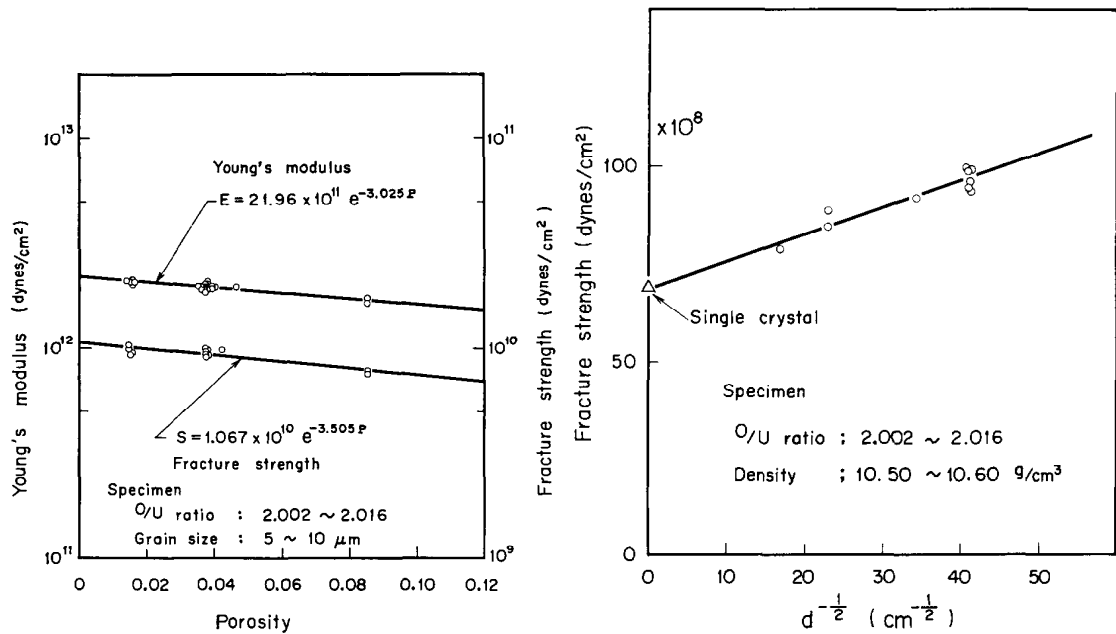


Figure 1.19. – Effet de la porosité (à gauche) et de la taille de grain (à droite) sur la contrainte à rupture dans l'étude de Igata (**Igata 1973**).

En 1972, Igata et Domoto (**IGATA 1973**) ont étudié les effets de la porosité, de



la taille de grain et de la stœchiométrie sur le module d'Young et la contrainte à rupture en compression à température ambiante. Ils ont montré un fort effet de la porosité sur le module d'Young et sur la contrainte à rupture. Tous les deux diminuent lorsque la porosité augmente suivant une fonction exponentielle (voir **Figure 1.19**). Il est également apparu que la taille de grain avait également un fort impact sur la contrainte à rupture se traduisant par une dépendance en  $\frac{1}{\sqrt{d}}$  (avec  $d$  la taille de grain) (voir **Figure 1.19**). Par ailleurs le module d'Young ne semblait pas dépendre de la taille de grain.

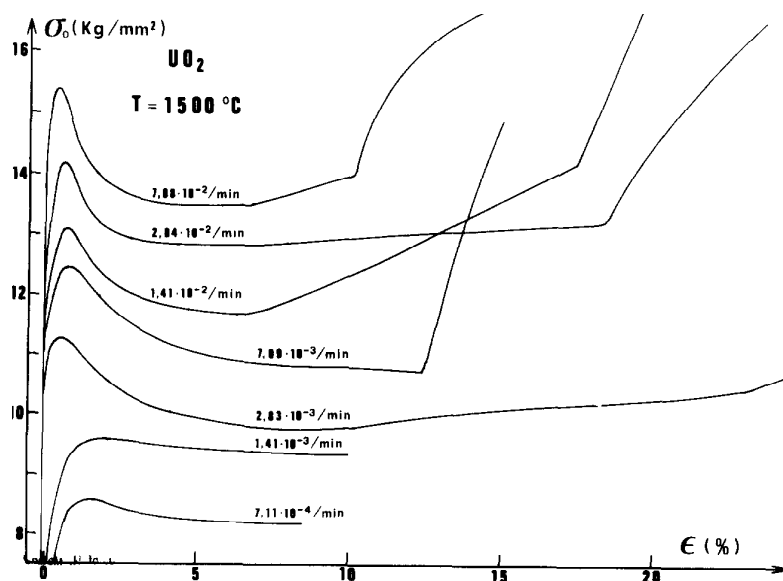


Figure 1.20. – Influence de la vitesse de déformation sur la réponse en compression de l'UO<sub>2</sub> à 1500 °C dans l'étude de Guérin (**Guérin 1975**).

En France, la première étude sur le comportement de l'UO<sub>2</sub> en compression a été faite par Guérin (**GUÉRIN 1975**). Elle a consisté en des essais à vitesse de déformation imposée ( $10^{-5}$  /s- $10^{-3}$  /s). Il a observé une augmentation de la limite d'élasticité et de la contrainte maximale et l'apparition d'un pic de compression de plus en plus prononcé à mesure que la vitesse de déformation augmente (voir **Figure 1.20**). La diminution de la température a montré le même effet que l'augmentation de la vitesse de déformation. Pour des températures inférieures à 900 °C, il est apparu que l'UO<sub>2</sub> devenait fragile (voir **Figure 1.21**). Enfin, Guérin a identifié 2 fonctions pour modéliser le comportement de l'UO<sub>2</sub> sur toute la gamme de vitesse de déformation et de température étudiée. La première, valable pour des contraintes entre 40 MPa et 100 MPa consiste à relier la vitesse de déformation à la contrainte appliquée par une loi puissance avec un exposant 4,5. La deuxième, valable pour des contraintes plus élevées est également basée sur une loi puissance mais avec un exposant très élevé de 17 (voir **Figure 1.22**). De ce fait, il préconise plutôt à forte contrainte l'utilisation d'une loi en sinus hyperbolique simplifiée en une exponentielle. Les fonctions proposées ont la

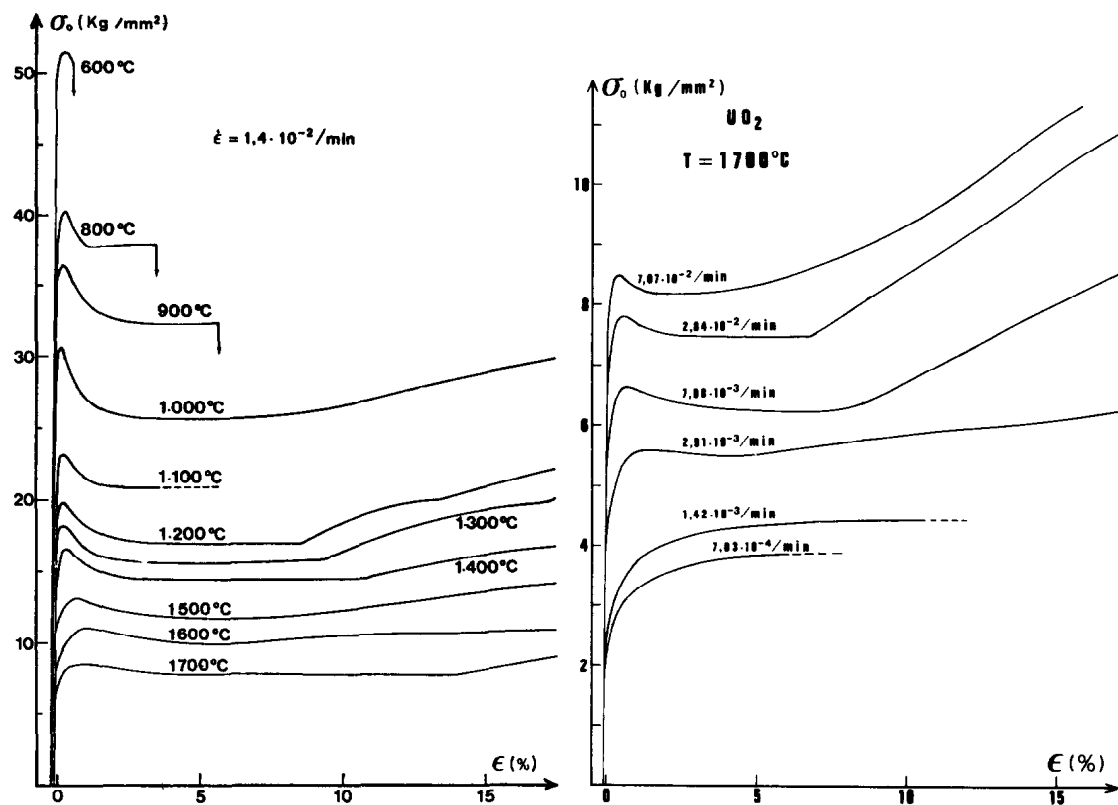


Figure 1.21. – Effet de la température (à gauche) et de la vitesse de déformation (à droite) sur les courbes contrainte-déformations dans l'étude de Guérin (Guérin 1975).

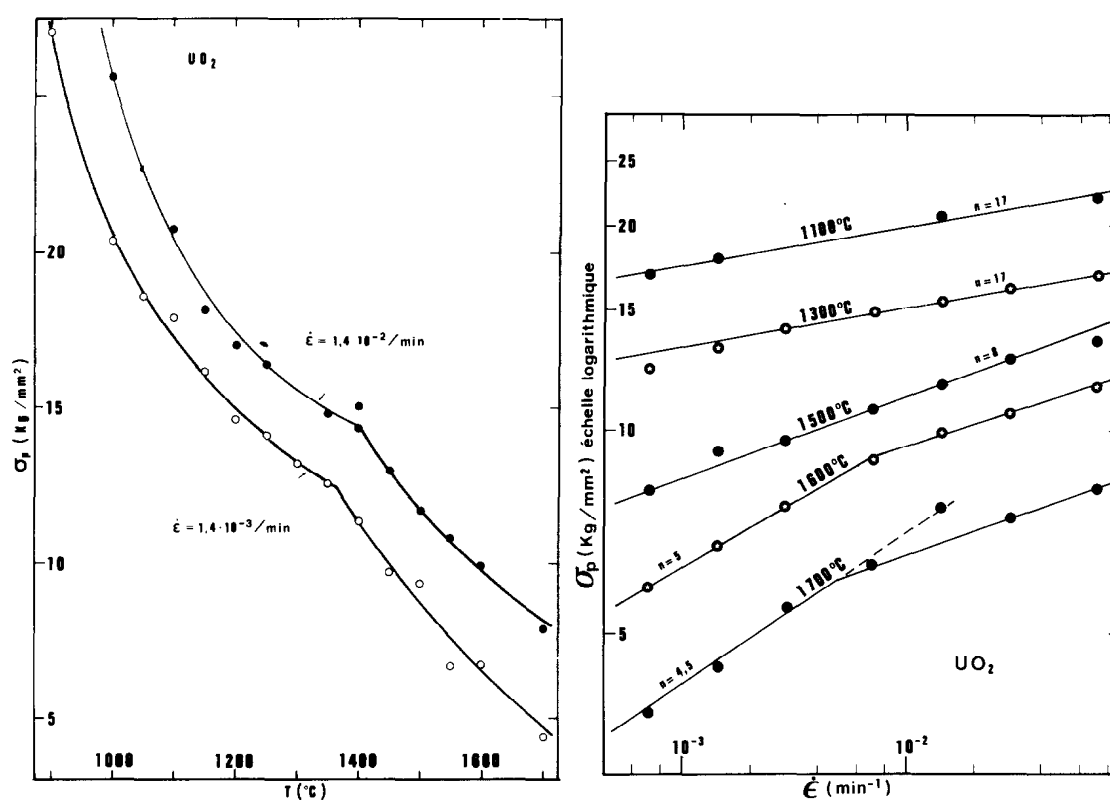


Figure 1.22. – Variation de la limite élastique avec la température (à gauche) et avec la vitesse de déformation (à droite) dans l'étude de Guérin (Guérin 1975).

forme suivante :

À faible contrainte (40 MPa - 100 MPa) :

$$\dot{\epsilon} = \frac{C}{T} \sigma^{4,5} \exp\left(\frac{-\Delta H}{RT}\right) \quad (1.7)$$

avec  $\Delta H = 96$  kcal/mol et  $C$  une constante.

À forte contrainte (> 100 MPa) :

$$\dot{\epsilon} = C \exp\left(\frac{-(\Delta U - V(\sigma - \sigma_i))}{RT}\right) \quad (1.8)$$

avec  $\Delta U$  la hauteur énergétique de l'obstacle à franchir,  $V$  le volume d'activation et  $\sigma_i$  la contrainte interne valant 3 à 5 kg/mm<sup>2</sup>.

Une étude du comportement mécanique de l'UO<sub>2</sub> à forte vitesse de déformation a été faite par Tachibana et al (**TACHIBANA 1976**) en 1976. Une série d'essais de compression à vitesses de déformation imposées de 5.10<sup>-2</sup> /min, 10<sup>-1</sup> /min, 1 /min et 10 /min et à des températures comprises entre 900 °C et 2000 °C a été effectuée. Les résultats ont montré une forte dépendance de la contrainte à la température avec apparition d'un pic de compression et d'un écrouissage prononcé à faible température (voir **Figure 1.23**). Les auteurs ont alors cherché à relier la vitesse de déformation à la contrainte par une loi puissance. Il est apparu que l'exposant de la contrainte était compris entre 14 et 33, soit bien supérieur aux valeurs obtenues à plus faible vitesses de déformations. Tachibana et al. concluent que les déformations à forte vitesse sont contrôlées par les forces de Peierls-Nabarro.

Une étude des mécanismes de rupture de l'UO<sub>2</sub> a été faite en 1975 par Reynolds et al. (**REYNOLDS 1975**). Des essais de compression à 1350 °C sur des pastilles d'UO<sub>2</sub> comportant 3 % de porosité et présentant une taille de grain de 7 µm ont été menés à des vitesses de déformation de 10<sup>-6</sup> /s et 2 10<sup>-3</sup> /s. Les résultats ont montré qu'à faible vitesse de déformation, la rupture nécessite la croissance de cavités sur les joints parallèles à l'axe de compression. À plus forte vitesse de déformation, la rupture se produit par fragmentation des joints de grain, le phénomène étant lié aux micro-fissures qui se propagent à partir des points triples.

La forme des pores joue également un rôle dans la rupture de l'UO<sub>2</sub> (**WERNER 1983a**). Des essais de compression à des vitesses de déformation comprises entre 10<sup>-5</sup> /s et 1 /s et à des températures de 1600 °C et 1700 °C ont été faits sur UO<sub>2</sub> industriel (présentant des pores anguleux) et sur le même matériau après recuit (présentant des pores sphériques). Les résultats ont montré que des pores anguleux favorisent la fragmentation des joints de grain alors que dans le cas de

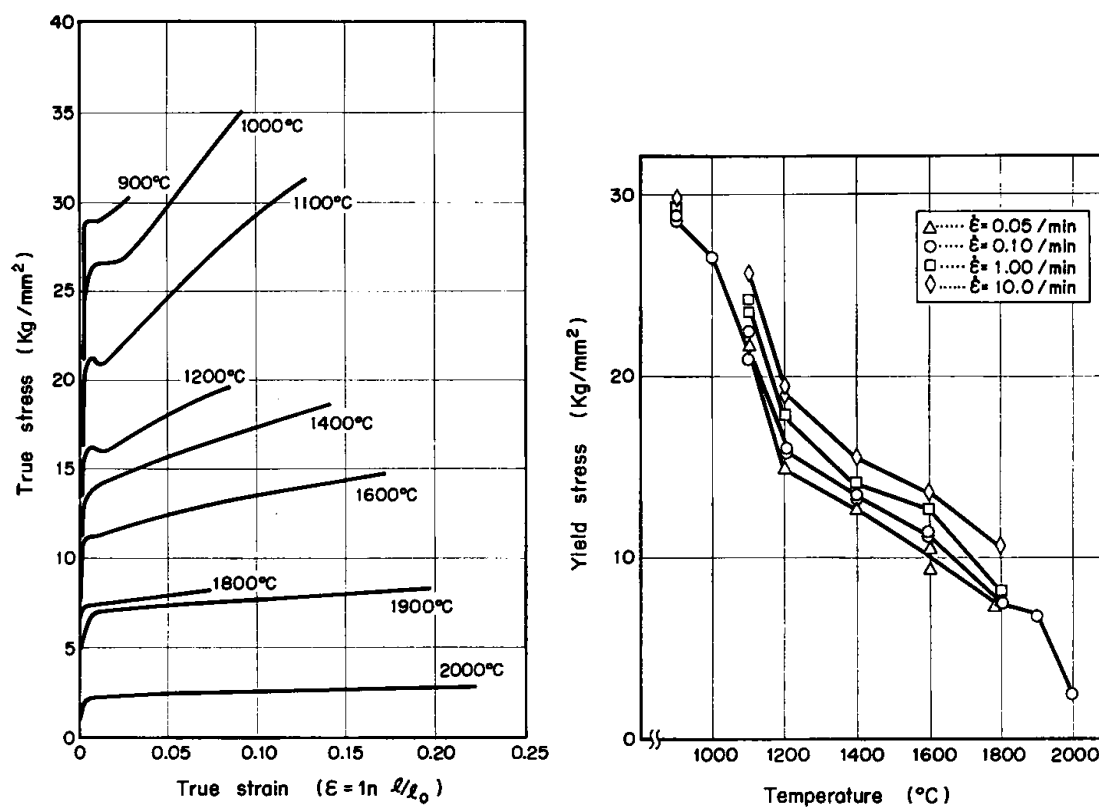


Figure 1.23. – Courbes contrainte-déformation pour une vitesse de déformation de  $10^{-1}$  /min (à gauche) et dépendance de la contrainte d'écoulement à la température pour différentes vitesses de déformation (à droite) ; Figures issues de l'étude de Tachibana et al. (**Tachibana 1976**).

pores sphériques, l'échantillon testé dans les mêmes conditions ne présente pas d'endommagement.

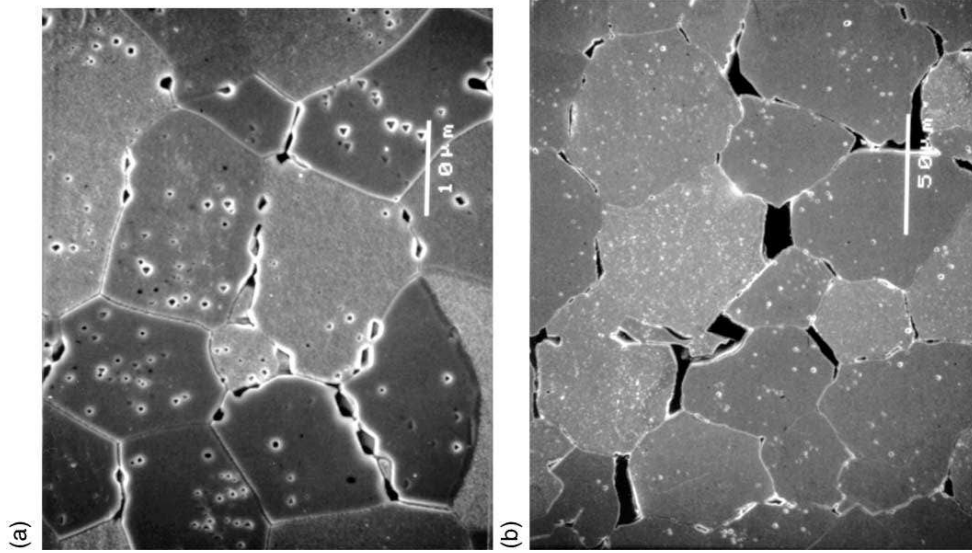


Figure 1.24. – Images MEB d'échantillons testés à 1465 °C montrant différents modes d'endommagement : (a) coalescence de bulle à faible contrainte (25 MPa) et (b) fragmentation des joints de grain à forte contrainte (50 MPa); Figures issues de **(Dherbey 2002a)**.

En 2002, Dherbey et al. **(DHERBEY 2002a)** ont réalisé des essais de fluage sur pastilles d' $\text{UO}_2$  de densité supérieure à 98 % et ayant des tailles de grain entre 9 et 36  $\mu\text{m}$ . Les essais ont été menés à une température de 1465 °C et à des contraintes de fluage comprises entre 10 et 80 MPa. Dherbey et al. ont ainsi pu observer différents modes d'endommagement (voir **Figure 1.24**), par coalescence de bulles à faible contrainte et par fragmentation des joints de grain à forte contrainte. Par analyse d'images MEB et MET (microscope électronique en transmission), il est apparu que la fragmentation était responsable de plus de 50 % de la déformation totale mesurée. Ils ont ensuite proposé de modéliser le comportement mécanique de l' $\text{UO}_2$  par une loi en sinus hyperbolique de la forme suivante :

$$\dot{\varepsilon} = \dot{\varepsilon}_m \frac{1}{d^p} \exp\left(-\frac{Q}{kT}\right) \sinh\left(\frac{\sigma V^*}{kT}\right) \quad (1.9)$$

avec  $\dot{\varepsilon}_m$  constante,  $d$  la taille de grain,  $p \approx 1,3$ ,  $Q = 377 \text{ kJ/mol}$  l'énergie d'activation,  $V^* = 70 b^3$  le volume d'activation et  $b =$  la norme du vecteur de Burger.

Dherbey et al. ont aussi montré que la fragmentation des joints de grain se produisait également à faibles niveaux de déformation (1 %) et que le phénomène était donc plutôt induit par la contrainte.

Récemment, Ndiaye (**NDIAYE 2012**) a observé un endommagement des joints de grain dès 1 % de déformation à l'issue d'essais de fluage sur des pastilles d'UO<sub>2</sub> également très denses (> 98 %). Les mêmes essais effectués sur des pastilles de densités plus faibles n'ont pas montré ce type d'endommagement.

### 1.4.3. Comportement de l'UO<sub>2</sub> en flexion

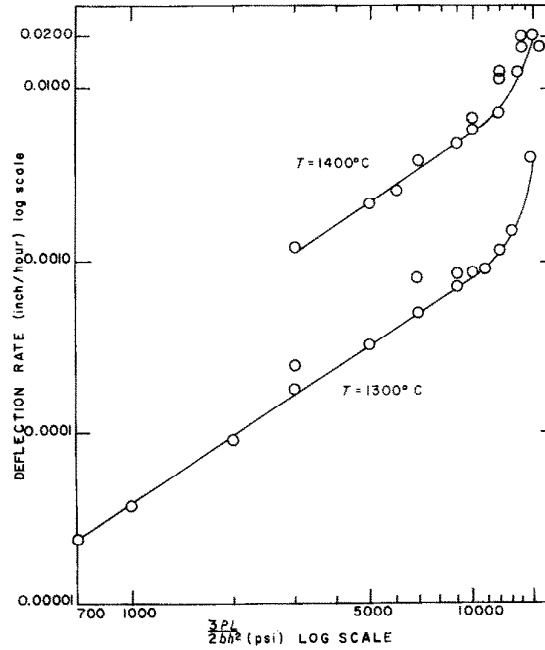


Figure 1.25. – Courbe vitesse d'évolution de la flèche en fonction de la charge appliquée d'après l'étude de (**Armstrong 1962**).

En 1962, Armstrong et al. (**ARMSTRONG 1962**) ont étudié le fluage en flexion de barreaux d'UO<sub>2</sub> présentant des porosités entre 2 % et 7 % et des tailles de grain entre 3 et 40  $\mu\text{m}$ . Les essais ont été réalisés à des températures variant de 1250 °C à 1400 °C et à des contraintes entre 5 et 110 MPa. Les résultats ont montré que la vitesse de fluage diminue avec la porosité mais n'est pas impactée par la taille de grain. Une fragmentation des joints de grain est systématiquement apparue dans les fibres en traction même à faible déformation (1 %) et d'après les auteurs, seules les porosités présentes aux joints de grain influent sur le fluage. Ils proposent finalement de modéliser ce comportement par deux fonctions puissance avec un seuil de basculement de l'une à l'autre en contrainte de 70 MPa (voir **Figure 1.25**). Les énergies d'activation sont celles données par Bohaboy en 1968 :

$$\dot{\epsilon} = A \sigma^n \exp\left(\frac{-91\,000}{RT}\right) + B \sigma^{4,5} \exp\left(\frac{-132\,000}{RT}\right) \quad (1.10)$$

avec  $n = 1$  dans le cas où l' $\text{UO}_2$  a une densité supérieure à 97 % et lorsque la contrainte est inférieure à 70 MPa.

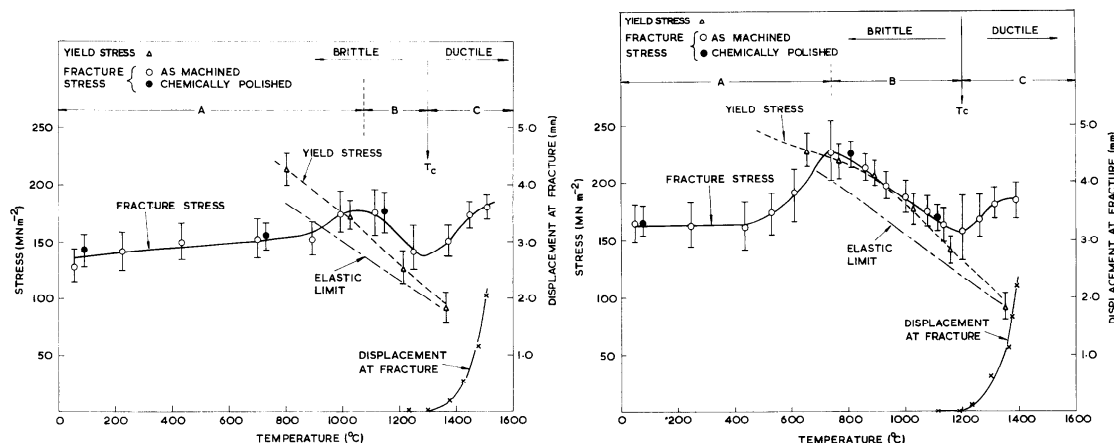


Figure 1.26. – Contraintes à rupture dans des  $\text{UO}_2$  stœchiométriques de taille de grain de 8  $\mu\text{m}$  (à gauche) et 25  $\mu\text{m}$  (à droite) en fonction de la température, d'après (Evans 1969).

Une étude des mécanismes de rupture en flexion pour des températures comprises entre 20  $^{\circ}\text{C}$  et 2000  $^{\circ}\text{C}$  a été faite par Evans et al. en 1969 (EVANS 1969). Cette étude portait sur des échantillons présentant des tailles de grain de 8 ou 25  $\mu\text{m}$ . Les résultats montrent que les échantillons à petit grain résistent toujours mieux que ceux à gros grain et que la rupture peut survenir à basse comme à haute température, respectivement de façon fragile ou ductile (voir Figure 1.26) avec une température de transition se situant aux alentours de 1200  $^{\circ}\text{C}$ . Les mécanismes de rupture identifiés sont les suivants :

- À basse température, quand le matériau est fragile, la fracturation part de gros pores issus de la fabrication. La rupture est principalement intragranulaire à température ambiante, et devient inter-granulaire avec l'augmentation de la température.
- À température intermédiaire (1000 – 1200  $^{\circ}\text{C}$ ), ce sont les dislocations qui sont à l'origine de la fracturation, bien qu'elle reste en apparence fragile.
- À haute température, la rupture est purement ductile ce qui se traduit par la possibilité d'atteindre une flèche importante avant la rupture. La fracturation est majoritairement inter-granulaire.

En 1971, Roberts et al. (ROBERTS 1971) ont étudié l'effet de la vitesse de déformation et de la densité sur la température de transition ductile-fragile de l' $\text{U(Pu)O}_2$ . Des essais de flexion ont été faits sur des  $\text{U(Pu)O}_2$  avec des densités entre 88 % et 96,6 % et à des vitesses de déformation entre 0,085 /h et 0,73 /h. Ils



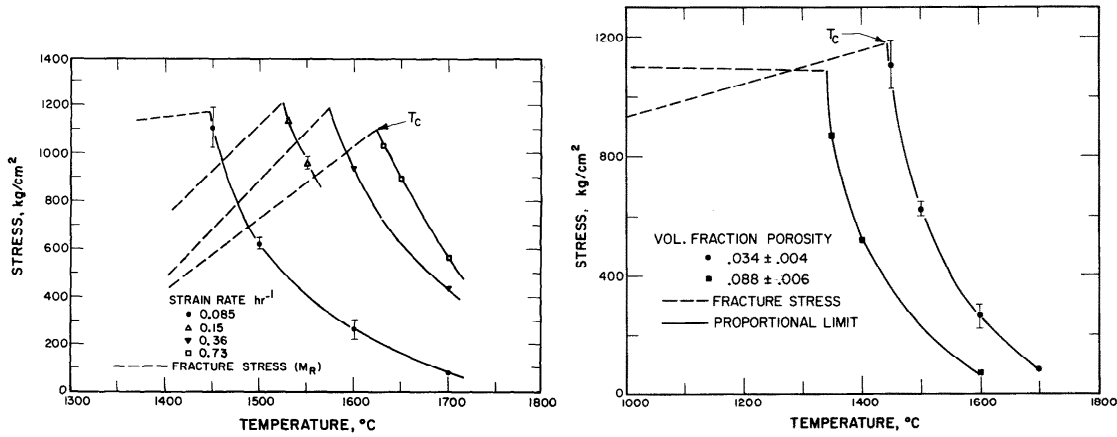


Figure 1.27. – Effet de la température, de la vitesse de déformation (à gauche) et de la porosité (à droite) sur la contrainte à rupture dans l'étude de **(Roberts 1971)**.

ont observé un mode de rupture intragranulaire en dessous d'une température dite de transition et intergranulaire au dessus. La température de transition semble varier fortement avec la vitesse de déformation et la porosité. Elle est décrite par les fonctions suivantes :

$$T_c(K) = \frac{5,5 \cdot 10^4}{28,6 - \ln(\dot{\epsilon})} \quad (1.11)$$

avec  $T_c$  la température de transition et  $\dot{\epsilon}$  (/h) la vitesse de déformation.

$$T_c(K) = 1487 - 1588 p \quad (1.12)$$

avec  $p$  la fraction volumique de porosité.

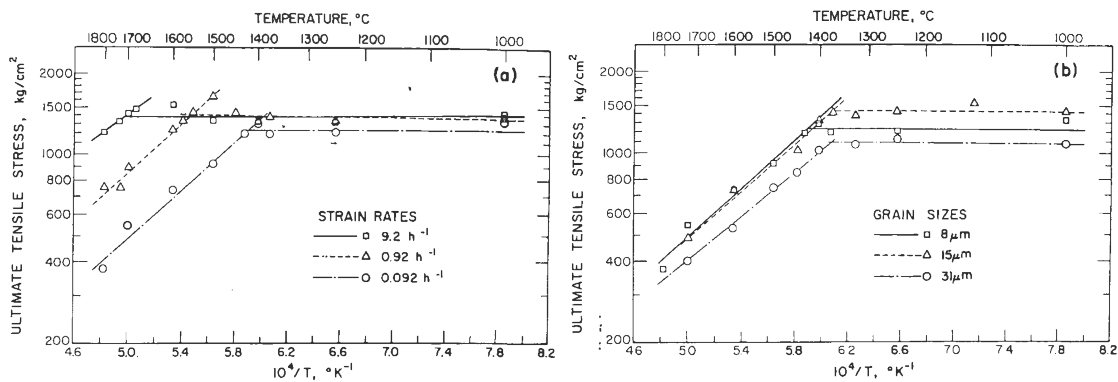


Figure 1.28. – Contraintes à rupture dans l'UO<sub>2</sub> stœchiométrique en fonction de la température, pour différentes vitesses de déformation (à gauche) et différentes tailles de grain (à droite), d'après **(Canon 1971)**.

Une autre étude de la déformation de l'UO<sub>2</sub> en flexion a été faite en 1971 par Canon et al. (CANON 1971). Les trois domaines de rupture introduits par Evans sont également présents. Il en ressort de plus, qu'à partir d'une certaine température qui dépend de la vitesse de déformation et de la taille de grain, la rupture du matériau se fait par fragmentation des joints de grain (voir **Figure 1.28**). L'analyse des essais de flexion par Canon est originale du fait qu'elle repose sur l'hypothèse d'un comportement élasto-plastique parfait pour l'UO<sub>2</sub> avec un seuil d'écoulement identique dans les zones en traction et compression. De ce fait, les contraintes indiquées par l'auteur sont valables pour les deux types de sollicitations.

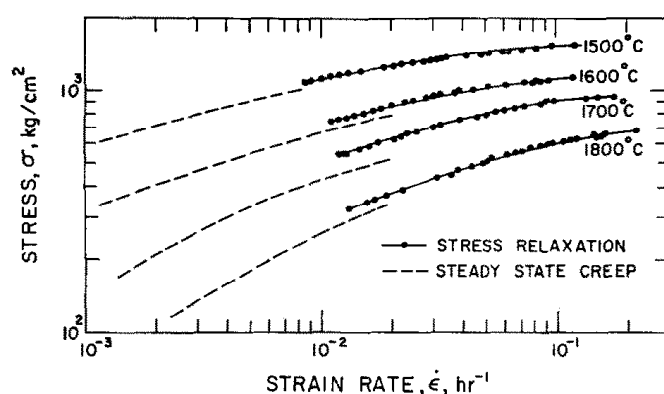


Figure 1.29. – Comparaison entre les résultats des essais de relaxation et des résultats d'essais de fluage ; issue de (Roberts 1974).

En 1974, Roberts et al. (ROBERTS 1974) ont procédé à des essais de relaxation en flexion à des températures comprises entre 1400 et 1800 °C sur des UO<sub>2</sub> de tailles de grain de 8, 15 et 31 µm. Du tracé de la contrainte mesurée en fonction de la vitesse de déformation, Roberts et al. ont mis en évidence que le fluage de l'UO<sub>2</sub> en flexion à forte température pouvait être modélisé par 3 lois puissances avec des exposants pour la contrainte de 1, 4,5 et 20. Le troisième exposant a pu être relié à la montée des dislocation ainsi qu'au glissement des joints de grain (voir **Figure 1.29**).

Radford (RADFORD 1979) a étudié l'effet de la microstructure initiale (taille de grain, porosité et tailles des pores) sur le comportement mécanique de l'UO<sub>2</sub> en flexion à température ambiante. Cette étude a montré que la porosité et la taille des pores ont un effet beaucoup plus important sur la réponse du matériau que la taille de grain. La dépendance de la contrainte à rupture à l'ensemble de ces paramètres peut être décrite par la relation suivante :

$$\sigma = 403,21 \exp(-6,17 P) (GS - 3 PS)^{-0,29} \quad (1.13)$$

avec  $P$  la porosité,  $GS$  la taille de grain en µm et  $PS$  la taille moyenne des pores en µm.

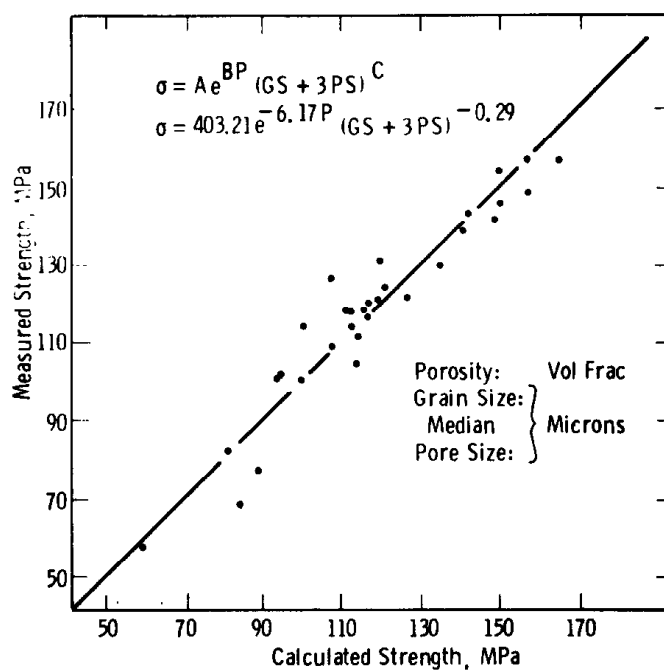


Figure 1.30. – Influence de la taille de grain, de la porosité et de la taille moyenne des pores sur la contrainte à rupture, d'après (**Radford 1979**).

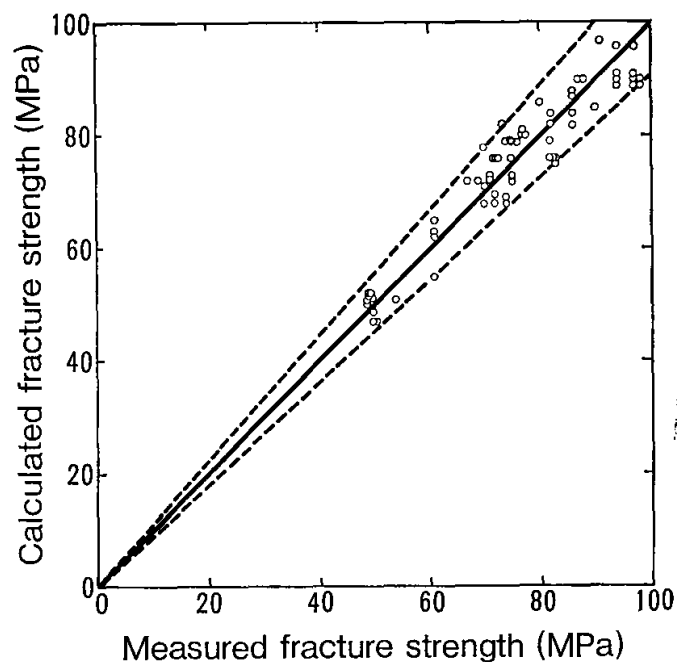


Figure 1.31. – Influence de la taille de grain, de la porosité et de la taille des pores sur la contrainte à rupture, d'après (**Oguma 1982**).

En 1982, dans une étude similaire à celle de Radford, Oguma (**OGUMA 1982**) a montré que la rupture dépend de la taille du plus gros défaut (pore) présent dans le matériau. Il estime que la contrainte à rupture peut être reliée de la manière suivante à la microstructure du matériau (voir **Figure 1.31**) :

$$\sigma_f = 626 \exp(-0,057 P) (PS + 0,5 GS)^{-0,5} \quad (1.14)$$

avec  $P$  la porosité,  $GS$  la taille de grain en  $\mu\text{m}$  et  $PS$  la taille du plus gros pore en  $\mu\text{m}$ .

## 1.5. Modèles de fluage

### 1.5.1. Approches phénoménologiques

La plupart des lois de comportement proposées pour modéliser l' $\text{UO}_2$  sont basées directement sur les résultats d'essais expérimentaux (**BOHABOY 1969** ; **GUÉRIN 1975** ; **DHERBEY 2002a** ; **ARMSTRONG 1962**). L'extension à un chargement tridimensionnel se fait en utilisant la contrainte de Von Mises. La loi LPCC99 en est un parfait exemple (**SLADKOFF 1999**). Développée au CEA, elle est basée sur plus de 120 essais de fluage sur  $\text{UO}_2$  à des températures comprises entre 1200 et 1800 °C et des contraintes comprises entre 20 et 100 MPa. Elle permet de modéliser deux régimes de vitesses de déformation qui sont néanmoins bornés par une troisième loi (voir **Figure 1.32**). La transcription tridimensionnelle du modèle conduit à écrire la vitesse de déformation sous la forme tensorielle de la manière suivante :

$$\dot{\epsilon}(P, dm, T, \sigma_{eq}) = \dot{\epsilon} \mathbf{n} \quad (1.15)$$

avec  $P$  la porosité,  $dm$  la taille de grain,  $T$  la température,  $\sigma_m = \frac{1}{3} \boldsymbol{\sigma} : \mathbf{1}$  le premier invariant du tenseur des contraintes,  $\boldsymbol{\sigma}$  le tenseur des contraintes,  $\mathbf{1}$  le tenseur unité,  $\mathbf{s} = \boldsymbol{\sigma} - \sigma_m \mathbf{1}$  le tenseur des contraintes déviatoriques,  $\sigma_{eq} = \sqrt{\frac{3}{2} \mathbf{s} : \mathbf{s}}$  la contrainte équivalente au sens de Von Mises,  $\mathbf{n} = \frac{3\mathbf{s}}{2\sigma_{eq}}$  la normale à la surface de charge et  $\dot{\epsilon}$  la vitesse de déformation équivalente déduite des essais mécaniques. La transition entre les trois lois puissances se fait en fonction de la prédominance de l'une ou l'autre des vitesses de déformation selon :

$$\dot{\epsilon} = \min(\max(\dot{\epsilon}_1; \dot{\epsilon}_2); \dot{\epsilon}_{lim}) \quad (1.16)$$

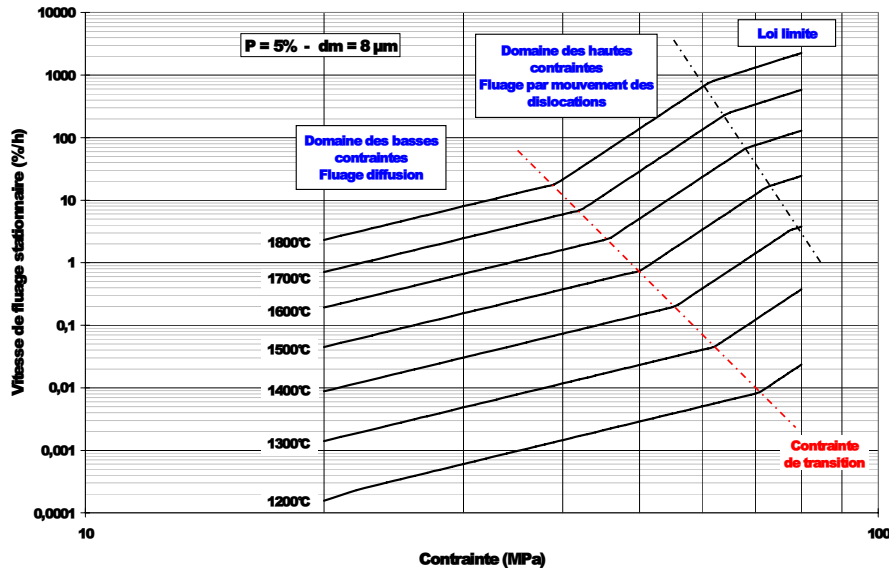


Figure 1.32. – Loi de fluage stationnaire LPCC99 ; issue de (Sladkoff 1999).

$\dot{\epsilon}_1$  étant la vitesse de déformation équivalente de fluage associée à la diffusion des lacunes :

$$\dot{\epsilon}_1 = K_1 10^7 \exp(0,32 P) dm^{-1,87} \sigma_{eq}^{3,06} \exp\left(\frac{-401\,700}{RT}\right) \quad (1.17)$$

$\dot{\epsilon}_2$  étant la vitesse de déformation équivalente de fluage associée au mouvement des dislocations :

$$\dot{\epsilon}_2 = K_2 10^{-2} \exp(0,37 P) dm^{2,01} \sigma_{eq}^{8,40} \exp\left(\frac{-534\,700}{RT}\right) \quad (1.18)$$

$\dot{\epsilon}_{lim}$  étant la vitesse de déformation équivalente de fluage limite :

$$\dot{\epsilon}_{lim} = K_3 10^6 \exp(0,15 P) \sigma_{eq}^{4,03} \exp\left(\frac{-461\,300}{RT}\right) \quad (1.19)$$

avec  $K_i$  ( $i = 1, 3$ ) constantes du modèle.

### 1.5.2. Fluage avec effet d'historique

Un premier modèle représentatif du comportement mécanique de l'UO<sub>2</sub> a été proposé par Leclercq (LECLERCQ 1998). Il est basé sur la thermodynamique des phénomènes irréversibles. Il considère un Volume Élémentaire Représentatif (VER)  $V$  composé d'une fraction volumique  $z$  de porosité et d'une fraction volumique  $(1 - z)$  d'UO<sub>2</sub> dense. À partir des énergies libres spécifiques de Helmholtz de ce système et de la forme de la vitesse de déformation viscoplastique, il permet, en considérant le second principe de la thermodynamique, de rendre compte de l'effet de la densification et du gonflement gazeux (voire de l'irradiation) sur le fluage du matériau.

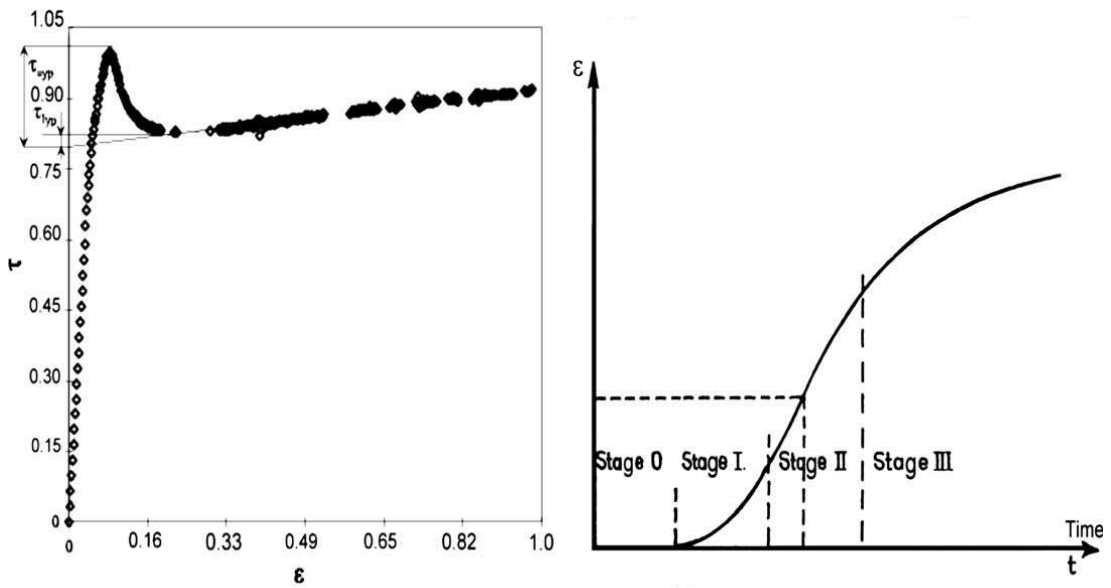


Figure 1.33. – Comportement caractéristique d'un matériau présentant un pic de compression lors d'essai à vitesse de déformation imposée (à gauche) et de fluage (à droite) d'après (Sauter 2003).

Remarquant que le comportement viscoplastique de l'UO<sub>2</sub> n'a rien de monotone (voir **Figure 1.33**) aussi bien en déplacement imposé, avec la présence d'un pic de compression au début de l'essai, qu'à charge constante, Sauter et Leclercq ont proposé un modèle de fluage avec effet d'historique (SAUTER 2003). Ce modèle, basé sur la théorie des dislocations, est capable de reproduire le comportement mécanique de l'UO<sub>2</sub> et en particulier le pic de compression. Il est issu du modèle de Alexander et Haasen's (ALEXANDER 1968) dont les équations constitutives sont les suivantes :

$$v = v_0 \left( \frac{\tau^*}{\tau_0} \right)^m \exp \left( -\frac{\Delta H_0}{RT} \right) \quad (1.20)$$

$$\dot{\gamma} = \frac{\dot{\tau}}{M_a} + b \rho v \quad (1.21)$$

$$\tau^* = \max(0; \tau - \tau_i) \quad (1.22)$$

$$\dot{\rho} = K \rho v \tau^* \quad (1.23)$$

où  $v$ ,  $b$ ,  $\Delta H_0$ ,  $\rho$ ,  $\tau^*$ ,  $\tau_i$ ,  $\dot{\gamma}$  et  $M_a$  sont respectivement la vitesse des dislocations, la norme du vecteur de Burgers, l'enthalpie libre, la densité de dislocation, la contrainte effective, la contrainte interne, la vitesse de déformation et la rigidité de la machine. À partir d'essais expérimentaux faits à des températures comprises entre 950 et 1600 °C et des contraintes comprises entre 15 et 250 MPa, ils ont identifié  $m \approx 9,3$ . L'expression de la contrainte interne est :

$$\tau_i = \frac{\mu b}{2 \pi (1 - \eta)} \sqrt{\rho} \quad (1.24)$$

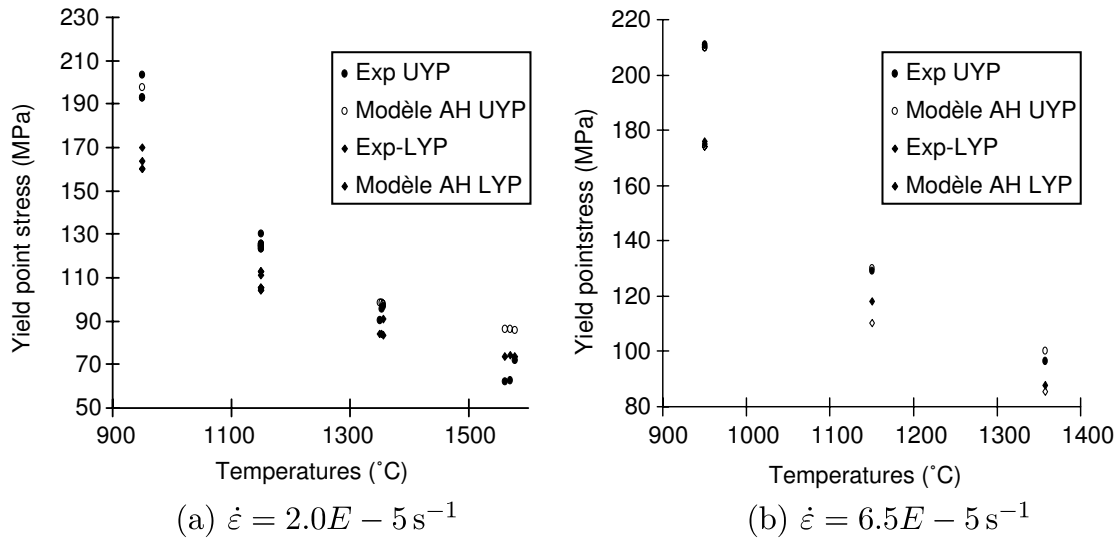


Figure 1.34. – Dépendance des contraintes de sommet et de bas de pic à la température, d'après **(Sauter 2003)**.

Dans cette approche, la vitesse de déformation est aussi pilotée par la contrainte effective qui dépend de la différence  $(\tau - \tau_i)$  où  $\tau_i$ , la contrainte interne croît avec la vitesse des dislocations. La force de ce modèle réside dans le fait de pouvoir prédire la contrainte  $\tau_{UYP}$  de sommet de pic et la contrainte  $\tau_{LYP}$  de bas de pic (voir **Figure 1.33**). Ces grandeurs se calculent à partir des équations suivantes :

$$\tau_{LYP} \propto \dot{\gamma}^{\frac{1}{m+2}} \exp \left( \frac{\Delta H_0}{(m+2) R T} \right) \quad (1.25)$$

$$\tau_{UYP} \propto \frac{\dot{\gamma}^{\frac{1}{n}}}{\rho_0} \exp \left( \frac{\Delta H_0}{n R T} \right) \quad (1.26)$$

avec  $n$  légèrement inférieur à  $m$ . La comparaison des contraintes de sommet et de bas de pic calculées avec celles mesurées expérimentalement a montré un accord satisfaisant sur une gamme de température allant de 950 à 1600 °C (voir **Figure 1.34**).

Malgré tout, le modèle de Alexander et Haasen's (**ALEXANDER 1968**) comporte quelques limitations qui ont été contournées moyennant quelques modifications :

- La loi de multiplication des dislocations ne tient pas compte des annihilations de dislocation. Ce point a été corrigé par la prise en compte d'une loi de multiplication de la forme :

$$\dot{\rho} = (k_1 \sqrt{\rho} - k_2 (\dot{\gamma}, T) \rho) \dot{\gamma} \quad (1.27)$$

- La considération d'une seule population de dislocations n'étant valable qu'à faible déformation, les densités de dislocations mobiles et de forêts ont par la suite été prises en compte.
- L'identification numérique de la contrainte effective ayant montré la non validité de la relation **1.24**, un coefficient correcteur  $\alpha$  a été proposé.
- La déformation à faible vitesse et forte température étant contrôlée par un mécanisme de diffusion de lacunes non présent dans le modèle, une vitesse de déformation supplémentaire a été ajoutée dans un deuxième temps.

### 1.5.3. Modèle de fluage compressible

En 2006, Monerie et al. ont proposé un modèle de fluage compressible pour décrire le fluage thermique stationnaire du combustible UO<sub>2</sub> et la variation de volume qui en résulte (**MONERIE 2006**). Le matériau a ainsi été décomposé à l'échelle microscopique en une matrice incompressible de comportement élastoviscoplastique et une fraction volumique de pores susceptible d'évoluer sous l'effet des contraintes mécaniques. La loi de comportement macroscopique à l'échelle du VER est déterminée par l'intermédiaire d'une combinaison de deux potentiels macroscopiques elliptiques  $i$  ( $i = 1, 2$ ) relatifs aux deux principaux



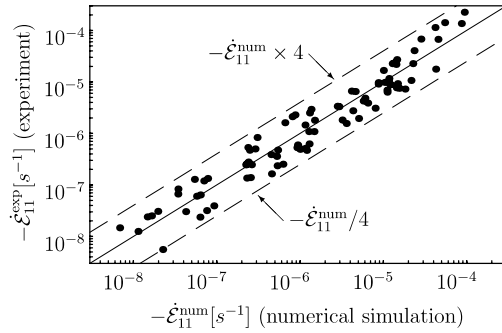


Table 2

Identification range of mechanical parameters listed in Table 3

*External loading*

$$20 \text{ MPa} \leq \Sigma_{11} \leq 100 \text{ MPa} \quad 1570 \text{ K} \leq T \leq 1950 \text{ K}$$

*Microstructural parameters*

$$0.81\% \leq f \leq 7\% \quad 4.5 \text{ } \mu\text{m} \leq d \leq 26 \text{ } \mu\text{m}$$

Figure 1.35. – Domaine de validité du modèle de fluage compressible ; issue de **(Monerie 2006)**.

phénomènes de viscosité non linéaires identifiés à haute température pour la matrice  $\text{UO}_2$  : fluage diffusion à températures modérées et faibles contraintes, fluage dislocation à hautes températures et fortes contraintes. Cette loi a été identifiée sur des essais de fluage avec des contraintes comprises entre 20 MPa et 110 MPa et pour un domaine de température entre 1300 °C et 1690 °C. Les combustibles ayant servi à identifier le modèle présentaient des tailles de grains comprises entre 4,5  $\mu\text{m}$  et 26  $\mu\text{m}$ , mais les résultats ont également montré une bonne corrélation avec des essais réalisés sur des combustibles de taille de grains de 36  $\mu\text{m}$ . La porosité des matériaux était comprise entre 0,8 % et 7 % (voir **Figure 1.35** issue de **(MONERIE 2006)**). Cette loi a l'avantage de ne pas comporter de changement brutal de mécanisme de déformation et également de prendre en compte la compressibilité de la porosité. Le taux de déformation associé au fluage thermique stationnaire est ainsi donné par :

$$\dot{\epsilon}_s = \frac{\partial \Psi_s}{\partial \sigma} \quad (1.28)$$

avec pour le potentiel  $\Psi_s$ , une relation de la forme suivante :

$$\Psi_s = (1 - \theta)\Psi_{s1} + \theta\Psi_{s2} \quad (1.29)$$

où  $\Psi_{s1}$  et  $\Psi_{s2}$  sont les potentiels associés respectivement au fluage diffusion et au fluage dislocation. Les deux mécanismes de fluage thermique sont ainsi couplés via une fonction de couplage  $\theta$  dépendant de l'état de contrainte et de la température.

### Fluage diffusion

Le potentiel macroscopique caractérisant le fluage diffusion s'écrit sous la forme suivante :

$$\Psi_{s1} = \frac{K_1}{2} \left[ \frac{9}{4} A_1(f) \sigma_m^2 + B_1(f) \sigma_{eq}^2 \right] \quad (1.30)$$

C'est une fonction quadratique de la contrainte hydrostatique  $\sigma_m = \text{tr}(\boldsymbol{\sigma})/3$  et de la contrainte de Von Mises  $\sigma_{eq} = \sqrt{(3/2)\mathbf{s} : \mathbf{s}}$  où  $\mathbf{s} = \boldsymbol{\sigma} - \sigma_m \mathbf{1}$  est le déviateur du tenseur des contraintes  $\boldsymbol{\sigma}$  et  $\mathbf{1}$  le tenseur unité.  $A_1(f)$  et  $B_1(f)$  sont deux fonctions de la porosité résultant de l'homogénéisation du comportement à l'échelle macroscopique et choisies de manière à garantir que  $A_1(f = 0) = 0$  (incompressibilité lorsque la porosité est nulle) et  $B_1(f = 0) = 1$  (comportement homogénéisé identique à celui de la matrice viscoplastique lorsque la porosité est nulle) :

$$A_1 = \frac{f}{1-f} \quad (1.31)$$

$$B_1 = \frac{1 + \frac{2}{3}f}{1-f} \quad (1.32)$$

Enfin,  $K_1$  est un paramètre dépendant du diamètre des grains  $d$  et de la température  $T$  tel que :

$$K_1 = \frac{K_{1o}}{d^2} \exp\left(-\frac{Q_1}{RT}\right) \quad (1.33)$$

et où  $K_{1o}$  est une constante d'ajustement,  $Q_1$  l'énergie d'activation du mécanisme de fluage diffusion et  $R$ , la constante des gaz parfaits.

### Fluage dislocation

Le potentiel macroscopique caractérisant le fluage dislocation est une fonction à la puissance 9 des contraintes hydrostatiques et de Von Mises. Il s'écrit sous la forme suivante :

$$\Psi_{s2} = \frac{K_2}{9} \left[ \frac{9}{4} A_2(f) \sigma_m^2 + B_2(f) \sigma_{eq}^2 \right]^{9/2} \quad (1.34)$$

avec, comme pour le fluage diffusion, des fonctions  $A_2(f)$  et  $B_2(f)$  garantissant que le comportement de l' $\text{UO}_2$  tende vers celui de la matrice viscoplastique lorsque la porosité  $f$  tend vers 0 :

$$A_2(f) = \left[ 8 \left( f^{-1/8} - 1 \right) \right]^{-16/9} \quad (1.35)$$

$$B_2(f) = B_1(f) \left( \frac{1}{1-f} \right)^{7/9} \quad (1.36)$$

Dans (1.34),  $K_2$  est un paramètre qui dépend du diamètre des grains  $d$  et de la température  $T$ . La fonction mathématique donnant ce paramètre, valable seulement pour l' $\text{UO}_2$ , s'écrit sous une forme similaire à  $K_1$  :

$$K_2 = K_{2o} d^2 \exp\left(-\frac{Q_2}{RT}\right) \quad (1.37)$$

où  $K_{20}$  est une constante d'ajustement et  $Q_2$  l'énergie d'activation du mécanisme de fluage dislocation.

### Fonction de couplage

La fonction de couplage  $\theta$  permet le passage d'un mécanisme de fluage à l'autre en fonction de l'état de contrainte et de la température. Le choix de la dépendance à la contrainte a été guidé par le respect de la condition d'incompressibilité lorsque la porosité  $f$  tend vers 0. Pour cela, la fonction  $\theta$  a été exprimée en fonction des paramètres  $A_1$  et  $B_1$  :

$$\theta = \frac{1}{2} \left[ 1 + \tanh \left( \frac{T - w\Sigma^{-q}}{h} \right) \right] \quad (1.38)$$

avec  $w, q, h$  trois paramètres constants et  $\Sigma$  donné par :

$$\Sigma = \sqrt{\frac{B_1}{B_1 + A_1/4} \sigma_{eq}^2 + \frac{9A_1}{4B_1 + A_1} \sigma_m^2} \quad (1.39)$$

L'expression (1.39) garantit bien que la contrainte équivalente  $\Sigma$  tende vers la contrainte de Von Mises  $\sigma_{eq}$  lorsque la porosité tend vers 0 (on a alors  $B_1 = 1$  et  $A_1 = 0$ ) tout en faisant dépendre  $\theta$  de la contrainte hydrostatique lorsque la porosité est non nulle.

### Variation de la porosité

Du fait de l'incompressibilité de la matrice d' $\text{UO}_2$ , l'évolution de la porosité est décrite par l'équation de conservation de la masse :

$$\dot{f} = (1 - f) \text{tr}(\dot{\epsilon}) \quad (1.40)$$

Il est d'usage de négliger les déformations élastiques. Cette approximation donne :

$$\dot{f} = (1 - f) \text{tr}(\dot{\epsilon}_s) \quad (1.41)$$

## 1.6. Synthèse et objectif du travail

Dans ce chapitre bibliographique, nous avons donné tout d'abord un aperçu du comportement thermo-mécanique du combustible nucléaire pendant un accident d'injection de réactivité (RIA). Les observations post-essais montrent une fissuration importante des pastilles combustible, un comblement des évidements caractéristiques du fluage du matériau et une fragmentation importante des joints de grain. Les simulations des essais expérimentaux de RIA montrent que

de fortes contraintes de compression sont générées en périphérie de pastille au début du transitoire et qu'elles sont associées à de fortes températures et de fortes vitesses de déformation. Par la suite, c'est le centre de la pastille qui est le plus comprimé, la périphérie plus froide étant en traction. Cet état de chargement est à l'origine du comblement des évidements par fluage et de la fissuration de la périphérie des pastilles.

Dans une deuxième partie, nous avons décrit et récapitulé les données disponibles sur le comportement mécanique de l' $\text{UO}_2$  en compression et en flexion. De nombreux points communs ressortent des différentes études expérimentales. Trois régimes de vitesses de déformation ont ainsi été identifiés par les différents auteurs en fonction de la contrainte et de la température. Le premier est associé à un mécanisme de diffusion des lacunes et modélisé par une loi puissance avec un exposant 1 pour la contrainte. Le second est associé au mouvement des dislocations et modélisé par une loi puissance avec un exposant 4 à 8 pour la contrainte. Le troisième est associé à un mécanisme de dislocation avec seuil et a été peu étudié. Il est présent dans les essais à forte contrainte, faible température ou forte vitesse de déformation sachant qu'il y a une relation directe entre ces 3 paramètres. Certains auteurs ont proposé des modèles en  $\sinh$  pour le représenter. C'est bien évidemment ce dernier mécanisme qui nous intéresse vis-à-vis des conditions thermo-mécaniques vues par la pastille combustible pendant un RIA et qui justifie la réalisation d'un programme expérimental dédié qui sera présenté dans les chapitres 2 et 3.

Dans la dernière partie de cette synthèse bibliographique, nous avons récapitulé les principaux modèles de fluage disponibles en détaillant les spécificités de chacun : borne supérieure pour la vitesse de fluage dans le modèle LPCC99, variation de volume associé au fluage pour le modèle compressible issu de (MONERIE 2006), modélisation du pic de compression par montée des dislocations retardée dans (SAUTER 2003).

Le domaine de validité de tous ces modèles étant limité à des contraintes ou à des vitesses de déformation modérées, nous proposerons, à la suite d'une campagne expérimentale, une formulation capable de décrire le fluage mais aussi la variation de volume de l' $\text{UO}_2$  sur une très large gamme de vitesses de déformations (chapitre 3).

De manière évidente, la fragmentation des joints de grain en RIA est le seul phénomène qui a peu été abordé d'un point de vue mécanique dans la littérature. Et pourtant, comme nous l'avons vu, il est visible, sous certaines conditions (température, contraintes), aussi bien à l'issue d'essais de compression que de flexion. La porosité semble un paramètre essentiel vis-à-vis du phénomène, ainsi que le montre l'apparition fréquente de la fragmentation lors d'essais mécaniques sur des combustibles de forte densité. Dans le chapitre 4, nous tenterons à l'aide d'une approche associant essais mécaniques et modélisation, de définir les conditions thermo-mécaniques à l'origine de la rupture des joints de grain.

Enfin, dans la dernière partie de ce travail (chapitre 5), les modèles développés

seront intégrés dans une loi de comportement du combustible, utilisés dans le code ALCYONE-RIA et leurs réponses en RIA testés lors de simulations des essais REP-Na effectués dans le réacteur expérimental CABRI.



## 2. Méthodes expérimentales

### Table des matières

2.1	Introduction	61
2.2	Caractérisations non destructives	62
2.2.1	Métrologie	62
2.2.2	Mesure de densité par pesée hydrostatique dans l'alcool	63
2.3	Imagerie au MEB	64
2.3.1	Préparation des échantillons pour observation au MEB	64
2.3.2	Observations au MEB	65
2.3.3	Analyse des images MEB	67
2.4	Essais mécaniques	68
2.4.1	Régulation de la température du four	71
2.4.2	Protocole des essais mécaniques	72
2.4.3	Résultats types	74
2.4.4	Reproductibilité	75
2.4.5	Grille d'essais	76
2.4.6	Mesure de l'endommagement	77
2.4.7	Essais à sauts de vitesse	80
2.5	Synthèse	82

### 2.1. Introduction

Une étude expérimentale se déroule en 3 étapes qui sont :

- la caractérisation aussi précise et détaillée que possible de l'état initial de chacun des échantillons,
- les manipulations (ici des essais mécaniques de compression) dont le protocole fait l'objet d'une attention toute particulière,
- la caractérisation de l'état final des échantillons qui met en évidence les changements subis par les échantillons au cours des essais.

La caractérisation des échantillons est une étape très importante dans une étude expérimentale. Deux types de caractérisation peuvent être distingués :

- les caractérisations non destructives (mesures métrologiques, mesures de densité) effectuées de manière systématique sur tous les échantillons avant et après essai,
- les caractérisations destructives (observations au MEB) qui, comme leurs noms l'indiquent, rendent inutilisable l'échantillon et ne doivent donc être pratiquées qu'en fin d'étude ou sur quelques échantillons vierges.

Dans ce chapitre, l'ensemble des techniques expérimentales utilisées sont décrites avec, en premier lieu, les caractérisations non destructives, puis les méthodes d'imagerie MEB et enfin les essais mécaniques.

## 2.2. Caractérisations non destructives

### 2.2.1. Métrologie

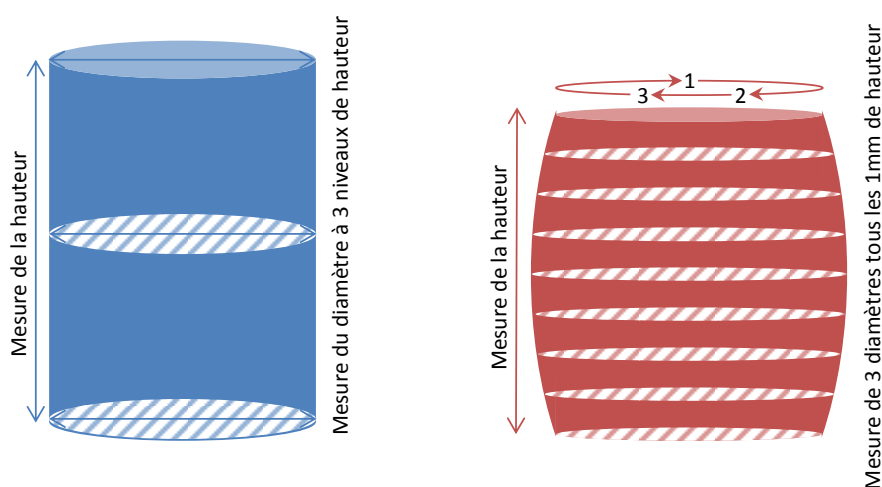


Figure 2.1. – Méthode de mesure des caractéristiques géométriques des échantillons avant et après essai.

La métrologie consiste à mesurer les caractéristiques géométriques d'un échantillon. Dans le cas d'échantillons cylindriques, elle consiste généralement à vérifier le parallélisme des faces supérieure et inférieure ainsi que la hauteur et le diamètre de l'échantillon. Le parallélisme des faces des échantillons utilisés



dans cette étude est assuré de par leur fabrication durant laquelle les faces de chaque pastille sont rectifiées par polissage. La hauteur est mesurée à l'aide d'un pied à coulisse avec une précision de  $\pm 1 \mu\text{m}$ . Le diamètre est quant à lui mesuré à l'aide d'un laser, avec également une précision de  $\pm 1 \mu\text{m}$ , en bas, au centre et en haut de l'échantillon. Cependant, après essais, les échantillons, initialement cylindriques, prennent une forme de tonneau. De ce fait, le diamètre n'est plus constant sur toute la hauteur de l'échantillon. Il devient donc nécessaire de faire de multiples mesures de diamètre de bas en haut de l'échantillon. Dans notre étude, le choix a été fait de mesurer le diamètre tout les mm de bas en haut des échantillons déformés. Afin de s'assurer de la circularité de chaque section, les mesures ont été réalisées sur 3 génératrices situées à  $120^\circ$  les unes des autres (voir **Figure 2.1**).

### 2.2.2. Mesure de densité par pesée hydrostatique dans l'alcool

La porosité joue un rôle important dans les propriétés de l' $\text{UO}_2$ , c'est pourquoi sa caractérisation précise est nécessaire. La mesure de la densité relative moyenne ( $\rho_m$ ) de chaque échantillon ainsi que la répartition de la porosité entre la porosité ouverte  $P_o$  (microfissures et pores reliés à la surface libre de l'échantillon) et la porosité fermée  $P_f$  (pores contenus dans la matière, non connectés au milieu extérieur) est possible par "pesée hydrostatique dans l'alcool". Cette méthode consiste à déterminer le volume apparent  $V_a$  de l'échantillon (volume de matière augmenté du volume des porosités ouverte et fermée contenues dans celui-ci) ainsi que le volume de porosité ouverte  $V_{po}$  par pesées successives. Le protocole de mesure est le suivant :

- L'échantillon est tout d'abord pesé à sec ce qui donne la masse sèche  $M_s = V_a \rho_m$ ,
- il est ensuite mis sous vide pendant 1 h,
- tout en maintenant le vide, il est immergé dans un bain d'alcool éthylique pendant 2 h afin que l'alcool remplisse les porosités ouvertes contenues dans l'échantillon,
- après avoir rompu le vide, une pesée hydrostatique dans l'alcool donne la masse immergée  $M_i = M_s + V_{po} \rho - V_a \rho$  avec  $\rho$  la masse volumique de l'alcool,
- l'échantillon est ensuite retiré de son bain, essuyé rapidement (les porosités ouvertes étant toujours remplies d'alcool) puis pesé pour donner la masse humide  $M_h = M_s + V_{po} \rho$ ,
- la masse volumique de l'alcool  $\rho$  est déterminée par pesée d'un matériau étalon ne comportant aucune porosité dont la masse volumique est connue.

A partir de ces différentes mesures, il est possible de déterminer la densité  $\rho_m$ , la porosité ouverte  $P_o$  et la porosité fermée  $P_f$  du matériau selon les équations suivantes :

La mesure de la masse humide donne le volume des porosités ouvertes par :

$$V_{po} = \frac{M_h - M_s}{\rho} \quad (2.1)$$

Le volume apparent est ensuite déduit de la masse immergée par :

$$V_a = \frac{M_h - M_i}{\rho} \quad (2.2)$$

La densité relative de l'échantillon vaut alors :

$$\rho_m = \frac{M_s}{V_a} = \frac{\rho M_s}{M_h - M_i} \quad (2.3)$$

La porosité ouverte vaut donc :

$$P_o = \frac{V_{po}}{V_a} = \frac{M_h - M_s}{M_h - M_i} \quad (2.4)$$

La porosité fermée se déduit de la densité relative et de la porosité ouverte suivant :

$$P_f = 1 - \rho_m - P_o \quad (2.5)$$

## 2.3. Imagerie au MEB

### 2.3.1. Préparation des échantillons pour observation au MEB

Pour que les observations au Microscope Électronique à Balayage (MEB) donnent le maximum d'informations possibles, il est essentiel que la préparation des échantillons fasse l'objet d'une attention toute particulière. Cette préparation a pour but de faire ressortir au mieux la microstructure sans pour autant l'altérer afin que les observations et les mesures reflètent l'état réel de l'échantillon avant la préparation. Pour cela, une découpe et un polissage des échantillons sont nécessaires. Afin de pouvoir observer la totalité des zones d'intérêt d'un échantillon en une seule fois, chacun d'eux a été fixé sur un support grâce à une cire puis découpé axialement en son centre (voir **Figure 2.2**) à l'aide d'une scie à fil (dont le diamètre du fil est de 0,2 mm). Suite à cette découpe, une des 2 moitiés de pastille est enrobée dans une résine époxy afin de pouvoir être placée et maintenue dans un porte-échantillon pendant la phase de polissage. Les polissages successifs se font alors avec une polisseuse BUEHLER et à l'aide

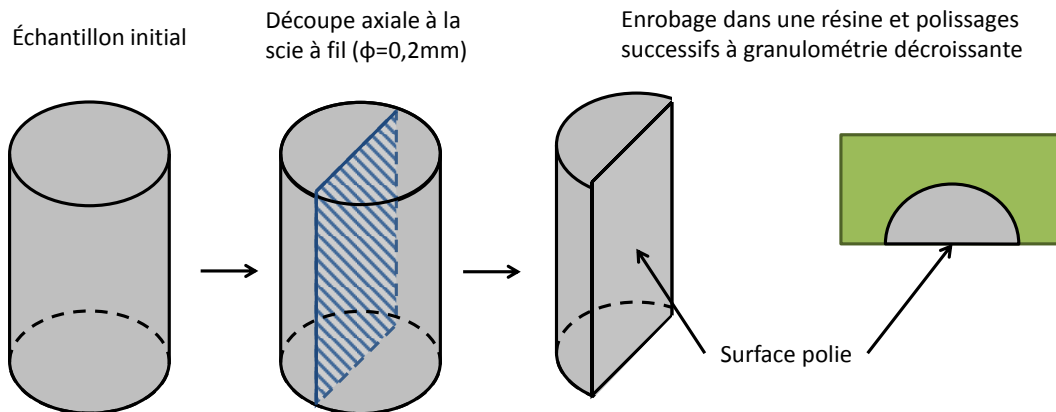


Figure 2.2. – Schéma de la préparation des échantillons pour observation au MEB.

de papier abrasif BLUEHLER 180, 400, 800 et 1200. Puis une solution diamantée avec une taille de grain de  $1\ \mu\text{m}$  et une solution de silice colloïdale en suspension présentant une taille de grain de  $0,04\ \mu\text{m}$  sont utilisées pour terminer la phase de préparation. Le polissage se fait à une vitesse de rotation de 150 tours/minute avec une force d'appui de 10 N et suivant les étapes suivantes (**DA ROLD 2012**) :

- 30 s avec un papier abrasif 180 afin de retirer la résine et faire apparaître la surface de l'échantillon,
- 1 min avec un papier abrasif 400 afin d'aplanir les irrégularités de surface,
- 2 min avec un papier abrasif 800,
- 2 min avec un papier abrasif 1200,
- 10 min à l'aide de la solution diamantée permettant l'obtention d'un état de surface sans rayures ni déformation,
- 30 min à l'aide de la solution de silice colloïdale en suspension révélant la microstructure.

Après ces différentes étapes de polissage, l'échantillon est retiré de son enrobage en résine puis placé dans le MEB pour y être observé.

### 2.3.2. Observations au MEB

Les échantillons ainsi préparés donnent accès à une cartographie de la microstructure suivant les directions axiales et radiales. Après un rapide balayage de la totalité de la surface de l'échantillon afin d'identifier des zones particulièrement intéressantes (présentant des fissures ou de la fragmentation des joints de grain par exemple), les observations MEB ont donc été faites au centre, à l'extrémité et à la périphérie de la pastille (voir **Figure 2.3**).

Afin de s'affranchir d'une étude statistique par de multiples observations de la

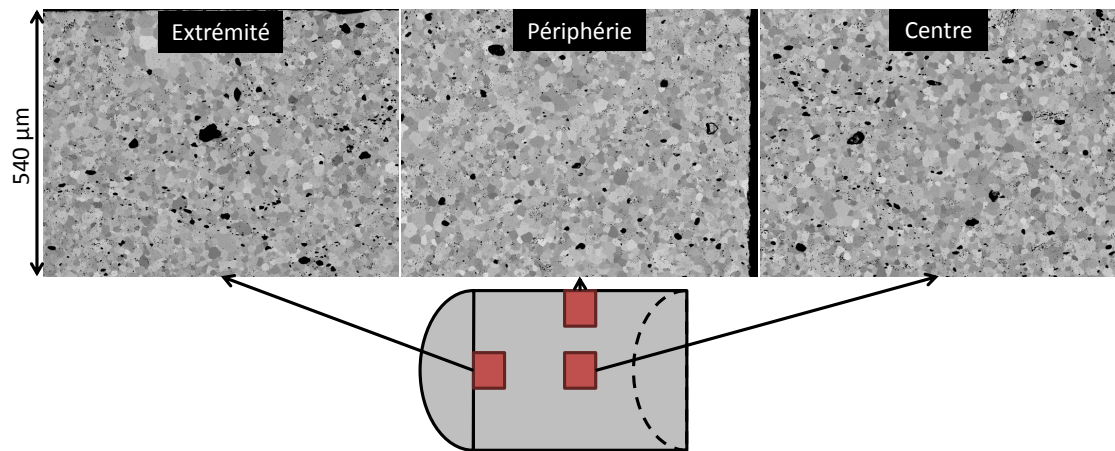


Figure 2.3. – Zones d'observation des échantillons au MEB.

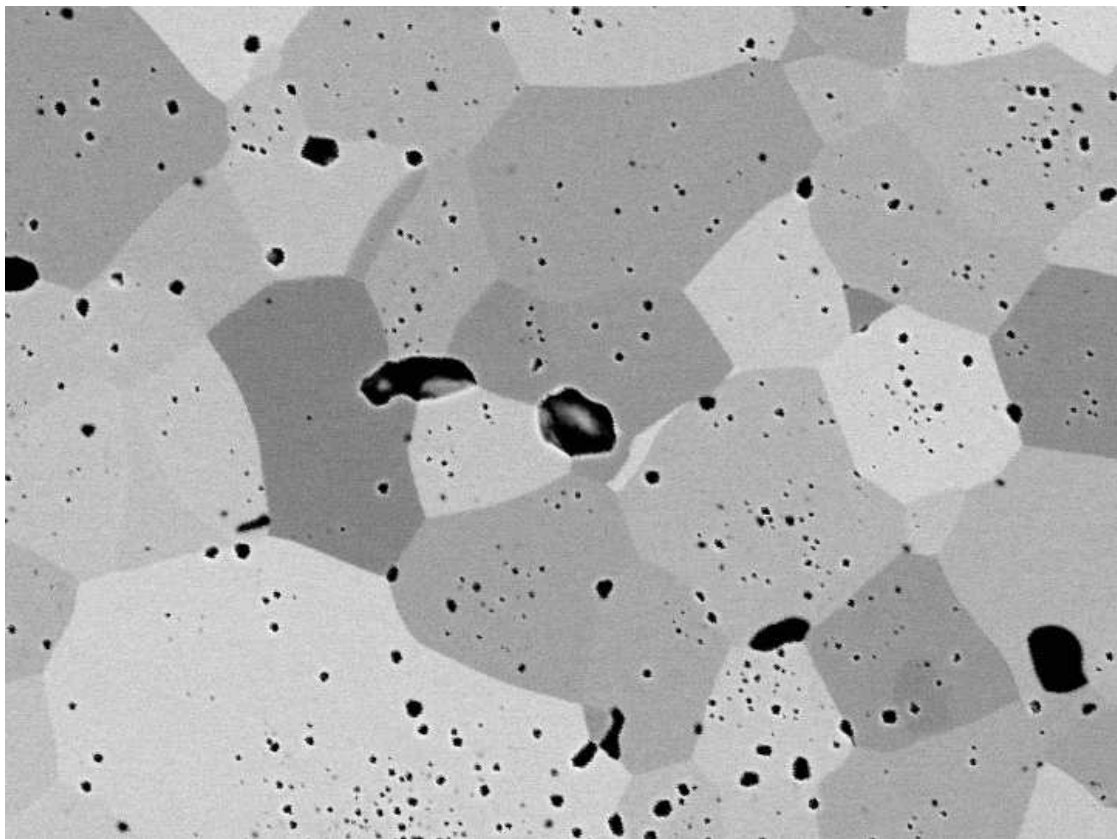


Figure 2.4. – Zoom sur une zone de  $40 \times 45 \mu\text{m}$  d'une image MEB montrant les grains et les pores.

même zone, le choix a été fait de couvrir une très grande surface pour chaque cliché. En effet chaque image montre une surface de  $720\text{ }\mu\text{m}$  de largeur par  $540\text{ }\mu\text{m}$  de hauteur. Pour nos échantillons de taille de grain moyenne d'environ  $10\text{ }\mu\text{m}$ , une image correspond donc à une zone d'environ  $70 \times 50 = 3500$  grains. La précision n'a pas pour autant été négligée. Chaque image a une résolution de 8192 pixels de largeur par 6144 pixels de hauteur. Cette résolution très élevée permet de zoomer de manière importante jusqu'à parfaitement distinguer les grains ou la porosité (voir **Figure 2.4**).

### 2.3.3. Analyse des images MEB

L'analyse des images MEB ainsi réalisé donne de nombreuses informations sur la microstructure telles que la taille de grain ou encore la porosité surfacique.

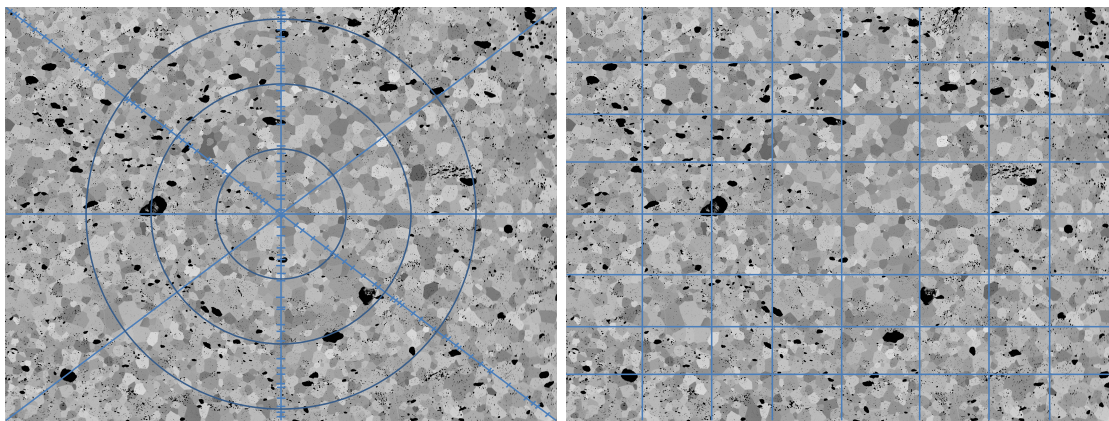


Figure 2.5. – Méthode des interceptes homogènes (à gauche) et avec direction préférentielle (à droite).

A partir de clichés MEB, la façon la plus simple de mesurer la taille de grain est d'utiliser la méthode des interceptes. Elle consiste à tracer de nombreuses lignes dans toutes les directions sur l'image MEB et de compter le nombre de fois qu'un joint de grain coupe une des lignes. La taille de grain moyenne est obtenue en faisant le rapport entre le nombre d'intersections et la longueur totale des lignes (voir **Figure 2.5**). Si toutes les lignes tracées le sont seulement suivant 2 directions perpendiculaires, il est alors possible de déterminer si les grains ont une forme plus ou moins allongée dans une direction par rapport à l'autre. Cette méthode avec direction préférentielle (voir **Figure 2.5**) est utilisée plus loin dans ce manuscrit pour montrer l'écrasement des grains suivant l'axe de compression.

À l'aide du logiciel *analySIS* et du module *POROPHASE* développé par le CEA (**NOIROT 2003**), la mesure de la porosité surfacique est faite en extrayant les pores des images MEB par seuillage du niveau de gris, ce qui permet de différencier la porosité (gris-noire) des grains d' $\text{UO}_2$  (en gris plus clair). Il en résulte une image binarisée (en noir et blanc) où le noir correspond à la

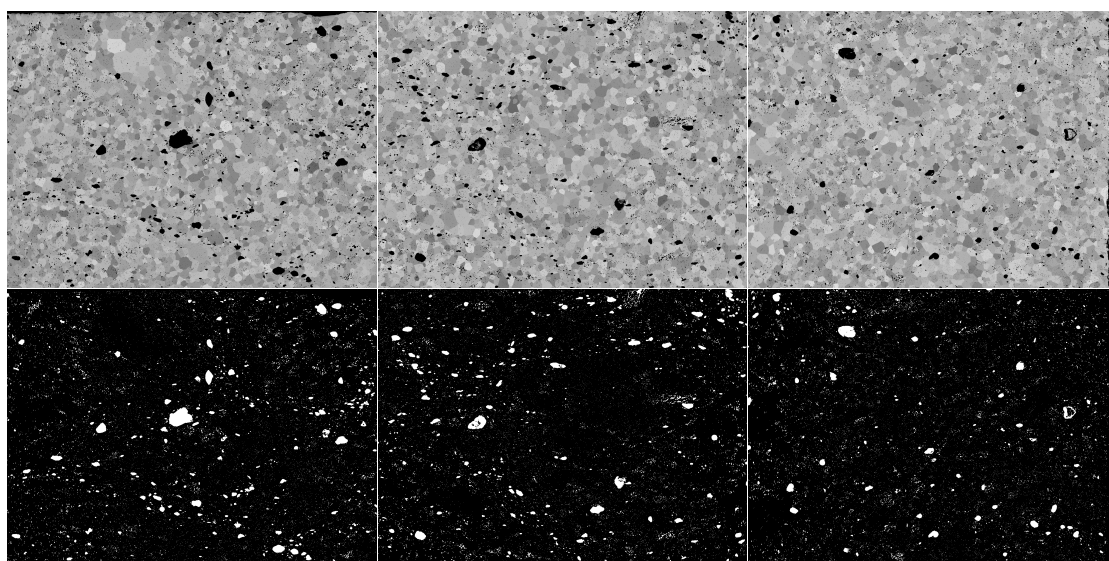


Figure 2.6. – Images MEB (au dessus) avec les images binarisées correspondantes (en dessous) obtenues par seuillage du niveau de gris afin d'extraire la porosité pour la mesure de la porosité surfacique.

matrice  $\text{UO}_2$  et le blanc aux pores présents dans le matériau (voir **Figure 2.6**). Chaque pore (représenté par un ensemble de pixel blanc) est alors caractérisé par sa surface, son diamètre (donné par le diamètre du cercle équivalent) et son facteur de forme (rapport entre les dimensions minimales et maximales d'un pore suivant 2 axes perpendiculaires) (voir **Figure 2.7**). Ensuite, une mesure de la surface de chaque pore permet de déterminer la porosité surfacique moyenne de la zone couverte par l'image MEB ainsi que la distribution de cette porosité en fonction de la taille des pores.

### 2.4. Essais mécaniques

Les essais mécaniques ont été effectués sur une machine de compression de type Instron 1185 d'une capacité de charge maximale de 50 kN (voir **Figure 2.8**). L'échantillon est maintenu et centré par des cales en tungstène (appelées cales martyres) présentant un évidement central de diamètre proche de celui de l'échantillon. La machine d'essai est équipée d'un four à atmosphère contrôlée capable de monter à une température maximale de 1800 °C. Dans le cadre de notre étude, l'atmosphère du four est régulée et composée de 95 % d'argon (Ar) et 5 % de dihydrogène ( $\text{H}_2$ ) afin de prévenir tout changement de stœchiométrie durant les essais. Le chauffage dans le four se fait à l'aide d'un résistor chauffant placé au plus près de l'échantillon. Un écran thermique en tungstène sert de première barrière thermique avec l'extérieur, la seconde étant assurée par un refroidissement de la paroi du four par une circulation d'eau.

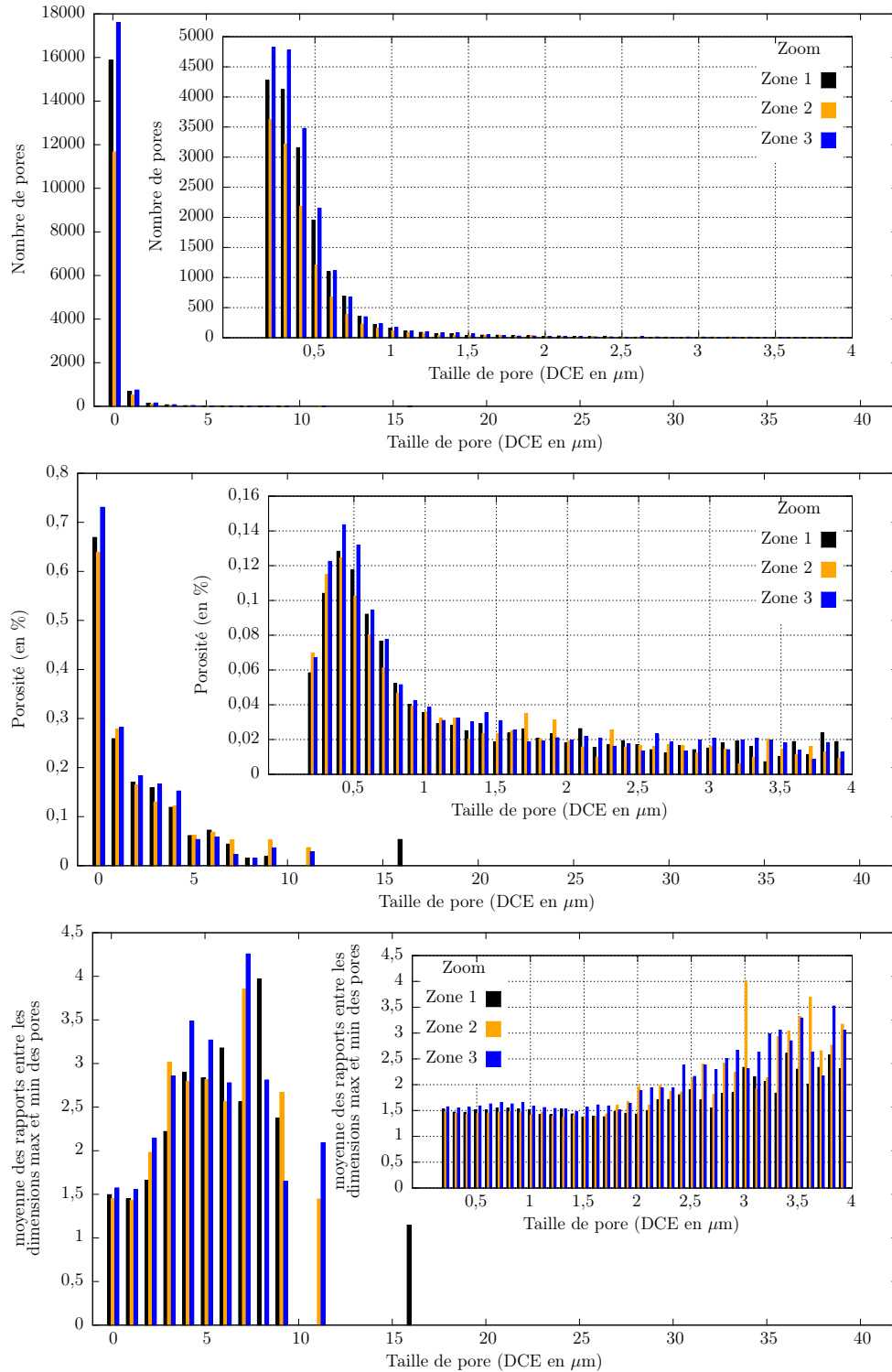


Figure 2.7. – Grandeurs issues d'un même échantillon accessibles par analyse d'image MEB avec POROPHASE.



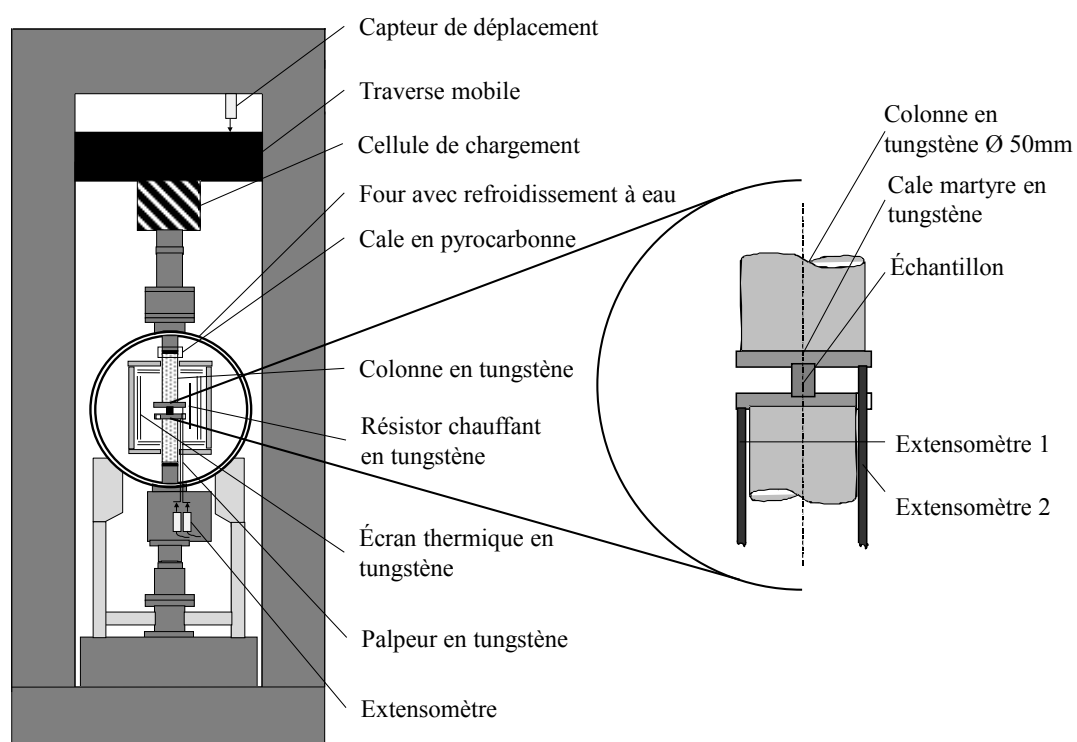


Figure 2.8. – Schéma de la machine de compression avec un zoom sur le voisinage de l'échantillon.



### 2.4.1. Régulation de la température du four

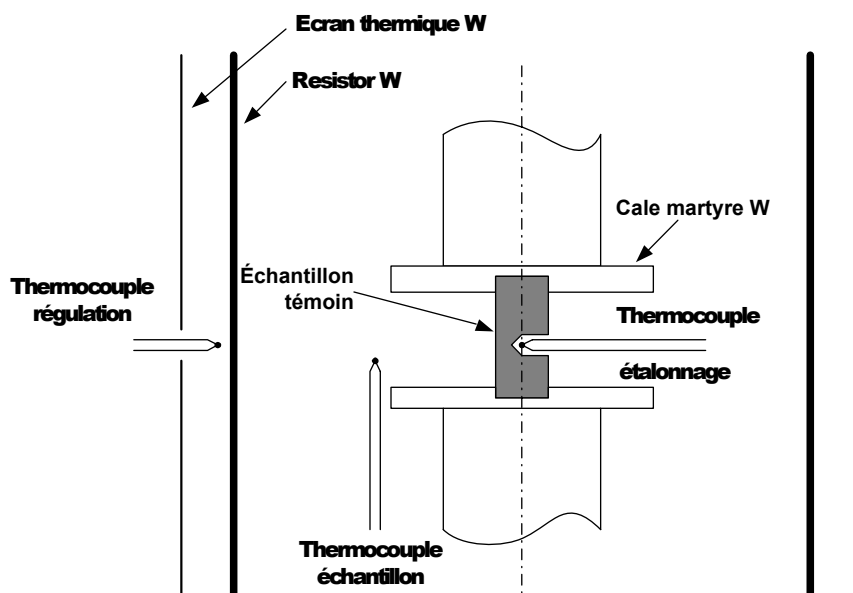


Figure 2.9. – Schéma de la méthode d'étalonnage de la régulation de température au sein de la machine d'essai.

La régulation de température se fait à l'aide d'un thermocouple placé dans l'enceinte du four. Afin de prévenir toute déviation de la régulation de la température par rapport à la température de l'échantillon, un échantillon témoin percé en son centre et muni d'un thermocouple est utilisé chaque année pour ré-étalonner le dispositif (voir **Figure 2.9**). La température de régulation à imposer pour obtenir la température souhaitée au cœur de l'échantillon est ainsi définie. Le protocole d'étalonnage est le suivant : l'échantillon témoin est placé dans la machine de compression et le vide est fait dans le four. Au bout de 15 min de pompage, le four est rempli d'un mélange gazeux composé à 95 % d'Ar et à 5 % de  $H_2$ . Ces étapes sont répétées 2 fois afin de s'assurer que le gaz qui compose l'atmosphère du four ne présente plus d'oxygène. Le four est ensuite mis en marche. Sa puissance est augmentée par paliers jusqu'à atteindre 90 % de sa puissance maximale. À chaque palier, la stabilisation des températures de régulation et de l'échantillon témoin est attendue (ce qui peut prendre plusieurs heures à faible température). Les températures de régulation et de l'échantillon témoin sont alors relevées. Une courbe polynomiale de régression basée sur ces mesures permet de déterminer la température de régulation à imposer dans l'enceinte du four afin d'obtenir la température souhaitée dans l'échantillon. Dans le cadre de l'étalonnage effectué en 2013, l'écart maximal entre les mesures expérimentales et la courbe de régression donnant la température à imposer était de 28 °C (voir **Figure 2.10**). La précision sur la valeur de la température imposée

dans l'échantillon est donc de  $\pm 28^\circ\text{C}$ .

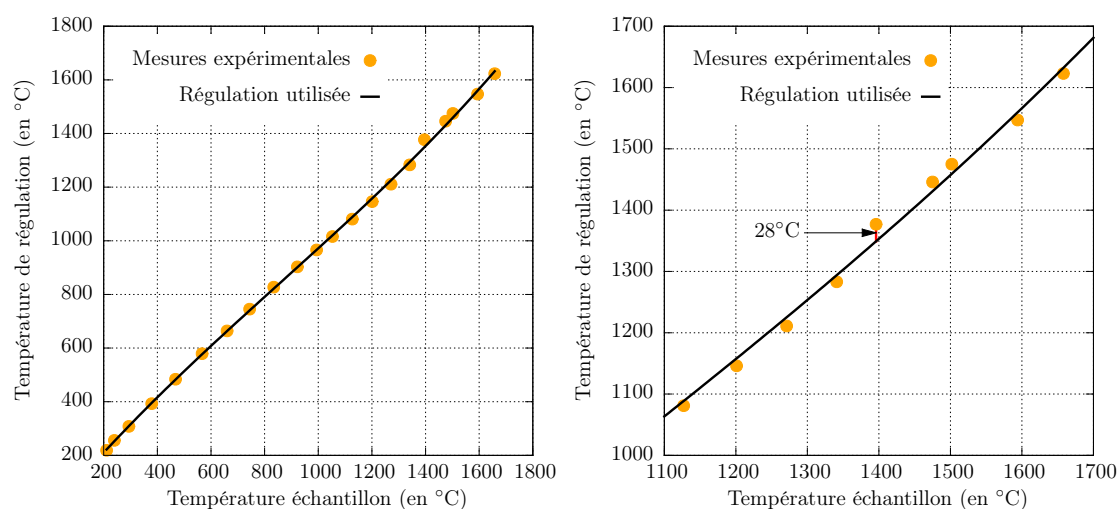


Figure 2.10. – Courbe d'étalonnage de la régulation de la température de l'échantillon dans la machine de compression.

Température souhaitée	1700 °C	1550 °C	1350 °C	1100 °C
Température de régulation	1681 °C	1511 °C	1303 °C	1064 °C

Tableau 2.1. – Correspondance entre les températures souhaitées et les température de régulation à imposer.

### 2.4.2. Protocole des essais mécaniques

Le protocole des essais de compression à vitesse de déplacement de la traverse mobile imposée est le suivant (voir **Figure 2.11**) :

- L'échantillon est placé entre les 2 cales martyres en tungstène chacune au contact d'un extensomètre permettant la mesure précise du raccourcissement de l'échantillon par différence.
- Une contrainte de 3 MPa est tout d'abord appliquée pour maintenir l'échantillon en place.
- Le vide est fait dans le four par pompage pendant 15 min puis l'enceinte du four est remplie de gaz de composition 95 % Ar et 5 % H<sub>2</sub>. Cette étape est répétée 2 fois avant de mettre en place la circulation du gaz dans le four.
- Le four est mis en marche. La montée en température se fait d'abord manuellement jusqu'à 200 °C car, à basse température, la régulation

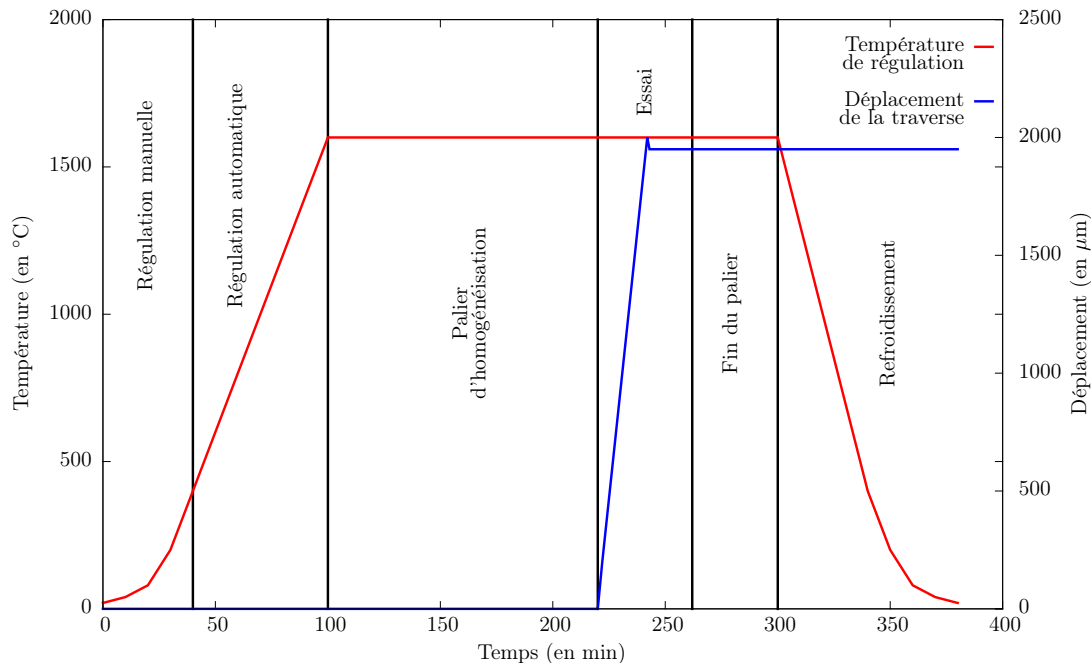


Figure 2.11. – Évolution de la température et du déplacement de la traverse lors d'un essai de compression.

automatique n'arrive pas à compenser la grande inertie thermique du dispositif. À partir de 200 °C, la température est régulée automatiquement à une vitesse de 20 °C/min jusqu'à atteindre la température souhaitée.

- Une fois la température de régulation atteinte (voir **Tableau 2.1** dans le cas de notre étude), l'homogénéisation de la température dans tout l'échantillon est attendue pendant 2 h puis l'essai à proprement parler peut commencer.
- La traverse est déplacée à une vitesse constante (0,1 mm/min) jusqu'à ce que la contrainte atteigne 5 MPa. Les mesures de déplacement de la traverse et des 2 extensomètres sont alors mises à 0. Suite à cette mise à 0, la traverse mobile est déplacée à la vitesse souhaitée (dans le cas de notre étude, les vitesses étaient de 0,1 mm/min, 1 mm/min, 10 mm/min et 100 mm/min) jusqu'à atteindre un déplacement pré-défini (variable suivant l'essai).
- Une décharge finale à vitesse de déplacement imposée de 10 mm/min jusqu'à ce que la contrainte atteigne 5 MPa termine l'essai et l'enregistrement des données de déplacement et de contrainte.
- Le refroidissement se fait alors à 30 °C/min jusqu'à 20 °C. Du fait de l'inertie thermique, le refroidissement réel de l'échantillon se fait plus lentement une fois que la température est inférieure à < 1000 °C.
- Pour sortir l'échantillon de la machine, la circulation de gaz est coupée, le

vide commence à être fait jusqu'à ce que la pression à l'intérieur du four soit assez faible pour permettre aux écrous de fermeture d'être desserrés. Du fait de la pression devenue très faible dans le four, un effet ventouse empêche son ouverture. Le four est alors à nouveau rempli de gaz jusqu'à ce que son ouverture soit possible et que l'échantillon puisse être retiré.

### 2.4.3. Résultats types

Les mesures de déplacement données par les extensomètres (desquelles sont déduites les variations de hauteur de l'échantillon et les déformations à l'aide de l'Équation 5.2) et de force (desquelles sont déduites les contraintes à l'aide de l'Équation 2.7) effectuées pendant toute la durée de l'essai permettent de tracer une courbe contrainte-déformation.

$$\varepsilon = \ln \left( \frac{h}{h_0} \right) \quad (2.6)$$

avec  $\varepsilon$  la déformation,  $h = h_0 + \Delta h$  la hauteur de la pastille déformée et  $h_0$  sa hauteur initiale.

$$\sigma = -\frac{4F}{\pi d_0^2} \quad (2.7)$$

avec  $\sigma$  la contrainte,  $F$  la force et  $d_0$  le diamètre initial de la pastille.

Dans le cas de l' $\text{UO}_2$  et si les sollicitations permettent à l'échantillon de se déformer de manière ductile, les courbes contrainte-déformation présentent les caractéristiques suivantes (voir **Figure 2.12**) :

- une linéarité initiale qui, idéalement, correspond à l'élasticité du matériau ;
- une perte de linéarité qui dans certaines conditions conduit à l'apparition d'un pic de compression ;
- un écrouissage apparent avec une pente qui peut être quasi-constante ;
- une décharge finale qui, idéalement, correspond au retour élastique du matériau.

Bien que la mesure de déplacement se fasse au niveau de l'échantillon (par différence entre les déplacements des cales supérieure et inférieure), la pente initiale de la courbe contrainte-déformation ( $\approx 60$  GPa) n'est pas suffisante pour être seulement due à l'élasticité du matériau (le module d'élasticité est proche de 200 GPa pour l' $\text{UO}_2$  à température ambiante). Une explication pourrait être que les cales fléchissent pendant la montée en charge et que ce déplacement supplémentaire, si petit soit-il, suffit à réduire considérablement le module de linéarité initiale. En effet, un simple calcul montre que pour une pastille de

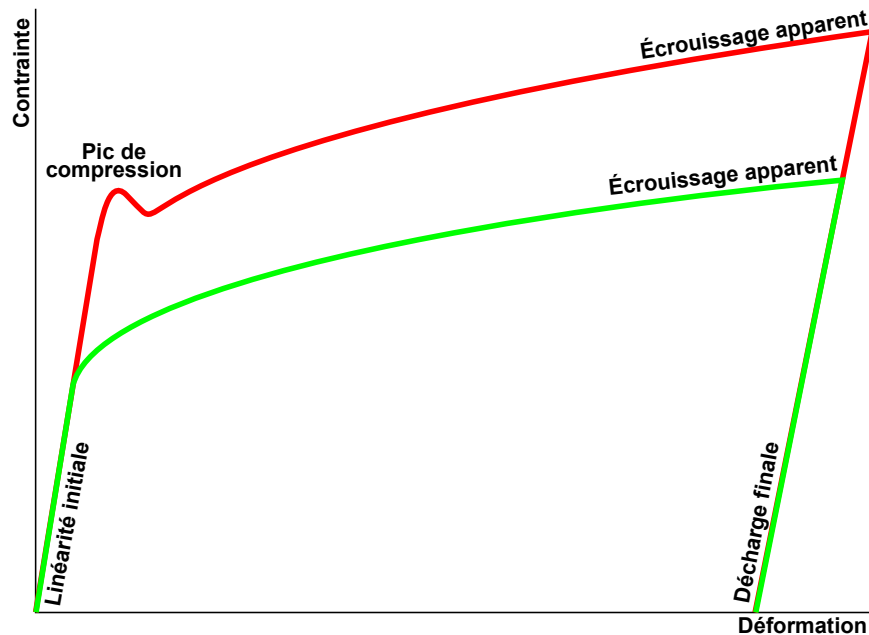


Figure 2.12. – Courbes contrainte-déformation types obtenues pour des essais de compression à vitesses de déplacements imposées.

12 mm de hauteur, un déplacement de seulement 3  $\mu\text{m}$  suffit pour atteindre une contrainte de 50 MPa. Une autre cause pourrait être l'écrasement des aspérités au niveau des cales en tungstène ou de la pastille. Enfin et surtout, les mesures des déplacements sont déportées hors du four via des tiges en tungstène ce qui a pour effet de détériorer la précision de la mesure.

La décharge finale présente le même problème. Même si son but premier est de ne pas laisser la pastille sous une charge trop importante pendant le refroidissement, sa mesure aurait pu permettre d'évaluer l'endommagement de l'échantillon par comparaison avec le module d'élasticité initial.

#### 2.4.4. Reproductibilité

Avant toute campagne d'essais sur un lot d'échantillon, il faut vérifier si les différences dues à la fabrication (porosité, taille de grain, impuretés,...) ainsi que les imprécisions de la procédure d'essai n'engendrent pas une trop grande dispersion des résultats dans le cas d'essais en conditions similaires. Pour cela, des essais de reproductibilité ont été faits. Les résultats (voir la **Figure 2.13**) montrent que pour les essais doublés ou triplés à la température de 1350 °C et aux vitesses de déformations de  $10^{-2}$  /s et  $10^{-3}$  /s, la variation de la contrainte d'écoulement mesurée ( $\sigma_{ecoul}$  correspondant à l'intersection entre la droite représentative de la linéarité initiale et la droite représentative de

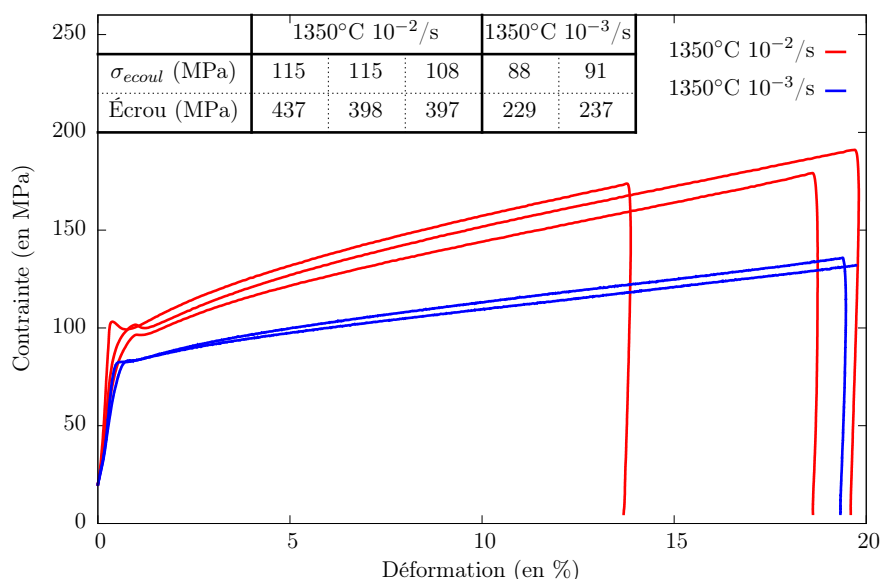


Figure 2.13. – Essais de reproductibilités.

l'écrouissage apparent) n'excède pas 7 MPa, ce qui représente 6 %. De même, la variation de la pente d'écrouissage apparent (Écrou sur la **Figure 2.13**) n'excède pas 10 %. La reproductibilité des essais mécanique est donc considérée comme acceptable. Un écart-type d'au moins 10 % devra être considéré lors de l'analyse des résultats. Ces résultats sont conformes à ceux issus d'essais similaires à vitesses plus lentes.

### 2.4.5. Grille d'essais

L'objectif de l'étude expérimentale est de caractériser le comportement mécanique de pastilles d' $\text{UO}_2$  en compression à haute température et forte vitesse de sollicitation. Le choix a donc été fait de pousser les capacités du matériel expérimental au maximum. Les limitations du matériel sont les suivantes :

- Même en poussant la puissance du four qui équipe la machine de compression à 98 %, la température maximale atteinte à l'intérieur de celui-ci ne peut dépasser les 1800 °C. Dans le cadre de notre étude, afin de ne pas sur-solliciter le générateur du four, une température maximale de 1700 °C a été imposée.
- La carte d'acquisition de données ne peut pas enregistrer plus d'une valeur toutes les 2 ms. Une courbe nécessitant au moins 500 points, un essai doit au minimum durer 1 s. Dans le cas d'un essai sur une pastille cylindrique de 10 mm de hauteur, pour atteindre une déformation de 20 %, une vitesse de déplacement maximale de 2000  $\mu\text{m/s}$  est requise afin d'obtenir un

minimum de 500 points de mesure. Dans notre étude, nous nous limiterons donc à une vitesse de déplacement de 100 mm/min.

- La machine de compression de type Instron 1185 utilise des roues dentées et des courroies pour actionner le déplacement de la traverse ce qui induit un jeu et une inertie importante dans son déplacement. Dans le cas d'un essai trop rapide, la colonne supérieure pourrait venir heurter la colonne inférieure et ainsi endommager la machine. Dans notre étude, un déplacement maximal de 2000  $\mu\text{m}$  est utilisé afin de laisser une marge d'au moins 10 000  $\mu\text{m}$  pour permettre à la colonne supérieure de s'arrêter avant de rentrer en contact avec la colonne inférieure.
- Le capteur de charge ne peut encaisser une charge supérieure à 50 kN. Dans le cas d'un échantillon cylindrique de 8,2 mm de diamètre, cette charge maximale correspond à une contrainte de 1000 MPa. Les essais sur  $\text{UO}_2$  à température ambiante (IGATA 1973) ont montré que la contrainte à rupture atteinte était d'environ 1000 MPa. La charge maximale supportée par le capteur n'est donc pas limitante dans la mesure où les essais sont effectués à une température supérieure à 20 °C.

Les sollicitations utilisées doivent également balayer la gamme de températures où l' $\text{UO}_2$  a un comportement ductile ( $T > 1000$  °C) et permettre également des recoupements avec la gamme de vitesses de déformation usuellement utilisées dans les études expérimentales sur  $\text{UO}_2$  ( $\dot{\epsilon} < 10^{-4}$  /s). L'étude expérimentale a donc été menée à des températures de 1100 °C, 1350 °C, 1550 °C et 1700 °C et à des vitesses de sollicitation de 0,1 mm/min, 1 mm/min, 10 mm/min et 100 mm/min (auxquelles correspondent des vitesses de déformation d'environ  $10^{-4}$  /s,  $10^{-3}$  /s,  $10^{-2}$  /s et  $10^{-1}$  /s).

#### 2.4.6. Mesure de l'endommagement

Chaque essai de compression nécessite un long temps de préparation et de mise en œuvre. C'est pourquoi chaque essai se doit de fournir un maximum d'informations. Dans ce but, des historiques de sollicitation non usuels ont été mis en œuvre.

Le premier historique est caractéristique d'un essai comprenant des charge-décharges successives. Son but est de pouvoir quantifier l'endommagement interne de l'échantillon au fur et à mesure de la déformation imposée à celui-ci.

Une des méthodes pour quantifier l'endommagement d'un échantillon déformé est de mesurer le module d'Young de celui-ci avant et après essai. Un endommagement se traduit en effet par une détérioration de son module d'Young. Les essais de compression ne permettant pas de faire une mesure précise du module d'Young de l'échantillon, une étude de la variation des pentes de décharge lors d'un essai de charge-décharge a été faite.

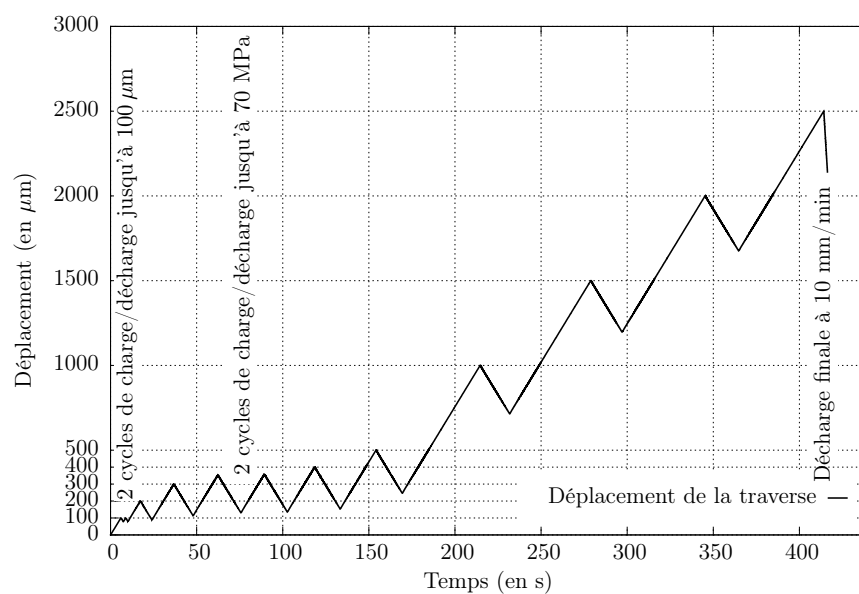


Figure 2.14. – Déplacement de la traverse dans un essai de charge-décharge à  $1350\text{ }^{\circ}\text{C}$  et  $10^{-3}\text{ /s}$ .

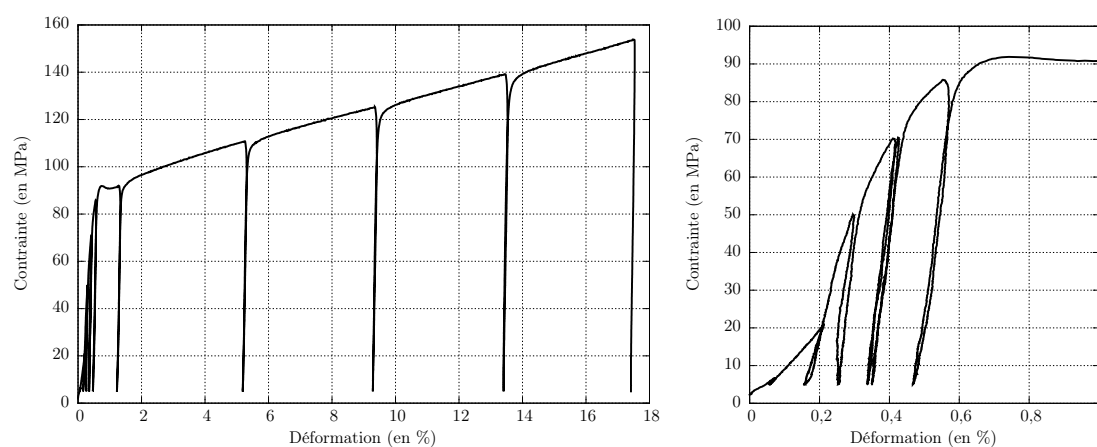


Figure 2.15. – Courbe contrainte-déformation lors d'un essai de charge-décharge à  $1350\text{ }^{\circ}\text{C}$  et  $10^{-3}\text{ /s}$ .



Un essai de charge-décharge débute de la même façon qu'un essai classique. Une fois l'échantillon mis en place, l'atmosphère du four contrôlée et la température de régulation atteinte, l'essai démarre. Contrairement aux essais classiques, la vitesse de déplacement de la traverse n'est pas constante tout au long de l'essai (voir **Figure 2.14**). La traverse commence par se déplacer à la vitesse imposée puis une fois que le déplacement a atteint 100  $\mu\text{m}$ , une première décharge a lieu à la même vitesse. Lorsque la contrainte est retombée à 5 MPa, la traverse charge à nouveau l'échantillon. Ce cycle de charge/décharge est répété plusieurs fois en faisant varier la condition d'amorçage de la décharge. Les conditions successives utilisées sont :

- un déplacement de la traverse de 100  $\mu\text{m}$  (cycle de charge-décharge répété 2 fois), de 200  $\mu\text{m}$ , de 300  $\mu\text{m}$ ,
- une contrainte de compression de 70 MPa (cycle de charge-décharge répété 2 fois),
- un déplacement de la traverse de 400  $\mu\text{m}$ , de 500  $\mu\text{m}$ , de 1000  $\mu\text{m}$ , de 2000  $\mu\text{m}$  et de 2500  $\mu\text{m}$ .

Une décharge finale à 10 mm/min termine l'essai. La courbe contrainte-déformation ainsi obtenue est tracée sur la **Figure 2.15**. Les courbes de charge-décharge présentent une faible hystérésis caractéristique d'un comportement visco-élastique.

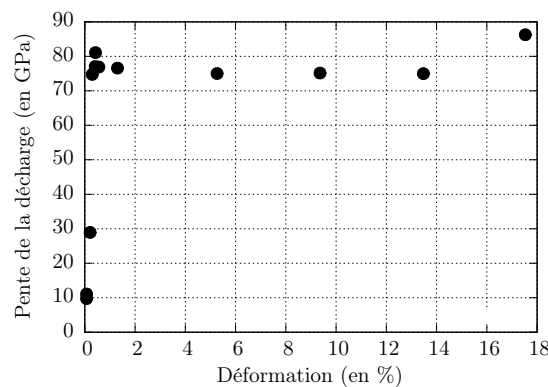


Figure 2.16. – Pentes des décharges successives lors d'un essai de charge-décharge à 1350 °C et  $10^{-3}$  /s.

Les mesures des pentes de décharge lors de cet essai sont tracées dans la **Figure 2.16**. Elles montrent que, tant que la déformation n'est pas suffisante ( $< 1\%$ ), et donc que la contrainte n'est pas assez importante, le déplacement supplémentaire due à la déformation des cales martyres en tungstène (ou l'imprécision de la mesure due aux tiges en tungstène) perturbe de façon trop importante la décharge. La pente de la décharge est en conséquence très faible. Une fois que la déformation a dépassé les 1 %, la pente se stabilise mais

contrairement à ce qui était attendu, elle ne varie pas significativement. Notons également que la vitesse de décharge influe sur la pente. En effet, les décharges intermédiaires ont été faites à la même vitesse que le chargement, c'est-à-dire à 1 mm/min alors que la décharge finale a été faite à 10 mm/min. Cette différence a fait passer la pente de 75 GPa à 86 GPa. Ce type d'essai n'a pas été reproduit car les résultats obtenus ne permettent pas de quantifier l'endommagement de l'échantillon. D'autre part, il n'y a aucun moyen de vérifier que la microstructure n'est pas impactée par les cycles successifs, ce qui rendrait toute analyse difficile.

### 2.4.7. Essais à sauts de vitesse

Le second type d'essai non usuel mis en œuvre est l'essai dit à sauts de vitesse. Son but est de fournir les caractéristiques du comportement du matériau à plusieurs vitesses de déformation lors d'un seul essai. Un essai à sauts de vitesse consiste à réaliser un essai de compression en faisant varier subitement la vitesse de déplacement de la traverse. Le protocole de régulation de la température et de l'atmosphère du four est identique à un essai classique. Contrairement à un essai classique, la vitesse de déplacement est d'abord imposée à 0,1 mm/min, puis multipliée par 10 tous les 500  $\mu\text{m}$  de déplacement de la traverse.

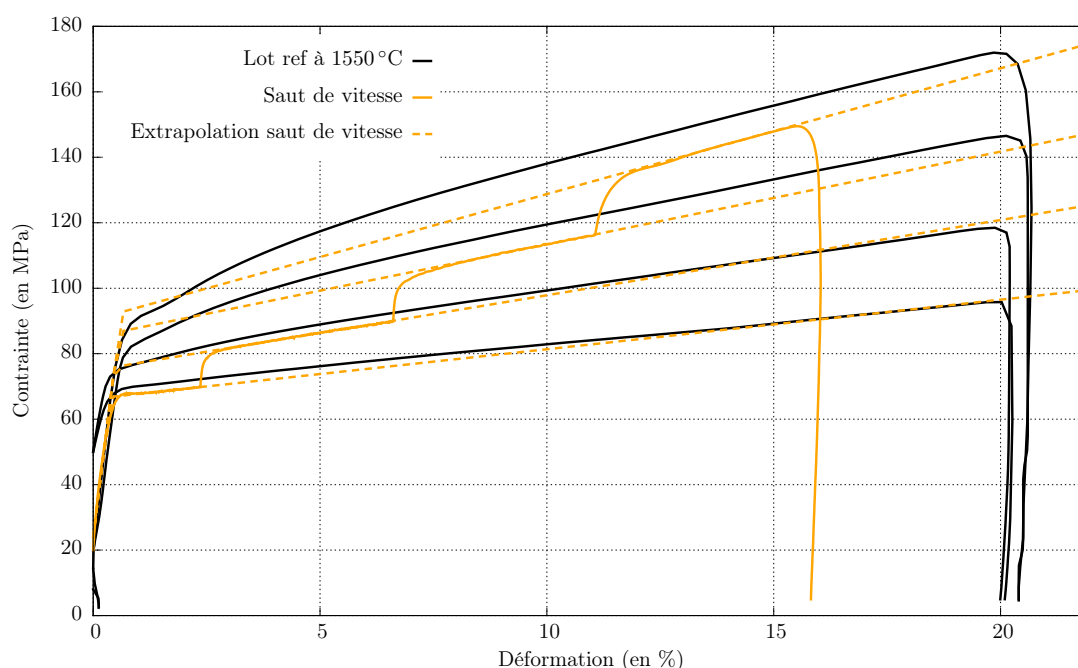


Figure 2.17. – Comparaison entre un essai "saut de vitesse" et les essais à vitesse de déplacement unique correspondants.

La comparaison de la courbe contrainte-déformation obtenue dans un essai à sauts de vitesse à une température de 1550 °C avec celles d'essais à vitesse de

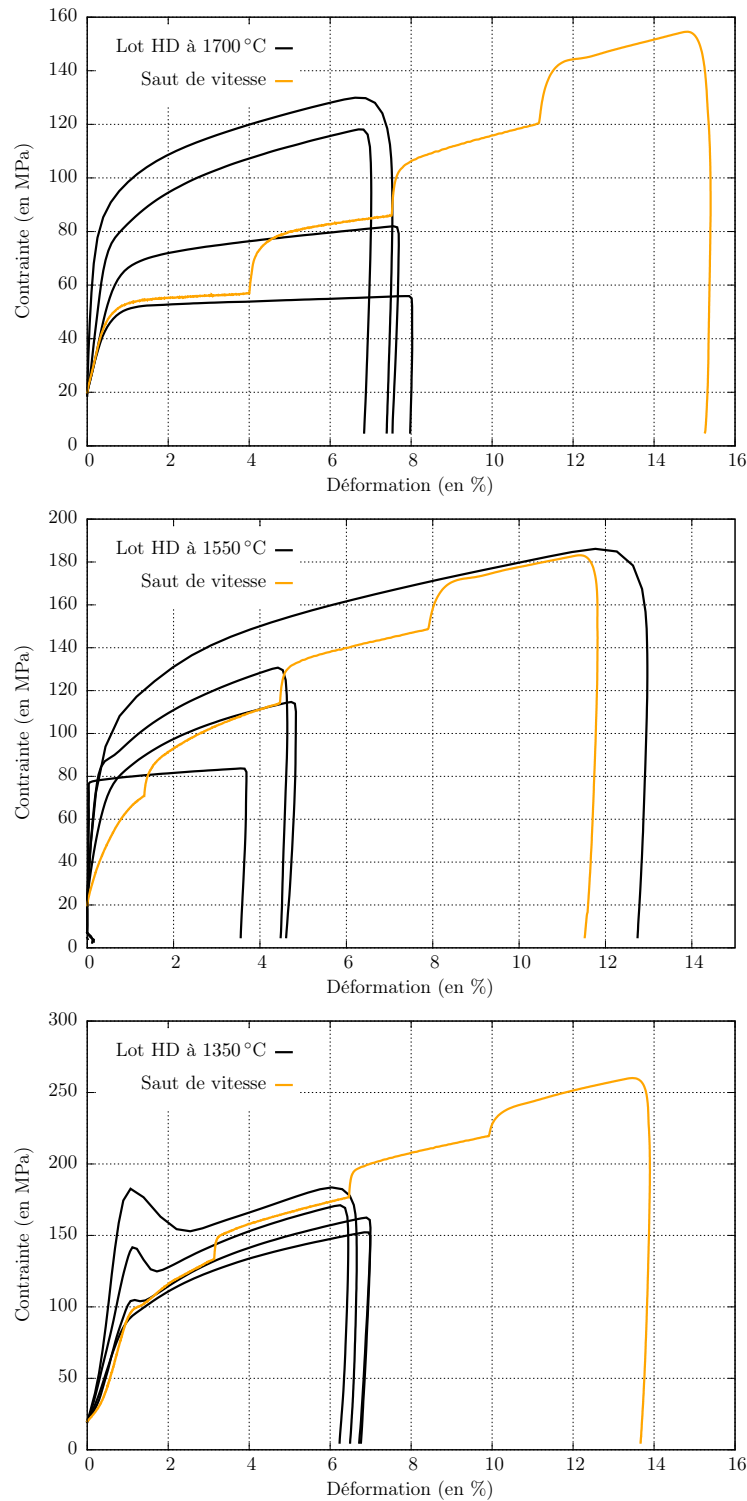


Figure 2.18. – Comparaison entre les essais à sauts de vitesse et les essais à vitesse de déplacement unique correspondants.

déplacement unique (0,1 mm/min, 1 mm/min, 10 mm/min et 100 mm/min) est proposée dans la **Figure 2.17** (les traits en pointillés montrent l'extrapolation de chacune des portions à vitesse constante de l'essai à sauts de vitesse). Le faible écart entre les courbes des essais à vitesse de déplacement unique et celle de l'essai à sauts de vitesse ( $< 10$  MPa) montre qu'il est possible d'obtenir les contraintes d'écoulement ainsi que les pentes d'écrouissage apparent associées à chaque vitesse de déplacement à partir d'un seul essai à sauts de vitesse.

Des essais à saut de vitesse ont également été faits sur un lot de pastilles de forte densité à des températures de 1700 °C, 1550 °C et 1350 °C (voir **Figure 2.18**). Malgré une première observation qui semble confirmer les conclusions précédentes, la faible déformation finale des essais à vitesse de déplacement unique ne permet pas de vérifier qu'il y a une bonne corrélation entre les essais à sauts de vitesse et les essais à vitesse de déplacement unique correspondants. On remarquera que les pics de compression visibles dans les essais à vitesse de déformation unique sont absents des essais à sauts de vitesse.

## 2.5. Synthèse

Dans ce chapitre, nous avons présenté un certain nombre de techniques expérimentales déjà largement éprouvées lors de travaux antérieurs : mesure de densité par pesée hydrostatique dans l'alcool desquelles nous avons pu déduire les porosités ouverte et fermée du matériau, préparations sophistiquées et analyses d'images au MEB permettant d'acquérir des données sur la porosité totale, la distribution des tailles de pores, la forme des pores ainsi que la taille de grain.

L'originalité de notre approche réside dans l'utilisation systématique de ces techniques avant et après essai mécanique et en différentes zones des pastilles sollicitées.

Nous avons montré qu'il était possible avec le matériel disponible au CEA d'atteindre des vitesses de déformation de  $10^{-1}$  /s sans altérer la reproductibilité des essais.

En lien avec les limites du matériel d'essais mécaniques, une grille de 16 essais (4 vitesses de déformation - 4 températures) a alors été définies afin d'étudier la réponse mécanique de l' $\text{UO}_2$  en compression suivant un spectre aussi large que possible.

Quelques historiques de chargement atypiques ont été testés afin de caractériser tout d'abord l'endommagement du matériau pendant les essais, puis de réduire le nombre d'essais de 16 à 4 (essais à sauts de vitesse).

Alors que l'endommagement semble impossible à déduire de nos mesures, les essais à sauts de vitesse pourraient permettre une caractérisation du comportement de l' $\text{UO}_2$  sur un très large spectre de vitesses de déformation et de température en un temps très réduit.

Dans la suite de ce travail, nous avons néanmoins privilégié les essais à vitesse de déformation unique afin de pouvoir caractériser la microstructure des échantillons après chaque condition de chargement.



## 3. Étude du lot de référence

### Table des matières

3.1	Introduction	85
3.2	Aspects expérimentaux	86
3.2.1	Caractérisation des échantillons	86
3.2.2	Courbes contrainte-déformation	87
3.2.3	Fissuration et variation de volume	91
3.2.4	Évolution de la microstructure	93
3.3	Modélisation	98
3.3.1	Paramètres d'activation d'une loi de Norton	98
3.3.2	Loi de fluage	100
3.3.3	Identification des paramètres	101
3.3.4	Implémentation numérique	104
3.4	Simulation	108
3.4.1	Maillage et conditions aux limites	108
3.4.2	Essais expérimentaux	109
3.4.3	Essais de fluage	115
3.5	Synthèse	117

### 3.1. Introduction

Les études du comportement mécanique de l'UO<sub>2</sub> à haute température et forte vitesse de sollicitation sont peu nombreuses (GUÉRIN 1975 ; ROBERTS 1974 ; TACHIBANA 1976) et anciennes. Néanmoins elles montrent que les deux mécanismes de déformation identifiés à faibles vitesses (entre 10<sup>-9</sup> /s et 10<sup>-5</sup> /s) et modélisés par des lois de comportement de type Norton ne sont plus adéquats lorsque la vitesse de déformation dépasse 10<sup>-3</sup> /s. C'est pourquoi dans un premier temps, une étude expérimentale du comportement mécanique de l'UO<sub>2</sub> à haute température et forte vitesse de sollicitation est faite. Dans un second temps, un modèle constitutif adéquat est proposé. Enfin, la validation de ce modèle est faite par simulation par éléments finis des essais.

## 3.2. Aspects expérimentaux

### 3.2.1. Caractérisation des échantillons

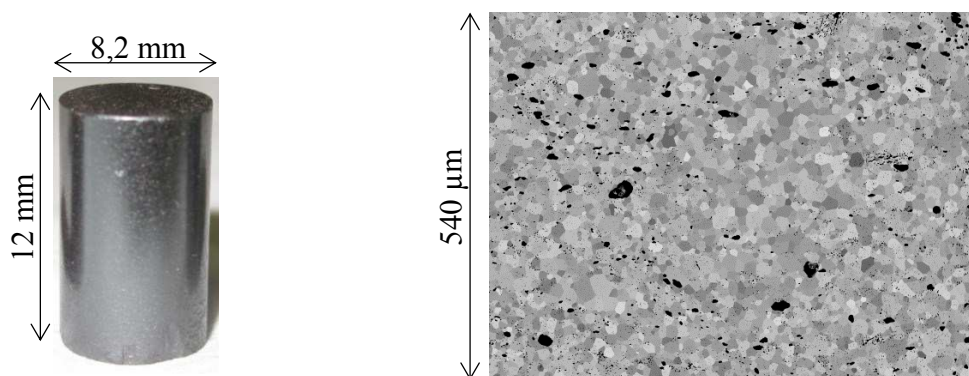


Figure 3.1. – Géométrie et microstructure des échantillons du lot de référence avant essai.

Les échantillons utilisés sont des pastilles d' $\text{UO}_2$  frittées de type commerciales. Ils ont une forme cylindrique d'approximativement 8,2 mm de diamètre et 12 mm de hauteur. Les conditions de frittage garantissent que le ratio Oxygène sur Uranium soit proche de 2 (stœchiométrie). Une mesure de la densité initiale des échantillons a été faite systématiquement par imbibition d'alcool. Les résultats montrent une densité relative moyenne de 96,4 % avec un écart type de 0,3 %. La caractérisation de la microstructure initiale du lot de référence a été faite en observant certaines pastilles au Microscope Électronique à Balayage (MEB). Ceci a permis une estimation de la taille de grain par la méthode des intercepts à partir des images obtenues. Cette mesure donne une taille de grain moyenne d'environ 10  $\mu\text{m}$  avec un écart type de 0,9  $\mu\text{m}$ . À l'aide du logiciel ProAnalysis<sup>®</sup>, une estimation de la distribution des tailles de pore a été effectuée. La porosité apparaît uniforme dans tout l'échantillon avec une porosité surfacique moyenne de 5,2 % et un écart type de 0,6 %. Les pastilles du lot de référence semblent donc assez homogènes.

Une analyse plus précise d'une surface de 0,44 mm<sup>2</sup> du centre d'un échantillon grâce à la diffraction des électrons rétrodiffusés (Electron BackScatter Diffraction : EBSD) permet d'accéder, entre autre, à la distribution des tailles de grain dans la zone étudiée (voir **Figure 3.2**). Au centre de la pastille observée, 67 % des grains en nombre ont une taille inférieure à 10  $\mu\text{m}$  et 97 % une taille inférieure à 20  $\mu\text{m}$ . La taille de grain moyenne mesurée dans cette zone est la même que celle obtenue précédemment (10  $\mu\text{m}$ ). Cette analyse permet également de déterminer la répartition intra-intergranulaire de la porosité. Il en ressort (voir **Tableau 3.1** et **Figure 3.2**) que les pores situés aux joints de grain sont peu nombreux (13 % du nombre total de pores) mais que, malgré tout, ils représentent



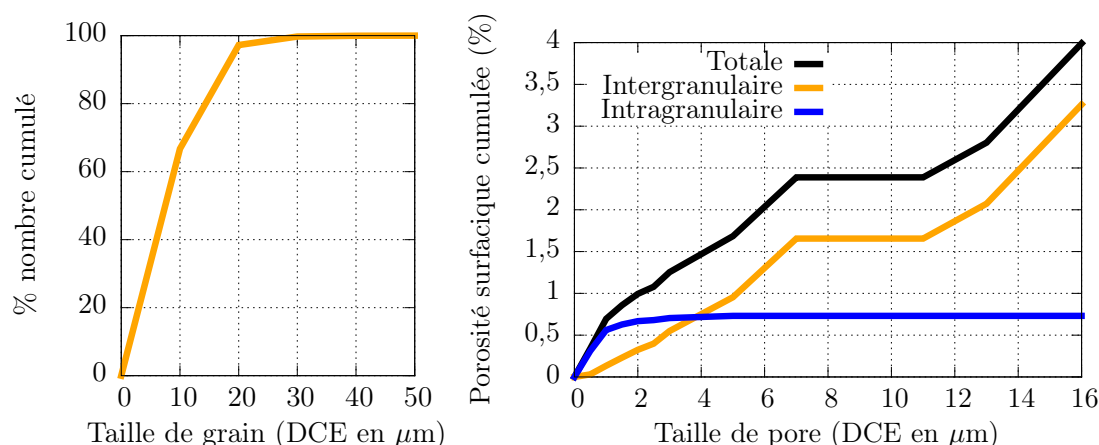


Figure 3.2. – Distribution de taille de grain et fraction surfacique de porosité initiale du lot de référence.

plus de 80 % de la porosité surfacique avec une taille moyenne (en terme de diamètre du cercle équivalent DCE) de 2,1 µm. À l’opposé, les pores contenus dans les grains sont très nombreux (87 % du nombre total de pores) mais ne participent que très peu à la porosité totale du fait de leur petite taille (0,4 µm en moyenne).

Porosités	DCE moyen en µm	Porosité %	Nb de pore %
Totale	0,8 µm	4,0 %	100 %
Intergranulaire	2,1 µm	3,3 %	13 %
Intragranulaire	0,4 µm	0,7 %	87 %

Tableau 3.1. – Répartition de la porosité du lot de référence.

### 3.2.2. Courbes contrainte-déformation

Les essais de compression à vitesse de déplacement imposé effectués sur les échantillons du lot de référence ont été faits entre 1100 °C et 1700 °C avec des vitesses entre 0,1 mm/min et 100 mm/min auxquelles correspondent des vitesses de déformation entre  $10^{-4}$  /s et  $10^{-1}$  /s (voir **Tableau 3.2**). Les courbes contrainte-déformation des essais mécaniques montrent qu’à température constante (voir **Figure 3.3**), l’augmentation de la vitesse de déformation a pour effet d’augmenter la contrainte d’écoulement, de faire apparaître un pic de compression et de conduire à un écrouissage apparent plus prononcé. Ces résultats sont en accord avec ce que d’autres auteurs (**GUÉRIN 1975**; **TACHIBANA 1976**) ont déjà observé auparavant. À vitesse constante

(voir **Figure 3.4**), l'augmentation de la température à l'effet inverse, c'est-à-dire, qu'elle conduit à une diminution de la contrainte d'écoulement, à la disparition du pic de compression et à un écrouissage apparent de moins en moins prononcé, ce qui est également cohérent avec les études précédentes. En général, l'écrouissage apparent est attribué à l'accroissement du diamètre de l'échantillon au cours de l'essai (**GUÉRIN 1975**).

La définition d'une contrainte d'écoulement à partir de ces courbes est délicate. Le choix a été fait ici de définir cette contrainte d'écoulement comme la contrainte mesurée à 2 % de déformation afin de faire abstraction du pic de compression. La comparaison des contraintes d'écoulement obtenues pour le lot de référence avec celles des études antérieures (**CANON 1971 ; GUÉRIN 1975 ; TACHIBANA 1976**) (voir **Figure 3.5**) montre que, pour une vitesse de déformation fixée (une même couleur sur la figure), la dépendance à la température est semblable entre le lot de référence et les résultats de Tachibana, de plus en plus marquée à mesure que la température diminue. La rupture de pente à 1350 °C se retrouve notamment. Les résultats de Guérin présentent quant à eux une dépendance à la température prononcée même à forte température. Les résultats de Canon sont à considérer avec précaution car issus d'essais de flexion 4 points mais présentent une dépendance à la température cohérente avec les essais de compression et des valeurs de contraintes d'écoulement semblables à ce que Guérin observe. Les contraintes du lot de référence sont sensiblement plus faibles que celles de Guérin ou Tachibana. Cette différence peut probablement s'expliquer par des différences de microstructure et de géométrie dans les échantillons étudiés. Les échantillons de Guérin présentaient une taille de grain faible (5  $\mu\text{m}$ ) et ceux de Tachibana un ratio hauteur sur diamètre élevé (hauteur de 10 mm et diamètre de 5,5 mm).

Concernant l'écrouissage apparent (dont la pente est mesurée par régression linéaire sur la dernière partie des courbes contrainte-déformation), son évolution n'est pas linéaire avec la variation de la température (voir **Figure 3.6**). Quand la température passe de 1100 °C à 1350 °C, il décroît fortement. Il diminue plus faiblement lorsque la température augmente. L'écrouissage apparent augmente régulièrement avec la vitesse de déformation à part lors des essais à 1100 °C où la pente diminue lorsque la vitesse passe de  $10^{-2}$  /s à  $10^{-1}$  /s. Cette inversion est liée à un endommagement prononcé de l'échantillon testé à 1100 °C et  $10^{-1}$  /s. Par la suite, conformément au protocole décrit au chapitre 2, une barre d'erreur quantifiant l'écart entre la contrainte d'écoulement et la contrainte au pic de compression ainsi que l'écart entre la contrainte d'écoulement et la contrainte à l'intersection entre la linéarité initiale et l'écrouissage apparent est prise en compte afin de rendre compte de l'incertitude de mesure.

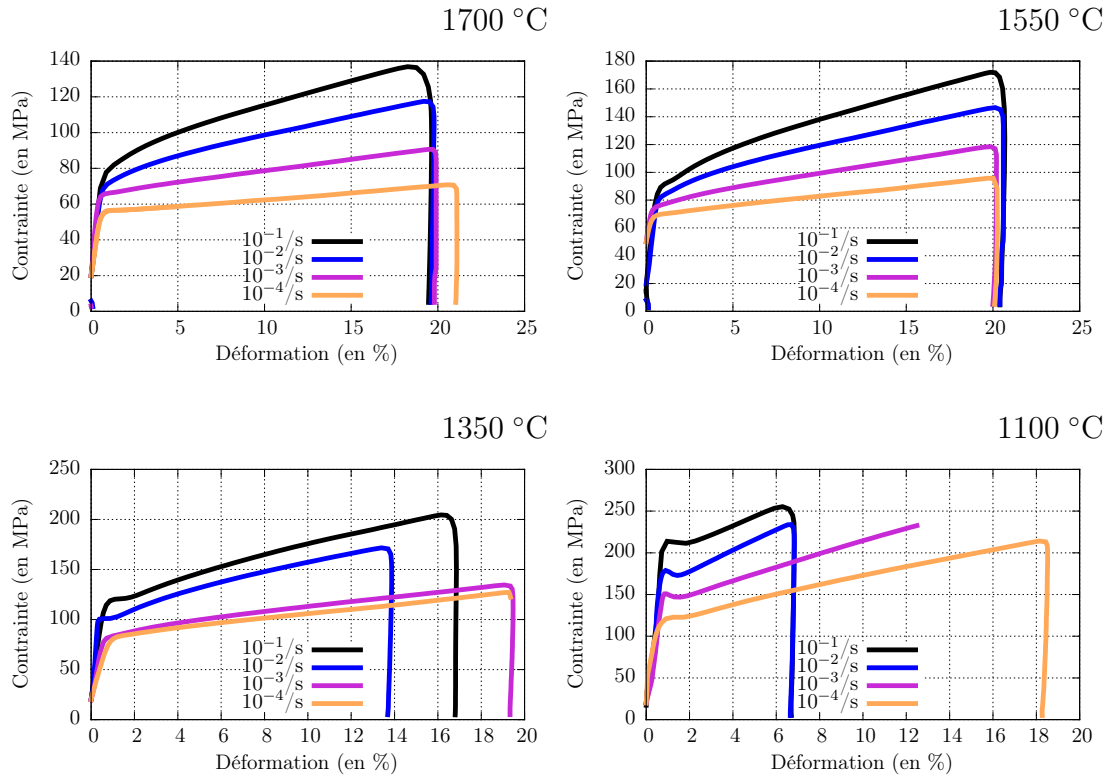


Figure 3.3. – Influence de la vitesse dans les essais.

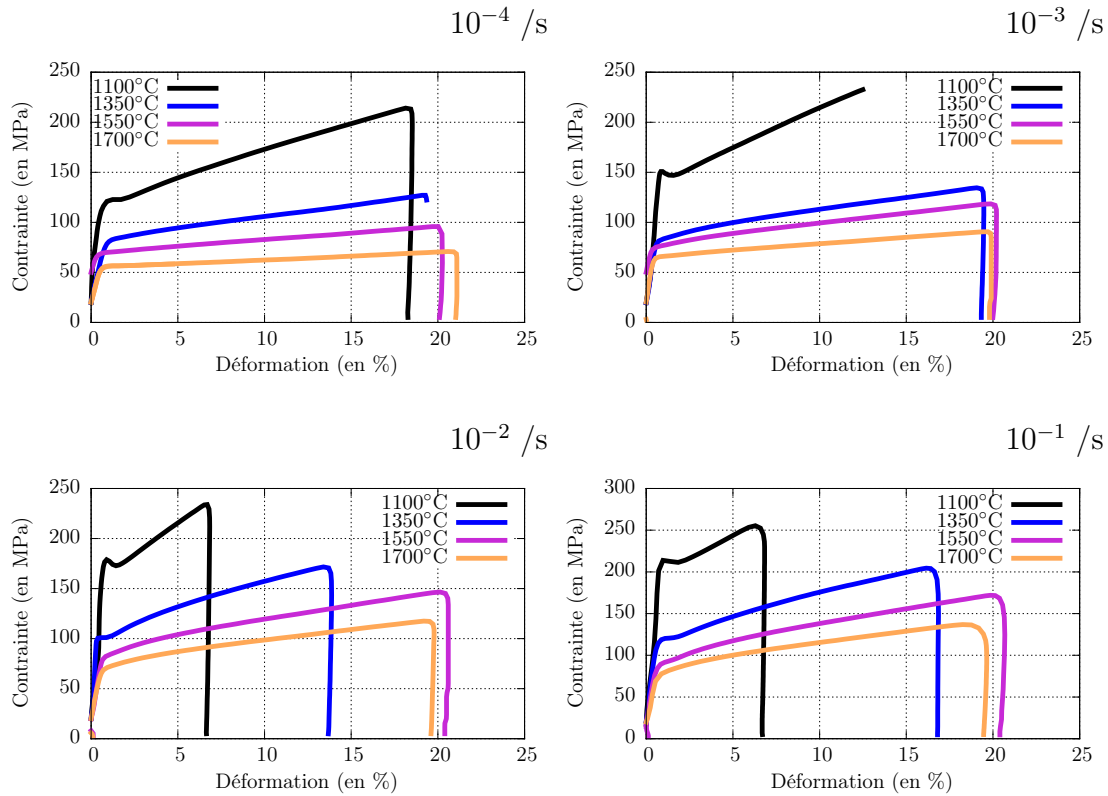


Figure 3.4. – Influence de la température dans les essais.

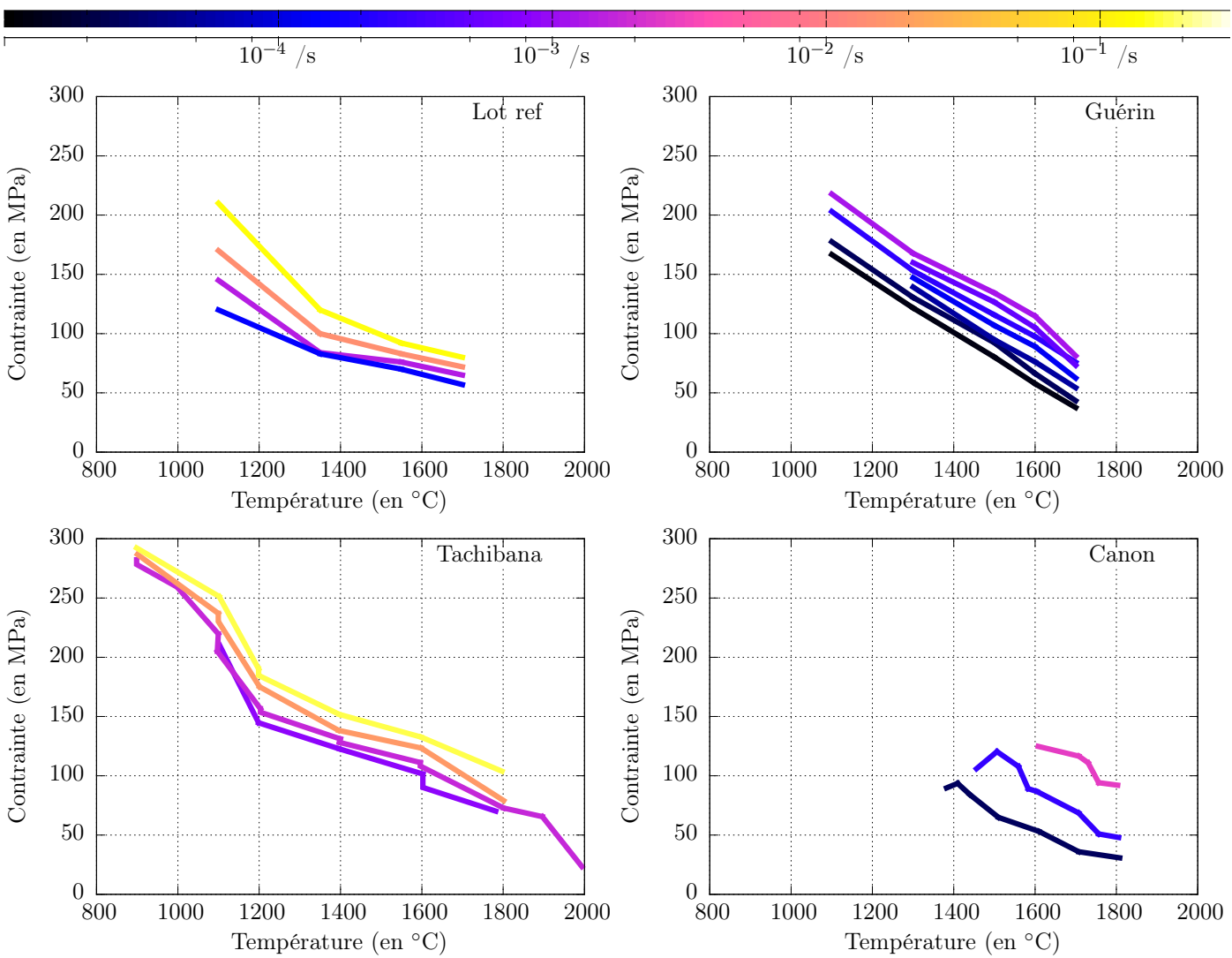


Figure 3.5. – Dépendance de la contrainte d'écoulement à la température et à la vitesse de déformation dans les essais de compression sur le lot de référence et dans les études de (**Canon 1971, flexion ; Guérin 1975, compression ; Tachibana 1976, compression**).

Température Vitesse	1700 °C	1550 °C	1350 °C	1100 °C
$10^{-4}$ /s	non	non	non	<b>oui</b>
$10^{-3}$ /s	non	non	non	<b>oui</b>
$10^{-2}$ /s	non	non	<b>oui</b>	<b>oui</b>
$10^{-1}$ /s	non	non	<b>oui</b>	<b>oui</b>

Tableau 3.2. – Grille d'essais indiquant la présence ou non de fissures macroscopique à l'issu des essais sur le lot de référence.

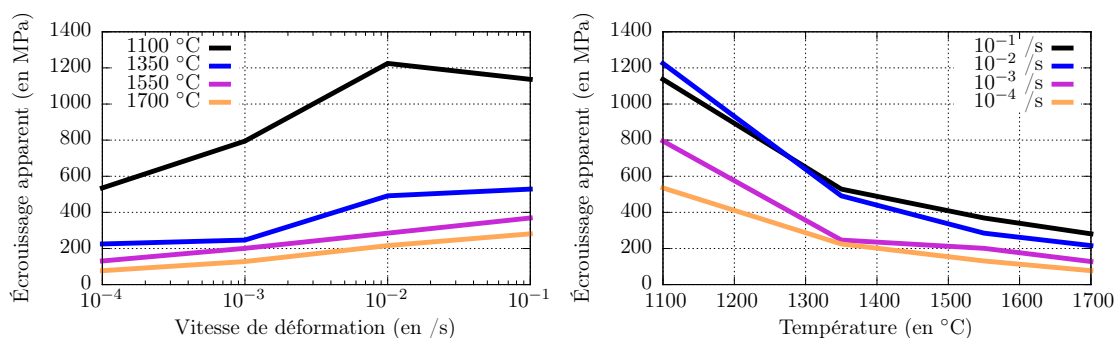


Figure 3.6. – Écouissage apparent dans les essais du lot de référence.

### 3.2.3. Fissuration et variation de volume

À l'issue des essais mécaniques, les échantillons prennent systématiquement une forme en tonneau caractéristique (voir **Figure 3.7**). Cette forme est la conséquence du frottement entre les extrémités de l'échantillon et les cales de maintien en tungstène sur lesquels il repose. La surface extérieure présente dans certain cas (voir **Tableau 3.2**) des fissures axiales de l'ordre du millimètre de longueur (voir **Figure 3.7**). Cet endommagement a justifié l'arrêt précoce des essais à 1100 °C afin d'éviter une rupture totale et une dispersion de matière dans le four.



Figure 3.7. – Aspect des échantillons déformés avec et sans fissure.

Des mesures de diamètres ( $d(z)$ ) à 10 niveaux suivant la hauteur des

échantillons et selon 3 génératrices permettent d'estimer le profil axial de déformation circonférentielle ( $\varepsilon_{\theta\theta}(z)$ ) d'après l'Équation 3.1 :

$$\varepsilon_{\theta\theta}(z) = \ln \left( \frac{d(z)}{d_0} \right) \quad (3.1)$$

Une régression à l'aide d'une fonction parabolique du profil axial de déformation est alors utilisée pour estimer le diamètre moyen de l'échantillon déformé ( $d_{moy}$ ) et ainsi pouvoir accéder à son volume final et donc à sa variation de volume ( $\Delta V/V$ ) au cours de l'essai. Les coefficients de corrélation obtenus très proches de 1 traduisent la symétrie quasi parfaite de la déformation par rapport au plan médian et donc le parallélisme entre la cale supérieure et la cale inférieure.

Le tracé de la déformation circonférentielle moyenne résiduelle en fonction de la déformation axiale résiduelle (voir **Figure 3.8**), qui présente une certaine variabilité (surtout pour les essais à 1100 °C qui ont été interrompus afin d'éviter la dispersion de l'échantillon après fissuration), est proche d'une droite avec un coefficient de corrélation de 0,999. En théorie, lors d'un essai de compression uniaxiale sur un matériau isotrope incompressible,  $\varepsilon_{rr}/\varepsilon_{zz} = \varepsilon_{\theta\theta}/\varepsilon_{zz} = -0.5$ . L'écart entre le coefficient directeur de la droite de régression et la valeur théorique (-0,465 au lieu de -0,5, voir **Figure 3.8**) indique que le volume des échantillons a diminué au cours des essais.

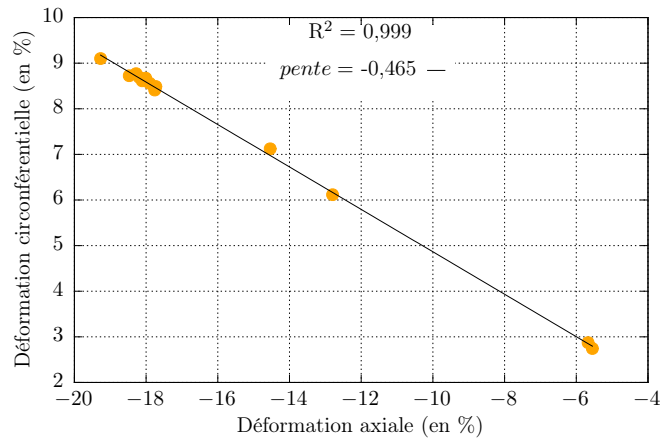


Figure 3.8. – Déformation circonférentielle moyenne résiduelle en fonction de la déformation axiale résiduelle.

Avant essais, les mesures de densité par pesée hydrostatique dans l'alcool ont donné une densité relative moyenne des échantillons de 96,4 % avec un écart type de 0,3 %. La densité des échantillons déformés (voir **Tableau 3.3**) à 1700 °C et 1550 °C semble être indépendante de la température et de la vitesse de sollicitation. Elle vaut en moyenne 97,4 % avec un écart type de 0,1 % ce qui indique une réduction de volume d'environ 1 % au cours de l'essai. Ce résultat

est cohérent avec le tracé des déformations (voir **Figure 3.8**). Les mesures de densité relative à l'issu des essais à 1350 °C et 1100 °C présentant par contre une grande dispersion, aucune tendance ne peut être donnée.

Température Vitesse	1700 °C	1550 °C	1350 °C	1100 °C
$10^{-4}$ /s	-0,4 %	-1,2 %	0,2 %	-0,7 %
$10^{-3}$ /s	-1,1 %	-0,7 %	-2,4 %	-0,7 %
$10^{-2}$ /s	-1,1 %	-0,7 %	-1,8 %	0,3 %
$10^{-1}$ /s	-1,3 %	-0,8 %	0,4 %	-0,3 %

Tableau 3.3. – Variation de densité relative des échantillons du lot de référence pendant les essais.

### 3.2.4. Évolution de la microstructure

L'impact des essais sur la microstructure et en particulier sur la porosité des échantillons est étudié en observant les pastilles après essais au Microscope Électronique à Balayage. L'observation est faite dans 3 zones : le centre de la pastille, la périphérie à mi-hauteur et l'extrémité supérieure où les porosités surfaciques sont mesurées par analyse d'image à l'aide du logiciel ProAnalysis®.

Les résultats (voir **Figure 3.9**) montrent que l'évolution de la porosité pendant les essais est différente selon la zone observée. À l'extrémité supérieure, la porosité semble être indépendante de la température et de la vitesse de déformation mais présente une forte variabilité avec des valeurs comprises entre 3,5 % et 4,8 % (voir **Tableau 3.4**).

À La périphérie du plan médian de la pastille, la porosité post-essai est quasiment constante quelles que soient les conditions de sollicitation avec une valeur moyenne de 3,9 % (voir **Tableau 3.5**). Ce résultat indique que dans cette zone, une partie du volume des porosités a été perdue pendant l'essai.

La microstructure du centre de la pastille est également modifiée. Une diminution de la porosité d'au moins 1 % est observée dans tous les essais. La porosité semble augmenter avec la vitesse de déformation mais son évolution en fonction de la température est moins évidente (voir **Tableau 3.6**). La porosité au centre de la pastille est donc réduite de 1 % à 2 % au cours des essais.

La distribution de taille de pore (voir **Figure 3.10**) confirme cette évolution et montre que la plupart des pores de plus de 4 µm de diamètre ont disparu au cours des essais à 1700 °C. Un recoupement avec les analyses EBSD de répartition de la porosité (voir 3.1), permet de déduire que la disparition de porosité se fait principalement au niveau de la porosité intergranulaire.

### 3. Étude du lot de référence

Les grains du matériau changent également (voir **Figure 3.11**). Le centre des pastilles voit ses grains s'aplatir dans le sens de la sollicitation alors que les autres zones ne présentent pas d'évolution notable de leur microstructure. Ce constat est confirmé par la mesure, à l'aide de la méthode des interceptes, des tailles moyennes de grain dans les directions parallèle et perpendiculaire à la sollicitation. Cette mesure donne ainsi un ratio ( $\frac{d_{moy\parallel}}{d_{moy\perp}}$ ) de 0,82 au centre de la pastille et de 0,98 dans les autres zones, ce dernier est identique au ratio mesuré avant essai. Les grains se sont donc déformés axialement de plus de 16 % ce qui correspond pratiquement à la déformation axiale moyenne des échantillons.

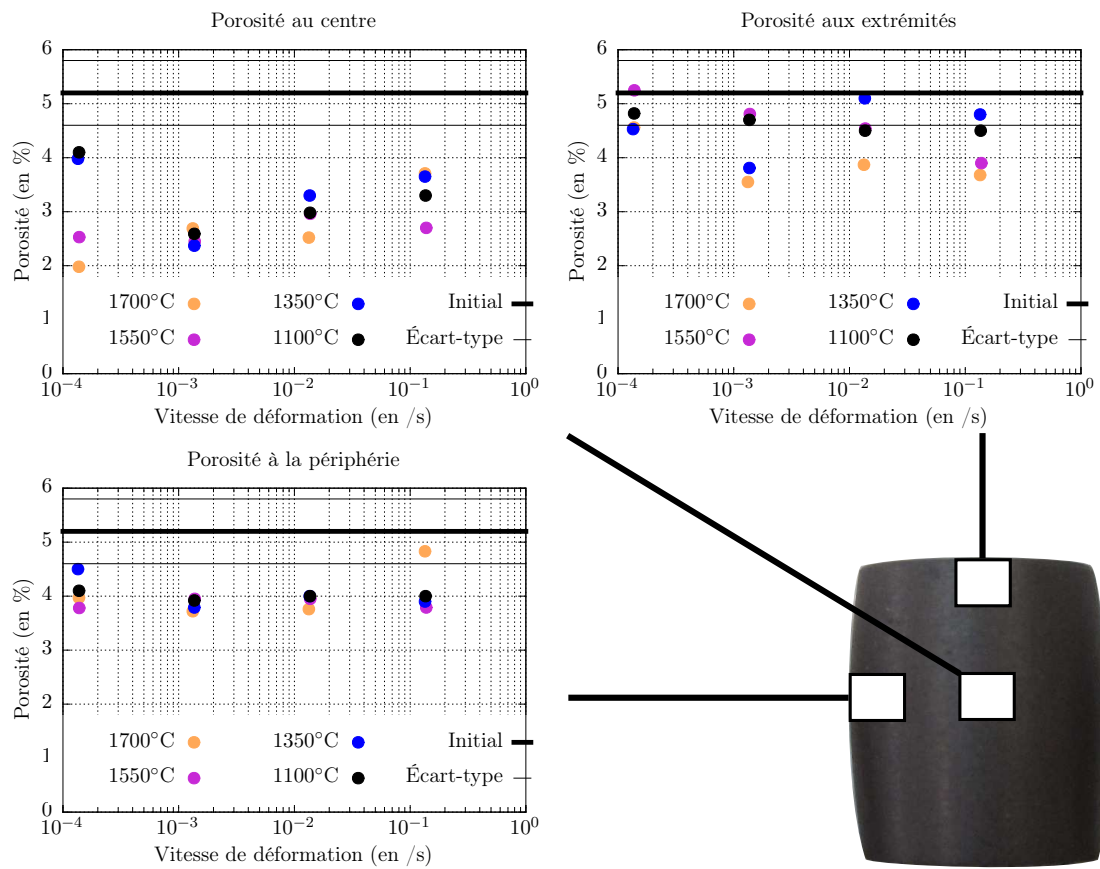


Figure 3.9. – Évolution de la porosité des pastilles du lot de référence au cours des essais.



Température Vitesse	1700 °C	1550 °C	1350 °C	1100 °C
$10^{-4}$ /s	4,6 %	5,2 %	4,5 %	4,8 %
$10^{-3}$ /s	3,6 %	4,8 %	3,8 %	4,7 %
$10^{-2}$ /s	3,9 %	4,5 %	5,1 %	4,5 %
$10^{-1}$ /s	3,7 %	3,9 %	4,8 %	4,5 %

Tableau 3.4. – Porosités surfaciques mesurées par analyses d'images à l'extrémité supérieure des pastilles du lot de référence.

Température Vitesse	1700 °C	1550 °C	1350 °C	1100 °C
$10^{-4}$ /s	4,0 %	3,8 %	4,5 %	4,1 %
$10^{-3}$ /s	3,7 %	4,0 %	3,8 %	3,9 %
$10^{-2}$ /s	3,8 %	4,0 %	4,0 %	4,0 %
$10^{-1}$ /s	4,8 %	3,8 %	3,9 %	4,0 %

Tableau 3.5. – Porosités surfaciques mesurées par analyses d'images à la périphérie du plan médian des pastilles du lot de référence.

Température Vitesse	1700 °C	1550 °C	1350 °C	1100 °C
$10^{-4}$ /s	2,0 %	2,5 %	4,0 %	4,1 %
$10^{-3}$ /s	2,7 %	2,5 %	2,4 %	2,6 %
$10^{-2}$ /s	2,5 %	3,0 %	3,3 %	3,0 %
$10^{-1}$ /s	3,7 %	2,7 %	3,7 %	3,3 %

Tableau 3.6. – Porosités surfaciques mesurées par analyses d'images au centre des pastilles du lot de référence.

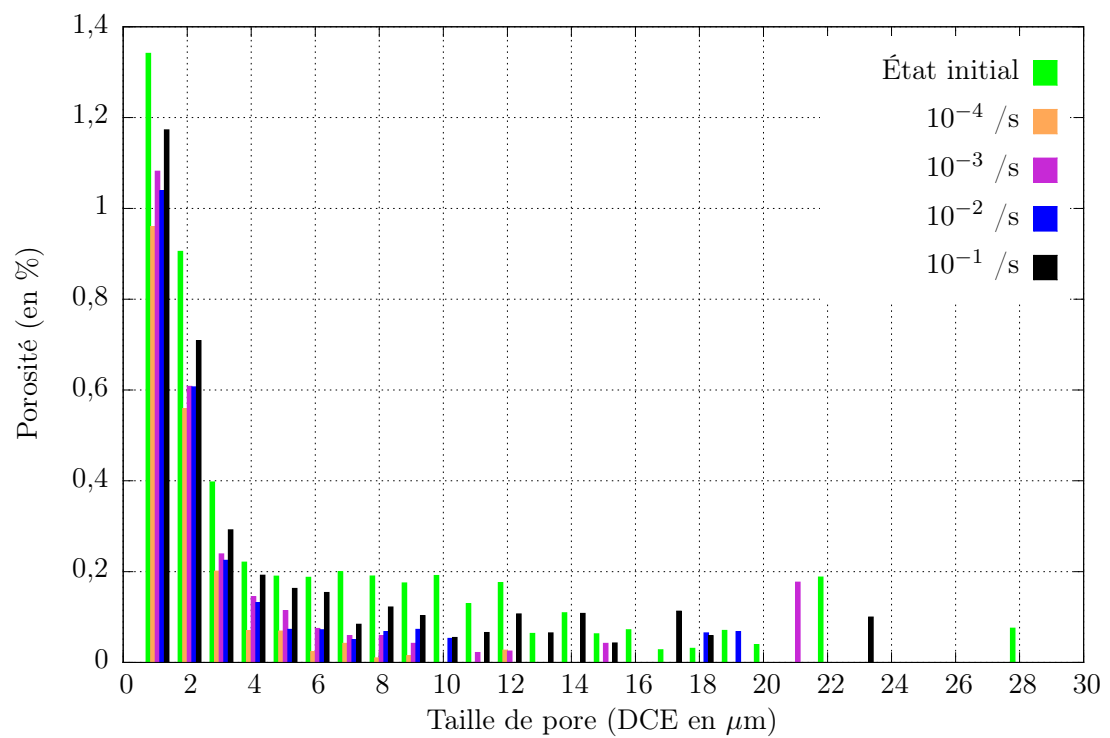


Figure 3.10. – Porosité surfacique associée à chaque taille de pore avant et après les essais sur le lot de référence à 1700 °C.

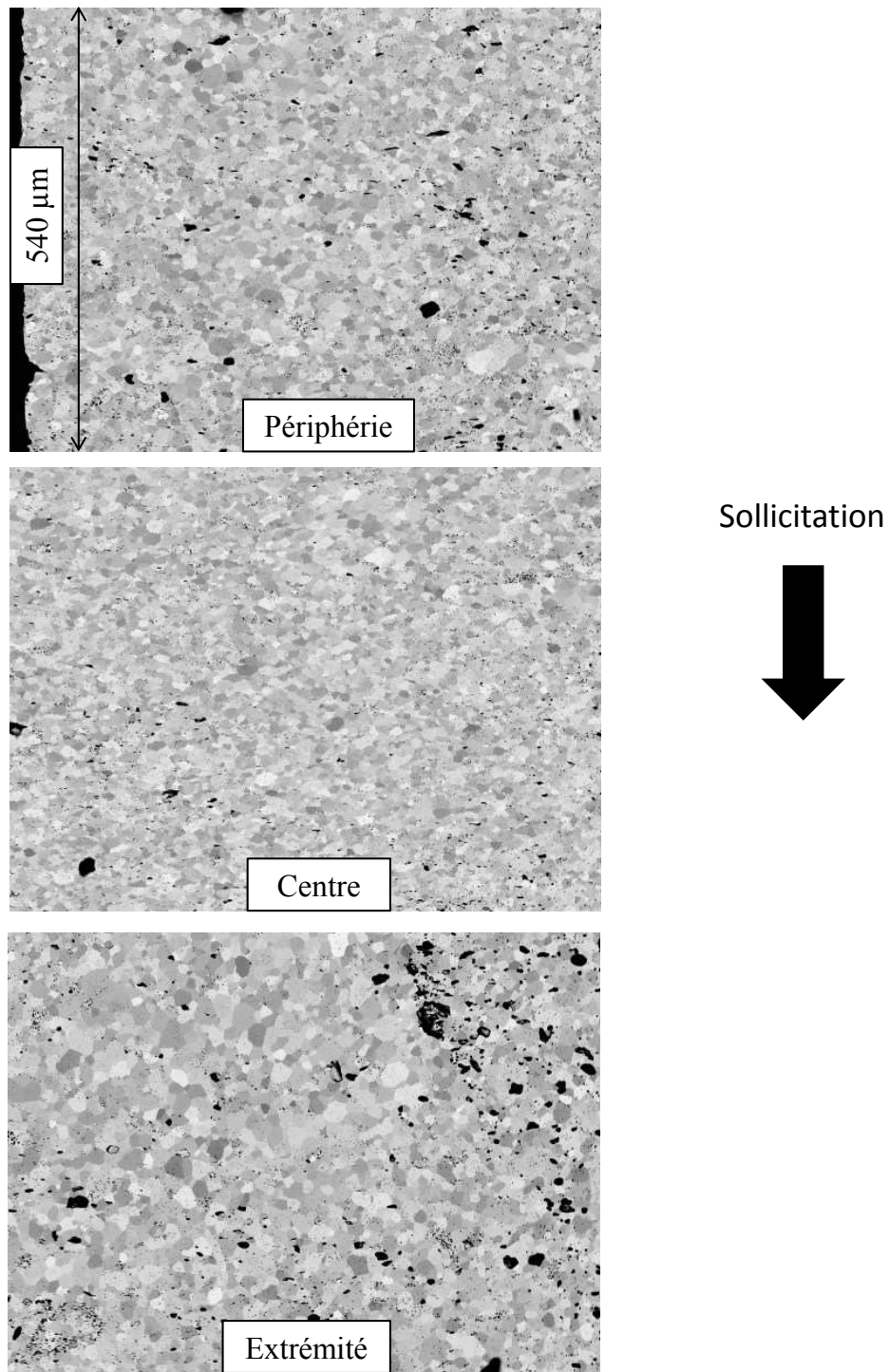


Figure 3.11. – Microstructure des pastilles du lot de référence après essai.

### 3.3. Modélisation

#### 3.3.1. Paramètres d'activation d'une loi de Norton

La déformation de l'UO<sub>2</sub> est habituellement modélisée à l'aide de lois de comportement de type Norton de la forme suivante :

$$\dot{\epsilon} = K \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \sigma^n \quad (3.2)$$

- $\dot{\epsilon}$  vitesse de déformation,
- $K$  paramètre constant,
- $\sigma$  contrainte,
- $n$  sensibilité à la vitesse de déformation,
- $Q$  énergie d'activation,
- $T$  température,
- $R$  constante des gaz parfait (8,314 J/mol/K).

Du fait d'un durcissement prononcé des courbes contrainte-déformation (attribué généralement à la variation de section des échantillons au cours des essais), la contrainte d'écoulement a été choisie comme la contrainte à 2 % de déformation afin de se situer après le pic de compression dans tous les cas. Les paramètres d'activation d'une loi de Norton sont déterminés à partir de cette contrainte d'écoulement. Pour chaque température, une valeur de  $n$  est déduite d'une régression en loi puissance (voir **Figure 3.12**). Les valeurs obtenues varient entre 12 et 20. Des puissances similaires ont déjà été obtenues dans des essais à des vitesses de déformation de 10<sup>-3</sup> /s et 10<sup>-2</sup> /s (**GUÉRIN 1975 ; TACHIBANA 1976**). Elles sont bien supérieures aux exposants 3 à 8 identifiés lors d'essais de fluage ou de flexion. Ce résultat montre que le matériau devient de moins en moins visqueux à mesure que la vitesse de déformation augmente.

Afin d'estimer l'énergie d'activation associée  $Q$ , une valeur moyenne de sensibilité à la vitesse de déformation est utilisée (ici  $n_{moyen} = 18$ ) afin de tracer la courbe  $\ln\left(\frac{\dot{\epsilon}}{\sigma^n}\right) = f\left(\frac{1}{RT}\right)$  et d'en déduire  $Q$  à partir d'une régression linéaire (voir **Figure 3.13**). Cette régression donne une énergie d'activation de 562 kJ/mol. Des valeurs du même ordre de grandeur apparaissent dans des études précédentes (**GUÉRIN 1975**, 462 kJ/mol ; **DHERBEY 2002b**, 524 kJ/mol ; **BOHABOY 1969**, 552 kJ/mol) et sont habituellement attribuées à un mécanisme de déformation contrôlé par le mouvement des dislocations (**SELTZER 1971**). L'énergie d'activation obtenue est très proche de l'énergie d'activation de l'autodiffusion de l'uranium (577 kJ/mol).

Ces résultats confirment que l'utilisation d'une loi de type Norton avec un exposant  $n$  constant (entre 3 et 8) n'est pas adéquate pour modéliser le comportement de l'UO<sub>2</sub> sur la gamme de sollicitations rencontrées lors d'un

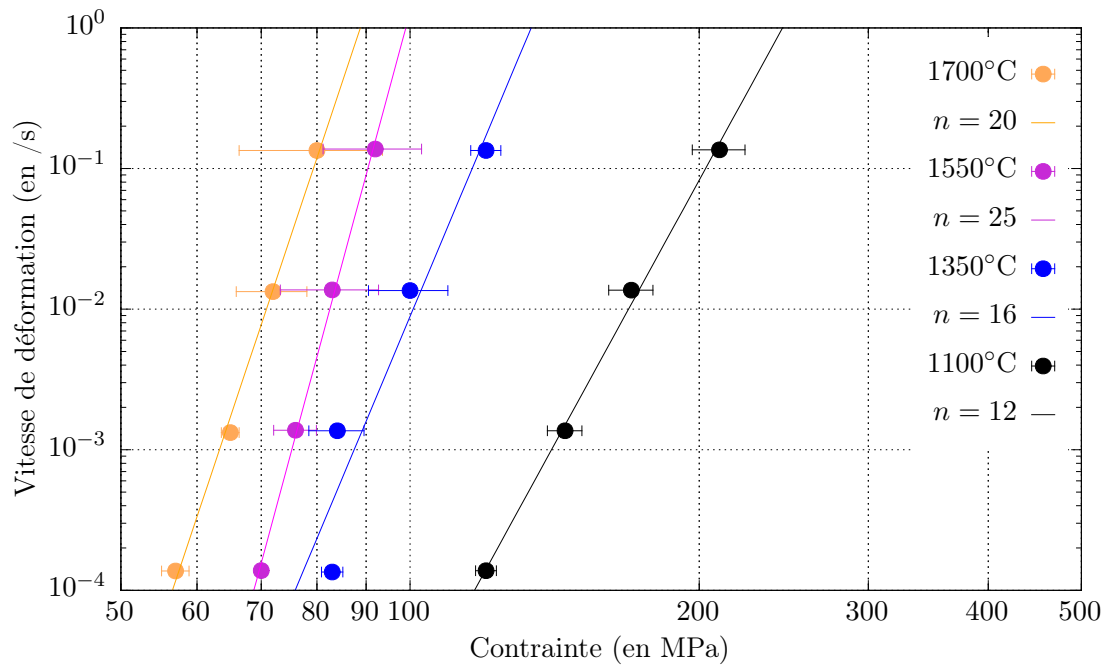


Figure 3.12. – Sensibilité à la vitesse de déformation du lot de référence.

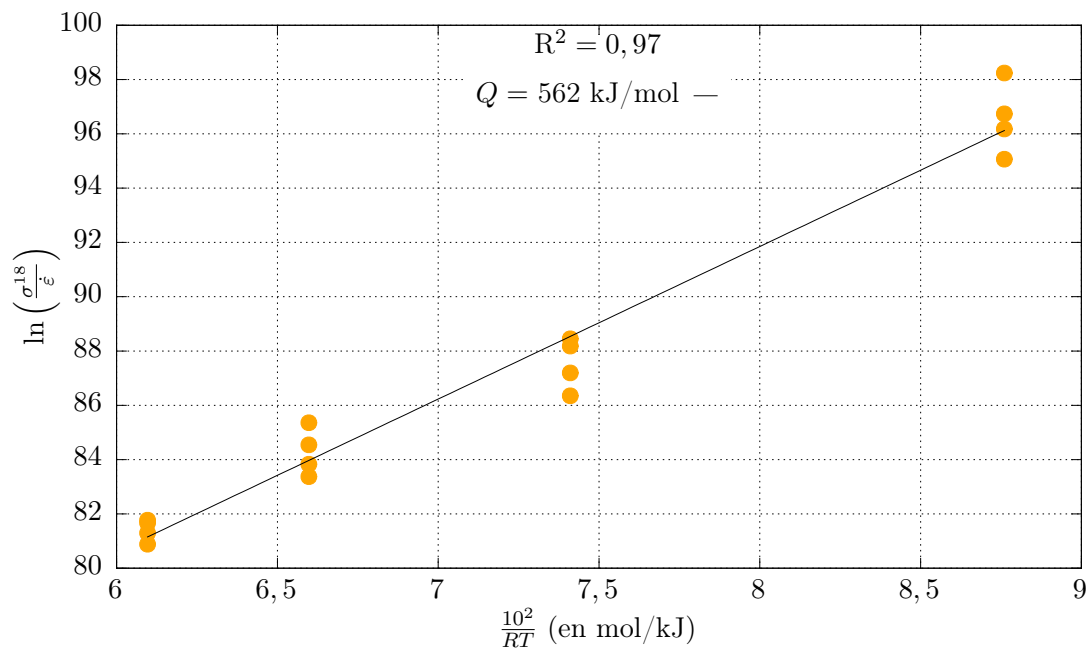


Figure 3.13. – Énergie d'activation déduite des essais sur le lot de référence.

RIA. La partie qui suit introduit donc un modèle constitutif capable de décrire le comportement de l'UO<sub>2</sub> dans un large domaine de vitesses de déformation.

### 3.3.2. Loi de fluage

En 2002, Dherbey et al. (**DHERBEY 2002b**) ont proposé un modèle de fluage de l'UO<sub>2</sub> basé sur une loi en sinus hyperbolique. Ce choix avait été motivé par le fait que le fluage diffusion n'était pas présent dans les échantillons à gros grains (taille de grain de 36 µm). La séparation en 2 mécanismes de fluage distincts (diffusion et dislocation) n'était donc pas nécessaire. L'utilisation d'une loi en sinh leur avait permis de reproduire les résultats expérimentaux sur toute la gamme de contrainte (10 MPa - 80 MPa) et de température (1365 °C - 1575 °C) des essais. Récemment, Soulacroix (**SOULACROIX 2014**) a pu simuler les résultats expérimentaux de l'étude de Guérin (**GUÉRIN 1975**), en particulier la dépendance à la vitesse de déformation, à l'aide d'une fonction similaire.

En 2006, Monerie et Gatt (**MONERIE 2006**) ont introduit le changement de volume dans un modèle de type Norton. Pour ce faire, ils ont utilisé l'approche de sphère équivalente de Michel et Suquet (**MICHEL 1992**) afin de prendre en compte la compressibilité de la porosité. La formulation de cette loi est basée sur un potentiel quadratique macroscopique  $\Psi$  dépendant des 2 premiers invariants du tenseur des contraintes.

Dans les essais expérimentaux sur le lot de référence, une sensibilité à la vitesse de déformation  $n$  non constant ainsi qu'une densification systématique sont observées. Fort de ces résultats et des études précédentes, il apparaît intéressant de proposer un modèle basé sur une loi en sinus hyperbolique qui tienne compte de la compressibilité de la porosité. Pour ce faire, on définit le potentiel macroscopique de la manière suivante (voir **Équation 3.3**) :

$$\Psi(\sigma_m, \sigma_{eq}, f) = \sigma_0 K \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \cosh\left(\frac{\Sigma}{\sigma_0}\right) \quad (3.3)$$

$\sigma_0$	paramètre constant,
$\Sigma = \sqrt{\alpha(f) \sigma_m^2 + \beta(f) \sigma_{eq}^2}$	contrainte équivalente,
$\sigma_m = \frac{1}{3} \boldsymbol{\sigma} : \mathbf{1}$	premier invariant du tenseur des contraintes,
$\sigma_{eq} = \sqrt{\frac{3}{2} \mathbf{s} : \mathbf{s}}$	deuxième invariant du tenseur des contraintes,
$\boldsymbol{\sigma}$	tenseur des contraintes,
$\mathbf{1}$	tenseur unité,
$\mathbf{s} = \boldsymbol{\sigma} - \sigma_m \mathbf{1}$	tenseur des contraintes déviatoriques,
$f$	fraction volumique de porosité.

Les paramètres  $\alpha(f)$  et  $\beta(f)$  définissent les contributions relatives des deux premiers invariants du tenseur des contraintes ( $\sigma_m$  et  $\sigma_{eq}$ ) à la vitesse de

déformation. Le tenseur de vitesse de déformation viscoplastique macroscopique  $\dot{\epsilon}^{vp}$  dérive de ce potentiel, soit :

$$\dot{\epsilon}^{vp} = \frac{\partial \Psi}{\partial \boldsymbol{\sigma}} = K \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \sinh\left(\frac{\Sigma}{\sigma_0}\right) \left(\frac{1}{3}\alpha(f)\frac{\sigma_m}{\Sigma}\mathbf{1} + \frac{3}{2}\beta(f)\frac{1}{\Sigma}\mathbf{s}\right) \quad (3.4)$$

Comme proposé par Monerie et Gatt (**MONERIE 2006**), l'équation de conservation de masse suivante est utilisée pour décrire l'évolution de la fraction volumique de porosité (voir **Équation 3.5**) :

$$\dot{f} = (1 - f) \dot{\epsilon}^{vp} : \mathbf{1} = (1 - f) K \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \sinh\left(\frac{\Sigma}{\sigma_0}\right) \alpha(f) \frac{\sigma_m}{\Sigma} \quad (3.5)$$

### 3.3.3. Identification des paramètres

Le modèle est complètement défini par la connaissance des paramètres  $K$ ,  $Q$ ,  $\sigma_0$ ,  $\alpha(f)$  et  $\beta(f)$ . Une estimation grossière peut être obtenue en faisant l'hypothèse que les essais de compression sont uniaxiaux et mènent à un état de contrainte homogène dans l'échantillon ainsi qu'en négligeant les déformations élastiques. Dans ce cas, le tenseur des contraintes ne contient qu'une seule composante non nulle  $\sigma_{zz} = -\sigma$ . Ce qui donne  $\sigma_m = -\frac{1}{3}\sigma$  et  $\sigma_{eq} = \sigma$  (avec  $\sigma \geq 0$  la contrainte de compression). De ce fait, la déformation axiale  $\dot{\epsilon}_{zz}$  ne dépend plus que de  $\sigma$  et des paramètres du modèle (voir **Équations 3.6**).

$$\dot{\epsilon}_{zz} \approx \dot{\epsilon}_{zz}^{vp} = -K \sqrt{\frac{1}{9}\alpha(f) + \beta(f)} \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \sinh\left(\frac{\sigma \sqrt{\frac{1}{9}\alpha(f) + \beta(f)}}{\sigma_0}\right) \quad (3.6)$$

Afin d'estimer les paramètres  $K$ ,  $\sigma_0$  et  $Q$ , la compressibilité des pores peut également être négligée dans un premier temps, ce qui équivaut à  $\alpha(f) = 0$  et  $\beta(f) = 1$  et conduit à une simplification de l'expression de la vitesse de déformation (voir **Équation 3.7**) :

$$\dot{\epsilon}_{zz} = -K \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \sinh\left(\frac{\sigma}{\sigma_0}\right) \quad (3.7)$$

A partir des résultats expérimentaux (contrainte à 2% de déformation, température et vitesse de déformation) il est possible d'estimer les valeurs des paramètres  $K$ ,  $\sigma_0$  et  $Q$ . Une régression logarithmique des courbes vitesse de déformation en fonction de la contrainte donne  $\sigma_0 \approx 5$  MPa.

Précédemment, le calcul des paramètres d'une loi de type Norton a donné  $Q \approx 500$  kJ/mol. Avec  $K = 29130$  /s,  $\sigma_0 = 5$  MPa et  $Q = 489$  kJ/mol,

l'écart entre les contraintes expérimentales et calculées ne dépasse pas 10 MPa sauf pour les essais à 1100 °C (voir **Figure 3.14**). Ce comportement singulier à faible température et forte vitesse de déformation a déjà été observé et décrit comme l'apparition d'une sorte de barrière supplémentaire au mouvement des dislocations (**DHERBEY 2002b**; **ASHBY 1972**). Comme proposé par Byron (**BYRON 1968b**), il peut être pris en compte en faisant varier l'énergie d'activation en fonction de la température (voir **Équation 3.8**). Cet ajustement permet d'obtenir un accord satisfaisant entre les contraintes calculées et mesurées, ceci pour toutes les températures.

À 1100 °C, l'énergie d'activation atteint (d'après l'**Équation 3.8**) la valeur de 546 kJ/mol ce qui reste cohérent avec le mécanisme de fluage régité par le mouvement des dislocations. À 25 °C, le modèle donne une contrainte d'écoulement de  $\approx 1000$  MPa, ordre de grandeur mesuré par Igata et Domoto sur UO<sub>2</sub> à température ambiante (**IGATA 1973**).

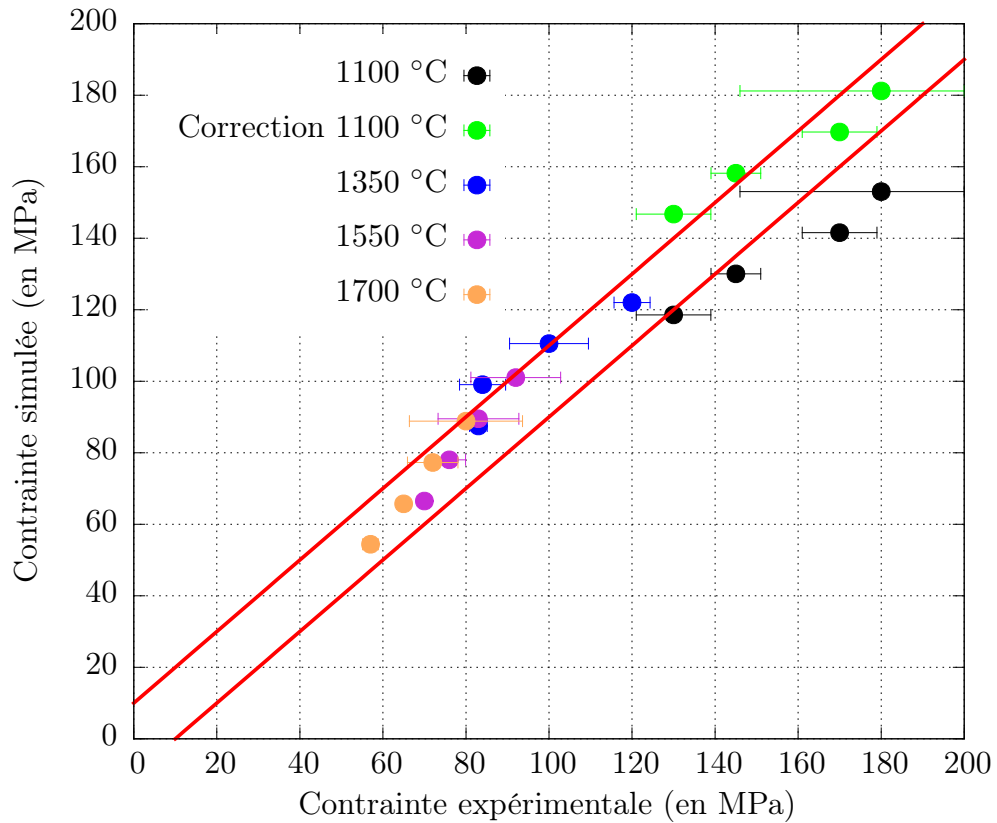


Figure 3.14. – Comparaison entre les contraintes calculées et mesurées sur le lot de référence dans un intervalle de  $\pm 10$  MPa.

$$Q = \max \left( 482; 876 - \frac{T}{4.16} \right) \text{ kJ/mol} \quad (3.8)$$



Les fonctions  $\alpha(f)$  et  $\beta(f)$  peuvent être estimées par analogie avec le modèle compressible de Monerie et Gatt (**MONERIE 2006**). En faisant également l'hypothèse que les essais expérimentaux sont uniaxiaux, mais cette fois en ne négligeant pas la compressibilité des pores, l'équation d'évolution de la porosité dépend alors de  $\alpha(f)$ ,  $\beta(f)$  et s'écrit de la manière suivante (voir **Équation 4.3**) :

$$\dot{f} = -(1-f) K \frac{\frac{1}{3}\alpha(f)}{\sqrt{\frac{1}{9}\alpha(f) + \beta(f)}} \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \sinh\left(\frac{\sigma \sqrt{\frac{1}{9}\alpha(f) + \beta(f)}}{\sigma_0}\right) \quad (3.9)$$

En conséquence, avec l'**Équation 3.7**  $\dot{f}$  peut se mettre sous la forme suivante (voir **Équation 3.10**) :

$$\dot{f} = (1-f) \frac{\frac{1}{3}\alpha(f)}{\sqrt{\frac{1}{9}\alpha(f) + \beta(f)}} \dot{\epsilon}_{zz} \quad (3.10)$$

La variation de volume de l'échantillon est donc quasi proportionnelle à la vitesse de déformation appliquée. Ce résultat est cohérent avec la courbe **Figure 3.1** issue des mesures de diamètre après essais.

La formulation proposée par Monerie et Gatt (**MONERIE 2006**) est basée sur une approche micro-macro. L' $\text{UO}_2$  est représenté par une matrice incompressible isotrope contenant de la porosité sphérique répartie aléatoirement. La variation macroscopique de volume du matériau est due à la compressibilité des pores. Le comportement mécanique de la matrice incompressible est décrit par une combinaison de 2 lois de type Norton. Le modèle de sphère équivalente de Michel et Suquet (**MICHEL 1992**) est utilisé pour définir les paramètres du potentiel macroscopique duquel dérive le tenseur de vitesse de déformation viscoplastique. La contrainte équivalente de ce modèle dépend des invariants du tenseur des contraintes et de fonctions qui, elles-mêmes, dépendent de la porosité  $f$  et de la sensibilité à la vitesse de déformation  $n$  (voir **Équation 3.11**)

$$\Sigma = \sqrt{\frac{9}{4}A(f)\sigma_m^2 + B(f)\sigma_{eq}^2} \quad (3.11)$$

avec :

$$A(f) = \left(n \left(f^{-\frac{1}{n}} - 1\right)\right)^{-\frac{2n}{n+1}} \quad (3.12)$$

et

$$B(f) = \left(1 + \frac{2}{3}f\right) (1-f)^{-\frac{2n}{n+1}} \quad (3.13)$$

Les fonctions  $A(f)$  et  $B(f)$  assurent que le comportement du matériau compressible tende vers celui de la matrice incompressible lorsque la porosité tend vers 0 ( $A(f) \xrightarrow{f \rightarrow 0} 0$  et  $B(f) \xrightarrow{f \rightarrow 0} 1$ ). Dans le cas d'un essai de compression uniaxiale, la loi d'évolution de la porosité ne dépend plus alors que de  $A(f)$ ,

$B(f)$  et de  $\dot{\varepsilon}_{zz}$  (voir **Équation 3.14**) :

$$\dot{f} = (1 - f) \frac{\frac{3}{4}A(f)}{\frac{1}{4}A(f) + B(f)} \dot{\varepsilon}_{zz} \quad (3.14)$$

Ainsi en comparant l'**Équation 3.10** issue de la loi en sinh proposée et l'**Équation 3.14** du modèle de Monerie et Gatt, il est possible de définir la même évolution de porosité (dans le cas d'un essai de compression uniaxiale) en choisissant une combinaison des paramètres  $\alpha(f)$  et  $\beta(f)$  qui satisfasse l'égalité suivante (voir **Équation 3.15**) :

$$\frac{\alpha(f)}{\beta(f)} = \frac{9A(f)}{4B(f)} \quad (3.15)$$

Dans les simulations qui suivent, le choix de  $\alpha(f) = \frac{9}{4}A(f)$  et  $\beta(f) = B(f)$  avec  $n = 6$  est utilisé. Dans ses travaux, Dherbey avait utilisé un coefficient unique  $n = 6,2$  pour simuler ses essais à fortes contraintes.

### 3.3.4. Implémentation numérique

L'implémentation du modèle proposé est faite à l'aide du générateur de code MFront développé par le CEA. MFront permet aux utilisateurs d'écrire des équations de façon similaire à leur forme mathématique et les transforme en sources C++ optimisées qui peuvent être utilisées dans différents solveurs mécaniques. Les équations constitutives du modèle sont écrites en respectant le formalisme standard des petites déformations basé sur l'additivité des déformations élastiques et inélastiques (ici constitué seulement de la déformation viscoplastique) pour former la déformation totale (voir **Équation 4.22**).

$$\boldsymbol{\sigma} = 2\mu \boldsymbol{\varepsilon}^{el} + \lambda \text{tr}(\boldsymbol{\varepsilon}^{el}) \mathbf{1} \quad (3.16)$$

$\boldsymbol{\varepsilon}^{el} = \boldsymbol{\varepsilon} - \boldsymbol{\varepsilon}^{vp}$	tenseur de déformation élastique,
$\boldsymbol{\varepsilon}$	tenseur de déformation totale,
$\mu = \frac{E}{2(1+\nu)}$	module de cisaillement,
$\lambda = \frac{E\nu}{(1+\nu)(1-2\nu)}$	premier coefficient de Lamé,
$E$	module d'Young,
$\nu$	coefficient de Poisson.

Le système à résoudre est un système d'équations différentielles portant sur les variables internes que sont le tenseur de déformation élastique  $\boldsymbol{\varepsilon}^{el}$ , le tenseur de déformation viscoplastique  $\boldsymbol{\varepsilon}^{vp}$  et la porosité  $f$ , regroupées dans un vecteur

$Y$  dont les composantes peuvent être des scalaires ou des tenseurs symétriques d'ordre 2 (voir **Équation 5.8**).

$$\dot{Y} = G(Y, t) \quad \Leftrightarrow \quad \begin{cases} \dot{Y}_0 = g_{Y_0}(Y, t) \\ \dots \\ \dot{Y}_i = g_{Y_i}(Y, t) \\ \dots \\ \dot{Y}_N = g_{Y_N}(Y, t) \end{cases} \quad (3.17)$$

La résolution numérique de ce système consiste à estimer, à partir de la valeur  $Y|_t$  à un instant  $t$ , la valeur  $Y|_{t+\Delta t}$  à un instant  $t + \Delta t$ . Pour ce faire, dans MFront, une  $\theta$ -méthode est utilisée (voir **Équation 3.18**).

$$Y|_{t+\Delta t} = Y|_t + \Delta t G\left((1 - \theta) Y|_t + \theta Y|_{t+\Delta t}, t + \theta \Delta t\right) \quad (3.18)$$

En posant  $\Delta Y = Y|_{t+\Delta t} - Y|_t$ , la résolution du système revient à la recherche d'un zéro de la fonction  $F(\Delta Y)$ .

L'intégration de ce système sur un pas de temps  $\Delta t$  à l'aide d'un algorithme de résolution implicite mène à annuler un vecteur de fonction d'évolution d'incrément de variable interne  $F$  (voir **Équation 3.19**).

$$F(\Delta Y) = \Delta Y - \Delta t G(Y|_t + \theta \Delta Y, t + \theta \Delta t) = 0 \quad (3.19)$$

La méthode utilisée pour trouver un zéro de cette fonction est la méthode itérative de NEWTON-RAPHSON. Elle nécessite de connaître la matrice jacobienne de  $F$  notée  $J$  qui peut être calculée par blocks (voir **Équation 3.20**).

$$J = \frac{\partial F}{\partial \Delta Y} = \begin{pmatrix} \frac{\partial f_{y_1}}{\partial \Delta y_1} & \dots & \dots & \dots & \dots \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ \vdots & \vdots & \frac{\partial f_{y_i}}{\partial \Delta y_j} & \vdots & \vdots \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \frac{\partial f_{y_N}}{\partial \Delta y_N} \end{pmatrix} \quad (3.20)$$

Dans le cas du modèle proposé dans ce chapitre, la  $\theta$ -méthode conduit au système suivant (voir **Équation 3.21**) :

$$\left\{ \begin{array}{l} f_{\epsilon^{el}} = \Delta \epsilon^{el} + \Delta pd \mathbf{n} + \frac{1}{3} \Delta pv \mathbf{1} - \Delta \epsilon = 0 \\ f_{pd} = \Delta pd - \frac{\partial \Psi}{\partial \sigma_{eq}} \Delta t = 0 \\ f_{pv} = \Delta pv - \frac{\partial \Psi}{\partial \sigma_m} \Delta t = 0 \\ f_f = \Delta f (1 - \theta \Delta pv) - (1 - f) \Delta pv = 0 \end{array} \right. \quad (3.21)$$

$\Delta \epsilon^{vp} = \Delta pd \mathbf{n} + \frac{1}{3} \Delta pv \mathbf{1}$     incrément du tenseur de déformation viscoplastique,  
 $\Delta pd$     incrément déviatorique de déformation viscoplastique,  
 $\Delta pv$     incrément hydrostatique de déformation viscoplastique,  
 $\mathbf{n} = \frac{3s}{2\sigma_{eq}}$     normale à la surface de charge évaluée à l'instant  $t + \theta \Delta t$ ,

Les dérivées partielles de  $\Sigma$  nécessaires aux calculs des différentes dérivées du potentiel  $\Psi$  sont les suivantes :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \Sigma}{\partial \sigma_m} = \alpha(f) \frac{\sigma_m}{\Sigma} \\ \frac{\partial \Sigma}{\partial \sigma_{eq}} = \beta(f) \frac{\sigma_{eq}}{\Sigma} \\ \frac{\partial^2 \Sigma}{\partial \sigma_m^2} = \frac{\alpha(f)}{\Sigma} - \frac{\alpha(f)^2 \sigma_m^2}{\Sigma^3} \\ \frac{\partial^2 \Sigma}{\partial \sigma_{eq}^2} = \frac{\beta(f)}{\Sigma} - \frac{\beta(f)^2 \sigma_{eq}^2}{\Sigma^3} \\ \frac{\partial^2 \Sigma}{\partial \sigma_{eq} \partial \sigma_m} = -\frac{\alpha(f) \beta(f) \sigma_m \sigma_{eq}}{\Sigma^3} \end{array} \right. \quad (3.22)$$

A partir des dérivés partielles de  $\Sigma$  (voir **Équation 3.22**), les dérivées du potentiel  $\Psi$  s'écrivent :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \Psi}{\partial \Sigma} = K_0 \sinh \left( \frac{\Sigma}{\sigma_0} \right) \\ \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \Sigma^2} = \frac{K_0}{\sigma_0} \cosh \left( \frac{\Sigma}{\sigma_0} \right) \\ \frac{\partial \Psi}{\partial \sigma_m} = \frac{\partial \Psi}{\partial \Sigma} \frac{\partial \Sigma}{\partial \sigma_m} \\ \frac{\partial \Psi}{\partial \sigma_{eq}} = \frac{\partial \Psi}{\partial \Sigma} \frac{\partial \Sigma}{\partial \sigma_{eq}} \\ \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \sigma_m^2} = \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \Sigma^2} \frac{\partial \Sigma}{\partial \sigma_m}^2 + \frac{\partial \Psi}{\partial \Sigma} \frac{\partial^2 \Sigma}{\partial \sigma_m^2} \\ \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \sigma_{eq}^2} = \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \Sigma^2} \frac{\partial \Sigma}{\partial \sigma_{eq}}^2 + \frac{\partial \Psi}{\partial \Sigma} \frac{\partial^2 \Sigma}{\partial \sigma_{eq}^2} \\ \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \sigma_{eq} \partial \sigma_m} = \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \Sigma^2} \frac{\partial \Sigma}{\partial \sigma_{eq}} \frac{\partial \Sigma}{\partial \sigma_m} + \frac{\partial \Psi}{\partial \Sigma} \frac{\partial^2 \Sigma}{\partial \sigma_{eq} \partial \sigma_m} \end{array} \right. \quad (3.23)$$

Les termes non nuls de la matrice jacobienne associée sont de la forme suivante (voir Équation 3.24) :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial f_{\varepsilon^{el}}}{\partial \Delta \varepsilon^{el}} = \mathbf{1} - \Delta p d \frac{\partial \mathbf{n}}{\partial \boldsymbol{\sigma}} = \mathbf{1} - \frac{2 \mu \theta \Delta p d}{\sigma_{eq}} (\mathbf{M} - \mathbf{n} \otimes \mathbf{n}) \\ \frac{\partial f_{\varepsilon^{el}}}{\partial \Delta p d} = \mathbf{n} \\ \frac{\partial f_{\varepsilon^{el}}}{\partial \Delta p v} = \frac{1}{3} \mathbf{1} \\ \frac{\partial f_f}{\partial \Delta f} = 1 + \theta \Delta p v \\ \frac{\partial f_f}{\partial \Delta p v} = f - 1 \\ \frac{\partial f_{pd}}{\partial \Delta \varepsilon^{el}} = -\theta \Delta t \left( 2\mu \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \sigma_{eq}^2} \mathbf{n} + K \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \sigma_{eq} \partial \sigma_m} \mathbf{1} \right) \\ \frac{\partial f_{pv}}{\partial \Delta \varepsilon^{el}} = -\theta \Delta t \left( \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \sigma_m^2} K \mathbf{1} + 2\mu \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \sigma_{eq} \partial \sigma_m} \mathbf{n} \right) \end{array} \right. \quad (3.24)$$

$\mathbf{M} = \frac{3}{2} \left( \mathbf{1} - \frac{1}{3} \mathbf{1} \otimes \mathbf{1} \right)$  tenseur d'ordre 4,  
 $K = \lambda + \frac{2}{3} \mu$  propriété du matériau.

Le système d'équations est résolu en déformations finies selon les approches suivantes :

- Une formulation hypoélastique eulérienne fournie par le solveur Éléments Finis Cast3M. L'implémentation Cast3M est proche de celle décrite par Simo et Hugues (**SIMO 1998**),
- Les déformations logarithmiques lagrangiennes proposées par Miehe et al. (**MIEHE 2002**) et utilisées dans MFront.

Pour les essais à chargement monotone, ces 2 approches donnent des résultats similaires, un constat déjà établi par Doghri (**DOGHRI 2000**) dans un contexte différent.

## 3.4. Simulation

### 3.4.1. Maillage et conditions aux limites

La loi de comportement étant définie, des simulations précises à l'aide de cette loi sont présentées ci-après. L'état de contrainte dans les échantillons est loin d'être uniaxial. En effet, un frottement important entre les extrémités de la pastille et les cales martyres en tungstène engendre un état de contraintes tridimensionnel dans les pastilles. En conséquence, une densification préférentiellement au centre des échantillons a été observée. Les déformations axiales et circonférentielles importantes atteintes durant les essais suggèrent que la non linéarité structurelle (grands déplacements) joue un rôle important et doit être prise en compte dans l'analyse des résultats.

Pour ces simulations, une modélisation axisymétrique d'une moitié de pastille est considérée. Le maillage utilisé est quadratique et les conditions aux limites appliquées sont un blocage des déplacements axiaux (selon  $z$ ) de la surface inférieure de la pastille ainsi qu'un blocage des déplacements radiaux des surfaces inférieure et supérieure afin de simuler le frottement avec les cales martyres qui ne sont donc pas directement représentées. Le chargement consiste en un déplacement axial imposé de la surface supérieure (voir **Figure 3.15**). L'effet de structure, quant à lui, est pris en compte par l'utilisation du schéma de résolution en grands déplacements de CAST3M (**CAST3M 2010**). Afin de rendre possible la comparaison calcul mesure des déplacements finaux, la hauteur en fin de simulation de laquelle est retirée la dilatation thermique est imposée identique à la hauteur mesurée à froid après essai.

Le module d'Young (voir **Équation 3.25**) et le coefficient de Poisson (voir **Équation 3.26**) considérés dans les simulations sont tirés de l'étude de Martin et al. (**MARTIN 1989**). La porosité initiale utilisée correspond à la moyenne des porosités initiales des échantillons mesurées par pesée hydrostatique ( $f_0 = 3,6 \%$ ).

$$E(f, T) = (1 - 2,5 f) (226,93 - 1,539 9 \cdot 10^{-2} T - 9,597 \cdot 10^{-6} T^2) \quad (3.25)$$

$$\nu = 0,3 \quad (3.26)$$

$E$  module d'Young (en GPa),  
 $f$  porosité,  
 $T$  température (en K).

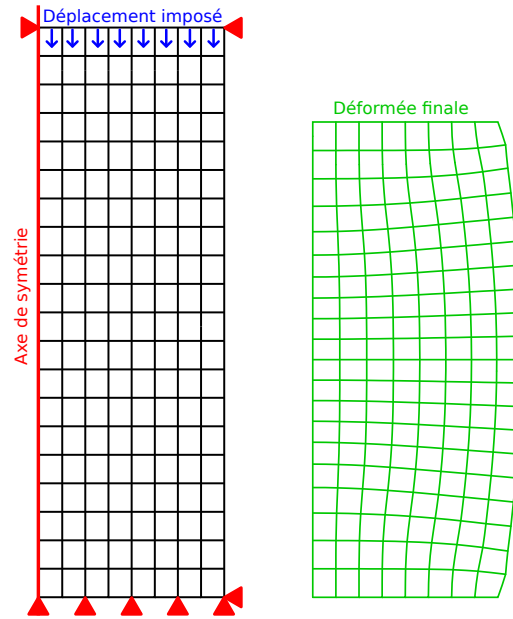


Figure 3.15. – Maillage, conditions aux limites et chargement utilisés dans les simulations.

### 3.4.2. Essais expérimentaux

La comparaison des courbes contrainte-déformation expérimentales et simulées (voir **Figure 3.17**) montre que le modèle reproduit correctement la dépendance à la température et à la vitesse de déformation. La pente de l'écrouissage apparent augmente lorsque la température diminue ou lorsque la vitesse de déformation augmente ce qui est en accord avec les résultats expérimentaux (voir **Figure 3.16**). À forte contrainte, cet écrouissage apparent n'est pas aussi prononcé que dans les essais expérimentaux. Cette différence peut être due à l'apparition d'un écrouissage plastique. Dans le cadre de notre travail, compte tenu des faibles déformations généralement observées dans les simulations des essais RIA (quelques %), cet écrouissage n'a pas été modélisé.

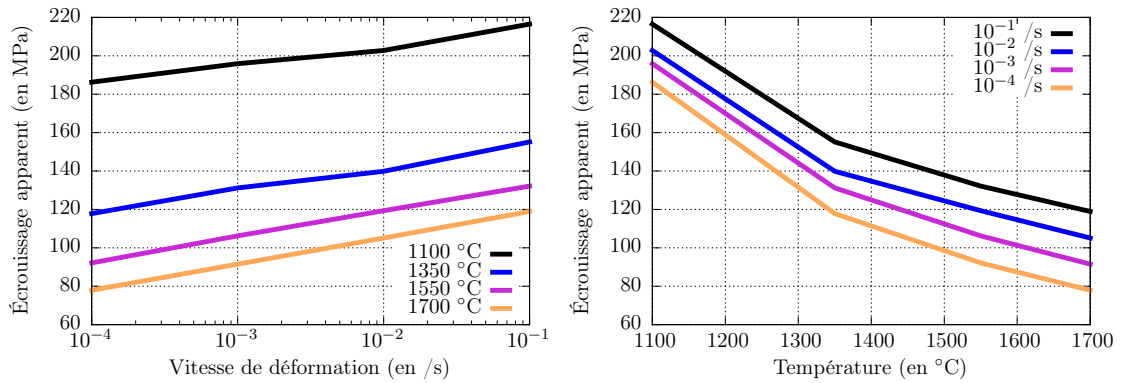


Figure 3.16. – Écouissage apparent dans les simulation des essais du lot de référence.

La comparaison des diamètres finaux expérimentaux et simulés (voir **Figure 3.18**) montre que la mise en tonneau de la pastille durant l'essai est fidèlement reproduite par la simulation. L'amplitude de l'augmentation de diamètre en fonction de la hauteur de la pastille est également fidèle à l'expérience. La fissuration des échantillons ne semble pas perturber de manière importante la déformée moyenne après essais.

La visualisation de la répartition des déformations axiales ( $\varepsilon_{zz}$ ) et circonférentielles ( $\varepsilon_{\theta\theta}$ ) confirme que la mise en tonneau de la pastille engendre une forte variabilité des déformations au sein de la pastille. En effet, les déformations aux extrémités de la pastille restent très faibles alors qu'au centre, les déformations axiales et circonférentielles sont, en valeur absolue, élevées : elles atteignent respectivement  $-27\%$  et  $17\%$  dans la simulation de l'essai à  $1700\text{ °C}$  et  $10^{-3}\text{ /s}$  (voir **Figure 3.19**). En moyenne de  $-17\%$ , la déformation axiale au centre de la pastille atteint donc localement  $-27\%$ , répartie entre la déformation des grains ( $-16\%$  vu précédemment) et la variation de la porosité. Les déformations varient également radialement avec une diminution à l'approche de la périphérie de la pastille.

Une variation radiale des contraintes axiales ( $\sigma_{zz}$ ) est également observée à mi-hauteur (voir **Figure 3.19**). La périphérie est moins contrainte ( $-50\text{ MPa}$ ) que le centre ( $-80\text{ MPa}$ ). La distribution des contraintes circonférentielles est différente. Les parties supérieure et inférieure de la pastille sont principalement en compression en raison du fretage. À mi-hauteur, la périphérie de la pastille est étonnamment en traction ( $20\text{ MPa}$ ). Ces contraintes de traction circonférentielles sont dues à une densification non uniforme. En effet, la densification du matériau est plus forte au centre de la pastille qu'en périphérie. Ce gradient de densification radial est semblable à un gradient thermique, où le rétrécissement du centre de la pastille est entravé par la périphérie. En conséquence, des contraintes de traction circonférentielles apparaissent sur la surface externe.



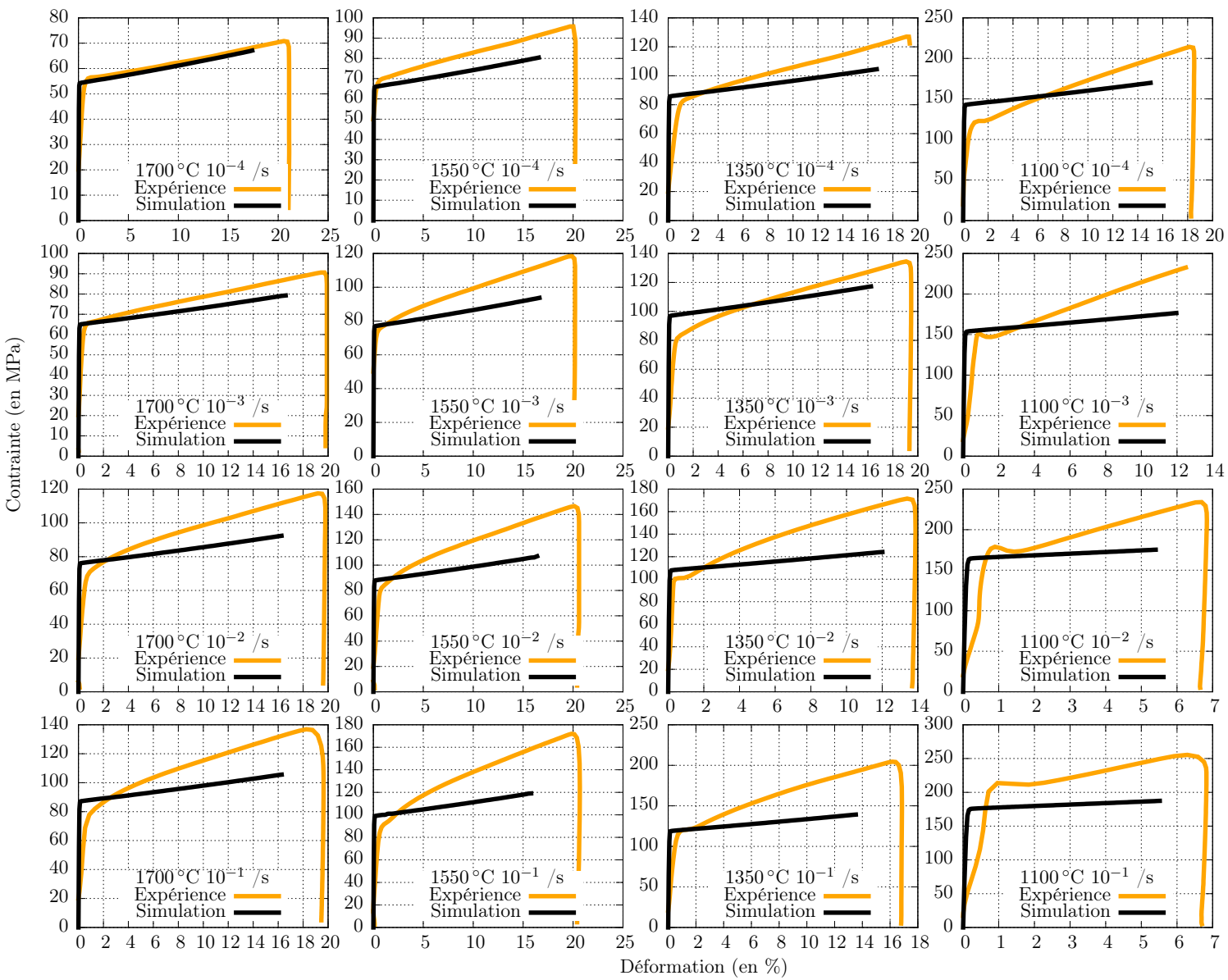


Figure 3.17. – Comparaison simulation expérience des courbes contrainte-déformation du lot de référence.

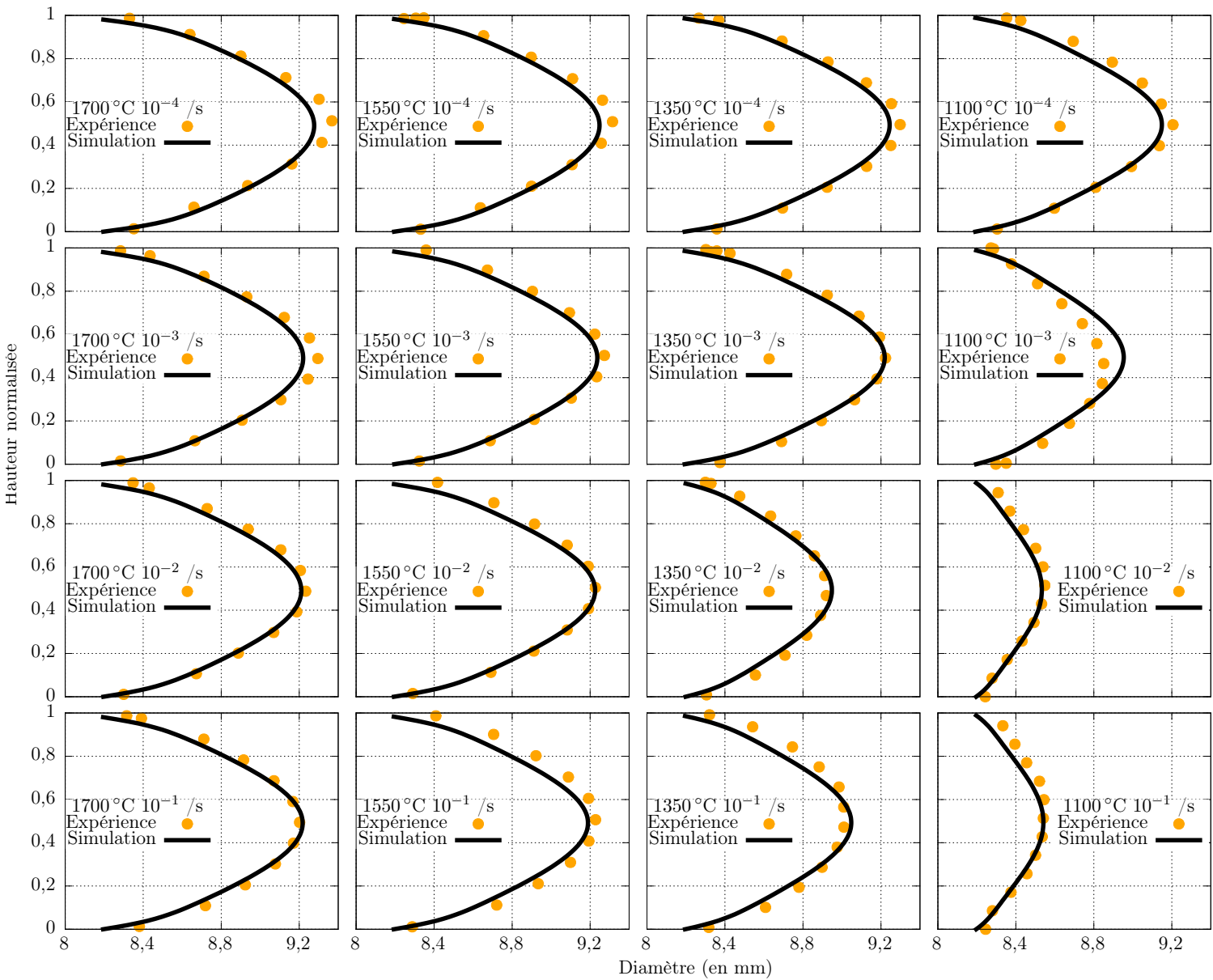


Figure 3.18. – Comparaison simulation expérience des diamètres finaux du lot de référence.

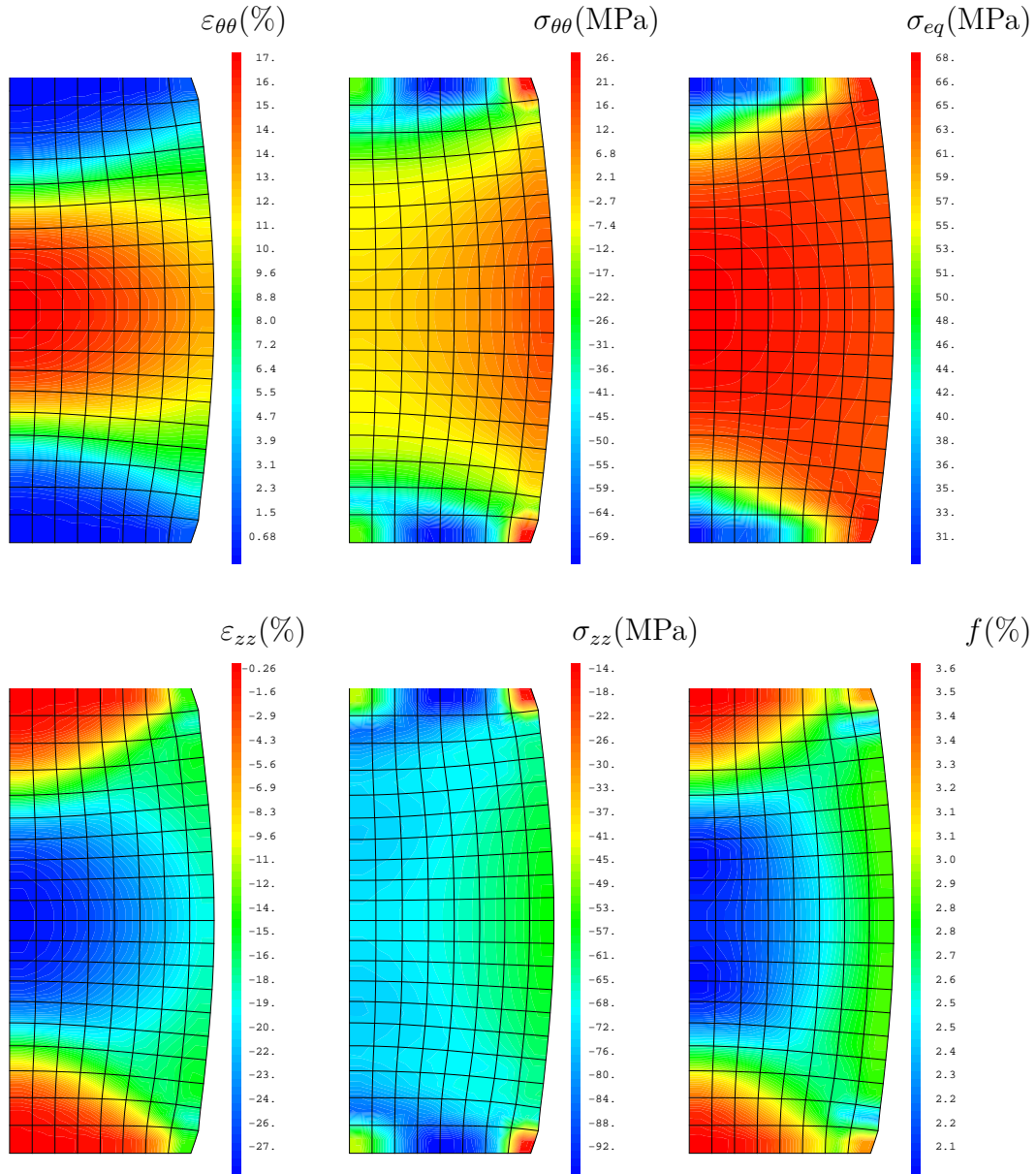


Figure 3.19. – Répartition des déformations ( $\varepsilon_{\theta\theta}$  et  $\varepsilon_{zz}$ ), des contraintes ( $\sigma_{\theta\theta}$ ,  $\sigma_{zz}$  et  $\sigma_{eq}$ ) et de la porosité ( $f$ ) lors de l'essai à 1700 °C et 10<sup>-3</sup> /s.

### 3. Étude du lot de référence

La variation de porosité est contrôlée par la contrainte équivalente  $\Sigma$  (voir **Équation 3.3**), et donc par les 2 premiers invariants ( $\sigma_m$  et  $\sigma_{eq}$ ) du tenseur des contraintes. Par ailleurs, la contribution du second invariant ( $\sigma_{eq}$ ) dans la variation de la porosité est très importante ( $\beta$  est proche de 1 alors que  $\alpha$  est inférieur à 0,01).

Dans les simulations,  $\sigma_{eq}$  présente un maximum au centre de la pastille et un minimum aux extrémités (voir **Figure 3.19**). La réduction de la porosité est donc logiquement plus prononcée au centre.

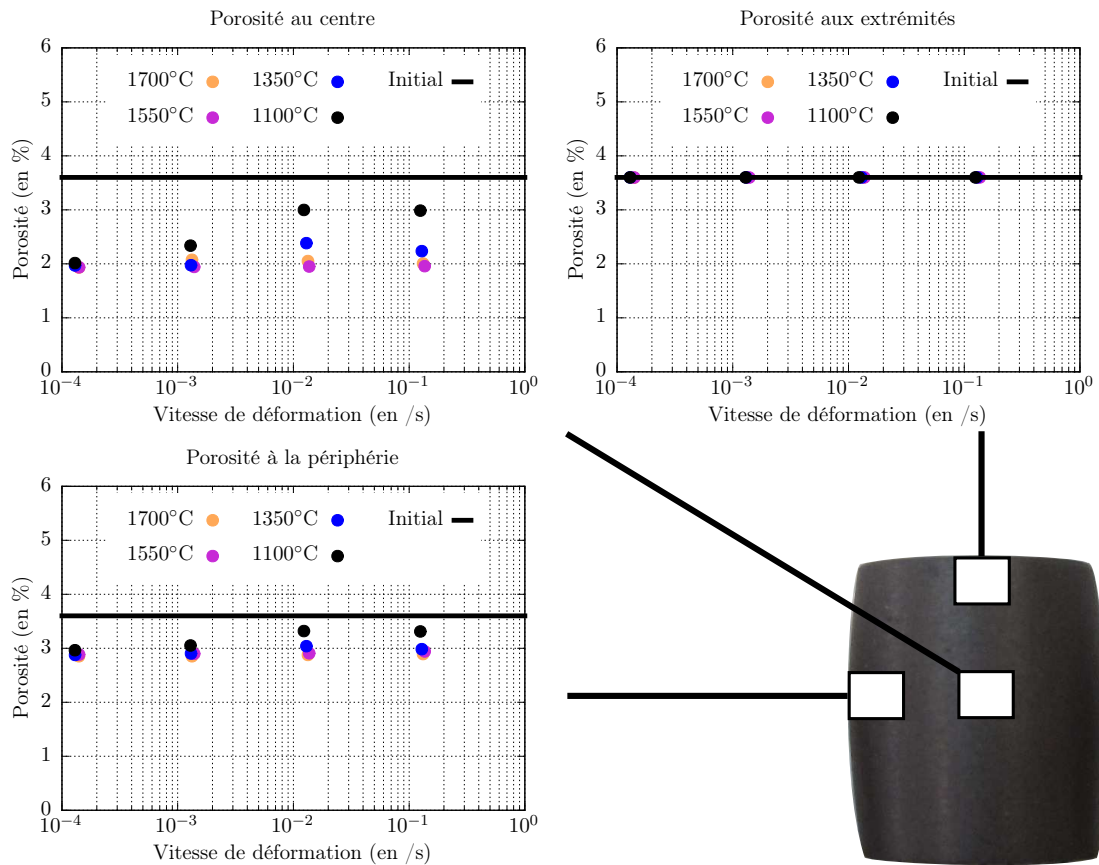


Figure 3.20. – Évolution simulée de la porosité des pastilles du lot de référence au cours des essais.

Les porosités finales calculées (voir **Figure 3.20**) présentent un bon accord avec les observations expérimentales. Aux extrémités de la pastille, la porosité n'a pas évolué au cours des essais et est restée la même qu'initialement (3,6 %). La porosité en périphérie a un peu diminué (jusqu'à  $\approx 3$  %) et le centre a densifié jusqu'à atteindre une porosité résiduelle de 2 %.

La triaxialité des contraintes  $\eta$  définie par le rapport des 2 premiers invariants du tenseur des contraintes ( $\eta = \frac{\sigma_m}{\sigma_{eq}}$ ) permet d'évaluer simplement si l'état de contrainte dans la pastille est plus proche d'un cisaillement pur ( $\eta = 0$ ) ou d'une

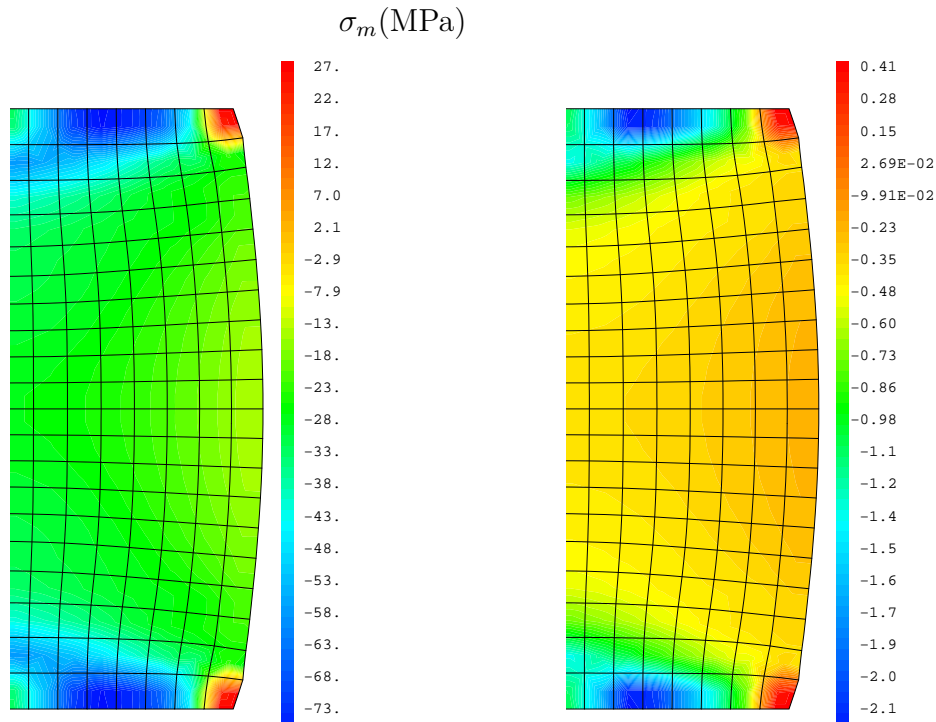


Figure 3.21. – Répartition du premier invariant des contraintes ( $\sigma_m$ ) et de la triaxialité ( $\eta$ ) lors de l'essai à 1700 °C et  $10^{-3}$  /s.

compression pure ( $\eta = -\frac{1}{3}$ ). Ainsi, le centre de la pastille est en compression pure alors qu'en périphérie un cisaillement apparaît (voir **Figure 3.21**).

### 3.4.3. Essais de fluage

Précédemment, il a été vérifié que le modèle en sinh proposé est capable de reproduire le comportement mécanique de l' $\text{UO}_2$  pour des températures comprises entre 1100 °C et 1700 °C et des vitesses de sollicitation entre  $10^{-4}$  /s et  $10^{-1}$  /s. Afin de valider le modèle sur une gamme plus étendue de sollicitation et en particulier pour des vitesses de déformation faibles, la base d'essais de fluage (essais à contrainte constante) disponible au CEA a été entièrement simulée. Cette base de données contient 231 essais sur pastilles d' $\text{UO}_2$  avec une taille de grain variant entre 5  $\mu\text{m}$  et 70  $\mu\text{m}$ . Les gammes de sollicitation sont définies par une contrainte de compression appliquée entre 20 MPa et 80 MPa et une température d'essai entre 1300 °C et 1700 °C. Ces essais ont conduit à des vitesses de fluage stationnaire comprises entre  $10^{-9}$  /s et  $10^{-4}$  /s.

L'influence de la taille de grain sur le comportement a été prise en compte en faisant varier le préfacteur  $K$  du modèle en fonction de la taille de grain suivant (voir **Équation 3.27**) :

$$K(d) = K_0 \exp\left(\frac{-\gamma}{d - d_0}\right) \quad \text{pour} \quad d \geq d_0 \quad (3.27)$$

$$\begin{aligned} K_0 &= 77\,400 \text{ /s} \quad , \\ \gamma &= 5,277 \text{ }\mu\text{m} \quad , \\ d_0 &= 4,6 \text{ }\mu\text{m} \quad \text{taille de grain de référence.} \end{aligned}$$

Cet ajustement s'appuie sur un précédent ajustement d'une loi de type Norton compressible présentant une puissance 6 (**JULIEN 2010**).

Les mêmes maillage et conditions aux limites que précédemment (voir **Figure 3.15**) sont utilisés pour simuler la base de données d'essais de fluage. La vitesse de fluage stationnaire mesurée expérimentalement est utilisée pour définir la vitesse de déplacement imposée. La contrainte d'écoulement obtenue est comparée à la contrainte de fluage appliquée expérimentalement (voir **Figure 3.22**). Plus de 80 % des contraintes calculées entrent dans l'intervalle de confiance  $\pm 10$  MPa. Ce bon accord entre expérience et simulation montre que les 2 régimes de fluage usuellement considérés (fluage diffusion et fluage dislocation) peuvent effectivement être correctement modélisés à l'aide d'une loi en sinh (**DHERBEY 2002b**).

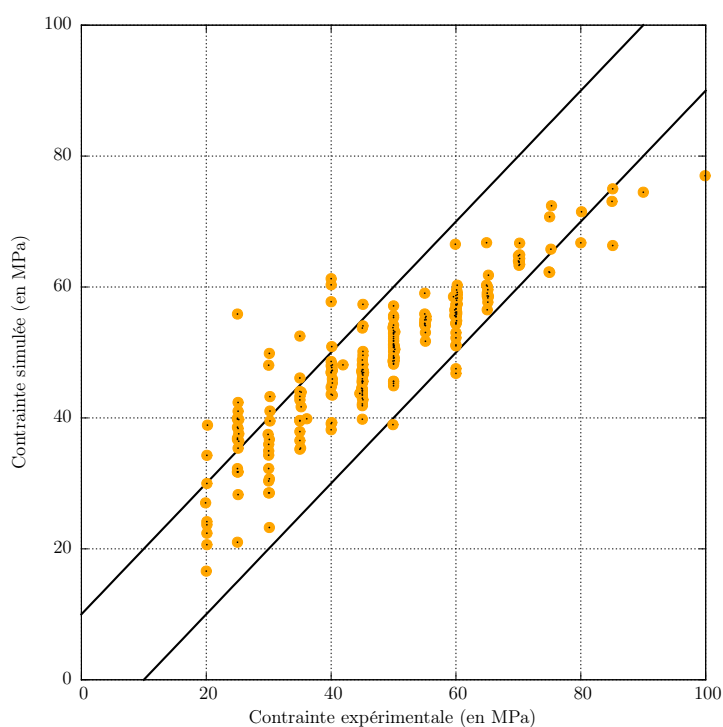


Figure 3.22. – Comparaison calcul-mesure des contraintes appliquées dans les 231 essais de fluage de la base de données du CEA.

## 3.5. Synthèse

Dans cette partie, une caractérisation expérimentale en compression et une modélisation du comportement d'un lot d'échantillons d' $\text{UO}_2$  de référence ont été présentées. Les essais ont été menés à vitesse de déplacement de la traverse imposée et à température constante. La vitesse de déplacement a été imposée entre 0,1 mm/min et 100 mm/min avec des vitesses de déformation correspondantes de  $10^{-4}$  /s à  $10^{-1}$  /s. La température a été imposée à 1100 °C, 1350 °C, 1550 °C et 1700 °C. Les résultats expérimentaux montrent que les courbes contrainte-déformation ne peuvent être modélisées avec une loi de type Norton à exposant unique de 3 à 8 contrairement aux vitesses plus faibles ( $10^{-9}$  /s -  $10^{-5}$  /s). Les observations macroscopiques et microscopiques font apparaître une variation de volume négative des échantillons due à une évolution de la porosité prononcée au centre.

Un modèle en  $\sinh$  prenant en compte les variations de volume (compressibilité de la porosité) a donc été proposé afin de décrire le comportement mécanique de l' $\text{UO}_2$  sur une grande gamme de températures (1100 °C - 1700 °C) et de vitesses de déformation ( $10^{-9}$  /s -  $10^{-1}$  /s). La simulation des essais de compression par éléments finis a conduit à des résultats en terme de contrainte, déformation axiale et circonférentielle, évolution de la porosité, en bon accord avec les mesures expérimentales. Le modèle a également été utilisé pour simuler avec succès une base de données de plus de 200 essais de fluage.

Les résultats obtenus sur ce lot de référence ont montré l'impact important de la déformation sur la porosité du matériau ainsi que l'influence de la vitesse de sollicitation dans le domaine des fortes vitesses. Or, en réacteur, la densification a généralement lieu lors du régime nominal. Le combustible testé en condition de RIA en réacteur expérimental est donc peu susceptible de densifier de nouveau pendant un transitoire rapide de puissance.

Dans la partie qui suit, une étude expérimentale du comportement à vitesse de déformation élevées d'un lot de pastilles très denses est donc présentée. Les résultats sont interprétés par une extension du modèle en  $\sinh$  et par la prise en compte de la fragmentation des joints de grain à l'échelle macroscopique.





## 4. Étude du lot forte densité

### Table des matières

4.1	Introduction	119
4.2	Aspects expérimentaux	121
4.2.1	Caractérisation des échantillons	121
4.2.2	Courbes contrainte-déformation	123
4.2.3	Fissuration et variation de volume	128
4.2.4	Évolution de la microstructure	132
4.2.5	Décohésion des joints de grain	136
4.3	Modélisation	136
4.3.1	Modèle initial	136
4.3.2	Dépendance à la porosité	141
4.3.3	Identification de la dépendance à la porosité	141
4.3.4	Modèle de fragmentation des joints de grain	146
4.3.5	Identification des paramètres plastiques	149
4.3.6	Implémentation numérique	150
4.4	Simulation	152
4.4.1	Maillage et conditions aux limites	152
4.4.2	Identification de $\sigma_c(T)$	154
4.4.3	Simulation des essais expérimentaux	158
4.5	Synthèse	163

### 4.1. Introduction

Au cours des essais en réacteurs expérimentaux simulant un RIA (**PAPIN 2007, CABRI**; **FUKETA 2001, NSRR**; **YEGOROVA 2006, BIGR**), les pastilles de combustible subissent de fortes contraintes de compression et de traction dans une partie ou la totalité de leur volume (**SUZUKI 2008**). En conséquence, des fissures radiales et axiales se propagent à la périphérie des pastilles (**SERCOMBE 2010**) et une fragmentation des joints de grain peut apparaître (**PAPIN 2007**). Cette dernière tend à accroître de façon significative le relâchement des gaz de fission et doit donc être prise en compte dans les codes de simulation. La

fragmentation des joints de grain est habituellement attribuée à une surpression dans les bulles de gaz se trouvant aux joints de grain (**LEMOINE 1997**) et est traitée à l'échelle du grain dans les modèles de relâchement de gaz (**MOAL 2014 ; NOIROT 2011**).

La fragmentation des joints de grain est un phénomène qui n'apparaît pas seulement en RIA mais peut également être observé à l'issue d'essais de compression et de flexion même à un faible niveau de déformation (1 – 2 %) sur combustible vierge (**BYRON 1968b ; CANON 1971 ; ROBERTS 1974 ; REYNOLDS 1975 ; DHERBEY 2002b ; NDIAYE 2012**). La fragmentation des joints de grain pourrait aussi ne pas être seulement le résultat d'une surpression des bulles de gaz. Une des causes possibles commune au RIA et aux essais sur combustible vierge, pourrait être un niveau de contrainte élevé simultanément au maintien d'une forte température. Dans les essais de compression sur combustible vierge, la fragmentation des joints de grain n'apparaît que pour une contrainte minimale de 60 MPa et une température de 1200 °C (**BYRON 1968b**).

Il est également important de souligner qu'une contrainte macroscopique de compression peut donner lieu à une fragmentation des joints de grain. En effet, des simulations micromécaniques par élément finis ont montré qu'en compression, les incompatibilités de déformations entre les grains peuvent mener à des contraintes de traction localement significatives (**PACULL 2011 ; MICHEL 2014**). Il est bien connu que, dans des essais de compression, la contrainte d'écoulement augmente avec la vitesse de déformation (**TACHIBANA 1976 ; GUÉRIN 1975**), ce qui peut expliquer que cette dernière favorise l'apparition d'une fragmentation des joints de grains.

La porosité est un paramètre qui joue un rôle important sur la contrainte d'écoulement et sur la contrainte à rupture, aussi bien en traction qu'en compression (**IGATA 1973 ; RADFORD 1979**). La localisation des pores, qu'ils soient situés dans les grains (intragranulaires) ou aux joints de grain (intergranulaires), mais aussi la taille et la forme des pores (sphériques ou lenticulaires), ont un impact du premier ordre sur les propriétés mécaniques et sur le risque de fragmentation des joints de grain (**ROBERTS 1972 ; OGUMA 1982 ; WERNER 1983b**). Dans une étude récente, il a été montré que les combustibles denses (> 98 %) étaient plus susceptibles de voir leurs joints de grain rompre lors d'essais de fluage en compression. C'est pourquoi dans un premier temps, une étude expérimentale du comportement mécanique d'un lot de pastille d'UO<sub>2</sub> forte densité à haute température et forte vitesse de sollicitation est faite. L'objectif est ici de définir les conditions (température et contrainte) d'apparition de la fragmentation des joints de grains. Dans un second temps, le modèle de fluage du chapitre précédent est étendu à l'UO<sub>2</sub> forte densité moyennant un ajustement de la dépendance à la porosité. Dans un troisième temps, une modélisation de la fragmentation des joints de grain est proposée. Enfin, la validation de ce modèle est faite par simulation par éléments finis des essais.

## 4.2. Aspects expérimentaux

### 4.2.1. Caractérisation des échantillons

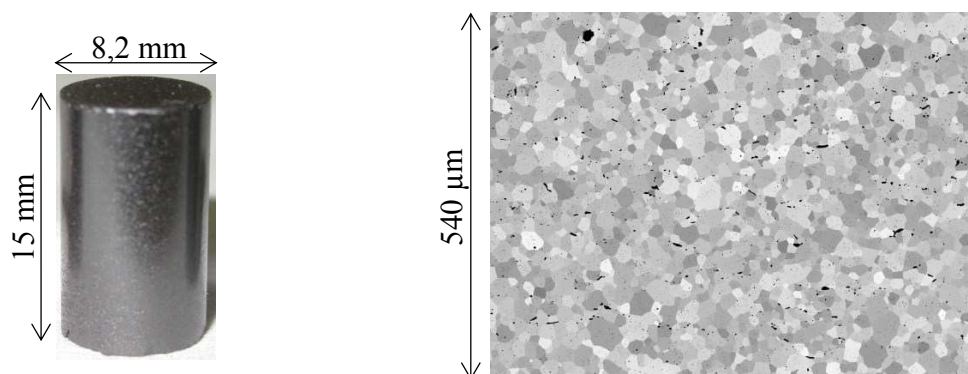


Figure 4.1. – Géométrie et microstructure des échantillons du lot forte densité avant essai.

Les échantillons utilisés dans cette partie sont des pastilles d' $\text{UO}_2$  frittées fabriquées en laboratoire très proches de ceux étudiés par Ndiaye dans sa thèse (NDIAYE 2012, échantillons P2\_D). Une poudre d' $\text{UO}_2$  industrielle a d'abord été broyée à froid et désagglomérée pour obtenir un mélange quasi uniforme constitué de petites particules d'environ  $1\text{ }\mu\text{m}$  de diamètre. Cette nouvelle poudre a alors été pressée à froid à  $450\text{ MPa}$  puis frittée à  $1700\text{ }^\circ\text{C}$  pendant  $4\text{ h}$  sous atmosphère réductrice ( $95\text{ }\%$  Ar -  $5\text{ }\%$   $\text{H}_2$ ). Les pastilles obtenues ont une forme cylindrique d'approximativement  $8,2\text{ mm}$  de diamètre et  $15\text{ mm}$  de hauteur et un rapport Oxygène sur Uranium proche de 2 (stœchiométrie). Une mesure de la densité relative initiale des échantillons a été faite systématiquement par imbibition d'alcool. Les résultats donnent une densité relative moyenne de  $98,1\text{ }\%$  avec un écart type de  $0,2\text{ }\%$  sur l'ensemble des 30 pastilles de ce lot dit "lot forte densité". La porosité est essentiellement composée de pores fermés ( $1,9\text{ }\%$  avec un écart type de  $0,2\text{ }\%$ ). La caractérisation de la microstructure initiale du lot forte densité a été faite en observant certaines pastilles au Microscope Électronique à Balayage (MEB). Ceci a permis une estimation de la taille de grain par la méthode des interceptes à partir des images obtenues. La taille de grain moyenne est d'environ  $14\text{ }\mu\text{m}$  avec un écart type de  $1,1\text{ }\mu\text{m}$ . À l'aide du logiciel ProAnalysis®, une estimation de la distribution des tailles de pore a été effectuée. La porosité apparaît uniforme dans tout l'échantillon avec une porosité surfacique moyenne de  $2,3\text{ }\%$  et un écart type de  $0,6\text{ }\%$ . La moitié de la porosité est composée de petits pores internes aux grains de diamètre  $\leq 3\text{ }\mu\text{m}$  (le diamètre donné ici correspond au Diamètre du Cercle Équivalent, DCE). L'autre moitié, présente aux Joints de Grain (JdG), est composée de pores plus gros de forme lenticulaire (constat basé sur les

observations microscopiques).

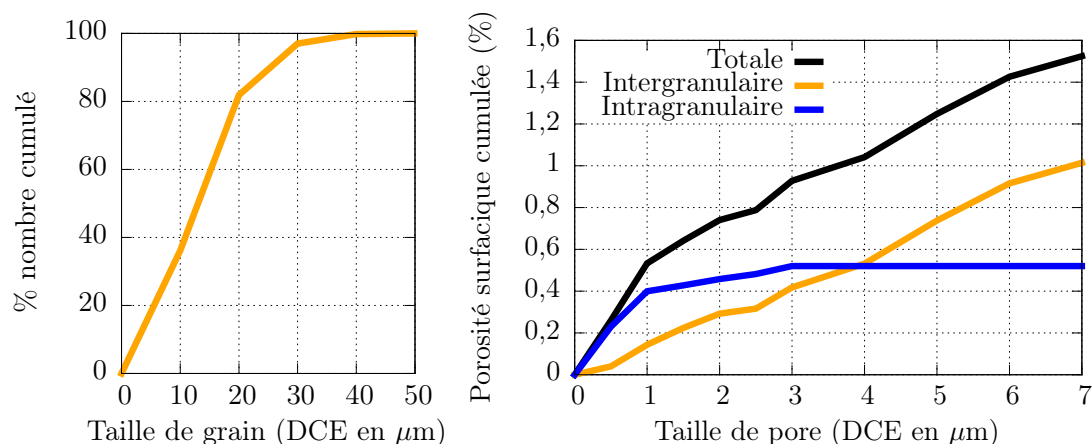


Figure 4.2. – Distribution de la taille de grain et fraction surfacique de porosité initiale du lot forte densité.

Une analyse plus précise d'une surface de  $0,44 \text{ mm}^2$  du centre d'un échantillon grâce à la diffraction des électrons rétrodiffusés (Electron BackScatter Diffraction : EBSD) permet d'accéder, entre autre, à la distribution des tailles de grain dans la zone étudiée (voir **Figure 4.2**). Au centre de la pastille observée, moins de 40 % des grains en nombre ont une taille inférieure à  $10 \text{ µm}$  et 80 % une taille inférieure à  $20 \text{ µm}$ . La taille de grain moyenne mesurée dans cette zone est à peu près la même que celle obtenue par la méthode des interceptes ( $15 \text{ µm}$ ).

Cette analyse permet également de déterminer la répartition intra-intergranulaire de la porosité. Il en ressort (voir **Tableau 4.1** et **Figure 4.2**) que les pores situés aux joints de grain sont peu nombreux (17 % du nombre total de pores) mais que, malgré tout, ils représentent plus de 65 % de la porosité surfacique avec une taille moyenne (DCE) de  $1,2 \text{ µm}$ . À l'opposé, les pores contenus dans les grains sont très nombreux (83 % du nombre total de pores) mais ne participent que très peu à la porosité totale du fait de leur petite taille ( $0,4 \text{ µm}$  en moyenne).

Porosités	DCE moyen en $\text{µm}$	Porosité %	Nb de pores %
Totale	$0,6 \text{ µm}$	1,5 %	100 %
Intergranulaire	$1,2 \text{ µm}$	1 %	17 %
Intragranulaire	$0,4 \text{ µm}$	0,5 %	83 %

Tableau 4.1. – Répartition de la porosité du lot forte densité.

En comparaison avec le lot de référence, la porosité intragranulaire est du même ordre (0,5 % et  $0,4 \text{ µm}$  contre 0,7 % et  $0,4 \text{ µm}$  pour le lot de référence)

alors que la porosité intergranulaire est caractérisée par des pores plus petits (1 % et 1,2  $\mu\text{m}$  contre 3,3 % et 2,1  $\mu\text{m}$  pour le lot de référence) et représente donc une part plus faible de la porosité totale. La différence entre les 2 lots se situe donc essentiellement au niveau de la porosité intergranulaire.

#### 4.2.2. Courbes contrainte-déformation

Les conditions des essais de compression à vitesse de déplacement imposée effectués sur les échantillons du lot forte densité sont les mêmes que pour le lot de référence : la température varie entre 1100 °C et 1700 °C avec des vitesses de déplacement de la traverse entre 0,1 mm/min et 100 mm/min auxquelles correspondent des vitesses de déformation entre  $10^{-4}$  /s et  $10^{-1}$  /s (voir **Tableau 4.2**). Les courbes contrainte-déformation obtenues lors des essais mécaniques présentent des caractéristiques similaires à celles obtenues sur le lot de référence.

À température constante (voir **Figure 4.3**), l'augmentation de la vitesse de déformation a pour effet d'augmenter la contrainte d'écoulement, de conduire à un écrouissage apparent plus prononcé et à 1350 °C et 1100 °C de faire apparaître un pic de compression. À vitesse de déformation constante (voir **Figure 4.4**), l'augmentation de la température à l'effet inverse, c'est-à-dire qu'elle induit une diminution de la contrainte d'écoulement, la disparition du pic de compression et un écrouissage apparent de moins en moins prononcé.

Vitesse \ Température	Température			
	1700 °C	1550 °C	1350 °C	1100 °C
$10^{-4}$ /s	non	non	non	<b>oui</b>
$10^{-3}$ /s	non	non	non	<b>oui</b>
$10^{-2}$ /s	non	non	non	<b>oui</b>
$10^{-1}$ /s	<b>oui</b>	non	<b>oui</b>	<b>oui</b>

Tableau 4.2. – Grille d'essai du lot forte densité indiquant la présence ou non de fissures macroscopiques à l'issu des essais.

Les contraintes atteintes étant élevées et l'aspect extérieur des échantillons présentant des fissures (voir **Tableau 4.2**), la déformation dans les essais a été limitée à un niveau de l'ordre de 8 % maximum.

Comparativement au lot de référence, des comportements plus complexes sont apparus lors des essais à 1100 °C. Les courbes présentent bien une augmentation de la contrainte d'écoulement et l'apparition d'un pic de compression prononcé lorsque la vitesse augmente mais cette phase est suivie par un adoucissement de plus en plus important à mesure que la vitesse de déformation augmente. L'étude des pentes d'écrouissage apparent (voir **Figure 4.5**) confirme ces observations.

#### 4. Étude du lot forte densité

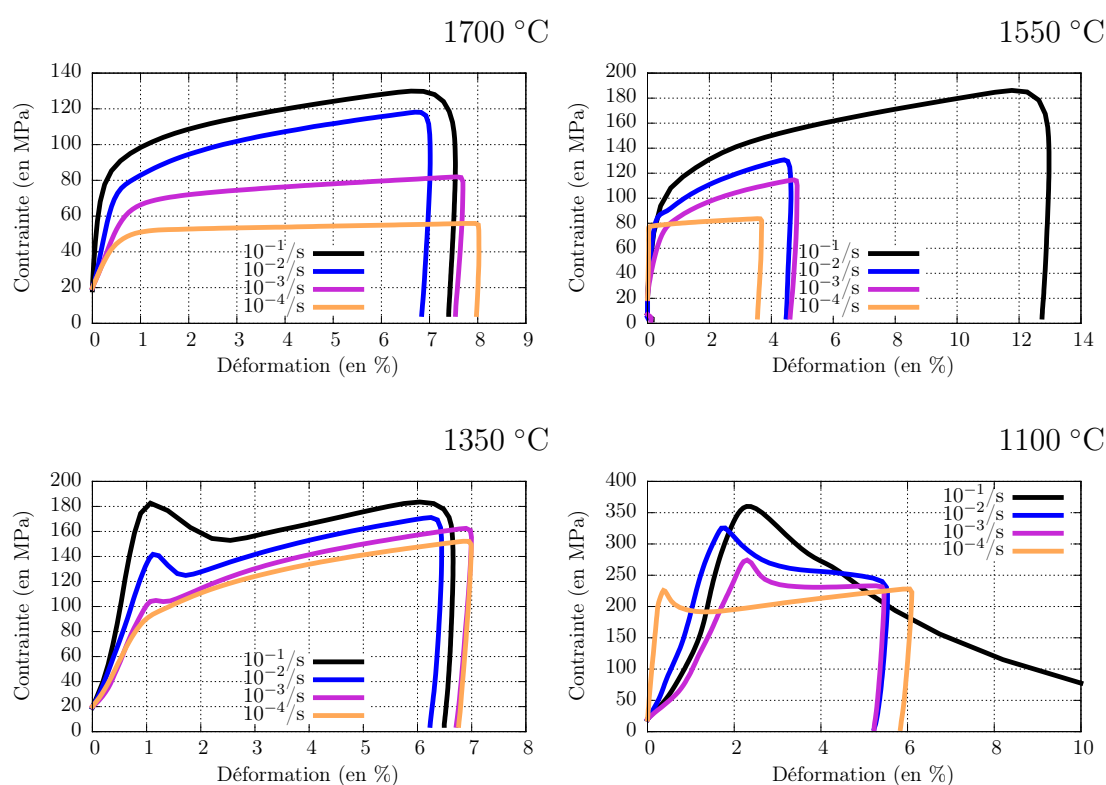


Figure 4.3. – Influence de la vitesse dans les essais expérimentaux du lot forte densité.

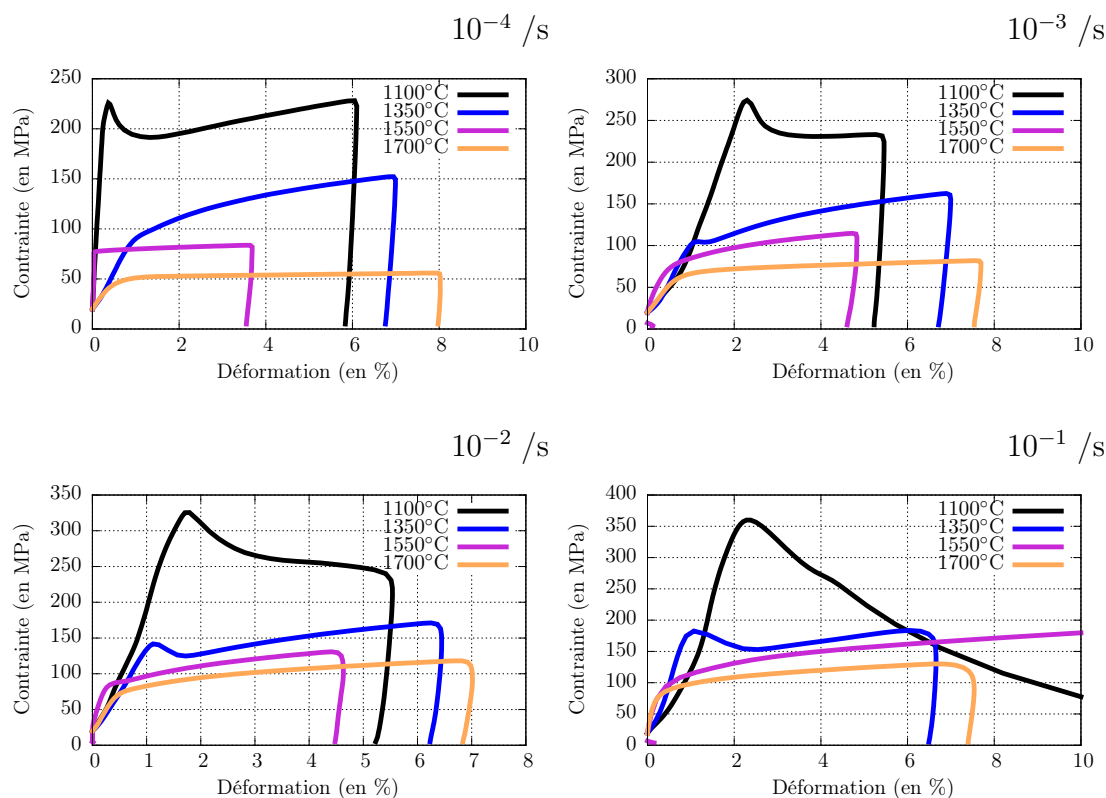


Figure 4.4. – Influence de la température dans les essais expérimentaux du lot forte densité.

À 1100 °C, la pente n'a de cesse de diminuer lorsque la vitesse de déformation augmente alors que l'effet inverse est observé aux autres températures. Mis à part les essais à 1100 °C, la pente d'écoulement apparent augmente lorsque la température diminue.

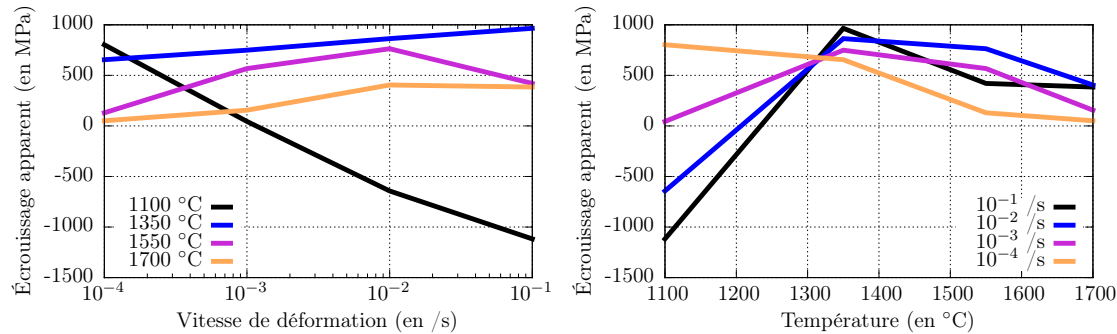


Figure 4.5. – Pente de l'écrouissage apparent sur les courbes contrainte-déformation expérimentales du lot forte densité.

Comme le montrent les observations macroscopiques et microscopiques détaillées plus loin dans ce chapitre, l'inversion de la pente d'écrouissage apparent indique un endommagement de l'échantillon.

Dans la suite de ce travail, la contrainte d'écoulement est étudiée de manière similaire à ce qui a été fait pour le lot de référence, c'est à dire en fonction de la température et de la vitesse de déformation.

Compte tenu de la forme complexe des courbes contrainte-déformation, la détermination de la contrainte d'écoulement est délicate. Le choix a été fait de définir la contrainte d'écoulement comme la contrainte au point d'intersection entre la droite représentative de la partie linéaire initiale de la courbe contrainte-déformation et la droite représentative de l'écrouissage apparent (voir **Figure 4.6**). Afin de déterminer des bornes d'erreur sur la mesure de la contrainte d'écoulement, d'autres points spécifiques sont également définis :

- La contrainte au pic, qui correspond à la contrainte au sommet du pic de compression lorsqu'il apparaît,
- La contrainte à 1 %, qui correspond à la contrainte à 1 % de déformation suivant une droite parallèle à la partie linéaire initiale de la courbe contrainte-déformation,
- La limite de linéarité initiale à 0,1 %, qui correspond à la contrainte lorsque la courbe expérimentale s'écarte de plus de 0,1 % de la droite modélisant la partie linéaire initiale.

La comparaison des contraintes d'écoulements du lot forte densité avec celles du lot de référence et celles issues d'études antérieures (**GUÉRIN 1975**; **TACHIBANA 1976**) (voir **Figure 4.7**) montre que, pour une vitesse

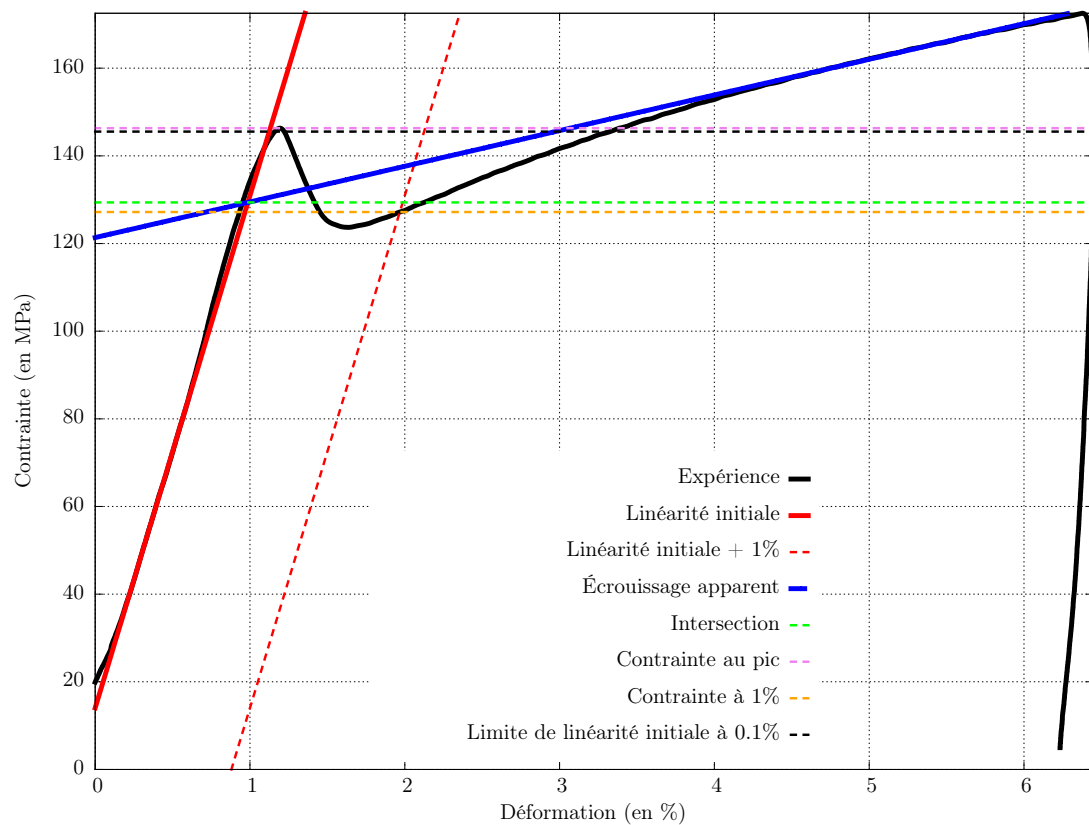


Figure 4.6. – Détermination de la contrainte d'écoulement et des contraintes spécifiques à partir des courbes contrainte-déformation expérimentales des essais du lot forte densité.



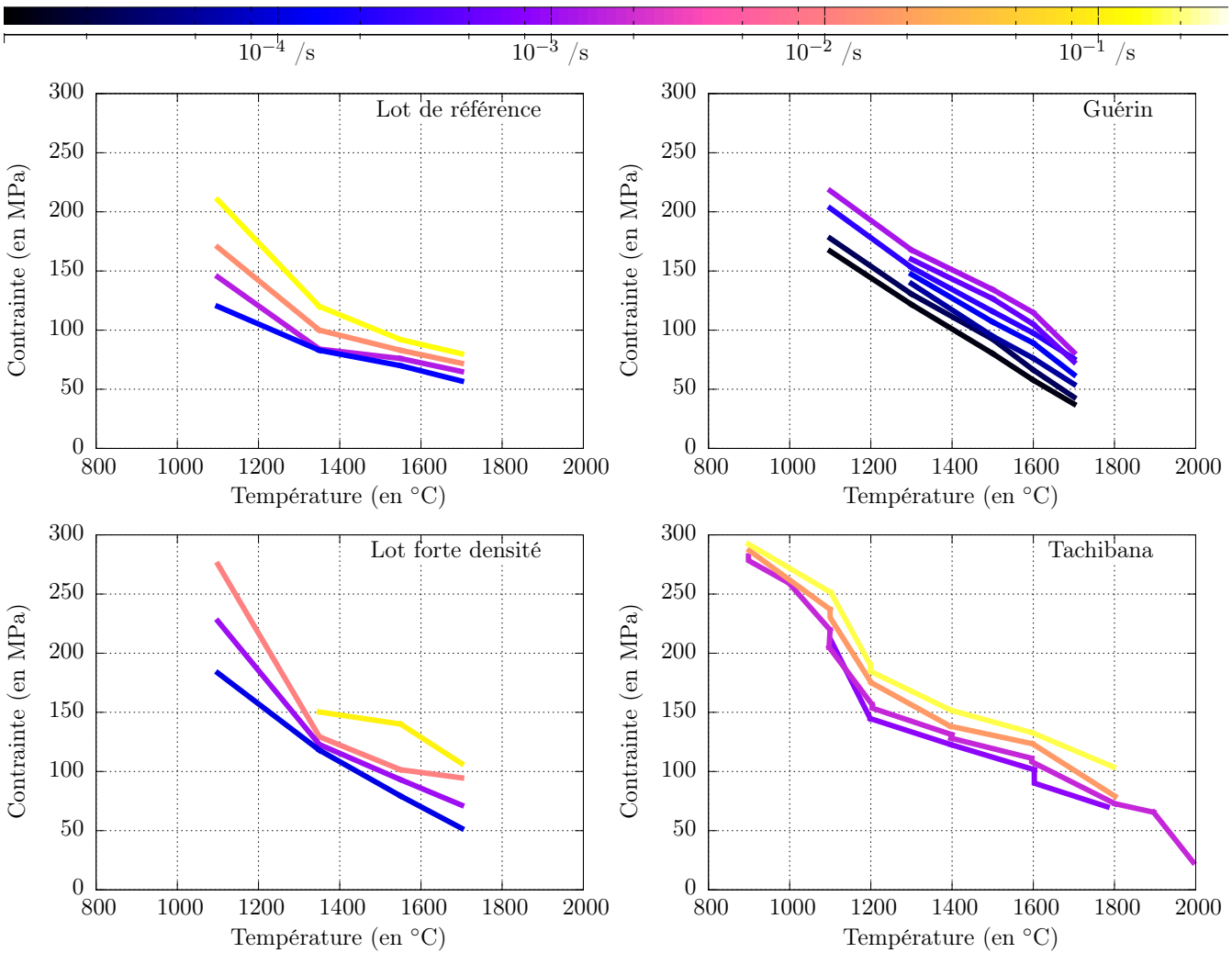


Figure 4.7. – Dépendance de la contrainte d'écoulement à la température dans les essais du lot forte densité, du lot de référence et dans les études de (Guérin 1975 ; Tachibana 1976).

de déformation fixe (une même couleur sur la figure), la dépendance à la température est semblable entre le lot de référence et le lot forte densité. La contrainte d'écoulement augmente fortement dans les deux cas entre 1350 °C et 1100 °C. Par ailleurs, toutes conditions égales par ailleurs, les valeurs de contraintes du lot de référence sont plus faibles que celles du lot forte densité ou de Guérin ou de Tachibana. Ceci malgré le fait que les essais de Guérin et Tachibana ont été effectués sur des  $\text{UO}_2$  similaires à notre matériau de référence. La variation de la contrainte avec la vitesse de déformation est également plus marquée sur le lot forte densité que sur le lot de référence. Par la suite, une barre d'erreur calculée à partir des valeurs minimum et maximum des contraintes spécifiques tirées des courbes contrainte-déformation (voir **Figure 4.6**) est ajoutée afin de prendre en compte la forme complexe des courbes.

### 4.2.3. Fissuration et variation de volume

À l'issue des essais mécaniques, les échantillons prennent systématiquement une forme en tonneau caractéristique (voir **Figure 4.8**). Cette forme est la conséquence du frottement entre les extrémités des échantillons et les cales de maintien en tungstène sur lesquelles ils reposent. La surface extérieure présente dans certain cas (voir **Tableau 4.2**) des fissures axiales de l'ordre du millimètre de longueur. En effet, toutes les pastilles testées à 1100 °C ou à  $10^{-1}$  /s présentent des fissures (voir **Figure 4.8**). Par ailleurs, la pastille issue de l'essai fait à la température de 1100 °C et à la vitesse de  $10^{-1}$  /s a totalement rompu et présente un faciès de rupture composé de colonnette verticales.

Des mesures de diamètres ( $d(z)$ ) à 10 niveaux suivant la hauteur des échantillons et selon 3 génératrices permettent d'estimer un profil axial de déformation circonférencielle ( $\varepsilon_{\theta\theta}(z)$ ) d'après :

$$\varepsilon_{\theta\theta}(z) = \ln \left( \frac{d(z)}{d_0} \right) \quad (4.1)$$

Une régression à l'aide d'une fonction parabolique du profil axial de déformation est alors utilisée pour estimer le diamètre moyen de l'échantillon déformé ( $d_{\text{moy}}$ ) et ainsi pouvoir accéder à son volume final et donc à sa variation de volume ( $\Delta V/V$ ) au cours de l'essai. Les coefficients de corrélation obtenus très proches de 1 traduisent la symétrie quasi parfaite de la déformation par rapport au plan médian (sauf pour les échantillons testés à 1100 °C, très fissurés) et montrent également le parallélisme entre les cales supérieure et inférieure.

Le tracé de la déformation circonférencielle moyenne résiduelle en fonction de la déformation axiale résiduelle (voir **Figure 4.9**), qui présente une certaine variabilité, est proche d'une droite avec un coefficient de corrélation de 0,95. En théorie, lors d'un essai de compression uniaxiale sur un matériau isotrope incompressible,  $\varepsilon_{rr}/\varepsilon_{zz} = \varepsilon_{\theta\theta}/\varepsilon_{zz} = -0.5$ . Le faible écart entre le coefficient directeur de la droite de régression et la valeur théorique (-0,495 au lieu de



Figure 4.8. – Aspect des échantillons déformés du lot forte densité.

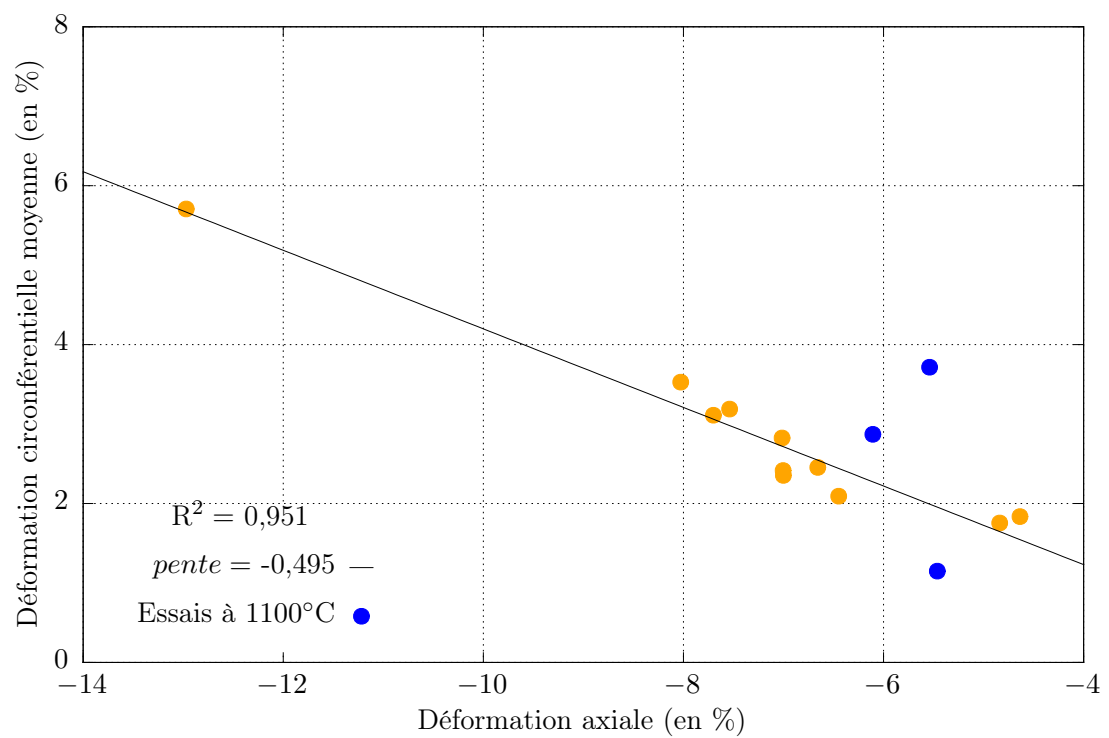


Figure 4.9. – Déformation circonférentielle moyenne résiduelle en fonction de la déformation axiale résiduelle des échantillons du lot forte densité.

–0,5, voir **Figure 4.9**) indique que le volume des échantillons n'a pas varié significativement au cours des essais ce qui est très différent des 2 % de variation de volume observés sur le lot de référence.

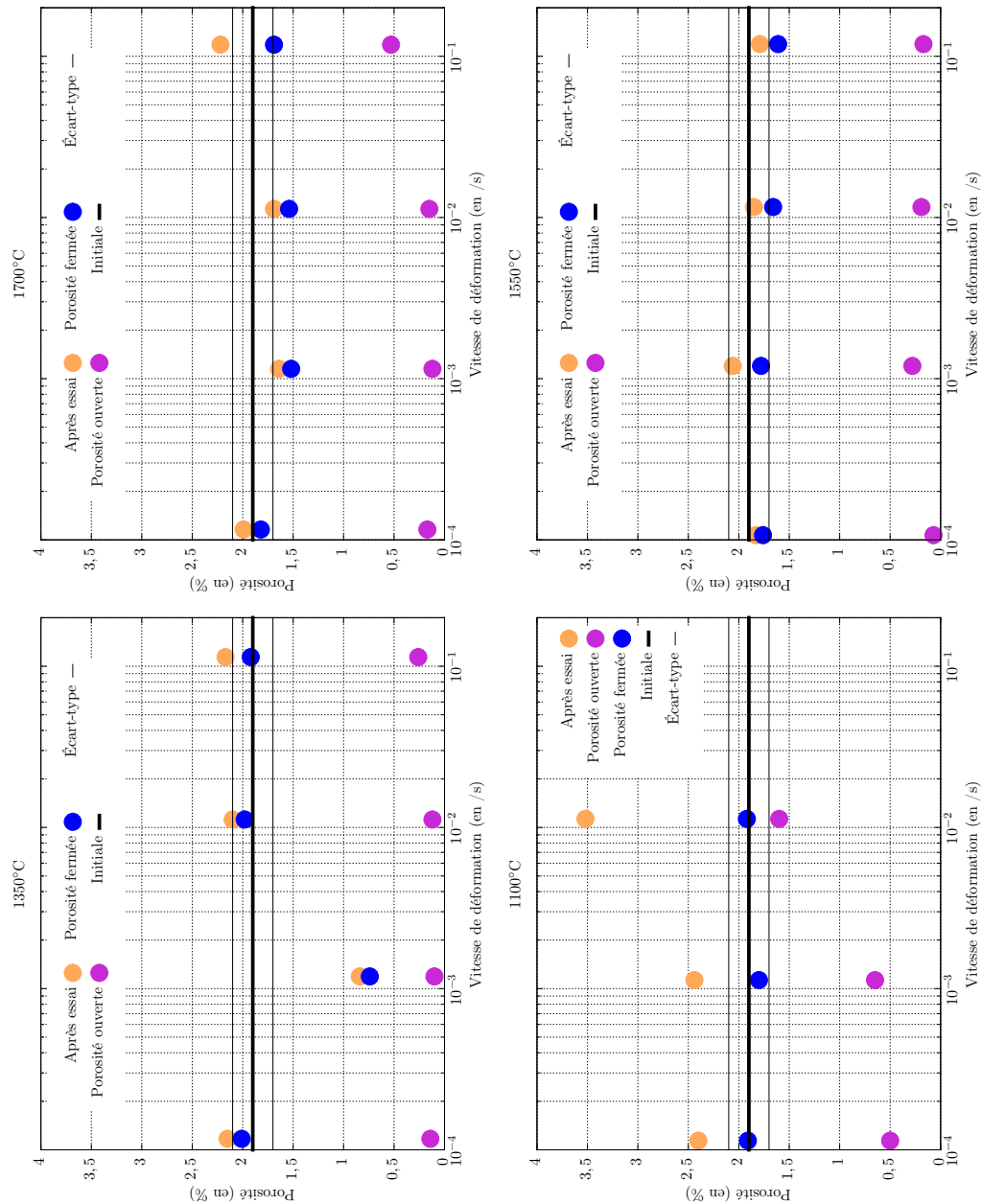


Figure 4.10. – Porosité totale, ouverte et fermée après essais des échantillons du lot forte densité, d'après les mesures de densité relative.

Avant essais, les mesures de densité par pesée hydrostatique dans l'alcool ont donné une densité relative moyenne des échantillons de 98,1 % avec un écart type de 0,2 % associée essentiellement à de la porosité fermée (1,9 %). La même

mesure effectuée après essais montre que, dans la majorité des cas, la variation de densité relative est très faible et se situe dans l'intervalle de mesure de la valeur moyenne avant essai (entre 1,7 % et 2,1 %, voir **Figure 4.10**). Néanmoins, la porosité totale des échantillons testés à 1100 °C et 1350 °C a tendance à augmenter au cours de l'essai alors qu'inversement, celle des échantillons testés à 1550 °C et 1700 °C a tendance à diminuer. L'augmentation de la porosité totale se fait par une augmentation de la porosité ouverte (correspondant à l'apparition de fissure macroscopique) alors que la porosité fermée reste inchangée. Au contraire, la diminution de la porosité totale est liée à une diminution de la porosité fermée (principale source de la porosité du matériau). Un effet de la vitesse de déformation est également visible sur la variation de porosité au cours des essais. Excepté à 1550 °C, lorsque la vitesse de déformation atteint  $10^{-1}$  /s, la porosité ouverte et donc la porosité totale augmente traduisant un endommagement alors que la porosité fermée reste inchangée.

En résumé, les échantillons testés aux températures les plus élevées et aux vitesses les plus faibles ne présentent pas de fissuration macroscopique et leur densité relative ne varie pas ou augmente très peu par diminution de la porosité fermée. D'un autre côté, les échantillons testés à la température la plus faible présentent des fissures axiales et leur densité relative diminue par augmentation de la porosité ouverte.

#### 4.2.4. Évolution de la microstructure

L'impact des essais sur la microstructure et en particulier sur la porosité des échantillons est étudié en observant les pastilles après essais au MEB. L'observation est faite dans 3 zones : le centre de la pastille, la périphérie à mi-hauteur et l'extrémité supérieure. Les porosités surfaciques sont mesurées par analyse d'image à l'aide du logiciel ProAnalysis®.

Les résultats (voir **Figure 4.11**) montrent que, de manière générale et contrairement au lot de référence, l'évolution de la porosité pendant les essais du lot forte densité ne diffère pas d'une zone à une autre et que la porosité ne semble pas avoir évolué de manière significative durant les essais. En effet, quelle que soit la zone observée, la plupart des porosités surfaciques mesurées sont comprises dans l'intervalle d'incertitude de mesure avant essai. De plus, aucune tendance en fonction de la vitesse ou de la température n'est visible.

Le centre des échantillons testés à  $10^{-1}$  /s présente néanmoins des particularités (voir **Figure 4.12**). Dans les essais aux températures de 1550 °C et 1700 °C, une grande partie des joints de grain ont rompu donnant une porosité surfacique de 17 % et 8 % respectivement (voir la **Figure 4.13**). Aucune autre observation MEB n'a montré de fragmentation.

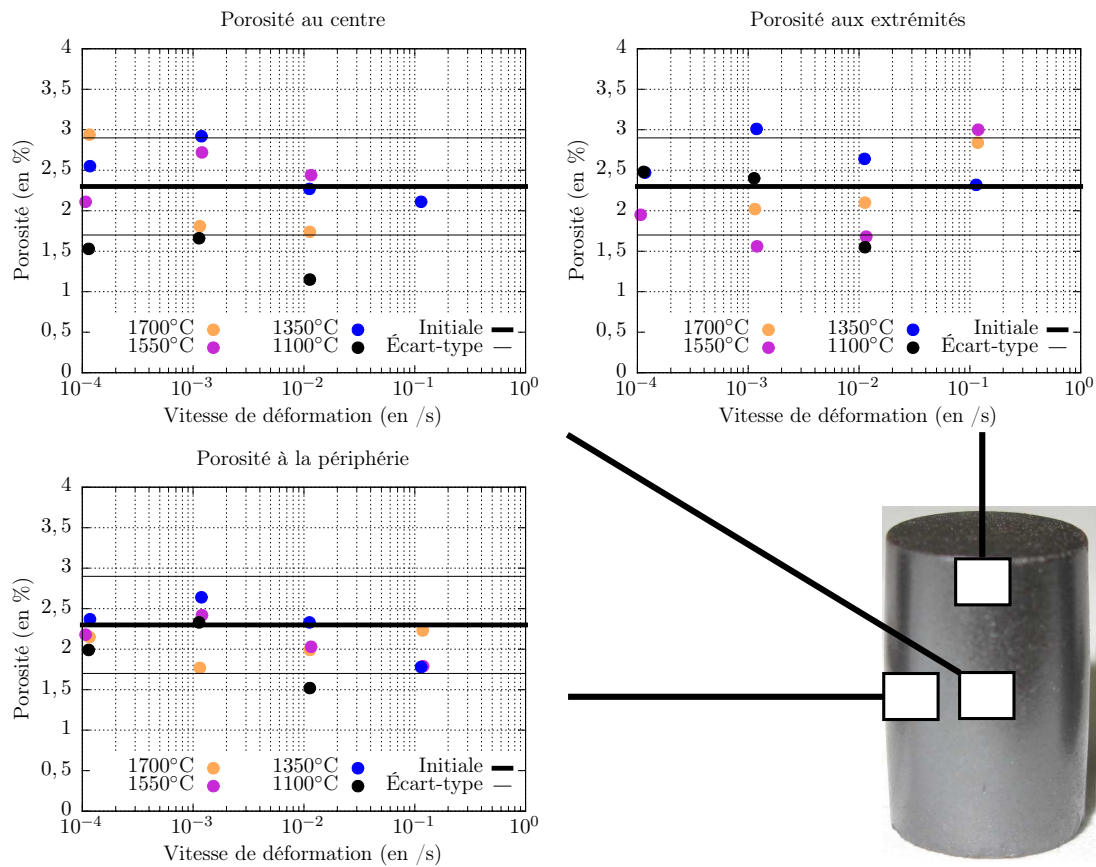


Figure 4.11. – Évolution de la porosité des pastilles du lot forte densité au cours des essais.

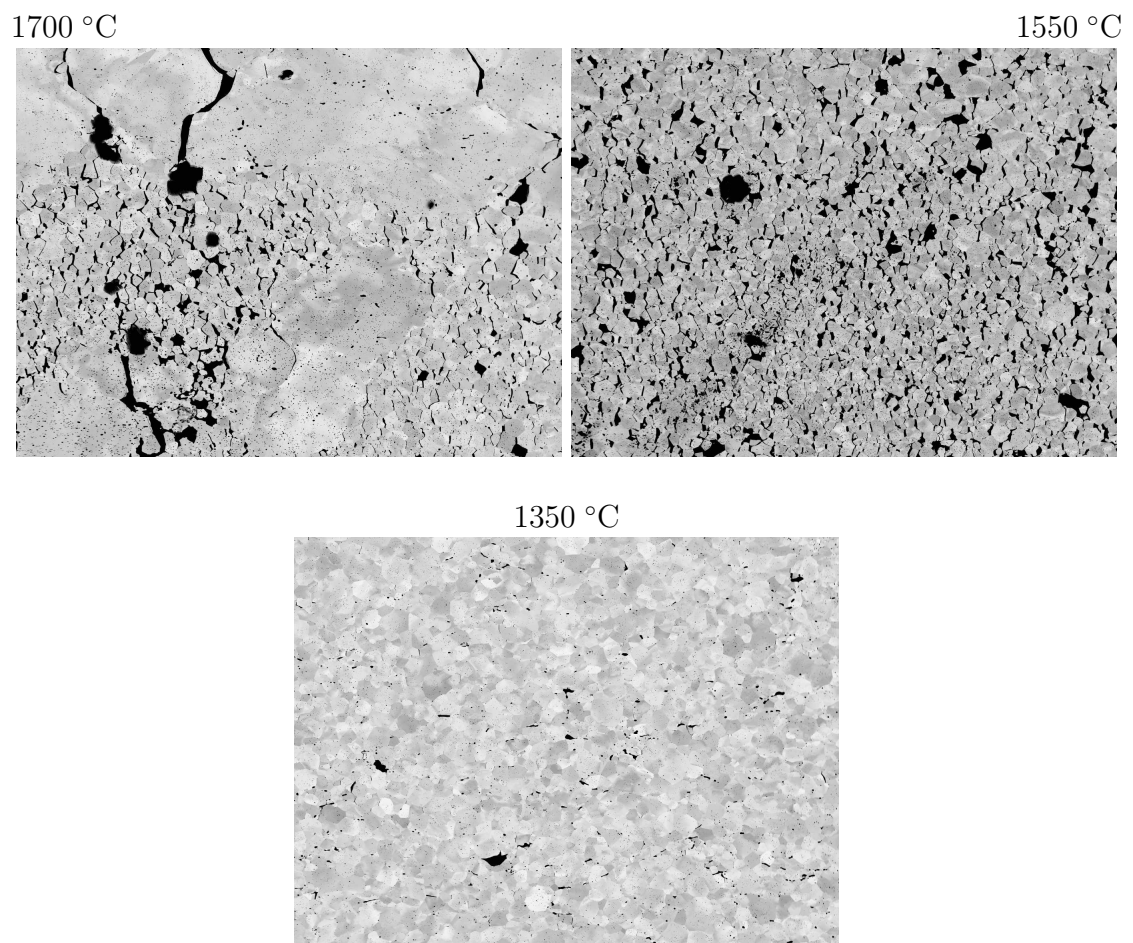


Figure 4.12. – Microstructure du centre des pastilles du lot forte densité testées à  $10^{-1}$  /s.



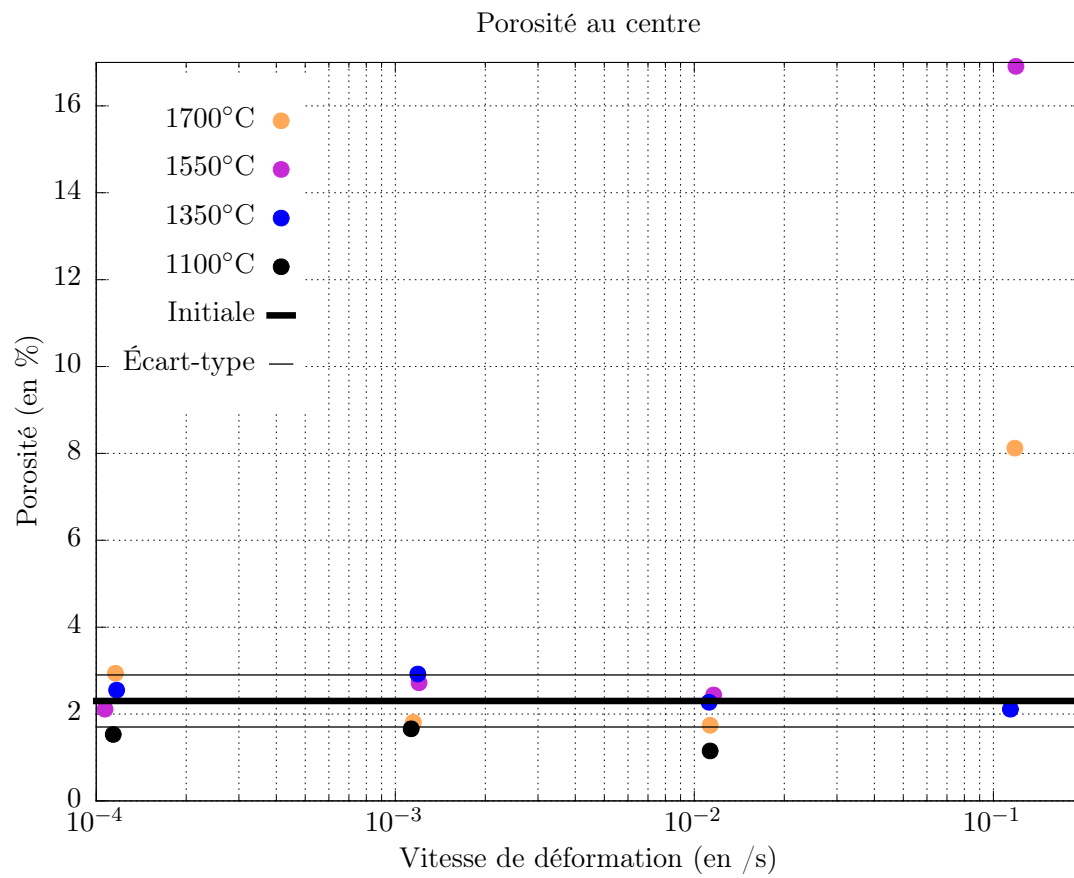


Figure 4.13. – Évolution de la porosité du centre des pastilles du lot forte densité au cours des essais (zoom arrière).

### 4.2.5. Décohésion des joints de grain

La superposition des résultats du lot forte densité et du lot de référence en terme de contrainte d'écoulement en fonction de la température de l'essai pour toutes les vitesses de sollicitation (voir **Figure 4.14**) montre que l'augmentation de la densité conduit à une augmentation conséquente de la contrainte d'écoulement (surtout aux faibles températures). La densité du matériau est donc un paramètre de premier ordre vis-à-vis de son comportement mécanique.

L'apparition de fissures macroscopiques en périphérie de pastille (indiquée sur la **Figure 4.14**) semble dépendre de la température et de la vitesse de déformation. En effet, à 1100 °C, tous les échantillons testés présentent des fissures axiales en surface alors qu'à 1350 °C et 1700 °C, des fissures sont visibles seulement à l'issue des essais effectués à  $10^{-1}$  /s. Seul l'essai effectué à 1550 °C et  $10^{-1}$  /s ne présente pas de fissuration. Par ailleurs, les conditions d'apparition de fissures macroscopiques semblent indépendantes de la porosité du fait de la présence de fissures dans les 2 lots d'échantillons.

Les conditions d'apparition de la fragmentation des joints de grain (ou décohésion des joints de grain, représentée sur la **Figure 4.14**), uniquement au centre de la pastille, sont une température et une vitesse de déformation élevées. La densité semble de plus être un paramètre important car seuls les échantillons du lot forte densité présentent de la fragmentation des joints de grain. Ce type d'endommagement étant visible uniquement au centre des pastilles, seule une analyse de l'état de contrainte dans cette zone permettra de déterminer les conditions thermo-mécaniques précises conduisant à son apparition.

## 4.3. Modélisation

### 4.3.1. Modèle initial

Le modèle présenté au chapitre précédent permet de décrire la dépendance du comportement mécanique en compression de l' $\text{UO}_2$  à la température et à la vitesse de déformation. S'appuyant sur les travaux de Dherbey et al. (**DHERBEY 2000**), ce modèle repose sur une loi en  $\sinh$ . Il couvre une large gamme de températures (entre 1100 °C et 1700 °C) et de vitesses de déformation (entre  $10^{-9}$  /s et  $10^{-1}$  /s). Basé sur les travaux de Monerie et al. (**MONERIE 2006**), il permet également de prendre en compte la compressibilité des pores et donc l'évolution de la densité du matériau en fonction du chargement. Enfin, l'impact de la taille de grain sur la contrainte d'écoulement est également modélisé.

Le tenseur de vitesse de déformation viscoplastique s'écrit :

$$\dot{\epsilon}^{vp} = K_0 \exp\left(\frac{-\gamma}{d - d_0}\right) \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \sinh\left(\frac{\Sigma}{\sigma_0}\right) \left(\frac{1}{3}\alpha(f)\frac{\sigma_m}{\Sigma}\mathbf{1} + \frac{3}{2}\beta(f)\frac{1}{\Sigma}\mathbf{s}\right) \quad (4.2)$$

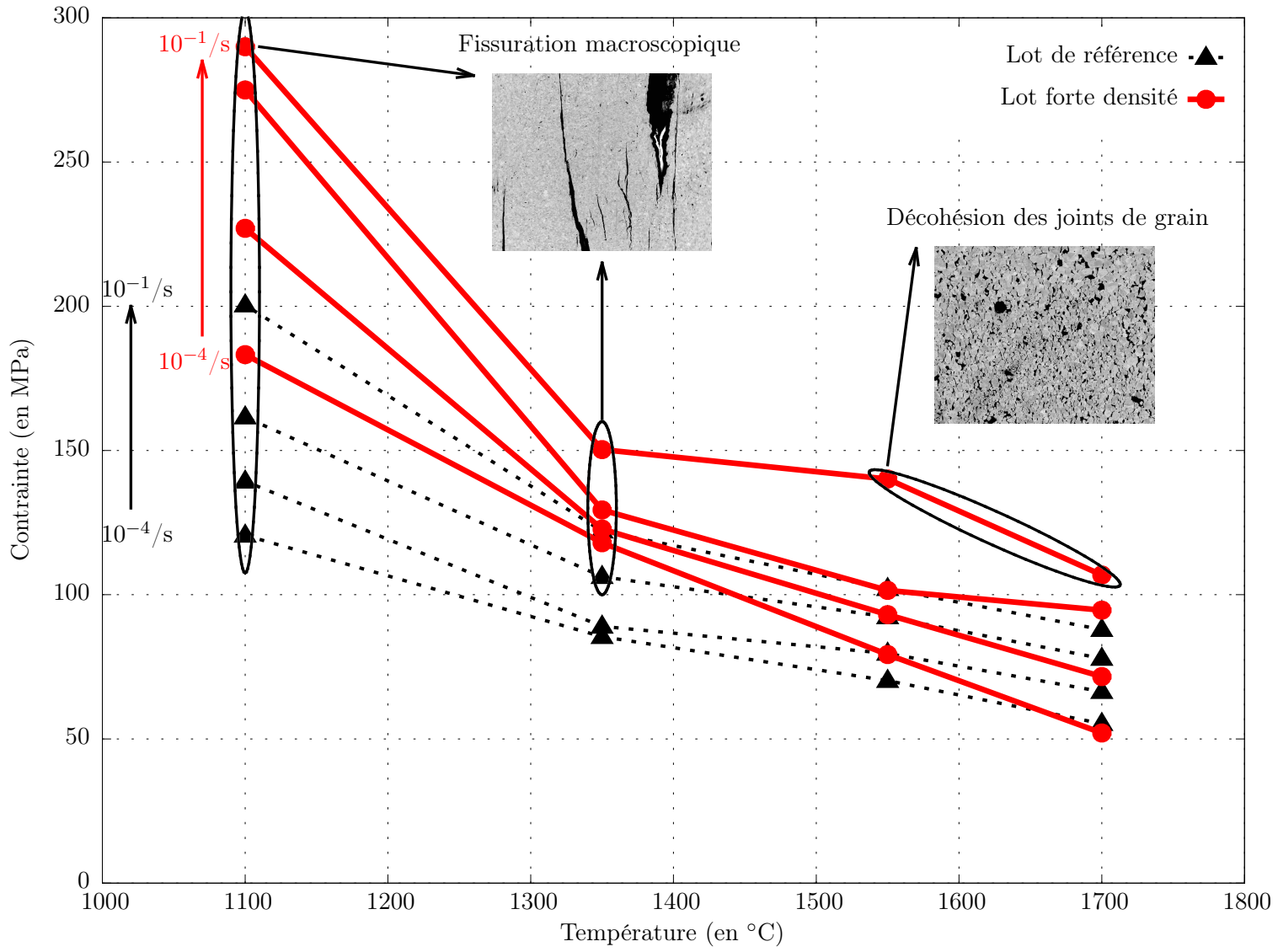


Figure 4.14. – Synthèse des résultats des essais sur les 2 lots.

$K_0, \gamma, d_0, \sigma_0$	paramètres constants,
$Q$	énergie d'activation,
$\Sigma = \sqrt{\alpha(f) \sigma_m^2 + \beta(f) \sigma_{eq}^2}$	contrainte équivalente,
$\sigma_m = \frac{1}{3} \boldsymbol{\sigma} : \mathbf{1}$	premier invariant du tenseur des contraintes,
$\sigma_{eq} = \sqrt{\frac{3}{2} \mathbf{s} : \mathbf{s}}$	deuxième invariant du tenseur des contraintes,
$\mathbf{1}$	tenseur unité,
$\mathbf{s} = \boldsymbol{\sigma} - \sigma_m \mathbf{1}$	tenseur des contraintes déviatoriques,
$\boldsymbol{\sigma}$	tenseur des contraintes,
$f$	fraction volumique de porosité.

Les fonctions  $\alpha(f)$  et  $\beta(f)$  définissent respectivement les contributions relatives des parties hydrostatique et déviatorique des contraintes sur la vitesse de déformation. Ces fonctions ont été identifiées à partir de la contrainte équivalente  $\Sigma = \sqrt{\frac{9}{4} A(f) \sigma_m^2 + B(f) \sigma_{eq}^2}$  issue du modèle compressible de Monerie et Gatt (**MONERIE 2006**) et assurent la prise en compte de la compressibilité de la porosité définie par la relation suivante :

$$\dot{f} = (1 - f) \dot{\boldsymbol{\epsilon}}^{vp} : \mathbf{1} = (1 - f) K \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \sinh\left(\frac{\Sigma}{\sigma_0}\right) \alpha(f) \frac{\sigma_m}{\Sigma} \quad (4.3)$$

Les fonctions  $A(f)$  et  $B(f)$  sont définies par :

$$A(f) = \left(6 \left(f^{-\frac{1}{6}} - 1\right)\right)^{-\frac{12}{7}} \quad (4.4)$$

et

$$B(f) = \left(1 + \frac{2}{3}f\right) (1 - f)^{-\frac{12}{7}} \quad (4.5)$$

Dans un essai de compression simple, il a été montré que la relation suivante (voir l'**Équation 4.6**) permettait de rendre cohérent les variations de volume du modèle en  $\sinh$  avec celles de la loi en puissance de Monerie (**MONERIE 2006**) :

$$\frac{\alpha(f)}{\beta(f)} = \frac{9A(f)}{4B(f)} \quad (4.6)$$

Le choix fait pour simuler les résultats du lot de référence était :

$$\alpha(f) = \frac{9}{4} A(f) \quad (4.7)$$

et

$$\beta(f) = B(f) \quad (4.8)$$

À partir des résultats expérimentaux obtenus sur le lot de référence et de la base de donnée d'essais de fluage du CEA, l'identification suivante a été proposée (voir **Tableau 4.3**) :

Paramètre	Valeur	Désignation	Unité
$K_0$	77 400	préfacteur	en /s
$\gamma$	5,277	paramètre constant	en $\mu\text{m}$
$d_0$	4,6	taille de grain de référence	en $\mu\text{m}$
$Q$	$\max\left(482; 876 - \frac{T}{4.16}\right)$	énergie d'activation	en kJ/mol
$\sigma_0$	5	paramètre constant	en MPa

Tableau 4.3. – Paramètres du modèle initial identifiés à partir des résultats expérimentaux du lot de référence et de la base de donnée d'essais de fluage du CEA.

Dans l'hypothèse d'un essai de compression uniaxiale, le tenseur des contraintes ne contient qu'une composante non nulle  $\sigma_{zz} = -\sigma$  avec  $\sigma \geq 0$  norme de la contrainte de compression. Les invariants du tenseur des contraintes sont donc égaux à  $\sigma_m = -\frac{1}{3}\sigma$  et  $\sigma_{eq} = \sigma$ . En négligeant les déformations élastiques, la vitesse de déformation imposée peut s'écrire sous la forme :

$$\dot{\varepsilon}_{zz} \approx \dot{\varepsilon}_{zz}^{vp} = -K(d, T) \sqrt{\frac{1}{9}\alpha(f) + \beta(f)} \sinh\left(\frac{\sigma \sqrt{\frac{1}{9}\alpha(f) + \beta(f)}}{\sigma_0}\right) \quad (4.9)$$

avec  $K(d, T) = K_0 \exp\left(\frac{-\gamma}{d - d_0}\right) \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right)$

L'utilisation de l'**Équation 4.9** avec le jeu de paramètres du **Tableau 4.3** pour estimer les contraintes d'écoulement des essais du lot forte densité dans l'hypothèse d'une compression uniaxiale amène à sous-estimer systématiquement les contraintes d'écoulement mesurées (voir **Figure 4.15**). L'impact de la densité initiale de l'échantillon sur la réponse du matériau n'est donc pas correctement pris en compte. Le simple fait de modifier  $\sigma_0$  en lui donnant la valeur de 7 MPa suffit pour estimer correctement les contraintes d'écoulement (voir **Figure 4.16**). La prise en compte de la dépendance à la porosité pourrait donc se faire simplement en faisant varier  $\sigma_0$  en fonction de  $f$ . Néanmoins, comme la dépendance à la porosité est déjà présente au travers des fonctions  $\alpha(f)$  et  $\beta(f)$ , le choix a été fait de ne pas retenir cette solution.

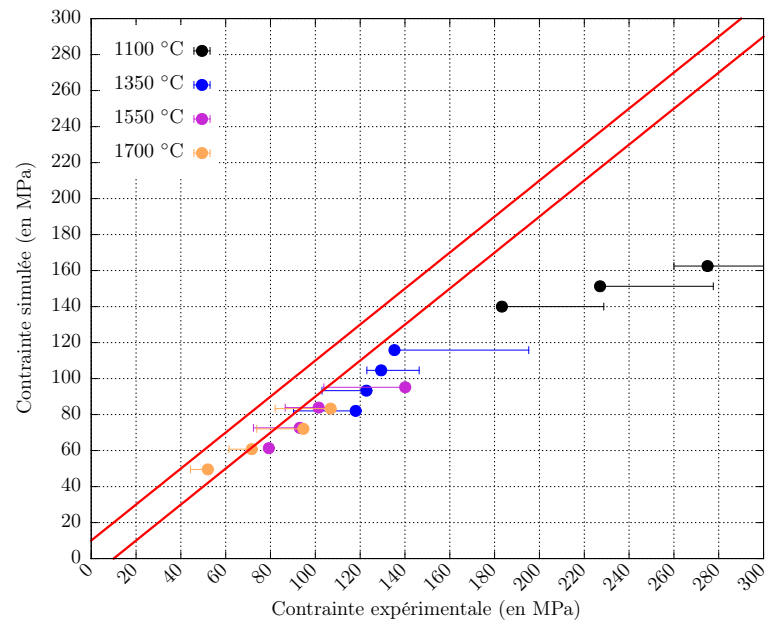


Figure 4.15. – Comparaison des contraintes d'écoulement expérimentales et estimées par le modèle initial sur le lot forte densité. Les traits horizontaux donnent l'incertitude associée à la forme complexe des courbes contrainte-déformation.

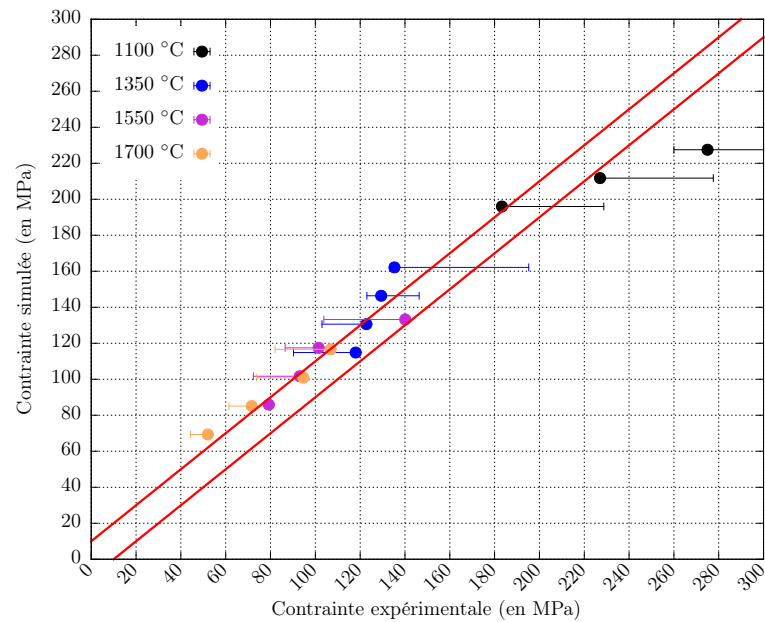


Figure 4.16. – Comparaison des contraintes d'écoulement expérimentales et estimées par le modèle initial sur le lot forte densité en utilisant  $\sigma_0 = 7$  MPa.

### 4.3.2. Dépendance à la porosité

Il est évident que la porosité joue un rôle de première importance dans le comportement de l' $\text{UO}_2$  et des céramiques en général (RYSHKEWITCH 1953 ; ZHOU 2007). Igata et Domoto ont observé, à température ambiante, une décroissance exponentielle de la contrainte de rupture en compression avec la porosité (IGATA 1973). Radford et Oguma ont également déterminé une relation exponentielle entre la contrainte de rupture en flexion et la porosité à température ambiante (RADFORD 1979 ; OGUMA 1982). L'importance de la porosité a aussi été démontrée pour des températures élevées (jusqu'à 1800 °C) (ROBERTS 1972 ; ARMSTRONG 1962).

D'après l'Équation 4.9, tout paramètre égal par ailleurs et dans l'hypothèse d'une compression uniaxiale, le passage d'une porosité initiale de 3,6 % (lot de référence) à 1,9 % (lot forte densité) fait croître la contrainte d'écoulement estimée par le modèle initial d'un facteur d'accroissement  $x$  défini par :

$$x = \frac{\sqrt{\frac{1}{9}\alpha(3,6 \%) + \beta(3,6 \%)}}{\sqrt{\frac{1}{9}\alpha(1,9 \%) + \beta(1,9 \%)}} = 1,02 \quad (4.10)$$

Afin d'obtenir des contraintes simulées plus proches des valeurs expérimentales il est alors nécessaire d'augmenter la valeur du facteur d'accroissement  $x$  pour se rapprocher le plus possible de sa valeur idéale de  $\frac{7}{5} = 1,4$ . Le choix des fonctions  $\alpha(f)$  et  $\beta(f)$  proposé dans le chapitre précédent est uniquement limité par la vérification de l'Équation 4.8 et de la condition  $\alpha(f) \xrightarrow{f \rightarrow 0} 0$  et  $\beta(f) \xrightarrow{f \rightarrow 0} 1$  afin que le comportement du matériau tende vers celui de la matrice incompressible lorsque la porosité tend vers 0. Il est donc tout à fait possible de définir  $\alpha(f)$  et  $\beta(f)$  de la façon suivante :

$$\beta(f) = \frac{B(f) + i A(f)}{B(f)} \quad (4.11)$$

$$\alpha(f) = \frac{9A(f)}{4B(f)}\beta(f) \quad (4.12)$$

où  $i$  est un coefficient d'ajustement à déterminer.

### 4.3.3. Identification de la dépendance à la porosité

La détermination du coefficient d'ajustement  $i$  a été faite avec pour principal objectif d'augmenter le facteur d'accroissement  $x$  tout en évitant de rendre  $\beta(f)$  trop important.

Le tracé du facteur d'accroissement  $x$  en fonction du coefficient d'ajustement

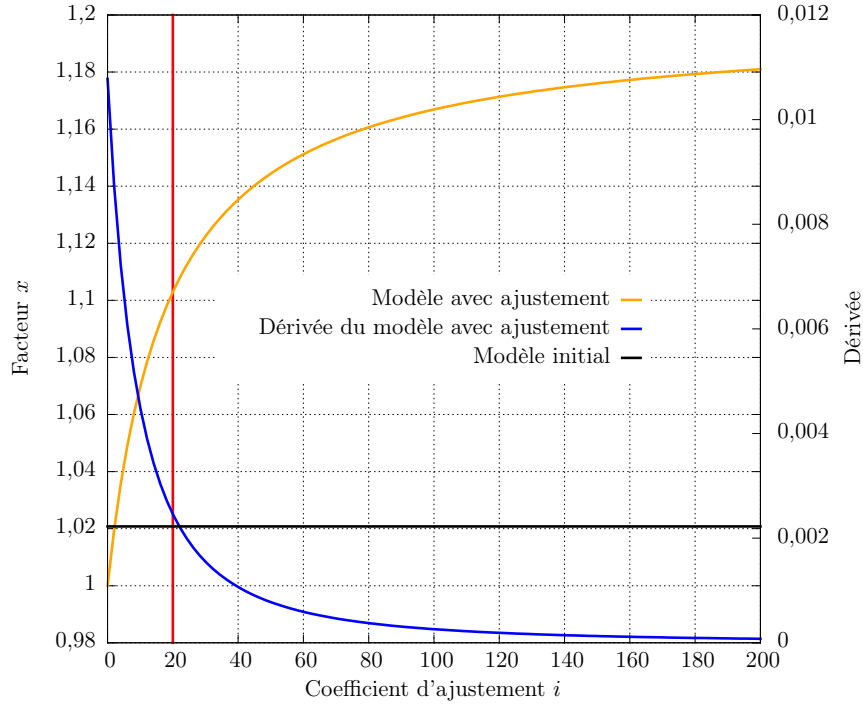


Figure 4.17. – Facteur d'accroissement de la contrainte  $x$  en fonction du coefficient d'ajustement  $i$ .

$i$  (voir **Figure 4.17**) montre que le facteur d'accroissement  $x$  augmente rapidement avec  $i$  puis sature. En choisissant  $i = 20$ , le facteur d'accroissement  $x$  vaut plus de 1,1 ce qui correspond à plus de 50 % de sa valeur maximale de 1,18.  $\beta(f)$  quant à lui varie entre 1 et 3,6 lorsque la porosité varie entre 0 % et 10 % ce qui reste raisonnable du fait que dans le cas du modèle initial,  $\beta(f)$  varie entre 1 et 1,6 lorsque la porosité varie entre 0 % et 10 % (voir **Figure 4.18**). Il est néanmoins notable que la seule dépendance à la porosité définit dans l'**Équation 4.12** ne permet pas de retrouver le facteur d'accroissement optimal de 1,4.

Afin de retrouver l'ajustement des contraintes d'écoulement du lot de référence obtenu avec le modèle initial (à 3,6 % de porosité) il faut recalculer  $\sigma_0$  de la façon suivante :

$$\sigma_0 = 5 \cdot 10^6 \frac{\sqrt{\frac{1}{9}\alpha(3,6 \%) + \beta(3,6 \%)}}{\sqrt{\frac{1}{4}A(3,6 \%) + B(3,6 \%)}} = 7,5 \text{ MPa} \quad (4.13)$$

La simulation des essais du lot forte densité en utilisant une dépendance à la porosité plus marquée (avec  $i = 20$ ) donne des résultats un peu plus satisfaisants (voir **Figure 4.19**). Hormis les résultats des essais à 1100 °C, en considérant



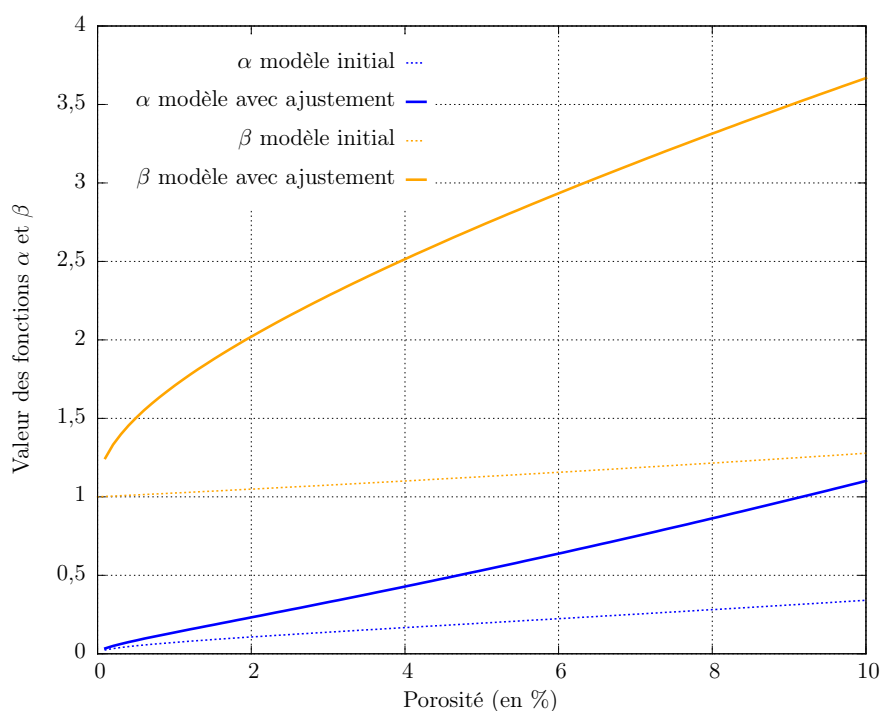


Figure 4.18. – Variation des fonctions  $\alpha(f)$  et  $\beta(f)$  en fonction de la porosité avec ou sans ajustement de la dépendance à la porosité.

l'erreur de mesure, la totalité des résultats des essais sur le lot forte densité entrent dans la borne de validation à  $\pm 10$  MPa.

Les résultats obtenus sur le lot forte densité ne sont pas parfaits. La dépendance accentuée à la porosité introduite ne suffit pas à retrouver l'écart très important de contraintes entre les 2 lots. Dans ce travail, nous n'avons pas souhaité accentuer d'avantage la dissymétrie entre les paramètres  $\alpha$  et  $\beta$  afin de ne pas induire d'instabilité dans les calculs. Nous avons néanmoins vérifié que le modèle avec dépendance à la porosité conduit à une estimation physiquement réaliste des contraintes sur une très large gamme de température (entre 20 °C et 2500 °C) et de porosité (entre 1 % et 10 %). À température ambiante (20 °C), les contraintes à rupture en compression obtenues par Igata dans son étude portant sur des échantillons de porosité variant entre 2 % et 9 % (**IGATA 1973**) et les contraintes calculées dans les mêmes conditions par le modèle avec dépendance marquée à la porosité sont tout à fait en accord. De même, les contraintes d'écoulement obtenues à 1460 °C dans une étude interne CEA (**BASINI 2001**) portant sur des échantillons de porosité variant entre 1 % et 8 % et les contraintes calculées dans les mêmes conditions par le modèle avec dépendance à la porosité sont très proches (voir **Figure 4.20**). L'évolution de la contrainte d'écoulement avec la porosité dans ces 2 études apparaît correctement reproduite par le modèle. Elle est relativement faible comparativement à la très forte dépendance

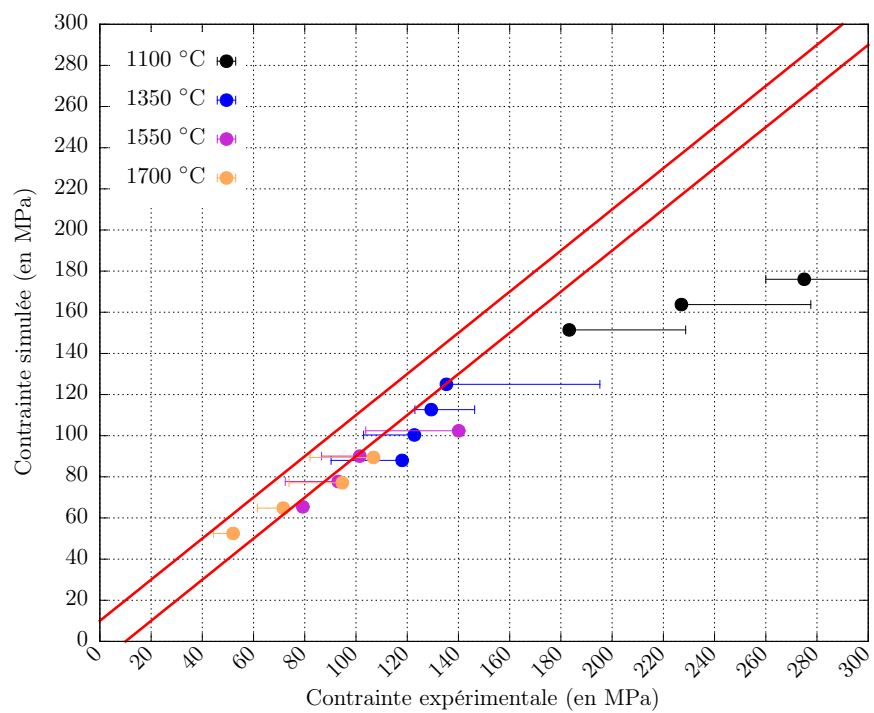


Figure 4.19. – Comparaison des contraintes d'écoulement expérimentales du lot forte densité et estimées par le modèle avec dépendance marquée à la porosité.

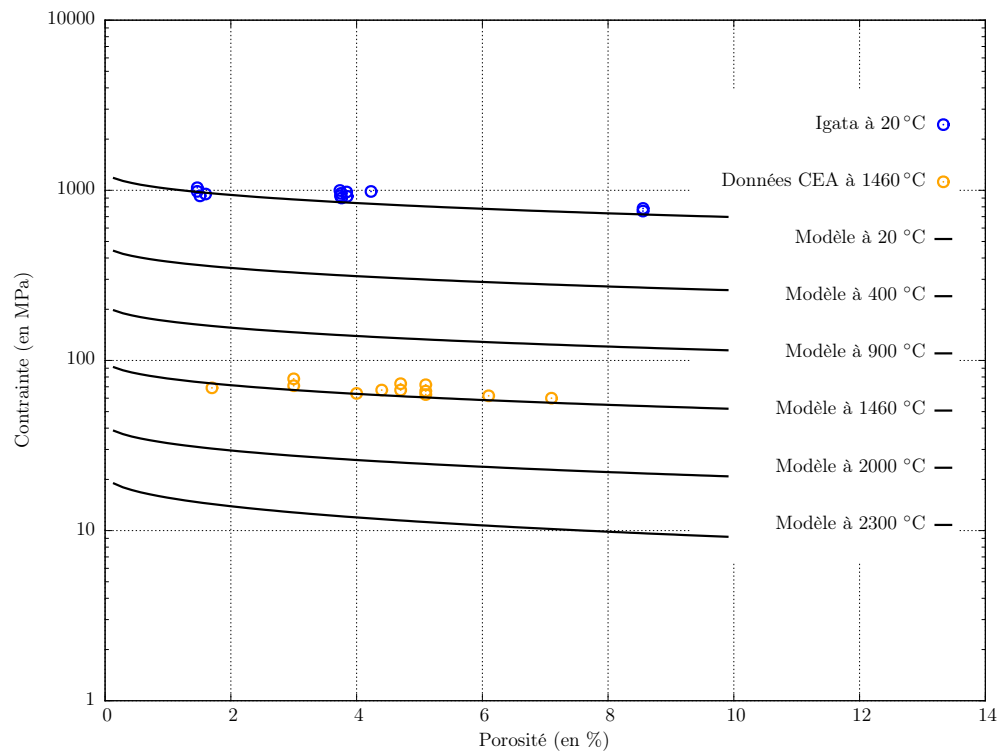


Figure 4.20. – Validation du modèle avec dépendance à la porosité à partir des données d'Igata (**Igata 1973**) et du CEA (**Basini 2001**).

à la température. En effet celle-ci évolue sur 3 ordres de grandeur : la contrainte d'écoulement / rupture à température ambiante est de l'ordre de 1000 MPa. À 2500 °C, elle n'est plus que de quelques MPa. Il est donc important de vérifier la capacité du modèle à rendre compte du comportement de l' $\text{UO}_2$  dans la très large gamme de température vue en RIA.

#### 4.3.4. Modèle de fragmentation des joints de grain

Le modèle défini précédemment permet donc de prendre en compte l'impact de nombreux paramètres sur le comportement mécanique du combustible  $\text{UO}_2$ . Ces paramètres sont les suivants :

- La température,
- La vitesse de sollicitation (ou la contrainte),
- La taille de grain,
- La porosité.

L'évolution de la porosité au cours de la sollicitation est également modélisée. Cependant, dans un essai de compression cette variation de porosité ne peut être que négative. Or, l'étude expérimentale du lot forte densité a montré qu'une augmentation de la porosité de l'échantillon est possible. Les observations microstructurales ont montré que cette augmentation peut être reliée soit à la fissuration macroscopique de l'échantillon, soit à la fragmentation des joints de grain. La fissuration macroscopique en compression étant un sujet très complexe, elle ne sera pas abordée dans ce manuscrit. La modélisation de la fragmentation des joints de grain peut par contre être traitée à l'échelle du Volume Élémentaire Représentatif (VER) et est alors proposée de la façon suivante.

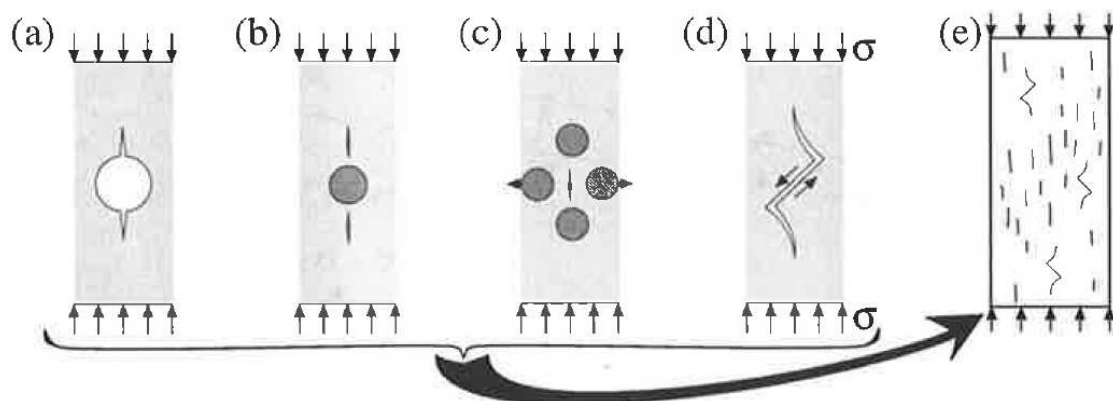


Figure 4.21. – (a)-(d) : Mécanismes de fracturation en compression ; (e) : échantillon avec endommagement réparti causés par ces mécanismes ; issus de **(Bazant 1997)**.

Conformément à Bazant (**BAZANT 1997**), 3 mécanismes à l'échelle microscopiques peuvent conduire à une rupture quasi fragile des matériaux en compression (voir **Figure 4.21**) :

- Des microfissures peuvent se propager à partir de pores comprimés (a),
- Des microfissures peuvent se propager de part et d'autre d'inclusions (b-c),
- Des plans d'interface de cristaux moins résistants peuvent causer la propagation de microfissures (d).

L'ensemble de ces mécanismes conduit à la création de microfissures de longueur caractéristique de l'ordre de la taille des pores, des inclusions ou des grains du matériau. Ils peuvent donc être modélisés par des approches à l'échelle du VER dont la taille caractéristique est très inférieure à la taille caractéristique de la structure (la hauteur de la pastille).

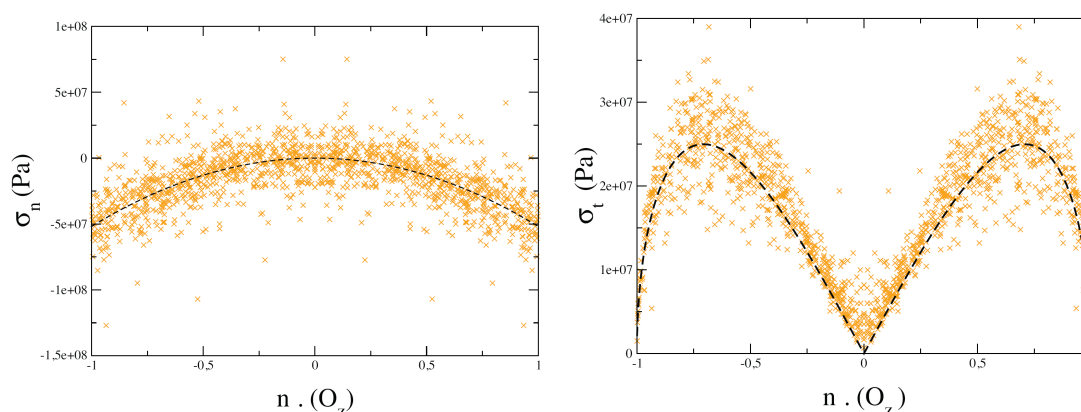
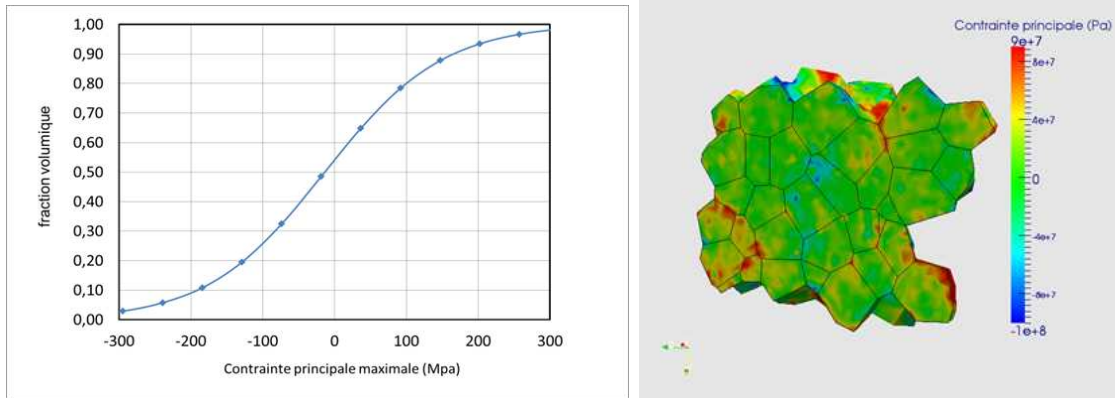


Figure 4.22. – Distribution des contraintes normales et tangentielles aux joints de grain en fonction de leur orientation par rapport à l'axe de compression ; issue de (**Pacull 2011**).

L'étude du lot de référence a montré qu'un excès de porosité aux joints de grain n'induit pas de micro-fissures en compression mais qu'au contraire, la porosité participait à l'accommodation de la déformation. La fragmentation des joints de grain observée dans les essais sur le lot forte densité (voir **Figure 4.14**) est relativement homogène, sans orientation préférentielle par rapport à la sollicitation. La relation entre l'orientation des joints de grain et le développement de microfissures a été étudié par simulation numérique de la compression d'un polycristal d' $\text{UO}_2$  (**PACULL 2011**). Il en est ressorti qu'une incompatibilité de déformation entre grains pouvait conduire à des contraintes de traction et de cisaillement maximales à l'interface des grains orientés à  $0^\circ$ - $45^\circ$  par rapport à l'axe de chargement (voir **Figure 4.22**). D'après ces calculs, il est donc tout à fait possible de microfissurer les joints de grain de l' $\text{UO}_2$  en compression. Plus récemment, Michel et al. (**MICHEL 2014**) ont montré, par

#### 4. Étude du lot forte densité



simulation éléments finis, qu’au sein d’un agrégat polycristallin soumis à un essai de compression, la contrainte principale maximale pouvait dépasser le seuil à rupture en traction et ce dans plus de 20 % de son volume total (voir **Figure 4.23**).

Dans les matériaux quasi-fragiles tels que les bétons, des modèles de plasticité sont souvent utilisés pour modéliser la microfissuration en compression (**FEENSTRA 1996**). Une approche classique consiste à utiliser un critère de Drucker -Prager avec plasticité associée pour la prise en compte d’une dépendance du comportement à la pression hydrostatique et de l’augmentation de volume qui en découle. Une telle approche a déjà été utilisée dans la modélisation des métaux, des plastiques et des sols (**DRUCKER 1973 ; DRUCKER 2013 ; COUSSY 1995**). Jiang et Weng (**JIANG 2004**) ont également décrit la plasticité des joints de grain de céramiques à grains nano-métriques à l’aide de ce critère.

Afin de décrire la fragmentation des joints de grain à l’échelle du VER, nous proposons le critère de plasticité de Drucker-Prager sous la forme suivante :

$$g(\boldsymbol{\sigma}) = h \sigma_m + \sigma_{eq} - R \leq 0 \quad (4.14)$$

où  $h$  et  $R$  sont des paramètres matériau positifs

Le critère (voir **Équation 4.14**) dépend du premier et du deuxième invariant du tenseur des contraintes. L’écoulement plastique associé à ce critère s’écrit :

$$\begin{cases} \dot{\epsilon}^p = \dot{\lambda} \frac{\partial g(\sigma)}{\partial \sigma} & \text{si } g(\sigma) = 0 \\ \dot{\epsilon}^p = 0 & \text{si } g(\sigma) < 0 \end{cases} \quad (4.15)$$

$\dot{\epsilon}^p$  Tenseur des déformations plastiques

$\dot{\lambda} \geq 0$  Multiplicateur plastique défini par la condition  $\dot{\lambda} g(\sigma) = 0$

Par analogie avec le modèle de viscoplasticité, la variation de porosité associée au critère de plasticité est donc donnée par :

$$\dot{f} = (1 - f) \dot{\epsilon}^p : \mathbf{1} = (1 - f) h \geq 0 \quad (4.16)$$

Dans les sols, l'augmentation de volume associée est usuellement désignée par porosité plastique (**COUSSY 1995**). Il est à noter que la variation de porosité plastique est ici toujours positive afin de rendre compte de la dilatation associée à la fragmentation des joints de grain.

#### 4.3.5. Identification des paramètres plastiques

La détermination des paramètres  $h$  et  $R$  du critère de Drucker-Prager se fait en considérant successivement le cas d'un essai de traction uniaxiale et de compression uniaxiale.

Dans le cas d'une traction uniaxiale, le tenseur des contraintes ne comporte qu'une composante non nulle  $\sigma_{zz} = \sigma_t$  avec  $\sigma_t > 0$  la contrainte de traction pour laquelle la fragmentation des joints de grain se produit. Dans ce cas,  $\sigma_m = \frac{1}{3} \sigma_t$  et  $\sigma_{eq} = \sigma_t$ . Le critère est atteint lorsque :

$$g(\sigma) = h \sigma_m + \sigma_{eq} - R = 0 \quad \Rightarrow \quad \frac{h}{3} \sigma_t + \sigma_t - R = 0 \quad (4.17)$$

Dans le cas d'une compression uniaxiale, le tenseur des contraintes ne comporte qu'une composante non nulle  $\sigma_{zz} = -\sigma_c$  avec  $\sigma_c > 0$  la contrainte de compression pour laquelle la fragmentation des joints de grain se produit. Dans ce cas,  $\sigma_m = -\frac{1}{3} \sigma_c$  et  $\sigma_{eq} = \sigma_c$ . Le critère est atteint lorsque :

$$g(\sigma) = h \sigma_m + \sigma_{eq} - R = 0 \quad \Rightarrow \quad -\frac{h}{3} \sigma_c + \sigma_c - R = 0 \quad (4.18)$$

En posant  $\tau = \frac{\sigma_t}{\sigma_c}$  et en combinant les Équations 4.17 et 4.18,  $h$  et  $R$  sont donnés par :

$$\begin{cases} h = \frac{3(1-\tau)}{\tau+1} \\ R = \sigma_c \frac{2\tau}{\tau+1} \end{cases} \quad (4.19)$$

Dans les essais de flexion de Canon (**CANON 1971**), la rupture des échantillons est fragile et intragranulaire jusqu'à une température dite de transition. Au delà de cette dernière, la rupture devient ductile et caractérisée par une fragmentation des joints de grain. La température de transition dépend de la vitesse de déformation et vaut environ 1600 °C à  $10^{-3}$  /s. La contrainte de rupture associée est alors d'environ 100 MPa. Les essais de Canon montrent donc que la fragmentation des joints de grain peut se produire en traction-flexion et être également associée à un critère en contrainte-température. La détermination du rapport  $\tau = \frac{\sigma_t}{\sigma_c}$  (seuil de fragmentation des joints en traction et en compression) demanderait une étude expérimentale dédiée. Dans la suite, nous ferons l'hypothèse que la fragmentation des joints de grain apparaît plus facilement en traction qu'en compression. Une valeur de  $\tau = 0,9$  sera utilisée. Cette valeur donne  $h = 0,15$  ce qui équivaut à une dilatation de 0,15 % pour 1 % de déformation plastique axiale. Le modèle est alors complètement défini par la seule connaissance de  $\sigma_c$ , la contrainte en compression pour laquelle la fragmentation des joints de grain est amorcée. Comme vu précédemment, seul le centre des échantillons testés à  $10^{-1}$  /s et 1550 °C ou 1700 °C a microfissuré. Une analyse par éléments finis de l'état de contrainte du centre des échantillons ayant présenté ce genre de dommage est donc nécessaire. Cette analyse, détaillée plus loin, a permis de définir  $\sigma_c$  de la façon suivante :

$$\sigma_c(T) = \exp(4 \cdot 10^{-7} T^2 - 2,55 \cdot 10^{-3} T + 8) \quad (\text{en MPa}) \quad (4.20)$$

avec  $T$  la température en K.

#### 4.3.6. Implémentation numérique

L'implémentation numérique du modèle avec dépendance à la porosité se fait en se basant sur celle du modèle initial dans lequel le calcul de  $\alpha(f)$  et  $\beta(f)$  est modifié suivant :

$$\begin{cases} \beta(f) = B(f) \\ \alpha(f) = \frac{9}{4} A(f) \end{cases} \Rightarrow \begin{cases} \beta(f) = \frac{B(f) + 20 A(f)}{B(f)} \\ \alpha(f) = \frac{9A(f)}{4B(f)} \beta(f) \end{cases} \quad (4.21)$$



En ce qui concerne le modèle avec dépendance à la porosité et fragmentation des joints de grain, les déformations plastiques associées sont ajoutées de façon additive aux déformations totales.

$$\boldsymbol{\sigma} = 2\mu \boldsymbol{\varepsilon}^{el} + \lambda \text{tr}(\boldsymbol{\varepsilon}^{el}) \mathbf{1} \quad (4.22)$$

$\boldsymbol{\varepsilon}^{el} = \boldsymbol{\varepsilon} - \boldsymbol{\varepsilon}^{vp} - \boldsymbol{\varepsilon}^p$	tenseur de déformation élastique,
$\boldsymbol{\varepsilon}$	tenseur de déformation totale,
$\mu = \frac{E}{2(1+\nu)}$	module de cisaillement,
$\lambda = \frac{E\nu}{(1+\nu)(1-2\nu)}$	premier coefficient de Lamé,
$E$	module d'Young,
$\nu$	coefficient de Poisson.

Le système implicite (voir **Équation 3.21**) devient :

$$\left\{ \begin{array}{l} f_{\varepsilon^{el}} = \Delta \boldsymbol{\varepsilon}^{el} + \Delta p d \mathbf{n} + \frac{1}{3} \Delta p v \mathbf{1} + \Delta p l \left( \frac{h}{3} \mathbf{1} + \mathbf{n} \right) - \Delta \boldsymbol{\varepsilon} = 0 \\ f_{pd} = \Delta p d - \frac{\partial \Psi}{\partial \sigma_{eq}} \Delta t = 0 \\ f_{pv} = \Delta p v - \frac{\partial \Psi}{\partial \sigma_m} \Delta t = 0 \\ f_{pl} = g = 0 \quad \text{si} \quad g \geq 0 \\ f_f = \Delta f (1 - \theta (\Delta p v + h \Delta p l)) - (1 - f) (\Delta p v + h \Delta p l) = 0 \end{array} \right. \quad (4.23)$$

$\Delta \boldsymbol{\varepsilon}^{vp} = \Delta p d \mathbf{n} + \frac{1}{3} \Delta p v \mathbf{1}$	incrément du tenseur des déformations viscoplastiques,
$\Delta p d$	incrément déviatorique de la déformation viscoplastique,
$\Delta p v$	incrément hydrostatique de la déformation viscoplastique,
$\Delta \boldsymbol{\varepsilon}^p = \Delta p l \left( \frac{h}{3} \mathbf{1} + \mathbf{n} \right)$	incrément du tenseur des déformations plastiques,
$\Delta p l$	incrément de déformation plastique,
$\mathbf{n} = \frac{3\mathbf{s}}{2\sigma_{eq}}$	normale à la surface de charge évaluée à l'instant $t + \theta \Delta t$ ,

Les termes non nuls de la matrice jacobienne associée sont de la forme suivante (voir **Équation 3.24**) :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial f_{\varepsilon^{el}}}{\partial \Delta \varepsilon^{el}} = \mathbf{1} - (\Delta p d + \Delta p l) \frac{\partial \mathbf{n}}{\partial \boldsymbol{\sigma}} = \mathbf{1} - \frac{2 \mu \theta (\Delta p d + \Delta p l)}{\sigma_{eq}} (\mathbf{M} - \mathbf{n} \otimes \mathbf{n}) \\ \frac{\partial f_{\varepsilon^{el}}}{\partial \Delta p d} = \mathbf{n} \\ \frac{\partial f_{\varepsilon^{el}}}{\partial \Delta p v} = \frac{1}{3} \mathbf{1} \\ \frac{\partial f_{\varepsilon^{el}}}{\partial \Delta p l} = \frac{h}{3} \mathbf{1} + \mathbf{n} \\ \frac{\partial f_f}{\partial \Delta f} = 1 + \theta (\Delta p v + h \Delta p l) \\ \frac{\partial f_f}{\partial \Delta p v} = f - 1 \\ \frac{\partial f_f}{\partial \Delta p l} = (f - 1) h \\ \frac{\partial f_{pd}}{\partial \Delta \varepsilon^{el}} = -\theta \Delta t \left( 2\mu \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \sigma_{eq}^2} \mathbf{n} + K \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \sigma_{eq} \partial \sigma_m} \mathbf{1} \right) \\ \frac{\partial f_{pv}}{\partial \Delta \varepsilon^{el}} = -\theta \Delta t \left( \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \sigma_m^2} K \mathbf{1} + 2\mu \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \sigma_{eq} \partial \sigma_m} \mathbf{n} \right) \\ \frac{\partial f_{pl}}{\partial \Delta \varepsilon^{el}} = \theta (h K \mathbf{1} + 2 \mu \mathbf{n}) \end{array} \right. \quad (4.24)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{M} &= \frac{3}{2} \left( \mathbf{1} - \frac{1}{3} \mathbf{1} \otimes \mathbf{1} \right) && \text{tenseur identité d'ordre 4,} \\ K &= \lambda + \frac{2}{3} \mu && \text{propriété du matériau.} \end{aligned}$$

## 4.4. Simulation

### 4.4.1. Maillage et conditions aux limites

La simulation des essais expérimentaux du lot forte densité est faite en reprenant le maillage et les conditions aux limites du chapitre précédent, rappelés ci-dessous.

Une modélisation axisymétrique d'une moitié de pastille est considérée. Le maillage utilisé est quadratique et les conditions aux limites appliquées sont un blocage des déplacements axiaux (selon  $z$ ) de la surface inférieure de la pastille ainsi qu'un blocage des déplacements radiaux des surfaces inférieure et supérieure afin de simuler le frottement avec les cales martyres qui ne sont donc pas directement représentées. Le chargement consiste en un déplacement axial imposé de la surface supérieure (voir **Figure 4.24**). L'effet de structure, quant

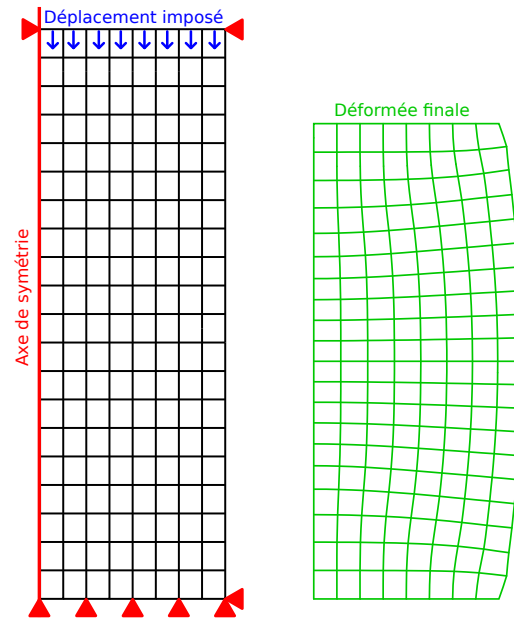


Figure 4.24. – Maillage, conditions aux limites et chargement utilisés dans les simulations.

à lui, est pris en compte par l'utilisation du schéma de résolution en grands déplacements de CAST3M (CAST3M 2010). Afin de faciliter la comparaison calcul mesure des déplacements finaux, la hauteur de la pastille en fin de simulation de laquelle est retirée la dilatation thermique est imposée identique à la hauteur mesurée à froid après essai.

Le module d'Young (voir **Équation 4.25**) et le coefficient de Poisson (voir **Équation 4.26**) considérés dans les simulations sont tirés de l'étude de Martin et al. (MARTIN 1989). La porosité initiale utilisée correspond à la moyenne des porosités initiales des échantillons mesurées par pesée hydrostatique ( $f_0 = 1,9 \%$ ).

$$E(f, T) = (1 - 2,5 f) \left( 226,93 - 1,539 9 \cdot 10^{-2} T - 9,597 \cdot 10^{-6} T^2 \right) \quad (4.25)$$

$$\nu = 0,3 \quad (4.26)$$

$E$  module d'Young (en GPa),

$f$  porosité,

$T$  température (en K).

#### 4.4.2. Identification de $\sigma_c(T)$

Les résultats ci-après (voir **Figure 4.25**) sont issus d'une simulation de l'essai à 1550 °C et  $10^{-1}$  /s n'utilisant que le modèle avec dépendance à la porosité, c'est à dire sans la fragmentation des joints de grain. Elle a pour but d'analyser l'état de contrainte au centre des pastilles et ainsi ajuster la valeur de  $\sigma_c$  (seuil de fragmentation en compression).

À partir des résultats de simulation, il est possible de déterminer un  $\sigma_c$  apparent ( $\sigma_c^a$ ) en faisant l'hypothèse que le critère de plasticité est atteint et en inversant l'**Équation 4.14**. Cette manipulation donne :

$$\sigma_c^a = \frac{1 + \tau}{2 \tau} (\sigma_{eq} + h \sigma_m) \quad (4.27)$$

La visualisation des contraintes et des déformations de la simulation de l'essai à 1550 °C et  $10^{-1}$  /s montre une répartition similaire à celle issue de la simulation du lot de référence. Les contraintes axiales ( $\sigma_{zz}$ ) présentent une variation radiale, la périphérie est moins contrainte (−100 MPa) que le centre (−120 MPa). La distribution des contraintes circonférentielles est différente. Les parties supérieure et inférieure de la pastille sont principalement en compression en raison du fretage. À mi-hauteur, la périphérie de la pastille est étonnamment en traction (17 MPa). Ces contraintes de traction circonférentielles sont dues là encore à une densification non uniforme. En conséquence, des contraintes de traction circonférentielle apparaissent sur la surface externe.

La répartition des déformations axiales ( $\varepsilon_{zz}$ ) et circonférentielles ( $\varepsilon_{\theta\theta}$ ) confirme que la mise en tonneau de la pastille engendre une forte variabilité des déformations au sein de la pastille. En effet, les déformations aux extrémités de la pastille restent très faibles alors qu'au centre, les déformations axiales et circonférentielles sont, en valeur absolue, élevées : elles atteignent respectivement −17 % et 10 %. Les déformations varient également radialement avec une diminution à l'approche de la périphérie de la pastille.

La variation de porosité est quant à elle plus faible que pour le lot forte densité. Elle diminue au maximum de 0,7 % (comparativement aux 1,5 % de variation pour le lot de référence). Malgré tout, la répartition de la porosité finale est similaire à celle du lot de référence. Aux extrémités de la pastille, la porosité n'a pas évolué au cours de l'essai. Elle est restée la même qu'initialement (1,9 %). La porosité en périphérie a un peu diminué (jusqu'à  $\approx 1,5$  %) et le centre a densifié jusqu'à atteindre une porosité résiduelle de 1,2 %.

Le tracé de la contrainte apparente donnée par l'**Équation 4.27** montre qu'au centre de la pastille  $\sigma_c^a \approx -\sigma_{zz}$ , valeur proche de la contrainte d'écoulement calculée. Les essais ayant mené à une fragmentation des joints de grain au centre de l'échantillon sont ceux effectués à la vitesse la plus élevée ( $10^{-1}$  /s) et aux températures les plus élevées (1700 °C et 1550 °C). En effet, l'essai effectué à la

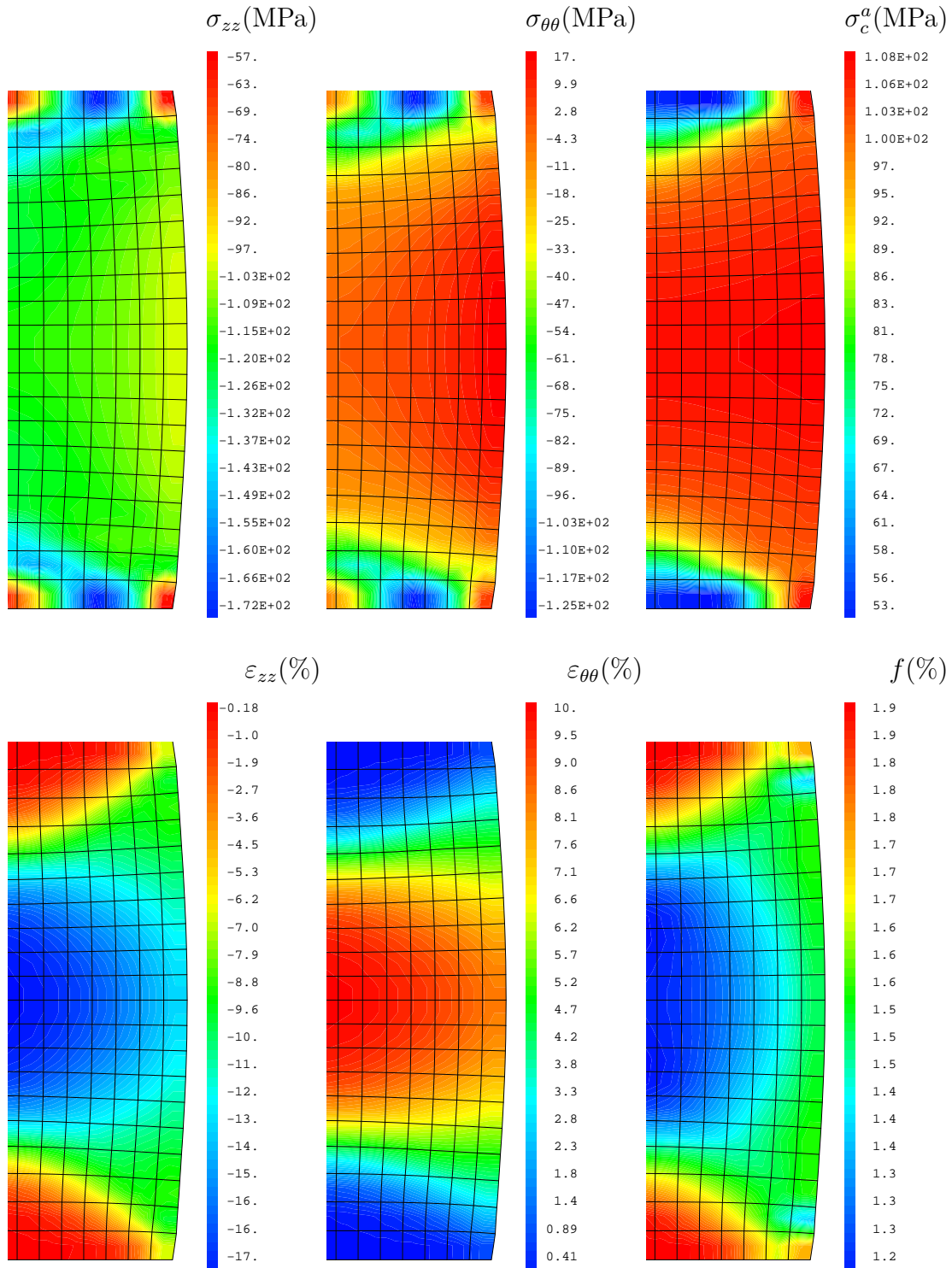


Figure 4.25. – Répartition des contraintes ( $\sigma_{zz}$ ,  $\sigma_{\theta\theta}$  et  $\sigma_c^a$ ), des déformations ( $\varepsilon_{zz}$ ,  $\varepsilon_{\theta\theta}$ ) et de la porosité ( $f$ ) de l'essai à  $1550\text{ }^\circ\text{C } 10^{-1} \text{ /s}$ .

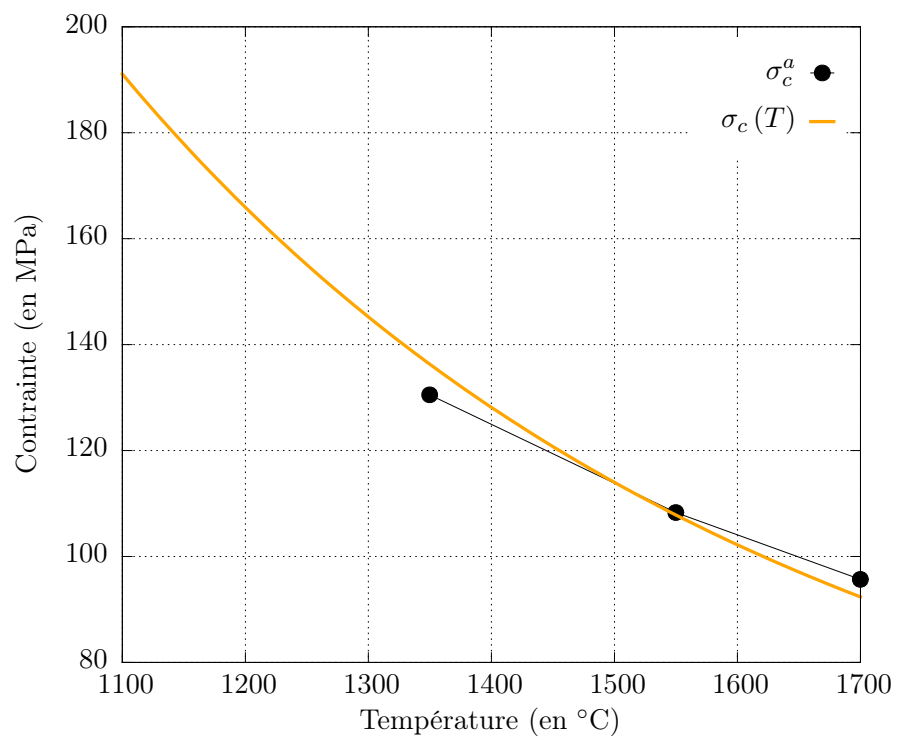


Figure 4.26. – Seuil de fragmentation des joints de grain. Les points noirs sont issus de simulation éléments finis.

même vitesse mais à 1350 °C n'a pas engendré de fragmentation des joints de grain mais une forte fissuration macroscopique. C'est la raison pour laquelle la valeur de  $\sigma_c$  doit être ajustée en fonction de la température pour être atteinte à forte température mais pas forcément à faible température. Ainsi à partir des valeurs de  $\sigma_c^a$  déterminées à l'aide de l'Équation 4.27 dans les simulations des essais à  $10^{-1}$  /s,  $\sigma_c(T)$  peut être définie sous la forme suivante :

$$\sigma_c(T) = \exp(4 \cdot 10^{-7} T^2 - 2,55 \cdot 10^{-3} T + 8) \quad (\text{en MPa}) \quad (4.28)$$

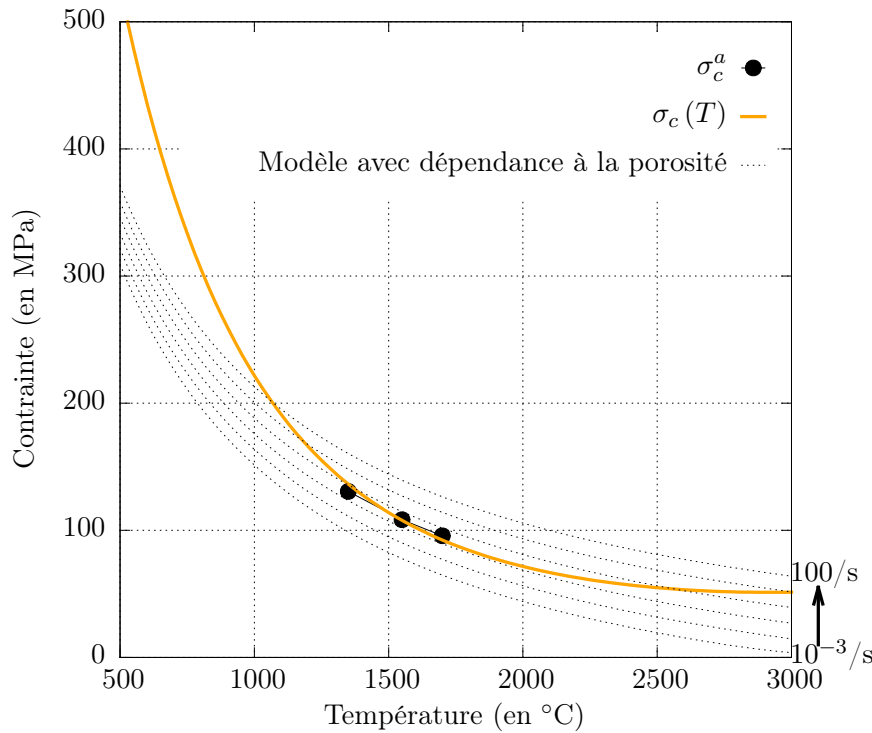


Figure 4.27. – Conditions d'atteinte du seuil de fragmentation des joints de grain. Les courbes en pointillé sont issues d'un calcul numérique 1D.

La comparaison de  $\sigma_c(T)$  ainsi définie (voir Équation 4.28) avec  $\sigma_c^a$  déterminée à partir de l'Équation 4.27 appliquée à l'état de contraintes au centre des échantillons simulés (voir Figure 4.26) montre bien que, pour les températures élevées (1550 °C et 1700 °C), le critère de plasticité sera atteint, ce qui est en bon accord avec les résultats expérimentaux.

À l'aide de la Figure 4.27, il est possible de déterminer les conditions en température et en vitesse de déformation pour lesquelles le critère sera atteint. Il en ressort que quelle que soit la température, le critère n'est jamais atteint tant que la vitesse de déformation ne dépasse pas  $10^{-1}$  /s. Au delà, plus la vitesse augmente et la gamme de température pour laquelle il est atteint s'élargit. À 1 /s,

la zone s'étend de 1500 °C à 2000 °C et à 10 /s, elle s'étend de 1200 °C à 3000 °C. Nous ne disposons pas, à l'heure actuelle, de résultats d'essais permettant de valider cette tendance.

#### 4.4.3. Simulation des essais expérimentaux

La simulation des essais expérimentaux du lot forte densité est maintenant proposée en incluant le modèle de plasticité afin de décrire la fragmentation des joints de grain. Les conditions des simulations sont les mêmes que précédemment.

En accord avec les observations expérimentales, dans les simulations, la plasticité apparaît au centre des échantillons présentant une fragmentation des joints de grain à l'issue des essais. La déformation plastique équivalente ( $pl$ ) atteint la valeur de 4 %. Elle diminue le long du rayon et vaut 2 % en périphérie (voir **Figure 4.28**). Sa variation sur la hauteur est plus marquée, elle décroît et atteint rapidement moins de 1 %. La déformation plastique a l'effet attendu sur la porosité, c'est-à-dire que, contrairement à la simulation précédente (sans le modèle de fragmentation) et aux simulation du lot de référence, la variation de porosité au centre de la pastille devient nulle. Ainsi dans cette zone, la porosité vaut 1,9 % après essai alors que le calcul sans fragmentation conduisait à une valeur de 1,2 %. La densification (diminution de la porosité fermée) est alors compensée par la fragmentation (augmentation de la porosité ouverte).

Par rapport aux résultats de simulation précédents, la répartition des contraintes au sein de l'échantillon reste inchangée. Les déformations, par contre, sont plus piquées au centre de la pastille et atteignent des valeurs plus élevées ( $-18$  % au lieu de  $-17$  % pour  $\varepsilon_{zz}$  et  $11$  % au lieu de  $10$  % pour  $\varepsilon_{\theta\theta}$ ).

La comparaison des diamètres finaux expérimentaux et simulés à l'aide du modèle incluant ou non la fragmentation des joints de grain (voir **Figure 4.29**) montre que la mise en tonneau de la pastille durant l'essai est fidèlement reproduite par le modèle comprenant la fragmentation. Concernant les essais à 1100 °C, les pastilles étant fortement endommagées, les mesures de diamètre ne sont pas très fiables. Dans les 2 essais présentant une fragmentation des joints de grain, le diamètre du centre de la pastille donné par le modèle avec fragmentation est plus important que celui donné par le modèle sans fragmentation. Cette différence traduit l'augmentation de volume du centre de la pastille due à la déformation plastique associée.

La comparaison des courbes contrainte-déformation expérimentales et simulées (voir **Figure 4.30**) montre que le modèle reproduit correctement la dépendance à la température et à la vitesse de déformation. La pente de l'écrouissage apparent augmente lorsque la température diminue ou lorsque la vitesse de déformation augmente ce qui est en accord avec les résultats expérimentaux. À forte contrainte, cet écrouissage apparent n'est pas aussi prononcé que dans les essais expérimentaux. Cette différence peut être due à l'apparition d'un durcis-



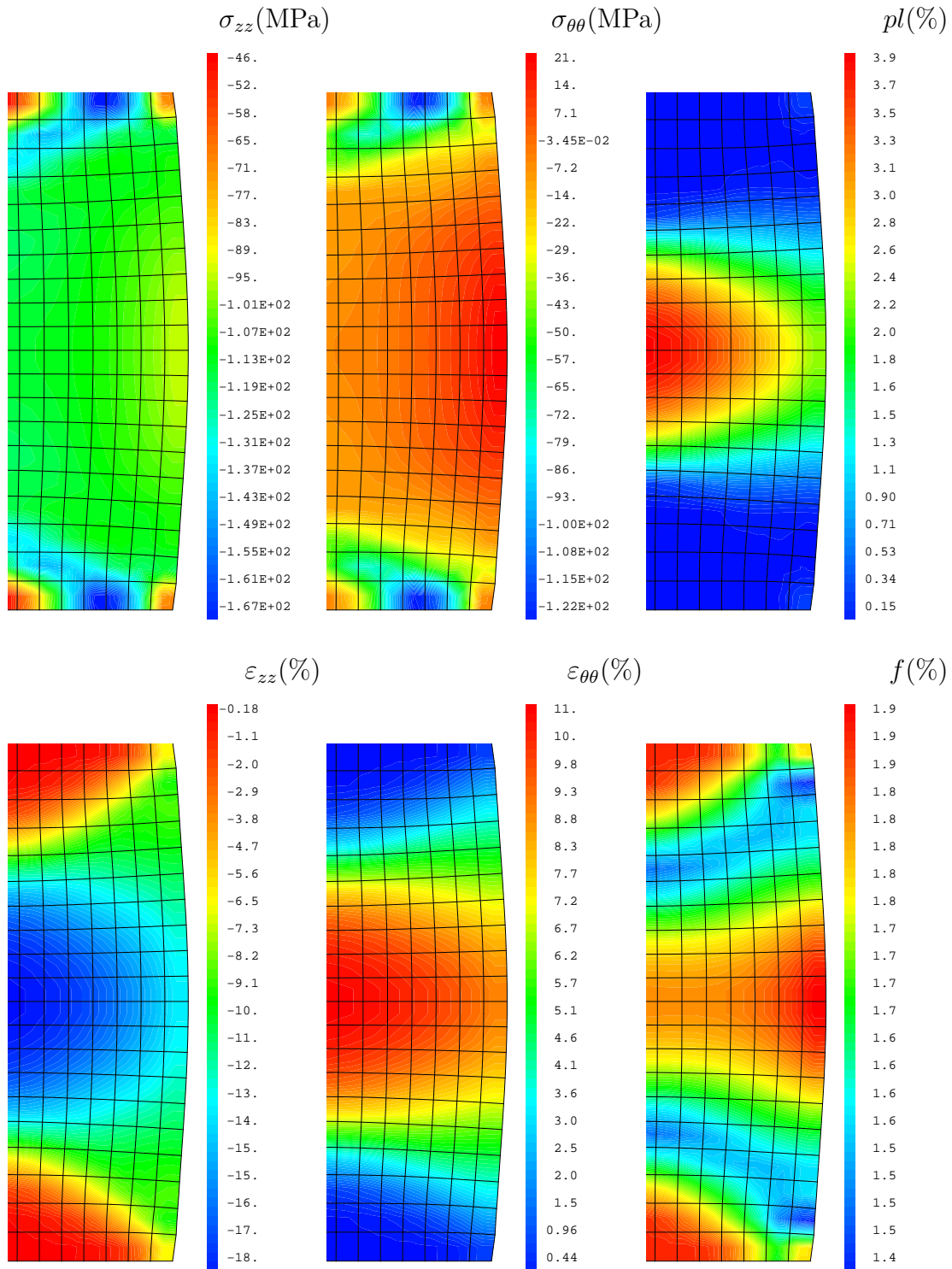


Figure 4.28. – Répartition des contraintes ( $\sigma_{zz}$  et  $\sigma_{\theta\theta}$ ), de la déformation plastique équivalente associée à la fragmentation des joints de grain ( $pl$ ) et des déformations ( $\varepsilon_{zz}$ ,  $\varepsilon_{\theta\theta}$ ) et de la porosité ( $f$ ) de l'essai à 1550 °C  $10^{-1}$  /s.

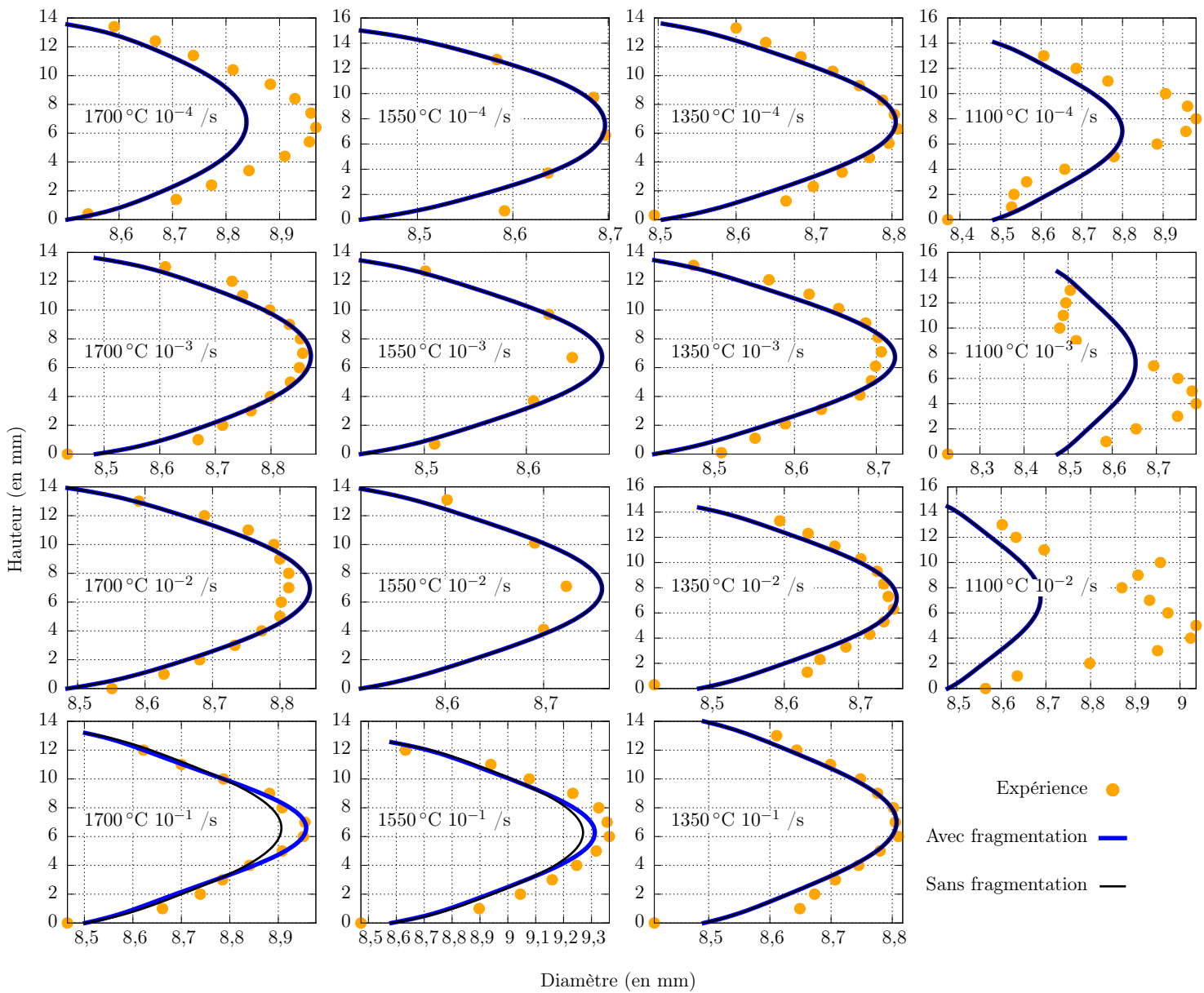


Figure 4.29. – Comparaison simulation expérience des diamètres finaux du lot forte densité.

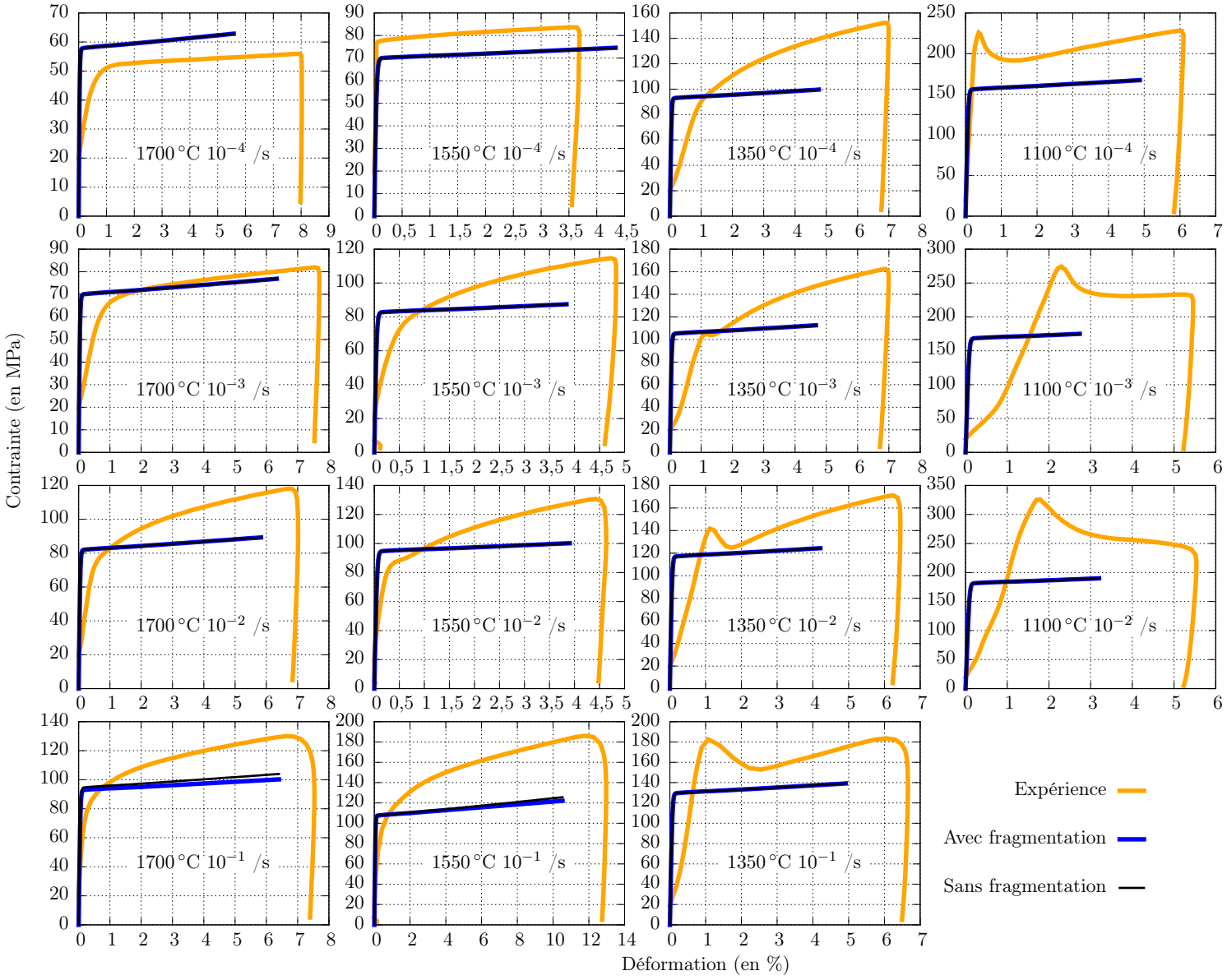


Figure 4.30. – Comparaison simulation expérience des courbes contrainte-déformation du lot forte densité.

#### 4. Étude du lot forte densité

sement plastique. Dans le cadre de notre travail, compte tenu des faibles déformations en RIA, cet écrouissage n'a pas été modélisé. Comme escompté lors de la détermination des paramètres du modèle, les contraintes des essais à 1100 °C sont sous évaluées par le modèle et l'écrouissage apparent qui suit l'est également d'autant plus. Enfin, l'ajout du modèle de fragmentation aux joints de grain n'impacte que très peu les contraintes (voir sur la **Figure 4.30** les courbes à  $10^{-1}$  /s, 1550 °C et 1700 °C).

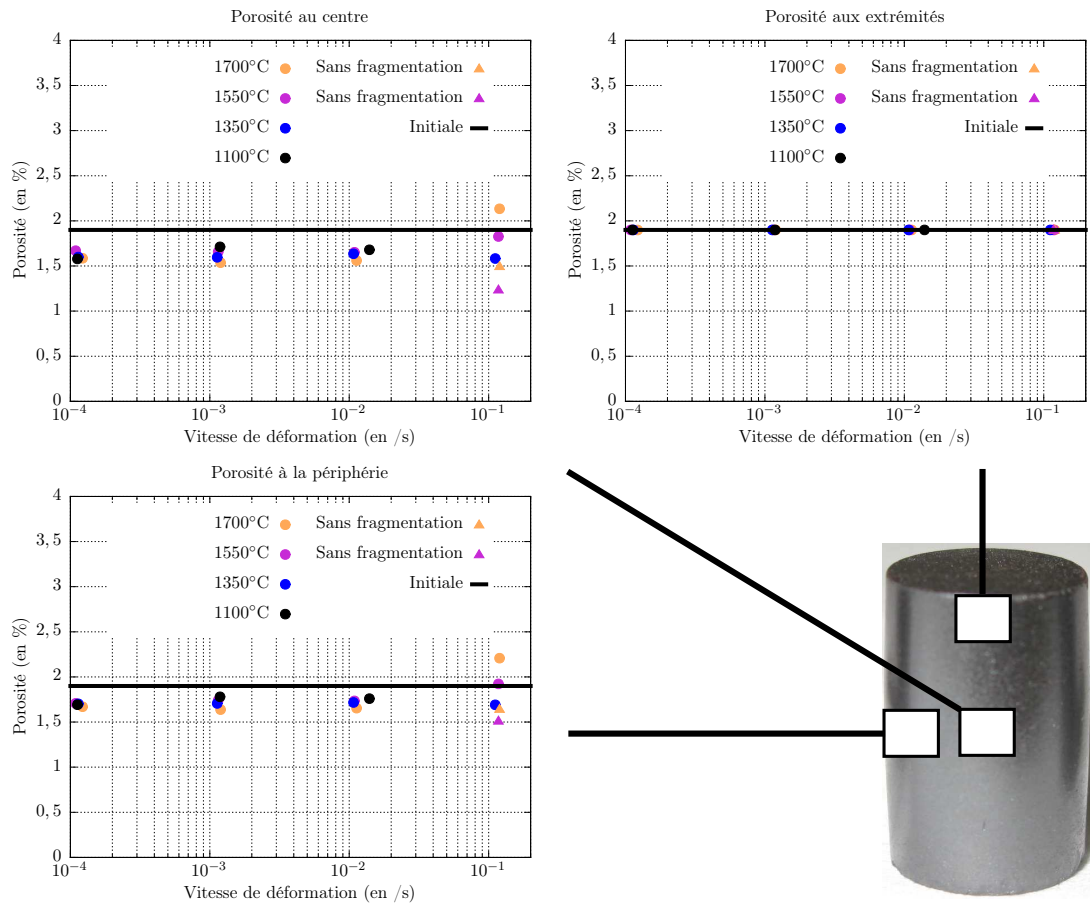


Figure 4.31. – Évolution simulée de la porosité des pastilles du lot forte densité au cours des essais avec et sans prise en compte de la fragmentation des joints de grain.

Contrairement aux résultats de simulation des essais du lot de référence, la porosité simulée pour le lot forte densité n'a que très peu évolué au cours des essais. Un faible densification est visible au centre et à la périphérie des pastilles. Ces résultats sont cohérents avec les observations expérimentales. Concernant les essais pour lesquels le centre des pastilles présentait de la fragmentation des joints de grain ( $10^{-1}$  /s, 1550 °C et 1700 °C), l'utilisation du modèle de fragmentation donne lieu à une augmentation de la porosité au centre et à

la périphérie de la pastille. Ainsi, à 1700 °C, la fragmentation des joints de grain fait passer la porosité au centre d'une valeur de 1,5 % à 2,1 % et en périphérie d'une valeur de 1,6 % à 2,2 %. À 1550 °C, la porosité passe de 1,2 % à 1,8 % et de 1,5 % à 1,9 % respectivement au centre et à la périphérie de la pastille. Bien que l'augmentation calculée de la porosité au centre des pastilles n'atteigne pas les valeurs mesurées expérimentalement (proche de 10 %), la zone de fragmentation et surtout les diamètres après essais sont cohérents avec les mesures. L'augmentation volumique associée à l'écoulement plastique modélisant la fragmentation des joints de grain (0,15 % de dilatation pour 1 % de déformation plastique axiale) peut être considérée comme satisfaisante.

## 4.5. Synthèse

Dans ce chapitre, une caractérisation expérimentale en compression et une modélisation du comportement d'un lot de pastilles d'UO<sub>2</sub> forte densité (98,1 %) sont présentées. Les essais ont été menés à vitesse de déplacement de la traverse imposée et à température constante. La vitesse de déplacement a été imposée à 0,1 mm/min, 1 mm/min, 10 mm/min et 100 mm/min ce qui correspond à des vitesses de déformation de  $10^{-4}$  /s,  $10^{-3}$  /s,  $10^{-2}$  /s et  $10^{-1}$  /s. La température a été imposée à 1100 °C, 1350 °C, 1550 °C et 1700 °C. Les résultats expérimentaux ont montré que la densité initiale du matériau joue un rôle important vis-à-vis de sa réponse à une sollicitation de compression. À l'exception des essais à 1100 °C où une fissuration importante des échantillons a été observée, les observations macroscopiques et microscopiques ne font pas apparaître de variation de volume significative des échantillons. Néanmoins, dans certaines conditions ( $10^{-1}$  /s, 1550 °C et 1700 °C), le centre des pastilles a montré la présence d'une fragmentation des joints de grain importante. Afin de reproduire les différences de comportement entre le lot de référence et le lot forte densité, la dépendance du modèle viscoplastique en  $\sinh$  à la porosité a été amplifiée en modifiant les paramètres définissant la contrainte équivalente. Un écoulement plastique basé sur un critère de type Drucker-Prager avec plasticité associée a été ajouté pour modéliser la fragmentation des joints de grain ainsi que l'augmentation de volume qui en découle. La simulation des essais de compression par éléments finis a conduit à des résultats (en terme de contrainte, déformation axiale et circonférentielle, fragmentation des joints de grain) en bon accord avec les mesures expérimentales.

Les résultats obtenus sur ce lot forte densité ont montré l'impact important de la densité sur la réponse du matériau ainsi que sur le mode d'endommagement par fragmentation des joints de grain présent dans le domaine des sollicitations à forte température et à forte vitesse. Cependant la fissuration macroscopique très présente à faible température et forte vitesse n'a pas été modélisée dans ce travail et pourrait faire l'objet d'un développement futur.

Le modèle proposé dans ce chapitre présente des limitations. La dépendance à la porosité n'est pas entièrement satisfaisante et pourrait être modifiée en faisant directement varier  $\sigma_0$  en fonction de la porosité. Par ailleurs, une différenciation de la nature de la porosité (intra ou inter-granulaire) pourrait faire l'objet d'une étude approfondie. Pour finir, l'augmentation de volume associée à la fragmentation des joints de grain repose sur le choix de  $\tau = 0,9$  et sur l'observation de seulement 2 échantillons. Il pourrait être envisagé de définir un écoulement plastique non associé au critère de Drucker-Prager afin de mieux spécifier l'augmentation de volume induite par la déformation plastique.

Dans le chapitre suivant, afin de permettre son utilisation dans les simulations RIA, le modèle proposé est étoffé par l'ajout de la fissuration macroscopique en traction ainsi que du fluage d'irradiation. Ce nouveau modèle baptisé L3F (pour Loi de Fluage Fragmentation Fissuration) est alors utilisé dans le code de calcul Alcyone-RIA pour simuler les essais REP-Na effectués dans le réacteur expérimental CABRI.

# 5. Modélisation des accidents d'injection de réactivité

## Table des matières

5.1	Introduction	165
5.2	Essais REP-Na	166
5.2.1	Programme d'essais	166
5.2.2	Déformations	168
5.2.3	Fissuration macroscopique	169
5.2.4	Fragmentation des joints de grains	172
5.2.5	Relâchement des gaz de fission	173
5.3	L3F : Loi Fluage Fragmentation Fissuration	174
5.3.1	Fluage d'irradiation	174
5.3.2	Fissuration macroscopique	175
5.3.3	Récapitulatif	178
5.3.4	Implémentation numérique	180
5.3.5	Réponse à un chargement biaxial	183
5.4	Simulation des essais REP-Na	188
5.4.1	Alcyone-RIA	188
5.4.2	Loi de comportement gaine	193
5.4.3	Simulations	194
5.4.4	REP-Na 2	196
5.4.5	REP-Na 3	199
5.4.6	REP-Na 5	200
5.4.7	REP-Na 4	202
5.4.8	Conclusion	202
5.5	Synthèse	207

## 5.1. Introduction

Après une synthèse des résultats expérimentaux des essais du programme CABRI REP-Na, la loi de comportement définie au chapitre précédent est

modifiée (et baptisée loi L3F) pour rendre son utilisation possible dans le code de calcul de crayon combustible Alcyone-RIA. Le fluage d'irradiation est ajouté et la fissuration macroscopique en traction est modélisée. Enfin, des simulations des essais REP-Na sont faites et les résultats sont comparés aux mesures post-pulse. Dans ce chapitre, nous ne nous intéressons qu'aux essais REP-Na effectués sur des crayons de combustible  $\text{UO}_2$  gainés ZY-4. L'objectif de ce travail est de faire ressortir les conditions d'apparition de la fragmentation des joints de grain en réacteur.

## 5.2. Essais REP-Na

### 5.2.1. Programme d'essais

Le programme expérimental CABRI REP-Na a été dédié à l'étude des combustibles des Réacteur à Eau Pressurisé (REP) dans les conditions de transitoire rapide de puissance simulant un accident d'injection de réactivité (Reactivity Initiated Accident : RIA). Issu d'une collaboration entre le Commissariat à l'Énergie Atomique (CEA) et Électricité De France (EDF), ce programme a duré 4 ans et s'est déroulé au sein du réacteur expérimental CABRI (voir **Figure 5.1**).

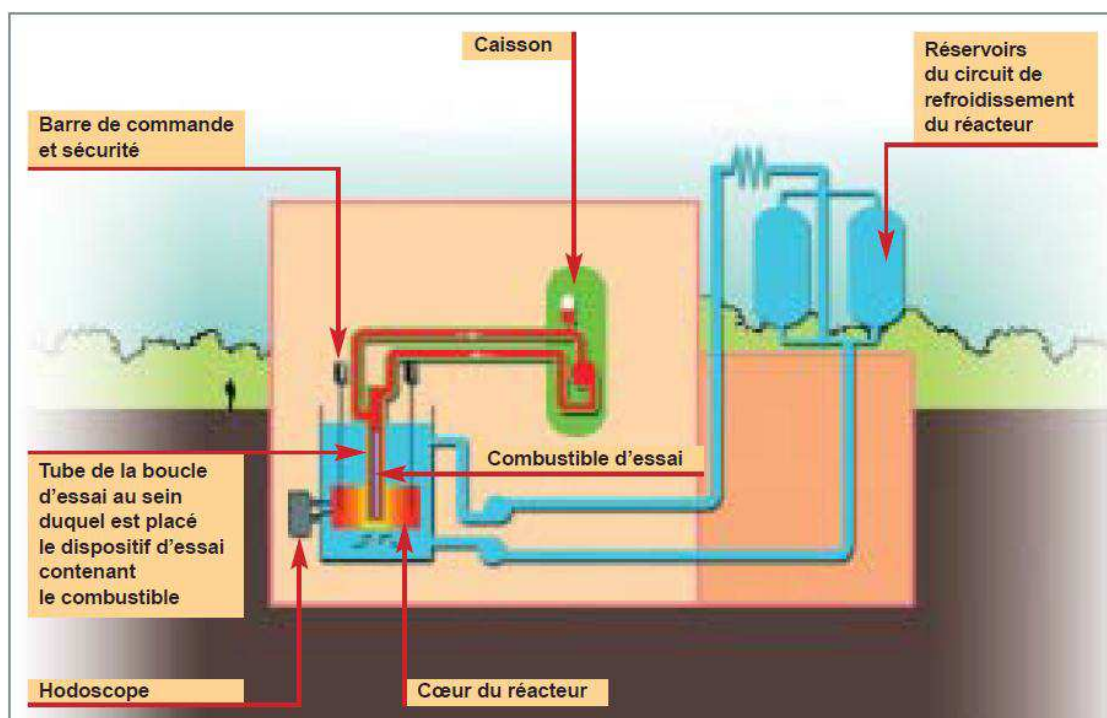


Figure 5.1. – Schéma du réacteur expérimental CABRI.

Le cœur du réacteur CABRI, aux dimensions réduites (65 cm de côté sur 80 cm de haut), est composé de 40 assemblages de crayons combustibles. Le cœur est



équipé, en son centre, d'une cavité verticale permettant de recevoir le dispositif d'essai constitué d'un cylindre en niobium contenant l'échantillon de combustible à tester. Outre les six barres de commande et de sécurité, le réacteur est équipé de quatre barres spécifiques remplies d'hélium 3 sous pression (gaz absorbant les neutrons) qui servent à réaliser, par dépressurisation, un transitoire rapide de puissance. Du fait de l'effet Doppler neutronique, la durée de l'excursion de puissance est limitée à quelques millisecondes. La puissance instantanée, lors du transitoire, peut atteindre 20 000 MW. Le refroidissement de l'échantillon est réalisé par écoulement d'un caloporteur sodium entre le cylindre en niobium et l'échantillon.

Dans le cadre du programme expérimental CABRI REP-Na, les échantillons étaient composés de segments de crayons combustibles pré-irradiés en REP. Ces segments ont ensuite été rebouchés à chaque extrémité et remplis d'hélium à basse pression (0,3 MPa) afin de simuler l'équilibre entre la pression interne du crayon et le caloporteur en fin d'irradiation en réacteur. Les conditions de température et de vitesse d'écoulement du caloporteur (respectivement 280 °C et 4 m/s) sont représentatives d'un arrêt à chaud.

Essai	Taux de combustion (GWj/t)	Enrichissement (%)	RIM (μm)	Énergie pulse (cal/g)	Largeur mi-hauteur (ms)
REP-Na 2	33	6,85	0	211	9,5
REP-Na 3	53	4,5	100	120	9,5
REP-Na 4	62	4,5	200	95	70
REP-Na 5	64,4	4,5	200	105	9,5

Tableau 5.1. – Caractéristiques des crayons et conditions expérimentales des essais REP-Na.

Les caractéristiques des crayons testés ainsi que les conditions expérimentales des essais REP-Na 2 à 5 sont données dans le **Tableau 5.1**. Les paramètres étudiés par le programme CABRI REP-Na sont donc :

- Le taux de combustion <sup>a</sup>, qui varie entre 33 GWj/t (pour comparer avec les études antérieures) et 64,4 GWj/t (qui correspond au taux de combustion ciblé en fin de vie du combustible en réacteur) en passant par 53 GWj/t (qui correspond au maximum autorisé depuis 1990).
- L'énergie déposée, qui varie entre 95 cal/g et 211 cal/g.

a. Énergie thermique produite par les fissions nucléaires par unité de masse de combustible, exprimée en GigaWatts jour par tonne (GWj/t)

- La durée du pulse caractérisée par la largeur à mi-hauteur qui varie entre 9,5 ms et 70 ms.

La comparaison des essais REP-Na 4 et 5 est particulièrement intéressante car seule change réellement la durée du pulse (9,5 ms pour REP-Na 5 contre 70 ms pour REP-Na 4) qui caractérise la vitesse de chargement.

Différentes méthodes de caractérisation destructives et non destructives ont été mises en place pour examiner les échantillons après essai. Les techniques non destructives sont les suivantes :

- Observation visuelle pour vérifier l'intégrité des crayons,
- Profilométrie des diamètres pour mesurer la déformation de la gaine le long de plusieurs génératrices,
- Mesure de l'épaisseur externe de zircône par courant de Foucault,
- Spectroscopie gamma pour déterminer la distribution axiale des produits de fission le long du crayon,
- Détection de défaut dans la gaine par courant de Foucault.

Les techniques destructrices sont les suivantes :

- Perçage du crayon pour mesurer le taux de gaz de fission relâché, le volume libre et la pression finale,
- Microscopie optique pour caractériser le combustible et la gaine,
- Microscopie électronique à balayage pour un examen plus détaillé du combustible,
- Analyse par micro-sonde pour déterminer la composition et la distribution des produits de fission.

### 5.2.2. Déformations

Les mesures des dimensions des crayons après essais apportent de nombreuses informations. Les déformations circonférentielles maximales ont atteint 3,5 %, 2 %, 0,4 % et 1 % respectivement dans les essais REP-Na 2,3,4 et 5 (voir **Tableau 5.2** et **Figure 5.2**), ce qui montre qu'il y a eu une forte interaction pastille gaine durant les essais.

Essai	REP-Na 2	REP-Na 3	REP-Na 4	REP-Na 5
$\varepsilon_{\theta\theta}$	3,5 %	2 %	0,4 %	1 %

Tableau 5.2. – Déformations circonférentielles maximales dans les essais REP-Na.

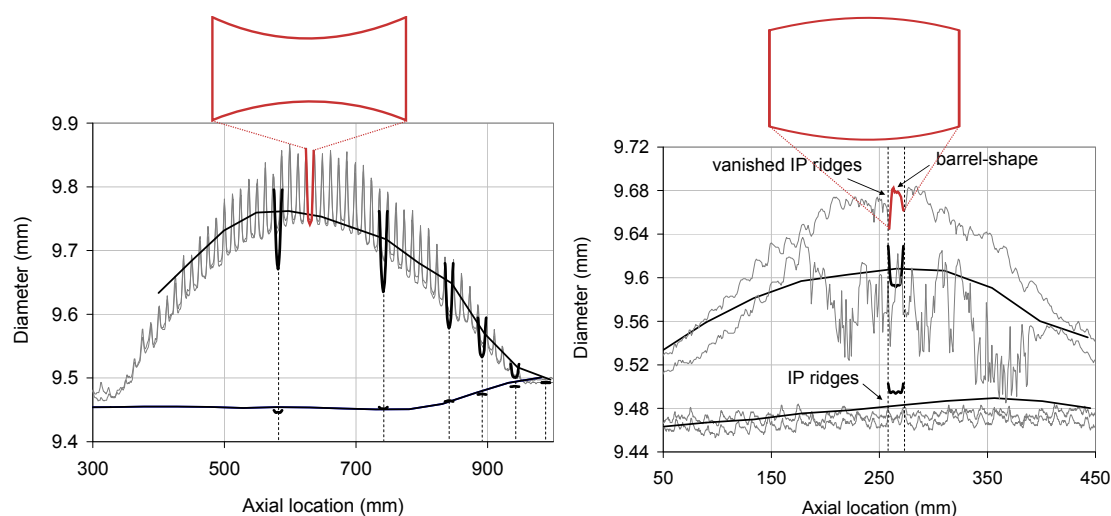


Figure 5.2. – Diamètre résiduel de la gaine mesurés (en gris) et calculés (en noir) ainsi qu'une représentation schématique de la forme des pastilles après l'essai de REP-Na 2 à gauche et REP-Na 3 à droite ; Figures issues de **(Sercombe 2010)**.

Concernant la forme prise par l'échantillon, différents comportements apparaissent. Dans les essais REP-Na 2 et 4, la déformée en diabolo de chaque pastille a été imprimée dans la gaine conduisant à des plis de  $110\ \mu\text{m}$  pour REP-Na 2 à comparer aux  $20\ \mu\text{m}$  atteints par REP-Na 4 et plus généralement après irradiation en réacteur (la forme générale d'une gaine après irradiation est proche de celle d'un bambou avec une succession régulière de bosses à chaque inter-pastille). Dans le cas des essais REP-Na 3 et 5, les déformées des pastilles en forme de tonneau ont également été imprimées dans la gaine. Il s'en suit une déformée avec une succession de tonneau et de diabolo au milieu de la colonne fissile. L'observation des micrographies de coupes axiales des crayons REP-Na met en évidence le lien entre l'énergie déposée et la déformation des pastilles par fluage thermique (voir **Figure 5.4**). En effet, à l'issue de l'essai REP-Na 2 dont l'énergie était maximale ( $211\ \text{cal/g}$ ), les évidements aux inter-pastilles sont complètement remplis alors qu'après les autres essais où l'énergie ne dépassait pas  $120\ \text{cal/g}$ , les évidements sont toujours apparents.

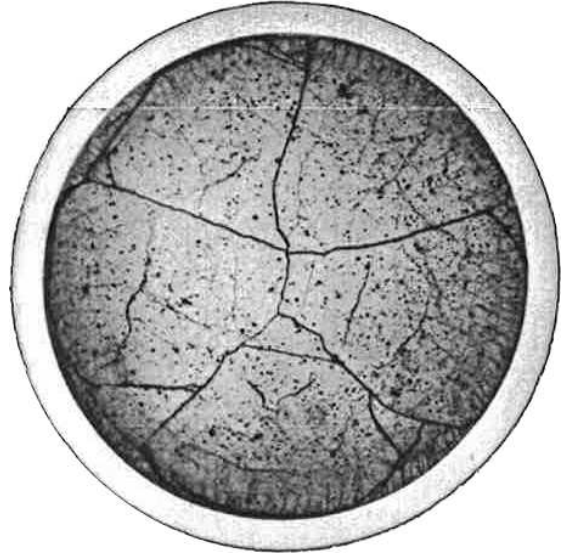
### 5.2.3. Fissuration macroscopique

Les macrographies des coupes axiales et radiales font apparaître les réseaux de fissures macroscopiques présents dans le combustible des crayons testés (voir **Figure 5.3 et 5.4**). Dans le cas de REP-Na 3, 4 et 5, les fissures peuvent être divisées en 2 catégories : les fissures radiales principales traversant la pastille de part en part, attribuées à l'irradiation en réacteur, et le réseau de nombreuses petites fissures radiales partant de la périphérie de la pastille. Concernant REP-

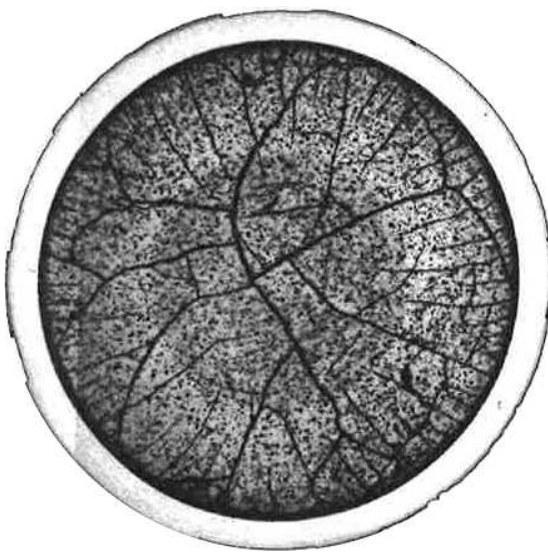
REP-Na 2



REP-Na 3



REP-Na 4

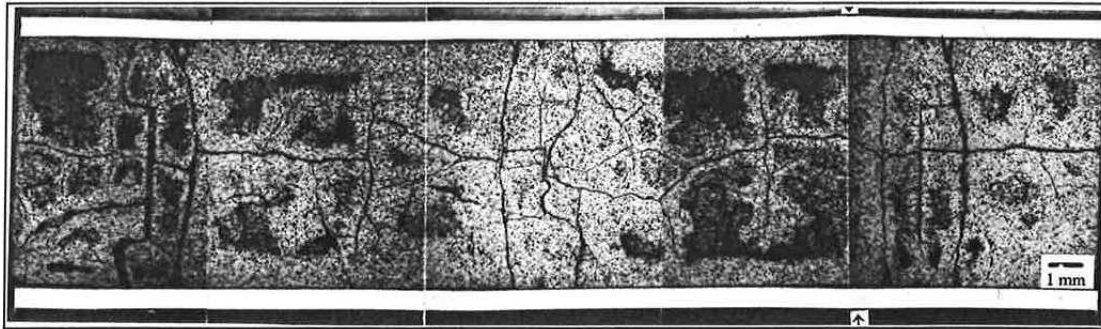


REP-Na 5

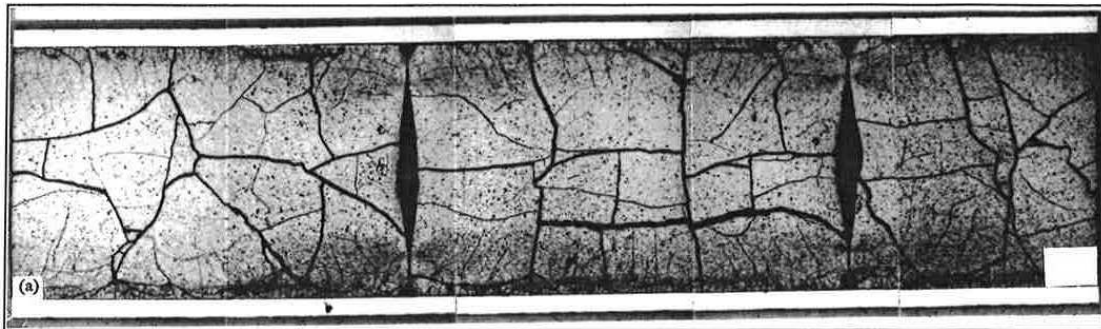


Figure 5.3. – Macropgraphies de coupes radiales des essais REP-Na issus de **(Lespiaux 1997)**.

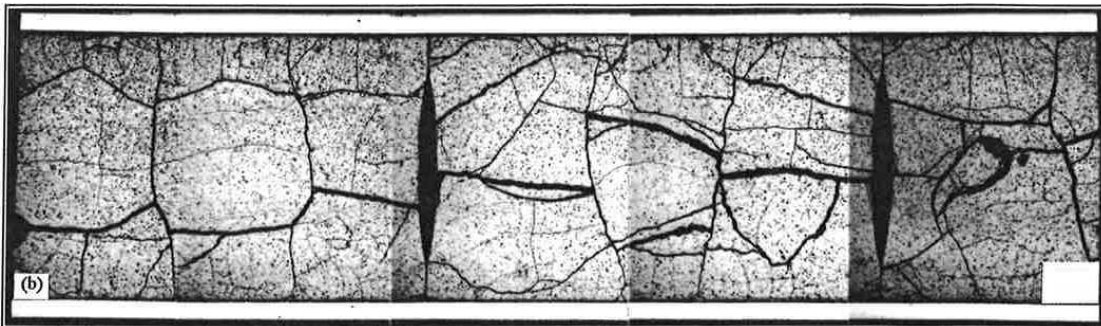
REP-Na 2



REP-Na 3



REP-Na 4



REP-Na 5

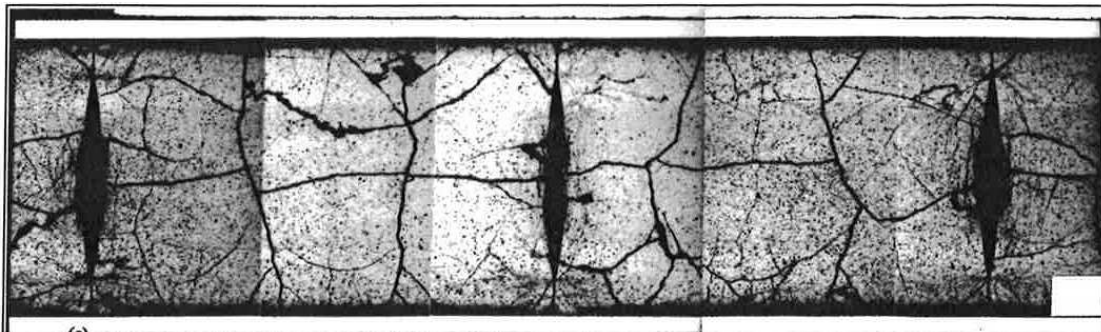


Figure 5.4. – Macropgraphies de coupes axiales des essais REP-Na issus de **(Lespiaux 1997)**.

Na 2, seules les fissures principales sont présentes et le réseau de petites fissures est remplacé par une couronne (située à 85 % du diamètre de la pastille) où une fragmentation des joints de grains prononcée est observée.

#### 5.2.4. Fragmentation des joints de grains

Dans la majorité des essais REP-Na, une zone de fragmentation des joints de grains est observée (voir **Figure 5.5**).

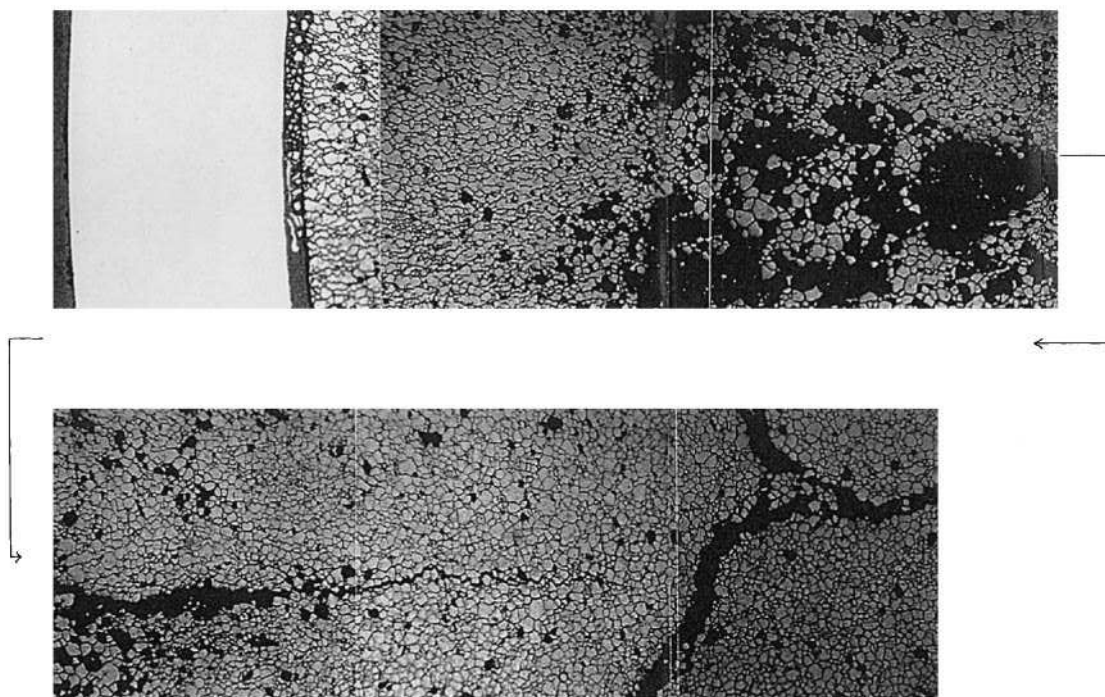


Figure 5.5. – Fragmentation des joints de grains de l'essai REP-Na 2 issu de **(Schmitz 1999)**.

Cette fragmentation est habituellement attribuée à l'accumulation de bulles de gaz de fission aux joints de grains sous l'effet de l'irradiation (**LEMOINE 1997**). Lorsque le jeu pastille-gaine est fermé, la rapide montée en température lors du transitoire conduit à une augmentation de la pression dans les bulles de gaz ce qui serait à l'origine de la fragmentation des joints de grains. Pendant le refroidissement, la réouverture du jeu pastille-gaine crée un volume libre supplémentaire permettant aux joints de grains de s'ouvrir. Ce phénomène de pressurisation-fragmentation des gaz est particulièrement important dans les combustibles à fort taux de combustion du fait de la quantité plus importante de gaz de fission aux joints de grain et peut contribuer, en cas de rupture de la gaine, à la dispersion du combustible dans le circuit primaire.

Dans le cas des essais REP-Na, l'hypothèse du mécanisme de pressurisation des bulles aux joints de grain n'est pas suffisante pour expliquer l'ensemble des

observations post-essais. L'essai REP-Na 4 ne comporte pas de fragmentation des joints de grains alors même que son combustible a été fortement irradié (taux de combustion de 62 GWj/t) et contient donc beaucoup de gaz aux joints de grain. Inversement, elle apparaît durant l'essai REP-Na 2 (voir **Figure 5.5**) alors que le combustible utilisé pour cet essai a un faible taux de combustion (33 GWj/t) et donc peu de gaz de fission aux joints de grain. Dans l'essai REP-Na 2, la fragmentation des joints de grains est de plus observée sur l'ensemble du rayon pastille alors que dans les essais REP-Na 3 et 5 elle apparaît seulement à la périphérie et pas du tout dans REP-Na 4.

La pressurisation des bulles de gaz ne peut donc pas, à elle seule, expliquer la fragmentation des joints de grains dans les essais REP-Na. C'est pourquoi nous avons cherché dans ce travail à mettre en place un critère de fragmentation à l'échelle macroscopique (voir le chapitre précédent) plutôt que de relier le phénomène à une surpression à l'échelle des grains.

### 5.2.5. Relâchement des gaz de fission

Le taux de relâchement de gaz de fission est mesuré après essais par perçage des crayons. Les résultats (voir **Tableau 5.3**) montrent qu'au cours d'un RIA, le relâchement de gaz de fission est très important. Il atteint 15 % des gaz de fission présents avant pulse dans le crayon de l'essai REP-Na 5.

Essai	REP-Na 2	REP-Na 3	REP-Na 4	REP-Na 5
GFR	6 %	14 %	8,5 %	15 %

Tableau 5.3. – Gaz de Fission Relâchés (GFR) dans les essais REP-Na.

Le relâchement des gaz de fission est parfois, et à tort, seulement relié à la fissuration macroscopique en faisant l'hypothèse que plus le combustible présente de fissures macroscopiques et plus le relâchement de gaz de fission est important. La comparaison de l'état de fissuration du combustible après les essais REP-Na 4 et REP-Na 5 nous montre que le relâchement de gaz de fission n'est pas dû à la fissuration macroscopique. En effet, à l'issue de ces essais, le combustible de l'essai REP-Na 4 présente une densité de fissures macroscopiques plus importante que celui de l'essai REP-Na 5 (voir **Figure 5.6**) alors qu'inversement, le relâchement des gaz de fission a été 2 fois plus important durant l'essai REP-Na 5 que durant l'essai REP-Na 4 (15 % contre 8,5 %). La fissuration macroscopique ne peut donc pas être à l'origine des différences de relâchement gazeux entre les essais REP-Na 4 et REP-Na 5.

Ce relâchement important peut être relié à 2 facteurs qui sont le taux de combustion (la quantité de gaz de fission est environ proportionnelle à ce dernier) et la fragmentation des joints de grains. Les essais REP-Na 3 et

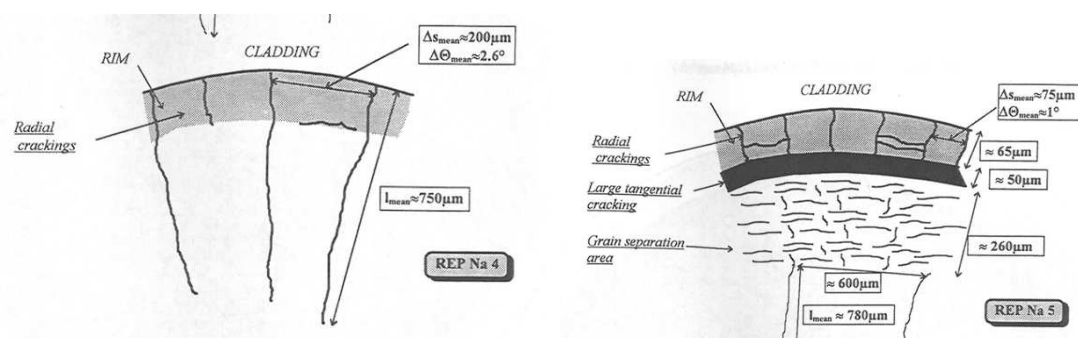


Figure 5.6. – Représentations schématiques de l'endommagement après les essais REP-Na 4 (à gauche) et REP-Na 5 (à droite).

5 présentent le plus fort relâchement de gaz alors que l'essai REP-Na 4 en présente 2 fois moins et REP-Na 2 encore un peu moins. Ces différences peuvent s'expliquer par le fait, qu'au sein du combustible des essais REP-Na 3 et 5, les joints de grains ont fragmenté sur une large zone en périphérie, relâchant ainsi tout le gaz qu'ils contiennent. Le combustible de l'essai REP-Na 4 ne présente lui pas de fragmentation des joints de grains ce qui n'a pas conduit à la libération des gaz, pourtant en quantité importante (fort taux de combustion). Le faible taux de combustion du crayon testé lors de l'essai REP-Na 2 (peu de gaz de fission aux joints de grain) est à l'origine du faible relâchement observé (6 %), ceci malgré une fragmentation des joints de grain sur quasiment tout le rayon de la pastille.

### 5.3. L3F : Loi Fluage Fragmentation Fissuration

Afin de rendre le modèle de fluage thermique-fragmentation utilisable dans le code combustible ALCYONE, il est nécessaire d'ajouter 2 autres phénomènes présents en réacteur :

- le fluage d'irradiation,
- la fissuration macroscopique en traction.

#### 5.3.1. Fluage d'irradiation

De nombreux essais de fluage ont été effectués par le passé sur des combustible en cours d'irradiation, à températures modérées ( $\sim 1000\text{ }^{\circ}\text{C}$ ) (CLOUGH 1970; PERRIN 1971; BRUCKLACHER 1972; SOLOMON 1973; CLOUGH 1977). Une synthèse est disponible dans (GATT 2005). Ces essais montrent que l'irradiation a un effet sur le comportement viscoplastique du combustible lors du fonctionnement nominal en réacteur avec l'apparition d'un fluage athermique dit fluage d'irradiation. Ce dernier représente le principal



mécanisme de fluage en fonctionnement nominal dans un REP.

La prise en compte du fluage d'irradiation est généralement proposée sous la forme suivante :

$$\dot{\epsilon}^{irr} = \frac{3}{2} K_{irr} \dot{F} \mathbf{s} \quad (5.1)$$

$\dot{\epsilon}^{irr}$	tenseur de vitesse de déformation de fluage d'irradiation,
$K_{irr} = 4 \cdot 10^{-37} \text{ m}^3/\text{Pa}$	constante,
$\dot{F}$	densité de fission (en $\text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$ ),
$\mathbf{s} = \boldsymbol{\sigma} - \sigma_m \mathbf{1}$	tenseur des contraintes déviatoriques.

Le fluage d'irradiation est ainsi proportionnel à la densité de fission dans le combustible (nombre de fission par  $\text{m}^3$  et par s) et est indépendant de la température.

### 5.3.2. Fissuration macroscopique

La fissuration macroscopique a été prise en compte en se basant sur le formalisme de la loi de comportement DDIF2 issue de (MICHEL 2008). La loi de comportement DDIF2 a été construite pour que, lors d'une traction uniaxiale monotone pilotée en déplacement, la réponse du matériau soit élastique dans un premier temps, jusqu'à atteindre la contrainte à rupture  $\sigma_R$  puis présente un adoucissement linéaire jusqu'à atteindre la rupture complète du matériau (voir Figure 5.7).

En 1D lors d'un essai uniaxial monotone, la sollicitation et la réponse du système se décomposent en plusieurs séquences possibles décrites dans la Figure 5.7 :

1. Charge à déformation imposée croissante. La réponse est alors élastique linéaire, caractérisée par sa pente, donnée par le module d'Young. La contrainte évolue jusqu'à atteindre la contrainte maximale, appelée dans la suite contrainte à rupture, et notée  $\sigma_R$  ;
2. une réponse adoucissante traduisant l'endommagement croissant du matériau à déformation imposée croissante. Cet adoucissement est traduit dans le modèle DDIF2 par un terme de déformation supplémentaire, la déformation d'endommagement  $\epsilon^{fis}$ . La réponse du matériau est choisie linéaire avec la déformation imposée ;
3. une décharge où la déformation imposée décroît jusqu'à une valeur nulle. La réponse du matériau est encore linéaire et s'apparente à une réponse élastique. La déformation d'endommagement  $\epsilon^{fis}$  décroît jusqu'à

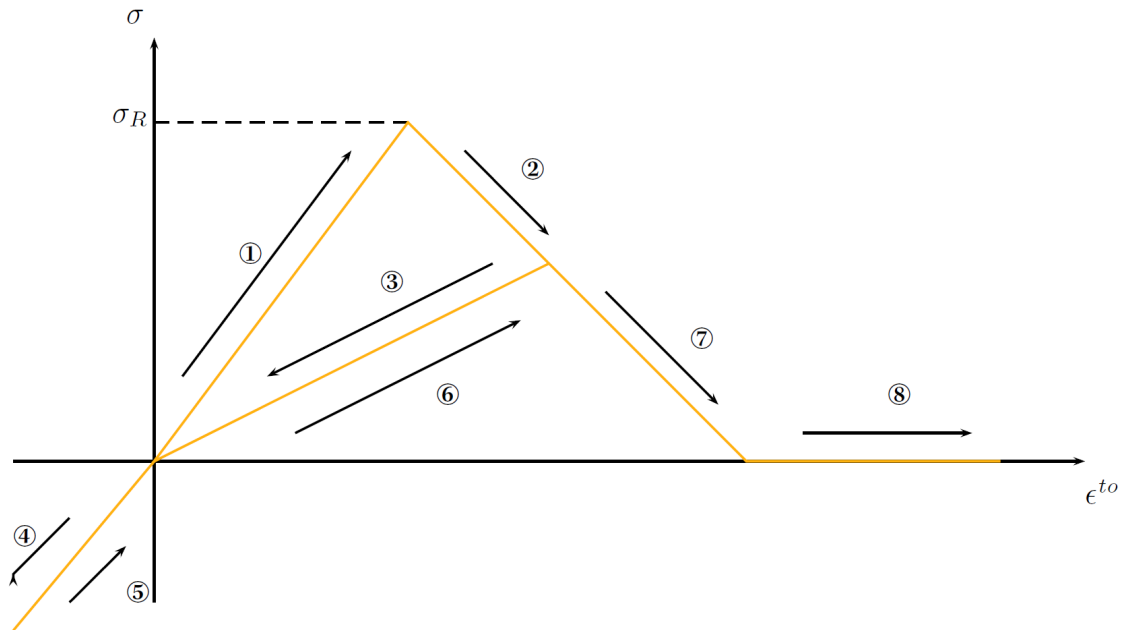


Figure 5.7. – Réponse de la loi de comportement de fissuration en 1D.

devenir nulle. Le module d'Young apparent est plus faible que le module d'Young initial, ce qui traduit l'endommagement du matériau. L'état d'endommagement est caractérisé par la valeur maximale de déformation d'endommagement  $\varepsilon^{fisM}$  atteinte au cours du chargement ;

4. une mise en compression du matériau. Celui-ci réagit de manière élastique. La pente est donnée par le module d'Young initial : l'endommagement en traction n'induit aucune modification du comportement en compression. Le modèle ne prend pas en compte un éventuel endommagement en compression. La déformation d'endommagement reste nulle durant la mise en compression ;
5. la mise en compression diminue et s'annule ;
6. une remise en charge. La réponse du matériau est linéaire. La pente est donnée par le module d'Young endommagé décrit à l'étape 3. La déformation d'endommagement  $\varepsilon^{fis}$  augmente progressivement jusqu'à atteindre sa valeur maximale  $\varepsilon^{fisM}$  ;
7. une reprise de l'endommagement du matériau, c'est à dire une augmentation de la déformation d'endommagement  $\varepsilon^{fis}$  et de sa valeur maximale  $\varepsilon^{fisM}$  jusqu'à endommagement complet, caractérisé par une contrainte nulle ;
8. une poursuite de la charge à contrainte nulle.

La description précédente est généralisée en 3D en faisant les hypothèses

suivantes :

- l'endommagement se fait dans trois directions perpendiculaires fixées a priori ;
- les cisaillements n'interviennent pas dans l'évolution de l'endommagement du matériau et ne sont pas affectés par celui-ci.

Ces hypothèses sont justifiées dans la mesure où les trois directions choisies sont proches des directions principales des contraintes. Ces directions sont, dans le cas de la modélisation d'un crayon combustible les axes des coordonnées cylindriques  $r, \theta$  et  $z$ .

Il est connu que l'utilisation d'une loi adoucissante amène à des résultats qui dépendent de la taille de maille utilisée (**BESSON 2004**). Son utilisation dans le cas de l' $\text{UO}_2$  a été détaillée dans (**HELPER 2006**). L'énergie dissipée durant la fissuration  $W_r$  peut s'écrire sous la forme :

$$W_r = \int_{V_r} \int_0^{\varepsilon_R} \boldsymbol{\sigma} d\varepsilon dV = \int_{V_R} w dV = V_r w \quad (5.2)$$

$\varepsilon_R$  déformation atteinte pour une fissuration complète du volume  $V_r$ ,  
 $w$  énergie dissipé par unité de volume.

Dans le cas d'une simulation par éléments finis d'un essai de traction uniaxiale, lorsqu'un élément s'endommage l'énergie qu'il dissipe pour atteindre une déformation  $\varepsilon^{fis}$  est :

$$W_r = \frac{1}{2} \sigma_R \varepsilon^{fis} S_R l \quad (5.3)$$

$S_R$  surface créée par la fissure,  
 $l$  taille de la maille dans la direction normale à la fissure.

À partir de cette énergie, il est possible d'exprimer la ténacité du matériau  $G$  (qui correspond à la densité surfacique d'énergie dissipée) de la façon suivante :

$$G = \frac{W_R}{S_R} = \frac{1}{2} \sigma_R \varepsilon^{fis} l = \frac{\sigma_R^2 l}{2 R_p} \quad (5.4)$$

$G$  ténacité du matériau,  
 $R_p$  module d'adoucissement.

Pour définir complètement le modèle de fissuration macroscopique, il faut

déterminer les 3 paramètres  $G$ ,  $\sigma_R$  et  $R_p$ . Afin de s'affranchir de la dépendance à la taille de maille tout en s'assurant que l'énergie surfacique dissipé soit égale à la ténacité du matériau, 2 approches sont possibles.  $R_p$  est fixé et  $\sigma_R$  devient dépendant de  $l$  ou inversement  $\sigma_R$  est fixé et  $R_p$  devient dépendant de  $l$ . Dans notre cas, le choix de fixer  $\sigma_R$  a été fait et ainsi l'Équation 5.4 devient :

$$R_p = \frac{\sigma_R^2 l}{2G} \quad (5.5)$$

Malgré tout, il faut s'assurer que la valeur de  $R_p$  ne dépasse pas celle du module d'Young du matériau car dans ce cas, l'énergie dissipée serait plus grande que l'énergie élastique stockée. Dans notre cas,  $R_p$  a été borné par la moitié de la valeur du module d'Young. Cette borne induit qu'une taille de maille maximale ne doit pas être dépassée. Cette taille maximale est donnée par :

$$l_{max} = \frac{G E}{\sigma_R^2} \quad (5.6)$$

Dans le cas de l'UO<sub>2</sub>, la ténacité valant 10 J/m<sup>2</sup> et la contrainte à rupture 136 MPa, la taille de maille maximale obtenue est de 100 µm.

### 5.3.3. Récapitulatif

Dans la suite, nous qualifierons par modèle L3F la loi de comportement regroupant :

- le fluage thermique décrit par une fonction sinh (chapitres 3 et 4),
- la fragmentation des joints de grain prise en compte par un modèle de plasticité associé au critère de Drucker-Prager (chapitre 4),
- le fluage d'irradiation tel que présenté dans la partie 5.3.1
- la fissuration macroscopique en traction basée sur le modèle DDIF2

Pour simplifier, dans un premier temps la formulation du modèle L3F nous supposons qu'il est possible de sommer les différentes déformations provenant de ces quatre phénomènes. Il est bien évident que des interactions entre les différents phénomènes sont possibles (la fissuration macroscopique influe sur la fragmentation des joints de grain et inversement, la porosité évolue avec la fissuration macroscopique, ...). Faute de temps, elles ne seront pas abordées dans ce document.

L'ensemble des équations constitutives sont rappelées ci-dessous.

Viscoplasticité :

$$\Psi(\sigma_m, \sigma_{eq}, f, d) = \sigma_0 K(d) \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \cosh\left(\frac{\Sigma}{\sigma_0}\right)$$

$$K(d) = K_0 \exp\left(\frac{-\gamma}{d-d_0}\right) \quad \text{pour} \quad d \geq d_0$$

$$\Sigma = \sqrt{\alpha(f) \sigma_m^2 + \beta(f) \sigma_{eq}^2}$$

$$\beta(f) = \frac{B(f) + 20 A(f)}{B(f)}$$

$$\alpha(f) = \frac{9A(f)}{4B(f)} \beta(f)$$

$$A(f) = \left(n \left(f^{-\frac{1}{n}} - 1\right)\right)^{-\frac{2n}{n+1}}$$

$$B(f) = \left(1 + \frac{2}{3}f\right) (1-f)^{-\frac{2n}{n+1}}$$

Fragmentation des joints de grains :

$$g(\boldsymbol{\sigma}) = h \sigma_m + \sigma_{eq} - R$$

$$h = \frac{3(1-\tau)}{\tau+1} \quad (5.7)$$

$$R = \frac{2\tau\sigma_c(T)}{\tau+1}$$

$$\dot{\epsilon}^p = \dot{\lambda} \frac{\partial g(\boldsymbol{\sigma})}{\partial \boldsymbol{\sigma}} \quad \text{si} \quad g(\boldsymbol{\sigma}) = 0$$

$$\dot{\epsilon}^p = 0 \quad \text{si} \quad g(\boldsymbol{\sigma}) < 0$$

Fluage d'irradiation :

$$\dot{\epsilon}^{irr} = \frac{3}{2} K_{irr} \dot{F} s$$

Fissuration macroscopique (pour  $i = r, \theta, z$ ) :

$$r_i(\sigma_i) = \sigma_i - \sigma_R - R_p \max\left(\varepsilon_i^{fis}, \varepsilon_i^{fisM}\right)$$

$$R_p = \frac{\sigma_R^2 l}{2G} \quad \text{pour} \quad l < 100 \mu\text{m}$$

$$\dot{\varepsilon}_i^{fis} = \dot{\lambda} \frac{\partial r_i(\sigma_i)}{\partial \boldsymbol{\sigma}} \quad \text{si} \quad r_i(\sigma_i) = 0$$

$$\dot{\varepsilon}_i^{fis} = 0 \quad \text{si} \quad r_i(\sigma_i) < 0$$

Les paramètres utilisés pour l'UO<sub>2</sub> sont :

Paramètre	Valeur
$\sigma_0$	7,5 MPa
$Q$	482 kJ/mol
$K_0$	77 400 /s
$\gamma$	5,277 $\mu\text{m}$
$d_0$	4,6 $\mu\text{m}$
$n$	6
$\tau$	0,9
$\sigma_c(T)$	$\exp(4 \cdot 10^{-7} T^2 - 2,55 \cdot 10^{-3} T + 8)$ MPa
$K_{irr}$	$4 \cdot 10^{-37} \text{ m}^3/\text{Pa}$
$\sigma_R$	136 MPa
$G$	10 J/m <sup>2</sup>

Tableau 5.4. – Paramètres du modèle L3F utilisés pour la modélisation du comportement mécanique de l'UO<sub>2</sub>.

### 5.3.4. Implémentation numérique

L'implémentation du modèle L3F est également faite à l'aide du générateur de code MFfront en se basant sur celle du modèle défini dans le chapitre précédent qui ne comportait pas le fluage d'irradiation ni la fissuration macroscopique. Les déformations de fluage d'irradiation  $\epsilon^{irr}$  et les déformations liées à la fissuration macroscopique  $\epsilon_i^{fis}$  sont ajoutées de façon additive aux déformations totales. Le système implicite à résoudre est le suivant :

$$\left\{ \begin{array}{l} f_{\epsilon^{el}} = \Delta \epsilon^{el} + (\Delta pd + \Delta irr) \mathbf{n} + \frac{1}{3} \Delta pv \mathbf{1} + \Delta pl \left( \frac{h}{3} \mathbf{1} + \mathbf{n} \right) + \sum_{i=0}^2 \Delta \epsilon_i^{fis} \mathbf{n}_i - \Delta \epsilon = 0 \\ f_{pd} = \Delta pd - \frac{\partial \Psi}{\partial \sigma_{eq}} \Delta t = 0 \\ f_{pv} = \Delta pv - \frac{\partial \Psi}{\partial \sigma_m} \Delta t = 0 \\ f_{pl} = g = 0 \quad \text{si} \quad g \geq 0 \\ f_f = \Delta f (1 - \theta (\Delta pv + h \Delta pl)) - (1 - f) (\Delta pv + h \Delta pl) = 0 \\ f_{\epsilon_i^{fis}} = 0 \end{array} \right. \quad (5.8)$$

$$\begin{aligned}
 \Delta \varepsilon^{vp} &= \Delta p d \mathbf{n} + \frac{1}{3} \Delta p v \mathbf{1} && \text{incrément du tenseur des déformations viscoplastiques,} \\
 \Delta \varepsilon^p &= \Delta p l \left( \frac{h}{3} \mathbf{1} + \mathbf{n} \right) && \text{incrément du tenseur des déformations plastiques,} \\
 \Delta \varepsilon^{irr} &= \Delta irr r \mathbf{n} && \text{incrément du tenseur des déformations de fluage d'irradiation,} \\
 \mathbf{n} &= \frac{3s}{2\sigma_{eq}} && \text{normale à la surface de charge évaluée à l'instant } t + \theta \Delta t, \\
 \Delta \varepsilon^{fis} &= \sum_{i=0}^2 \Delta \varepsilon_i^{fis} \mathbf{n}_i && \text{incrément du tenseur des déformations de fissuration,} \\
 n_i &&& \text{direction des axes } r, \theta, z.
 \end{aligned}$$

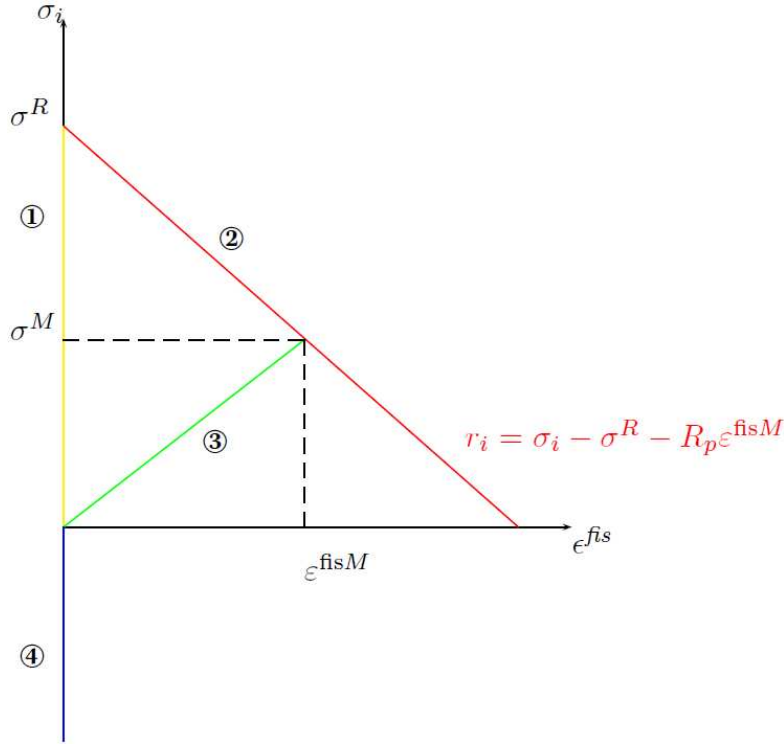


Figure 5.8. – Description des états d'équilibre dans le plan "contrainte/déformation d'endommagement" caractérisant la loi de comportement DDIF2.

L'équation du système implicite associée à l'incrément de déformation de fissuration macroscopique  $f_{\varepsilon_i^{fis}}$  diffère selon les 4 cas suivants (décrits dans la **Figure 5.8**) :

1. si la contrainte est positive mais que la contrainte à rupture  $\sigma_R$  n'a jamais été atteinte, le comportement du matériau est élastique et la déformation d'endommagement  $\varepsilon_i^{fis}$  est nulle. L'incrément de déformation de fissuration est alors donné par :

$$\varepsilon_i^{fis} + \Delta \varepsilon_i^{fis} = 0 \quad (5.9)$$

2. si l'état d'équilibre est sur la surface de charge ( $r_i = 0$ ), la déformation d'endommagement  $\varepsilon_i^{fis}$  est égale à la déformation maximale  $\varepsilon_i^{fisM}$ .

L'équation associée à l'incrément de déformation de fissuration est alors donnée par :

$$f_{\varepsilon_i^{fis}} = r_i = 0 \quad (5.10)$$

3. si la contrainte est positive, que le matériau a déjà été endommagé (ce qui se traduit par une déformation maximale d'endommagement non nulle,  $\varepsilon_i^{fisM} > 0$ ), et que le point d'équilibre se trouve dans le domaine d'élasticité (caractérisé par un critère négatif,  $r_i < 0$ ), la déformation d'endommagement est telle que :

$$\begin{aligned} \sigma_i &= E^{fis} (\varepsilon_i^{fis} + \Delta \varepsilon_i^{fis}) \\ &= \frac{\sigma^M}{\varepsilon_i^{fisM}} (\varepsilon_i^{fis} + \Delta \varepsilon_i^{fis}) \\ &= \frac{\sigma_R + R_p \varepsilon_i^{fisM}}{\varepsilon_i^{fisM}} (\varepsilon_i^{fis} + \Delta \varepsilon_i^{fis}) \end{aligned} \quad (5.11)$$

où nous avons introduit le module  $E^{fis}$  égal au rapport entre la contrainte maximale admissible  $\sigma^M$  par le matériau après endommagement et la déformation maximale atteinte au cours du temps  $\varepsilon_i^{fisM}$ . L'équation du système implicite associée à cet état s'écrit alors :

$$f_{\varepsilon_i^{fis}} = \sigma_i - E^{fis} (\varepsilon_i^{fis} + \Delta \varepsilon_i^{fis}) = 0 \quad (5.12)$$

4. si la contrainte est négative, le comportement du matériau est élastique et la déformation d'endommagement est nulle. L'incrément de déformation d'endommagement est alors donné par :

$$f_{\varepsilon_i^{fis}} = \varepsilon_i^{fis} + \Delta \varepsilon_i^{fis} = 0 \quad (5.13)$$

Concernant les termes non nuls de la Jacobienne, à ceux déjà présents dans le modèle complet, il faut rajouter :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial f_{\varepsilon^{el}}}{\partial \Delta \varepsilon_i^{fis}} = \mathbf{n}_i \\ \frac{\partial f_{\varepsilon_i^{fis}}}{\partial \Delta \varepsilon_i^{fis}} \\ \frac{\partial f_{\varepsilon_i^{fis}}}{\partial \Delta \varepsilon^{el}} \end{array} \right. \quad (5.14)$$



Comme pour l'incrément, les dérivées associées à la fissuration diffèrent selon les 4 cas suivants :

1.  $\frac{\partial f_{\epsilon_i^{fis}}}{\partial \Delta \epsilon_i^{fis}} = 1$  et  $\frac{\partial f_{\epsilon_i^{fis}}}{\partial \Delta \epsilon^{el}} = 0$
2.  $\frac{\partial f_{\epsilon_i^{fis}}}{\partial \Delta \epsilon_i^{fis}} = -R_p$  et  $\frac{\partial f_{\epsilon_i^{fis}}}{\partial \Delta \epsilon^{el}} = \theta (\lambda \mathbf{1} + 2 \mu \mathbf{n}_i)$
3.  $\frac{\partial f_{\epsilon_i^{fis}}}{\partial \Delta \epsilon_i^{fis}} = -E^{fis}$  et  $\frac{\partial f_{\epsilon_i^{fis}}}{\partial \Delta \epsilon^{el}} = \theta (\lambda \mathbf{1} + 2 \mu \mathbf{n}_i)$
4.  $\frac{\partial f_{\epsilon_i^{fis}}}{\partial \Delta \epsilon_i^{fis}} = 1$  et  $\frac{\partial f_{\epsilon_i^{fis}}}{\partial \Delta \epsilon^{el}} = 0$

### 5.3.5. Réponse à un chargement biaxial

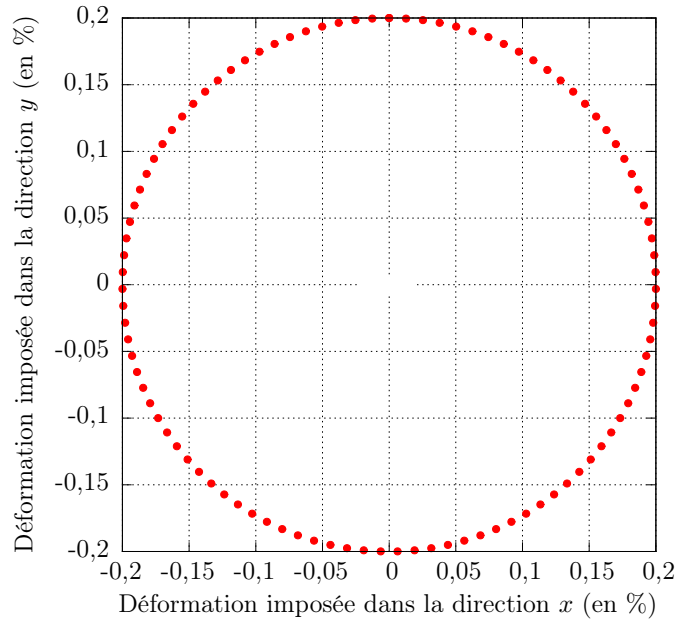


Figure 5.9. – Chargements biaxiaux  $(x, y)$  utilisés pour l'étude de la surface de charge donnée par la loi L3F.

Le modèle L3F a été développé à partir de résultats d'essais uniaxiaux. En RIA, les simulations montrent que l'état de contrainte dans le combustible est plutôt biaxial voire triaxial, que ce soit en compression ou en traction (SERCOMBE 2010 ; SUZUKI 2008). Afin de vérifier le bon comportement de la loi L3F pour ce genre de sollicitations, la surface de charge issue de la loi L3F pour un chargement en déformations imposées  $(x, y)$  a été déterminée. La

surface de charge a ainsi été tracée point par point, chaque point correspondant à une simulation par éléments finis. Un élément unitaire a été soumis à des déformations imposées dans les directions  $x$  et  $y$  correspondants aux coordonnées d'un des points de la **Figure 5.9**. De plus, chacune de ces simulations a été faite en faisant varier la température entre 1000 °C et 3000 °C par palier de 200 °C. Enfin, la vitesse de déformation équivalente  $\dot{\varepsilon}_{eq} = \sqrt{\dot{\varepsilon}_{xx}^2 + \dot{\varepsilon}_{yy}^2}$  a été imposée à  $10^{-1}$  /s, 1 /s et 10 /s.

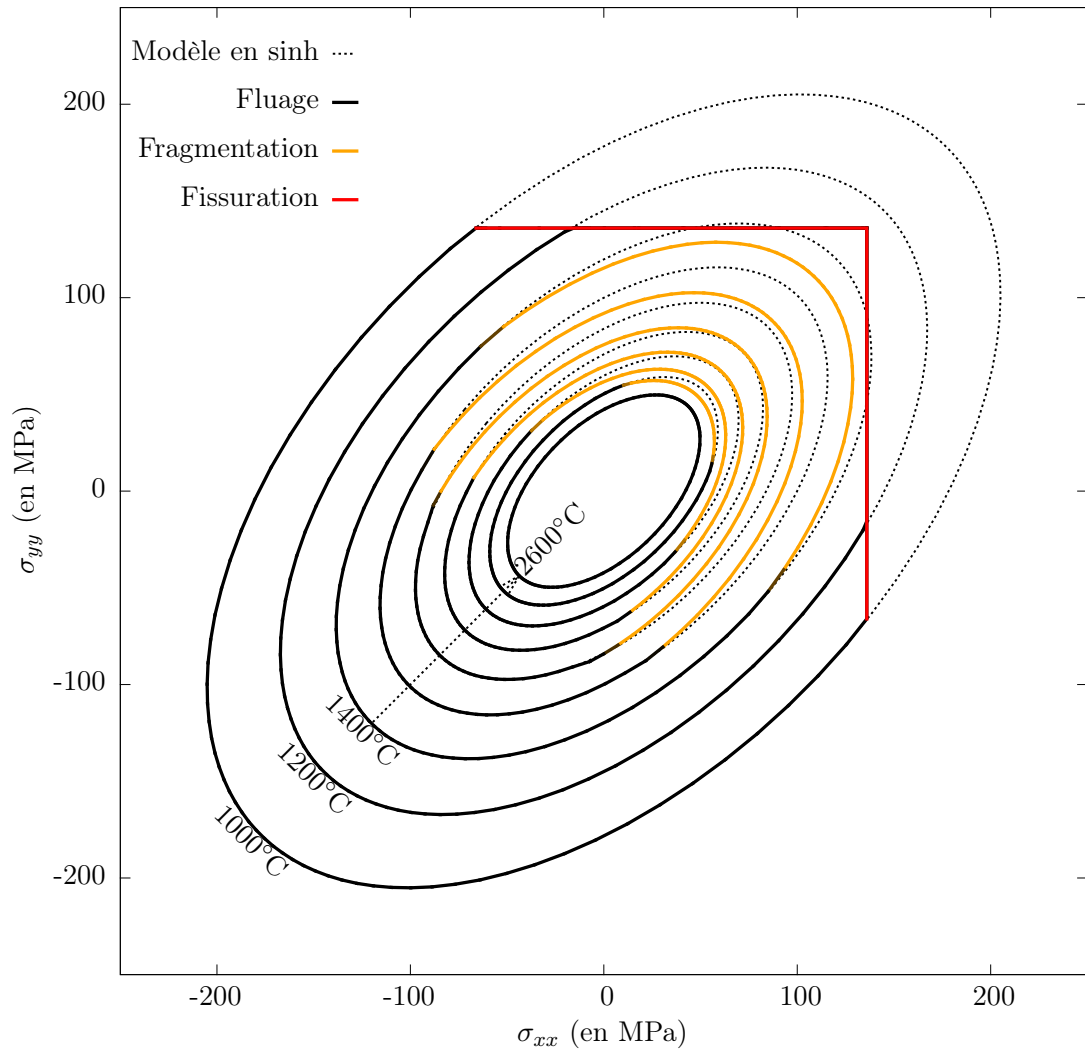


Figure 5.10. – Surface de charge  $(\sigma_{xx}, \sigma_{yy})$  donnée par la loi L3F pour une vitesse de déformation équivalente de  $10^{-1}$  /s.

Afin de mieux visualiser les différents modes de déformation, l'adoucissement du modèle de fissuration n'a pas été activé, la contrainte est seulement bornée par la valeur de la contrainte à rupture  $\sigma_r = 136$  MPa du modèle. Les résultats

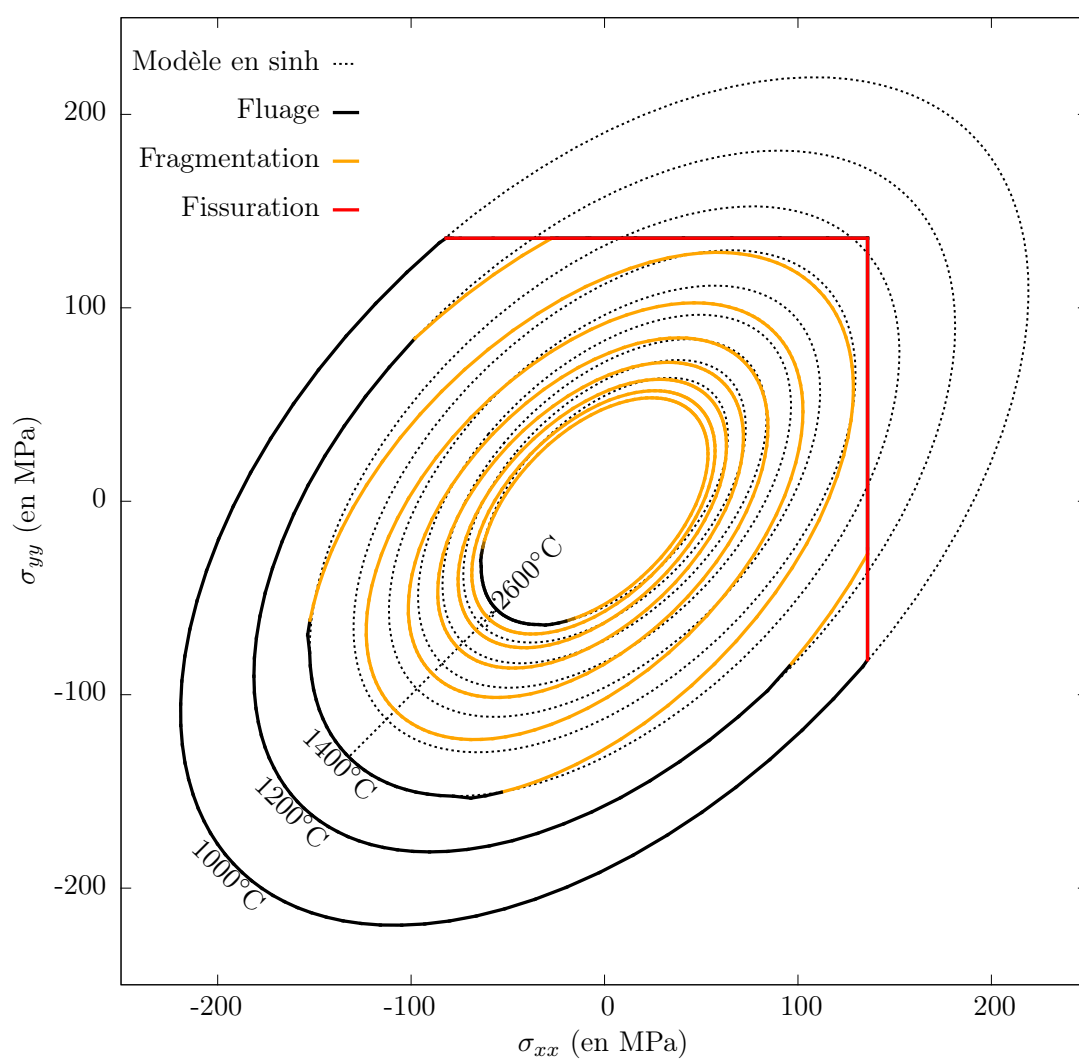


Figure 5.11. – Surface de charge  $(\sigma_{xx}, \sigma_{yy})$  donnée par la loi L3F pour une vitesse de déformation équivalente de  $1 \text{ /s}$ .

des simulations effectuées sont tracés dans les **Figures 5.10, 5.11 et 5.12**. Les ellipses concentriques en pointillé représentent la surface de charge donnée par la loi sans prise en compte de la fragmentation des joints de grain et de la fissuration macroscopique. Chacune d'elle est tracée point par point à partir des résultats de simulations effectuées à une même température. Elles sont espacées régulièrement et ont une forme parfaitement symétrique. Les traits pleins correspondent à la réponse de la loi L3F complète avec prise en compte de la fragmentation et de la fissuration. Les couleurs indiquent le mode de déformation prépondérant qui borne la contrainte (noir pour le fluage, orange pour la fragmentation des joints de grain et rouge pour la fissuration macroscopique).

À une vitesse de déformation équivalente de  $10^{-1}$  /s (voir **Figure 5.10**), les contraintes sont contrôlées par le fluage jusqu'à 1400 °C, puis de la fragmentation apparaît dans les zones en traction. Le critère de fragmentation est d'abord atteint pour des températures supérieures dans les zones en traction. La biaxialité semble donc favoriser le phénomène. La fragmentation disparaît progressivement avec l'augmentation de la température pour ne plus être présente à 2600 °C. C'est alors que le fluage pilote de nouveau les contraintes atteintes. Malgré tout, à cette vitesse de déformation, la fragmentation n'est jamais le mode de déformation prépondérant en compression. Enfin, en traction, les contraintes uniaxiales et biaxiales sont bien bornées à faible température ( $T < 1400$  °C) par le modèle de fissuration macroscopique.

Pour une vitesse de déformation équivalente de 1 /s (voir **Figure 5.11**), les contraintes sont toujours bornées à basse température dans le domaine des tractions par le modèle de fissuration. La fragmentation apparaît à plus basse température qu'à  $10^{-1}$  /s. Dès 1200 °C, elle contrôle les contraintes de traction puis progressivement les contraintes de compression. L'ensemble des contraintes est contrôlé par la fragmentation des joints de grain dès 1600 °C. À partir de 2600 °C, le fluage borne à nouveau les contraintes de compression biaxiales. L'écart entre les contraintes données par la loi L3F et par le modèle de fluage seul est plus important.

Enfin à 10 /s (voir **Figure 5.12**), le constat est le même avec néanmoins une fragmentation déjà présente à 1200 °C et qui s'étend jusqu'à plus de 2600 °C. Ce phénomène est donc prépondérant à forte vitesse de déformation.

Dans la partie suivante, nous allons simuler le comportement d'un crayon combustible pendant un pulse RIA avec la loi L3F. Pour cela, nous utiliserons les fonctionnalités présentes dans le code combustible ALCYONE.

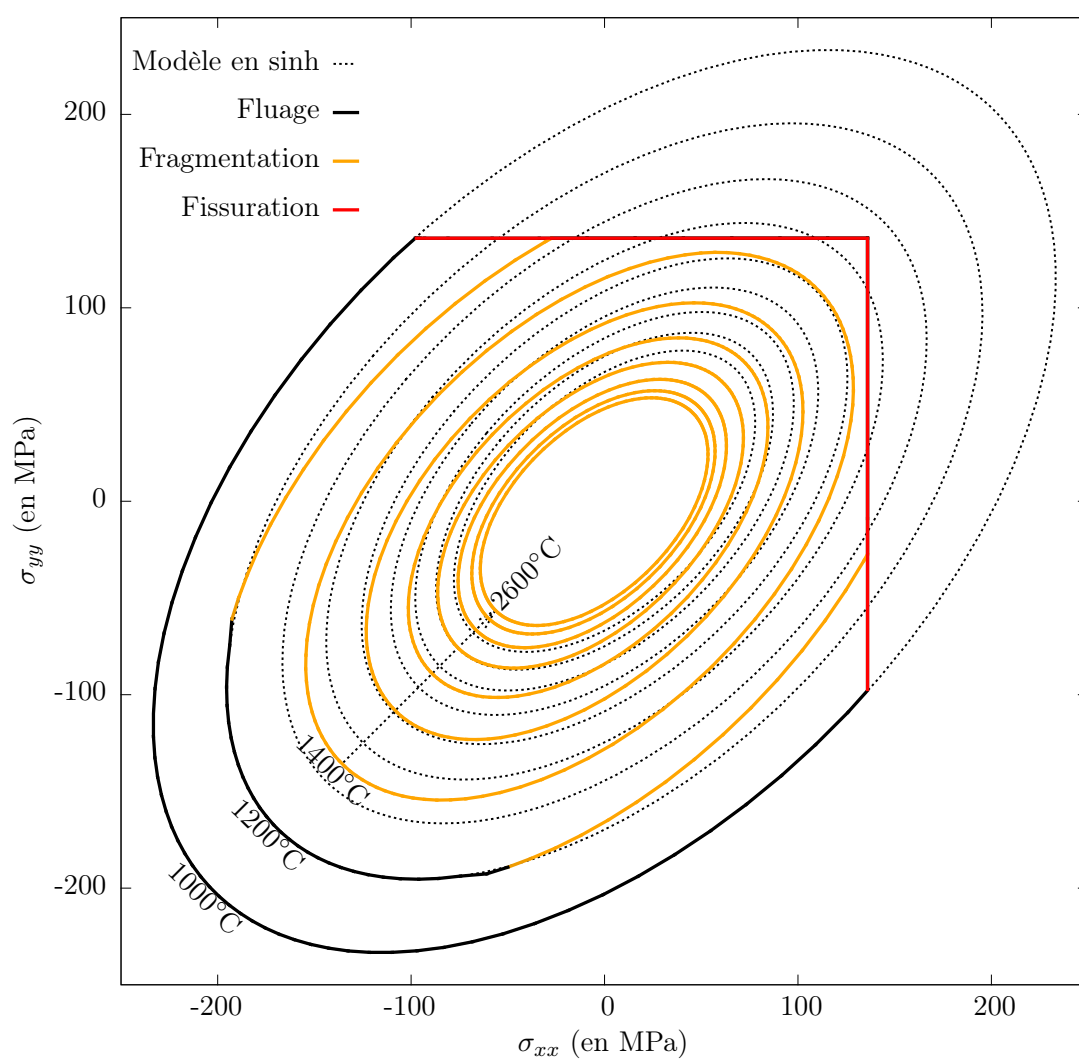


Figure 5.12. – Surface de charge  $(\sigma_{xx}, \sigma_{yy})$  donnée par la loi L3F pour une vitesse de déformation équivalente de 10 /s.

## 5.4. Simulation des essais REP-Na

### 5.4.1. Alcyone-RIA

ALCYONE est un code combustible multi-dimensionnel et multi-physique co-développé par le CEA (commissariat à l'énergie atomique), EDF et AREVA (**SERCOMBE 2009**). Au départ il a été créé pour les situations non accidentelles. Il comprend plusieurs modes de calcul différents qui décrivent le comportement thermo-mécanique d'un crayon de combustible entier (1D axisymétrique) ou celui d'un fragment de pastille de combustible et de la gaine qui l'entoure (2D en déformations planes généralisées ou représentation 3D) lors de l'irradiation dans un Réacteur à Eau sous Pression (REP) ou de rampes de puissance dans les réacteurs expérimentaux. Le comportement des crayons dans les différents régimes est validé par rapport aux données expérimentales relatives à 200 irradiations de base et 50 rampes de puissance sur crayons combustibles  $\text{UO}_2\text{-M}_5$  et  $\text{UO}_2\text{-Zr}_4$  avec des taux de combustion jusqu'à 75 GWj/tU (**SERCOMBE 2009**). La possibilité offerte par la modélisation 3D de prévoir explicitement le diamètre de la pastille au niveau du plan Inter-Pastille (IP) et du plan Médian-Pastille (MP) après une irradiation de base et une rampe de puissance ainsi que le remplissage de l'évidement entre pastilles en fait un outil puissant pour étudier de façon détaillée les contraintes et la localisation de la déformation au cours de tout type de condition de chargement conduisant à une Interaction Pastille-Gaine (IPG) forte.

Comme le montrent les programmes expérimentaux, les pulses RIA peuvent conduire à une IPG très forte avec éventuellement une rupture de gaine ainsi qu'à la dispersion du combustible dans le circuit primaire (**JERNKVIST 2010 ; PAPIN 1996 ; FUKETA 1997**). La grande majorité des codes de calcul développés pour analyser les pulses RIA utilisent une description axisymétrique du crayon combustible (**FEDERICI 2002 ; OECD/NEA WORKSHOP 2009 ; ROMANO 2006**). Dans le programme CABRI REP-Na, certains crayons combustibles montrent une déformation caractérisée par des plis ou des renflements réguliers (**PAPIN 1996**). Un comblement de l'évidement a été également observé dans certains tests. Il y a donc un réel intérêt dans la modélisation multi-dimensionnelle des essais RIA en réacteur expérimentaux.

ALCYONE se compose de quatre schémas de modélisation différents :

- Une modélisation d'un crayon combustible complet discrétisé en segments axiaux appelés tranches (modélisation 1D voir **Figure 5.13**). Une tranche est représentative du comportement moyen de quelques pastilles (un crayon d'environ 200 pastilles est généralement modélisé en 30 tranches). Chaque tranche est discrétisée radialement et modélisée en déformations planes généralisées. Cette modélisation permet d'avoir accès aux grandeurs

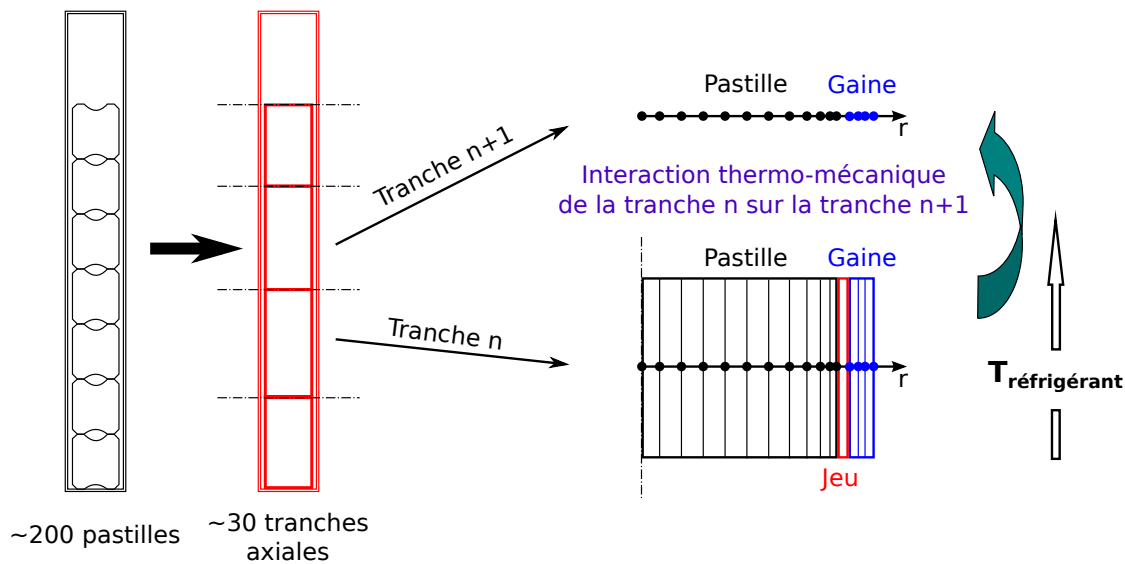
**Colonne combustible**

Figure 5.13. – Schéma de calcul 1D du code ALCYONE.

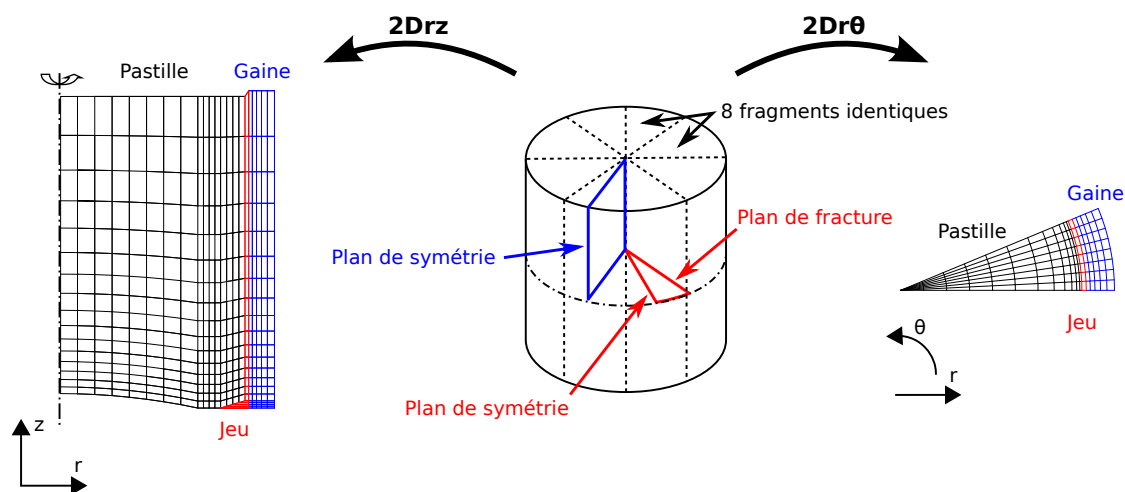


Figure 5.14. – Schéma de calcul 2D du code ALCYONE.

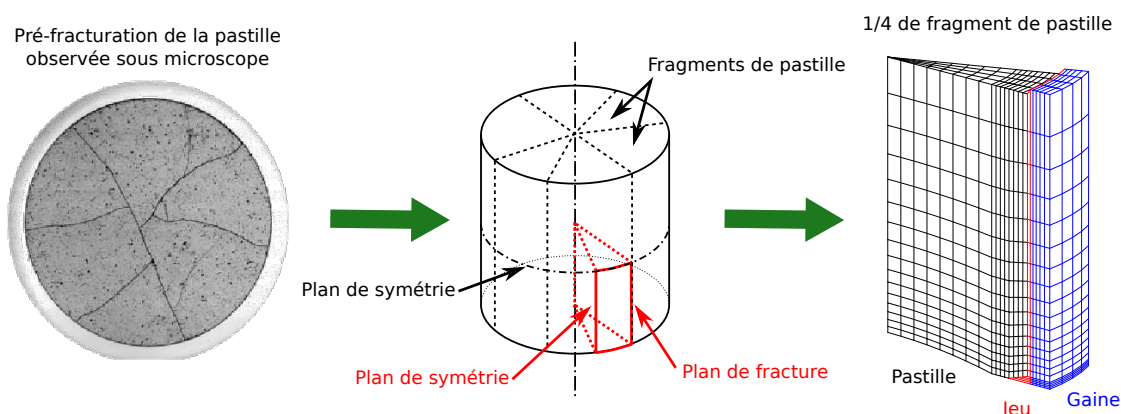


Figure 5.15. – Schéma de calcul 3D du code ALCYONE.

globales telles que les volumes libres, le relâchement des gaz de fission, la pression interne, les allongements de la colonne combustible et de la gaine et la déformation moyenne du combustible.

- Une modélisation de la moitié d'une pastille et de la gaine ( $2Drz$  voir **Figure 5.14**).
- Une modélisation d'un quart de fragment de pastille et de la gaine correspondante ( $3D$ ) où le plan médian pastille est situé au sommet du maillage (voir **Figure 5.15**). Une telle modélisation permet d'accéder au comportement mécanique local de la pastille (diabolo, comblement de l'évidement, gradients verticaux, ...), et notamment à l'étude fine de l'Interaction Pastille Gaine.
- Une modélisation du plan médian-pastille du système  $3D$  ( $2Dr\theta$  voir **Figure 5.14**).

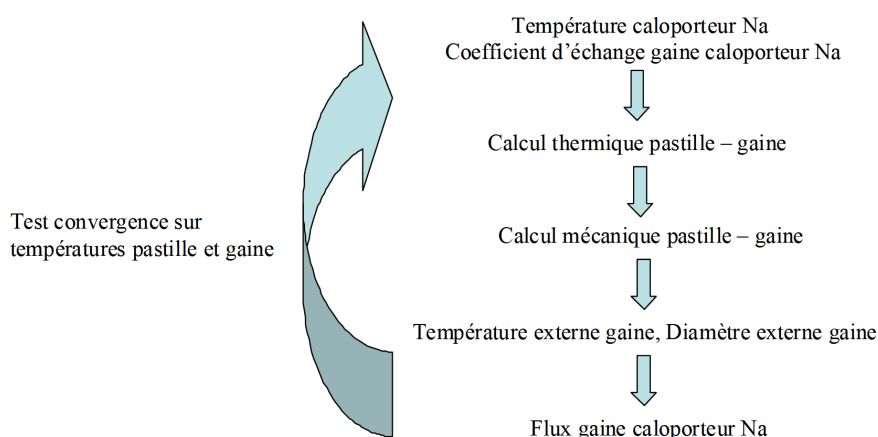


Figure 5.16. – Schéma de résolution itératif du code ALCYONE-RIA.

La simulation des essais REP-Na se fait à l'aide du code de calcul ALCYONE-



RIA qui est basé sur ALCYONE et auquel ont été ajoutées la modélisation des transferts de chaleur en régime transitoire (le fonctionnement nominal étant traité en régime permanent), la thermohydraulique du caloporteur sodium en régime transitoire et la modélisation du comportement de la gaine dans les gammes de sollicitations d'un RIA par la loi GPLS. La modélisation 1D s'appuie sur un schéma de calcul itératif (voir **Figure 5.16**) utilisant le code élément finis CAST3M (CAST3M 2010) pour la thermique et la mécanique.

**Thermohydraulique :** Le module de thermohydraulique (première étape du schéma itératif) décrit l'écoulement du fluide réfrigérant le long du crayon et l'échange thermique gaine/réfrigérant en régime monophasique ou diphasique. Les grandeurs calculées sont la température moyenne du fluide, le taux de vide dans le canal réfrigérant et le coefficient d'échange gaine/réfrigérant qui permet de déterminer le profil axial de température à l'interface oxyde-réfrigérant.

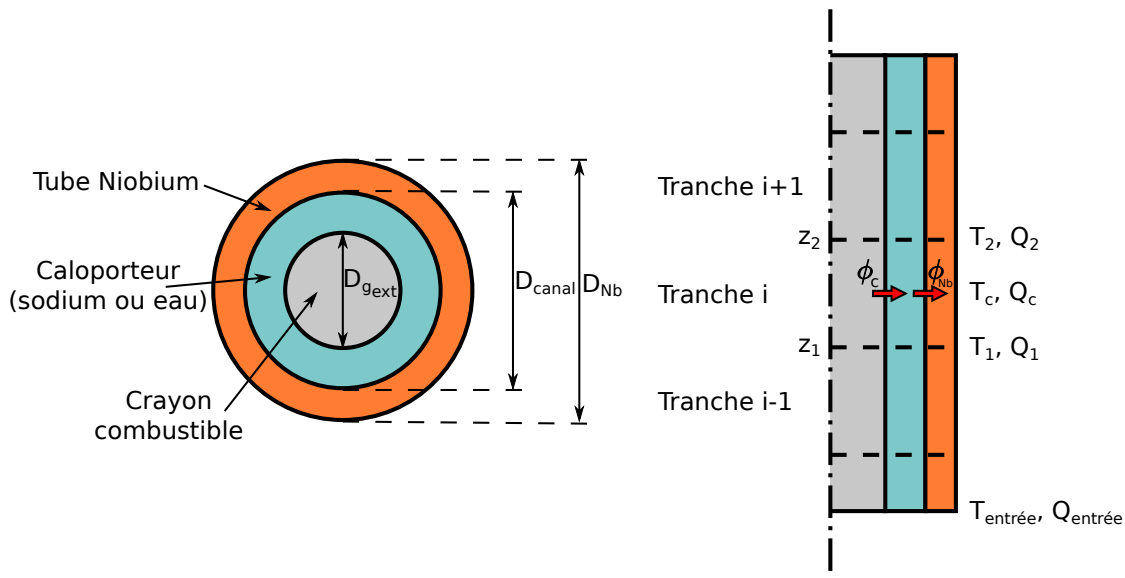


Figure 5.17. – Discretisation axiale du crayon et conditions de température et débit caloporteur au niveau de chaque tranche.

Il se base sur une modélisation du tube en niobium qui assure l'étanchéité entre le caloporteur eau du cœur CABRI et le caloporteur sodium du dispositif qui est entouré d'une couche de xénon considérée comme un isolant parfait. À l'intérieur de ce tube se trouve le sodium qui s'écoule et au centre de celui-ci, le crayon combustible objet de l'essai, qui représente la source de chaleur (voir **Figure 5.17**).

Le modèle calcule la température du caloporteur en prenant en compte le tube en niobium avec les hypothèses suivantes :

- régime transitoire
- pas de prise en compte des échanges de chaleur par conduction axiale.

Les conditions aux limites sont :

- un flux de chaleur nul à la surface externe du tube en niobium (condition adiabatique) ou un flux de chaleur nul à la surface externe du réfrigérant (condition de symétrie),
- une température et un débit d'entrée du réfrigérant ainsi qu'une pression dans le canal fournis en données d'entrées du calcul.

Les équations résolues sont la conservation de la masse du caloporteur, la conservation de l'énergie du caloporteur et la conservation de l'énergie du tube en niobium (GOLDBRONN 2013).

**Thermique :** Le module de thermique permet de résoudre l'équation de la chaleur en régime transitoire et ainsi de déterminer le champ de température dans le combustible et la gaine. Le comportement thermique de la pastille et de la gaine est simulé en considérant un transfert de chaleur de type conductif dans la pastille et la gaine. L'historique de puissance linéique fourni par le jeu de données est repris par le modèle neutronique (PALMER 1983) ce qui permet de calculer la répartition radiale de la puissance volumique dans le combustible correspondant à une source de chaleur. L'échange de chaleur entre la pastille et la gaine est modélisé par un coefficient d'échange calculé par le modèle URGAP (LUCUTA 1996). Il est fonction de la taille du jeu entre la pastille et la gaine, de la pression de contact, de l'épaisseur de la couche d'oxyde en paroi interne de gaine. Enfin, le flux de chaleur en paroi externe de gaine provient du module de thermohydraulique. Il est imposé comme condition aux limites.

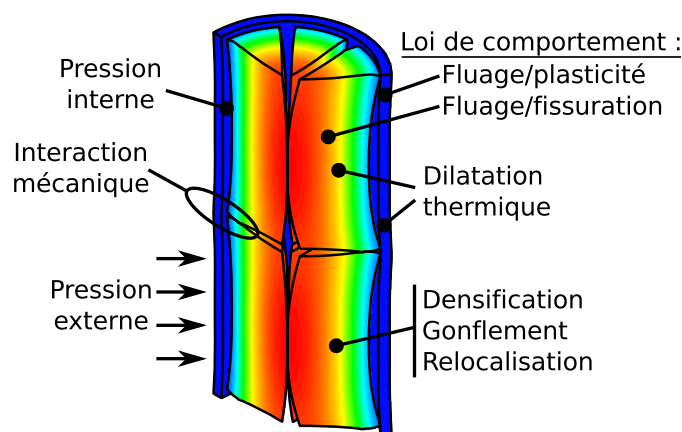


Figure 5.18. – Phénomènes physiques et modèles associés pour le calcul mécanique

**Mécanique :** L'équilibre mécanique du système pastille-gaine est résolu par éléments finis en statique. D'un point de vue mécanique, les chargements sont

multiples (voir **Figure 5.18**) et peuvent être classés suivant leur origine :

- chargements d'origine mécanique :
  - la pression interne au crayon qui s'exerce sur l'extérieur de la pastille combustible et l'intérieur de la gaine ;
  - la pression du réfrigérant appliquée sur l'extérieur de la gaine ;
- chargement d'origine thermique lié à la déformation thermique du combustible et de la gaine.
- conditions aux limites des calculs :
  - déplacement radial bloqué au centre du combustible ;
  - contact unilatéral entre la pastille et la gaine.

### 5.4.2. Loi de comportement gaine

La loi de comportement de la gaine est spécifique aux RIA (**LE SAUX 2008**), applicable au ZY-4 vierge ou irradié jusqu'à 4 cycles dans la gamme de température comprise entre 20 °C et 1100 °C et pour des vitesses de déformations maximales de 5 /s. Cette loi appelée GPLS est de type viscoplastique sans seuil et est adaptée aux chargements monotones croissants. La déformation totale est classiquement composée d'une déformation élastique et d'une déformation viscoplastique. L'élasticité supposée isotrope est décrite par la loi de Hooke avec un module d'élasticité dépendant de la température. L'orthotropie plastique du Zy-4 résultant de sa texture est prise en compte via la contrainte équivalente de Hill. Dans le repère principal d'anisotropie qui coïncide avec les axes du système de référence cylindrique (applicable au crayon), il s'écrit sous la forme suivante :

$$\sigma_H = \sqrt{H_{rr}(\sigma_{\theta\theta} - \sigma_{zz})^2 + H_{\theta\theta}(\sigma_{zz} - \sigma_{rr})^2 + H_{zz}(\sigma_{rr} - \sigma_{\theta\theta})^2 + 2H_{r\theta}\sigma_{r\theta}^2 + 2H_{rz}\sigma_{rz}^2 + 2H_{\theta z}\sigma_{\theta z}^2} \quad (5.15)$$

avec  $H_{rr}, H_{\theta\theta}, H_{zz}$  les coefficients d'anisotropie dans les directions  $r, \theta, z$  issus du tenseur symétrique d'ordre 4  $\mathbf{H}$  dont les coefficients sont donnés dans le tableau de la **Figure 5.19**.

La vitesse de déformation viscoplastique est donnée par la loi de normalité et s'exprime en fonction du potentiel viscoplastique  $\Omega$  de la manière suivante :

$$\dot{\epsilon}^p = \frac{\partial \Omega}{\partial \sigma} = p \mathbf{H} : \frac{\sigma}{\sigma_H} \quad \text{où} \quad \Omega = \frac{m\eta}{m+1} \left( \frac{\sigma_H}{\eta} \right)^{\frac{1+m}{m}} \quad (5.16)$$

La vitesse de déformation viscoplastique équivalente  $p$  est donnée par :

$$\dot{p} = \left( \frac{\sigma_H(\boldsymbol{\sigma}, T, \phi_t)}{\eta(p, T, \phi_t, \xi)} \right)^{\frac{1}{m(T, \phi_t)}} \quad (5.17)$$

avec  $m$  le paramètre permettant de décrire les effets de la vitesse de chargement et  $\eta$  la viscosité non linéaire qui est décomposée en deux paramètres  $K$  et  $L$  décrivant la résistance et l'écrouissage du matériau :

$$\eta(p, T, \phi_t, \xi) = K(T, \phi_t, \xi) L(p, T, \phi_t) \quad (5.18)$$

Les paramètres de la loi de comportement (voir **Figure 5.19**) dépendent de la température  $T$ , de la déformation viscoplastique équivalente  $p$ , de la fluence  $\phi_t$  et de  $\xi$  la position axiale de l'échantillon de gaine testé pendant l'irradiation en base. Ce dernier paramètre a pour objectif de prendre en compte l'effet de la température vue par la gaine pendant l'irradiation en base sur sa réponse mécanique.

La loi GPLS tient ainsi compte des phénomènes suivants :

- Décroissance de la limite d'élasticité avec la température,
- Durcissement du matériau avec l'irradiation surtout pour les crayons irradiés 1 cycle,
- Impact de la température d'irradiation en réacteur (lié à la cote axiale de l'échantillon testé mécaniquement) sur la contrainte ultime,
- Décroissance du module d'écrouissage et de l'allongement réparti avec la température et l'irradiation,
- Augmentation de la limite d'élasticité avec la vitesse de chargement et l'irradiation,
- Dépendance des coefficients d'anisotropie à la température et à l'irradiation.

### 5.4.3. Simulations

En irradiation de base, un chargement lié aux gaz de fission (déformation imposée) peut être introduit. En RIA, aucun gonflement associé aux gaz n'est pour l'instant considéré.

Les résultats qui suivent sont issus de simulations s'appuyant sur le schéma 1D d'ALCYONE-RIA.

Le comportement mécanique du combustible est modélisé à l'aide de la loi L3F.

---

Elasticity (Le Saux et al., 2008) :

$$E = 1.059 \cdot 10^{11} - 36 \cdot 10^6 T, \nu = 0.342$$

Strain rate sensitivity (Le Saux et al., 2008) :

$$m = 1/[77.68M_T + 4.11(1 - M_T)]$$

$$\text{where } M_T = 1/[1 + \exp(10.2(T/692 - 1))]$$

Strain hardening :

$$L = (p + 1 \cdot 10^{-4})^{n_0} \exp(-\alpha_n p) + (1 - \exp(-\alpha_n p))$$

$$\text{with } n_0 = (1 + 1.45 \cdot 10^{-4} C_{Hp})[4.86 \cdot 10^{-2} N_{0T} + 2.35 \cdot 10^{-2}(1 - N_{0T})]$$

$$\text{where } N_{0T} = 1/[1 + \exp(12(T/(810 - 9.19 \cdot 10^{-2} C_{Hp}) - 1))]$$

$$\text{and } \alpha_n = (53.16 + 1.27 \cdot 10^{-2} C_{Hp})[1 + \exp(11.1(T/738 - 1))]$$

Strength :

$$K = [1 - 1.175 \cdot 10^{-4} C_{Hs} + (6.15 \cdot 10^{-5} - 4.38 \cdot 10^{-8} T) C_{Hp}][(1.409 \cdot 10^9 - 8.952 \cdot 10^5 T) K_T + 4.05 \cdot 10^7 (1 - K_T)]$$

$$\text{where } K_T = 1/[1 + \exp(1.77(T/1007 - 1))]$$

Plastic anisotropy (Le Saux et al., 2008) :

$$H_{rr} = 0.485 + 9.5 \cdot 10^{-2}/[1 + \exp(12(T/740 - 1))]$$

$$H_{\theta\theta} = 1 - H_{rr}$$

$$H_{zz} = 0.52 + (-0.23 + 4 \cdot 10^{-4} T)/[1 + \exp(15(T/550 - 1))]$$

$$H_{r\theta} = H_{rz} = H_{\theta z} = 1.5$$


---

Figure 5.19. – Paramètres de la loi de gainage GPLS issus de **(Le Saux 2008)**.

Le calcul est traité en 2 temps. L'irradiation en REP du crayon complet est d'abord simulé. La discrétisation axiale du crayon complet est ensuite raffinée au niveau du tronçon testé dans le réacteur CABRI. 10 tranches sont ainsi considérées pour décrire ce dernier. Dans la direction radiale, chaque tranche comprend 40 éléments pour le combustible et 6 éléments pour la gaine. Le maillage est raffiné en périphérie de la pastille afin de bien décrire l'interface avec la gaine. Pendant l'irradiation, le combustible densifie fortement et voit la pression à l'intérieur des pores et bulles augmenter du fait des gaz de fission. Dans les calculs qui suivent, afin d'éviter une densification physiquement improbable pendant le pulse, nous ferons l'hypothèse que le combustible ne présente aucune porosité compressible (ce qui équivaut à fixer  $\alpha = 0$  dans la loi).

Il est également intuitif de considérer que la forte pression dans les pores de l' $\text{UO}_2$  irradié va opposer une résistance supplémentaire à l'écrasement de la porosité.

Le post-traitement des résultats de calcul a été focalisé sur le profil radial dans le combustible de différentes grandeurs de première importance :

- la température,
- les contraintes  $\sigma_{\theta\theta}$  et  $\sigma_{zz}$ ,
- les déformations vicoplastiques équivalentes,
- les déformations plastiques équivalentes (donnant les zones où apparaît la fragmentation des joints de grain),
- la déformation circonférentielle de fissuration macroscopique (qui modélise les macro fissures radiales dans la pastille).

Tous les profils sont donnés au plan dit de flux maximum, c'est-à-dire là où la puissance linéique (ou volumique) est maximale dans la pastille. Ces profils sont tracés à 6 temps différents :

- avant le début du pulse (Avant pulse),
- lors de la montée en puissance (Montée pulse),
- au sommet du pulse là où la puissance atteinte est maximale (Sommet pulse),
- lors de la diminution de la puissance (Descente pulse),
- en fin de pulse (Bas pulse),
- quelques instants après la fin du pulse (Après pulse).

#### 5.4.4. REP-Na 2

L'essai REP-Na 2 caractérise le comportement d'un crayon moyennement irradié lors d'un pulse rapide et très énergétique.

Les résultats de la simulation de l'essai REP-Na 2 (voir **Figure 5.20**) montrent

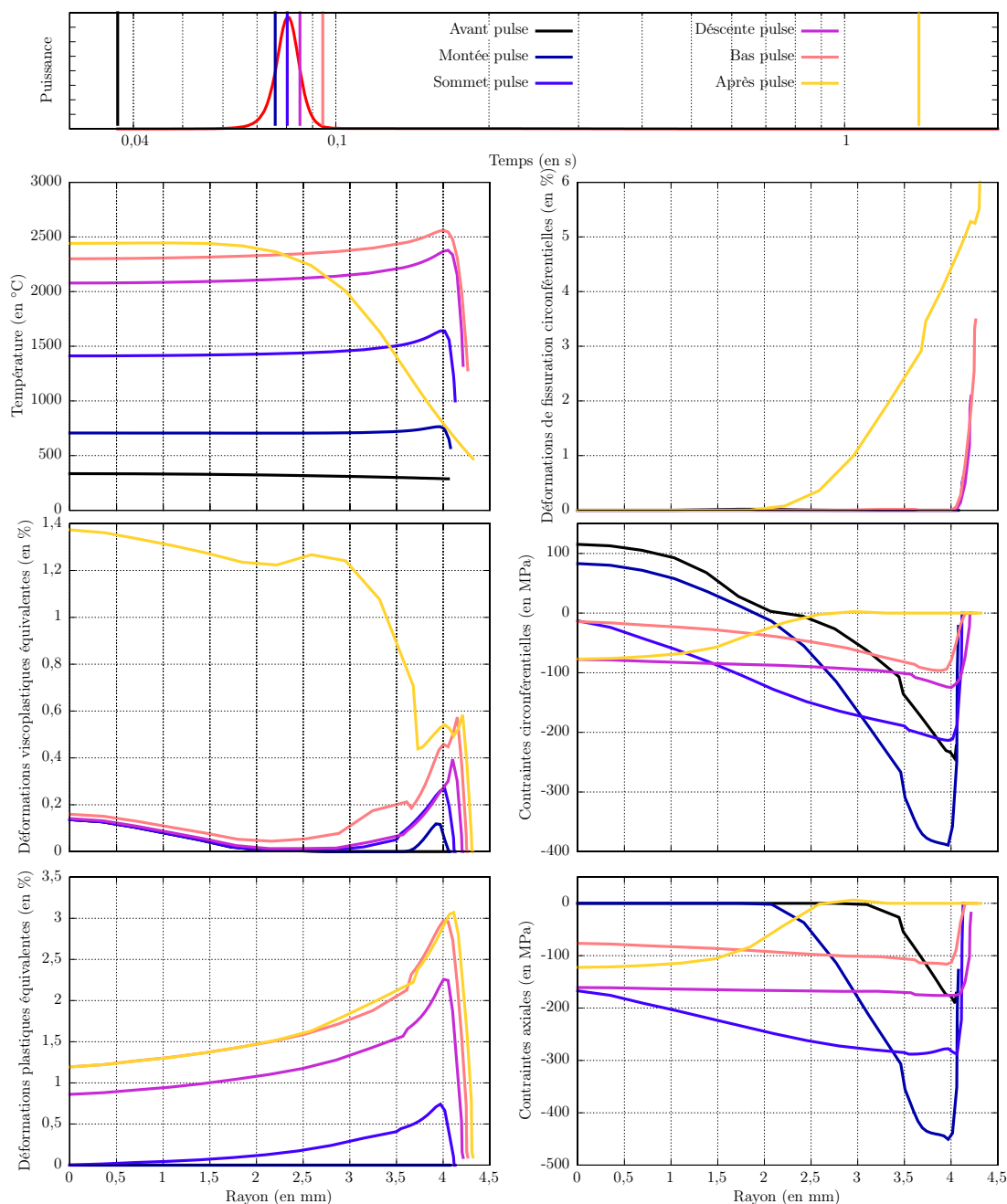


Figure 5.20. – Résultats de simulation 1D de REP-Na 2 au niveau du plan de flux maximum.

que pendant toute la durée du pulse la température dans le combustible augmente de façon quasi adiabatique sauf en périphérie où elle présente un profil piqué (voir les profils de température entre le sommet du pulse et le bas du pulse respectivement en bleu et orange sur la **Figure 5.20**). La présence de Pu fissile en quantité importante en périphérie de pastille est à l'origine de la puissance générée dans cette zone plus importante qu'au centre de la pastille et donc de la température plus élevée. Après le pic de puissance, le centre du combustible continue de chauffer jusqu'à atteindre 2500 °C puis les échanges de chaleur avec le caloporteur conduisent à un profil de température parabolique dans la pastille (voir les profils de température après pulse en jaune sur la **Figure 5.20**).

Le profil piqué de température et la dilatation gênée par le contact fort avec la gaine ont pour effet de comprimer fortement tout d'abord la périphérie du combustible. Les contraintes circonférentielles et axiales atteignent en effet -400 MPa dans cette zone (voir les profils de contraintes au sommet du pulse en bleu sur la **Figure 5.20**). Cette compression bi-axiale atteint son maximum lors de la phase de montée en puissance. Par la suite, l'étalement radial du pic de température ainsi que la réouverture du jeu entre la pastille et la gaine relaxent les contraintes de compression en périphérie. La zone comprimée s'étend progressivement jusqu'au centre de la pastille. Lorsque le profil de température devient parabolique, la périphérie passe en traction. Le critère de fissuration est alors rapidement atteint et les contraintes deviennent nulles (voir les profils de contraintes après pulse en jaune sur la **Figure 5.20**). Une forte fissuration radiale apparaît alors en périphérie de pastille (matérialisée par la déformation de fissuration circonférentielle). Comme le niveau de température au centre de la pastille est très élevé dans cet essai du fait de la forte énergie injectée, la compression biaxiale du centre de la pastille, associée au profil parabolique est importante ( $\sim -150$  MPa).

En lien avec les zones fortement comprimées, le développement de la fragmentation (modélisée par la déformation plastique équivalente) se fait ainsi en 2 étapes :

- Pendant la montée en puissance, les déformations plastiques apparaissent surtout en périphérie de pastille (voir les profils de déformation plastique équivalente au sommet du pulse en bleu sur la **Figure 5.20**).
- Après le pic de puissance, la compression généralisée du centre de la pastille conduit à une fragmentation qui progresse sur tout le rayon (voir les profils de déformation plastique équivalente en bas et après pulse respectivement en orange et jaune sur la **Figure 5.20**).

Les niveaux de déformations plastiques sont très élevés ( $> 0,5$  % et jusqu'à 3 % en périphérie). Du fait de l'apparition de la fragmentation des joints de grains, la déformation viscoplastique reste modérée pendant la montée en puissance et augmente rapidement après le pic de puissance (phase à haute température).



Ces résultats sont en très bon accord avec les observations expérimentales.

### 5.4.5. REP-Na 3

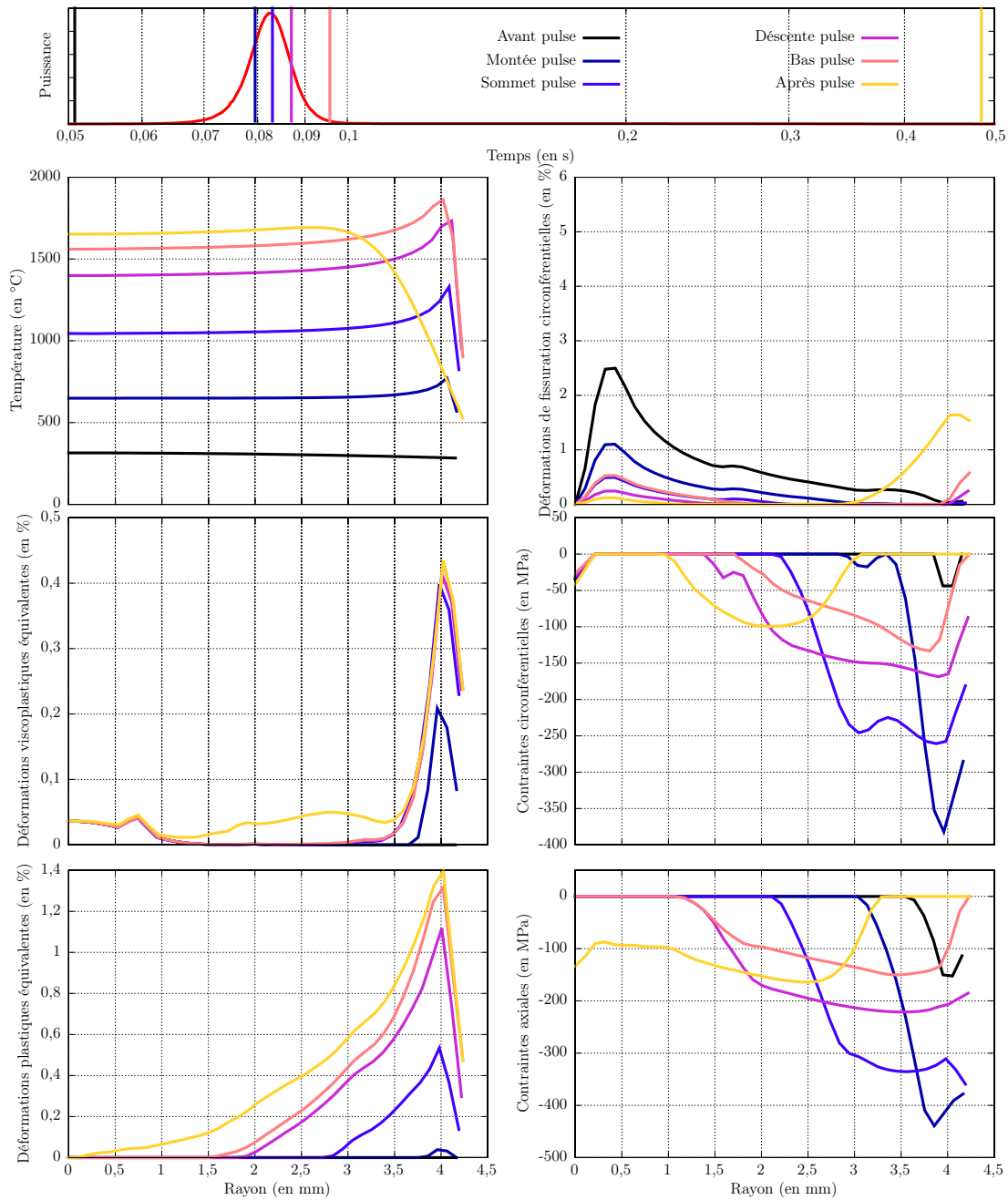


Figure 5.21. – Résultats de simulation 1D de REP-Na 3 au niveau du plan de flux maximum.

Durant la simulation de l'essai REP-Na3 (voir **Figure 5.21**) le profil de température en périphérie est plus piqué que pour REP-Na2 mais la température atteint une valeur plus faible (maximum 1700 °C). Cette différence de température provient du fait que la puissance déposée pendant l'essai REP-Na 3 est environ 2 fois plus faible que celle de l'essai REP-Na2. Le taux de combustion de 53 GWj/t de REP-Na 3 contre 33 GWj/t pour REP-Na 2 explique qu'en périphérie, le pic de température soit plus marqué du fait de la présence de Pu en plus grande quantité.

Les profils et l'évolution des contraintes ( $\sigma_{\theta\theta}$  et  $\sigma_{zz}$ ) sont similaires à ceux de REP-Na 2. La fissuration radiale est quant à elle présente au centre de la pastille avant le pulse (liée au chargement de la pastille pendant l'irradiation en réacteur commercial avant le pulse) puis les fissures se referment pendant le pulse et des fissures apparaissent en périphérie après le pulse.

Concernant la fragmentation des joints de grains, seule la périphérie du combustible présente une déformation plastique significative. Le critère de fragmentation est d'autre part atteint surtout pendant le pulse de puissance lorsque le profil de température est piqué en périphérie de pastille. L'établissement du profil parabolique ne conduit pas à un accroissement ou à une extension radiale de la plasticité comme pour REP-Na 2. Ce résultat est dû à la plus faible température au centre de la pastille et donc au plus faible gradient de température qui régule les contraintes de compression dans cette zone. Les déformations plastiques sont supérieures à 0,5 % entre  $r = 3$  mm et la périphérie de la pastille. Ces résultats sont de nouveau en très bon accord avec les observations expérimentales.

Les déformations viscoplastiques n'apparaissent qu'en périphérie et restent faibles.

#### 5.4.6. REP-Na 5

Les conditions d'essais de REP-Na 5 sont proches de celles de REP-Na 3 mais le taux de combustion est un peu plus élevé et la puissance 20 % plus faible. Pour autant, les résultats de la simulation de l'essai REP-Na 5 sont comparables à ceux de REP-Na 3. Le taux de combustion du combustible et la faible durée du pulse font que la température présente un profil piqué très prononcé en périphérie et atteint une valeur maximale de 1500 °C après le pulse. La plus faible énergie déposée (105 cal/g pour 120 cal/g dans le cas de REP-Na 3) est à l'origine des différences de température (1500 °C pour 1700 °C dans le cas de REP-Na 3).

Le profil piqué de température induit une forte compression bi-axiale en périphérie de pastille avec des contraintes circonférentielle et axiale qui atteignent respectivement -350 MPa et -400 MPa. Après le pulse, le profil parabolique de température dans la pastille fait que les contraintes en périphérie deviennent nulles (après fissuration en traction) alors que le centre de la pastille se retrouve en compression à des niveaux plus faibles ( $\sim -100$  MPa). Comme pour REP-Na 3, les fissures radiales présentent avant le pulse au centre de la

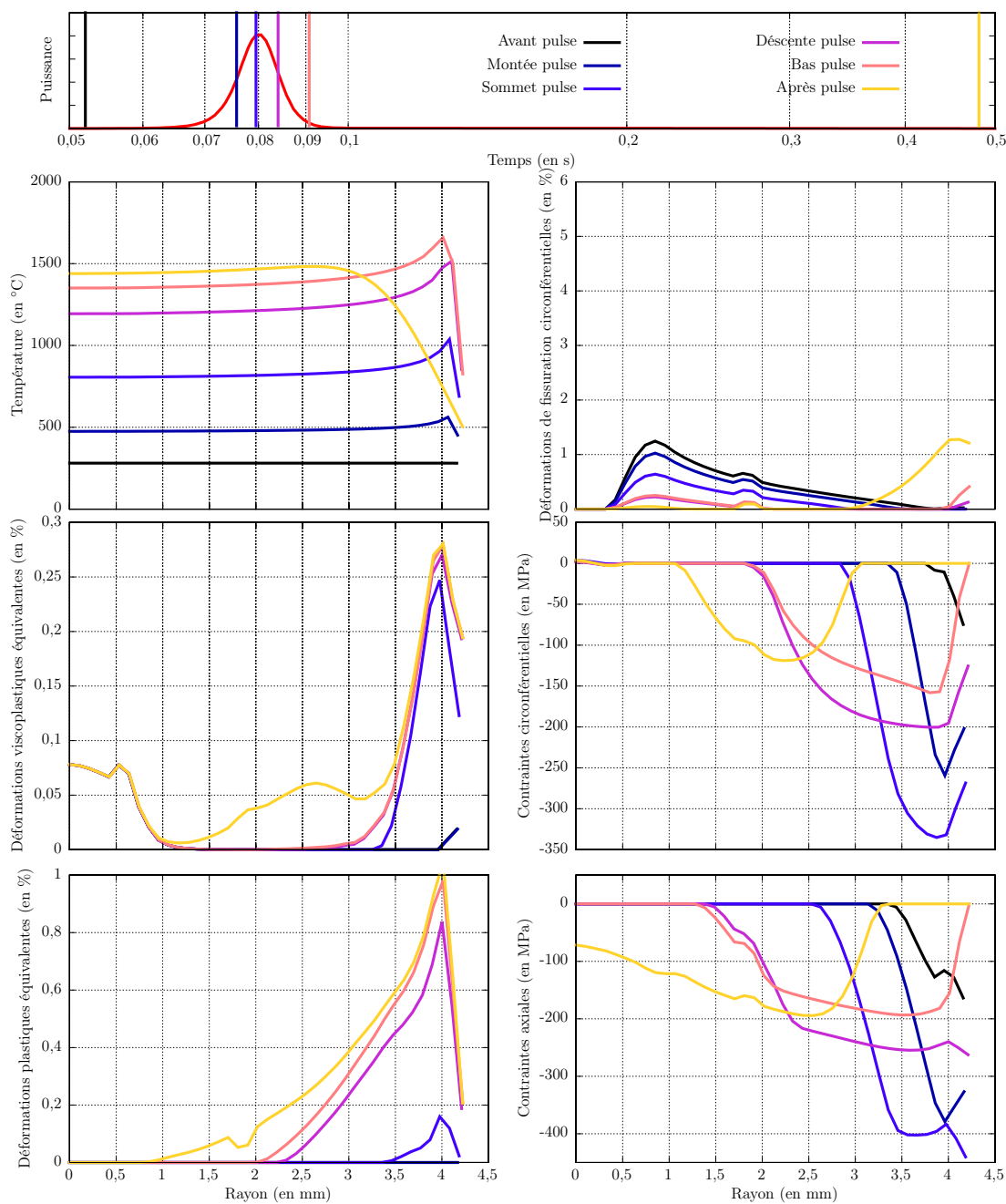


Figure 5.22. – Résultats de simulation 1D de REP-Na5 au niveau du plan de flux maximum.

pastille se referment pendant le pulse. Des fissures radiales s'ouvrent en peau externe de la pastille.

Enfin, de façon similaire à REP-Na 3, la déformation plastique augmente rapidement en périphérie lors de la montée en puissance ce qui est cohérent avec la fragmentation des joints de grains observée dans cette zone. Les niveaux de déformation dépassent 0,5 % pour un rayon supérieur à 3,2 mm.

#### 5.4.7. REP-Na 4

L'essai REP-Na 4 est particulièrement intéressant pour une comparaison avec REP-Na 5. Le crayon père est le même (taux de combustion identique), l'énergie injectée proche (90 cal/g pour 105 cal/g dans le cas de REP-Na 5). Le pulse de l'essai REP-Na4 a par contre une durée de 70 ms contre 9,5 ms pour les autres essais (ce pulse est donc un pulse "lent").

De ce fait, le profil de température de la simulation de l'essai REP-Na4 est plat pendant la durée du pulse puis parabolique après le transitoire de puissance. Il ne présente pas le pic de température en périphérie caractéristique des pulses "rapides". La température maximale atteinte au centre de la pastille une seconde après la fin du pulse est de 1350 °C, ce qui est un peu plus faible que celle de REP-Na 5 du fait d'une énergie injectée lors du pulse plus faible.

Du fait de l'accrochage axial avec la gaine qui bride la dilatation de la pastille, des contraintes de compression sont bien présentes en périphérie mais n'atteignent que -300 MPa et -350 MPa respectivement en contraintes circonférentielle et axiale. Comme pour REP-Na 5 les contraintes s'annulent en périphérie du fait de la fissuration en traction et une compression bi-axiale apparaît au centre du combustible (-130 MPa - -280 MPa après le pulse).

Les déformations plastiques apparaissent d'abord en périphérie de pastille puis au centre. Elles restent néanmoins faibles (< 0,1 %) ce qui est cohérent avec le fait que le combustible ne présente aucune fragmentation significative des joints de grain après essai.

#### 5.4.8. Conclusion

Les résultats des simulations des REP-Na 2, 3, 4, 5 menées avec le code de calcul ALCYONE-RIA en utilisant la loi L3F pour modéliser le comportement du combustible sont résumés dans le **Tableau 5.5**. Ces simulations montrent que :

- Le profil de température est influencé par l'ensemble des paramètres propres au combustible et à l'essai :
- Plus l'énergie déposée dans le combustible au cours du pulse est importante, plus la température maximale qui est atteinte au centre de la pastille en fin de pulse est élevée,

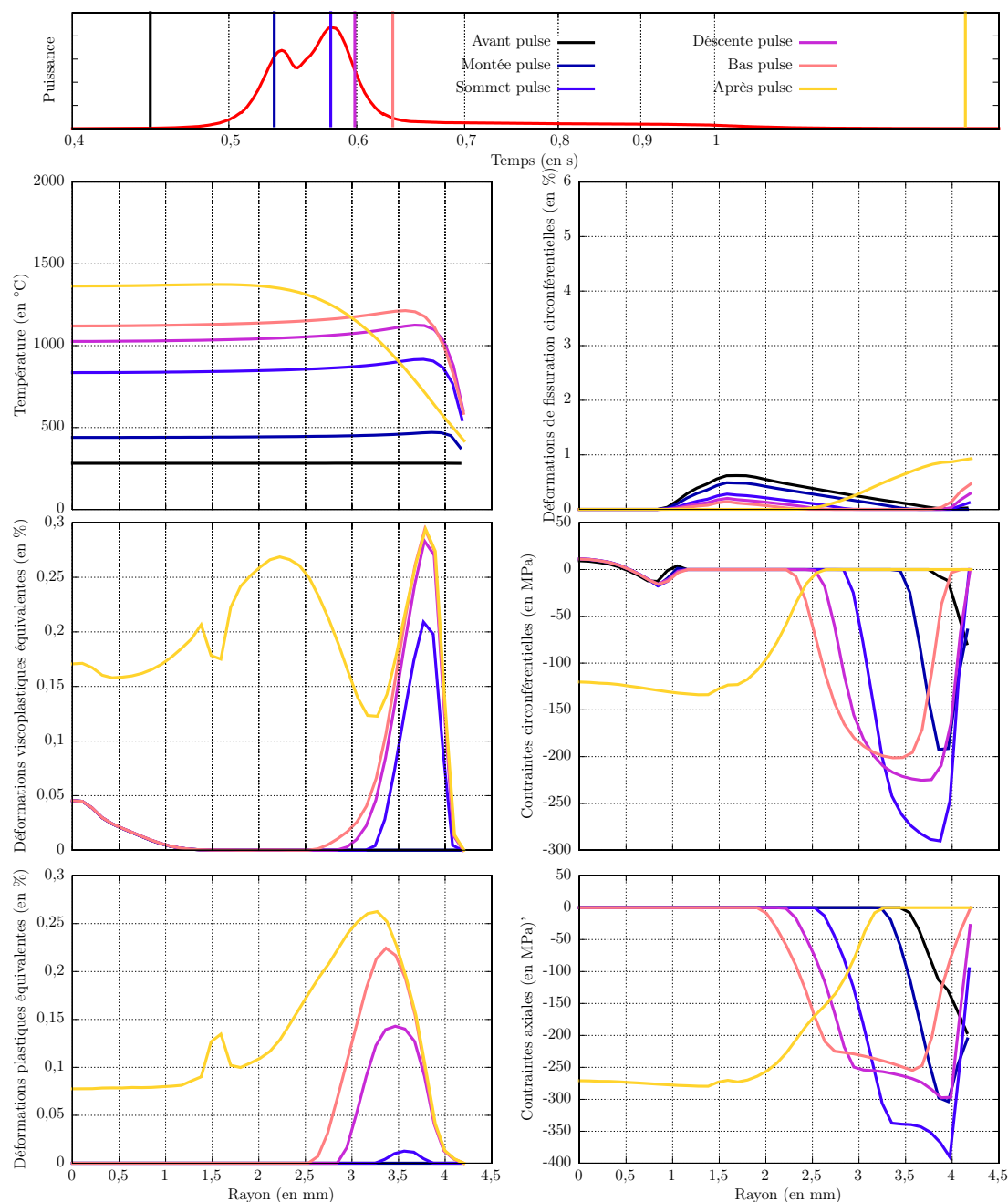
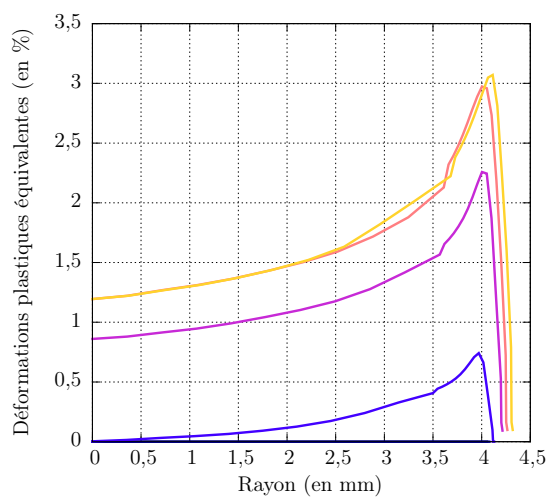


Figure 5.23. – Résultats de simulation 1D de REP-Na4 au niveau du plan de flux maximum.

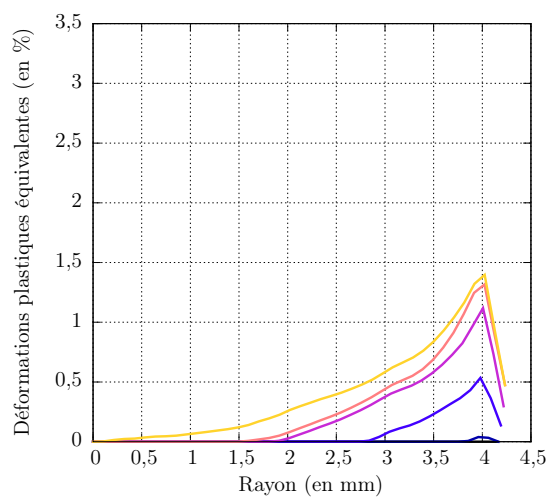
Essai	REP-Na 2	REP-Na 3	REP-Na 4	REP-Na 5
Taux de combustion (GWj/t)	33	53	62	64,4
Énergie du pulse (cal/g)	211	120	95	105
Largeur à mi-hauteur (ms)	9,5	9,5	70	9,5
Gaz de fission relâchés (%)	6	14	8,5	15
Fissuration radiale	Fissures principales sur tout le rayon	Fissures principales sur tout le rayon et réseau de petites fissures en périphérie	Fissures principales sur tout le rayon et réseau de petites fissures en périphérie	Fissures principales sur tout le rayon et réseau de petites fissures en périphérie
Fragmentation expérimentale	Tout le rayon	Périphérie	Absente	Périphérie
Fragmentation simulée	$pl > 0,5 \%$ sur tout le rayon	$pl > 0,5 \%$ pour $r > 3 \text{ mm}$	$pl < 0,1 \%$	$pl > 0,5 \%$ pour $r > 3.2 \text{ mm}$
Profil de température	Piqué puis parabolique	Très piqué puis parabolique	Plat puis parabolique	Très piqué puis parabolique
Température max.	2680 °C	1924 °C	1610 °C	1690 °C

Tableau 5.5. – Synthèse des résultats de simulation des essais REP-Na.

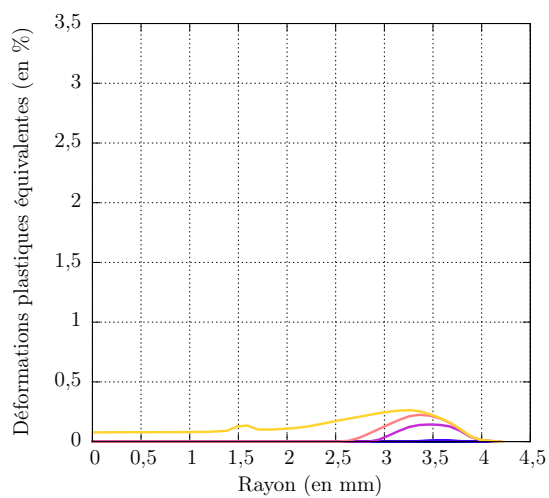
REP-Na 2



REP-Na 3



REP-Na 4



REP-Na 5

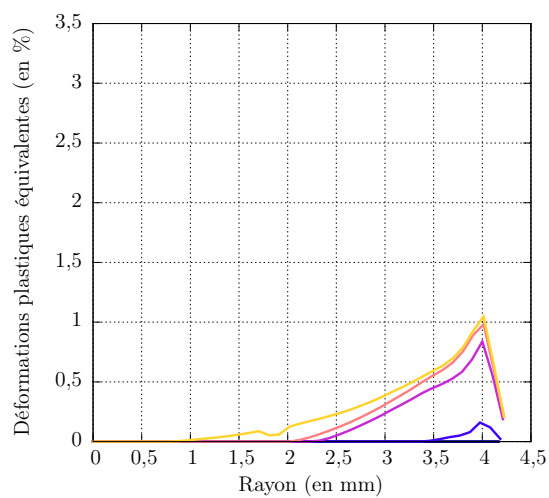


Figure 5.24. – Comparaison des déformations plastiques équivalentes calculées au cours des pulses REP-Na.

- Plus le taux de combustion du combustible avant pulse est élevé, plus le profil piqué en périphérie de pastille est prononcé,
- Le profil piquée est contrôlé par la durée du pulse. Une durée de pulse de 70 ms fait disparaître le pic de température.
- Après le pulse, un profil de température parabolique s'établit dans la pastille.
- Les contraintes dans la pastille sont liées au profil de température et à l'accrochage axial avec la gaine (dilatation gênée) :
  - Plus le pic de température est élevé en périphérie de pastille, plus les contraintes de compression sont importantes dans cette zone. L'amplitude des contraintes est donc liée à la durée du pulse et au taux de combustion.
  - Après le pulse de puissance, le profil de température parabolique dans la pastille conduit à la mise en compression du centre et à la mise en traction de la périphérie. L'amplitude des contraintes dépend surtout de l'énergie injectée.
- Les déformations de fissuration sont sensiblement identiques d'un essai à l'autre :
  - Elles apparaissent en périphérie de pastille uniquement lors de l'établissement du profil parabolique de température.
  - Elles ne peuvent expliquer les différences de fragmentation et de relâchement de gaz entre les essais.
- Les déformations plastiques (voir **Figure 5.24**) apparaissent dans la pastille en 2 temps :
  - Lors du pulse de puissance, la pastille plastifie d'abord en périphérie là où les contraintes de compression sont maximales. Les niveaux de déformation sont d'autant plus forts que le pulse est rapide et que le taux de combustion est élevé.
  - Après le pulse et si la température est suffisante, le centre de la pastille plastifie à son tour.
- La fragmentation des joints de grains ne dépend donc pas seulement du taux de combustion du combustible et donc de la quantité de gaz aux joints de grain :
  - Une durée de pulse trop importante ne conduit pas à l'apparition d'une fragmentation des joints de grains dans les calculs.
  - La bonne adéquation entre les simulations et les observations après essais concernant les zones présentant de la fragmentation des joints de grains tend à montrer que ce phénomène peut s'expliquer, en RIA, en grande partie à partir de la mécanique du combustible.



## 5.5. Synthèse

Le programme CABRI REP-Na a permis d'étudier le comportement des combustibles des REP dans des conditions représentatives d'un RIA. Les paramètres d'intérêt étaient le taux de combustion, l'énergie déposée et la durée du pulse. La déformation de la gaine, la fissuration du combustible et la fragmentation des joints de grains dans celui-ci ont été mesurées ou observées après essais. Les résultats expérimentaux ont montré une forte interaction pastille gaine, avec la présence de plis parfois marqués dans la gaine, liés à la forme prise par la pastille durant l'essai. Les pastilles des essais REP-Na 3, 4 et 5 présentent des fissures radiales principales traversant la pastille de part en part, attribuées à l'irradiation en réacteur et un réseau de nombreuses petites fissures radiales partant de la périphérie de la pastille. Dans l'essai REP-Na 2, seules les fissures principales sont visibles. Aucune fragmentation des joints de grains n'est visible dans la pastille après l'essai REP-Na 4 alors qu'elle apparaît sur l'ensemble du rayon pastille après l'essai REP-Na 2 et seulement en périphérie après les essais REP-Na 3 et 5. Il n'y a pas de lien apparent entre la fragmentation des joints de grain et la fissuration radiale.

A partir du modèle de fluage compressible décrit au chapitre précédent, une loi de comportement nommée L3F a été définie en ajoutant à la formulation le fluage d'irradiation et la fissuration macroscopique en traction. Cette loi a alors été utilisée dans le code Alcyone-RIA pour simuler les essais REP-Na à l'aide d'une modélisation 1D axisymétrique du crayon combustible.

Les résultats de simulation montrent que, dans tous les cas, pendant la totalité de la durée du pulse, la température augmente de façon quasi adiabatique dans la pastille hormis en périphérie où elle présente un pic plus ou moins prononcé. Ce profil de température engendre lors de la montée en puissance une compression bi-axiale en périphérie de pastille. En conséquence, le critère de plasticité est atteint très rapidement dans cette zone. Les niveaux de déformations plastiques en périphérie de pastille sont surtout fonction de la durée du pulse (elles augmentent avec la vitesse du pulse). Après le transitoire de puissance, la température continue d'augmenter au centre de la pastille alors qu'un refroidissement s'effectue par l'extérieur. Un profil parabolique s'établit. Les contraintes en périphérie passent de compression à traction alors que le centre de la pastille se retrouve en compression. Si l'énergie injectée et donc la température au centre de la pastille est suffisante, le critère de plasticité est alors atteint dans cette zone. Les zones d'apparition ou non de fragmentation des joints de grains sont en très bon accord avec les observations expérimentales. La fragmentation se produit sur tout le rayon de la pastille de l'essai REP-Na 2 alors qu'elle n'est que périphérique après les essais REP-Na 5 et REP-Na 3. Elle est négligeable après l'essai REP-Na 4.

La fragmentation des joints de grains conditionne les différences de relâchement de gaz de fission entre les essais REP-Na. À partir de l'inventaire pré-essai,

nos résultats devraient permettre d'expliquer par exemple le relâchement de gaz plus important lors de l'essai REP-Na 5 comparativement à l'essai REP-Na 4.

Finalement, la modélisation du comportement mécanique de l' $\text{UO}_2$  irradié a été faite en se basant sur une loi de comportement établie sur matériaux non irradiés et en faisant comme seule hypothèse que les pores sont incompressibles du fait de la forte pression exercée par les gaz de fission.

# Conclusion

En réacteur, en fonctionnement normal et lors des rampes de puissance, le combustible  $\text{UO}_2$ , sous forme de pastille, est soumis à de fortes températures ( $> 1000\text{ }^\circ\text{C}$ ) mais à de faibles vitesses de déformation ( $< 10^{-5}\text{ /s}$ ). Ainsi, le fluage de l' $\text{UO}_2$  a largement été étudié dans ces gammes de sollicitation. La déformation sous charge constante du matériau a ainsi été classée en 2 domaines dépendant du niveau de sollicitations (température-contrainte). Le premier correspond à une déformation contrôlée par la diffusion du cation  $\text{U}^{4+}$  selon un mécanisme de type Coble et peut être modélisé par une loi puissance  $\dot{\epsilon} \propto \sigma^n$  avec  $n \approx 1$ . Le deuxième correspond à une déformation contrôlée par le mouvement des dislocations et peut être également modélisé par une loi puissance avec un exposant  $n$  entre 4 et 8. L'endommagement de l' $\text{UO}_2$  dans ces mêmes conditions, principalement étudié par des essais de flexion, a, quant à lui, été classé selon 3 domaines. À faible température, la rupture est fragile et intragranulaire. La fissuration est amorcée à partir des pores présents dans le matériau. À température intermédiaire, la rupture apparaît toujours fragile mais ce sont les dislocations qui en sont à l'origine. À haute température, la fissuration devient intergranulaire, la rupture est progressive et totalement ductile. L'effet de divers paramètres (densité, taille de grain,...) a également fait l'objet d'études spécifiques.

Les nombreuses lois de comportement qui ont été déduites de ces essais ne permettent néanmoins pas de rendre compte du comportement du combustible lors d'un Accident d'Injection de Réactivité durant lequel la température dépasse les  $1000\text{ }^\circ\text{C}$  avec des vitesses de déformation de l'ordre de  $1\text{ /s}$ . Très peu d'études matériau ont d'autre part été menées à ces vitesses de déformation. Les quelques résultats obtenus font ressortir l'apparition d'un troisième régime de déformation contrôlé par les forces de Peierls-Nabarro, présentant un exposant  $n$  de plus de 20, et généralement modélisé par une loi en sinus hyperbolique.

Afin de palier à ce manque, une étude du comportement mécanique du combustible  $\text{UO}_2$  à haute température et à forte vitesse de déformation a été effectuée sur un premier lot de pastilles industrielles. Cette étude s'est basée sur une grille d'essais de compression à températures contrôlées de  $1100\text{ }^\circ\text{C}$ ,  $1350\text{ }^\circ\text{C}$ ,  $1550\text{ }^\circ\text{C}$  et  $1700\text{ }^\circ\text{C}$  et à des vitesses de déformation imposées de  $10^{-4}\text{ /s}$ ,  $10^{-3}\text{ /s}$ ,  $10^{-2}\text{ /s}$  et  $10^{-1}\text{ /s}$ . Les résultats obtenus ont confirmé une dépendance à la contrainte d'écoulement avec un exposant proche de 20 lorsque les résultats

sont analysés avec une loi puissance. La dépendance à la température est, quant à elle, plus prononcée à faible température qu'à forte température. L'observation de la microstructure après essai a révélé une diminution de la porosité par écrasement des pores préférentiellement au centre des pastilles alors qu'aucune fissure ou microfissure n'était apparente. Une loi de fluage en sinus hyperbolique incluant la compressibilité de la porosité a alors été mise au point et validée par des simulations élément finis des essais expérimentaux. Le bon comportement de la loi lors d'essais de fluage à plus faibles vitesses de déformation (entre  $10^{-9}$  /s et  $10^{-4}$  /s) a alors été vérifié. **Il a ainsi été montré qu'une unique formulation en  $\sinh$  pouvait rendre compte de l'évolution de la vitesse de déformation de fluage avec la contrainte et la température dans les 3 domaines considérés habituellement avec les lois puissances.**

Suite au rôle important de la porosité apparu lors de cette première campagne, une seconde étude expérimentale sur un combustible présentant une forte densité ( $> 98$  % contre 96 % pour le premier lot) a ensuite été menée suivant la même grille d'essais. Les résultats ont confirmé la forte dépendance de la contrainte d'écoulement à la porosité initiale et montré l'apparition d'une fragmentation des joints de grain au centre des pastilles testées à  $10^{-1}$  /s et à des températures de 1550 °C et 1700 °C, soit aux températures et vitesses les plus élevées. Une modification de la dépendance du modèle de fluage en  $\sinh$  à la contrainte hydrostatique a alors été proposée afin de décrire correctement le comportement des 2 lots de pastille. L'apparition de la fragmentation des joints de grain a quant à elle été modélisée par un critère de plasticité de Drucker-Prager avec une contrainte seuil dépendant de la température. Une loi de plasticité associée a été utilisée afin de traduire au niveau macroscopique l'augmentation de volume associée à l'ouverture des joints de grain. **La simulation des essais par éléments finis a montré l'aptitude du modèle à retrouver l'apparition préférentielle de la fragmentation au centre des pastilles.**

Les modèles de fluage et de fragmentation développés dans ces deux premières études ont alors été introduits dans le code combustible ALCYONE-RIA et couplés à un modèle de fissuration en traction déjà implémenté. Les résultats et les caractéristiques de 4 essais du programme REP-Na réalisés dans le réacteur expérimental CABRI ont alors été présentés en focalisant la comparaison sur l'état du combustible  $\text{UO}_2$  à l'issue de ces derniers. La simulation de ces transitoires de puissance avec ALCYONE-RIA et la loi de comportement L3F (pour Loi Fissuration-Fluage-Fragmentation) montre que l'état de compression biaxiale en périphérie des pastilles conduit à l'atteinte du critère de fragmentation lors des pulses rapides sur combustibles moyennement irradiés (REP-Na 2) ou rapides sur combustibles fortement irradiés (REP-Na 3 et 5). La fragmentation s'étend alors à toute la surface des pastilles uniquement lors de pulses très énergétiques (REP-Na 2). Ces différents résultats de calcul sont en bon accord avec les observations post-pulse. **Ces calculs montrent qu'un**

**modèle de fragmentation établi sur des critères uniquement mécaniques et sur  $\text{UO}_2$  non irradié est a priori capable de rendre compte des observations post-pulse.**



# Perspectives

Les perspectives à cette étude sont nombreuses, aussi bien sur le plan expérimental que sur le plan de la modélisation.

Une validation plus approfondie du modèle de fluage en  $\sinh$  est nécessaire. Tout d'abord, un ajustement des paramètres ( $K_0$ ,  $Q$  et  $\sigma_0$ ) doit être fait sur une base expérimentale plus étendue en termes de sollicitations (températures et vitesses de déformation). Ensuite, une amélioration de la dépendance du modèle à la porosité est envisageable, soit par modification des fonctions  $\alpha$  et  $\beta$ , soit par l'ajout d'une dépendance à la porosité directement dans le paramètre  $\sigma_0$ . Cette modification nécessiterait une étude expérimentale plus large de l'effet de la porosité sur le comportement mécanique de l' $\text{UO}_2$ . Cette caractérisation pourrait également être l'occasion d'étudier l'effet de la répartition (inter-intra-granulaire) de la porosité sur l'endommagement et surtout sur la fragmentation des joints de grain.

Comme la plupart des modèles de fluage pour l' $\text{UO}_2$ , la formulation proposée dans ce travail a été ajustée uniquement sur des essais de compression uniaxiaux. Or le chargement est tout sauf uniaxial en RIA. Des études expérimentales dédiées en flexion ou en compression biaxiale seraient donc de ce point de vue très instructives.

La modélisation de la fragmentation des joints de grain, à l'échelle macroscopique, à l'aide d'une déformation plastique associée à un critère de Drucker-Prager, doit également être consolidée. Tout d'abord, le seuil de fragmentation en contrainte varie actuellement en fonction de la température. Cette variation, bien que déjà observée dans la littérature, nécessite une validation à l'aide de résultats expérimentaux sur une base plus large. Une étude expérimentale en compression à haute température et à des vitesses de déformation encore plus élevées pourrait apporter un éclairage. Dans la construction du modèle, il a également été fait l'hypothèse que la fragmentation des joints de grain en traction apparaissait pour une contrainte 10 % plus faible qu'en compression. Cette hypothèse pourrait être vérifiée ou infirmée par une étude expérimentale en flexion à haute température et forte vitesse de sollicitation. L'expansion volumique considérée dans le modèle de 0,15 % tous les 1 % de déformation plastique, et induite par la fragmentation des joints de grain, doit également faire l'objet d'une étude plus approfondie. Des mesures de variation de densité locale d'échantillons présentant de la fragmentation des joints de grain apporteraient des éléments de

réponse. Si les mesures ne coïncidaient pas avec l'hypothèse actuelle, le modèle de plasticité pourrait être modifié en utilisant un écoulement plastique non associé au critère de Drucker-Prager.

De manière évidente, la taille de grain est un paramètre de premier ordre vis-à-vis de la fragmentation en compression. Comme il avait été un temps suggéré de tester des combustibles à gros grains dans la boucle à eau pressurisée du réacteur CABRI, il semble important d'étudier la dépendance à ce paramètre dans un futur proche.

La formulation de la loi L3F incluant fissuration en traction, fragmentation des joints de grain en traction et compression et fluage pourrait également faire l'objet d'un travail approfondi. La définition et la discussion de l'ensemble des couplages possibles entre les trois phénomènes dans le cadre de la thermodynamique des milieux continus serait souhaitable. Par exemple, il est clair que la fragmentation doit impacter la fissuration et inversement que la porosité influe sur les seuils de fissuration et de fragmentation.

En l'attente d'essais coûteux en temps, des simulations avec les modèles d'agrégats développés au CEA pourraient apporter des réponses rapides sur la fragmentation. La dépendance à la température (ou vitesse de déformation), les variations de volumes associées, l'importance de la biaxialité vis-à-vis du phénomène sont autant de points pouvant être abordés par ces simulations. Le niveau de maturité important de ces simulations incluant la fissuration des joints de grain et le fluage des grains devrait permettre le développement d'approches macroscopiques plus adaptées aux calculs combustible à l'échelle du crayon.

Enfin, le modèle de fragmentation présenté dans ce travail pourrait être rapidement couplé aux modèles de relâchement des gaz de fission disponibles dans le code ALCYONE-RIA. La variation de volume plastique pourra alors être utilisée pour définir la vitesse d'ouverture des joints de grain et le relâchement associé. Les résultats obtenus devraient permettre de différencier les pulses de ce point de vue, en cohérence avec les mesures de relâchement par perçage effectuées après irradiation.



# Bibliographie

- (ALAMO 1978) ALAMO, A., J.M. LEFEBVRE et J. SOULLARD (1978). « Déformation plastique du bioxyde d'uranium : Observation des sous-structures de dislocations ». *Journal of Nuclear Materials* 75.1, p. 145–153 (cf. p. 32).
- (ALEXANDER 1968) ALEXANDER, H et P HAASEN (1968). *Solid State Physics*, 22, edited by H. Ehrenreich, and J. Turnbull (cf. p. 52, 54).
- (ARMSTRONG 1966) ARMSTRONG, W.M., A.R. CAUSEY et W.R. STURROCK (1966). « Creep of single-crystal  $\text{UO}_2$  ». *Journal of Nuclear Materials* 19.1, p. 42–49 (cf. p. 32).
- (ARMSTRONG 1963) ARMSTRONG, W.M. et W.R. IRVINE (1963). « Creep deformation of non-stoichiometric uranium dioxide ». *Journal of Nuclear Materials* 9.2, p. 121–127 (cf. p. 32).
- (ARMSTRONG 1962) ARMSTRONG, W.M., W.R. IRVINE et R.H. MARTINSON (1962). « Creep deformation of stoichiometric uranium dioxide ». *Journal of Nuclear Materials* 7.2, p. 133–141 (cf. p. 32, 45, 50, 141).
- (ASHBY 1972) ASHBY, M.F (1972). « A first report on deformation-mechanism maps ». *Acta Metallurgica* 20.7, p. 887–897 (cf. p. 102).
- (BASINI 2001) BASINI, V. et A. MOCELLIN (2001). *Internal report, CEA, Cadarache* (cf. p. 143, 145).
- (BAZANT 1997) BAZANT, Zdenek P et Jaime PLANAS (1997). *Fracture and size effect in concrete and other quasibrittle materials*. T. 16. CRC press (cf. p. 146, 147).
- (BESSON 2004) BESSON, Jacques (2004). « Application de l'approche locale de la rupture à la simulation de la fissuration des structures : problèmes numériques liés à l'existence d'une longueur interne ». *Mécanismes et mécanique des matériaux et structures à longueur interne : comportement et effets d'échelles*

(cf. p. 177).

**(BOHABOY 1969)** BOHABOY, P.E., R.R. ASAMOTO et A.E. CONTI (1969). *Compressive Creep Characteristics of Stoichiometric Uranium Dioxide*. GEAP-10054. General Electric Co., Sunnyvale, Calif. Breeder Reactor Development Operation (cf. p. 36, 50, 98).

**(BRUCKLACHER 1972)** BRUCKLACHER, D et W DIENST (1972). « Creep behavior of ceramic nuclear fuels under neutron irradiation ». *Journal of Nuclear Materials* 42.3, p. 285–296 (cf. p. 174).

**(BURTON 1973)** BURTON, B. et G.L. REYNOLDS (1973). « The diffusional creep of uranium dioxide : its limitation by interfacial processes ». *Acta Metallurgica* 21.8, p. 1073–1078 (cf. p. 32).

**(BYRON 1968a)** BYRON, J.F. (1968a). « The yield and flow of single crystals of uranium dioxide ». *Journal of Nuclear Materials* 28.1, p. 110–114 (cf. p. 32).

**(BYRON 1968b)** BYRON, J.F. (1968b). « Yield and flow of polycrystalline uranium dioxide ». *Journal of Nuclear Materials* 27.1, p. 48–53 (cf. p. 32–35, 102, 120).

**(CANON 1971)** CANON, R.F., J.T.A. ROBERTS et R.J. BEALS (1971). « Deformation of UO<sub>2</sub> at High Temperatures ». *Journal of the American Ceramic Society* 54.2, p. 105–112 (cf. p. 29, 32, 47, 48, 88, 90, 120, 150).

**(CAST3M 2010)** CAST3M (2010). <http://www-cast3m.cea.fr>. URL : <http://www-cast3m.cea.fr/index.php> (cf. p. 108, 153, 191).

**(CAZALIS 2007)** CAZALIS, B. (2007). « The prometra program : Fuel cladding mechanical behavior under high strain rate ». *Nuclear technology* 157.3, p. 215–229 (cf. p. 24, 27).

**(CLOUGH 1970)** CLOUGH, DJ (1970). *IRRADIATION INDUCED CREEP OF CERAMIC FUELS*. Rapp. tech. United Kingdom Atomic Energy Authority, Harwell, Eng. (cf. p. 174).

**(CLOUGH 1977)** CLOUGH, DJ (1977). « Creep properties of oxide and carbide fuels under irradiation ». *Journal of Nuclear Materials* 65, p. 24–36 (cf. p. 174).

**(COLIN 2003)** COLIN, Christian (2003). « Étude du fluage du dioxyde d'uranium : caractérisation par essais de flexion et modélisation mécanique ».

- Thèse de doct. École Nationale Supérieure des Mines de Paris (cf. p. 30–32).
- (COUSSY 1995)** COUSSY, Olivier et Franz ULM (1995). *Mechanics of porous continua*. T. 1016. Wiley Chichester (cf. p. 148, 149).
- (CUNNINGHAM 2001)** CUNNINGHAM, ME (2001). « FRAPTRAN : a computer code for the transient analysis of oxide fuel rods ». *NUREGICR-6739 1* (cf. p. 23).
- (DA ROLD 2012)** DA ROLD, J. (2012). *Préparation métallographique des échantillons : polissage* (cf. p. 65).
- (DHERBEY 2000)** DHERBEY, Francine (2000). « Déformation à chaud du dioxyde d'uranium polycristallin : des mécanismes microscopiques au comportement macroscopique ». Thèse de doct. (cf. p. 136).
- (DHERBEY 2002a)** DHERBEY, Francine (2002a). « Elevated temperature creep of polycrystalline uranium dioxide : from microscopic mechanisms to macroscopic behaviour ». *Acta Materialia* 50.6, p. 1495–1505 (cf. p. 44, 50).
- (DHERBEY 2002b)** DHERBEY, F. (2002b). « Elevated temperature creep of polycrystalline uranium dioxide : from microscopic mechanisms to macroscopic behaviour ». *Acta Materialia* 50.6, p. 1495–1505 (cf. p. 98, 100, 102, 116, 120).
- (DOGHRI 2000)** DOGHRI, I. (2000). *Mechanics of deformable solids : linear, nonlinear, analytical, and computational aspects* (cf. p. 108).
- (DRUCKER 2013)** DRUCKER, Daniel Charles et William PRAGER (2013). « Soil mechanics and plastic analysis or limit design ». *Quarterly of applied mathematics* 10 (cf. p. 148).
- (DRUCKER 1973)** DRUCKER, DC (1973). « Plasticity theory strength-differential (SD) phenomenon, and volume expansion in metals and plastics ». *Metallurgical Transactions* 4.3, p. 667–673 (cf. p. 148).
- (EVANS 1969)** EVANS, A.G. et R.W. DAVIDGE (1969). « The strength and fracture of stoichiometric polycrystalline  $\text{UO}_2$  ». *Journal of Nuclear Materials* 33.3, p. 249–260 (cf. p. 46).
- (FEDERICI 2002)** FEDERICI, E. (2002). « The SCANAIR code version 3.2 : Main features and status of qualification ». *Proc. Of the Technical Committee Meeting*

- on Fuel Behaviour Under Transient and LOCA Conditions*, p. 88–101 (cf. p. 188).
- (FEENSTRA 1996)** FEENSTRA, Peter H et René DE BORST (1996). « A composite plasticity model for concrete ». *International Journal of Solids and Structures* 33.5, p. 707–730 (cf. p. 148).
- (FUKETA 1996)** FUKETA, T. (1996). « NSRR/RIA experiments with high-burnup PWR fuels ». *Nucl. Saf.* 37.4, p. 328–342 (cf. p. 23, 26).
- (FUKETA 2001)** FUKETA, T., H. SASAJIMA et T. SUGIYAMA (2001). « Behavior of high-burnup pwr fuels with low-tin zircaloy-4 cladding under reactivity-initiated-accident conditions ». *Nuclear technology* 133.1, p. 50–62 (cf. p. 23, 26, 27, 119).
- (FUKETA 2006)** FUKETA, T., T. SUGIYAMA et F. NAGASE (2006). « Behavior of 60 to 78MWd/kgU PWR Fuels under Reactivity-Initiated Accident Conditions ». *Journal of Nuclear Science and Technology* 43.9, p. 1080–1088 (cf. p. 23, 26).
- (FUKETA 1997)** FUKETA, T. (1997). « Fuel failure and fission gas release in high burnup PWR fuels under RIA conditions ». *Journal of Nuclear Materials* 248, p. 249–256 (cf. p. 23, 26, 27, 188).
- (GATT 2005)** GATT, JM (2005). *Comportement thermomécanique du combustible sous irradiation*. Rapp. tech. NT CEA/DEC/SESC/LSC 04-005 (cf. p. 174).
- (GEORGENTHUM 2014)** GEORGENTHUM, Vincent, Alain MOAL et Olivier MARCHAND (2014). « SCANAIR a transient fuel performance code Part two : Assessment of modelling capabilities ». *Nuclear Engineering and Design* (cf. p. 23).
- (GOLDBRONN 2013)** GOLDBRONN, P., J. SERCOMBE et B. MICHEL (2013). « Avancées de la simulation du comportement du combustible nucléaire en 3D et en transitoire rapide ». *21ème Congrès Français de Mécanique, 26 au 30 août 2013, Bordeaux, France (FR)* (cf. p. 23, 192).
- (GUÉRIN 1975)** GUÉRIN, Y. (1975). « Étude par compression à hautes températures de la déformation plastique du bioxyde d'uranium polycristallin ». *Journal of Nuclear Materials* 56.1, p. 61–75 (cf. p. 39–41, 50, 85, 87, 88, 90, 98, 100, 120, 125, 127).
- (GUÉRIN 1973)** GUÉRIN, Yannick (1973). « Étude par compression à hautes températures de la déformation plastique du bioxyde et du monocarbure

- d'uranium ». Thèse de doct. Gif-sur Yvette : C.E.N. Saclay (cf. p. 32).
- (HELPER 2006)** HELPER, Thomas (2006). « Etude de l'impact de la fissuration des combustibles nucléaires oxyde sur le comportement normal et incidentel des crayons combustible ». Thèse de doct. (cf. p. 177).
- (HELLOUIN DE MENIBUS 2012)** HELLOUIN DE MENIBUS, Arthur (2012). « Formation de blisters d'hydrures et effet sur la rupture de gaines en Zircaloy-4 en conditions d'accident d'injection de réactivité ». Thèse de doct. Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris (cf. p. 24).
- (IGATA 1973)** IGATA, N. et K. DOMOTO (1973). « Fracture stress and elastic modulus of uranium dioxide including excess oxygen ». *Journal of Nuclear Materials* 45.4, p. 317–322 (cf. p. 38, 77, 102, 120, 141, 143, 145).
- (JERNKVIST 2010)** JERNKVIST, L.O., A.R. MASSIH et J.I. de BETOU (2010). « A review of experiments and computer analyses on RIAs ». *Workshop on "Nuclear Fuel Behaviour during Reactivity Initiated Accidents"* (cf. p. 188).
- (JIANG 2004)** JIANG, B et GJ WENG (2004). « A theory of compressive yield strength of nano-grained ceramics ». *International Journal of Plasticity* 20.11, p. 2007–2026 (cf. p. 148).
- (JULIEN 2010)** JULIEN, J. (2010). *Internal report, CEA, Cadarache* (cf. p. 116).
- (LE SAUX 2008)** LE SAUX, Matthieu (2008). « Comportement et rupture de gaines en zircaloy-4 détendu vierges, hydrurées ou irradiées en situation accidentelle de type RIA ». Thèse de doct. École Nationale Supérieure des Mines de Paris (cf. p. 24, 27, 193, 195).
- (LECLERCQ 1998)** LECLERCQ, S (1998). « Modelling of the fuel mechanical behavior : from creep laws to internal variable models ». *Nuclear engineering and design* 185.2, p. 221–228 (cf. p. 52).
- (LEFEBVRE 1977)** LEFEBVRE, Jean-Marc (1977). « Contribution à l'étude de la déformation plastique d'une céramique de structure fluorite : le bioxyde d'uranium ». Thèse de doct. Gif-sur Yvette : C.E.N. Saclay (cf. p. 32).
- (LEMOINE 1997)** LEMOINE, F. (1997). « High burnup fuel behavior related to fission gas effects under reactivity initiated accidents (RIA) conditions ». *Journal of Nuclear Materials* 248, p. 238–248 (cf. p. 27, 120, 172).

- (LEMOINE 1997)** LEMOINE, F. et M. BALOURDET (1997). « RIA-related analytical studies and separate effect tests ». *International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance, Portland, Oregon*, p. 2–6 (cf. p. 27).
- (LESPIAUX 1997)** LESPIAUX, Didier, J NOIROT et P MENUT (1997). « Post-test Examinations of High burn-up PWR Fuels Submitted to RIA Transients in the CABRI Facility ». *International Topical Meeting on LWR Fuel Performance*, p. 650 (cf. p. 28, 170, 171).
- (LUCUTA 1996)** LUCUTA, PG, Hj MATZKE et IJ HASTINGS (1996). « A pragmatic approach to modelling thermal conductivity of irradiated  $\text{UO}_2$  fuel : Review and recommendations ». *Journal of Nuclear Materials* 232.2, p. 166–180 (cf. p. 192).
- (MACDONALD 1980)** MACDONALD, P.E. (1980). « Assessment of Light-Water-Reactor Fuel Damage During a Reactivity-Initiated Accident ». *Nucl. Saf. ; (United States)* 21 :5 (cf. p. 23).
- (MARTIN 1989)** MARTIN, D.G. (1989). « The elastic constants of polycrystalline  $\text{UO}_2$  and (U, Pu) mixed oxides : a review and recommendations ». *High Temperatures. High Pressures* 21.1, p. 13–24 (cf. p. 33, 108, 153).
- (MICHEL 2008)** MICHEL, B. (2008). « 3D fuel cracking modelling in pellet cladding mechanical interaction ». *Engineering Fracture Mechanics* 75.11, p. 3581–3598 (cf. p. 175).
- (MICHEL 2014)** MICHEL, B. (2014). « Microfissuration induite par la viscoplasticité dans les céramiques nucléaires ». *Matériaux 2014*. Montpellier, France (cf. p. 120, 147, 148).
- (MICHEL 1992)** MICHEL, J.C. et P. SUQUET (1992). « The constitutive law of nonlinear viscous and porous materials ». *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 40.4, p. 783–812 (cf. p. 100, 103).
- (MIEHE 2002)** MIEHE, C., N. APEL et M. LAMBRECHT (2002). « Anisotropic additive plasticity in the logarithmic strain space : modular kinematic formulation and implementation based on incremental minimization principles for standard materials ». *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering* 191.47–48, p. 5383–5425 (cf. p. 108).
- (MOAL 2014)** MOAL, Alain, Vincent GEORGENTHUM et Olivier MARCHAND (2014). « SCANAIR : A transient fuel performance code : Part One : General

- modelling description ». *Nuclear Engineering and Design* (cf. p. 23, 120).
- (MONERIE 2006)** MONERIE, Y. et J.M. GATT (2006). « Overall viscoplastic behavior of non-irradiated porous nuclear ceramics ». *Mechanics of Materials* 38.7, p. 608–619 (cf. p. 30, 54, 55, 58, 100, 101, 103, 136, 138).
- (NADEAU 1969)** NADEAU, J.S. (1969). « Dependence of Flow Stress on Nonstoichiometry in Oxygen-Rich Uranium Dioxide at High Temperatures ». *Journal of the American Ceramic Society* 52.1, p. 1–7 (cf. p. 36).
- (NDIAYE 2012)** NDIAYE, Abibatou (2012). « Combustible nucléaire  $\text{UO}_2$  à microstructures pilotées : compréhension des mécanismes d'élaboration et du comportement mécanique en température ». THESE. Université de Grenoble (cf. p. 45, 120, 121).
- (NOIROT 2003)** NOIROT, J. (2003). *Module POROPHASES, Outil de traitement d'images sous analySIS* (cf. p. 67).
- (NOIROT 2011)** NOIROT, L (2011). « MARGARET : A comprehensive code for the description of fission gas behavior ». *Nuclear Engineering and Design* 241.6, p. 2099–2118 (cf. p. 120).
- (OECD/NEA WORKSHOP 2009)** OECD/NEA WORKSHOP, éd. (2009). *Nuclear Fuel Behaviour during Reactivity Initiated Accidents*. Paris, France (cf. p. 188).
- (OGUMA 1982)** OGUMA, M. (1982). « Microstructure Effects on Fracture Strength of  $\text{UO}_2$  Fuel Pellets ». *Journal of Nuclear Science and Technology* 19.12, p. 1005–1014 (cf. p. 49, 50, 120, 141).
- (PACULL 2011)** PACULL, Julien (2011). « Modèle numérique micro-mécanique d'agrégat polycristallin pour le comportement des combustibles oxydes ». THESE. Université de Provence - Aix-Marseille I (cf. p. 120, 147).
- (PALMER 1983)** PALMER, ID, KW HESKETH et PA JACKSON (1983). « A model for predicting the radial power profile in a fuel pin ». (Cf. p. 192).
- (PAPIN 1996)** PAPIN, J. (1996). « French studies on high-burnup fuel transient behavior under RIA conditions ». *Nucl. Saf.* 37.4, p. 289–327 (cf. p. 188).
- (PAPIN 2007)** PAPIN, J. (2007). « Summary and interpretation of the CABRI REP-Na program ». *Nuclear Technology* 157.3, p. 230–250 (cf. p. 23, 26, 27,

119).

**(PERRIN 1971)** PERRIN, JS (1971). « Irradiation-induced creep of uranium dioxide ». *Journal of Nuclear Materials* 39.2, p. 175–182 (cf. p. 174).

**(RADFORD 1979)** RADFORD, K.C. (1979). « Effect of fabrication parameters and microstructure on the mechanical strength of UO<sub>2</sub> fuel pellets ». *Journal of Nuclear Materials* 84.1, p. 222–236 (cf. p. 48, 49, 120, 141).

**(RADFORD 1975)** RADFORD, K.C. et G.R. TERWILLIGER (1975). « Compressive Deformation of Polycrystalline UO<sub>2</sub> ». *Journal of the American Ceramic Society* 58.7, p. 274–278 (cf. p. 32).

**(RAPPERPORT 1960)** RAPPERPORT, E.J. et A.M. HUNTRESS (1960). *Deformation modes of single crystal uranium dioxide from 700°C to 1900°C*. Nuclear Metals, Inc., Concord, Mass. (cf. p. 32).

**(RASHID 2004)** RASHID, Y., R. DUNHAM et R. MONTGOMERY (2004). *Fuel analysis and licensing code : FALCON MOD01. Volume 1 : Theoretical and numerical bases*. Technical Report ANA-04-0666, EPRI, Palo Alto, CA (cf. p. 23).

**(REYNOLDS 1975)** REYNOLDS, G.L., B. BURTON et M.V. SPEIGHT (1975). « Creep fracture processes in uranium dioxide ». *Acta Metallurgica* 23.5, p. 573–577 (cf. p. 42, 120).

**(ROBERTS 1971)** ROBERTS, J. T. A. et B. J. WRONA (1971). « Nature of brittle-to-ductile transition in UO<sub>2</sub>-20 wt% PuO<sub>2</sub> nuclear fuel ». *Journal of Nuclear Materials* 41.1, p. 23–38 (cf. p. 46, 47).

**(ROBERTS 1974)** ROBERTS, J.T.A (1974). « Mechanical equation of state and high-temperature deformation ( $\geq 0.5T_m$ ) of uranium dioxide ». *Acta Metallurgica* 22.7, p. 873–878 (cf. p. 32, 48, 85, 120).

**(ROBERTS 1972)** ROBERTS, JTA et Y UEDA (1972). « Influence of porosity on deformation and fracture of UO<sub>2</sub> ». *Journal of the American Ceramic Society* 55.3, p. 117–124 (cf. p. 120, 141).

**(ROMANO 2006)** ROMANO, A. (2006). « Modelling the CABRI high-burnup RIA test CIP0-1 using an extended version of the FALCON code ». *Nuclear Engineering and Design* 236.3, p. 284–294 (cf. p. 188).

**(RYSHKEWITCH 1953)** RYSHKEWITCH, Eugene (1953). « Compression strength of porous sintered alumina and zirconia ». *Journal of the American Ceramic*



*Society* 36.2, p. 65–68 (cf. p. 141).

**(SALVO 2013)** SALVO, Maxime (2013). « Comportement mécanique en compression du dioxyde d'Uranium à température élevée et haute vitesse de sollicitation ». *21ème Congrès Français de Mécanique, 26 au 30 août 2013, Bordeaux, France (FR)* (cf. p. 231).

**(SALVO 2014)** SALVO, Maxime (2014). « Experimental characterization and modelling of  $\text{UO}_2$  behaviour at high temperatures and high strain rates ». *Journal of Nuclear Materials* (cf. p. 238).

**(SASAJIMA 1999)** SASAJIMA, H. (1999). « Fission gas release behavior of high burnup  $\text{UO}_2$  fuel under reactivity initiated accident conditions ». *Journal of Nuclear Science and Technology* 36.11, p. 1101–1104 (cf. p. 27).

**(SAUTER 2003)** SAUTER, F. et S. LECLERCQ (2003). « Modeling of the non-monotonous viscoplastic behavior of uranium dioxide ». *Journal of Nuclear Materials* 322.1, p. 1–14 (cf. p. 52, 53, 58).

**(SAWBRIDGE 1970)** SAWBRIDGE, P.T. et E.C. SYKES (1970). « Electrostatic charges on dislocations in uranium dioxide ». *Journal of Nuclear Materials* 35.1, p. 122–125 (cf. p. 32).

**(SCHMITZ 1999)** SCHMITZ, F. et J. PAPIN (1999). « High burnup effects on fuel behaviour under accident conditions : the tests CABRI REP-Na ». *Journal of Nuclear Materials* 270.1, p. 55–64 (cf. p. 23, 26, 27, 172).

**(SCOTT 1959)** SCOTT, R., A.R. HALL et J. WILLIAMS (1959). « The plastic deformation of uranium oxides above  $800^\circ\text{C}$  ». *Journal of Nuclear Materials* 1.1, p. 39–48 (cf. p. 32).

**(SELTZER 1970)** SELTZER, M.S., A.H. CLAUER et B.A. WILCOX (1970). « The stress dependence for high temperature creep of polycrystalline uranium dioxide ». *Journal of Nuclear Materials* 34.3, p. 351–353 (cf. p. 32).

**(SELTZER 1972)** SELTZER, M.S., A.H. CLAUER et B.A. WILCOX (1972). « The influence of stoichiometry on compression creep of uranium dioxide single crystals ». *Journal of Nuclear Materials* 44.1, p. 43–56 (cf. p. 32).

**(SELTZER 1971)** SELTZER, M.S. (1971). *Review of creep behavior of ceramic nuclear fuels* (cf. p. 37, 98).

- (**SERCOMBE 2009**) SERCOMBE, J. (2009). « Multi-dimensional modeling of PCMI during base irradiation and ramp testing with ALCYONE V1.1 ». P. 130–131 (cf. p. 23, 188).
- (**SERCOMBE 2010**) SERCOMBE, J. (2010). « 1D and 3D modeling of PCMI during a RIA with ALCYONE V1.1 ». *TopFuel 2010*. Orlando, Florida, USA (cf. p. 27, 29, 119, 169, 183).
- (**SIMO 1998**) SIMO, J.C. et T.J.R. HUGHES (1998). *Computational inelasticity*. English. New York : Springer (cf. p. 108).
- (**SLADKOFF 1999**) SLADKOFF, M., F. HUET et A. MOCELLIN (1999). *Recommandation pour la loi de fluage stationnaire de UO<sub>2</sub> non dopé : mise à jour de fin 1998 intégrant les études de fluage sur les lots L209609 et L209619*. Note Technique LACA 007 (cf. p. 50, 51).
- (**SOLOMON 1973**) SOLOMON, AA (1973). « Radiation-Induced Creep of UO<sub>2</sub> ». *Journal of the American Ceramic Society* 56.3, p. 164–171 (cf. p. 174).
- (**SOULACROIX 2014**) SOULACROIX, J. (2014). « Approche micromécanique du comportement du combustible UO<sub>2</sub> ». Thèse de doct. Arts et métiers Paristech (cf. p. 100).
- (**SUZUKI 2006a**) SUZUKI, M., H. SAITOU et T. FUKETA (2006a). « Analysis on split failure of cladding of high burnup BWR rods in reactivity-initiated accident conditions by RANNS code ». *Nuclear Engineering and Design* 236.2, p. 128–139 (cf. p. 25).
- (**SUZUKI 2006b**) SUZUKI, M., H. SAITOU et T. FUKETA (2006b). « RANNS code analysis on the local mechanical conditions of cladding of high burnup fuel rods under PCMI in RIA-simulated experiments in NSRR ». *Journal of Nuclear Science and Technology* 43.9, p. 1097–1104 (cf. p. 23).
- (**SUZUKI 2008**) SUZUKI, M., T. SUGIYAMA et T. FUKETA (2008). « Thermal Stress Analysis of High-Burnup LWR Fuel Pellet Pulse-Irradiated in Reactivity-Initiated Accident Conditions ». *Journal of Nuclear Science and Technology* 45.11, p. 1155–1164 (cf. p. 28, 29, 119, 183).
- (**TACHIBANA 1976**) TACHIBANA, T., H. FURUYA et M. KOIZUMI (1976). « Dependence on Strain Rate and Temperature Shown by Yield Stress of Uranium Dioxide ». *Journal of Nuclear Science and Technology* 13.9, p. 497–502 (cf. p. 42, 43, 85, 87, 88, 90, 98, 120, 125, 127).

- (VITANZA 2006)** VITANZA, C. (2006). « RIA Failure Threshold and LOCA Limit at High Burn-up ». *Journal of Nuclear Science and Technology* 43.9, p. 1074–1079 (cf. p. 23).
- (WERNER 1983a)** WERNER, P. et J.L. ROUTBORT (1983a). « Effect of pore shape on the fracture of  $\text{UO}_2$  up to high strain rates ». *Journal of Nuclear Materials* 113, p. 118–121 (cf. p. 42).
- (WERNER 1983b)** WERNER, P. et J.L. ROUTBORT (1983b). « Effect of pore shape on the fracture of  $\text{UO}_2$  up to high strain rates ». *Journal of Nuclear Materials* 113, p. 118–121 (cf. p. 120).
- (YEGOROVA 2006)** YEGOROVA, L (2006). *Experimental Study of Narrow Pulse Effects on the Behavior of High Burnup Fuel Rods with Zr-1% Nb Cladding and  $\text{UO}_2$  Fuel (VVER Type) Under Reactivity-activated Accident Conditions : Test Conditions and Results*. US Nuclear Regulatory Commission (cf. p. 119).
- (ZHOU 2007)** ZHOU, Jianqiu (2007). « The grain size and porosity dependent elastic moduli and yield strength of nanocrystalline ceramics ». *Materials Science and Engineering : A* 445–446, p. 717–724 (cf. p. 141).



# Annexes

## A. Implémentation MFront

Dans MFront, l'implémentation se fait de la façon suivante :

- Renseigner dans l'entête le type de résolution, le nom de la loi, de l'auteur et la date (voir **Figure A.1**).

```
@Parser      Implicit; // Implicit algorithm
@Behaviour    L3F; // Behaviour name
@Author       Maxime Salvo; // Author name
@Author       11/02/2014; // Date
```

Figure A.1. – Implémentation MFront de la loi de comportement : entête.

- Spécifier ce dont la loi a besoin en entrée et ce qu'elle donne en sortie (propriétés matériaux, variables d'états, variables locales) (voir **Figure A.2**).
- Initialiser les variables locales (voir **Figure A.3**).
- Calculer les contraintes (voir **Figure A.4**).
- Donner les fonctions d'évolution des variables internes ainsi que les composantes non nulles de la matrice Jacobienne afin de calculer l'incrément de déformation élastique (voir **Figure A.5**).

```
@Includes{
#include "TFEL/Material/Lame.hxx"
#include "TFEL/Material/DDIF2Base.hxx"
}

@MaximumNumberOfIterations 100;
@UMATUseTimeSubStepping[umat] true;
@UMATMaximumSubStepping[umat] 100;

@Theta 1.;
@Epsilon 1.e-10;

// Material properties
@MaterialProperty stress young;
young.setGlossaryName("YoungModulus");
@MaterialProperty real nu;
nu.setGlossaryName("PoissonRatio");
@MaterialProperty real rho;
rho.setGlossaryName("MassDensity");
@MaterialProperty real alpha;
alpha.setGlossaryName("ThermalExpansion");
@MaterialProperty real dg;
dg.setGlossaryName("GrainSize");
@MaterialProperty real fis;
fis.setGlossaryName("FissionDensityRate");

// State variables
@StateVariable strain ef;
ef.setGlossaryName("IrradiationSwelling");
@StateVariable strain pl;
pl.setGlossaryName("EquivalentPlasticStrain");
@StateVariable strain pv;
pv.setGlossaryName("HydrostaticEquivalentViscoplasticStrain");
@StateVariable strain pd;
pd.setGlossaryName("DeviatoricEquivalentViscoplasticStrain");
@StateVariable real f;
f.setGlossaryName("Porosity");

// Local variables
@LocalVariable stress lambda;
@LocalVariable stress mu;
@LocalVariable real a;
@LocalVariable real be;
@LocalVariable stress K;
@LocalVariable stress Kf;
@LocalVariable real K0;
```

Figure A.2. – Implémentation MFront de la loi de comportement : entrée-sortie.

```
@InitLocalVars{
  using namespace tfel::material::lame;
  lambda = computeLambda(young, nu);
  mu = computeMu(young, nu);
  K = lambda+2.*mu/3.;

  const real tau = 0.9 ;
  const real sigc = 1.e6*exp(4.e-07*T*T-0.00255*T+8.) ;
  const real Q = max(5., 9.1-T/400.) ;
  const real kb = 8.617e-5 ;
  const real gam = 5.277e-6;
  const real d0 = 4.6e-6;
  K0 = 29130.*exp(-Q/(kb*T))*exp(-1.*gam/(max(dg, 6.e-6)-d0)) ;
  Kf = 4.e-37 ;
  a = 3.*(1.-tau)/(tau+1.);
  R = sigc*2.*tau/(tau+1.);
  be = a;
} // end of @InitLocalVars
```

Figure A.3. – Implémentation MFront de la loi de comportement : variables locales.

```
@ComputeStress{
  sig = lambda*trace(eel)*Stensor::Id()+2*mu*eel;
} // end of @ComputeStress
```

Figure A.4. – Implémentation MFront de la loi de comportement : contraintes.

```

@Integrator{
  // hydrostatic pressure
  const real pr = trace(sig)/3.;
  // Von Mises stress
  const real seq = sigmaeq(sig);
  // normal
  real inv_seq(0.);
  Stensor n_(real(0.));
  Stensor np_(real(0.));
  if (seq > 1.e-8*young){
    inv_seq = 1./seq;
    n_ = 1.5*deviator(sig)*inv_seq;
    np_ = be/3.*Stensor::Id()+n_;
  }
  // elasticity
  feel -= deto;
  feel += (dpd+def)*n_ + dpl*np_ + de_fis + (dpv/3)*Stensor::Id();
  dfeel_ddelel += 2.*mu*theta*(dpd+def+dpl)*inv_seq*(Stensor4::M()-(n_^n_));
  dfeel_ddpv = (real(1)/3)*Stensor::Id();
  dfeel_ddpd = n_;
  dfeel_ddef = n_;
  dfeel_ddpl = np_;
  // porosity
  const real f_ = max(f+theta*df,1.7e-2);
  ff = df*(1+theta*(be*dpl+dpv))-(1-f_)*(be*dpl+dpv);
  dff_ddf = (1+theta*(be*dpl+dpv));
  dff_ddpv = -1+f_;
  dff_ddpl = (-1+f_)*be;
  // equivalent stress
  const real E = 6.;
  const real Af = pow((pow(f_,-1/E)-1)*E,-2*E/(E+1));
  const real Bf = (1.+2.*f_/real(3))*pow(1.-f_,-2*E/(E+1));
  const real B = (Bf+20.*Af)/Bf;
  const real A = (9./4.)*(Af/Bf)*B;
  const real s = sqrt(A*pr*pr+B*seq*seq);
  if (s>1.e-8*young){
    const real sig0 = 7.5e6 ;
    const real tmp_e = exp(s/sig0);
    const real tmp_s = 0.5*(tmp_e-(1./tmp_e));
    const real tmp_c = 0.5*(tmp_e+(1./tmp_e));
    const real ds_dpr = A*pr/s;
    const real ds_dseq = B*seq/s;
    const real d2s_dpr2 = A/s - 1.*A*A*pr*pr/(s*s*s);
    const real d2s_dseq2 = B/s - 1.*B*B*seq*seq/(s*s*s);
    const real d2s_dprdseq = -1.*A*B*pr*seq/(s*s*s);
    const real dphi_ds = K0 * tmp_s;
    const real d2phi_ds2 = K0 / sig0 * tmp_c;
    const real dphi_dpr = dphi_ds*ds_dpr;
    const real dphi_dseq = dphi_ds*ds_dseq;
    const real d2phi_dpr2 = d2phi_ds2*ds_dpr*ds_dpr +dphi_ds*d2s_dpr2;
    const real d2phi_dprdseq = d2phi_ds2*ds_dpr*ds_dseq +dphi_ds*d2s_dprdseq;
    const real d2phi_dseq2 = d2phi_ds2*ds_dseq*ds_dseq+dphi_ds*d2s_dseq2;
    // irradiation creep
    fef -= Kf*fis*seq*dt ;
    dfele_ddelel = -2*mu*theta*Kf*fis*dt*n_ ;
    // hydrostatic part
    fpv -= dphi_dpr*dt;
    dfpv_ddelel = -theta*dt*(d2phi_dpr2*K*Stensor::Id()+2*mu*d2phi_dprdseq*n_);
    // deviatoric part
    fpd -= dphi_dseq*dt;
    dfpd_ddelel = -theta*dt*(2*mu*d2phi_dseq2*n_+K*d2phi_dprdseq*Stensor::Id());
    // plasticity
    const real g = (a*pr+seq-R)/young;
    if (g>0.){
      fpl = g ;
      dfpl_ddpl = 0. ;
      dfpl_ddelel = (a*K*Stensor::Id()+2.*mu*n_)*theta/young;
    }
  }
} // end of @Integrator

```

Figure A.5. – Implémentation MFront de la loi de comportement : intégration.



## **B. Productions scientifique**

### **B.1. CFM2013**

(SALVO 2013) Maxime SALVO (2013). « Comportement mécanique en compression du dioxyde d'Uranium à température élevée et haute vitesse de sollicitation ». *21ème Congrès Français de Mécanique, 26 au 30 août 2013, Bordeaux, France (FR)*

# Experimental characterization of the mechanical behavior in compression of uranium dioxide at high strain rate

M. SALVO<sup>a</sup>, J. SERCOMBE<sup>a</sup>, J-C. MENARD<sup>b</sup>, J-P. ALESSANDRI<sup>b</sup>, T. DESOYER<sup>c</sup>

a. CEA, DEN, DEC/SESC, F-13108 Saint-Paul-lez-Durance, France

b. CEA, DEN, DEC/SPUA, F-13108 Saint-Paul-lez-Durance, France

c. CNRS : Ecole Centrale Marseille et Laboratoire de mécanique et d'acoustique (UPR 7051-CNRS), 38 rue Frédéric Joliot-Curie, 13451 Marseille Cedex 20

## Résumé :

*La communication ci-après présente une caractérisation expérimentale du comportement mécanique en compression du dioxyde d'uranium (UO<sub>2</sub>) dans les conditions propres aux accidents d'injection de réactivité (RIA). C'est-à-dire pour des températures comprises entre 1100°C et 1700°C et pour des vitesses de déformation comprises entre 1.10<sup>-4</sup>/s et 1.10<sup>-1</sup>/s. Les résultats de cette étude montrent une évolution de la contrainte d'écoulement qui n'est pas en accord avec les lois de comportement habituellement utilisées pour décrire le fluage du matériau à des vitesses de déformation plus faibles. En outre, un fort écrouissage jamais observé auparavant apparaît lors des essais. Les observations microstructurales montrent que malgré les vitesses de sollicitation très élevées, l'endommagement reste minime.*

## Abstract :

*This work presents an experimental characterization of the mechanical behavior in compression of uranium dioxide (UO<sub>2</sub>) under Reactivity Initiated Accident conditions (RIA). These conditions are characterized by a temperature between 1100°C and 1700°C and a strain rate between 1.10<sup>-4</sup>/s and 1.10<sup>-1</sup>/s. The experimental results of this study show that the stress- strain curves do not fit with the mechanical behavior usually considered for UO<sub>2</sub> at smaller strain rates. Moreover a hardening phase never observed before appears in most of the tests. The microstructural observations show that in spite of a very high strain rate, the damage remains insignificant.*

**Key words:** uranium dioxide, mechanical behavior, creep

## 1 Introduction

The Reactivity Initiated Accident (RIA) scenario postulates the ejection of a control rod bundle with a local increase of power in the neighboring fuel rods. For this accident, the main safety criteria currently in effect and intended to prevent accidental fuel dispersion limit the energy injected during the accidental transient condition (30 – 70 ms) to 230 cal/g for fresh fuel and 200 cal/g for irradiated fuel. In the past ten years, the use of Mixed Oxide Fuel (MOX) and high burnup fuel in reactors led the Safety Authority (ASN) to perform experimental program to determine the impact of a RIA on these new products. The interpretation of the RIA tests relies on the development of computer codes able to reproduce the thermomechanical behavior of fuel rods during the transient [1] [2]. To improve the numerical codes, it is essential to have behavior models and failure criteria for the fuel. The development of constitutive models is based on a laboratory characterization of the mechanical behavior of the fuel under appropriate conditions (temperature 800°C – 2400°C, strain rates up to 1/s for a RIA). The mechanical behavior of UO<sub>2</sub> at high temperature (800°C – 2400°C) has been extensively studied at slow strain rates (10<sup>-5</sup>/s – 10<sup>-4</sup>/s) and at stress level up to 150 MPa [1-9]. Two deformation mechanisms have been identified by the different authors. The first one corresponds to a strain controlled by the diffusion of uranium atoms. This mechanism appears at low stresses and high temperatures. In these conditions, the rate of inelastic deformation varies linearly with the stress and is thermally activated. In the second mechanism, the strain is controlled by the movement of dislocations. This mechanism appears at high stresses and high temperatures with a strain rate sensitivity ( $\Delta \ln(\dot{\epsilon})/\Delta \ln(\sigma)$ ) between 3 and 7. The validity of these models for RIA's loading conditions has not yet been checked experimentally and they might not be adequate because of the high strain rates that are generated in the fuel pellet (up to 1/s). This

paper therefore proposes an experimental study of the mechanical behavior of  $\text{UO}_2$  at high temperatures and high strain rates.

## 2 Experimental methods

### 2.1 Presentation of the samples

The samples used in this study are Uranium dioxide sintered cylindrical pellets, of approximately 8.2 mm in diameter and 12 mm height, with 4% of closed porosity (mainly intra-granular micropores) and a grain size of 9  $\mu\text{m}$  (see figure 1). These Uranium pellets are commonly used in commercial reactors and have an Oxygen / Uranium ratio close to 2 (stoichiometry).

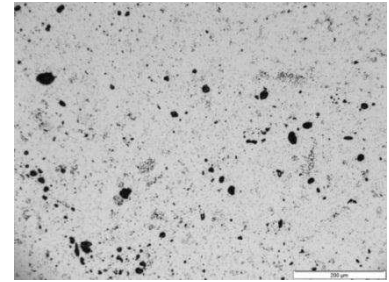


FIG.1 – Samples initial microstructure

### 2.2 Tests matrix

The characterization of the mechanical behavior of the fuel pellets under RIA conditions has been made taking into account the limitations imposed by the equipment (an Instron 1185 compression test machine with a maximum load capacity of 10 kN). To focus the work on strain rate effects, displacement rate controlled tests (DVC) have been performed ending with a discharge. The temperature during the test was varied between 1100°C and 1700°C. The displacement rate increased by decades from a minimum of 0.1 mm/min to 100 mm/min (with corresponding strain rates between  $1,3 \cdot 10^{-4}/\text{s}$  to  $1,3 \cdot 10^{-1}/\text{s}$ ).

### 2.3 Tests procedure

The testing instrumentation is shown schematically in figure 2. After placing the sample between the blocks and controlling the test atmosphere (95% Ar 5%  $\text{H}_2$  to prevent any stoichiometry change and oxidation during the tests), a manual heating up to 200°C is set up followed by an automatic temperature control at 20°C/min until the desired temperature is reached. The temperature is then maintained two hours before loading the sample in order to ensure that it is uniform over the entire sample.

During the test, the speed of the cross-head is regulated and the displacement measurement is made by two extensometers as shown in figure 3. Then, strains are calculated from displacements by applying  $\varepsilon = -\ln(1 - \frac{\Delta h}{h_0})$  ( $h_0$ : initial height) and stresses from forces by applying  $\sigma = \frac{4 \times F}{\pi \times d_0^2}$  ( $d_0$ : initial diameter).

## 3 Results

### 3.1 Strain-stress curves

Figure 4 illustrates the strain-stress curves obtained at the strain rates  $1,3 \cdot 10^{-3}/\text{s}$  and  $1,3 \cdot 10^{-1}/\text{s}$  for all the temperatures tested. The general tendency for a given strain rate is a decrease of the yield stress with the temperature as is expected in DVC tests [7][10]. It appears that in some particular conditions (low temperature

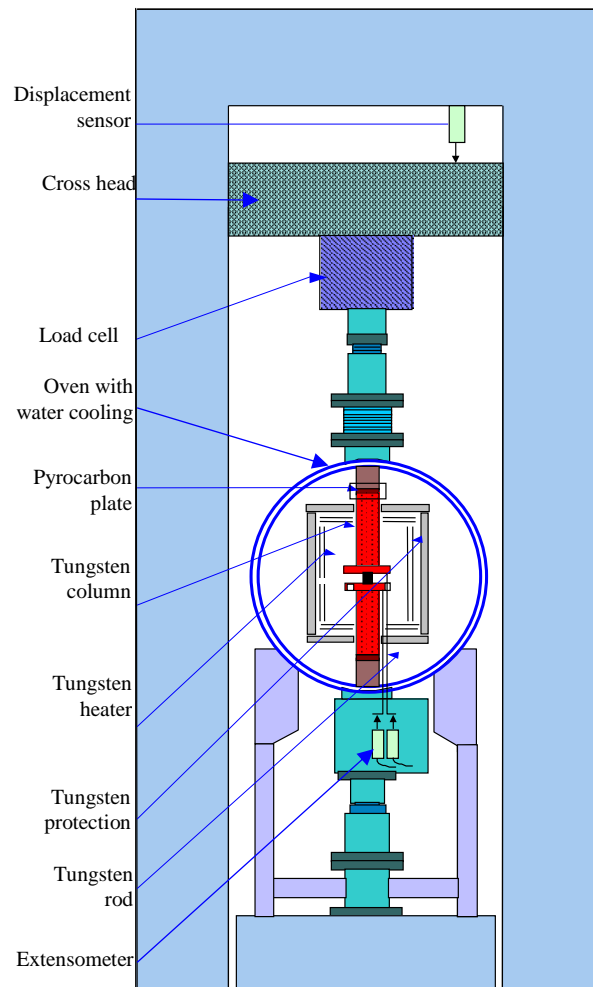


FIG.2 – Schematic diagram of the high temperature compression testing apparatus

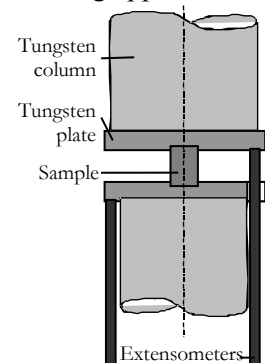


FIG.3 – Extensometer's location

or high strain rate) the elastic behavior, at the beginning of the curve, ends with a maximum stress followed by a small decrease. This decrease is usually called “compression peak”. This phenomenon has been observed before and is attributed to a sudden increase of the dislocations mobility which allows a stress relaxation due to a heterogeneous deformation at the beginning of the test [6][7][10].

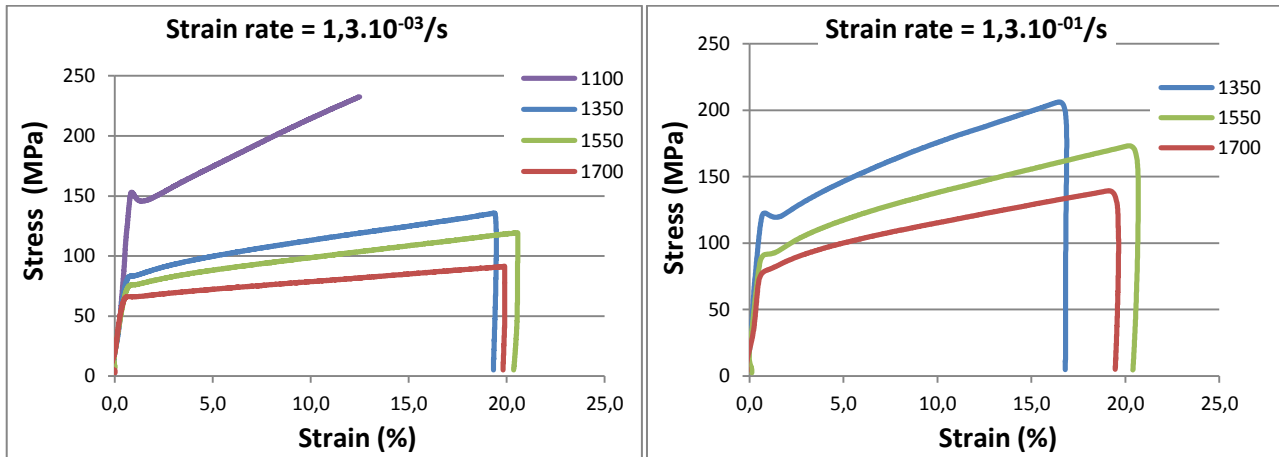


FIG.4 - Temperature (°C) dependency at different strain rates

Figure 5 illustrates the strain-stress curves obtained at the two temperatures 1350°C and 1700°C for all the strain rates tested. The general tendency for a given temperature is an increase of the yield stress with the strain rate as is expected in DVC tests [7].

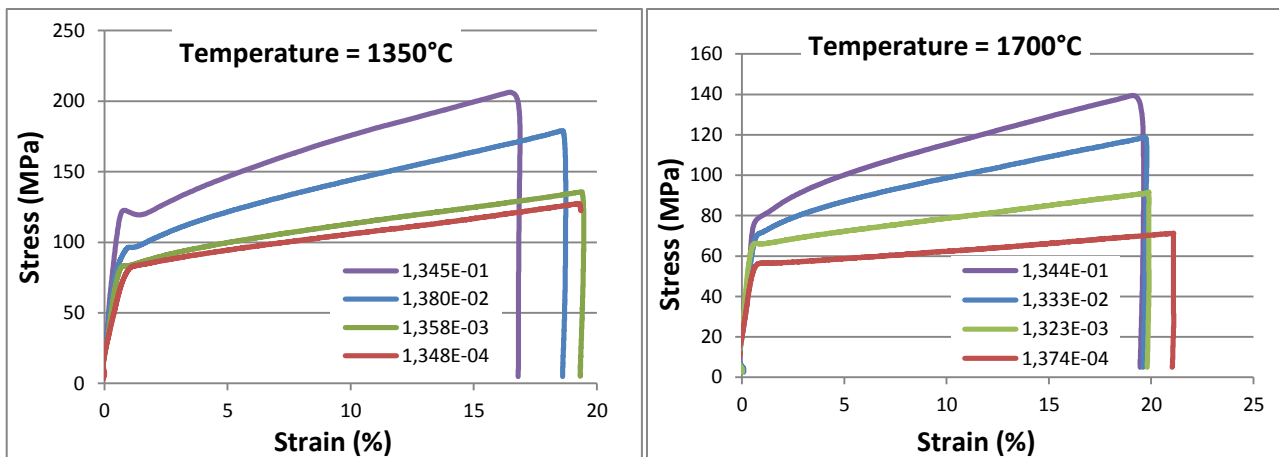


FIG.5 - Strain rate (/s) dependency at different temperatures

As shown in figures 4 and 5, the behavior of the samples was ductile in all the tests with a marked increase of the yield stress with the strain. This hardening, which has already been observed on this material, is usually attributed to an increase of the sample diameter during the test [6]. However, in our tests, the evolution of the hardening with the temperature and the strain rate and the fact that the final diameters of all samples are similar (based on post-test systematic measures) show that it is not only a structural effect.

### 3.2 Activation parameters

The creep of uranium dioxide estimated from compression tests (constant applied stress), bending tests or displacement controlled tests can usually be described by Norton laws of the form ( $\dot{\epsilon} = A\sigma^n \exp(\frac{-Q}{RT})$ ),

depending on the stress and temperature level [3]. In our experiments, a pronounced hardening together with a compression peak can appear, which means that the definition of the yield stress is arbitrary. In the following interpretation of the test data, the value of the stress at a strain of 2% was used as the yield stress to calculate the parameters of the Norton law. The stress exponent  $n$  is deduced from figure 6 (left) where the yield stress is given as a function of the strain rate (log scale). These calculations give a value of about 20 regardless of the temperature. This value, which has already been obtained in tests performed at strain rates between  $10^{-3}/s$  –  $10^{-2}/s$  [6] [10], is far from the 3 to 7 exponents identified from creep or bending tests performed at strain rates around  $10^{-5}/s$  [3] and which form the basis of most creep laws used in fuel codes [11]. The thermal activation energies  $Q$  obtained from the Arrhenius curves  $\ln(\sigma) = f(\frac{1}{T})$  given in figure 6 (right) are between 470 and 615 kJ/mol. These values are close to those obtained by Guérin [6] (he found an energy between 300 and 550 kJ/mol depending on the stress) and Tachibana [10] (300 to 800 kJ/mol depending on the temperature). They are usually attributed to a dislocation creep mechanism [3] which is consistent with the high stress and temperature level in our tests.

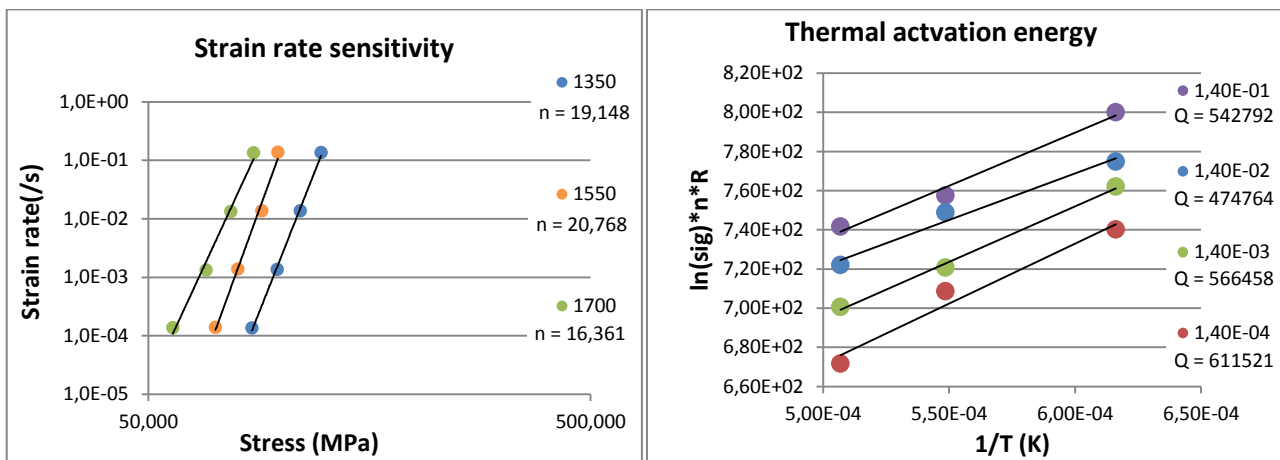


FIG.6 - Strain rate (left) and temperature (right) sensitivity of yield stress

In figure 7, a similar treatment of the measured hardening modulus is proposed. It has been plotted in function of the strain rate (log scale) and of the temperature. These curves demonstrate that the stress-strain curves have a slope which is not only related to the change of the samples' section but also depends on temperature and on strain rate according to a relationship of the form  $H = H_0(T) + H_i \ln(\dot{\epsilon})$  ( $H$ : hardening modulus,  $H_0$ : hardening modulus at reference strain rate  $1.3 \cdot 10^{-4} /s$ ,  $H_i$ : strain rate sensitivity of hardening modulus).

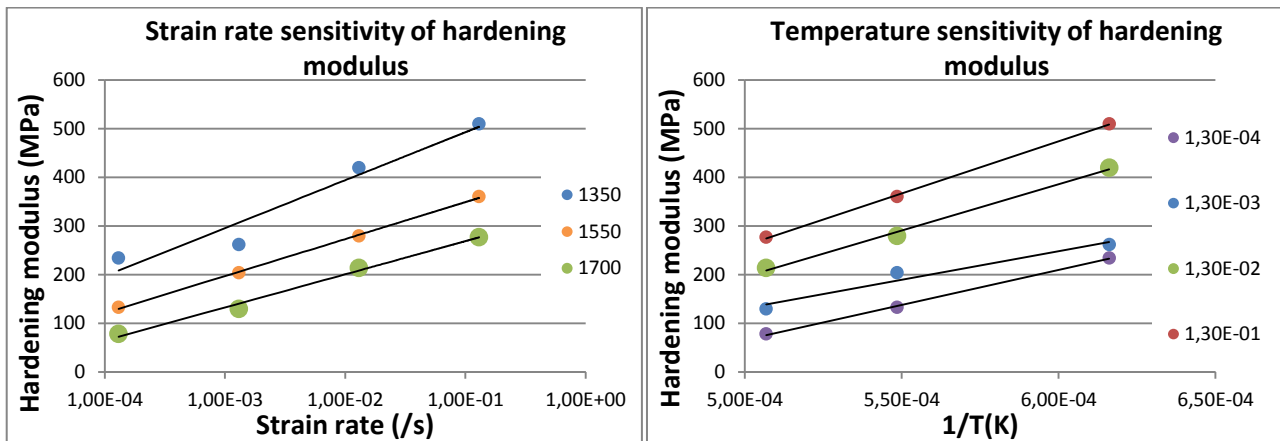


FIG.7 – Evolution of Hardening modulus with strain rate and temperature

### 3.3 Density variation during tests

Density measurements were made before and after tests by hydrostatic weighting in alcohol. The measures (figure 8) have shown a nearly systematic densification with no clear influence of temperature and strain rate. The volume variation is close to 1% in all cases.

### 3.4 Microstructural observations

The microstructural observations (figure 9) are made by Scanning Electron Microscopy (SEM) after cutting and polishing the samples. The analyses were made at three different locations (at the top, at the center and at the periphery of the sample) and on samples tested at different temperatures and strain rates.

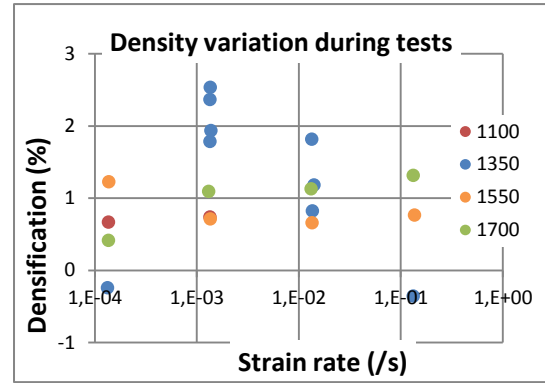


FIG.8 - Density variation during tests

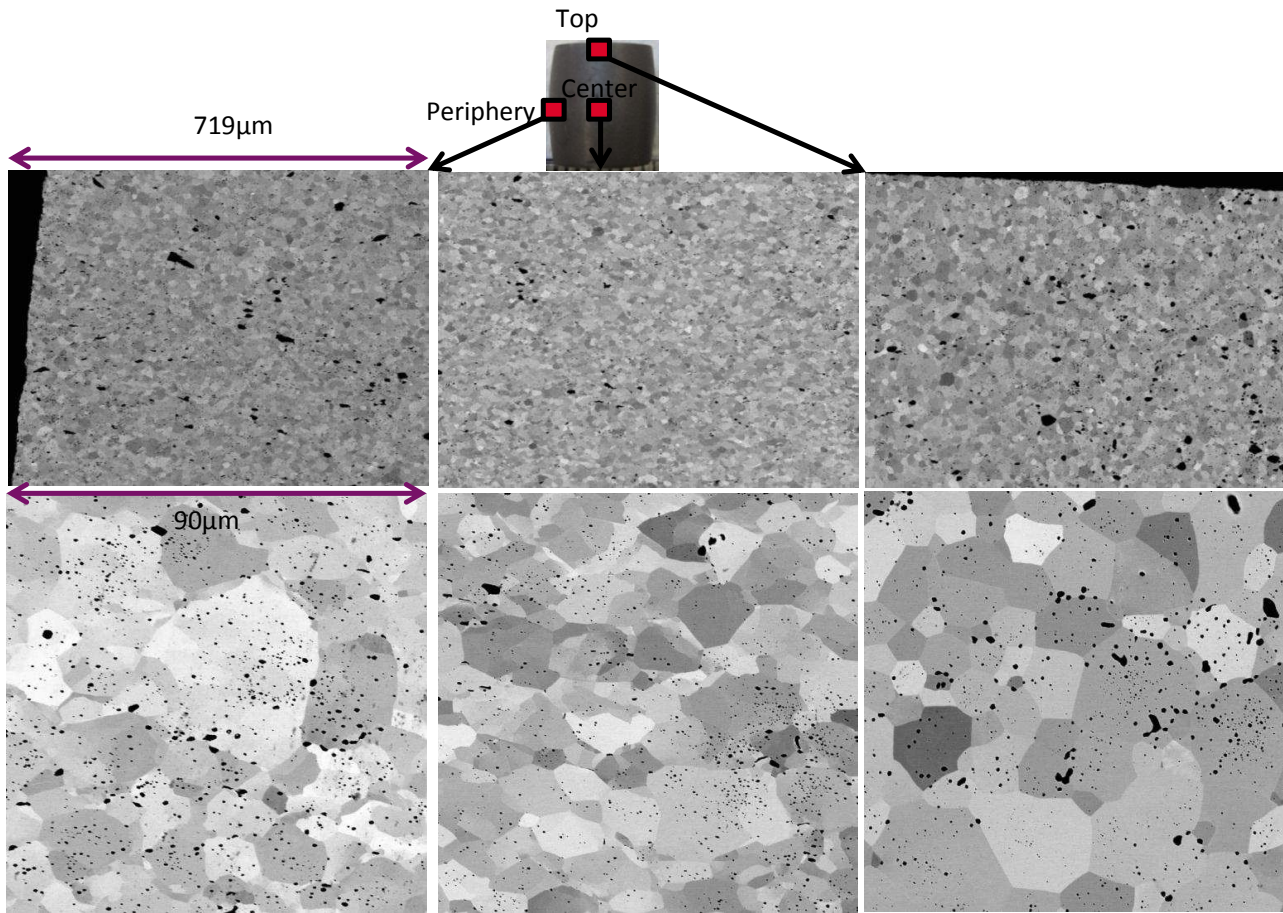


FIG.9 - Microstructure of a sample tested at 1mm/min 1550°C with a zoom

The results show that regardless of the test conditions, the center of the pellet has pores and grains of smaller size than the pellet periphery and the upper part of the pellet. This means that the densification of the sample measured by hydrostatic weighting is not homogeneous but preferentially occurs at the center of the pellet. This might be due to the non-homogeneous stress distribution in the pellet resulting from friction at pellet ends. Actually, all the samples presented a barrel shape at the end of the tests. In general, no cracks at the grain boundaries were observed in spite of the high level of strain (20%) at the end of the tests. This is surprising since grain boundary cracks related to sliding at the grains interface have been observed in past studies performed at similar temperature conditions and similar strain levels [5].



## 4 Discussion

The aim of this study was to determine whether creep laws of  $\text{UO}_2$  identified from tests performed at small strain rates were suitable for RIA loading conditions. It is generally accepted that the deformation of  $\text{UO}_2$  is controlled by two mechanisms. The first one corresponds to a strain controlled by the diffusion of uranium atoms. This mechanism appears at low stresses and high temperatures. The rate of inelastic deformation varies linearly with the stress ( $n = 1$ ) and is thermally activated (activation energy around 400 kJ/mol). It strongly depends on the grain size and on the oxygen excess in the matrix [3]. In the second mechanism, the strain is controlled by grain boundary sliding and dislocation creep inside the grains [5]. This mechanism appears at high stresses and high temperatures with a strain rate sensitivity ( $n = \Delta \ln(\dot{\epsilon}) / \Delta \ln(\sigma)$ ) between 3 and 7 and an activation energy close to 500 kJ/mol. It is also dependent on oxygen excess but appears relatively independent of grain size [3]. From our experiments performed at high strain rates, a thermal activation energy in agreement with the dislocation creep/ grain boundary sliding mechanisms was found (450 – 600 kJ/mol depending on the strain rate). The strain rate sensitivity was however much higher than expected for this mechanism, our experiments led us to a value of about 20. This shows that the Norton creep law is probably not adequate for high strain rates. Several authors have already proposed that the rate-controlling mechanism of deformation of  $\text{UO}_2$  at moderate to high strain rate could still be controlled by dislocation motions with a threshold related to Peierls stress [4][6][10]. In this case, a creep law based on Peierls-Nabarro forces, given by the following relationship  $\dot{\epsilon} = A \exp\left(\frac{-(\Delta H - V(\sigma - \sigma_i))}{RT}\right)$  would adequately describe the behavior of the material (V: Activation volume and  $\sigma_i$ : internal stress). However, since a pronounced hardening occurred in our tests, the internal stress would have to be strain dependent.

## 5 Conclusion and perspectives

In this paper, an experimental characterization of the creep behavior of uranium dioxide at high strain rates and temperatures has been presented and the results compared with standard creep laws established from tests performed at slower strain rates. The comparison shows that the activation energy deduced from our tests is consistent with a dislocation motion mechanism but that the stress exponent is much higher. The pronounced hardening observed during the tests should also be accounted for. Future work will consist in Finite Element simulations of the tests and in the adaptation of a Peierls-Nabarro creep model.

## References

- [1] B. Burton and G.-L. Reynolds, «The influence of deviation from stoichiometric composition on the diffusional creep of uranium dioxide,» *Acta Metallurgica*, 1973.
- [2] J.-F. Byron, «Yield and flow of polycrystalline uranium dioxide,» *Journal of Nuclear Materials*, 1968.
- [3] M.-S. Seltzer, J.-S. Perrin, Clauer A-H and B.-A. Wilcox, «A review of creep behavior of ceramic nuclear fuels,» *Reactor technology*, 1971.
- [4] J.-S. Nadeau, «Dependence of flow stress on non stoichiometry in oxygen-rich uranium dioxide at high temperatures,» *Journal of the American Ceramic Society*, 1969.
- [5] F. Dherbey, «Déformation a chaud du dioxyde d'uranium polycristallin,» *Institut National Polytechnique de Grenoble*, 2000.
- [6] Y. Guérin, «Etude par compression à haute températures de la déformation plastique du bioxyde d'uranium polycristallin,» *Journal of Nuclear Materials* 56, 1975.
- [7] Y. Guérin, «Etude par compression à hautes températures de la déformation plastique du bioxyde et du monocarbure d'uranium,» *Université Claude Bernard - Lyon*, 1973.
- [8] K.-C. Radford and G.-R. Terwilliger, «Compressive deformation of polycrystalline  $\text{UO}_2$ ,» *Journal of the American Ceramic Society* 58, 1975.
- [9] C. Vivant-Duguay, «Contribution a l'étude du fluage du dioxyde d'uranium rôle des activateurs de croissance cristalline,» *Institut National des Sciences Appliquées de Lyon*, 1998.
- [10] T. Tachibana, H. Furuya and M. Koizumi, «Dependence on strain rate and temperature shown by yield stress of uranium dioxide,» *Journal of nuclear science and technology* 13, 1976.
- [11] Y. Monerie and J.-M. Gatt, «Overall viscoplastic behaviour of non irradiated porous nuclear ceramics,» *Mech Materials*, 38 (7), 2006.

## **B.2. Journal of nuclear materials**

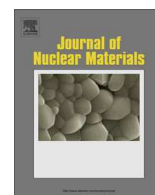
**(SALVO 2014)** Maxime SALVO (2014). « Experimental characterization and modelling of UO<sub>2</sub> behaviour at high temperatures and high strain rates ». *Journal of Nuclear Materials*





Contents lists available at ScienceDirect

## Journal of Nuclear Materials

journal homepage: [www.elsevier.com/locate/jnucmat](http://www.elsevier.com/locate/jnucmat)

# Experimental characterization and modelling of UO<sub>2</sub> behavior at high temperatures and high strain rates



Maxime Salvo<sup>a,\*</sup>, Jérôme Sercombe<sup>a</sup>, Jean-Claude Ménard<sup>b</sup>, Jérôme Julien<sup>a</sup>, Thomas Helfer<sup>a</sup>, Thierry Désoyer<sup>c</sup>

<sup>a</sup> CEA, DEN, DEC/SESC, F-13108 Saint-Paul-lez-Durance, France

<sup>b</sup> CEA, DEN, DEC/SPUA, F-13108 Saint-Paul-lez-Durance, France

<sup>c</sup> CNRS, LMA, 13402 Marseille Cedex 20, France

## HIGHLIGHTS

- This paper presents an experimental characterization of UO<sub>2</sub> in compression.
- The tests are performed at high temperatures (1100–1700 °C) and high strain rates (10<sup>−4</sup>–10<sup>−1</sup>/s).
- With a power law model, the stress exponent *n* deduced from the tests varies between 16 and 20.
- A hyperbolic sine model was therefore developed to describe UO<sub>2</sub> behavior at high strain rates.
- Pore compressibility as observed during the tests was introduced in the model.

## ARTICLE INFO

### Article history:

Received 27 May 2014

Accepted 11 September 2014

Available online 19 September 2014

## ABSTRACT

This work presents an experimental characterization of uranium dioxide (UO<sub>2</sub>) in compression under Reactivity Initiated Accident (RIA) conditions. Pellet samples were tested at four temperatures (1100, 1350, 1550 and 1700 °C) and at a strain rate varying over 4 decades (10<sup>−4</sup>–10<sup>−3</sup>–10<sup>−2</sup>–10<sup>−1</sup>/s). The experimental results show that the stress–strain curves cannot be fitted with a unique power law as it is the case at smaller strain rates (10<sup>−9</sup>–10<sup>−5</sup>/s). A strain-hardening also appears in most of the tests. The microstructural observations show a pronounced evolution of the porosity at the pellet center during the tests. A hyperbolic sine model which accounts for volume variations (pore compressibility) was therefore proposed to describe the behavior of UO<sub>2</sub> on a large range of temperatures (1100 – 1700 °C) and strain rates (10<sup>−9</sup>–10<sup>−1</sup>/s). The Finite Element simulations of the compression tests lead to results (maximum stress, axial and hoop strain distribution, porosity distribution) in good agreement with the measurements. The model was then assessed on a database of more than two hundred creep tests.

© 2014 Elsevier B.V. All rights reserved.

## 1. Introduction

The Reactivity Initiated Accident (RIA) scenario postulates the ejection of a control rod bundle with a very fast increase of power in the neighboring fuel rods (Energy deposition ~100 cal/g UO<sub>2</sub> in 30–70 ms). In the 1990s, the use of Mixed OXide fuel (MOX) and of high burnup fuels in reactors led to the development of experimental programs to determine the impact of a RIA on these products [8,19,24].

The interpretation of RIA tests relies on the development of computer codes able to reproduce the thermomechanical behavior of fuel rods during the transient [10,19,22,26,29]. To improve the codes, it is essential to have behavior models and failure criteria

for the cladding [5] as well as for the fuel. The development of constitutive models for the fuel should be based on a laboratory characterization under appropriate conditions: temperature 1000–2700 °C, strain rates up to 1/s.

The mechanical behavior of UO<sub>2</sub> at high temperatures (1000–2000 °C) has been extensively studied by creep experiments [6,11,17,20,23,25]. Two creep deformation mechanisms have been identified depending on the stress and temperature level [1,25]: diffusion creep and dislocation creep. These mechanisms are generally described by power-laws with Arrhenius temperature-dependent terms. Diffusion creep is dominant in the low stress-region. The strain rate varies linearly with the stress and is proportional to the reciprocal of the grain size squared. Dislocation creep is dominant at high stresses. The strain rate varies according to the stress to the power 3–8 and is generally independent of grain size. Recently, these creep mechanisms have been

\* Corresponding author. Tel.: +33 4 42 25 28 17; fax: +33 4 42 25 29 49.

E-mail address: [maxime.salvo@cea.fr](mailto:maxime.salvo@cea.fr) (M. Salvo).

embedded in a three-dimensional macroscopic formulation where the volume variation of the material is taken into account [17].

Contrary to the low strain rate domain characterized by creep tests, little is known on the behavior of uranium dioxide at high strain rates. The few experimental studies available show that the two creep deformation mechanisms are no longer adequate when the strain rates exceed  $10^{-3}/s$  [11,21,30]. In this paper, the definition of a constitutive model for uranium dioxide suitable for a broad range of strain rates ( $10^{-9} - 10^{-1}/s$ ) and temperatures (1100 – 1700 °C) is presented. The results from a dedicated series of strain-rate controlled compression tests at high temperatures are first detailed. The evolution of the specimen microstructure is assessed by Scanning Electron Microscopy (SEM). Finite Element simulations of the strain-rate controlled tests and of more than 200 creep tests are then analyzed to assess the performance of the constitutive model.

## 2. Experiments

### 2.1. Characterization of test samples

The samples used in this study are commercial uranium dioxide sintered cylindrical pellets of approximately 8.2 mm in diameter ( $d_0$ ) and 12 mm in height ( $h_0$ ). The sintering process ensured that the Oxygen/Uranium ratio was close to 2 (stoichiometry). Hydrostatic weighing in alcohol was used to estimate the relative density of the material (theoretical density 10.96 g/cm<sup>3</sup>): 96.4% on average with a standard deviation of 0.3%.

Some samples were then sawed, the surfaces coated with an epoxy resin and polished prior to their observations by Scanning Electron Microscopy (SEM), see Fig. 1. The polishing roughness is gradually decreased to 0.25 µm (diamond pastes) and there is a final step involving a colloidal solution of silica (0.04 µm). This careful polishing of the cross-section aims at limiting as much as possible the damage of the samples during the preparation.

From the SEM images, the average grain size was manually found close to 9 µm (corresponding to the average of the grains situated on 4 intersecting lines). The commercial software ProAnalysis<sup>®</sup> was used to estimate the pore size distribution from the images. First, the gray images were reprocessed to generate binary images where pores appear white and the matrix black. By estimating the number of white pixels and the total number of pixels, the surface porosity of the material was assessed. The pore size distribution was obtained by converting each white zone into an equivalent disk with a specific diameter.

The surface porosity appeared fairly uniform in the samples. On average, it reached 5.2% with a standard deviation of 0.6%. Half of the pore volume was formed of pores with a diameter less than 3 µm. These fine pores were mostly located in the grains. The larger pores were in majority at the grain boundaries. The

maximum pore size observed on the micrograph of Fig. 1 is ~30 µm, consistent with the maximum grain size. The statistics are based on six measures performed on two different samples. The observation area (500 µm by 750 µm) is important compared to the maximum grain and pore size (~30 µm).

### 2.2. Test matrix and procedure

The testing equipment is shown schematically in Fig. 2. Mechanical tests on the fuel pellets have been performed with an Instron 1185 compression test machine with a maximum load capacity of 50 kN. The compression machine is equipped with an oven able to heat the fuel to a maximum temperature of 1800 °C. The gas composition in the oven is controlled (95% Ar, 5% H<sub>2</sub>) in order to prevent any stoichiometry change during the tests.

The focus of this work being strain rate effects, strain-rate driven tests have been carried out on the pellet samples. In the tests, the displacement rate of the cross head is kept constant until a final discharge. The tests were performed at four prescribed temperatures: 1100, 1350, 1550 and 1700 °C. At each temperature, four samples were tested with a displacement rate increased by decades from a minimum of 0.1 mm/min until a maximum of 100 mm/min (leading to a corresponding strain rates between  $10^{-4}/s$  and  $10^{-1}/s$ ). Some of the tests were doubled or tripled to check the reproducibility.

The testing procedure reads as follows. First, the sample is placed between the two tungsten end-plates, see Fig. 2, right. A small load not exceeding 250 N (5 MPa) is then applied. The gas composition in the oven is checked. The temperature is then increased manually until it reaches 200 °C. This manual step is followed by a ramp at 20 °C/min until the prescribed temperature. These conditions are maintained 2 h in order to guarantee a uniform temperature in the sample. The strain rate-driven loading sequence is then applied.

During the test, the speed of the cross-head is regulated and the contraction–elongation of the pellet is measured continuously by two extensometers in contact with the lower and upper Tungsten plates. From these measurements, the true strain  $\epsilon_{zz}$  of the pellet is calculated according to Eq. (1) where the deformed height of the pellet is considered ( $h = h_0 + \Delta h$  with  $\Delta h$  the variation in height). The axial stress  $\sigma_{zz}$  is estimated from the force  $F$  measured by the load cell and from the non-deformed diameter  $d_0$  of the pellet, see Eq. (2). Significant friction occurs at pellet ends which makes section growth unlikely.

$$\epsilon_{zz} = \ln \left( \frac{h}{h_0} \right) \quad (1)$$

$$\sigma_{zz} = - \frac{4F}{\pi d_0^2} \quad (2)$$

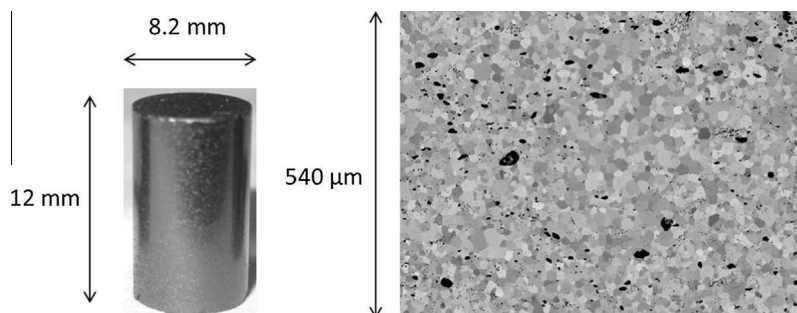


Fig. 1. Geometry of the samples and microstructure before testing (SEM).

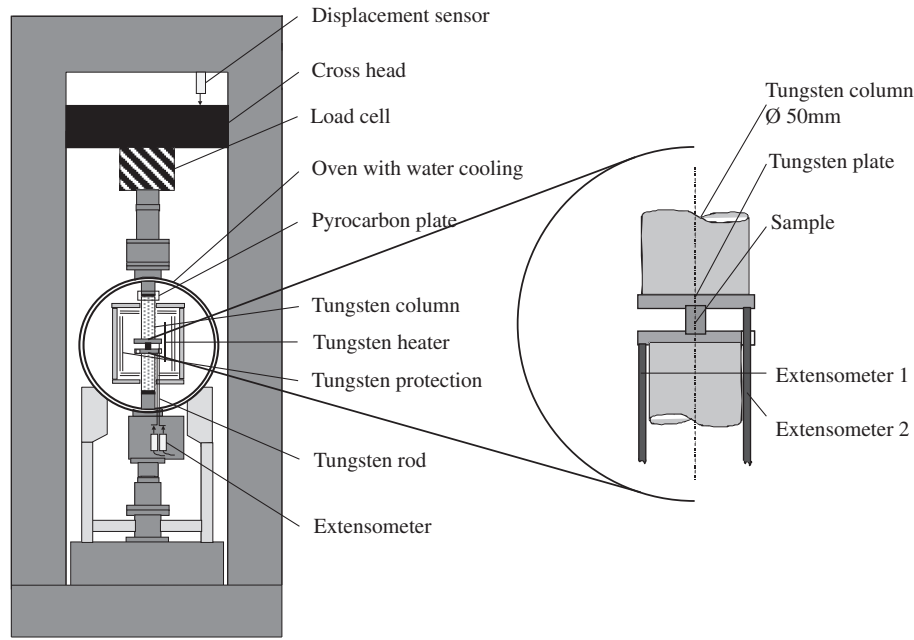


Fig. 2. Schematic representation of the testing equipment.

### 3. Test results

#### 3.1. Stress–strain curves

Fig. 3 illustrates the (axial) stress–strain curves obtained at the strain rates  $10^{-3}/s$  and  $10^{-1}/s$  and at all the temperatures. The

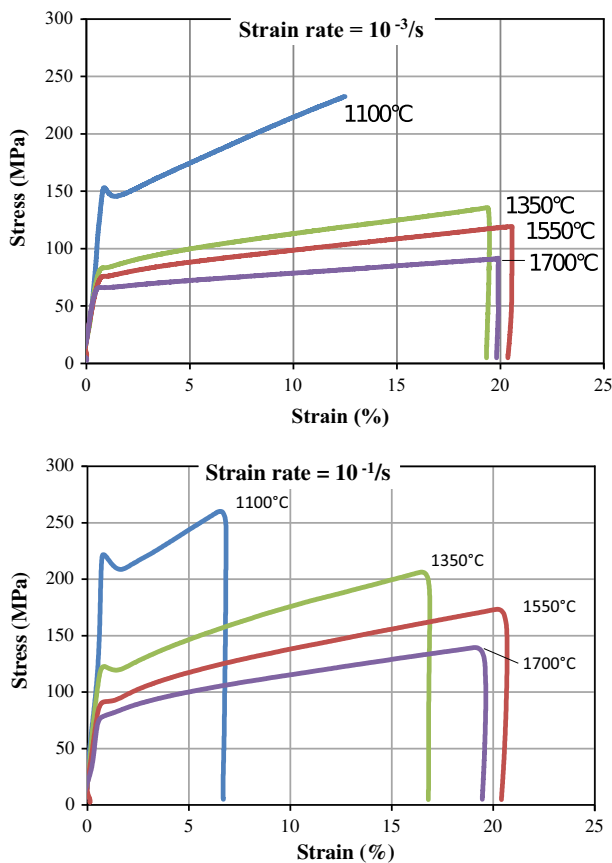


Fig. 3. Stress–true strain curves obtained at  $10^{-3}$  and  $10^{-1}/s$ .

general tendency for a given strain rate is a decrease of the measured stress with temperature as expected in strain-rate driven tests [11,30]. A strain hardening conversely proportional to the temperature, i.e.,  $d\sigma/d\varepsilon = f(1/T)$ , is also apparent. In most of the tests, the axial strain reached 20% with no apparent damage of the samples. At 1100 °C however, the tests were interrupted because of the development of axial cracks.

Fig. 4 illustrates the (axial) stress–strain curves obtained at the two temperatures 1350 and 1700 °C and at all the strain rates. The general tendency for a given temperature is an increase of the stress with the strain rate. A strain hardening increasing with the strain rate is also observed. This hardening is usually attributed to an increase of the sample diameter during the test [11].

#### 3.2. Macroscopic evolution

The importance of temperature and strain rate with respect to the samples' damage was clearly seen in these test series. Short axial cracks (1–3 mm long, see Fig. 5) were observed on the pellets tested at 1350 °C at the highest strain rates ( $10^{-2}$  and  $10^{-1}/s$ ) and on all the pellets tested at 1100 °C. No damage was observed during the other tests: 1350 °C and  $10^{-4} - 10^{-3}/s$ , 1550 and 1700 °C. Due to friction at pellet ends, the samples showed a barrel shape with significant diameter increase at mid-height, see Fig. 5. The post-test diameter of the pellets  $d(z)$  was systematically measured at ten regularly spaced points along three generatrices. The hoop strain axial profile  $\varepsilon_{\theta\theta}(z)$  was then estimated according to:

$$\varepsilon_{\theta\theta}(z) = \ln \left( \frac{d(z)}{d_0} \right) \quad (3)$$

A fit of the diameter axial profile with a quadratic function was then used to estimate the post-test average diameter of the pellet  $d_{av}$  and the volume variation  $\Delta V/V$ . Excellent correlation coefficients ( $>0.99$ ) were obtained when fitting the diameter axial profiles due to the nearly perfect symmetry of the deformation with respect to the mid-pellet plane. This indicates that the positioning of the sample and the parallelism of the upper and lower tungsten rods during the tests were correct.

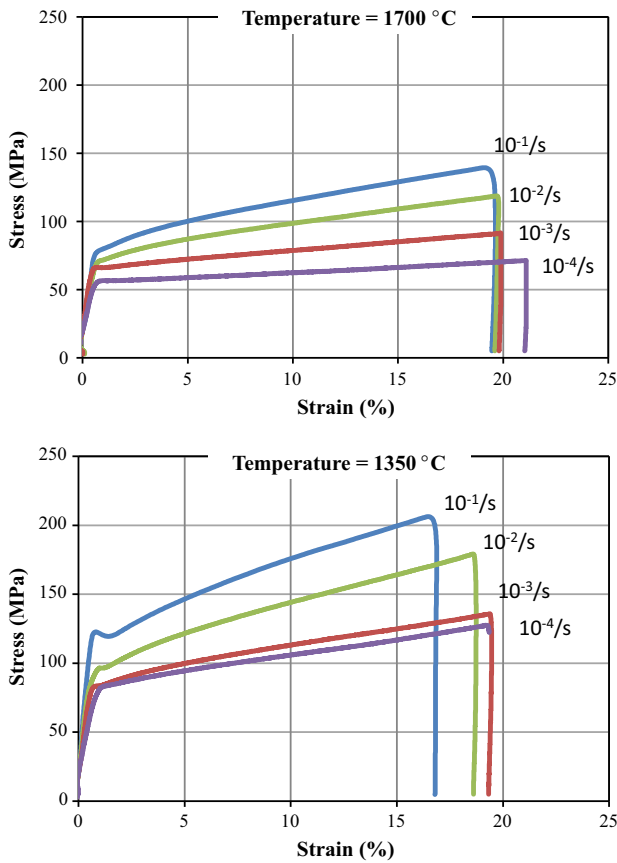


Fig. 4. Stress–true strain curves obtained at 1700 and 1350 °C.

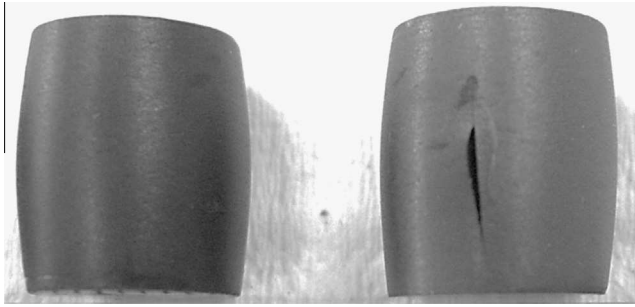


Fig. 5. Shape of uncracked and cracked tested samples.

In Fig. 6, the maximum and average residual hoop strains (calculated from Eq. (3) with the maximum and average diameters) are plotted in function of the residual axial strains. The latter are not identical in all the tests. At 1100 °C, the tests were usually interrupted earlier to avoid dispersion of the samples after cracking. In most of the tests however, the residual axial strains exceeded 15%. The linear fit of the average hoop versus axial strains leads a correlation coefficient very close to 1 (0.9977). In theory, in an isotropic incompressible material subjected to a uniaxial compression, one should have  $\varepsilon_{rr}/\varepsilon_{zz} = \varepsilon_{\theta\theta}/\varepsilon_{zz} = -0.5$ . A small deviation from  $-0.5$  is observed in Fig. 6 since the slope of the linear regression equals  $-0.4784$ . This indicates that the volume of the samples decreased during the tests.

The relative density of the pellets was systematically measured by hydrostatic weighing in alcohol before and after the tests. Before testing, the average relative density was 96.4% with a

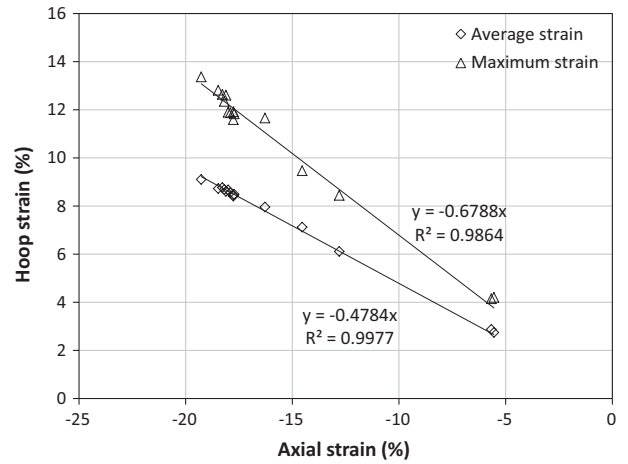


Fig. 6. Average and maximum residual hoop strains versus residual axial strains (all tests).

standard deviation of 0.3%. The densities of the samples loaded at 1550 and 1700 °C was found relatively independent of temperature and strain rate. On average, it was close to 97.4% with a standard deviation less than 0.1%. It indicates that the volume of the samples was significantly reduced ( $\approx 1\%$ ) during the tests. More scatter was found concerning the densities of the samples loaded at 1100 and 1350 °C. No clear trend with the strain rate could be seen. However, the average densities were close to the initial density of the samples (96.4%) indicating that the volume had not been affected too much by the tests.

### 3.3. Microstructure evolution

SEM image analyzes were performed on all the tested samples to study the evolution of the microstructure. The technique is described in Section 2.1. The samples were cut along the  $(r, z)$  plane. Three different locations were considered for SEM: the center of the pellet, the periphery of the pellet at mid-height, the upper extremity of the pellet. The evolution of the measured surface porosity with the strain rate is given in Fig. 7 for all the temperatures.

The results show that the pore volume evolves differently during the test depending on the location. At the top of the pellet, the porosity appears fairly independent of the strain rate and of the temperature but presents a considerable scatter (3.5–4.8%). Most of the values are within twice the standard deviation (0.6%) associated with the pre-test porosity (average 5.2%).

At the periphery of the sample, the post-test porosity is fairly constant whatever the test conditions with an average value close to 3.9%. It indicates that some pore volume was lost during the thermal and loading sequences.

The microstructure of the pellet center is also modified during the tests. First, the measured surface porosities are always less than 4%. They also seem to increase with the strain rate. The evolution with temperature is less obvious. At  $10^{-4}$ /s, the average porosity is equal to 2.4%. Slightly greater average values (2.8–3%) are obtained at the other strain rates. These results show that the porosity at the center of the specimen was considerably reduced during the tests (by 1–2%). The pore size distributions of Fig. 8 confirm this evolution. Most of the pores in diameter greater than 4  $\mu\text{m}$  disappeared during the tests at 1700 °C. The evolution of the grain size is furthermore presented in Fig. 9. Consistent with the pore evolution, a flattening of the grains apparently took place at the pellet center, but not at the pellet periphery and top extremity.

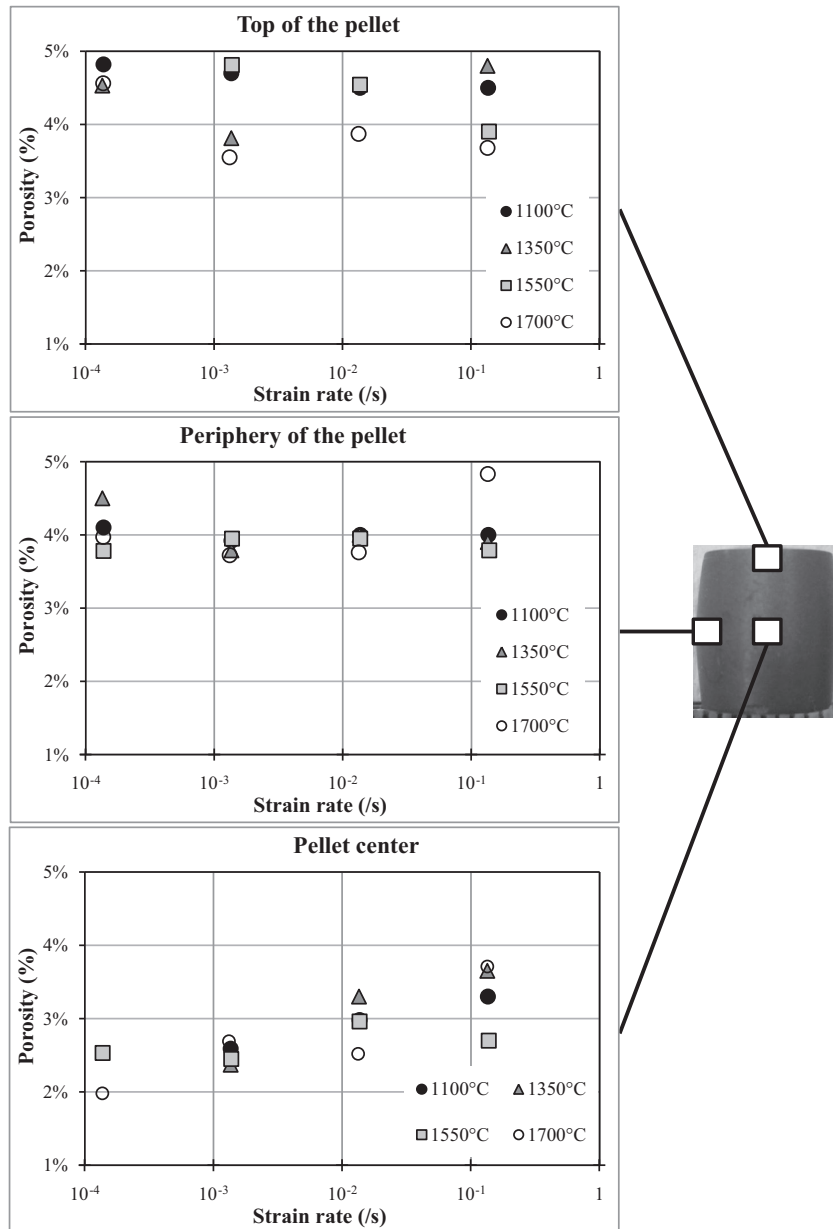


Fig. 7. Post-test surface porosities at the top, periphery and center of the samples.

The arrow on the right of Fig. 9 gives the compression axis and the direction in which the grain diameter has decreased.

These results show that the densification of the samples measured by hydrostatic weighing in alcohol is not homogeneous but preferentially occurred at the center of the pellet. As shown later, this is due to the non-homogeneous stress distribution in the pellet resulting from friction at pellet ends. It may be noticed that the grain boundaries were uncracked in spite of the high level of strain (20%) at the end of the tests. This is surprising since grain boundary cracking related to sliding at the grain interfaces has been observed after creep tests performed at similar temperatures and strain levels [6]. The lack of grain boundary fragmentation in our tests is certainly due to the accommodation of stresses by pore compression and grain plasticity. The samples tested by Dherbey et al. [6] were significantly denser than ours (relative density of more than 98%) and hence probably less prone to stress accommodation by pore compression.

### 3.4. Power-law fit

The strains of uranium dioxide during creep tests, bending tests or strain-rate driven tests are usually described by power laws of the following form:

$$\dot{\epsilon} = K \sigma^n e^{-\frac{Q}{RT}} \quad (4)$$

where  $K$  is a constant,  $\sigma$  the applied stress,  $n$  the stress exponent,  $Q$  an activation energy,  $T$  the temperature and  $R = 8.314$  kJ/mol/K the universal gas constant.  $K$ ,  $Q$  and  $n$  depend on the stress level and hence on the creep mechanism considered (diffusion or dislocation creep). A review of current values for these parameters was done by Seltzer [25] and more recently by Monerie and Gatt [17].

In our experiments, the pronounced hardening requires the definition of an arbitrary stress level if one wants to apply a power law. In the following interpretation of the test data, the value of the stress at a strain of 2% was used to calculate the parameters of the



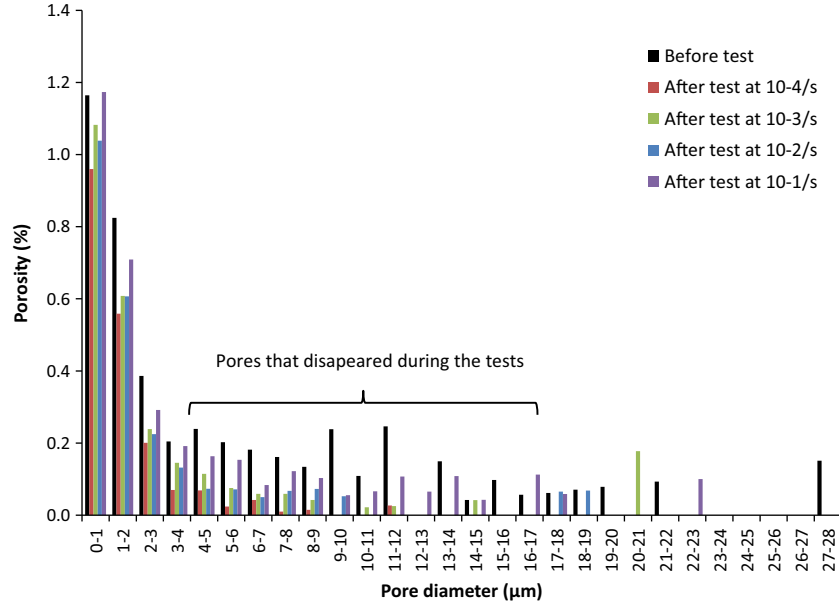


Fig. 8. Pore size distribution at the pellet center before and after the tests at 1700 °C.

power law. The stress exponent  $n$  is deduced for each temperature from Fig. 10 where the stresses at 2% strain are plotted in function of the strain rate (log–log scale). The linear regressions did not all lead to the same value of  $n$  regardless of the temperature but to exponents between 16 and 25. Similar values have already been obtained in tests performed at moderate to high strain rates, i.e.,  $10^{-3} - 10^{-2}/s$  [11,30]. They are far from the 3 to 7 exponents identified from creep or bending tests. These high values show that the material tends to be less viscous as the strain rate increases.

To estimate the activation energy  $Q$ , we plot  $\ln \dot{\epsilon}/\sigma^n$  versus  $1/RT$  as shown in Fig. 11. A stress exponent  $n$  of 18 is used. The slope of the linear regression gives an activation energy of 549 kJ/mol. Values of the same order were already obtained ([11] 462 kJ/mol, [6] 524 kJ/mol, [2] 552 kJ/mol) from creep or strain-rate driven tests. They are usually attributed to a dislocation creep mechanism [25] which is consistent with the high stress (>60 MPa) and temperature level in our tests. They are close to the activation energy of uranium self-diffusion ( $Q = 577$  kJ/mol).

These results confirm that a single power law is not adequate to model the strains of uranium dioxide over the whole range of strain rates it can encounter during a RIA. As suggested by several authors, the stress exponent  $n \sim 16 - 25$  obtained at high strain rates and high stresses might be the signature of a Peierls mechanism with no specific microstructural features [3,18,30].

In the next Section, we will introduce a constitutive model able to describe  $UO_2$  behavior in the moderate to high strain rate range.

## 4. Modelling and simulation

### 4.1. Constitutive model

In 2002, Dherbey et al. [6] proposed an alternative model for uranium dioxide creep, based on a unique hyperbolic sine law. The original idea came from the fact that diffusion creep was not present in coarse grain samples (grain size 36  $\mu m$ ). The usual separation in two creep mechanisms appeared therefore more apparent than real. With the hyperbolic sine law, they were able to reproduce their data over the whole range of considered stresses (10–80 MPa) and temperatures (1365 – 1575 °C). Recently, Soulaçroix et al. [28] successfully used a similar function to fit the test data of Guérin [11] and particularly the strain rate dependency.

In 2006, Monerie and Gatt [17] introduced material volume variation in the standard two power laws model. The hollow sphere model of Michel and Suquet [15] was considered to account for pore compressibility. The formulation of the model is based on the definition of a quadratic macroscopic potential  $\Psi$  dependent on the first and second invariants of the stress tensor.

In our experiments, a non constant stress exponent  $n$  and densification (negative pore volume evolution) were simultaneously observed. We therefore propose here to use a hyperbolic sine law to cover a large stress–strain rate domain and add pore compressibility. To this end, the following macroscopic potential is defined:

$$\Psi(\sigma_m, \sigma_{eq}, f) = \sigma_0 K e^{\frac{Q}{RT}} \cosh\left(\frac{\Sigma}{\sigma_0}\right) \quad (5)$$

where  $\Sigma = \sqrt{\alpha \sigma_m^2 + \beta \sigma_{eq}^2}$  is an equivalent stress which depends on the hydrostatic stress  $\sigma_m = \frac{1}{3} \sigma : 1$  and on the second invariant of the stress tensor  $\sigma_{eq} = \sqrt{\frac{3}{2} \mathbf{s} : \mathbf{s}}$  (with  $\sigma$  the stress tensor, 1 the unit tensor and  $\mathbf{s} = \sigma - \sigma_m 1$  the deviatoric stress tensor).  $f$  is the porosity volume fraction. The two parameters  $\alpha(f)$  and  $\beta(f)$  define the relative contribution of the hydrostatic  $\sigma_m$  and of the deviatoric stresses  $\sigma_{eq}$  to the strain rate.  $\sigma_0$  and  $K$  are constant parameters.  $Q$  is the activation energy. The macroscopic viscoplastic strain rate tensor  $\dot{\epsilon}^{vp}$  is given as follows by the derivation of Eq. (5) with respect to stress:

$$\dot{\epsilon}^{vp} = \frac{\partial \Psi}{\partial \sigma} = K e^{\frac{Q}{RT}} \sinh\left(\frac{\Sigma}{\sigma_0}\right) \left( \frac{1}{3} \alpha \frac{\sigma_m}{\Sigma} 1 + \frac{3}{2} \beta \frac{\mathbf{s}}{\Sigma} \right) \quad (6)$$

As proposed by Monerie and Gatt [17], the following mass balance is used to describe porosity volume fraction evolution:

$$\dot{f} = (1 - f) \dot{\epsilon}^{vp} : 1 = (1 - f) K e^{\frac{Q}{RT}} \sinh\left(\frac{\Sigma}{\sigma_0}\right) \alpha \frac{\sigma_m}{\Sigma} \quad (7)$$

### 4.2. Parameters identification

The model is completely defined if the five parameters  $K, Q, \sigma_0, \alpha$  and  $\beta$  are known. A rough estimation can be obtained assuming that the compression tests led to a homogeneous stress state in the samples and that most of the prescribed strain is viscoplastic (neglecting elastic strains). In this case, the stress tensor has

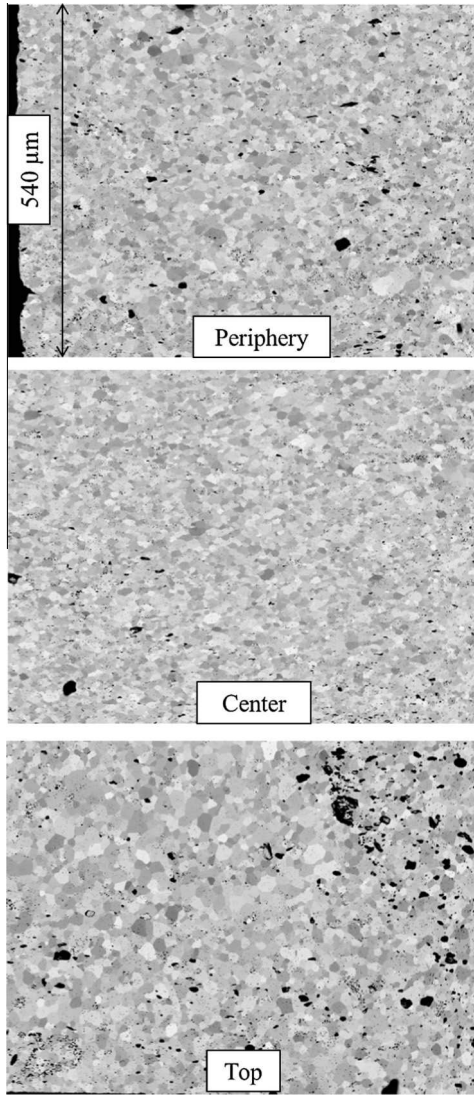


Fig. 9. Microstructure of the pellet periphery, center and top after the test at 1550 °C and  $10^{-4}$ /s.

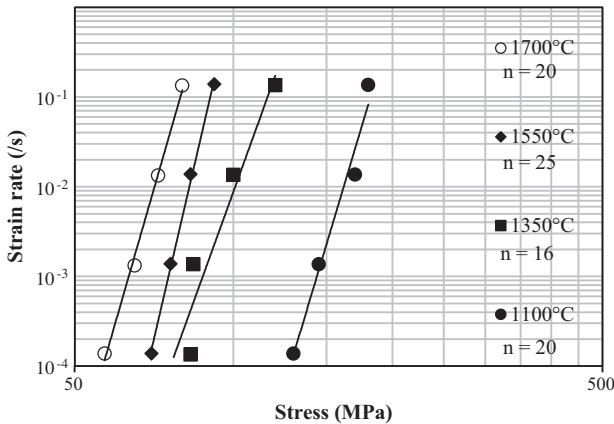


Fig. 10. Strain rate versus stress at 2% strain in the tests.

one component  $\sigma_{zz} = -\sigma$  with  $\sigma > 0$  the magnitude of the axial stress ( $\sigma_m = -\frac{1}{3}\sigma$  and  $\sigma_{eq} = \sigma$ ). By simple mathematics, one can

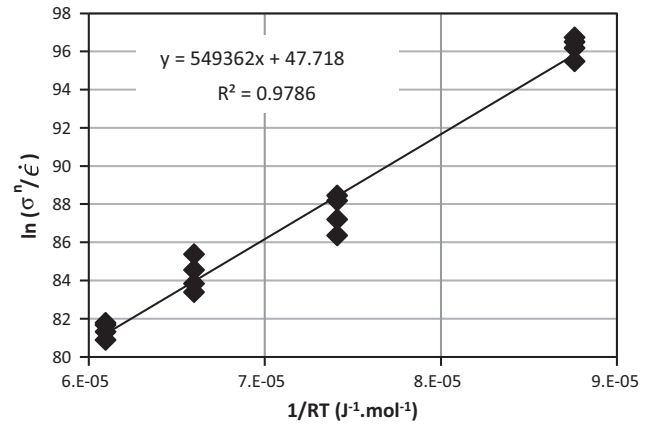


Fig. 11. Determination of the activation energy from the test results.

show that the axial strain rate  $\dot{\epsilon}_{zz}$  is related as follows to the stress  $\sigma$ :

$$\dot{\epsilon}_{zz} \approx \dot{\epsilon}_{zz}^{vp} = -K \frac{\alpha + \beta}{\sqrt{\frac{1}{9}\alpha + \beta}} e^{-\frac{Q}{RT}} \sinh \left( \frac{\sigma \sqrt{\frac{1}{9}\alpha + \beta}}{\sigma_0} \right) \quad (8)$$

In a first approximation, the pore compressibility can also be neglected ( $\alpha = 0$  and  $\beta = 1$ ) leading to the following simple expression:

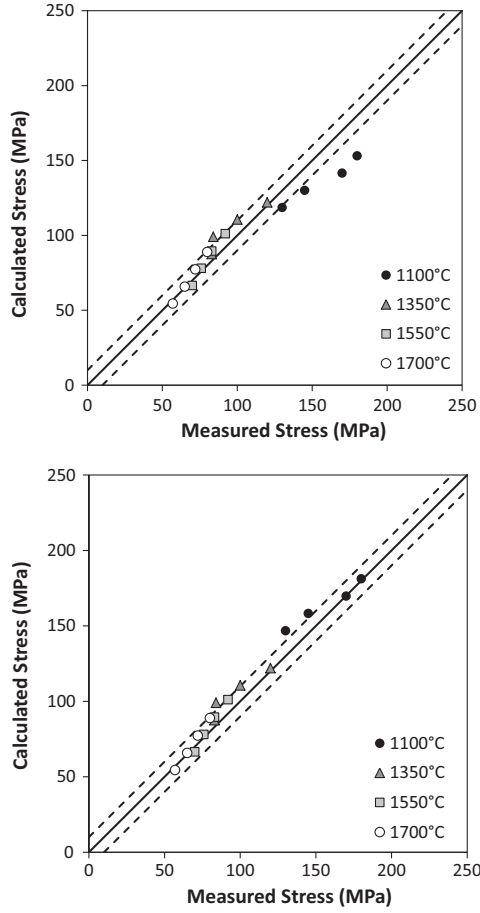
$$\dot{\epsilon}_{zz} = -K e^{-\frac{Q}{RT}} \sinh \left( \frac{\sigma}{\sigma_0} \right) \quad (9)$$

From the tests results presented in Section 3 (stress at 2% strain, temperature, strain rate), the three parameters  $K$ ,  $\sigma_0$  and  $Q$  of Eq. (9) can be readily obtained using a standard Excel spreadsheet with a numerical solver. The initialization of the parameters is based on an exponential fit of the strain rate–stress datapoints ( $\sigma_0 \approx 6$  MPa) and on the activation energy obtained previously from the power law fit ( $\approx 500$  kJ/mol). In Fig. 12, the calculated versus experimental stresses are plotted. The dotted lines indicate the  $\pm 10$  MPa interval. With  $K = 29$ , 130/s,  $\sigma_0 = 5$  MPa and  $Q = 482$  kJ/mol, most of the calculated stresses fall in the  $\pm 10$  MPa interval (Fig. 12 top). Only the 1100 °C data points are out of the domain. This particular behavior at low temperatures and high stresses has been ascribed by Dherbey et al. [6] to an additional sort of barrier to the movement of dislocations, i.e., a Peierls force or lattice resistance [1]. It can be accounted for in the model by a slight modification of the activation energy  $Q$  with temperature:

$$Q = \max(482; 876 - 0.0025T) \text{ kJ/mol} \quad (10)$$

Fig. 12 (bottom) shows the satisfactory agreement between calculated and experimental stresses obtained with this expression for the activation energy. At 1100 °C,  $Q = 546$  kJ/mol. This value remains consistent with a dislocation based creep mechanism ( $Q = 480$ – $580$  kJ/mol as discussed in Section 3.4). The extrapolation of Eqs. (9) and (10) to smaller temperatures leads to increasing stresses with decreasing temperatures, as obtained in the experiments of Guérin [11] (600, 800, 900 and 1100 °C). At 25 °C, a maximum stress  $\sim 1000$  MPa is calculated, consistent with the compression strength of non heated uranium dioxide measured by Igata and Domoto [13].

The two remaining coefficients  $\alpha$  and  $\beta$  can be estimated by analogy with the compressibility included in the power law model of Monerie and Gatt [17]. Assuming again that the compression test led to a uniform stress state in the samples but this time without neglecting pore compressibility, Eq. (7) reduces to:



**Fig. 12.** Calculated stresses versus measured stresses in the strain-rate driven tests (top:  $K = 29, 130/s$ ,  $\sigma_0 = 5$  MPa,  $Q = 482$  kJ/mol, bottom:  $K = 29, 130/s$ ,  $\sigma_0 = 5$  MPa,  $Q = \max(482; 876 - 0.0025T)$  kJ/mol).

$$\dot{f} = -(1-f)K \frac{\alpha}{\sqrt{\frac{1}{9}\alpha + \beta}} e^{-\frac{Q}{RT}} \sinh \left( \frac{\sigma \sqrt{\frac{1}{9}\alpha + \beta}}{\sigma_0} \right) \quad (11)$$

Comparing this expression to Eq. (8) for the strain rate leads to:

$$\dot{f} = (1-f) \frac{\alpha}{\alpha + \beta} \dot{\epsilon}_{zz} \quad (12)$$

The rate of porosity evolution in a compression test depends directly on the applied strain rate (neglecting elastic strains).

The formulation proposed by Monerie and Gatt [17] is based on a micro-macro approach. Uranium dioxide is considered as an incompressible isotropic matrix with randomly distributed pores. The compressibility of the pores explains the volume variation of the material at the macroscopic scale. The behavior of the incompressible matrix is described by power laws similar to Eq. (4). The hollow sphere model of Michel and Suquet [15] is used to define the parameters of the macroscopic potential from which the viscoplastic strain rate tensor is derived. The equivalent stress  $\Sigma$  in their model takes the following form:

$$\Sigma = \sqrt{\frac{9}{4} A \sigma_m^2 + B \sigma_{eq}^2} \quad (13)$$

where  $A$  and  $B$  are given in function of the porosity  $f$  and of the stress exponent  $n$  of the power law by:

$$A(f) = \left( n \left( f^{-\frac{1}{n}} - 1 \right) \right)^{-\frac{2n}{n+1}} \quad (14)$$

$$B(f) = \left( 1 + \frac{2}{3}f \right) (1-f)^{-\frac{2n}{n+1}} \quad (15)$$

The parameters  $A(f)$  and  $B(f)$  ensure that the incompressible viscoplastic behavior of the matrix is recovered when the porosity tends to zero ( $A(f) \rightarrow 0$  when  $f \rightarrow 0$  and  $B(f) \rightarrow 1$  when  $f \rightarrow 0$ ). The formalism proposed by Monerie and Gatt [17] leads, in case of a uniaxial compression test, to the following expression for the porosity evolution rate:

$$\dot{f} = (1-f) \frac{A}{A + \frac{4}{3}B} \dot{\epsilon}_{zz} \quad (16)$$

The comparison of Eqs. (12) and (16) shows that the compressible hyperbolic sine and power law models will give a similar porosity evolution rate (in uniaxial compression) if:

$$\frac{\alpha}{\beta} = \frac{9}{4} \frac{A}{B} \quad (17)$$

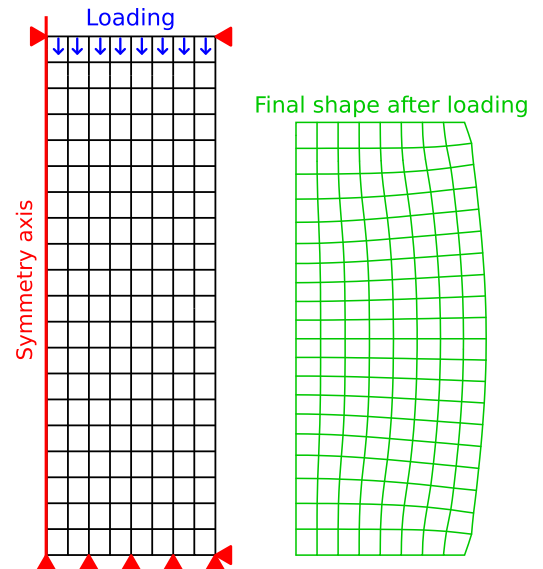
Thus, any combination of  $(\alpha, \beta)$  parameters that satisfies condition 17 is suitable. In the simulations that follow, we chose  $\alpha = \frac{9}{4}A(f)$  and  $\beta = B(f)$  with a stress exponent  $n = 6$ . A value of 6.2 was used by Dherbey et al. [6] to fit their test data at high stress level.

#### 4.3. Numerical implementation

The hyperbolic sine model was readily implemented using a code generator called MFfront which is developed by the CEA. MFfront allows the user to write constitutive equations in a way which is very similar to their mathematical expressions, notably by providing an appropriate tensorial formalism [12]. MFfront turns the user's behavior implementation into optimized C++ sources which can be plugged into several mechanical solvers. The simulations reported in this paper were performed using Cast3M, the CEA finite element solver [4].

The constitutive equations are written using the standard small-strain formalism based on an additive partitioning of the total strain into an elastic and a viscoplastic part:

$$\boldsymbol{\sigma} = \mathbf{C} : \boldsymbol{\varepsilon}^e = \mathbf{C} : (\boldsymbol{\varepsilon} - \boldsymbol{\varepsilon}^{vp}) \quad (18)$$



**Fig. 13.** Mesh, boundary conditions and loading (prescribed axial displacement rate) in the simulations of the strain-driven compressive test.



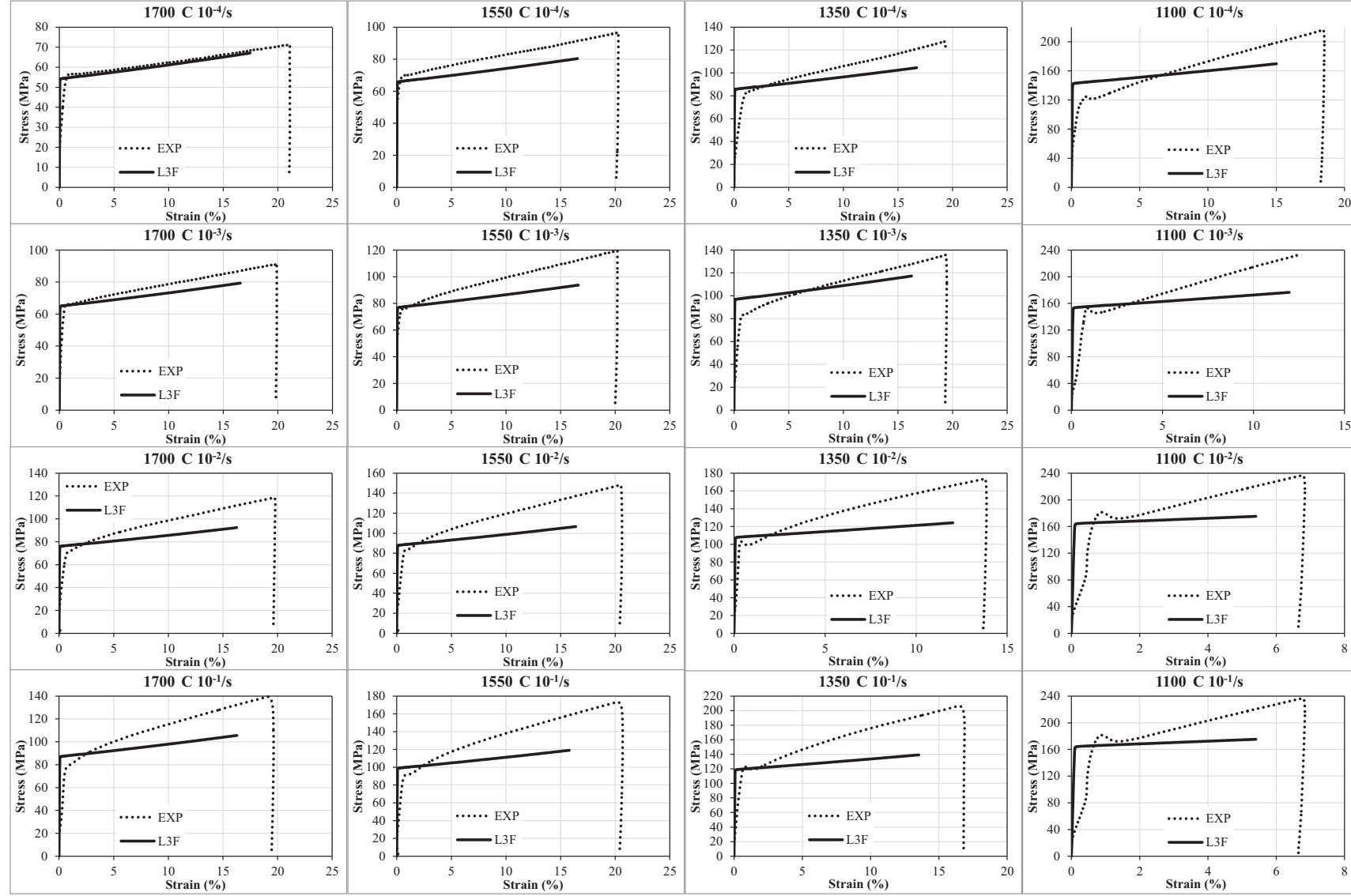


Fig. 14. Calculated (L3F) and measured (EXP) stress-strain curves in all the tests.

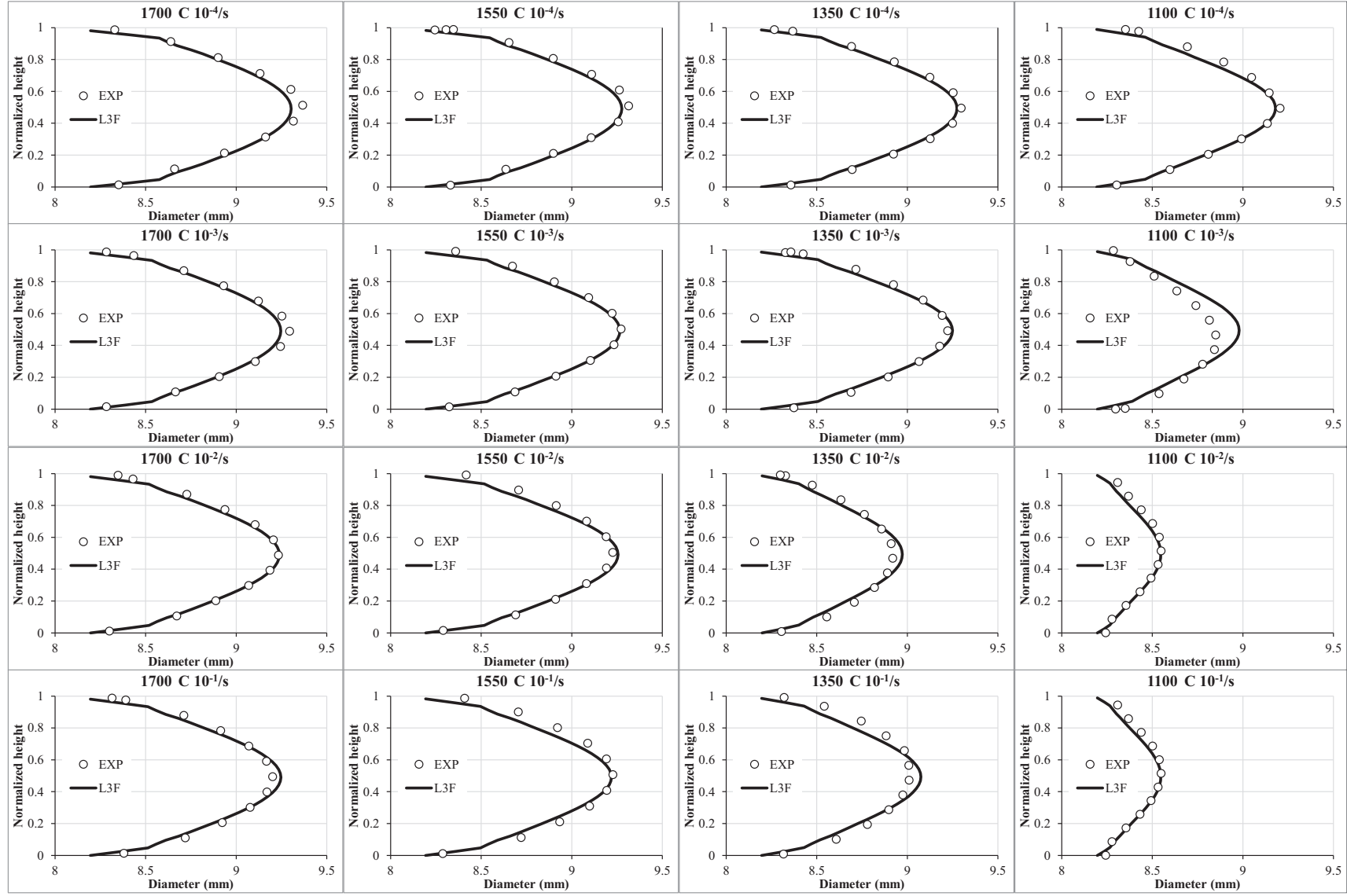
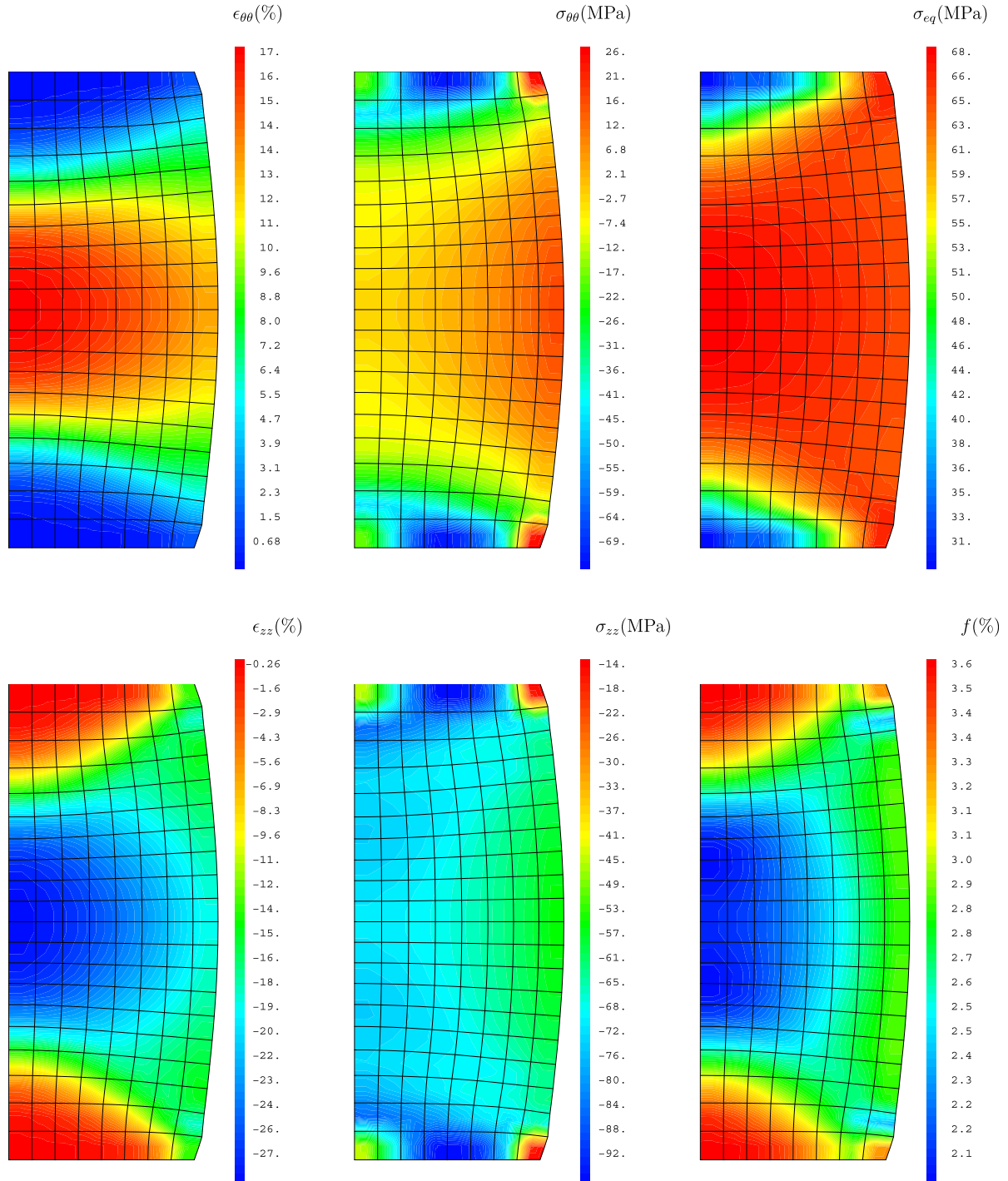


Fig. 15. Calculated (L3F) and measured (EXP) diameter axial profiles after all the tests.



**Fig. 16.** Isovalues of hoop and axial strains, hoop and axial stresses, second stress invariant and porosity in the pellet tested at 1700 °C and 10<sup>-3</sup>/s.

where  $\mathbf{C}$  is the fourth order elastic tensor and  $\boldsymbol{\varepsilon}^e$  the elastic strain tensor. An implicit numerical scheme is used to solve the system with the main unknowns as the six components of the elastic strain tensor, the equivalent viscoplastic strain defined by  $\boldsymbol{\varepsilon}^{vp} : \boldsymbol{\varepsilon}^{vp}$  and the porosity  $f$ .

The system of Eqs. (6), (7) and (18) has been solved in finite strain computations using two distinct approaches:

- a hypoelastic Eulerian formulation provided by the Cast3M finite element solver. Cast3M implementation is close to the one described by Simo and Hugues [27];

- the lagrangian logarithmic strains proposed by Miehe et al. [16] and provided by MFront. This approach is consistent with the definition of the strains given earlier in this paper.

For the creep tests with monotonic loading considered here, these two approaches were found to give similar results, a fact also reported by Doghri [7] in another context.

#### 4.4. Simulation of strain rate driven tests

As discussed in Section 3, the stress state in the samples tested in compression is far from being uniaxial. Friction at the upper and

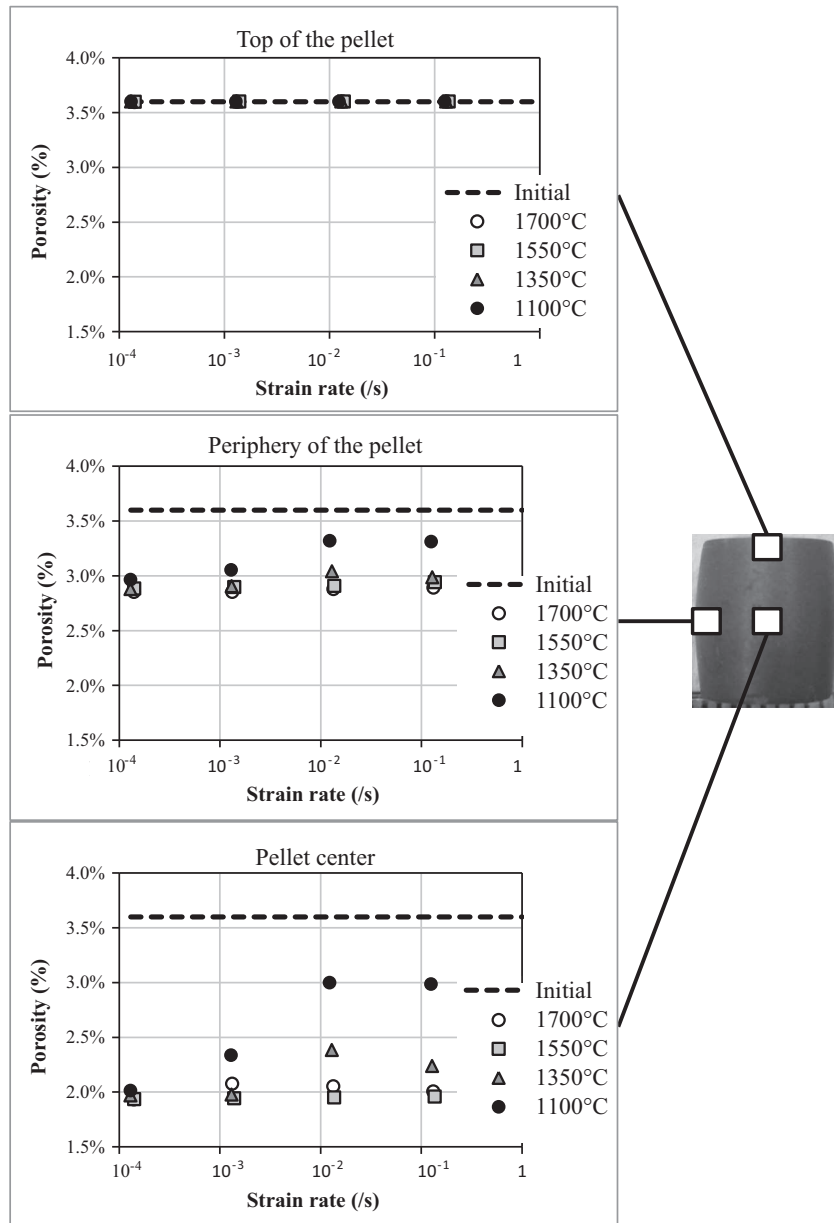


Fig. 17. Calculated porosities after the tests at the top, center and periphery of the samples.

lower ends tends to generate a three-dimensional stress state. As a consequence, densification was observed preferentially at the samples' core. The important axial and hoop strains reached during the tests suggest that structural non linearities (large deformations) might be of importance when analyzing the results.

The mesh and boundary conditions used in the simulations are presented in Fig. 13. Only half of the pellet is meshed with quadratic elements assuming two-dimensional axisymmetry. The upper and lower tungsten plates are not directly taken into account. The strong friction at pellet ends is described by the boundary conditions: the radial displacement of the upper and lower surface is forbidden. Structural behavior is taken into account by using the large displacements scheme of Cast3M [4]. A constant axial displacement rate between 0.01 and 100 mm/s (depending on the test simulated) is then prescribed on the upper surface of the pellet. The maximum prescribed axial displacement matches the experimental value to ease the comparison of residual strains. The thermal strains are taken into account prior to the

displacement-driven phase. They are subtracted at the end of the simulation.

The modulus of elasticity  $E$  and Poisson ratio  $\nu$  considered in the simulations are based on Martin [14]. They are expressed in function of the temperature  $T$  (in K) and of the porosity  $f$  as follows:

$$E = (1 - 2.5f)(226.93 - 1.5399 \times 10^{-2}T - 9.597 \times 10^{-6}T^2) \quad (19)$$

$E$  is given in GPa,  $\nu$  is constant and equal to 0.3. The initial porosity of uranium dioxide considered in the simulations was based on the average relative density measured prior to testing:  $f_0 = 0.036$ .

Fig. 14 shows the experimental and simulated stress-strain curves for all the tests. The model reproduces correctly the strain rate and temperature dependency. The apparent strain hardening during the tests is partly recovered in the simulations. The calculated slope of the stress-strain curves tends to increase with the strain rate and decrease with temperature. These results are consistent with the experimental curves. The magnitude of strain hardening is however not well caught at high stresses (high strain

rates and low temperatures). Material plastic hardening rather than structural hardening could be at the origin of these differences.

Fig. 15 gives the calculated and measured axial diameter profiles of the pellets at the end of all the tests. The barrel shape of the pellet is well reproduced in the simulation owing to the boundary conditions on the top and bottom surfaces. The magnitude of diameter increase during the tests is also well captured in the simulations.

Fig. 16 illustrates the calculated distribution of axial-hoop strains, of axial-hoop stresses, of the second stress invariant and of the porosity during the test at 1700 °C and  $10^{-3}$ /s. As expected from the barrel shape, there is a pronounced axial gradient in the axial and hoop strains distribution ( $\varepsilon_{zz}(z)$  and  $\varepsilon_{\theta\theta}(z)$ ). While the radial and axial deformations of the upper and lower parts of the pellet are small, the axial and hoop strains in the central part of the pellet reach –28% and 17%, respectively. These values have to be compared to the average axial and hoop strains at mid-pellet height: –18% and 13% respectively. A radial gradient is also apparent in Fig. 16. The axial and hoop strains tend to decrease when approaching the periphery of the pellet.

A radial gradient in axial stress is also apparent at mid-pellet height, see Fig. 16. The periphery is less stressed (–50 MPa) than the center (–80 MPa). The distribution of hoop stress is different. The top and bottom parts of the pellet are mostly in compression due to the radial constraint. At mid-height, the pellet periphery is surprisingly in tension (20 MPa). These tensile hoop stresses are due to the non uniform densification. In fact, the densification of the material is stronger at the pellet center than at the pellet periphery. This radial densification gradient is similar to a thermal gradient where the shrinkage of the pellet center is hindered by the pellet periphery. In consequence, hoop tensile stresses appear on the external pellet surface.

The reduction of the porosity is controlled by the equivalent stress  $\Sigma$ , see Eq. (7), and so by the first and second invariants of the stress tensor. However, the contribution of the second invariant to porosity evolution is more important ( $\beta$  is close to 1 while  $\alpha$  is less than 0.01). As seen in Fig. 16, the second invariant presents radial and axial gradients with minima at the top and bottom of the pellet and a maximum at the pellet center. The periphery lies in between. The reduction of the porosity is therefore faster at the pellet center. Fig. 17 gives the calculated porosities of the samples after testing. At the top of the pellet, the residual porosity is equal to the pre-test porosity (3.6%). At the pellet periphery, the residual porosity is close to 2.9%. At the pellet center, it goes down to 2%. It appears that the reduction in porosity is less important at 1100 °C in particular when the tests were stopped at a low strain level (6%). The general trends obtained from the simulations are in good agreement with the evolution of the measured surface porosities of Fig. 7.

#### 4.5. Simulation of creep tests

In the previous Section 4.4, it has been checked that the model was able to reproduce the behavior of a single uranium dioxide material at strain rates between  $10^{-4}$  and  $10^{-1}$ /s.

To assess the validity of the model at lower strain rates, the creep test database available at the CEA has been simulated. It contains 231 tests performed on uranium dioxide pellets with a grain diameter between 5 and 70  $\mu\text{m}$  and an initial porosity between 1% and 6%. The applied stress in the creep tests is in the interval 20–80 MPa, the test temperature within 1300 – 1700 °C. The tests resulted in stationary creep strain rates, i.e., constant strain rates, between  $10^{-9}$  and  $10^{-4}$ /s.

The model of Section 4.1 was slightly modified to account for the variation in grain size of the pellet materials. The following

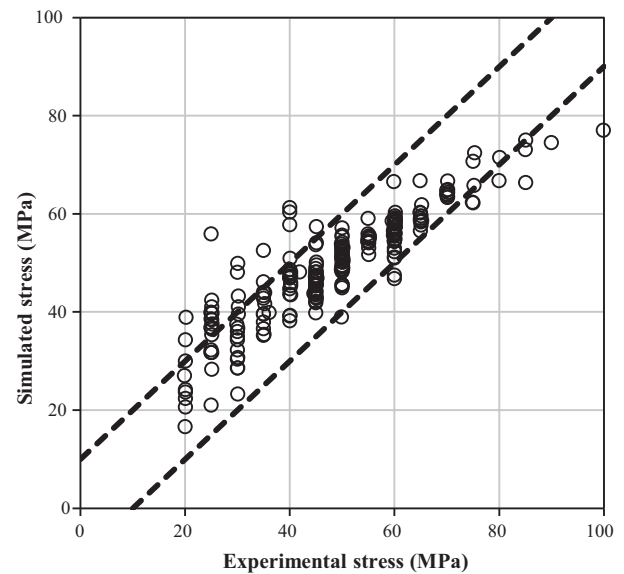


Fig. 18. Calculated and measured creep stresses in 231 creep tests.

function for  $K$  was used to describe the increase of stationary creep rates with the grain size:

$$K = K_0 e^{\frac{\gamma}{d-d_0}} \quad (20)$$

with  $K_0 = 77,400/\text{s}$  and  $\gamma = 5.277 \mu\text{m}$  two constant parameters and  $d_0 = 4.6 \mu\text{m}$  a reference grain diameter. The mechanism behind the grain size dependency of uranium dioxide creep is still a matter of discussion [9]. At high stresses and temperature, the creep strain rate is usually considered either independent of grain size [25] or dependent on the grain size using an increasing function (Monerie and Gatt used a  $d^2$  dependency for uranium dioxides with  $4.5 \leq d \leq 26 \mu\text{m}$  [17]). The extensive database of the CEA, where uranium dioxides with grain size up to 70  $\mu\text{m}$  have been tested, showed that the expected increase of the creep stationary strain rate with grain size was actually limited. In consequence, an exponential increasing function with upper limit  $K_0$  is proposed here to model the grain size dependency of uranium dioxide creep.

The mesh and boundary conditions of Fig. 13 were also used in the creep test simulations. The measured stationary creep strain rates were used to define the prescribed axial displacement rates (knowing the initial height of the pellets). The axial stresses reached in the simulations just after the elastic part of the stress–strain curves are compared in Fig. 18 to the stresses applied in the creep tests. More than 80% of the calculated stresses lie in the confidence interval of  $\pm 10$  MPa. The smaller stresses which correspond to small strain rates are well captured by the model showing that both the diffusion and dislocation creep regimes can be correctly assessed with a hyperbolic sine model [6].

#### 4.6. Conclusions

In this paper, a three-dimensional model was proposed to describe the behavior of uranium dioxide in compression. A dedicated series of compression tests was first realized to obtain data at high strain rates ( $10^{-4}$  –  $10^{-1}$ /s). The general trends were of an increasing axial stress with the strain rate and of a decreasing axial stress with the temperature (1100 – 1700 °C). The post-test SEM image analyzes and density measurements revealed a pronounced densification mostly at the pellet center.

A hyperbolic sine model accounting for porosity evolution was proposed to describe the experimental data over the whole range

of strain rates and temperatures considered. The Finite Element simulations of the tests showed a good agreement with the measures in terms of stress–strain curves, post-test axial diameter profiles, porosity evolution at the pellet center, periphery and top. The model was then checked against a database of 231 high temperature creep tests (1300–1700 °C) performed on uranium dioxide materials with 4–70 µm grain diameters and 1–6% porosity. The model was able to predict in more than 80% of the cases, and within a margin of  $\pm 10$  MPa, the applied stress for a given stationary creep strain rate.

The proposed model covers therefore a wide range of strain rates ( $10^{-9}$ – $10^{-1}$ /s), stresses (20–250 MPa) and temperatures (1100–1700 °C) that makes its use possible in fuel performance codes dedicated to normal, off-normal (power ramps) or accidental conditions.

### Acknowledgements

The authors would like to thank Julian Soulacroix and Bruno Michel from the CEA for fruitful discussions on the model.

### References

- [1] M.F. Ashby, *Acta Metall.* 20 (7) (1972) 887–897.
- [2] P.E. Bohaboy, R.R. Asamoto, A.E. Conti, Compressive creep characteristics of stoichiometric uranium dioxide. Technical Report GEAP-10054, General Electric Co., Sunnyvale, Calif. Breeder Reactor Development Operation, 1969.
- [3] R.F. Canon, J.T.A. Roberts, R.J. Beals, *J. Am. Ceram. Soc.* 54 (2) (1971) 105–112.
- [4] Cast3m, 2010. <<http://www-cast3m.cea.fr>>.
- [5] B. Cazalis, J. Desquines, C. Poussard, M. Petit, Y. Monerie, C. Bernaudat, P. Yvon, X. Averty, *Nucl. Technol.* 157 (3) (2007) 215–229.
- [6] F. Dherbey, F. Louchet, A. Mocellin, S. Leclercq, *Acta Mater.* 50 (6) (2002) 1495–1505.
- [7] I. Doghri, *Mechanics of Deformable Solids: Linear, Nonlinear, Analytical, and Computational Aspects*, Springer, Berlin; New York, 2000.
- [8] T. Fuketa, H. Sasajima, T. Sugiyama, *Nucl. Technol.* 133 (1) (2001) 50–62.
- [9] J.-C. Gao, L.-F. Wang, Y. Wang, S.-F. Wu, *Trans. Nonferrous Metals Soc. China* 20 (2) (2010) 238–242.
- [10] K. Geelhood, Modeling high burnup RIA tests with FRAPTRAN, in: TopFuel 2010, Orlando, Florida, USA, 2010.
- [11] Y. Guérin, *J. Nucl. Mater.* 56 (1) (1975) 61–75.
- [12] T. Helfer, E. Brunon, E. Castelier, A. Ravenet, N. Chauvin, The fuel performance code Celaeno, conception and simulation of fuel elements for gas-cooled fast reactor, in: GLOBAL 2009, Paris, France, 2009.
- [13] N. Igata, K. Domoto, *J. Nucl. Mater.* 45 (4) (1973) 317–322.
- [14] D. Martin, *High Temp. High Press.* 21 (1) (1989) 13–24.
- [15] J.C. Michel, P. Suquet, *J. Mech. Phys. Solids* 40 (4) (1992) 783–812.
- [16] C. Miehe, N. Apel, M. Lambrecht, *Comput. Meth. Appl. Mech. Eng.* 191 (4748) (2002) 5383–5425.
- [17] Y. Monerie, J.-M. Gatt, *Mech. Mater.* 38 (7) (2006) 608–619.
- [18] J.S. Nadeau, *J. Am. Ceram. Soc.* 52 (1) (1969) 1–7.
- [19] J. Papin, B. Cazalis, J.M. Frizonnet, J. Desquines, F. Lemoine, V. Georgenthum, F. Lamare, M. Petit, *Nucl. Technol.* 157 (3) (2007) 230–250.
- [20] K.C. Radford, G.R. Terwilliger, *J. Am. Ceram. Soc.* 58 (7–8) (1975) 274–278.
- [21] J.T.A. Roberts, *Acta Metall.* 22 (7) (1974) 873–878.
- [22] A. Romano, H. Wallin, M.A. Zimmermann, R. Chawla, *Nucl. Eng. Des.* 236 (3) (2006) 284–294.
- [23] F. Sauter, S. Leclercq, *J. Nucl. Mater.* 322 (1) (2003) 1–14.
- [24] F. Schmitz, J. Papin, *J. Nucl. Mater.* 270 (12) (1999) 55–64.
- [25] M.S. Seltzer, J.S. Perrin, A.H. Clauer, B.A. Wilcox, *Reactor Technol.* 14 (2) (1971) 99–135.
- [26] J. Sercombe, E. Fédérici, M. Le Saux, B. Michel, C. Poussard, 1D and 3D modeling of PCMI during a RIA with ALCYONE V1.1, in: TopFuel 2010, Orlando, Florida, USA, 2010.
- [27] J.C. Simo, T.J.R. Hughes, *Computational Inelasticity*, Springer, New York, 1998.
- [28] J. Soulacroix, B. Michel, J.-M. Gatt, R. Kubler, L. Barrallier, Comportement micromécanique de l'UO<sub>2</sub>: anisotropie du monocristal et contraintes internes associées dans le polycristal, in: 21ème Congrès Français de Mécanique, Bordeaux, France, 2013.
- [29] M. Suzuki, H. Saitou, T. Fuketa, *J. Nucl. Sci. Technol.* 43 (9) (2006) 1097–1104.
- [30] T. Tachibana, H. Furuya, M. Koizumi, *J. Nucl. Sci. Technol.* 13 (9) (1976) 497–502.



## Résumé

L'objectif de ce travail est de caractériser et de modéliser le comportement mécanique des oxydes d'uranium ( $\text{UO}_2$ ) en situation d'accident d'injection de réactivité (Reactivity Initiated Accident ou RIA). Les sollicitations vues par le combustible durant un RIA sont caractérisées par de fortes vitesses de déformation (jusqu'à 1 /s) et de fortes températures (1000 °C – 2500 °C). Deux lots de pastilles d' $\text{UO}_2$  (de type industriel et à forte densité) ont donc fait l'objet d'une campagne d'essais de compression à vitesses de déplacements imposées (0,1 - 100 mm/min auxquelles correspondent des vitesses de déformations de  $10^{-4}$  /s -  $10^{-1}$  /s) et à températures régulées (1100 °C – 1350 °C – 1550 °C et 1700 °C). Les résultats expérimentaux obtenus (évolution de la géométrie, de la contrainte d'écoulement et de la microstructure) ont permis de définir un modèle de fluage en sinus hyperbolique ainsi qu'un critère de Drucker-Prager avec plasticité associée, modélisant la fragmentation des joints de grain à l'échelle macroscopique. Des simulations Éléments Finis de ces essais et de plus de 200 essais de fluage ont servi à valider la réponse du modèle sur une grande gamme de températures (1100 °C – 1700 °C) et de vitesses de déformation ( $10^{-9}$  /s -  $10^{-1}$  /s). Enfin, une loi de comportement dite L3F (Loi Fluage Fissuration Fracturation des joints de grain) a été développée pour l' $\text{UO}_2$  en ajoutant, au modèle précédent, le fluage d'irradiation et la fissuration macroscopique en traction. Cette loi a alors été utilisée dans le code crayon combustible ALCYONE-RIA pour simuler, à l'aide d'une modélisation 1,5D, les essais REP-Na effectués dans le réacteur expérimental CABRI. Les résultats de simulation sont en bon accord avec les observations post-essais.

## Abstract

The aim of this work is to characterize and model the mechanical behavior of uranium dioxide ( $\text{UO}_2$ ) during a Reactivity Initiated Accident (RIA). The fuel loading during a RIA is characterized by high strain rates (up to 1 /s) and high temperatures (1000 °C – 2500 °C). Two types of  $\text{UO}_2$  pellets (commercial and high density) were therefore tested in compression with prescribed displacement rates (0.1 - 100 mm/min corresponding to strain rates of  $10^{-4}$  /s -  $10^{-1}$  /s) and temperatures (1100 °C – 1350 °C – 1550 °C et 1700 °C). Experimental results (geometry, yield stress and microstructure) allowed us to define a hyperbolic sine creep law and a Drucker-Prager criterion with associated plasticity, in order to model grain boundaries fragmentation at the macroscopic scale. Finite Element Simulations of these tests and of more than 200 creep tests were used to assess the model response to a wide range of temperatures (1100 °C – 1700 °C) and strain rates ( $10^{-9}$  /s -  $10^{-1}$  /s). Finally, a constitutive law called L3F was developed for  $\text{UO}_2$  by adding to the previous model irradiation creep and tensile macroscopic cracking. The L3F law was then introduced in the 1.5D scheme of the fuel performance code ALCYONE-RIA to simulate the REP-Na tests performed in the experimental reactor CABRI. Simulation results are in good agreement with post tests examinations.

