



Science Arts & Métiers (SAM)

is an open access repository that collects the work of Arts et Métiers Institute of Technology researchers and makes it freely available over the web where possible.

This is an author-deposited version published in: <https://sam.ensam.eu>
Handle ID: <http://hdl.handle.net/10985/8334>

To cite this version :

Julian SOULACROIX, Bruno MICHEL, Jean-Marie GATT, Laurent BARRALLIER, Regis KUBLER
- Approche multi-échelle de l'hétérogénéité de déformation du dioxyde d'uranium - In: 11e
Colloque National en Calcul des Structures, GIENS : France (2013), France, 2013-05 - 11e
Colloque National en Calcul des Structures - 2013

Any correspondence concerning this service should be sent to the repository

Administrator : scienceouverte@ensam.eu



Approche multi-échelle de l'hétérogénéité de déformation du dioxyde d'uranium

Julian SOULACROIX ^{1*}, Bruno MICHEL ², Jean-Marie GATT ³, Régis KUBLER ⁴, Laurent Barrallier ⁵

¹ CEA Cadarache, DEN/DEC/SESC/LSC, julian.soulacroix@cea.fr

² CEA Cadarache, DEN/DEC/SESC/LSC, bruno.michel@cea.fr

³ CEA Cadarache, DEN/DEC/SESC/LSC, jean-marie.gattl@cea.fr

⁴ Arts et Métiers ParisTech Aix en Provence, MSMP, regis.kubler@ensam.eu

⁵ Arts et Métiers ParisTech Aix en Provence, MSMP, laurent.barrallier@ensam.fr

* Auteur correspondant

Abstract — Le dioxyde d'uranium est le combustible nucléaire de référence pour la filière des réacteurs à eau pressurisée en France. Une étude expérimentale du comportement mécanique de ce matériau montre qu'il est le lieu d'une déformation hétérogène, c'est-à-dire d'une déformation plastique localisée, à l'échelle macroscopique. Des simulations numériques montrent que l'apparition et la forme de la localisation dépendent du comportement local du matériau, de la sollicitation appliquée, des conditions aux limites, mais aussi de la description initiale de la microstructure, et notamment la prise en compte d'une hétérogénéité initiale du matériau.

Mots clés — dioxyde d'uranium, UO_2 , hétérogénéité, déformation, localisation

1 Introduction

Le dioxyde d'uranium (formule chimique UO_2) est une céramique obtenue par un procédé de frittage de poudre. Pour une utilisation en réacteur nucléaire, il est mis sous forme de petits cylindres d'environ 8 mm de diamètre et 12 mm de hauteur (appelées « pastille »). Ces cylindres sont ensuite glissés dans des gaines en alliage de zirconium, lesquelles sont regroupées dans des assemblages, qui sont ensuite insérés dans le cœur du réacteur nucléaire. Le comportement du combustible en service dépend de l'état mécanique de la pastille et de la gaine fortement couplé aux autres phénomènes mis en jeu lors de l'irradiation (thermique, comportement des produits de fission, ...). Pour le comportement mécanique de la pastille il est notamment nécessaire d'étudier la déformation visco-plastique à haute température (supérieure à 1000°C environ) du combustible vierge, c'est-à-dire non irradié.

Bien qu'un nombre important d'études aient porté sur l' UO_2 , l'étude de la localisation de la déformation dans ce matériau n'a pour le moment pas fait l'objet d'une attention particulière. Les résultats expérimentaux montrent cependant que, pendant un essai de compression, l' UO_2 peut se déformer de manière asymétrique. Cela prouve que le comportement mécanique de ce matériau peut induire une localisation importante de la déformation à l'échelle macroscopique.

2 Mise en évidence expérimentale de l'hétérogénéité de déformation du dioxyde d'uranium

2.1 Description de l'essai mécanique

Un essai considéré comme pertinent du point de vue de l'étude expérimentale des sollicitations en service (représentatif de la zone centrale chaude de la pastille), et pratique du point de vue de la mise en œuvre, consiste en la compression isotherme d'une pastille entière, à bords bloqués, à vitesse de déformation imposée (essai « DVC »). Il est communément utilisé pour caractériser le combustible nucléaire au CEA depuis les années 1970 ([1, 2, 3]). Les informations que l'on obtient lors de cet essai sont de deux types : la courbe de charge (force en fonction du déplacement) et la forme de la déformée

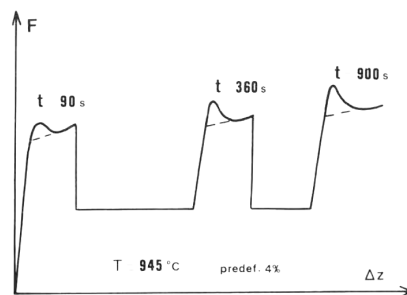


Figure 1: Pic de compression dans UO_2 et répétition après attente (d'après [5])

finale de la pastille, pour une déformation axiale totale donnée, généralement d'environ 10%.

2.2 Comportement mécanique de l' UO_2 : mise en évidence d'un phénomène de vieillissement par diffusion de défauts

L' UO_2 , comme toutes les céramiques, est fragile à température ambiante. En revanche, pour une température supérieure à environ 1000°C (soit environ $0,4T_m$ où T_m est la température de fusion de l' UO_2), et pour des vitesses de déformation supérieures à environ 10^{-6}s^{-1} , il se déforme par un mécanisme classique de glissement des dislocations ([4]). C'est ce régime de déformation que nous étudions.

L' UO_2 n'est pas un matériau parfaitement pur (présence d'atomes extrinsèques, présence de défauts intrinsèques tels que les lacunes ou interstitiels d'uranium ou d'oxygène, ou présence de phases différentes). Le procédé de fabrication utilisé ainsi que les conditions d'essai peuvent affecter fortement son comportement mécanique. De manière générale, on remarque qu'un "pic de compression", qui correspond à un adoucissement important, apparaît à haute vitesse de déformation et basse température (pour une température de 1500°C , il n'est présent que pour des vitesses supérieures à environ 5.10^{-5}s^{-1} , d'après [1]). Ce pic de compression est répété après une période d'attente en température sous faible charge ([5]), comme illustré fig. 1.

Les éléments expérimentaux à notre disposition semblent prouver un phénomène de vieillissement par diffusion de défauts ponctuels vers les dislocations (souvent appelé DSA pour "dynamic strain ageing"), ce qui a tendance à freiner ou bloquer les dislocations. Ce phénomène est bien connu pour les métaux, mais il a également été déjà identifié dans des céramiques de structure cristallographique proche de l' UO_2 ([6]). Le défaut incriminé dans le cas de l' UO_2 n'a pas été identifié de manière certaine. La modélisation du phénomène de vieillissement et l'ajustement des paramètres du modèle sur les résultats expérimentaux indiquent que l'énergie d'activation du phénomène de vieillissement est proche de l'énergie de migration des lacunes d'oxygène, défaut intrinsèque de l' UO_2 .

2.3 Pic de compression et hétérogénéité macroscopique de déformation

En cas d'absence de pic de compression, la pastille se déforme dans une forme symétrique dite "en tonneau" (fig. 2 (a)). Le pic de compression implique qu'une zone déjà déformée est plus facile à déformer qu'une zone non déformée : on s'attend donc à une localisation possible de la déformation plastique dans le cas de la présence de ce comportement. Dans la majorité des essais présentant un pic, la déformée finale de pastille est en fait "en tonneau", ne traduisant pas de phénomène de localisation particulier. Cependant, dans le cas de très forts pics de compression, et uniquement dans ce cas, il a été parfois observé ([1]) une déformée de pastille asymétrique (fig. 2 (b)). Dans ce cas, la déformation est initialement localisée sur un plan légèrement incliné par rapport à l'axe de compression de l'essai, situé à environ 1/3 du haut ou du bas de la pastille. Au fur et à mesure de l'essai, ce plan se déplace progressivement vers le centre de la pastille (fig. 3). Aucun défaut de planéité ou d'inclinaison des surfaces de contact de la machine de compression n'a pu être mis en évidence, ce qui prouve que ce phénomène résulte bien d'un couplage entre le comportement du matériau, les effets de structure et les conditions aux limites.

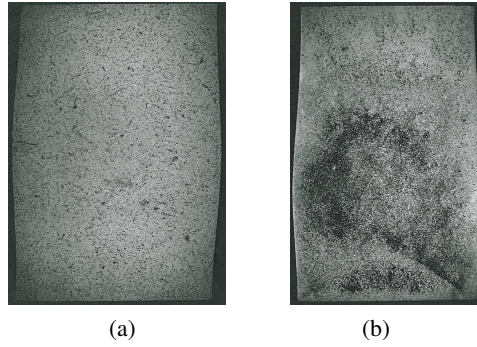


Figure 2: Photographie en coupe d'une pastille après essai. La déformée peut être symétrique (a) ou asymétrique (b) (essais effectués au CEA)

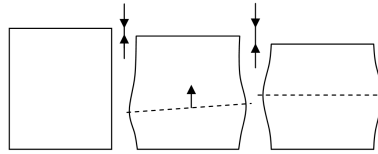


Figure 3: Schéma de l'évolution du plan de localisation de la vitesse de déformation lorsque la déformée finale est asymétrique

3 Modélisation macroscopique

3.1 Description du modèle utilisé

Une loi de comportement macroscopique locale a été développée. Elle est inspirée des travaux sur la modélisation du vieillissement dynamique initialement développée par McCormick et coll. ([7, 8]). Ce modèle permet de prendre en compte l'effet de migration de défauts ponctuels vers les dislocations. Ici, cela est fait via une variable d'état c_a (dépendant du temps), correspondant au rapport entre la quantité de défauts ayant migré vers les dislocations et la quantité maximale de défauts pouvant le faire. Cette concentration est en fait reliée au temps d'attente d'une dislocation t_a (grandeur utilisée par McCormick et coll.) par la relation $c_a = 1 - \exp\left(-\left(\frac{t_a}{t_0}\right)^n\right)$, où t_0 est un temps caractéristique de vieillissement, traduisant la durée que mettent les défauts à migrer vers une dislocation, et n un coefficient inférieur à 1. Nous faisons l'hypothèse qu'il existe une surcontrainte nécessaire pour activer la déformation plastique, quantifiée par la grandeur $\sigma_a = \sigma_a^\infty c_a$, σ_a^∞ représentant la surcontrainte maximale liée au vieillissement.

Les particularités de notre modèle ne sont pas discutées ici en détail et seront présentées dans de prochaines communications.

Ce modèle permet effectivement de reproduire les phénomènes décrits au paragraphe 2.2. Il amène un pic de compression répété, lié à l'augmentation de défauts aux dislocations lors des phases d'attente (voir fig. 4, qui reproduit qualitativement le comportement de la fig. 1). Cette loi de comportement est implémentée dans Cast3M grâce à l'outil MFront. MFront est un outil développé au CEA permettant d'implémenter de manière simple et rapide des lois de comportement pour Cast3M.

3.2 Modélisation de l'essai de compression sur pastille : influence de l'hétérogénéité initiale du vieillissement

Des calculs par éléments finis avec le logiciel Cast3M ont été réalisés pour simuler l'essai de compression sur pastille. Le comportement moyen d'une pastille en compression à bords bloqués est proche de la solution analytique de la loi de comportement pour un chargement uniaxiale.

Dans toute cette partie, les calculs ont été réalisés avec les paramètres ajustés pour l' UO_2 à partir des résultats expérimentaux de [1]. Les simulations ont été réalisées pour une température de 1200°C et une vitesse de 10^{-3}s^{-1} , conditions impliquant un fort pic de compression et pour lesquelles la déformation asymétrique a été observée occasionnellement ([1]).

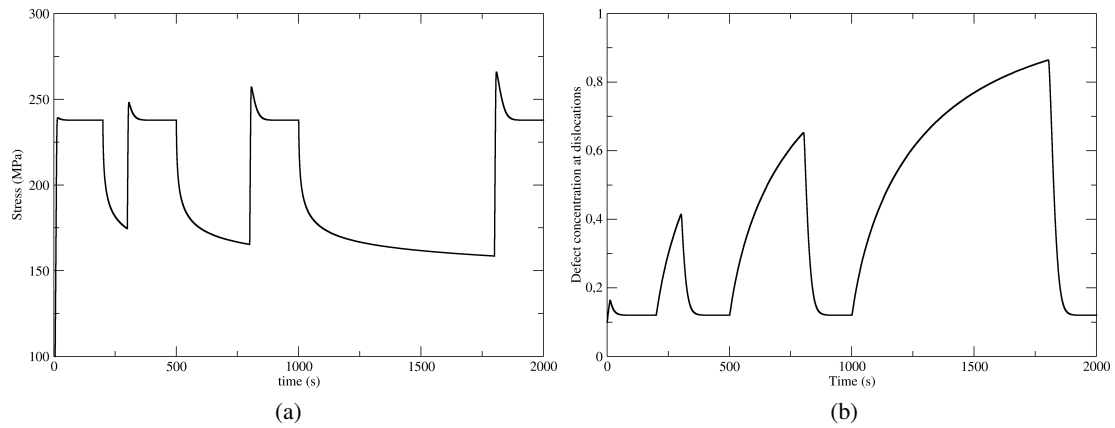


Figure 4: Simulation du pic de compression répété (a) et variation associée de la concentration en défauts aux dislocations (b) lors d'un essai à vitesse imposée, interrompu par des phases de relaxation

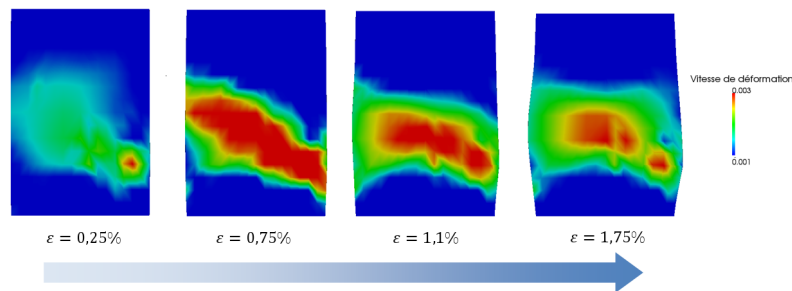


Figure 5: Evolution de la localisation de la vitesse de déformation au cours d'un essai de compression, lorsque la déformée finale est asymétrique

Nous avons observé que malgré l'utilisation d'un comportement adoucissant, l'on n'obtient pas de localisation de la déformation sur un volume de plus en plus fin lorsque l'on raffine le maillage de calcul. Au contraire, tous les autres paramètres étant fixés par ailleurs, la solution du calcul par éléments finis tend vers une solution unique lorsque l'on raffine le maillage de calcul.

Nos simulations ont montré que le comportement global de la pastille dépend de la valeur initiale de sa variable interne c_a (concentration relative de défauts aux dislocations qui implique une surcontrainte pour déformer le matériau). Ce champ peut être initialement soit spatialement uniforme, soit spatialement hétérogène.

Cas d'un champ initial uniforme : Si le champ initial de c_a est uniforme, la déformation finale de la pastille est toujours "en tonneau". Cela est indépendant du comportement local de la pastille (que l'on ait un fort pic de compression ou pas).

Cas d'un champ initial hétérogène : Si le champ initial de c_a est hétérogène, on peut, dans certains cas expliqués dans la suite de ce paragraphe, obtenir une déformation de pastille de type asymétrique (fig. 5). Le processus de déformation est conforme à ce qui est observé expérimentalement : la vitesse de déformation croît d'abord rapidement sur un plan (qui peut être localisé à environ 1/3 d'une des faces de l'échantillon), puis cette zone de localisation de la vitesse de déformation se déplace vers le centre de la pastille (voir fig. 3).

Il y a en fait beaucoup de manières d'introduire et de contrôler l'hétérogénéité initiale du champ c_a . Nous avons choisi d'utiliser trois méthodes différentes et de les combiner. Ces méthodes et leurs effets sont résumés dans le tableau 1 et les figures 6 et 7 montrent l'influence des paramètres présentés dans le tableau 1 sur la localisation de la déformation.

On appelle \tilde{Z} le rapport entre la distance du plan où la déformation est la plus forte à la face de la pastille la plus proche et la longueur totale de la pastille. Cette grandeur est exprimée à déformation totale

| Méthode | Description | Paramètres | Influence sur la localisation |
|--|--|--|---|
| Utilisation d'un maillage de génération de c_a différent du maillage de calcul | Le champ généré sur un maillage arbitrairement choisi. Il est ensuite projeté sur le maillage de calcul pour effectuer la simulation. Le choix d'un tel maillage introduit une longueur interne dans la simulation. Le maillage de génération est toujours pris moins raffiné que le maillage de calcul. | Nombre de noeuds du maillage de génération : N | L'influence du raffinement du maillage de génération de c_a n'est pas directe (voir fig. 7(a)). Il semble qu'il y ait un nombre de noeuds (et donc une longueur interne) permettant d'avoir une simulation représentative de l'expérience. Cette longueur est d'environ 500 μ m et ne correspond pas à une taille d'hétérogénéité connue. |
| Génération de c_a selon une loi statistique | Nous avons utilisé la relation $c_a = 1 - \exp(-(t^*)^n)$ et avons généré des champs aléatoires de t^* selon une loi normale, caractérisée par sa moyenne μ et son écart-type σ . Les valeurs de t^* négatives sont exclues (ce cas se présente souvent si $\sigma > \mu$) | Paramètres de la loi normale σ et μ | De manière générale, il faut une valeur de t^* suffisamment élevée (influence du paramètre μ) et suffisamment dispersée (influence du paramètre σ) pour obtenir une déformation asymétrique (\tilde{Z} proche de 0,33), comme illustré fig. 6. Ce n'est cependant pas suffisant, car le comportement est chaotique. |
| Contrôle du "germe" de génération des nombres pseudo-aléatoires | Le numéro de germe servant à la génération des nombres pseudo-aléatoires est fixé arbitrairement, ce qui permet de générer plusieurs fois les mêmes champs pseudo-aléatoires. | Numéro de germe I | Le numéro de germe affecte le résultat (voir fig. 7 (b)). |

Tableau 1 – Méthodes de génération d'un champ hétérogène et effets sur la localisation de la déformation

fixée ici à 0,6%.

Comme observé expérimentalement, \tilde{Z} varie entre 0,5 (plan localisé au milieu de la pastille donc déformation symétrique) et 0,33 (plan localisé au tiers de la hauteur de la pastille et déformation la plus asymétrique possible).

L'influence des différentes méthodes de génération d'un champ hétérogène initial de c_a n'est pas simple. Il est assez facile de trouver des conditions qui impliquent systématiquement une déformation symétrique "en tonneau" : il faut utiliser un champ peu hétérogène (influence de σ qui traduit la dispersion des valeurs de c_a , voir fig.6). En revanche, il est difficile de trouver des conditions qui impliquent une localisation asymétrique systématiquement : même pour des champs traduisant un vieillissement important et une dispersion importante, la localisation dépend du raffinement du maillage de génération et des valeurs réelles du champ, déduites de la valeur initiale de le germe servant à générer les nombres pseudo-aléatoires. Les paramètres servant à créer l'hétérogénéité du champ c_a n'ont donc que des influences statistiques sur la localisation, donc relativement aléatoires. Cela est néanmoins représentatif du phénomène physique : la localisation asymétrique n'est pas observée systématiquement expérimentalement, même à conditions d'essais fixées le plus précisément possible.

4 Modélisation cristalline et approche par volume élémentaire représentatif

4.1 Description du modèle

Une loi de comportement de type plasticité cristalline a été développée. Cette loi est basée sur les mêmes hypothèses que la loi macroscopique, mais prend en compte la cristallographie de l'UO₂. L'effet de vieillissement a été introduit pour chaque système de glissement, ce qui implique que le comportement

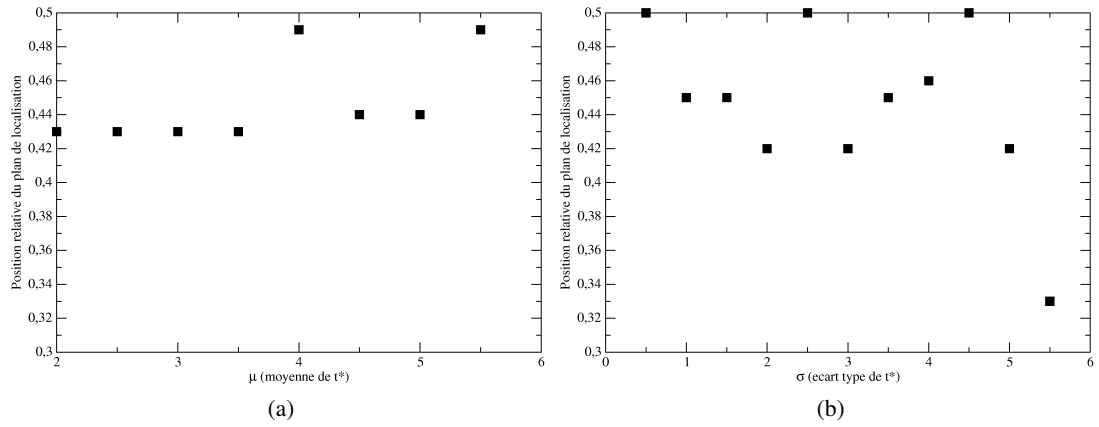


Fig. 6 – Influence de μ valeur moyenne de t^* (avec $\sigma = 2$ fixé) (a) et σ écart-type de t^* (avec $\mu = 3$ fixé) (b) (c_a se déduit par la relation $c_a = 1 - \exp(-(t^*)^n)$) sur la position du plan de localisation de la déformation (toutes les autres variables sont fixées par ailleurs)

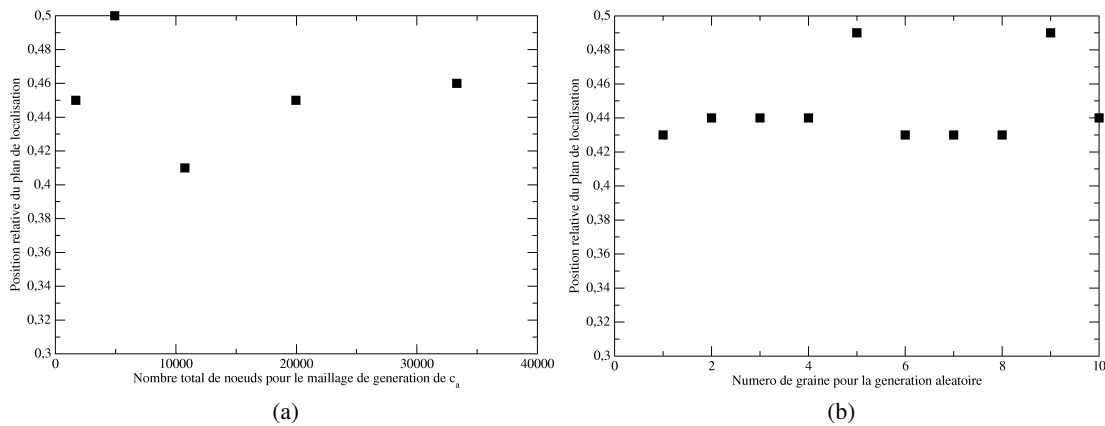


Fig. 7 – Influence du raffinement du maillage de génération de c_a (a) et du numéro de germe de génération de nombres pseudo-aléatoires (b) sur la position du plan de localisation de la déformation (pour $\sigma = 3$ et $\mu = 3$, toutes les autres variables sont fixées par ailleurs)

microscopique présente également un pic de compression. Cette loi de comportement est implémentée dans Cast3M grâce à l’outil MFront.

4.2 Approche par VER

Comme il est impossible de simuler un volume correspondant à une pastille entière, des méthodes de calculs sur agrégat (volume élémentaire représentatif) sont nécessaires. Ces dernières années, une méthode de simulation d’agrégat de géométrie périodique avec conditions aux limites périodiques a été développée (voir [9]). Nous avons plus récemment développé un autre type de conditions aux limites, dits “en moyenne”, qui peut s’appliquer à une géométrie périodique ou quelconque. Nous présentons brièvement ces deux types de conditions aux limites et étudions leur effet sur la localisation et le comportement homogénéisé estimé, notamment la possibilité de donner lieu à un pic de compression ou non. Dans tous les cas, la géométrie est obtenue par une tessellation de Voronoi.

Conditions aux limites périodiques sur agrégat périodique Dans ce cas la géométrie de l’agrégat est périodique. Le volume simulé n’est pas cubique, mais correspond à un ensemble de grains collés les uns aux autres (voir fig. 8 (a)).

Dans le cas où l’on travail à déformation moyenne imposée, on impose à cet agrégat un gradient de déformation moyen : $\frac{1}{V} \int_V \nabla u dV = \nabla U = E + W$, où u est le déplacement, V le volume de l’agrégat, E la partie symétrique de ∇U (la déformation moyenne) et W la partie antisymétrique (la rotation moyenne).

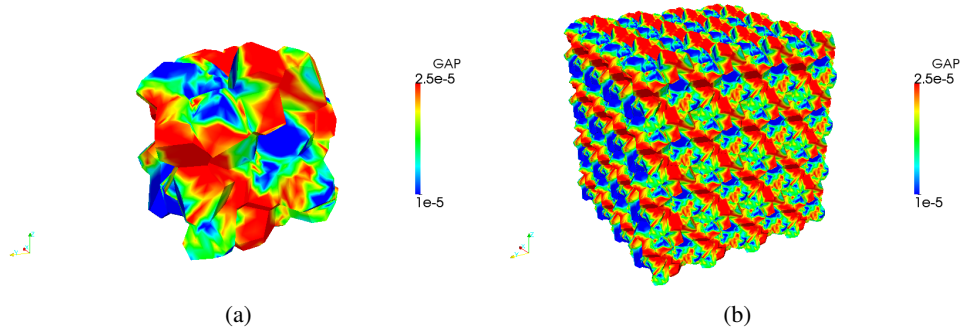


Fig. 8 – Localisation de la vitesse de déformation lors d’un calcul sur agrégat avec conditions périodiques : pour le polycristal simulé (a) et pour le polycristal créé par la répétition du polycristal simulé (b)

W est fixé à une valeur nulle. Les détails de la méthode ne sont pas présentés ici. Il est aussi possible de travailler à contrainte moyenne imposée.

On impose en plus une condition de périodicité qui s’exprime de la manière suivante : pour deux noeuds P_1 et P_2 en vis-à-vis sur les frontières du maillage, $u(P_2) - u(P_1) = E \cdot (X(P_2) - X(P_1))$, où $X(P_i)$ désigne la position spatiale du point P_i .

A l’échelle d’un agrégat polycristallin, le pic de compression est une source d’instabilité importante : la vitesse de déformation se localise souvent en bande. L’usage de conditions aux limites périodiques impose que cette bande soit orientée à $0,45$ ou 90° par rapport à chacun des 3 axes de symétrie, qui sont ici les axes X, Y et Z (voir fig. 8).

[... A TERMINER ...]

Conditions aux limites en moyenne sur agrégat périodique Dans ce cas, la géométrie peut être périodique ou quelconque. Pour pouvoir comparer directement nos résultats entre les conditions aux limites périodiques et les conditions aux limites en moyenne, nous avons utilisé la même tessellation de Voronoï périodique, mais cette fois intersectée par un cube. Le volume est donc cubique.

Comme dans le cas périodique, dans le cas où l’on travail à déformation moyenne imposée, on impose à cet agrégat un gradient de déformation moyen : $\frac{1}{V} \int_V \nabla u dV = \nabla U = E + W$; W est fixé à une valeur nulle. L’utilisation du théorème de Green permet de montrer que :

$$E_{ij} = \frac{1}{V} \int_V \varepsilon_{ij}(u) dV = \frac{1}{2V} \int_{\partial V} (u_i e_j + u_j e_i) \cdot n dS \quad (1)$$

Si ∂V est composé de N facettes indicées k , de normale n_k :

$$E_{ij} = \frac{1}{2V} \sum_k \int_{S_k} (u_i e_j + u_j e_i) \cdot n_k dS = \frac{1}{V} \sum_k U_{ijk} + U_{jik} \quad (2)$$

Pour imposer E_{ij} , il faut donc imposer tous les $U_{ijk} = \frac{1}{2} \int_{S_k} u_i e_j \cdot n_k dS$. Cela revient à imposer des relations entre les déplacements moyens par face.

Ces relations cinématique peuvent être imposées directement avec le logiciel Cast3M. Elles sont suffisantes à l’existence et l’unicité d’une solution du problème mécanique. On peut donc se passer des conditions de périodicité et se contenter d’imposer le tenseur de déformation moyen uniquement.

[... A TERMINER ...]

5 Conclusion

L’essai à vitesse de déformation imposée sur pastille révèle une instabilité dans le mode de déformation plastique. Lorsque les conditions sont favorables, et en fonction de l’état d’hétérogénéité initiale de la microstructure, la déformation peut se localiser dans une zone particulière. Ces observations expérimentales peuvent être reproduites par une simulation numérique, qui doit tenir compte correctement non

seulement de la loi de comportement locale du matériau, mais aussi de l'hétérogénéité du matériau via des champs de variables internes eux-mêmes hétérogènes.

Le comportement obtenu par le calcul est cohérent avec celui observé expérimentalement : la déformation d'une pastille en compression est la plupart du temps "en tonneau" symétrique, mais lorsque le pic de compression est très important, la déformation peut être asymétrique. L'existence ou non d'une telle déformation dépend de manière statistique des paramètres traduisant l'hétérogénéité initiale du matériau et ne peut donc pas être prévue de manière certaine.

Une approche à l'échelle du cristallin a été réalisée. Des calculs ont été réalisés sur des agrégats périodiques, en utilisant des conditions aux limites périodiques ou des conditions dites "en moyenne". L'utilisation de conditions aux limites périodiques empêche de retrouver un comportement macroscopique comportant un fort effet d'adoucissement (grand pic de compression). Au contraire, les conditions aux limites en moyenne le permettent. Ce type de conditions aux limites doit donc être préférentiellement utilisé lors de l'étude à l'échelle cristalline de matériaux présentant un comportement fortement adoucissant.

References

- [1] Y. Guerin. *Etude par compression à hautes températures de la déformation plastique du bioxyde et du monocarbure d'uranium*. PhD thesis, Université Claude Bernard - Lyon, 1973.
- [2] C. Vivant-Duguay. *Contribution à l'étude du fluage du dioxyde d'uranium, rôle des activateurs de croissance cristalline*. PhD thesis, Institut National des Sciences Appliquées de Lyon, 1998.
- [3] F. Dherbey. *Déformation à chaud du dioxyde d'uranium polycristallin*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Grenoble, 2000.
- [4] H.J. Frost and M.F. Ashby. *Deformation-mechanism maps: the plasticity and creep of metals and ceramics*. Pergamon Press, 1982.
- [5] J.M. Lefebvre. *Contribution à l'étude de la déformation plastique d'une céramique de structure fluorite : le bioxyde d'uranium*. PhD thesis, Faculté des sciences de Poitiers, 1976.
- [6] A. Gallardo-Lopez, D. Gomez-Garcia, A. Dominguez-Rodriguez, and L. Kubin. Portevin-le chatelier effect in Y2O3-ZrO2 single crystals. *Scripta Materialia*, 51:203–207, 2004.
- [7] P.G. McCormick. Theory of flow localisation due to dynamic strain ageing. *Acta Metallurgica*, 36:3061–3067, 1988.
- [8] Y. Estrin and P.G. McCormick. Modelling the transient flow behaviour of dynamic strain ageing materials. *Acta Metallurgica et Materialia*, 39:2977–2983, 1991.
- [9] J. Pacull. *Modèle numérique micro-mécanique d'agrégat polycristallin pour le comportement des combustibles oxydes*. PhD thesis, Université de Provence - Aix-Marseille I, 2011.