THÈSE POUR OBTENIR LE GRADE DE DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE MONTPELLIER

En Mécanique, Génie Civil et Architecture

École doctorale : Information, Structures, Systèmes (I2S)

Unité de recherche : Mécanique Théorique, Interface et Changement d'Echelle & Thermomécanique des Matériaux

Étude multi-échelle du phénomène de rupture des joints de grains dans le dioxyde d'uranium

Présentée par Zafilaza Armi MANOROSOA

Le 29 janvier 2024

Sous la direction de Yann MONERIE et de André CHRYSOCHOOS

Devant le jury composé de

Marc FIVEL, Directeur de Recherche, CNRS-SIMaP	Président du jury
Laurent STAINIER, Professeur, Université de Nantes	Rapporteur
Sylvain PATINET, Chargé de Recherche, CNRS-ESPCI	Rapporteur
Bruno MICHEL, Directeur de Recherche, CEA	Examinateur
Marie LANDEIRO DOS REIS, Enseignant-Chercheur, Université de La Rochelle	Examinatrice
Yann MONERIE, Professeur, Université de Montpellier	Directeur de thèse
André CHRYSOCHOOS, Professeur, Université de Montpellier	Co-Directeur de thèse
Andreï JELEA, Ingénieur-Chercheur, IRSN	Encadrant
Frédéric PERALES, Ingénieur-Chercheur, IRSN	Encadrant, Invité
Rodrigue LARGENTON, Ingénieur-Chercheur, EDF	Encadrant, Invité

UNIVERSITÉ DE MONTPELLIER

À mon père.

Remerciements

Je tiens tout d'abord à exprimer ma profonde gratitude envers Messieurs Frédéric Perales et Andreï Jelea, ingénieurs-chercheurs à l'IRSN, pour leur encadrement attentif et leur soutien quotidien tout au long de ce travail de recherche. Leur expertise, leurs conseils éclairés et leur dévouement ont constitué les piliers indispensables de la réussite de la thèse.

Je souhaite également exprimer ma reconnaissance à Monsieur Rodrigue Largenton, ingénieur de chercheur chez EDF, pour les échanges scientifiques enrichissants lors de nos nombreuses réunions.

Un immense merci à Messieurs Yann Monerie et André Chrysochoos, Professeurs à l'Université de Montpellier, pour avoir dirigé cette thèse avec rigueur. Leurs analyses scientifiques rigoureuses, leurs conseils précieux et leurs encouragements ont rendu ce travail possible.

Mes remerciements s'étendent également aux membres du jury pour l'attention qu'ils ont portée à ce travail et pour avoir consacré leur précieux temps à son évaluation. Je remercie Monsieur Marc Fivel pour avoir présidé la soutenance, ainsi que Messieurs Laurent Stainier et Sylvain Patinet pour avoir accepté la tâche fastidieuse de rapporteurs, et Madame Marie Landeiro Dos Reis et Monsieur Bruno Michel pour leur lecture attentive du manuscrit.

Je tiens à exprimer ma reconnaissance aux laboratoires d'accueil, le Laboratoire de Statistique et des Modélisations Avancées (LSMA) de l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) et le Laboratoire de Mécanique et Génie Civil (LMGC) de Montpellier, pour avoir fourni un environnement propice à l'avancement de cette recherche. Je remercie chaleureusement tous les membres de ces laboratoires pour leur accueil, leur assistance et leur soutien tout au long de la thèse.

Un grand merci également à Madame Fabienne Ribeiro, Cheffe du Laboratoire LSMA, pour son suivi attentif, ses conseils précieux et ses remarques constructives tout au long de la thèse.

À mes chers camarades de thèse, Sirine Al Dandachli, Clément Tosi, Giuseppe Spina et Jacintha Naby, je suis profondément reconnaissant pour nos échanges stimulants et notre soutien mutuel tout au long de cette aventure.

Enfin, un immense merci à mes proches, en particulier à Noro Tahina, dont la présence et le soutien ont été une source inestimable de réconfort et de motivation.

Ce travail de thèse n'aurait pas été possible sans chacun d'entre vous, et je vous en suis profondément reconnaissant.

Résumé

Afin de modéliser la tenue thermomécanique du combustible nucléaire UO_2, utilisé dans les réacteurs nucléaires à eau pressurisée, au cours d'une hypothétique situation accidentelle telle que le RIA (Reactivity Initiated Accidents), une connaissance précise du seuil de rupture des joints de grains est nécessaire. Actuellement, les seuils de rupture utilisés dans les codes de simulation des combustibles nucléaires sont semi-empiriques et doivent être consolidés. L'objectif de cette thèse est d'obtenir, **par une approche multi-échelle atomistique/mésoscopique**, les paramètres élastiques, la contrainte et l'énergie à rupture des joints de grains dans l'UO_2. Cette approche consiste à identifier les paramètres d'un modèle cohésif à l'échelle mésoscopique avec des données issues de simulations atomistique. À l'échelle atomistique, des calculs de dynamique moléculaire avec un potentiel semi-empirique à charges variables (SMTB-Q) sont menés à l'aide du logiciel LAMMPS. Ces calculs permettent l'obtention des grandeurs physiques caractérisant la rupture de trois joints de grains représentatifs de l'UO_2. L'analyse structurale, réalisée sur les trois structures de joint de grains soumises à des contraintes de traction uniaxiale et sur une large plage de températures, a montré que le travail de séparation est la grandeur la plus appropriée pour caractériser d'un point de vue énergétique le processus de rupture. Le travail de séparation, étant une grandeur de parcours (dépend du trajet de chargement), dépend néanmoins de la vitesse de déformation du système, tout comme les contraintes maximales atteintes lors de la traction. L'analyse cristallographique n'a pas mis en évidence la formation de nouvelles phases ou la nucléation de dislocations au niveau des joints de grains, la rupture étant de type fragile. À l'échelle continue, une approche cohésive-volumétrique utilisant les concepts de modèles de zones cohésives frottantes (FCZM) et de méthodes de modélisation numérique des systèmes multicorps basées sur l'approche Non Smooth Contact Dynamics (NSCD) est utilisée pour simuler la rupture de joint de grains avec la présence d'une bulle sous chargement de traction uniaxiale et de pression hydrostatique. Le code de calcul associé, appelé XPER, permet d'analyser la fissuration induite par les joints de grains. Une étude paramétrique sur la taille, le nombre et la forme des bulles intergranulaires est menée. Les bulles munies de bords pointus favorisent la concentration de contrainte, facilitant ainsi l'amorçage de la rupture. Les tendances observées concernant la variation de la taille des bulles sont similaires au modèle de Griffith. Les résultats sont conformes aux résultats expérimentaux. Enfin, sur la base des résultats mésoscopiques, un critère de rupture des joints de grains implémentable dans les codes macroscopiques simulant le scénario accidentel, est proposé.

Mots clés : Dynamique Moléculaire, Modèle Zone Cohésive, dioxyde d'uranium, énergie de rupture et contrainte à rupture.

Abstract

In order to model the thermomechanical behavior of UO_2 nuclear fuel, used in pressurized water nuclear reactors, during a hypothetical accident scenario such as Reactivity Initiated Accidents (RIA), precise knowledge of the grain boundary fracture threshold is necessary. Currently, the fracture thresholds used in nuclear fuel simulation codes are semi-empirical and need consolidation. The objective of this thesis is to obtain, **through a multi-scale atomistic/mesoscopic approach**, the elastic parameters, stress, and rupture energy of grain boundaries in UO_2. This approach involves identifying parameters of a cohesive model at the mesoscopic scale with data from atomistic simulations. At the atomistic scale, molecular dynamics calculations using a semi-empirical variable charge potential (SMTB-Q) are conducted with the LAMMPS software. These calculations yield physical quantities characterizing the rupture of three representative grain boundaries in UO_2. Structural analysis, performed on the three grain boundary structures under uniaxial tensile strain and over a wide range of temperatures, showed that the separation work is the most appropriate quantity to energetically characterize the rupture process. However, the separation work, being a path-dependent quantity, depends on the deformation rate of the system, similar to the maximum stresses reached during tensile loading. Crystallographic analysis did not reveal the formation of new phases or dislocation nucleation at the grain boundaries, indicating a brittle fracture. At the continuum scale, a cohesive-volumetric approach using concepts of frictional cohesive zone models (FCZM) and numerical modeling methods based on Non-Smooth Contact Dynamics (NSCD) is employed to simulate grain boundary rupture with the presence of a bubble under uniaxial tensile loading and hydrostatic pressure. The associated computational code, called XPER, allows the analysis of fracture induced by grain boundaries. A parametric study on the size, number, and shape of intergranular bubbles is conducted. Bubbles with sharp edges promote stress concentration, facilitating rupture initiation. The observed trends regarding the variation in bubble size are similar to the Griffith model, and the results align with experimental findings. Finally, based on mesoscopic results, a grain boundary rupture criterion implementable in macroscopic codes simulating the accident scenario is proposed.

Key-words : Molecular Dynamics, Cohesive Zone Model, Uranium dioxide, fracture energy and fracture stress.

Table des matières

Introduction générale **18**

1 État de l'art sur le problème industriel **21**
1.1 Contexte industriel 22
1.1.1 Fonctionnent d'une centrale électronucléaire de type REP 22
1.1.2 Combustible UO_2 24
1.1.3 La structure de l'UO_2 25
1.1.4 Accident de réactivité 30
1.2 Seuil de rupture de l'UO_2 : revue bibliographique 31
1.2.1 Déterminations expérimentales du seuil de rupture 31
1.2.2 Déterminations du seuil de rupture à l'aide de modèles empiriques . 34
1.2.3 Conclusion de la revue bibliographique 37
1.3 Positionnement de la thèse et démarche 37
1.3.1 Positionnement de la thèse 37
1.3.2 Démarche multi-échelle 40

2 Identification des paramètres mécaniques et de rupture de l'UO_2 via une approche atomistique **41**
2.1 Méthodes atomistiques 43
2.1.1 Systèmes de particules 43
2.1.2 L'hyper-surface d'énergie potentielle : méthodes d'exploration . . . 45
2.1.3 Grandeurs physiques d'intérêt 50
2.1.4 Potentiels interatomiques 51
2.1.5 Le potentiel interatomique SMTB-Q 54
2.2 Étude des propriétés et du comportement sous contrainte de traction uniaxiale des joints de grains d'UO_2 58
2.2.1 Modèles pour les systèmes étudiés 58
2.2.2 Propriétés des joints de grains d'UO_2 60
2.2.3 Comportement sous contrainte de traction uniaxiale : analyse structurale 65
2.2.4 Comportement sous contrainte de traction uniaxiale : analyse thermodynamique 71
2.3 Proposition de paramètres de lois cohésives 76
2.4 Calcul des propriétés élastiques d'un monocristal d'UO_2 78
2.5 Bilan du chapitre 82

3 Critères de rupture des joints de grains **84**
3.1 Rappel sur la mécanique de la rupture . . . 86
3.1.1 Critère en contrainte . . . 86
3.1.2 Critère énergétique . . . 86
3.2 Hypothèses de modélisation . . . 87
3.2.1 Cas d'étude . . . 87
3.2.2 Approche numérique de la fissuration . . . 89
3.2.3 Comportement volumique . . . 89
3.2.4 Comportement surfacique : Modèle de Zones Cohésives Frottantes . 89
3.3 Étude préliminaire . . . 93
3.3.1 Sensibilité au maillage . . . 93
3.3.2 Influence de la taille du domaine . . . 95
3.4 Cas d'une bulle . . . 98
3.4.1 Traction uniaxiale . . . 99
3.4.2 Pression hydrostatique . . . 103
3.5 Cas de deux bulles . . . 106
3.5.1 Traction uniaxiale . . . 107
3.5.2 Pression hydrostatique . . . 108
3.6 Critère de rupture des joints de grains . . . 112
3.7 Bilan du chapitre . . . 114

Conclusion et perspectives **116**

A Quelques visualisations de champs de contrainte : cas de deux bulles **119**

Bibliographie **127**

Table des figures

1.1 Répartition des centrales nucléaires sur le territoire français [9]. 22
1.2 Fonctionnement d'une centrale nucléaire REP [10]. 23
1.3 Pastille d'UO_2 (à gauche), cuve d'un réacteur à eau pressurisée (à droite) et assemblage des crayons combustibles (au centre) [11]. 24
1.4 Fission nucléaire d'un noyau d'Uranium-235 25
1.5 Maille élémentaire (a = b = c = 5,47 Å) et paramètres de maille du réseau fluorite de l'UO_2 : atomes d'uranium en bleu et d'oxygène en vert [15]. . . 26
1.6 Schématisation de la microscructure de l'UO_2 : (a) état vierge, (b) état irradié. 27
1.7 Images microscopiques d'un combustible irradié avec les trois zones caractéristiques : (a) pastille irradiée [23], (b) et (c) illustrent respectivement la zone intermédiaire avec une taille de grains d'environ 10 µm et la zone HBS avec une taille de grains entre 0.1 et 0.3 µm pour un taux de combustion de 65 GWj/tU [18]. 28
1.8 Caractéristiques des diamètres des bulles (intra et intergranulaires) en fonction de la température et du taux de combustion dans des combustibles UO_2 de REP (◇ zone non spécifiée [24], × : Moyenne, □ : Zone HBS, o : Zone Centrale, △ : Zone Intermédiaire). 29
1.9 Pression dans les bulles de gaz de fission déterminée par diverses techniques expérimentales en fonction des diamètres des bulles 30
1.10 Le combustible UO_2 lors d'un RIA : (a) Combustible irradié et (b) surpressurisation des bulles intergranulaires. 31
1.11 Images microscopiques de UO_2 : (a) UO_2 polycristallin composé de multiples grains de différentes orientations (couleurs) et (b) UO_2 bicristallin avec un joint de grains [6]. 32
1.12 Les contraintes à rupture de l'UO_2 déterminées par Evans et Davidge en fonction de la température et des diamètres moyens des grains (d_g) dans l'UO_2 polycristallin [39]. 32
1.13 Diagramme de rupture de l'UO_2 [46]. On distingue les zones caractéristiques des trois modes de rupture : purement fragile (cleavage I) ; semi-fragile (brittle intergranular fracture 3) et purement ductile (intergranular creep fracture) 33

1.14 Pastille d'UO_2 irradié à 34,1 GWd/tU dans un REP. (a) Macrographie de l'échantillon : une coupe radiale d'un pastille incluse dans la gaine. (b) Image SEM de la zone encadrée en noir dans (a). (c) et (d) Images SEM de la zone encadrée dans (b). (c) Image SEM d'un spécimen entaillé et (d) Image SEM d'un spécimen non entaillé. [6] 34
1.15 Défaut en forme de lentille plate ("penny-shaped flaw") dans un milieu solide infini [49]. 35
1.16 Les contraintes présentes au niveau des joints de grains [1]. 38
1.17 Représentation d'une bulle intergranulaire. 39
1.18 Illustration de l'approche multi-échelle 40

2.1 Surface d'énergie potentielle : hyper surface représentant l'énergie en fonction des positions des noyaux. 46
2.2 Forme générale d'un potentiel de paires 53
2.3 Motif du modèle périodique représentant un système de joints de grains. La périodicité impose l'existence de deux joints de grains (rose) dans le système, séparés par un bulk d'UO_2 (blanc). a_1 et a_2 sont les tailles du système le long des axes parallèles au joint de grain ; a_3 est la taille du système le long de l'axe normal au joint de grain. 58
2.4 (a) Représentation d'un joint de grains avec ses paramètres caractéristiques et (b) schéma illustratif de la rotation de deux monocristaux autour d'un axe (en haut tilt et en bas twist). 59
2.5 Exemples de joints de grains Σ3 (a), Σ5 (b) et Σ29 (c) relaxés en dynamique moléculaire. Les motifs formés par les atomes d'uranium au niveau du joint de grains Σ5 sont indiqués par des triangles noirs. Les atomes d'uranium sont représentés par des sphères orange et les atomes d'oxygène par des sphères violettes. 61
2.6 Profils d'énergie potentielle par atome pour les atomes d'uranium (U_p^U) et d'oxygène (U_p^O) le long des axes normaux aux joints de grains pour les trois systèmes de joints de grains relaxés : (a) Σ3, (b) Σ5 et (c) Σ29. 63
2.7 Profils de charges atomiques pour les atomes d'uranium (Q^U) et d'oxygène (Q^O) le long des axes normaux aux joints de grains pour les trois systèmes de joints de grains relaxés : (a) Σ3, (b) Σ5 et (c) Σ29. 64
2.8 Exemple de transitions de phase fluorite-scrutinyte et fluorite-rutile ayant lieu à la pointe de fissures prédites par une simulation de traction à 900 K sur le joint de grains Σ5 : a) $\varepsilon = 0{,}0$; b) $\varepsilon = 0{,}04$; c) $\varepsilon = 0{,}06$; d) $\varepsilon = 0{,}08$ [86] 66
2.9 Variation de l'énergie libre de Gibbs en fonction de la pression calculée dans la présente étude à 0 K pour les trois polymorphes d'UO_2 : fluorite, rutile et scrutinyite. 68
2.10 Exemples de distributions des atomes d'uranium non-fcc dans les configurations initiales non déformées (première ligne), intermédiaires (deuxième ligne) et finales fracturées (troisième ligne) des trois systèmes de joints de grains : Σ3 (première colonne), Σ5 (deuxième colonne) et Σ29 (troisième colonne). Les configurations sont échantillonnées à partir de simulations à 1750 K. Seuls les atomes d'uranium sont affichés. 69

2.11 Variation de la fraction d'atomes d'uranium non-fcc au cours des essais de traction uniaxiale à différentes températures et à une vitesse de déformation de 10^8 s^{-1} : (a) Σ3, (b) Σ5 et (c) Σ29. 70
2.12 Représentation schématique des sous-systèmes des systèmes de joints de grains sélectionnés pour l'analyse thermodynamique (en rouge). Les régions de joints de grains (JdG_1 et JdG_2) sont marquées par des lignes ondulées. . 73
2.13 Charge externe σ_{yy}^{ext} en fonction de λ (cercles pleins) et fonction d'ajustement correspondante (ligne continue) pour les trois joints de grains à 300 K : (a) Σ3, (b) Σ5 et (c) Σ29. 74
2.14 Charge externe σ_{yy}^{ext} en fonction de λ (cercles pleins) et fonction d'ajustement correspondante (ligne continue) pour les trois joints de grains à 1750 K : (a) Σ3, (b) Σ5 et (c) Σ29. 75
2.15 Types d'essais pour la détermination des constantes élastiques 78

3.1 Géométrie du domaine (a) et des bulles suivant les plans d'observation (b). 88
3.2 Types de chargement appliqué : (a) traction et (b) pression. 88
3.3 Stratégie multicorps : chaque maille est un corps (solide) lié aux autres mailles par des zones cohésives [7]. 89
3.4 Contrainte $\mathfrak{R}$ appliquée sur les lèvres de la fissure et discontinuité du déplacement [**u**] dans le plan normal et tangent [97]. 90
3.5 Évolution de la loi cohésive normale : courbe contrainte cohésive normale $\mathfrak{R}_N$ en fonction du saut de déplacement u_N [106]. 91
3.6 Exemples de maillage de la zone cohésive contenant une bulle de rayon r = 1.8 µm avec trois tailles de mailles : l_c = 0.125 µm, l_c = 0.175 µm et l_c = 0.3 µm. 93
3.7 Sensibilité au maillage pour le cas d'une bulle lenticulaire (bords pointus) : contrainte-déformation (gauche) et courbe de convergence de la contrainte maximale adimensionnée en fonction de la taille de mailles l_c (droite). . . . 94
3.8 Sensibilité au maillage pour le cas d'une bulle ellipsoïdale (bords arrondis) : contrainte-déformation (gauche) et contrainte maximale adimensionnée en fonction de la taille de mailles l_c (droite). 94
3.9 Illustration de la facettisation des bulles pour une taille de maille de l_c = 0.175 µm avec w=0.5 : (a) et (b) bulles lenticulaires , (c) et (d) bulles ellipsoïdales. 95
3.10 Ligament restant L_{lig} entre la bulle et le bord. 95
3.11 Influence de la taille du domaine dans le cas d'une traction uniaxiale : (gauche) courbe adimensionnée $\sigma_{yy}^{max}/\sigma_N^{coh}$ et (droite) courbe d'erreur $\sigma_{yy}^{max}/\sigma_{yy}^{max}$(domaine variable) en fonction du rayon r. 96
3.12 Champs de contraintes de von Mises dans le cas d'un chargement en traction uniaxiale dans le repère (x,z) montrant la surface cohésive et la bulle ((a) et (b) : ellipsoïdale, (c) et (d) : lenticulaire) de rayon r = 2 µm et w= 0.5 dans (b) et (d) un domaine fixe (6 x 8 x 6 μm^3, L_{lig} = 1 µm) et, (a) et (c) un domaine variable (10 x 8 x 10 μm^3, L_{lig} = 3 µm). 97

3.13 Influence de la taille du domaine dans le cas d'un chargement hydrostatique de la bulle : courbe adimensionnée $P_{yy}^{rup}/\sigma_N^{coh}$ en fonction du rayon r, (gauche) bulle lenticulaire avec w= 0.5 et (droite) bulle ellipsoïdale avec w= 0.5 97
3.14 Champs de contraintes de von Mises dans le cas d'un chargement hydrostatique dans le repère (x,z) montrant la surface cohésive et la bulle ((a) et (b) : ellipsoïdale,(c) et (d) : lenticulaire) de rayon $r = 2.0$ µm et w= 0.5 dans (b) et (d) un domaine fixe 6 x 8 x 6 µm^3 et, (a) et (c) un domaine variable 10 x 8 x 10 µm^3 98
3.15 Champs de contraintes de von Mises dans le cas d'un chargement hydrostatique pour des systèmes 6 x 8 x 6 µm^3 contenant une bulle ellipsoïdale de différents rayons (2.0 µm, 1.5 µm, 1.0 µm et 0.5 µm) avec w = 0.5. . . . 98
3.16 Schéma illustrant les rapports d'aspect : (a) et (b) sont des bulles lenticulaires avec w = 0.5 et w = 0.3, (c) et (d) sont des bulles ellipsoïdales avec w = 0.5 et w = 0.3. 99
3.17 Chargement en traction : influence de la taille de bulle de forme lenticulaire avec w = 0.5 : (a) courbe contrainte-déformation pour plusieurs tailles de bulles et (b) courbe adimensionnée $\sigma_{yy}^{max}/\sigma_N^{coh}$ en fonction du rayon des bulles r. 100
3.18 Chargement en traction : influence de la taille de bulle de forme lenticulaire avec w = 0.3 : (a) courbe contrainte-déformation pour plusieurs tailles de bulles et (b) courbe adimensionnée $\sigma_{yy}^{max}/\sigma_N^{coh}$ en fonction du rayon des bulles r. 101
3.19 Chargement en traction : influence de la taille de bulle de forme ellipsoïdale avec w = 0.5 : (a) courbe contrainte-déformation pour plusieurs tailles de bulles et (b) courbe adimensionné $\sigma_{yy}^{max}/\sigma_N^{coh}$ en fonction du rayon des bulles r ,□ indique que la bulle est facettisée. 101
3.20 Chargement en traction : influence de la taille de bulle de forme ellipsoïdale avec w = 0.3 : (a) courbe contrainte-déformation pour plusieurs tailles de bulles et (b) courbe adimensionnée $\sigma_{yy}^{max}/\sigma_N^{coh}$ en fonction du rayon des bulles r. 102
3.21 Champs de contrainte yy pour un chargement en traction des systèmes contenant une bulle de rayon $r = 1.0$ µm suivant les plans (x,z) et (y,z). . . 102
3.22 Chargement en pression hydrostatique : influence de la taille de bulle de forme lenticulaire avec w= 0.5 : (a) courbe taux de surfaces rompues en fonction de la pression hydrostatique appliquée pour plusieurs tailles des bulles et (b) courbe adimensionnée P^{rup}/σ_N^{coh} en fonction du rayon des bulles r. 104
3.23 Chargement en pression hydrostatique : influence de la taille de bulle de forme lenticulaire avec w= 0.3 : (a) courbe taux de surfaces rompues en fonction de la pression hydrostatique appliquée pour plusieurs tailles des bulles et (b) courbe adimensionnée P^{rup}/σ_N^{coh} en fonction du rayon des bulles r. 104

3.24 Chargement en pression hydrostatique : influence de la taille de bulle de forme ellipsoïdale avec w= 0.5 : (a) courbe taux de surfaces rompues en fonction de la pression hydrostatique appliquée pour plusieurs tailles des bulles et (b) courbe adimensionnée P^{rup}/σ_N^{coh} en fonction du rayon des bulles r. 105
3.25 Chargement en pression hydrostatique : influence de la taille de bulle de forme ellipsoïdale avec w= 0.3 : (a) courbe taux de surfaces rompues en fonction de la pression hydrostatique appliquée pour plusieurs tailles des bulles et (b) courbe adimensionnée P^{rup}/σ_N^{coh} en fonction du rayon des bulles r. 105
3.26 Champs de contrainte de von Mises pour un chargement en pression hydrostatique des systèmes contenant une bulle de rayon $r = 1.0$ µm suivant les plans (x,z) et (yz). 106
3.27 Domaines contenant deux bulles de forme lenticulaire de rayon $r = 1.0$ µm, de rapport d'aspect w = 0.5 avec une taille de maille $l_c = 0.175$ µm selon le plan (x,y) d_b désigne la distance entre les bulles. 107
3.28 Chargement en traction : influence de la distance entre les bulles d_b pour une forme lenticulaire avec w = 0.5 et r = 1.0 µm : (a) courbe contrainte-déformation pour plusieurs distances inter-bulles et (b) courbe adimensionnée $\sigma_{yy}^{max}/\sigma_N^{coh}$ en fonction de la distance entre les bulles d_b. 109
3.29 Chargement en traction : influence de la distance entre les bulles d_b pour une forme lenticulaire avec w = 0.3 et r = 1.0 µm : (a) courbe contrainte-déformation pour plusieurs distances inter-bulles et (b) courbe adimensionnée $\sigma_{yy}^{max}/\sigma_N^{coh}$ en fonction de la distance entre les bulles d_b. 109
3.30 Champs de contrainte yy pour un chargement en traction des systèmes contenant deux bulles lenticulaires de rayon $r = 1.0$ µm et w = 0.3 pour des distances inter-bulles de (a) $d_b = 0.1$ µm et (b) $d_b = 2$ µm. 110
3.31 Chargement en pression hydrostatique : influence de la distance entre les bulles d_b pour une forme lenticulaire avec w = 0.5 et r = 1.0 µm : (a) courbe pression-taux de surface rompu pour plusieurs distances inter-bulles et (b) courbe de la pression à rupture adimensionnée P^{rup}/σ_N^{coh} en fonction de la distance entre les bulles d_b. 111
3.32 Chargement en pression hydrostatique : influence de la distance entre les bulles d_b pour une forme lenticulaire avec w = 0.3 et r = 1.0 µm : (a) courbe pression-taux de surface rompu pour plusieurs distances inter-bulles et (b) courbe de la pression à rupture adimensionnée P^{rup}/σ_N^{coh} en fonction de la distance entre les bulles d_b. 111
3.33 Champs de contrainte de von Mises pour un chargement en pression hydrostatique des systèmes contenant deux bulles lenticulaires de rayon $r = 1.0$ µm et w= 0.3 pour des distances inter-bulles de (a) $d_b = 0.1$ µm et (b) $d_b = 2.0$ µm. 112
3.34 Critère de rupture des joints de grains en fonction du rayon des bulles r et de la distance inter-bulles pour des bulles de forme lenticulaire : cas du rapport d'aspect w=0.5 sous un chargement en traction. 114

A.1 Champs de contrainte de von Mises pour un chargement en pression hydrostatique des systèmes contenant deux bulles lenticulaires de rayon $r = 1.0$ µm et w= 0.5 pour des distances inter-bulles de (a) $d_b = 2.0$ µm et (b) $d_b = 1.5$ µm. 119
A.2 Champs de contrainte de von Mises pour un chargement en pression hydrostatique des systèmes contenant deux bulles lenticulaires de rayon $r = 1.0$ µm et w= 0.5 pour des distances inter-bulles de (a) $d_b = 1.0$ µm et (b) $d_b = 0.5$ µm. 120
A.3 Champs de contrainte de von Mises pour un chargement en pression hydrostatique des systèmes contenant deux bulles lenticulaires de rayon $r = 1.0$ µm et w= 0.5 pour des distances inter-bulles de (a) $d_b = 0.2$ µm et (b) $d_b = 0.1$ µm. 121
A.4 Champs de contrainte de von Mises pour un chargement en pression hydrostatique des systèmes contenant deux bulles lenticulaires de rayon $r = 1.0$ µm et w= 0.3 pour des distances inter-bulles de (a) $d_b = 1.5$ µm et (b) $d_b = 1.0$ µm. 122
A.5 Champs de contrainte de von Mises pour un chargement en pression hydrostatique des systèmes contenant deux bulles lenticulaires de rayon $r = 1.0$ µm et w= 0.3 pour des distances inter-bulles de (a) $d_b = 0.5$ µm et (b) $d_b = 0.2$ µm. 123
A.6 Champs de contrainte yy pour un chargement en traction des systèmes contenant deux bulles lenticulaires de rayon $r = 1.0$ µm et w= 0.5 pour des distances inter-bulles de (a) $d_b = 2.0$ µm et (b) $d_b = 1.5$ µm. 124
A.7 Champs de contrainte yy pour un chargement en traction des systèmes contenant deux bulles lenticulaires de rayon $r = 1.0$ µm et w= 0.1 pour des distances inter-bulles de (a) $d_b = 1.0$ µm et (b) $d_b = 0.1$ µm. 125
A.8 Champs de contrainte yy pour un chargement en traction des systèmes contenant deux bulles lenticulaires de rayon $r = 1.0$ µm et w= 0.3 pour des distances inter-bulles de (a) $d_b = 1.5$ µm et (b) $d_b = 1.0$ µm. 126

Liste des tableaux

2.1 Paramètres du potentiel SMTB-Q. 57
2.2 Caractéristiques des modèles des trois systèmes de joints de grains analysés : θ est l'angle de déviation, a_1, a_2 et a_3 sont les tailles des systèmes (Figure 2.3) et N est le nombre total d'atomes d'uranium et d'oxygène dans le système. 60
2.3 Valeurs des énergies de joints de grains obtenues après relaxation en dynamique moléculaire (MD) à trois températures intermédiaires différentes, suivies d'une optimisation à 0K. 61
2.4 Épaisseur des trois joints de grains et énergies potentielles moyennes par atome aux joints de grains U_p^{gb} et dans le bulk U_p^b. 62
2.5 Pressions de transition fluorite-rutile (P_{FR}) et fluorite-scrutinyite (P_{FS}) calculées à 0 K en utilisant des méthodes DFT quantiques (DFT) ou des méthodes non quantiques (NQ) avec différents potentiels semi-empiriques. Dans la dernière colonne, il est précisé si le potentiel prédit une transition de phase massive (M), faible (F) ou nulle (N) sous une charge de traction uniaxiale.. 67
2.6 Les valeurs des paramètres des lois de zones cohésives normales obtenues à 300 K et 1750 K pour les trois joints de grains (JdG) : $\Sigma 3$, $\Sigma 5$ et $\Sigma 29$. . . . 77
2.7 Propriétés élastiques du fluorite à différentes températures. 80
2.8 Propriétés élastiques de la fluorite calculées dans les directions cristallographiques d'intérêt pour cette étude : E - module de Young (GPa), μ - module de cisaillement (GPa) et ν - coefficient de Poisson. 82

3.1 Modules d'élasticité des grains. 89
3.2 Paramètres de la loi cohésive. 92
3.3 Rigidité interfaciale initiale $C_N = C_T$ en fonction de la taille de maille l_c. . 93
3.4 Dimensions du domaine et des ligaments en fonction du rayon des bulles dans le cas d'une taille de domaine constante et d'une taille de bulle constante. 96
3.5 Valeurs des angles dièdres α et ratio w $= h/r$ correspondant. 99
3.6 Dimensions du domaine en fonction de la distance entre les deux bulles d_b de rayon de 1.0 µm 107
3.7 Valeurs des paramètres λ_1, λ_2, λ_3 et λ_4 lorsque la distance inter-bulles $d_b \in]0.1, 2[$ µm pour des bulles lenticulaires. 113

Introduction générale

L'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) est une référence française en matière de recherche, d'expertise et de gestion des risques nucléaires et radiologiques. Ayant pour mission principale de garantir la sûreté et la radioprotection dans le domaine nucléaire, l'IRSN mène des recherches avancées et fournit des expertises scientifiques approfondies. Dans le cadre de la sûreté et de la durabilité des installations nucléaires, le Laboratoire de Statistique et des Modélisations Avancées (LSMA) mène des études visant à modéliser le comportement thermomécanique du combustible nucléaire dans des conditions de fonctionnement en régime normal ou en situation accidentelle.

Le combustible de référence dans les Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) est le dioxyde d'uranium (UO_2). Il est obtenu par enrichissement de l'uranium naturel jusqu'à atteindre le niveau requis de matière fissile. Par la suite, l'uranium enrichi est transformé par compaction de poudre en pastilles cylindriques. Ces pastilles sont polycristallines, avec une taille de grains d'une dizaine de micromètres et séparés par des joints de grains.

Lors du fonctionnement normal d'un REP, des gaz rares tels que le xénon et le krypton se forment dans l'UO_2 par fission des noyaux des isotopes d'uranium. Ces gaz, ayant une très faible solubilité dans la matrice d'UO_2, s'agglomèrent dans les grains sous forme de bulles intragranulaires et/ou migrent vers les joints de grains pour former des bulles intergranulaires. Les gaz de fission contenus dans les bulles intergranulaires peuvent être relâchés dans les volumes libres des crayons combustibles soit par la croissance-interconnexion des bulles (pendant les rampes de puissance) soit par la rupture fragile des joints de grains (pendant les transitoires rapides : accident de réactivité - RIA ou accident de perte de réfrigérant primaire - APRP).

Pendant un RIA, la température du combustible augmente rapidement conduisant à l'apparition d'une surpression au niveau des bulles intergranulaires qui, couplée à d'autres contraintes thermomécaniques, produit la rupture des joints de grains suivie par le relâchement des gaz de fission. Le code SCANAIR [1, 2], développé à l'IRSN, au Service de Maîtrise des Incidents et Accidents (SEMIA), pour modéliser le comportement global d'un crayon combustible lors d'un RIA, contient un module qui simule le relâchement des gaz de fission depuis les joints de grains vers les volumes libres du crayon. Parmi les mécanismes de relâchement pris en compte par SCANAIR est celui impliquant la rupture des joints de grains. On considère que cette rupture a lieu lorsque le niveau des contraintes agissant au niveau des joints de grains dépasse une contrainte à rupture (seuil de rupture). Cependant, malgré une validation généralement satisfaisante du modèle de relâchement

des gaz de fission, les seuils de rupture utilisés dans SCANAIR n'ont pas été fondés de manière rigoureuse sur des données expérimentales ou théorique. À l'heure actuelle, l'obtention des paramètres mécaniques et de rupture des joints de grains constituent un enjeu scientifique.

L'objectif de ce travail de thèse est de déterminer, dans le cas d'un RIA, des critères de rupture des joints de grains à l'aide d'une approche multiéchelle (atomistique/ mésoscopique). L'approche multiéchelle consiste à puiser des informations très locales, à l'échelle des interactions atomiques, puis exploiter les donnés récoltées pour alimenter un modèle micromécanique de rupture à l'échelle des grains et des bulles intergranulaires (échelle mésoscopique) afin d'obtenir les critères de rupture.

Pour l'étude à l'échelle atomistique des phénomènes de rupture des joints de grains, les méthodes quantiques sont en principe les plus appropriées car, assez souvent, la rupture s'accompagne d'une importante modification de la densité électronique autour du joint de grains concerné. Le principal inconvénient des méthodes quantiques est le temps de calcul élevé, qui explique la préférence pour des fonctions paramétrées (potentiels semi-empiriques) afin de décrire les interactions interatomiques dans les calculs atomistiques. Pour combiner les avantages des simulations quantiques (bonne précision) avec ceux des potentiels semi empiriques (temps de simulation raisonnables), un potentiel semi empirique à charges variables tenant compte de l'environnement des atomes, le SMTB-Q [3], a récemment été développé pour l'UO_2. Ce potentiel, implémenté dans le code de simulation de dynamique moléculaire LAMMPS [4] (de l'acronyme anglais "Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator"), est employé dans la présente étude pour les phénomènes de rupture des joints de grains dans l'UO_2.

Les seuils de rupture calculés à l'échelle atomistique, obtenus sur des systèmes soumis à des contraintes de traction uniaxiale, ont le même ordre de grandeur que les résultats expérimentaux de la littérature [5, 6], mais des valeurs plus élevées. Les valeurs expérimentales plus basses sont très probablement dues à la présence sur les joints de grains des échantillons de défauts (des bulles, par exemple) trop petits (diamètre inférieur à 50 nm) pour pouvoir être mis en évidence par la technique d'observation employée (SEM). L'impact de tels défauts sur le seuil de rupture n'a pas été modélisé à l'échelle atomistique en raison de la taille trop réduite des systèmes simulés, qui ne dépassent pas 20 nm.

L'étude de la rupture, lors d'un RIA, d'un joint de grains contenant des bulles intergranulaires est effectuée uniquement à l'échelle mésoscopique, à l'aide de calculs micromécaniques s'appuyant sur une approche cohésive-volumétrique et basés sur les concepts de zone cohésive frottante (MZCF). La méthode de modélisation numérique des systèmes multicorps, reposant sur l'approche Non Smooth Contact Dynamics (NSCD) [7], est utilisée. Cette approche micromécanique a été développée, à l'IRSN, dans le cadre du laboratoire MIST (laboratoire commun IRSN/CNRS/Université de Montpellier). Le code de calcul associé, Xper [7] permet d'analyser les mécanismes d'amorçage et de propagation de fissures au sein des matériaux hétérogènes. Cet outil, alimenté avec des données obtenues à l'échelle atomistique, permet d'effectuer les études de rupture à l'échelle des grains.

En particulier, les paramètres des lois cohésives pour les joints de grains d'UO_2, utilisés dans les calculs à l'échelle mésoscopique, sont obtenus à partir de résultats de simulations atomistiques en employant une méthode basée sur des considérations thermodynamiques.

Ensuite, à partir des résultats de calculs à l'échelle mésoscopique, des critères de rupture des joints de grains d'UO_2 sont proposés en utilisant l'équation de Griffith-Sack [8], ajustée en fonction des paramètres géométriques tels que la taille et la forme des bulles pour le cas d'une bulle isolée, ainsi que des distances inter-bulles pour le cas de plusieurs bulles.

Description du manuscrit de thèse

Le corps de ce mémoire est constitué de trois chapitres. Dans le chapitre 1, une introduction au problème industriel étudié dans le cadre de la thèse est présentée. Il englobe les aspects liés à l'état de l'art sur la rupture des joints de grains dans le cadre d'un RIA. Le chapitre commence par la présentation du contexte industriel, résumant le fonctionnement d'une centrale nucléaire REP (Réacteur à Eau Pressurisée) nucléaire en régime normal et en situation accidentelle. Les accidents de réactivité et les mécanismes associés sont également discutés pour comprendre la problématique industrielle abordée. Ensuite, le chapitre explore les revues bibliographique sur le seuil de rupture des joints de grains dans l'UO_2. Il présente les résultats des études expérimentales et les modèles semi-empiriques utilisés dans les codes de calcul industriels. Le chapitre se poursuit en concluant sur les enjeux de la thèse ainsi que la démarche adoptée.

Au chapitre 2, on présente essentiellement les travaux menés à l'échelle atomistique. Dans la première partie du chapitre, on fait une introduction à la méthode de la dynamique moléculaire en mettant l'accent sur le potentiel semi-empirique SMTB-Q. Ensuite, dans la deuxième partie, on analyse la complexité structurelle des joints de grains à l'échelle atomique. Dans la dernière partie du chapitre, sont présentées la méthode d'évaluation des modules d'élasticité de l'UO_2 et l'analyse thermodynamique qui conduit à la détermination des propriétés de rupture de l'UO_2 et des paramètres cohésifs pour la remontée d'échelle atomistique/mésoscopique.

Au chapitre 3, on présente et on discute les résultats de l'étude à l'échelle mésoscopique de la rupture des joints de grains contenant des bulles intergranulaires. Ce chapitre se concentre sur la détermination des critères de rupture des joints de grains à l'échelle des grains. Les modèles de zones cohésives sont introduits, en mettant l'accent sur la loi cohésive utilisée. Les principes de ces modèles sont expliqués, ainsi que les avantages de l'approche multicorps. Des applications au cas accidentel RIA (Réactivité Initiale Anormale) sont présentées, notamment la description du modèle géométrique et des types de simulations réalisées. Ensuite, nous explorons l'impact de divers facteurs, tels que la taille, le rapport d'aspect, la forme et la distance entre les bulles, dans le contexte de la présence simultanée de plusieurs bulles. Le chapitre se conclut par la proposition de critères de rupture.

Chapitre 1

État de l'art sur le problème industriel

Sommaire

1.1 Contexte industriel 22
1.1.1 Fonctionnent d'une centrale électronucléaire de type REP . . . 22
1.1.2 Combustible UO_2 24
1.1.3 La structure de l'UO_2 25
1.1.4 Accident de réactivité 30
1.2 Seuil de rupture de l'UO_2 : revue bibliographique 31
1.2.1 Déterminations expérimentales du seuil de rupture 31
1.2.2 Déterminations du seuil de rupture à l'aide de modèles empiriques 34
1.2.3 Conclusion de la revue bibliographique 37
1.3 Positionnement de la thèse et démarche 37
1.3.1 Positionnement de la thèse 37
1.3.2 Démarche multi-échelle 40

1.1 Contexte industriel

En France, les centrales électronucléaires occupent la première place dans le paysage énergétique. Avec une longue histoire dans le domaine de l'énergie nucléaire, la France est l'un des pays les plus dépendants de cette source d'énergie pour répondre à ses besoins électriques. Elle compte actuellement 56 réacteurs nucléaires de différents niveaux de puissance répartis sur le territoire (Figure 1.1). Ces centrales sont exploitées par Électricité de France (EDF), une entreprise publique qui est le principal producteur et fournisseur d'électricité en France. Chaque centrale nucléaire génère de l'électricité à partir de la fission nucléaire. La production d'électricité d'origine nucléaire représente environ 70% de la production française d'électricité. Le reste de la production est d'origine thermique à flamme (à base de combustion de gaz, charbon ou fioul), hydraulique, éolienne, solaire et bioénergétique.

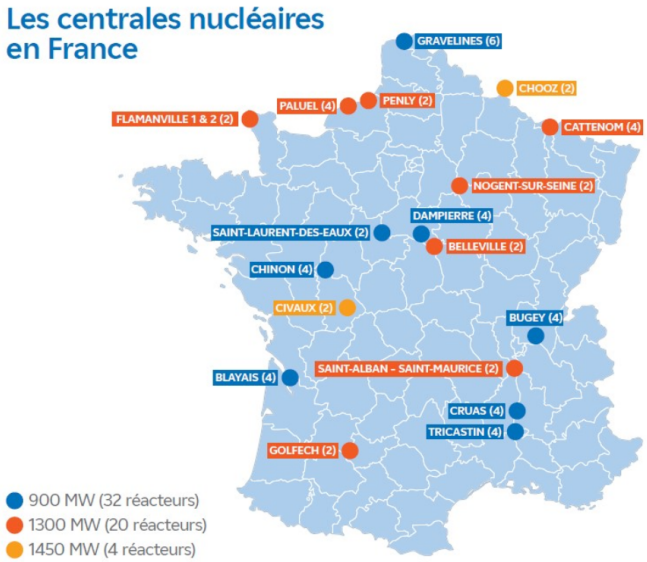


FIGURE 1.1 – Répartition des centrales nucléaires sur le territoire français [9].

1.1.1 Fonctionnent d'une centrale électronucléaire de type REP

Les centrales électronucléaires convertissent l'énergie thermique produite par la fission d'atomes radioactifs en électricité. Une centrale électronucléaire de type REP (Réacteur à Eau sous Pression) se compose d'une cuve contenant le cœur du réacteur et de trois circuits d'eau comprenant plusieurs bâtiments et installations (Figure 1.2).

Les trois circuits d'une centrale REP sont étanches les uns par rapport aux autres et sont tous nécessaires à la production d'électricité. Chaque circuit a un rôle spécifique :

- **le circuit primaire**, qui traverse le bâtiment réacteur, est un circuit fermé dans lequel l'eau circule. A l'intérieur de la cuve du réacteur, cette eau reçoit une partie de la chaleur produite par les réactions de fission ayant lieu dans les crayons combustibles. L'eau du circuit primaire est chauffée à une température d'environ 320°C et pour rester liquide à cette haute température elle est pressurisée à 150 bar.

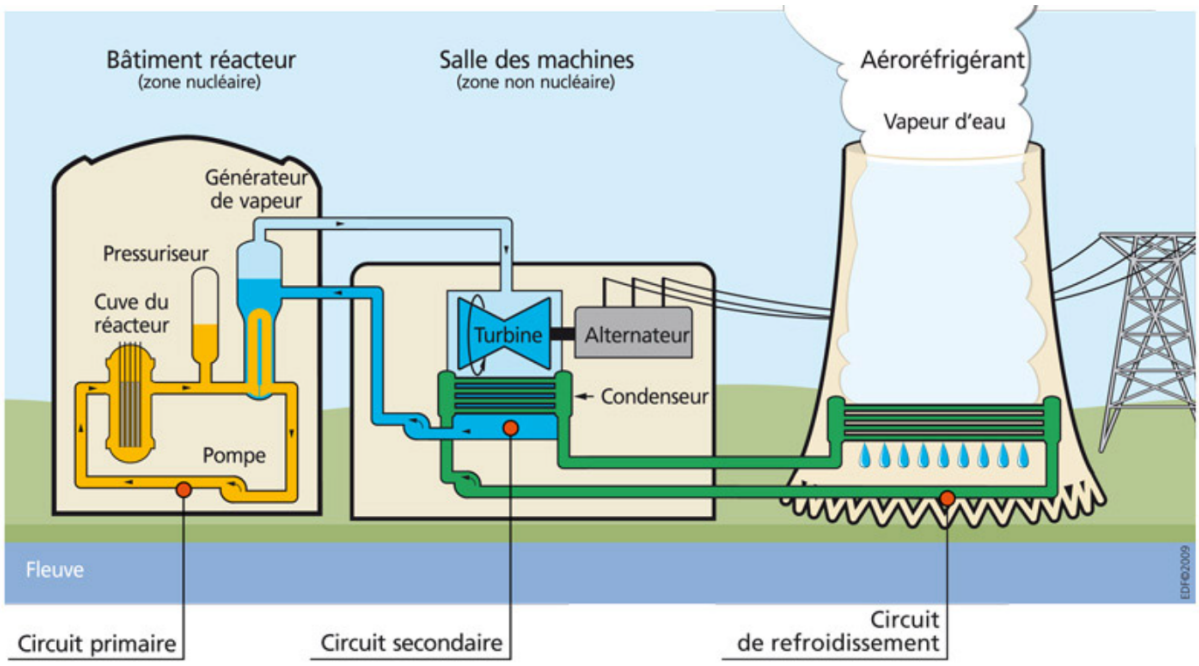


Figure 1.2 – Fonctionnement d'une centrale nucléaire REP [10].

- **le circuit secondaire**, qui est un deuxième circuit fermé, échange de la chaleur avec le circuit primaire via un générateur de vapeur : l'eau du circuit secondaire se transforme en vapeur. La vapeur actionne la turbine et l'alternateur qui convertit l'énergie mécanique en courant électrique alternatif. Avant que l'électricité ne soit acheminée vers les usagers, un transformateur augmente la tension du courant électrique pour faciliter le transport.
- **le circuit de refroidissement**, est le dernier circuit où la vapeur provenant du circuit secondaire est refroidie par condensation. La vapeur est à nouveau transformée en eau grâce à l'eau froide en provenance de la mer ou d'un fleuve qui circule dans le troisième circuit. L'eau de ce troisième circuit peut alors être refroidie au contact de l'air circulant dans de grandes tours appelées aéroréfrigérants.

Au sein d'un bâtiment réacteur REP, les produits radioactifs sont sécurisés grâce à trois barrières de sûreté pour assurer une sécurité optimale :

- **La 1ère barrière** est la gaine enveloppant les crayons de combustible. Son rôle essentiel est de retenir les produits radioactifs créés lors du processus de fission dans les pastilles de combustible. Une dissipation inadéquate de la chaleur pourrait entraîner la rupture de ces gaines, voire provoquer une fusion partielle ou complète des pastilles.
- **La 2ème barrière** est assurée par la cuve du réacteur dans la quelle les crayons de combustible sont constamment refroidis par le circuit primaire. Cette seconde enveloppe est conçue pour retenir tout produit radioactif éventuellement libéré par des gaines défectueuses.
- **La 3ème et dernière barrière** est l'enceinte de confinement, un bâtiment en béton spécialement conçu pour abriter le circuit primaire. En cas de défaillance des

deux premières barrières, cette enceinte ultime empêche la dispersion des produits radioactifs à l'extérieur de l'installation.

En cas d'accident, ces barrières permettent de contenir les matières radioactives et éviter leur dispersion dans l'environnement.

1.1.2 Combustible UO_2

Le combustible de référence dans les REP, l'UO_2, est un matériau polycristallin de type céramique qui présente une très bonne stabilité thermique, avec une température de fusion avoisinant les 2860°C, et une densité théorique d'environ 10 970 kg/m^3. L'UO_2, enrichi en fonction du type de réacteur, de 0,7 % pour l'état naturel à 3-5 % pour l'état enrichi, est fabriqué par frittage (cuit au four à 1700°C pendant 4h) sous forme de pastilles cylindriques d'environ 8 mm de diamètre et 13 mm de hauteur (à gauche sur la Figure 1.3). Les pastilles sont obtenues par compression de poudre de dioxyde d'uranium, puis empilées et assemblées dans une gaine métallique en alliage de zirconium, dont les extrémités sont fermées par des bouchons soudés. Les pastilles et la gaine de combustible forment un « crayon combustible », qui mesure environ 10 mm de diamètre et 4 m de hauteur. Dans le cas des REP français, les crayons sont regroupés en faisceaux pour former ce que l'on appelle un assemblage, chaque assemblage comprenant 264 crayons. Les crayons combustibles et les tubes des barres de commandes, permettant de réguler la puissance du réacteur, forment le cœur du réacteur nucléaire.

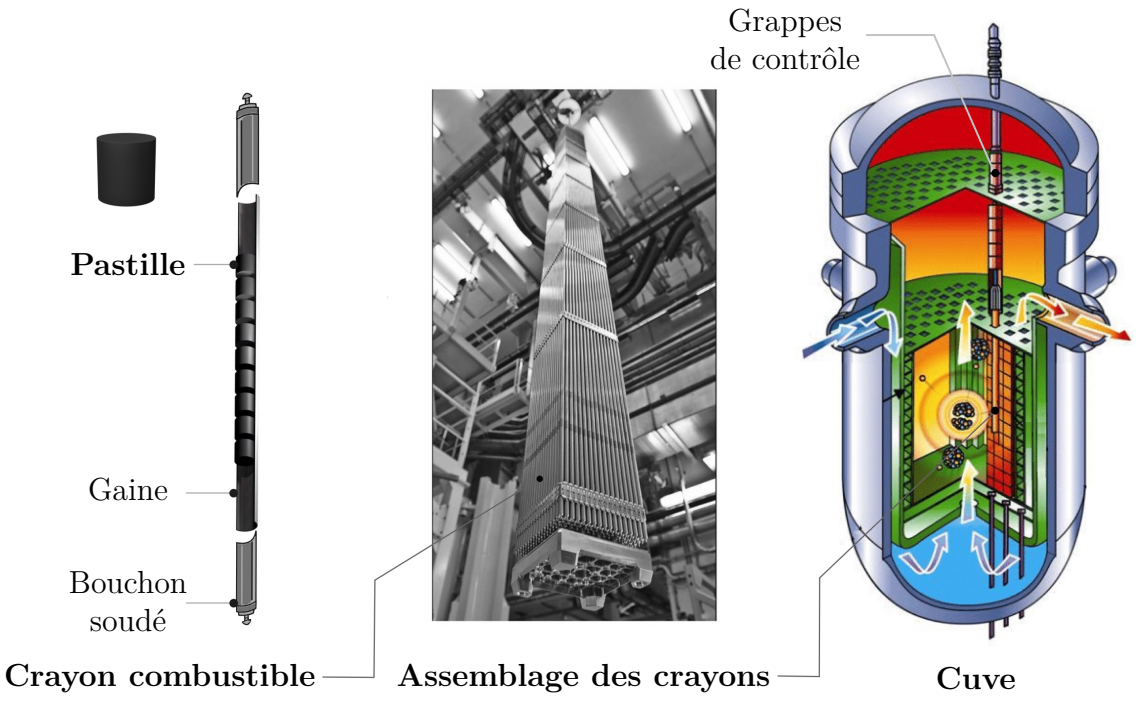


FIGURE 1.3 – Pastille d'UO_2 (à gauche), cuve d'un réacteur à eau pressurisée (à droite) et assemblage des crayons combustibles (au centre) [11].

Au sein d'un réacteur nucléaire en fonctionnement normal, le dioxyde d'uranium UO_2 constitué d'atomes lourds et extrêmement radioactifs, subit un phénomène de fission nucléaire (Figure 1.4). Ce dernier se produit lorsque l'atome d'uranium est impacté par un neutron, ce qui provoque sa division en deux noyaux plus légers. En plus de la production de deux noyaux légers, la fission d'un atome d'UO_2 libère deux ou trois neutrons. Ces neutrons libérés peuvent alors entrer en collision avec d'autres atomes d'uranium, ce qui entraîne une réaction en chaîne qui libère de l'énergie thermique. La réaction est contrôlée au moyen de barres fabriquées à partir de matériaux capables d'absorber les neutrons. Ces barres, appelées grappes de contrôle (Figure 1.3), permettent de gérer la réaction en chaîne. Grâce à ce dispositif, il est possible de modifier la puissance du réacteur et de la maintenir à un niveau donné ou arrêter les fissions. L'équation de la réaction de fission en chaîne produite par la collision d'un neutron et d'un noyau d'uranium 235 peut s'écrire :

$$^{235}_{92}\mathrm{U} + ^{1}_{0}\mathrm{n} \longrightarrow ^{236}_{92}\mathrm{U} \longrightarrow \mathrm{X} + \mathrm{Y} + \mathrm{k}\,^{1}_{0}\mathrm{n} + \text{Energie} \tag{1.1}$$

où X (Xénon $^{140}_{54}$Xe ou Krypton $^{92}_{36}$Kr) et Y (Baryum $^{141}_{56}$Ba ou Strontium $^{94}_{38}$Sr) sont les produits de fission et k (= 2, 3) est le nombre de neutrons libérés.

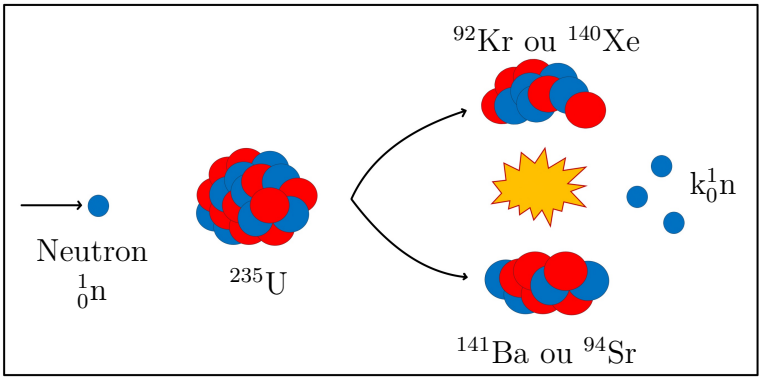


FIGURE 1.4 – Fission nucléaire d'un noyau d'Uranium-235

Les gaz rares, xénon (Xe) et krypton (Kr), formés dans la matrice d'UO_2 suite à la fission des noyaux des isotopes de l'uranium-235, ont une très faible solubilité dans la matrice du combustible. Par conséquent, ils précipitent dans les grains sous forme de bulles, appelées « bulles intragranulaires » ou peuvent migrer de l'intérieur des grains vers les joints de grains, individuellement ou sous forme de bulles intragranulaires. Une fois arrivés au niveau des joints de grains ces gaz rares forment des bulles intergranulaires.

1.1.3 La structure de l'UO_2

Dans cette section, nous nous penchons sur la structure de l'UO_2 à l'échelle atomistique et microscopique, dans le but de mieux comprendre la composition et les propriétés du combustible à l'état vierge et irradié. La structure du combustible (la disposition des atomes et des défauts dans les grains, la distribution des grains, des précipités, des porosités ou des bulles intra/intergranulaires etc) a un impact déterminant sur sa résistance mécanique et l'évolution de celle-ci lors des cycles d'irradiation.

La caractérisation de l'UO_2 est faite à l'aide des techniques d'imagerie, comme la Microscopie Électronique [12] (à Transmission "MET" ou à Balayage "MEB") et d'analyse structurale avancées comme la Diffraction aux Rayons X("DR-X") [13]. La compréhension de la structure du combustible aide à améliorer la modélisation de son comportement thermomécanique dans le réacteur.

Structure atomistique de l'UO_2

À l'intérieur d'un grain (échelle atomistique), l'UO_2 a une structure cristalline de type fluorite : les atomes d'uranium sont disposés en sous-réseau cubique à faces centrées (fcc) et les atomes d'oxygène sont organisés en sous-réseau cubique (Figure 1.5). Le paramètre de maille de l'UO_2 fluorite déterminé expérimentalement à 296 K est a = 5.47 Å [14].

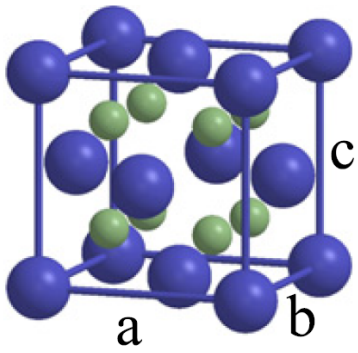


FIGURE 1.5 – Maille élémentaire ($a = b = c = 5{,}47$ Å) et paramètres de maille du réseau fluorite de l'UO_2 : atomes d'uranium en bleu et d'oxygène en vert [15].

Le réseau cristallin de l'UO_2 fluorite n'est pas parfait. Des défauts ponctuels (lacunes, atomes interstitiels) ou étendus (dislocations) y sont toujours présents.

Structure microscopique de l'UO_2 vierge

A l'échelle microscopique, l'UO_2 se présente comme un matériau polycristallin monophasé, c'est-à-dire que le matériau est un assemblage de cristaux (grains) avec le même type et proportion d'atomes et la même structure cristalline (fluorite, dans ce cas). Les observations microstructurales du combustible REP non irradié permettent de mettre en évidence les constituants granulaires de l'UO_2. Ainsi, à l'état vierge, le combustible UO_2 est composé de plusieurs grains connectés par des « joints de grains » (Figure 1.6a). La taille des grains de l'UO_2 vierge varie entre 6 et 25 µm en fonction des conditions de fabrication telles que la température et l'atmosphère de frittage (présence d'éléments chimiques spécifiques) [16]. L'UO_2 vierge présente également une porosité de fabrication dont les dimensions varient entre 50 et 100 nm [17, 18] (Figure 1.6a).

Structure microscopique de l'UO_2 irradié

Après quelques cycles en réacteur, la microstructure de l'UO_2 évolue en un état irradié qui se caractérise par la présence de bulles intragranulaires, sphériques et de l'ordre du

nanomètre [19] et de bulles intergranulaires de forme lenticulaire et de l'ordre du micromètre [20] (Figure 1.6b).

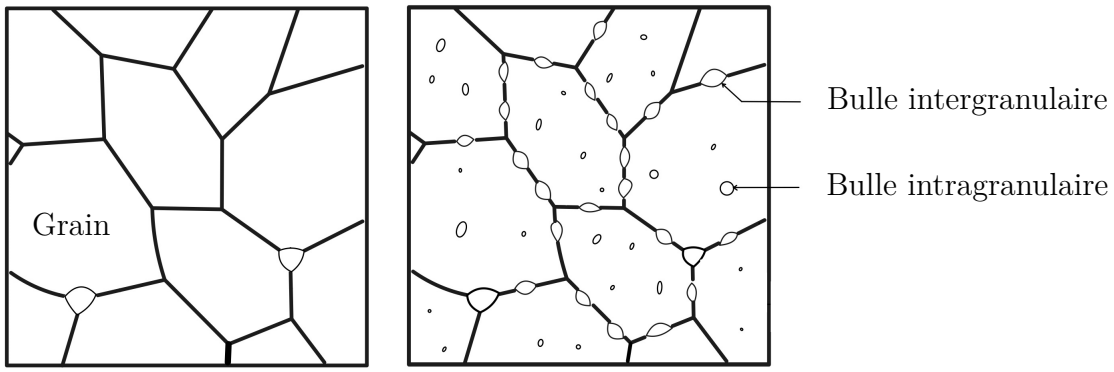


FIGURE 1.6 – Schématisation de la microscructure de l'UO_2 : (a) état vierge, (b) état irradié.

La pastille de combustible irradié est constituée en trois zones distinctes. En se déplaçant du centre de la pastille vers la périphérie (Figure 1.7a) [21], ces zones sont :

- La **zone centrale** présente une précipitation de bulles gaz de fission intergranulaires de taille micrométrique et intragranulaires de taille du dixième de micromètre. L'augmentation de la température centrale favorise le grossissement des bulles.
- La **zone intermédiaire** subit peu de modifications, conservant une microstructure plus ou moins similaire au combustible vierge (Figure 1.7b).
- La **zone HBS** ou "High Burn-up Structure" est la zone à haut taux de combustion qui caractérise la périphérie de la pastille [22]. Le fluide caloporteur (l'eau), à proximité de la zone HBS, ralentit certains neutrons qui sont ensuite fortement absorbés par la matrice d'UO_2, provoquant ainsi une augmentation du taux de combustion [1] en périphérie. Cela entraîne une forte concentration de produits de fission et des dommages importants. Cette zone présente une quantité importante de bulles intragranulaires et intergranulaires. L'auteur de la référence [18] montre que, dans la zone HBS, l'irradiation provoque la subdivision des grains initiaux d'environ 10 µm en des grains de petite taille de 0.1 à 0.3 µm (Figure 1.7c) avec une porosité locale de 10 à 25 %.

Bulles intra/intergranulaires

Les diamètres des bulles intra et intergranulaires varient en fonction du taux d'irradiation et de la température [24]. Le développement des méthodes de caractérisation permet

1. **Le taux de combustion (burnup)** mesure la fraction du combustible nucléaire qui est consommée dans un réacteur nucléaire pour produire de l'énergie. Il est exprimé en gigawatt-jour par tonne de combustible (GW j/tU).

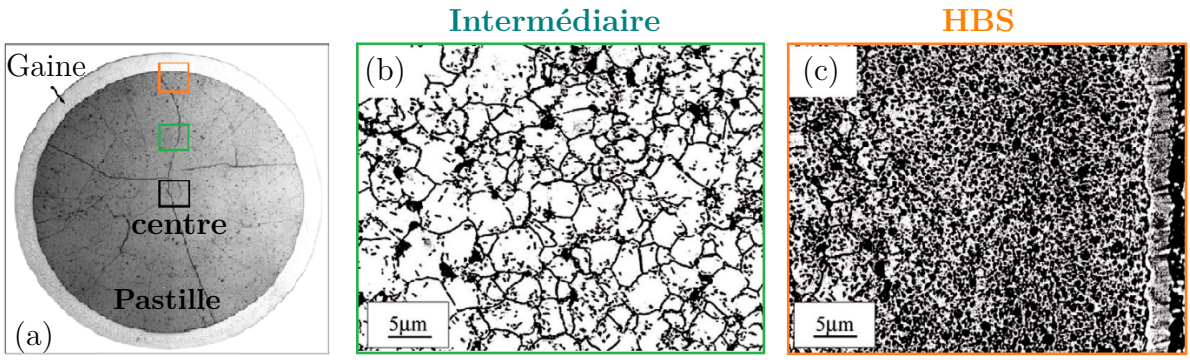


FIGURE 1.7 – Images microscopiques d'un combustible irradié avec les trois zones caractéristiques : (a) pastille irradiée [23], (b) et (c) illustrent respectivement la zone intermédiaire avec une taille de grains d'environ 10 µm *et la zone HBS avec une taille de grains entre 0.1 et 0.3* µm *pour un taux de combustion de 65 GWj/tU [18].*

l'observation par MET ou MEB de l'évolution de la population de bulles en fonction de la température et du taux de combustion [17, 19, 25–28].

Quelques données sur l'évolution de la taille des bulles intra et intergranulaires en fonction du taux de combustions (3 à 80 GWj/tU) et de la température (400 à 1400°C) sont synthétisées dans la Figure 1.8. Les diamètres des bulles intragranulaires varient entre 2 et 400 nm et ceux des bulles intergranulaires varient entre 0.1 et 4 µm [21, 24].

Ces résultats sur la taille des bulles intra et intergranulaires (Figure 1.8) montrent, de manière générale, qu'au cours de l'irradiation, la taille des bulles augmente avec le taux de combustion et la température.

Les expériences menées par Kashibe et al. [32] sur de l'UO_2 irradié ont mis en évidence que le taux de recouvrement [2] évolue avec le taux de combustion. Pour un taux de combustion compris entre 16 et 28 GWj/tU, le taux de recouvrement est entre 2.3% et 10.1% et les diamètres moyens des bulles intergranulaires varient entre 0.04 et 0.23 micromètres.

Les gaz de fission présents dans les bulles intra- et intergranulaires exercent une pression induisant des contraintes importantes dans la matrice du combustible. La pression interne des bulles présentes dans un combustible irradié peut être évaluée expérimentalement par la méthode de l'EDX [33] (spectrométrie par diffraction des rayons X) et la méthode de la SAX [34](spectroscopie d'absorption des rayons X) pour les bulles nanométriques et par la combinaison des méthodes EPMA/SIMS/MEB [35] pour les bulles micrométriques.

Pour les bulles nanométriques (en général de nature intragranulaire), avec des tailles variant entre 1 et 60 nm, les pressions sont dans le domaine de 1 à 10 GPa. Les températures des gaz de fission dans ces bulles se situent entre 400 et 1000°C [33, 34, 36].

2. **Le taux de recouvrement** est la fraction de surface des facettes des grains (joints de grains) couverte par des bulles. Il peut être exprimé en pourcentage et est calculé comme le rapport entre la surface totale occupée par les bulles et la surface totale de l'interface.

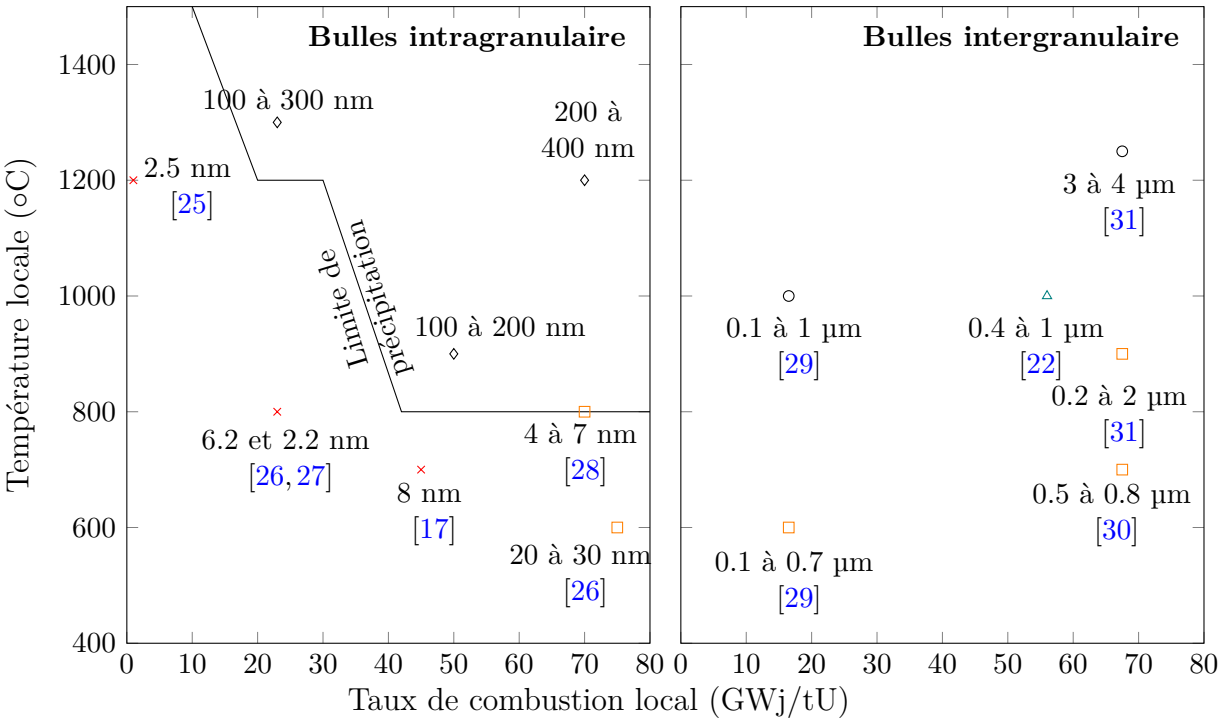


FIGURE 1.8 – Caractéristiques des diamètres des bulles (intra et intergranulaires) en fonction de la température et du taux de combustion dans des combustibles UO_2 de REP (◇ zone non spécifiée [24], × : Moyenne, □ : Zone HBS, o : Zone Centrale, △ : Zone Intermédiaire).

Pour les bulles micrométriques (en général de nature intergranulaire), avec des tailles variant entre 0.6 et 0.8 µm, les pressions sont dans le domaine de 6 à 90 MPa. Les températures des gaz de fission dans ces bulles se situent entre 20 et 530°C [21, 22, 37].

En principe, la pression dans bulles diminue avec l'augmentation de la taille des bulles. Les détails des données expérimentales, sur les pressions internes des bulles nano/ micrométrique en fonction du diamètres des bulles, sont données sur la Figure 1.9. L'ensemble des résultats expérimentaux présentées sur la Figure 1.9 ont été obtenus avec des quantités de gaz différentes dans les bulles.

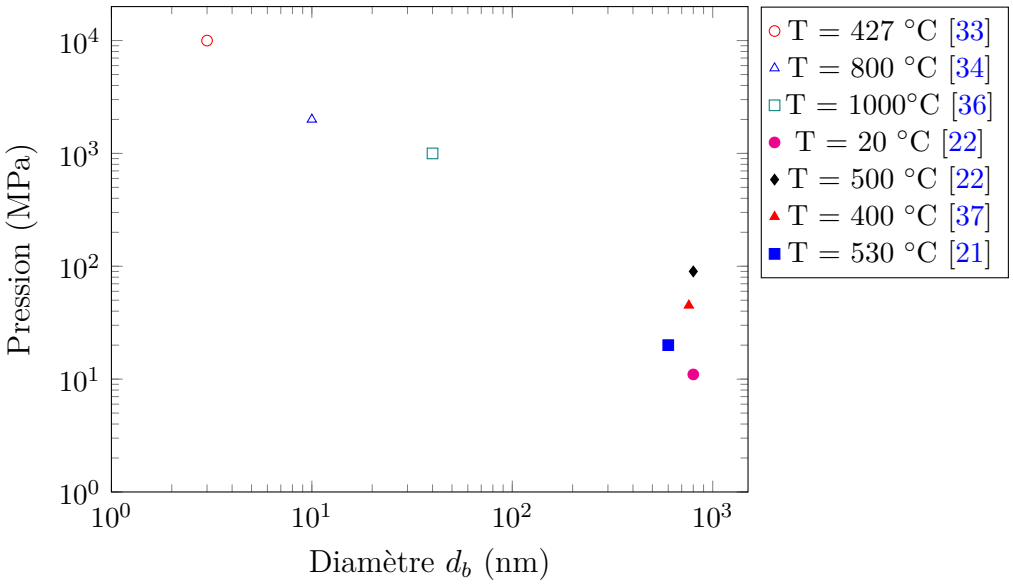


FIGURE 1.9 – Pression dans les bulles de gaz de fission déterminée par diverses techniques expérimentales en fonction des diamètres des bulles

1.1.4 Accident de réactivité

Lors du fonctionnement d'un réacteur nucléaire, des différents types d'incidents ou d'accidents peuvent survenir. L'un d'entre eux est l'accident de réactivité ou de type RIA (acronyme de l'expression anglaise "Reactivity-Initiated-Accident"), qui est un accident de dimensionnement. L'hypothèse pouvant conduire à un accident de type RIA est l'éjection d'une ou plusieurs grappes de contrôle. Cette éjection entraîne une intensification locale soudaine de la réaction nucléaire, d'une durée de quelques dizaines de millisecondes, également appelée « pulse de puissance ». Ce pulse de puissance provoque une montée rapide de la température (10^5 K/s [38]), conduisant à la surpressurisation des bulles intergranulaires (Figure 1.10). Cette surpressurisation est trop rapide pour que la relaxation des bulles puisse se produire par voie diffusive (migration et absorption de lacunes). Si à la surpressurisation rapide des bulles on ajoute d'autres contraintes thermomécaniques locales, le résultat est la rupture des joints de grains suivie par le relâchement des gaz de fission contenus dans les bulles intergranulaires (mélange de xénon et krypton) dans les volumes libres des crayons combustibles.

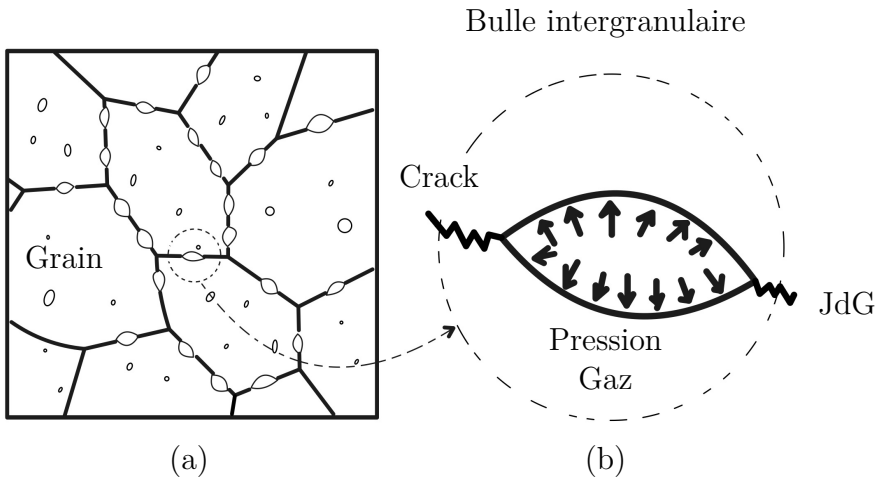


FIGURE 1.10 – Le combustible UO_2 lors d'un RIA : (a) Combustible irradié et (b) surpressurisation des bulles intergranulaires.

L'estimation quantitative de la rupture des joints de grains est donc primordiale pour évaluer le relâchement des gaz de fission et finalement les risques engendrés par un accident de type RIA.

1.2 Seuil de rupture de l'UO_2 : revue bibliographique

Au fil des six dernières décennies, de nombreuses études expérimentales et numériques ont été menées pour approfondir la compréhension des phénomènes de rupture survenant dans l'UO_2. Cette section présente les résultats expérimentaux significatifs et les modèles empiriques sur la rupture de l'UO_2.

1.2.1 Déterminations expérimentales du seuil de rupture

Dans ce paragraphe, la rupture de l'UO_2 polycristallin est examinée, qui est un matériau composé de multiples grains de cristal orientés de manière aléatoire (Figure 1.11a). À cette échelle d'observation, les systèmes étudiés ont une dimension de l'ordre du millimètre et peuvent contenir d'importants défauts, notamment dans le cas de l'UO_2 irradié. Ensuite, nous nous pencherons sur le cas de l'UO_2 bicristallin (Figure 1.11b), où le matériau ne présente qu'un seul joint de grains, ainsi que sur le cas de l'UO_2 monocristallin. Ces systèmes sont à l'échelle du micromètre et peuvent contenir des microdéfauts.

Cas de l'UO_2 polycristallin

Parmi les premières études expérimentales majeures portant sur les phénomènes de rupture du dioxyde d'uranium, il convient de mentionner les travaux réalisés par Evans et Davidge [39] ainsi que ceux menés par Canon et al. [40]. Ces auteurs ont réalisé des essais de flexion trois et quatre points afin de déterminer les contraintes à rupture des échantillons d'UO_2 polycristallins non-irradiés. Les mesures ont été effectuées sur une plage de températures allant de 25°C jusqu'à 1500°C [39] et 1800°C [40]. Les valeurs des

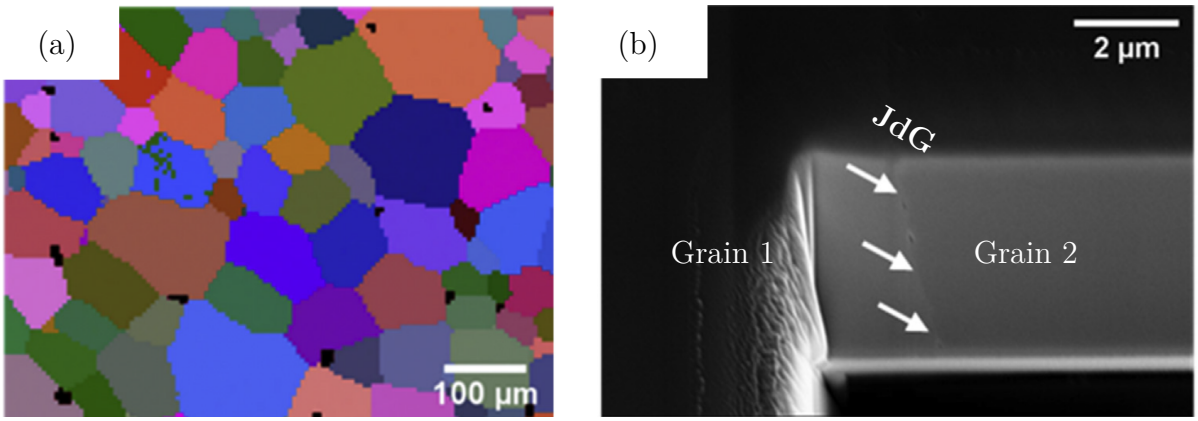


FIGURE 1.11 – Images microscopiques de UO_2 : (a) UO_2 polycristallin composé de multiples grains de différentes orientations (couleurs) et (b) UO_2 bicristallin avec un joint de grains [6].

contraintes à rupture déterminées par Evans et Davidge (Figure 1.12) varient entre 130 MPa et 230 MPa, en fonction des diamètres moyens des grains (d_g) dans les échantillons d'UO_2 polycristallins et de la température. Dans l'ensemble, on observe une diminution des contraintes à rupture à mesure que le diamètre moyen des grains des échantillons augmente.

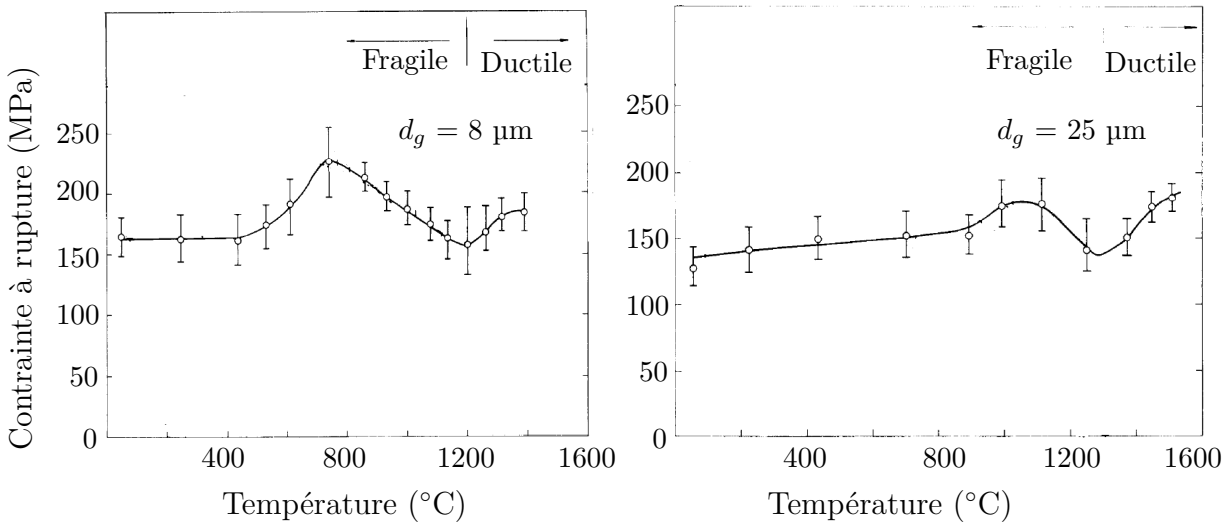


FIGURE 1.12 – Les contraintes à rupture de l'UO_2 déterminées par Evans et Davidge en fonction de la température et des diamètres moyens des grains (d_g) dans l'UO_2 polycristallin [39].

En ce qui concerne l'influence de la température, la contrainte à rupture augmente légèrement avec celle-ci. Dans la littérature, certains auteurs trouvent des résultats contradictoires. Les auteurs de la référence [41] confirment l'augmentation observée par Evans et Davidge [39] et Canon et al. [40], tandis que d'autres auteurs [42] n'ont pas observé

de variation dans la région des basses températures (T < 800°C), mais uniquement une forte augmentation dans la région des hautes températures (T > 800°C) [40].
La température à laquelle la ductilité apparaît, appelée aussi température de transition fragile-ductile, dépend de la microstructure des échantillons (diamètre moyen des grains, porosité) [39, 40, 43].

La rupture peut se produire de deux manières : au sein des grains (rupture transgranulaire ou intragranulaire) ou au niveau des interfaces entre les grains (rupture intergranulaire). Plusieurs études [39,41,44,45] ont montré que la rupture de l'UO_2 est principalement intragranulaire à basse température, ce qui correspond à un régime de rupture fragile, tandis qu'elle devient majoritairement intergranulaire à haute température, se situant dans les régimes de rupture semi-fragile ou ductile. De plus, la diminution des diamètres moyens des grains dans les échantillons d'UO_2 favorise la rupture intergranulaire [39].

Le diagramme de Gandhi et Ashby [46] (Figure 1.13), basé sur une vaste collecte de données expérimentales, représente graphiquement les différents domaines caractéristiques des modes de rupture dans l'UO_2 polycristallin.

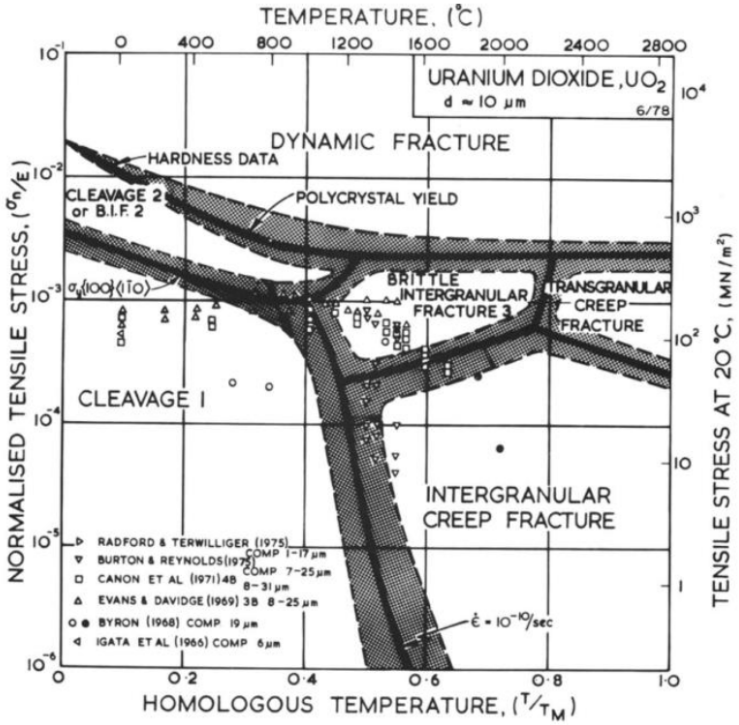


FIGURE 1.13 – Diagramme de rupture de l'UO_2 [46]. On distingue les zones caractéristiques des trois modes de rupture : purement fragile (cleavage I) ; semi-fragile (brittle intergranular fracture 3) et purement ductile (intergranular creep fracture)

Pour de l'UO_2 polycristallin, l'impact de la microstructure des échantillons et de la température explique la grande dispersion des valeurs de la contrainte à rupture de l'UO_2. Les valeurs sont comprises entre 130 MPa et 230 MPa [39, 42, 43, 47].

Cas de l'UO_2 mono/bicristallin

Le développement des méthodes de mesure à l'échelle locale, notamment l'essai de flexion d'une micro-poutre [48], a permis de déterminer la contrainte de rupture de l'UO_2 à l'échelle des monocristaux en fonction de leurs orientations (Figure 1.14). Les micro-poutres ont été fabriquées à l'aide d'une machine de micro-découpe de haute précision. Les échantillons, d'une dimension typique de l'ordre du millimètre, ont été découpés en grains individuels d'environ quelques micromètres pour tester les joints de grains (Figure 1.14b). Deux types de spécimens ont été étudiés : ceux avec une encoche pour calculer le facteur d'intensité de contrainte, et ceux sans encoche pour déterminer la limite à rupture (Figure 1.14c).

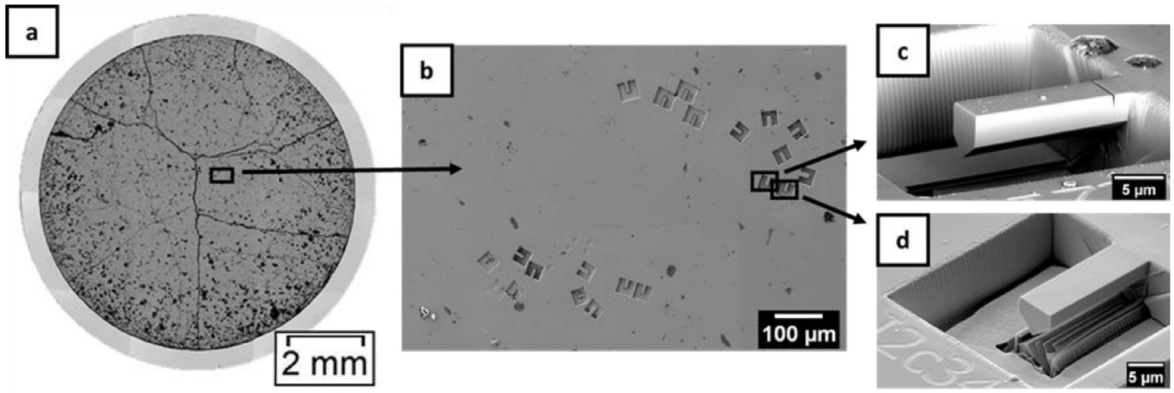


FIGURE 1.14 – Pastille d'UO_2 irradié à 34,1 GWd/tU dans un REP. (a) Macrographie de l'échantillon : une coupe radiale d'un pastille incluse dans la gaine. (b) Image SEM de la zone encadrée en noir dans (a). (c) et (d) Images SEM de la zone encadrée dans (b). (c) Image SEM d'un spécimen entaillé et (d) Image SEM d'un spécimen non entaillé. [6]

Les auteurs de la référence [5] ont montré que les contraintes à rupture des joints de grains étaient similaires à celles mesurées pour des monocristaux de combustible non-irradié. Cependant, ces contraintes varient considérablement d'un échantillon à l'autre, avec des valeurs moyennes de 2,54 ± 0,35 GPa et 2,86 ± 0,50 GPa respectivement pour les joints de grains et les monocristaux [5,6]. Après irradiation, les joints de grains présentent de nombreux défauts d'irradiation sur leurs surfaces, ce qui entraîne une résistance à rupture plus faible. Les valeurs moyennes des contraintes à rupture en traction sont de 1,26 ± 0,46 GPa pour les joints de grains et de 2,76 ± 0,64 GPa pour les monocristaux (rupture intragranulaire) [5].

1.2.2 Déterminations du seuil de rupture à l'aide de modèles empiriques

Dans ce paragraphe, deux types de modèles empiriques sont présentés, qui sont issues de la mécanique linéaire de la rupture, qui permettent de déterminer la contrainte à rupture d'un matériau isotrope de type fragile contenant un défaut aplati. Le premier modèle concerne le cas d'une rupture purement fragile, tandis que le deuxième prend en compte

les mouvements de dislocation. En effet, la rupture ne se produit jamais exclusivement de manière fragile. À mesure que la température augmente, même dans les cas de rupture qualifiés de fragiles, les dislocations commencent à présenter une mobilité limitée.

Hypothèse d'une rupture purement fragile

La contrainte à rupture (σ^{rup}) peut être identifiée comme l'intensité de la contrainte uniaxiale à appliquer au loin perpendiculairement à un défaut lenticulaire ("penny-shaped flaw") pour propager ce dernier en milieu infini [8] (Figure 1.15) :

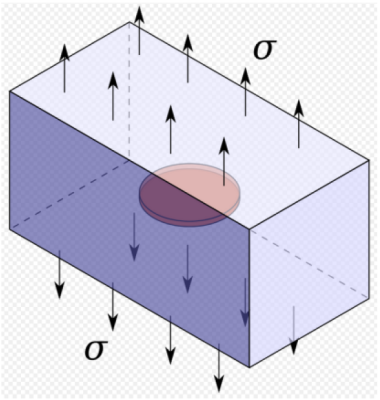


FIGURE 1.15 – Défaut en forme de lentille plate ("penny-shaped flaw") dans un milieu solide infini [49].

$$\sigma^{rup} = \sqrt{\frac{\pi E \gamma_0}{2r(1-\nu^2)}} \tag{1.2}$$

où E et ν représentent respectivement le module d'Young et le coefficient de Poisson, r est le rayon (ou demi-largeur) du défaut et γ_0 est une énergie d'amorçage de fissure [39] dont la valeur est égale, par définition, à la moitié du travail de séparation W (travail mécanique par unité de surface effectué pour agrandir une fissure) :

— si la rupture est intragranulaire, l'énergie γ_0 est :

$$\gamma_0 = 0.5W = \mathcal{E}_\mathcal{S} \tag{1.3}$$

où $\mathcal{E}_\mathcal{S}$ est l'énergie de surface de l'UO_2 ;

— si la rupture est intergranulaire, l'énergie γ_0 est :

$$\gamma_0 = 0.5W = \mathcal{E}_\mathcal{S} - 0.5\mathcal{E}_{GB} \tag{1.4}$$

où $\mathcal{E}_{GB}$ est l'énergie du joint de grains ;

Les auteurs de la référence [50] ont analysé de nombreux résultats de mesures expérimentales des énergies $\mathcal{E}_\mathcal{S}$ et $\mathcal{E}_{GB}$ pour l'UO_2. Ils ont principalement examiné les mesures réalisées en utilisant la méthode d'équilibration multi-phases (décrite en détail dans [50]). La méthode d'équilibration multi-phases est une approche expérimentale pour mesurer

l'énergie de surface et des joints de grains dans un matériau polycristallin. Elle utilise la mesure d'angles de contact caractéristiques à différentes interfaces multiphases (gaz, vapeur et liquide) à l'équilibre, permettant d'établir des équations d'équilibre linéaires pour chaque interface et déterminer ainsi les énergies de surface expérimentalement. Toujours dans la référence [50], on a proposé d'utiliser les équations suivantes, obtenues par ajustement des points expérimentaux avec un écart-type d'incertitude de 70% à cause de la grande dispersion des résultats expérimentaux :

$$\begin{cases} \mathcal{E}_{\mathcal{S}} = 0.888 - 1.4 \text{ x } 10^{-4} T & \text{pour} \quad T \in [273\text{K},2610\text{K}] \\ \mathcal{E}_{GB} = 0.515 - 8.12 \text{ x } 10^{-5} T & \text{pour} \quad T \in [2610\text{K},2929\text{K}] \end{cases} \tag{1.5}$$

La contrainte à rupture σ_{rup} dépend du module d'Young (E) et du coefficient de Poisson (ν). La température a un faible impact sur la valeur du coefficient de Poisson effectif, pour une température comprise entre 273 K et 2929 K, la valeur se situant aux alentours de 0,32 [51]. Le module de Young effectif diminue considérablement pour cette même plage de température. Sa variation en température $E(T)$ est donnée par les équations empiriques suivantes [51] :

$$\begin{cases} E(T) = 226.9 - 1.5 \text{ x } 10^{-2} T - 9.6 \text{ x } 10^{-6}\ T^2 & \text{pour} \quad T \in [273\text{K},\ 2610\text{K}] \\ E(T) = -1334.6 + 1.18T - 238.8 \text{ x } 10^{-6} T^2 & \text{pour} \quad T \in [2610\text{K},\ 2929\text{K}] \end{cases} \tag{1.6}$$

Il est essentiel de rappeler que l'équation (1.2) permet de calculer la contrainte à rupture pour un solide infini avec un défaut circulaire, similaire à une bulle intergranulaire isolée. Cependant, dans le contexte des joints de grains, chaque bulle intergranulaire est entourée par d'autres bulles intergranulaires qui peuvent entraîner une augmentation des contraintes locales et faciliter ainsi la rupture.

Le taux de recouvrement des joints de grains par les bulles intergranulaires pourrait donc avoir un impact significatif sur le seuil de rupture des joints de grains. Pour prendre en compte ces facteurs supplémentaires, Chakraborty et al. [52] ont proposé une équation modifiée qui intègre la température (via $E(T)$ et $\gamma_0(T)$), le rayon des bulles intergranulaires (r) et le taux de recouvrement (A_f) des joints de grains par les bulles intergranulaires. Leur approche s'appuie sur des résultats de calculs mécaniques obtenus par la méthode des éléments finis. Selon ces auteurs, la contrainte à rupture peut être exprimée comme suit :

$$\sigma^{rup} = \frac{1}{f(A_f)} \sqrt{\frac{2E(T)\gamma_0(T)}{\pi r(1-\nu^2)}} \tag{1.7}$$

où $f(A_f)$ est un facteur géométrique adimensionnel tenant compte de la forme de la bulle et du taux de recouvrement A_f. La dépendance $f(Af)$, pour une bulle de forme lenticulaire, est donnée par la relation [52] :

$$f(A_f) = 0.568A_f^2 + 0.059A_f + 0.5587 \tag{1.8}$$

Hypothèse d'une rupture fragile avec mouvement de dislocation

En plus du travail requis pour la séparation dans l'équation (1.2), il faut également tenir compte du travail dépensé dans le mouvement des dislocations dans le calcul de σ^{rup} :

$$\sigma^{rup} = \sqrt{\frac{2E(T)(\gamma_0 + \gamma_p)}{\pi r(1-\nu^2)}} \tag{1.9}$$

où γ_p correspond au travail de séparation dissipé dans le mouvement des dislocations [53]. Le terme γ_p est positif (ce qui implique l'inégalité $\gamma_0 + \gamma_p > \gamma_0$) et sa valeur augmente avec la température [39]. À basses températures, le travail plastique devient négligeable et $\gamma_0 + \gamma_p \approx \gamma_0$. Comme observé par [53], les influences de la microstructure (diamètres moyens des grains, porosité) et de la température sur la résistance à la rupture sont prises en compte dans l'équation (1.9) via le module de Young, le coefficient de Poisson [43,51,54] et l'énergie de rupture γ_I ($\gamma_I = \gamma_0 + \gamma_p$) [51, 54].

1.2.3 Conclusion de la revue bibliographique

La revue des résultats expérimentaux les plus importants et des modèles empiriques disponibles dans la littérature montrent que le seuil de rupture de l'UO_2 ne peut pas être considéré comme constant à travers le combustible et dans le temps. La propriété apparente à rupture de l'ensemble des joints de grains évolue en fonction de la température, des valeurs locales des rayons des bulles intergranulaires et du taux de recouvrement des joints de grains par les bulles intergranulaires. Les résultats expérimentaux sur la rupture de l'UO_2 concernent principalement une rupture à l'échelle macroscopique pour laquelle on observe une grande dispersion des valeurs de la contrainte à rupture. Ces valeurs varient entre 130 MPa et 2.8 GPa en fonction de la microstructure et de la température.

Le seuil de rupture des joints de grains d'UO_2 pendant un RIA peut être estimé à l'aide d'équations de type Griffith-Sack dans l'hypothèse d'une rupture fragile. Cette hypothèse peut être considérée comme raisonnable étant donné que la température de transition fragile/ductile est d'environ 1900 K [46] et que cette température augmente avec la vitesse de déformation. Pour une vitesse de déformation de 0.0025 s^{-1}, la température de transition fragile/ductile est d'environ 2000 K (1700°C) [40]. Or, lors d'un RIA, la vitesse de déformation est d'environ 10 s^{-1}, ce qui entraîne une augmentation des températures de transition fragile/ductile au-delà de 2000 K, ce qui implique des ruptures fragiles des joints de grains pendant ce type de transitoires.

1.3 Positionnement de la thèse et démarche

1.3.1 Positionnement de la thèse

Le relâchement des gaz de fission joue un rôle, pouvant être important, dans le chargement de la gaine lors d'un accident de type RIA. Pour cette raison, dans toute simulation du comportement thermomécanique du combustible pendant un RIA il faut inclure une modélisation du relâchement des produits de fission gazeux.

Pour modéliser le comportement global d'un crayon combustible lors d'un RIA, un code de calcul a été développé au sein de l'IRSN appelé SCANAIR (Système de Codes pour l'ANalyse d'Accidents d'Insertion de Réactivité) [1]. Ce code permet notamment de prendre en compte le relâchement des gaz de fission depuis les joints de grains vers les porosités, puis vers les volumes libres du crayon [55]. Un code similaire appelé MARGARET est également en développement au CEA permettant la modélisation du comportement des gaz de fission dans les combustibles nucléaires [56]. Dans SCANAIR, le relâchement des gaz se produit si les joints de grains sont saturés ou s'ils sont rompus. Ce code ne considère qu'une seule population de bulles intergranulaires de forme lenticulaire sur les faces des grains.

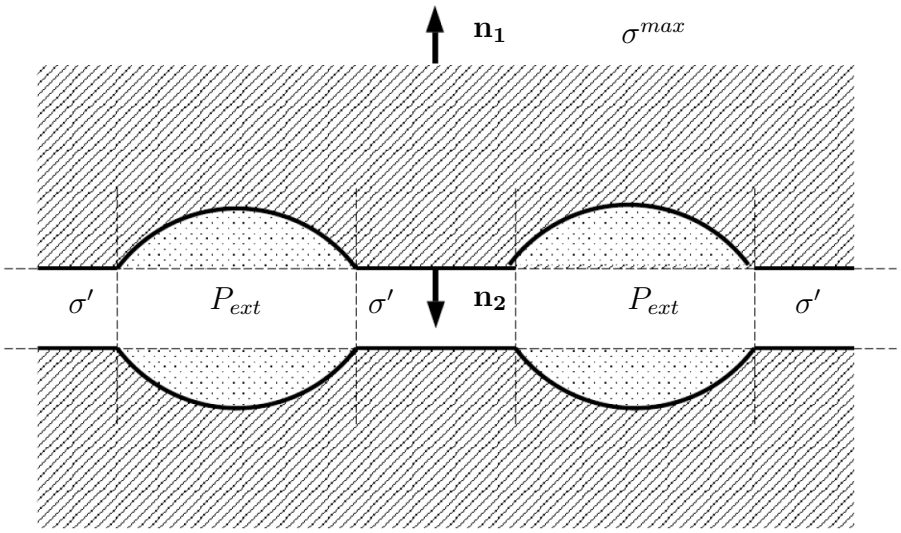


FIGURE 1.16 – Les contraintes présentes au niveau des joints de grains [1].

La rupture des joints de grains a lieu lorsqu'une valeur moyenne de la contrainte uniaxiale perpendiculaire aux joints de grains, notée σ', est plus grande que la contrainte à rupture (seuil de rupture) des joints de grains, notée σ^{rup}. Pour un joint de grains, l'équilibre des forces, après projection sur le vecteur $\mathbf{n_1}$ normal à la surface des joints de grains (Figure 1.16), s'écrit :

$$\sigma'\Big(\mathcal{S}_{GB} - \mathcal{S}_{PB}\Big) = P_{ext}\mathcal{S}_{PB} + \sigma^{max}\mathcal{S}_{GB} \tag{1.10}$$

Le terme $\mathcal{S}_{GB}$ est la surface totale des joints de grains et $\mathcal{S}_{PB}$ représente la surface totale des projections des bulles intergranulaires sur le joint de grains :

$$\mathcal{S}_{GB} = \frac{3}{2}\frac{V}{r_G} \quad \text{et} \quad S_{PB} = \rho C_B V\Big(\pi r_B^2\Big) \tag{1.11}$$

où V est le volume d'une région du combustible, r_G représente le rayon effectif d'un grain, r_B est le rayon de la projection d'une bulle intergranulaire sur la surface d'un grain, le facteur $\rho C_B V$ représente le nombre de bulles intergranulaires dans la région de volume V, ρ étant la densité du combustible et C_B la concentration massique des bulles intergranulaires.

Le terme P_{ext}, dans l'équation (1.10), est la différence entre la pression dans la bulle donnée par l'équation de van der Waals (ou Carnahan-Starling) et la pression due à la tension superficielle de l'interface gaz/UO_2 (pression de Laplace) :

$$P_{ext} = \frac{N_{Ga} k_B T}{V_B - N_{Ga} b} - \frac{2\mathcal{T}_S \sin\alpha}{r_B} \tag{1.12}$$

où V_B est le volume de la bulle intergranulaire, N_{Ga} est le nombre d'atomes de gaz dans la bulle, k_B est la constante de Boltzmann et b est le volume occupé par les atomes de gaz. Le facteur $\mathcal{T}_S$ est la tension superficielle de l'interface gaz/UO_2 et α (Figure 1.17) est l'angle dièdre entre la surface de la bulle et celle du joint de grains (facteur de forme). L'angle α peut être exprimé en fonction de la hauteur h et du rayon de la bulle r de la manière suivante [57] :

$$\alpha = \tan^{-1}\left[2hr/(r^2 - h^2)\right]. \tag{1.13}$$

Le terme σ^{max}, dans l'équation (1.10), représente toutes les contraintes thermomécaniques aux joints de grains autres que celles dues aux gaz des bulles intergranulaires et est défini comme le maximum algébrique des composantes du tenseur des contraintes :

$$\sigma^{max} = \max\left(\sigma_r, \sigma_\theta, \sigma_z\right) \tag{1.14}$$

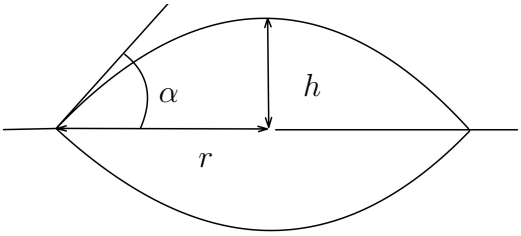


FIGURE 1.17 – Représentation d'une bulle intergranulaire.

Dans SCANAIR, différentes valeurs ont été adoptées pour le seuil dans diverses simulations. Par exemple, une étude antérieure [58] a utilisé 50 MPa, tandis qu'une autre recherche [59] a privilégié une valeur plus élevée, soit 120 MPa. Néanmoins, il est important de noter que ces choix de valeurs manquent d'une justification explicite basée sur l'expérience ou la théorie, bien que la validité globale du modèle de relâchement des gaz de fission soit reconnue. Afin d'améliorer la précision et la fiabilité de la modélisation dans SCANAIR et par extension, dans d'autres codes combustibles, cette lacune doit être comblée en proposant une valeur, ou du moins une estimation raisonnable, pour le seuil de rupture des joints de grains dans l'UO_2. C'est l'objectif central de cette thèse, qui s'inscrit dans la « Question 5 » de la stratégie scientifique de l'IRSN : « Comment mieux caractériser et modéliser les phénomènes qui génèrent des contraintes thermomécaniques et chimiques sur la première barrière ou font évoluer ses modes de dégradation ou de ruine ? ». Les paramètres mécaniques et de rupture des joints de grains seront obtenus dans cette étude par une approche multi-échelle atomistique/mésoscopique (Figure 1.18).

1.3.2 Démarche multi-échelle

A l'échelle atomistique, les processus de rupture peuvent être étudiés à l'aide de méthodes statiques ou de dynamique moléculaire [60]. Dans le cadre de ces méthodes, la description la plus pertinente des interactions entre les atomes serait réalisée par des approches quantiques, qui permettent de prendre en compte l'importante modification de la densité électronique autour du joint de grains subissant la rupture. Le principal inconvénient des approches quantiques est un temps de calcul souvent prohibitif, conduisant à l'utilisation moins coûteuse numériquement de potentiels semi-empiriques pour décrire les interactions atomiques. Afin de s'approcher de la précision des simulations quantiques tout en gardant des temps de calcul raisonnables, un potentiel semi-empirique à charges variables (SMTB-Q), développé spécifiquement pour l'UO_2 [3], est employé dans nos études atomistiques. Les calculs sont effectués avec le logiciel LAMMPS [4]. Les systèmes étudiés à l'échelle atomistique, pour analyser la rupture des joints de grains, sont de quelques nanomètres et contiennent comme défaut uniquement le joint de grains.

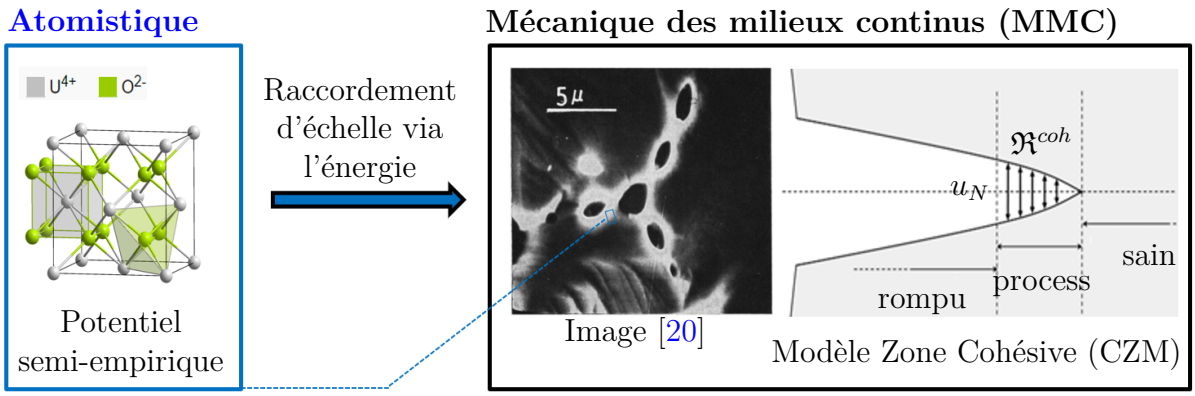


Figure 1.18 – Illustration de l'approche multi-échelle

Afin de proposer des critères de rupture macroscopiques, des calculs micromécaniques sont couplés avec les calculs atomistiques. À l'échelle mésoscopique (ou échelle des grains), une approche cohésive-volumétrique à l'aide des notions de Modèles de Zones Cohésives Frottantes (MZCF) et de méthodes de modélisation numérique des systèmes multicorps, dans le cadre de l'approche Non Smooth Contact Dynamics (NSCD) [7], est utilisée. Le code de calcul associé, XPER, permet d'analyser les mécanismes d'amorçage et de propagation de fissures au sein des matériaux hétérogènes. Cette plateforme numérique, alimentée par des données matériaux obtenues à l'échelle atomistique, permet de mener une analyse multi-échelle (Figure 1.18). Les systèmes étudiés à l'échelle mésoscopique, pour analyser la rupture des joints de grains, sont de quelques micromètres permettant de modéliser les bulles au niveau des joints de grains.

Chapitre 2

Identification des paramètres mécaniques et de rupture de l'UO_2 via une approche atomistique

Dans ce chapitre, après avoir présenté les approches atomistiques utilisés, on analyse, à l'aide de calculs atomistiques de type statique et dynamique moléculaire, les propriétés de trois joints de grains d'UO_2 et leur comportement sous une charge uniaxiale de traction jusqu'à la rupture. Dans ces simulations atomistiques, les interactions entre les atomes sont décrites à l'aide d'un potentiel à charges variables à N-corps, le SMTB-Q. Une analyse structurale est employée sur les trois structures de joints de grains soumises à des contraintes de traction uniaxiale à différentes températures. Une méthode basée sur des considérations thermodynamiques est utilisée pour construire des lois normales de zone cohésive pour les joints de grains d'UO_2 en utilisant des données de simulations de dynamique moléculaire. Les lois de zone cohésive seront utilisées pour étudier la rupture à des échelles plus élevées, l'échelle des grains.

Sommaire

2.1 Méthodes atomistiques 43
2.1.1 Systèmes de particules 43
2.1.2 L'hyper-surface d'énergie potentielle : méthodes d'exploration . 45
2.1.3 Grandeurs physiques d'intérêt 50
2.1.4 Potentiels interatomiques 51
2.1.5 Le potentiel interatomique SMTB-Q 54
2.2 Étude des propriétés et du comportement sous contrainte de traction uniaxiale des joints de grains d'UO_2 58
2.2.1 Modèles pour les systèmes étudiés 58
2.2.2 Propriétés des joints de grains d'UO_2 60
2.2.3 Comportement sous contrainte de traction uniaxiale : analyse structurale 65
2.2.4 Comportement sous contrainte de traction uniaxiale : analyse thermodynamique 71

2.3 Proposition de paramètres de lois cohésives 76
2.4 Calcul des propriétés élastiques d'un monocristal d'UO_2 . . . 78
2.5 Bilan du chapitre 82

2.1 Méthodes atomistiques

2.1.1 Systèmes de particules

Chaque corps peut être considéré comme un système de particules, de type atomes ou molécules, qui interagissent entre elles. Chacune de ces particules a une position dans l'espace et peut interagir avec les autres particules par le biais de forces d'origine électromagnétique. Ces forces résultent des interactions de N_e électrons et de N_n noyaux atomiques (l'essentiel de la masse du système) composant les atomes et les molécules du système considéré.

L'état du système de particules est déterminée par l'équation de Schrödinger non-rélativiste indépendante du temps, qui a la forme suivante :

$$\hat{H}\Psi(\mathbf{r},\mathbf{R}) = \mathcal{U}\Psi(\mathbf{r},\mathbf{R}) \tag{2.1}$$

où $\mathcal{U}$ est l'énergie totale du système de particules et $\Psi(\mathbf{r},\mathbf{R})$ est la fonction d'onde dépendante des coordonnées des électrons $\mathbf{r} = (r_1, r_2, .., r_{3N_e})$ et des noyaux atomiques $\mathbf{R} = (R_1, R_2, .., R_{3N_n})$.

$\hat{H}$ est l'opérateur Hamiltonien qui est exprimé comme une somme d'opérateurs :

$$\hat{H} = \hat{T}_e + \hat{T}_n + \hat{V}_{ne} + \hat{V}_{ee} + \hat{V}_{nn} \tag{2.2}$$

où par $\hat{T}$ on a noté les opérateurs d'énergie cinétique, et par $\hat{V}$ les opérateurs d'énergie potentielle.
$\hat{T}_e$ est l'opérateur d'énergie cinétique pour les électrons et il est exprimé de la manière suivante :

$$\hat{T}_e = -\frac{\hbar^2}{2m_e}\sum_{i=1}^{N_e}\nabla_i^2 \tag{2.3}$$

où $\hbar$ est la constante réduite de Planck, m_e est la masse de l'électron et ∇_i^2 représente le laplacien :

$$\nabla_i^2 = \frac{\partial^2}{\partial {x_i}^2} + \frac{\partial^2}{\partial {y_i}^2} + \frac{\partial^2}{\partial {z_i}^2}, \tag{2.4}$$

La somme s'étend sur tous les N_e électrons du système.
$\hat{T}_n$ est l'opérateur d'énergie cinétique pour les noyaux :

$$\hat{T}_{\mathrm{n}} = -\frac{\hbar^2}{2}\sum_{A=1}^{N_n}\frac{1}{M_A}\nabla_A^2 \tag{2.5}$$

où $\hbar$ et ∇_A^2 ont été définis précédemment et M_A est la masse du noyau A. La somme s'étend sur tous N_n noyaux du système.
Les opérateurs d'énergie potentielle décrivent les interactions coulombiennes de type électron-noyau ($\hat{V}_{en}$), électron-électon ($\hat{V}_{ee}$) et noyau-noyau ($\hat{V}_{nn}$). Ces opérateurs ont les formes suivantes :

$$\hat{V}_{\text{en}} = -\sum_{i=1}^{N_e}\sum_{A=1}^{N_n}\frac{Z_A e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{iA}} \tag{2.6}$$

$$\hat{V}_{\text{ee}} = \sum_{i=1}^{N_e}\sum_{j>i}^{N_e}\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{ij}} \tag{2.7}$$

$$\hat{V}_{\text{nn}} = \sum_{A=1}^{N_n}\sum_{B>A}^{N_n}\frac{Z_A Z_B e^2}{4\pi\epsilon_0 R_{AB}} \tag{2.8}$$

Dans les trois équation précédentes, Z_A et Z_B sont les charges des noyaux A et B, e est la charge élémentaire, ϵ_0 est la permittivité du vide, r_{iA} est la distance entre l'électron i et le noyau A, r_{ij} est la distance entre les électrons i et j et R_{AB} est la distance entre les noyaux A et B.

Vu le fait que les noyaux sont beaucoup plus lourds (et lents) que les électrons, il a été possible de scinder l'équation de Schrödinger en deux équations : l'une pour les électrons et l'autre pour les noyaux. Cela a été réalisé grâce à l'approximation de Born-Oppenheimer. Dans le cadre de cette approximation, la fonction d'onde totale peut être écrite sous la forme :

$$\Psi(\mathbf{r},\mathbf{R}) = \psi(\mathbf{r},\mathbf{R})\chi(\mathbf{R}) \tag{2.9}$$

où $\chi(\mathbf{R})$ est une fonction d'onde décrivant seulement les noyaux (dépend uniquement des coordonnées des noyaux) et $\psi(\mathbf{r},\mathbf{R})$ est une fonction d'onde électronique dépendant des coordonnées des électrons $\mathbf{r}$ et de celles des noyaux $\mathbf{R}$.

En remplaçant cette dernière équation dans l'équation 2.1 et en développant cette dernière tout en négligeant des termes de couplage (en vertu de l'approximation Born-Oppenheimer), on obtient une équation pour les électrons :

$$\hat{H}_e\psi(\mathbf{r},\mathbf{R}) = (\hat{T}_e + \hat{V}_{ne} + \hat{V}_{ee})\psi(\mathbf{r},\mathbf{R}) = \mathcal{U}_e(\mathbf{R})\psi(\mathbf{r},\mathbf{R}) \tag{2.10}$$

et une pour les noyaux :

$$\hat{H}_n\chi(\mathbf{R}) = (\hat{T}_n + \hat{V}_{nn} + \mathcal{U}_e(\mathbf{R}))\chi(\mathbf{R}) = \mathcal{U}\chi(\mathbf{R}) \tag{2.11}$$

où $\hat{H}_e$ est l'opérateur hamiltonien électronique, qui décrit le comportement des électrons dans le champ électromagnétique créé par les noyaux, $\hat{H}_n$ est un opérateur hamiltonien nucléaire et $\mathcal{U}_e(\mathbf{R})$ est l'énergie électronique totale du système, qui dépend des coordonnées $\mathbf{R}$ des noyaux.

L'approximation de Born-Oppenheimer permet de considérer les noyaux comme étant fixes à des positions spécifiques $\mathbf{R}$ pendant que l'on résout l'équation d'onde électronique. Ainsi, les mouvements des noyaux sont traités comme des paramètres externes, et l'énergie électronique $\mathcal{U}_e(\mathbf{R})$ peut être calculée pour différentes configurations des noyaux.

Le traitement le plus homogène consiste en la résolution des deux équations, électronique et nucléaire. Vu le temps de calcul élevé demandé par cette approche quantique, on emploie plus souvent une approche, où uniquement l'équation électronique est résolue, le mouvement des noyaux étant traité d'une manière classique, en utilisant la mécanique de Newton à la place de celle quantique. Dans cette approche mixte, l'énergie potentielle totale $\mathcal{U}_{\text{pot}}(\mathbf{R})$ du système est calculée comme la somme entre l'énergie électronique $\mathcal{U}_e(\mathbf{R})$ et l'énergie d'interaction coulombienne $\mathcal{U}_{\text{coul}}(\mathbf{R})$ entre les noyaux :

$$\mathcal{U}_{\text{pot}}(\mathbf{R}) = \mathcal{U}_{\text{e}}(\mathbf{R}) + \mathcal{U}_{\text{coul}}(\mathbf{R}) \tag{2.12}$$

où

$$\mathcal{U}_{\text{coul}}(\mathbf{R}) = \sum_{A=1}^{N_n} \sum_{B>A}^{N_n} \frac{Z_A Z_B e^2}{4\pi\epsilon_0 R_{AB}} \tag{2.13}$$

En ce qui concerne l'équation d'onde électronique, la méthode la plus connue de résolution est celle de Hartree-Fock. Des méthodes dites post-Hartree-Fock ont été introduites afin de prendre en compte la corrélation électronique, absente dans le traitement Hartree-Fock initial. Cela permet l'obtention de valeurs de l'énergie électronique totale proches de celles de la solution exacte de l'équation de Schrödinger non-relativiste dans l'approximation de Born-Oppenheimer. Une autre méthode permettant la prise en compte de la corrélation électronique avec des temps de calcul plus courts est celle de la DFT (Density Functional Theory) où l'énergie électronique totale est calculée comme le minimum d'une fonctionnelle de la densité électronique. Toutes ces méthodes de résolution sont présentées et discutées dans des ouvrages dédiés [60, 61]. La solution de l'équation électronique, la fonction d'onde électronique $\psi(\mathbf{r}, \mathbf{R})$, permet ensuite de calculer l'énergie électronique $\mathcal{U}_{\text{e}}$:

$$\mathcal{U}_e(\mathbf{R}) = \langle \psi(\mathbf{r}, \mathbf{R}) | \hat{H}_{\text{e}}(\mathbf{R}) | \psi(\mathbf{r}, \mathbf{R}) \rangle \tag{2.14}$$

En remplaçant cette dernière formule dans l'équation 2.12, on obtient la relation suivante :

$$\mathcal{U}_{\text{pot}}(\mathbf{R}) = \langle \psi(\mathbf{r}, \mathbf{R}) | \hat{H}_{\text{e}}(\mathbf{R}) | \psi(\mathbf{r}, \mathbf{R}) \rangle + \mathcal{U}_{\text{coul}}(\mathbf{R}) \tag{2.15}$$

qui souligne l'origine quantique des interactions atomiques ou moléculaires.

2.1.2 L'hyper-surface d'énergie potentielle : méthodes d'exploration

L'énergie potentielle totale d'un système d'atomes ou de molécules $\mathcal{U}_{\text{pot}}(\mathbf{R})$ est une fonction des $3N_n$ coordonnées nucléaires. Dans une espace à $3N_n+1$ dimensions, elle décrit une hyper-surface présentant des points particuliers tels que des minima, des maxima et des cols. Les minima correspondent à des états stables ou méta-stables du système, tandis que les cols donnent des indications sur les barrières et géométries de transition entre différents états stables (ou méta-stables). La Figure 2.1 donne une image intuitive (en trois dimensions) d'une hyper-surface d'énergie potentielle.

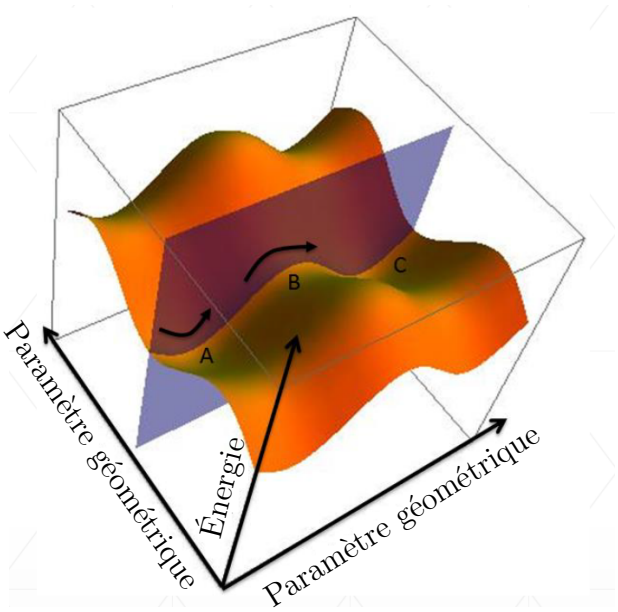


FIGURE 2.1 – Surface d'énergie potentielle : hyper surface représentant l'énergie en fonction des positions des noyaux.

Des méthodes de calcul ont été développées permettant d'explorer de telles hypersurfaces et d'identifier les points remarquables, notamment des minima et des cols. Ces méthodes peuvent être groupées en deux grandes catégories :

- **Méthodes locales :** telles que les méthodes de minimisation de l'énergie potentielle (Newton-Raphson, gradients conjugués, etc.) ;
- **Méthodes globales :** telles que les méthodes de la dynamique moléculaire ou de type Monte Carlo.

Ces techniques permettent d'analyser et de modéliser les interactions atomiques, fournissant ainsi une compréhension approfondie des propriétés de la matière à l'échelle atomistique.

★ Méthodes locales : minimisation avec la méthode des gradients conjugués

Le principe de base des méthodes de minimisation est de trouver les positions des atomes qui minimisent l'énergie potentielle totale du système, en ajustant les coordonnées atomiques de manière itérative jusqu'à ce que le minimum le plus proche, local ou global, de l'énergie soit atteint. Plusieurs méthodes de minimisation ont été proposées. Dans cette étude, on emploie la méthode du gradient conjugué dans la version Polak-Ribière.

Dans le cadre de cette méthode, si le système se trouve dans la configuration k de coordonnées $\mathbf{R_k}$, les coordonnées $\mathbf{R_{k+1}}$ dans la configuration $k+1$ se calculent avec la formule :

$$\mathbf{R_{k+1}} = \mathbf{R_k} + d_k \mathbf{c_k} \tag{2.16}$$

où $d_k \mathbf{c_k}$ est le vecteur de déplacement et d_k est un scalaire.

Dans la version Polak-Ribière de la méthode, pour tout $k > 0$, le vecteur $\mathfrak{c}_\mathbf{k}$ se calcule en utilisant les gradients de l'énergie potentielle correspondants aux configurations k et $k-1$ et le vecteur $\mathfrak{c}_{\mathbf{k-1}}$:

$$\mathfrak{c}_\mathbf{k} = -\nabla\mathcal{U}_{\text{pot}}(\mathbf{R_k}) + \frac{[\ \nabla\mathcal{U}_{\text{pot}}(\mathbf{R_k}) - \nabla\mathcal{U}_{\text{pot}}(\mathbf{R_{k-1}})]\ \cdot \nabla\mathcal{U}_{\text{pot}}(\mathbf{R_k})}{||\nabla\mathcal{U}_{\text{pot}}(\mathbf{R_{k-1}})||^2}\mathfrak{c}_{\mathbf{k-1}} \tag{2.17}$$

Dans le cas de la configuration initiale ($k = 0$), le vecteur $\mathfrak{c}_\mathbf{0}$ est donné par l'équation suivante :

$$\mathfrak{c}_\mathbf{0} = -\nabla\mathcal{U}_{\text{pot}}(\mathbf{R_0}) \tag{2.18}$$

Le scalaire d_k se calcule à chaque pas k à partir du vecteur $\mathfrak{c}_\mathbf{k}$, du gradient de l'énergie potentielle totale $\nabla\mathcal{U}_{\text{pot}}(\mathbf{R_k})$ et de la matrice hessienne $\mathcal{H}_k$:

$$d_k = \frac{||\nabla\mathcal{U}_{\text{pot}}(\mathbf{R_k})||^2}{(\mathcal{H}_k \cdot \mathfrak{c}_\mathbf{k}) \cdot \mathfrak{c}_\mathbf{k}} \tag{2.19}$$

Chacun des $3N_n \times 3N_n$ éléments $\mathcal{H}_{k,IJ}$ de la matrice hessienne est calculé comme la dérivée seconde de l'énergie potentielle par rapport aux coordonnées nucléaires R_{kI} et R_{kJ} :

$$\mathcal{H}_{k,IJ} = \frac{\partial^2\mathcal{U}_{\text{pot}}(\mathbf{R_k})}{\partial R_{k,I}\partial R_{k,J}} \tag{2.20}$$

Le processus itératif continue jusqu'à ce que pour une nouvelle configuration $k+1$, la différence (en valeur absolue) entre son énergie potentielle totale et celle de la configuration précédente k est inférieure à une certaine tolérance ζ_{tol} :

$$|\mathcal{U}_{\text{pot}}(\mathbf{R_{k+1}}) - \mathcal{U}_{\text{pot}}(\mathbf{R_k})| < \zeta_{tol} \tag{2.21}$$

Dans ce cas, on considère que le processus a convergé et le minimum d'énergie potentielle a été atteint.

★ Méthode globale : Dynamique moléculaire

Les méthodes de minimisation permettent de trouver les configurations du système correspondantes aux minima d'énergie potentielle totale les plus proches de la configuration initiale considérée. Par ces méthodes on a donc accès uniquement à des minima locaux caractérisant souvent des états méta-stables. Des méthodes ont été mises au point qui permettent une exploration plus vaste de l'hyper-surface d'énergie potentielle et d'approcher d'une manière plus efficace des minima caractéristiques à des états stables. Une puissante méthode de ce type et qui sera utilisée dans la présente étude est celle de la dynamique moléculaire (DM). Cette méthode (ou plutôt cet ensemble de méthodes) a été mise en place dans les années 1950 et a pour objectif l'observation de l'évolution d'un système d'atomes ou de molécules afin de calculer des diverses propriétés thermodynamiques du système.

La dynamique moléculaire simule l'évolution temporelle d'un système atomo-moléculaire en calculant les trajectoires atomiques. Les atomes sont assimilés à des masses ponctuelles interagissant entre elles et obéissant aux lois de la mécanique newtonienne. Les masses atomiques sont pratiquement égales aux masses de leurs noyaux (le noyau concentre l'essentiel de la masse de l'atome) et les interactions atomiques sont, comme montré dans la section 2.1.1, en partie d'origine électronique et en partie d'origine coulombienne, dues aux charges des noyaux. L'évolution du système est ainsi décrite par un système de $3N_n$ équations pour les composantes des vitesses atomiques et $3N_n$ équations pour celles des forces :

$$v_{A,I} = \dot{R}_{A,I} = \frac{p_{A,I}}{M_A} \tag{2.22}$$

$$F_{A,I} = \dot{p}_{A,I} = -\frac{\partial \mathcal{U}_{\text{pot}}(\mathbf{R})}{\partial R_{A,I}} \tag{2.23}$$

Dans ces équations, $R_{A,I}$, $v_{A,I}$, $p_{A,I}$ et $F_{A,I}$ sont les composantes I ($I = 1, 2, 3$) du vecteur de position, de la vitesse, de l'impulsion et de la force agissant sur l'atome A ($A = 1, ..., N_n$). M_A est la masse de l'atome qui est égale à celle de son noyau.

L'intégration de ces équations différentielles (de mouvement) nécessite de discrétiser le temps en pas Δt (10^{-15}s) et de calculer les nouvelles positions et vitesses atomiques en utilisant les forces dérivées du champ de force. Cela est réalisé en utilisant des méthodes d'intégration numérique comme celle de Verlet [62], qui permet de calculer les positions et les vitesses atomiques à chaque pas de temps.

Plus précisément, dans le cadre de cette méthode itérative, on peut calculer les composantes des vecteurs de position, des vitesses et des forces à l'instant $t+\Delta t$ à partir de leurs valeurs à l'instant t. Les composantes $R_{A,I}$ des vecteurs de position sont ainsi calculés à l'instant $t + \Delta t$ en utilisant un développement en série de Taylor du second ordre :

$$R_{A,I}(t + \Delta t) = R_{A,I}(t) + v_{A,I}(t)\Delta t + \frac{F_{A,I}(t)}{2M_A}\Delta t^2 \tag{2.24}$$

Les composantes des forces $F_{A,I}$ à l'instant $t + \Delta t$ se calculent en prenant le gradient de l'énergie potentielle totale par rapport aux coordonnées atomiques au même instant $t + \Delta t$:

$$F_{A,I}(t + \Delta t) = -\frac{\partial \mathcal{U}_{\text{pot}}(\mathbf{R})}{\partial R_{A,I}} = -\left\langle \psi(\mathbf{r}, \mathbf{R}) \middle| \frac{\partial \hat{H}_{\text{e}}(\mathbf{R})}{\partial R_{A,I}} \middle| \psi(\mathbf{r}, \mathbf{R}) \right\rangle - \frac{\partial \mathcal{U}_{\text{coul}}(\mathbf{R})}{\partial R_{A,I}} \tag{2.25}$$

Dans l'équation précédente, la partie électronique du gradient de l'énergie potentielle (le premier terme) a été développée en utilisant le théorème de Hellmann-Feynman.

Les vitesses $v_{A,I}$ à l'instant $t + \Delta t$ sont calculées ensuite à partir des forces :

$$v_{A,I}(t + \Delta t) = v_{A,I}(t) + \frac{[F_{A,I}(t + \Delta t) + F_{A,I}(t)]}{2M_A}\Delta t \tag{2.26}$$

Pour amorcer une simulation de dynamique moléculaire, il faut préciser un ensemble $\mathbf{R_0}$ de coordonnées atomiques initiales (configuration initiale) et un ensemble de vitesses initiales $\mathbf{v_0}$.

Afin de tenir compte des conditions aux limites (contraintes thermodynamiques) imposées par le milieu extérieur sur le système, les simulations de dynamique moléculaire sont effectuées dans des différents ensembles statistiques. Les ensembles statistiques rencontrés fréquemment dans les simulations de dynamique moléculaire sont l'ensemble microcanonique «NVE», l'ensemble canonique «NVT» et l'ensemble isotherme-isobare «NTP» :

Ensemble NVE : le nombre d'atomes N, le volume du système V et l'énergie totale E sont fixés. L'utilisation de l'algorithme de Verlet permet d'effectuer les simulations dans l'ensemble NVE, car ce schéma d'intégration assure la conservation de l'énergie totale du système. La dynamique du système est purement newtonienne.

Ensemble NVT : le nombre d'atomes N, le volume du système V et la température T sont fixés. Dans ce cas, la dynamique n'est plus newtonienne et l'algorithme de Verlet doit être modifié afin de prendre en compte le couplage du système physique avec un thermostat (réservoir d'énergie). Parmi les algorithmes de couplage les plus répandus, on peut citer le thermostat d'Andersen [63] (la température est imposée par une réinitialisation stochastique des vitesses atomiques) et le thermostat de Nosé-Hoover [63] (la température est imposée par l'introduction d'une variable supplémentaire traduisant une force de frottement dans l'équation de mouvement). Dans l'algorithme de Nosé-Hoover, à l'hamiltonien du système physique $H(\mathbf{R}, \mathbf{p})$, on ajoute deux termes caractéristiques au thermostat. On obtient ainsi un "hamiltonien étendu" $H_E(\mathbf{R}, \mathbf{p}, s, p_s)$ qui a la forme suivante [63] :

$$H_E(\mathbf{R}, \mathbf{p}, s, p_s) = H(\mathbf{R}, \mathbf{p}) + \frac{p_s^2}{2Q} + 3N_n k_B T s = \sum_{A=1}^{N_n} \frac{p_A^2}{2M_A} + \mathcal{U}_{\text{pot}}(\mathbf{R}) + \frac{p_s^2}{2Q} + 3N_n k_B T s \tag{2.27}$$

où $p_A^2 = \sum_{I=1}^{3} p_{A,I}^2$. k_B est la constante de Boltzmann, le scalaire s est une variable supplémentaire caractérisant le thermostat et p_s est assimilable à une impulsion associée. Q est un paramètre décrivant le couplage entre le système physique et le thermostat. Les autres grandeurs apparaissant dans l'équation ont été définies précédemment.

La dynamique d'un tel système "étendu" est décrite [63] par un système de $6N_n + 2$ équations (équations de Nosé-Hoover) :

$$\dot{R}_{A,I} = \frac{p_{A,I}}{M_A} \tag{2.28}$$

$$\dot{p}_{A,I} = -\frac{\partial \mathcal{U}_{\text{pot}}(\mathbf{R})}{\partial R_{A,I}} - \frac{p_s}{Q} p_{A,I} \tag{2.29}$$

$$\dot{s} = \frac{p_s}{Q} \tag{2.30}$$

$$\dot{p}_s = \sum_{A=1}^{N_n} \frac{p_A^2}{M_A} - 3N_n k_B T \tag{2.31}$$

Le deuxième terme du membre droit de l'équation 2.29 introduit une force supplémentaire, permettant ainsi de régler les impulsions (vitesses) des atomes afin que la température du système (proportionnelle à l'énergie cinétique) ne s'éloigne pas de la température cible. La dynamique de ce deuxième terme est liée à l'écart de la température du système par rapport à la valeur cible T par l'équation 2.31. La fréquence de l'intervention du thermostat pour régler la température est dictée par la valeur du paramètre de couplage Q. Pour cette raison, le choix de la valeur de ce paramètre est très important. Typiquement, il faut choisir le paramètre afin que la fréquence de l'intervention du thermostat soit du même ordre de grandeur que les fréquences de vibration du système étudié.

Ensemble NPT : le nombre d'atomes N, la pression P et la température T sont fixés. L'algorithme de Verlet est modifié afin de prendre en compte le couplage du système physique à la fois avec un thermostat (réservoir d'énergie) et un barostat (réservoir de volume). Le couplage avec le thermostat est décrit en utilisant l'une des méthodes présentées précédemment pour l'ensemble NVT. Pour décrire le couplage avec le barostat, le principe est similaire, une variable supplémentaire (correspondante au barostat) devant être ajoutée. Deux paramètres de couplage sont utilisés afin de régler les fréquences d'intervention du thermostat et du barostat.

Dans la suite de cette étude, nous opterons pour l'ensemble NVT ou l'ensemble NPT en fonction du cas étudié, en utilisant le thermostat de Nosé-Hoover [63].

2.1.3 Grandeurs physiques d'intérêt

Une simulation de dynamique moléculaire permet de décrire le mouvement et l'arrangement des atomes dans un matériau et de remonter ensuite à ses propriétés dynamiques ou d'équilibre thermodynamique. Les grandeurs d'équilibre thermodynamique obtenues à partir d'une simulation de dynamique moléculaire (contraintes atomiques, température, volume, énergie interne, enthalpie, etc) sont calculées comme les moyennes temporelles des valeurs prises par ces grandeurs à chaque instant t de la simulation. D'une manière générale, pour une grandeur quelconque $\mathcal{A}$, la moyenne temporelle, notée ici $\langle \mathcal{A} \rangle$, se détermine comme il suit :

$$\langle \mathcal{A} \rangle = \lim_{\tau \to \infty} \frac{1}{\tau} \int_0^\tau \mathcal{A}\Big(\mathbf{R}(t), \mathbf{p}(t)\Big) dt \tag{2.32}$$

où $\mathbf{p}(t)$ et $\mathbf{R}(t)$ représentent respectivement les ensembles des impulsions et des positions des atomes à l'instant t.

Dans les paragraphes suivants, sont présentées deux grandeurs importantes, qui, calculées à partir des simulations de dynamique moléculaire, serviront ensuite à la remontée d'échelle : la contrainte et la déformation.

★ Contrainte atomique

Le concept du tenseur des contraintes à l'échelle atomistique a été abordé sous divers angles par de nombreux chercheurs, ce qui a engendré des formulations différentes [64–67], suscitant ainsi des débats et des controverses quant à la définition "correcte". La référence [68] établit un cadre unifié qui englobe toutes les définitions existantes de la contrainte atomique, établissant ainsi des liens significatifs entre elles.

Dans ce paragraphe, nous allons présenter la formulation de la contrainte atomique tirée de la référence [68] qui est également celle utilisée dans notre étude [69]. Cette formulation, équivalente à la contrainte de Cauchy, a été obtenue pour un système discret en équilibre en utilisant la technique des transformations canoniques. Cette technique consiste à simplifier l'analyse d'un système complexe, tout en conservant les propriétés essentielles du système par le biais de changements de variable appropriés.

L'expression de la contrainte de Cauchy, pour un système discret, utilisée à l'échelle atomistique est la suivante [68] :

$$\underline{\underline{\sigma}} = -\frac{1}{V}\left\langle \left(\sum_{A\in V} M_A \mathbf{v}_A \otimes \mathbf{v}_A + \sum_{A\in V} \mathbf{R}_A \otimes \mathbf{F}_A \right) \right\rangle \tag{2.33}$$

où $\underline{\underline{\sigma}}$ est le tenseur de contrainte, qui décrit les contraintes appliquées sur le matériau, M_A est la masse de l'atome A, $\mathbf{v}_A$ est le vecteur vitesse de l'atome A, $\mathbf{R}_A$ est le vecteur de position de l'atome A et $\mathbf{F}_A$ est le vecteur force appliquée sur l'atome A. $\otimes$ dénote le produit tensoriel, V est le volume du système et $\langle\rangle$ est la moyenne temporelle.

★ Déformation globale

Dans ce cadre d'approche atomistique, l'étude du système se déploie au sein d'une cellule périodique, prenant la forme d'un parallélépipède et définie par les vecteurs $\mathbf{a}_0$, $\mathbf{b}_0$ et $\mathbf{c}_0$. Lorsqu'il subit une déformation, ces vecteurs évoluent en $\mathbf{a}$, $\mathbf{b}$ et $\mathbf{c}$. Le tenseur de déformation $\underline{\underline{\varepsilon}}$ peut être formulé selon l'expression suivante [70] :

$$\underline{\underline{\varepsilon}} = \frac{1}{2}\left[(\underline{\underline{h}}^T)^{-1} \underline{\underline{h}}_0^T \underline{\underline{h}}_0 (\underline{\underline{h}})^{-1} - \underline{\underline{1}} \right] \tag{2.34}$$

où $\underline{\underline{h}}$ et $\underline{\underline{h}}_0$ désignent respectivement les matrices constituées des vecteurs $\mathbf{a}$, $\mathbf{b}$ et $\mathbf{c}$ et $\mathbf{a}_0$, $\mathbf{b}_0$ et $\mathbf{c}_0$.

2.1.4 Potentiels interatomiques

Quelle que soit la méthode itérative utilisée, présentée dans la section 2.1.2, l'exploration de la surface d'énergie potentielle se fait en calculant la valeur de l'énergie potentielle du système à chaque itération. Cette valeur est ensuite nécessaire au calcul du vecteur de déplacement et de la matrice hessienne dans les techniques de minimisation ou au calcul des forces en dynamique moléculaire. À cause du terme d'énergie potentielle d'origine électronique (équations 2.12 à 2.15), il est nécessaire d'optimiser à chaque itération la fonction d'onde, ce qui demande des temps de calcul importants. Si on considère que les

simulations de dynamique moléculaire sont effectuées sur des systèmes allant de dizaines de milliers à des millions d'atomes et comportent des millions d'itérations, le temps nécessaire à l'optimisation de la fonction d'onde devient prohibitif. Afin de rendre les temps de simulation raisonnables, l'énergie potentielle des systèmes est souvent exprimée à l'aide de fonctions analytiques, dont les paramètres sont ajustés sur des résultats expérimentaux ou de calculs quantiques. Pour cette raison, ces fonctions sont également appelées potentiels semi-empiriques.

La construction d'un potentiel semi-empirique se fait en deux étapes. Premièrement, il faut choisir la forme analytique de la fonction en tenant compte des types de liaisons présentes dans le système étudié (liaisons ioniques, covalentes, métalliques etc). Deuxièmement, on détermine les paramètres de la fonction en l'ajustant suivant un certain nombre de propriétés physiques comme le paramètre de maille, l'énergie de cohésion, les constantes élastiques ou l'énergie de formation des lacunes.

L'une des approximations les plus fréquentes est d'exprimer l'énergie potentielle du système comme une somme de potentiels U qui dépendent uniquement des distances R_{AB} entre deux atomes A et B, appelés pour cette raison des potentiels de paires :

$$\mathcal{U}_{\text{pot}}(\mathbf{R}) \approx \sum_{A,B} U(R_{AB}) = \sum_{A,B} U(|\mathbf{R}_A - \mathbf{R}_B|) \tag{2.35}$$

où $\mathbf{R}_A$ et $\mathbf{R}_B$ sont les vecteurs de position des atomes A et B.

A moyenne et longue distance, de nombreux potentiels de paires ont la forme générale montrée sur la Figure 2.2, avec une zone répulsive d'énergie positive aux plus courtes distances interatomiques, suivie par un puits dont le minimum est atteint à la distance d'équilibre. Aux longues distances interatomiques, le potentiel tend vers zéro car l'interaction s'annule lorsque les atomes sont très éloignés.

Parmi les potentiels de paires les plus courants on peut citer :

Le potentiel coulombien

$$U(R_{AB}) = \frac{Z_A Z_B e^2}{4\pi\epsilon_0 R_{AB}} \tag{2.36}$$

où Z_A et Z_B sont les charges des ions A et B, e est la charge élémentaire et ϵ_0 est la permittivité du vide. Ce potentiel n'a pas la forme montrée sur la Figure 2.2. Il varie d'une manière monotone sur l'intervalle de $R_{AB} = 0$, où il présente une singularité, jusqu'au $+\infty$, où il s'annule.

Le potentiel de Lennard-Jones

$$U(R_{AB}) = 4\epsilon\left[\left(\frac{\sigma}{R_{AB}}\right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{R_{AB}}\right)^{6}\right] \tag{2.37}$$

où ϵ est la profondeur du puits et σ est la distance à laquelle le potentiel s'annule.

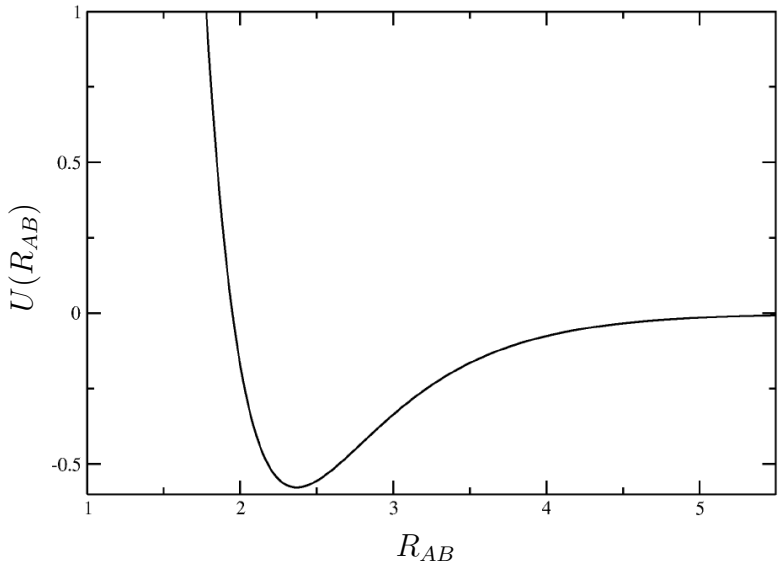


FIGURE 2.2 – Forme générale d'un potentiel de paires

Le potentiel de Morse

$$U(R_{AB}) = D_e \left[\exp(-2a(R_{AB} - R_e) - 2\exp(-a(R_{AB} - R_e)\right] \tag{2.38}$$

où D_e est la profondeur du puits, représentant l'énergie de dissociation de la liaison, R_e est la distance d'équilibre et a est un paramètre qui détermine la "raideur" du potentiel et qui peut être reliée à la constante de force.

Le potentiel de Buckingham-Hill

$$U(R_{AB}) = A\exp\left(-\frac{R_{AB}}{\rho}\right) - \frac{C}{R_{AB}^6} \tag{2.39}$$

où A, ρ et C sont des paramètres qui déterminent ensemble la profondeur du puits, la distance d'équilibre et la raideur du potentiel. Il faut mentionner que ce potentiel présente une singularité non-physique pour $R_{AB} = 0$ et pour cette raison on introduit souvent des fonctions de raccord répulsives (des fonctions de Born-Mayer par exemple) dans le domaine des très courtes distances interatomiques.

Dans de nombreux systèmes physiques (des systèmes très denses par exemple), une description des interactions entre les atomes par des potentiels de paires est souvent insuffisante. Pour cette raison, on a tenté d'exprimer l'énergie potentielle de ces systèmes à l'aide de potentiels prenant en compte des effets à N-corps. Parmi les potentiels à N-corps les plus courants on peut citer **les potentiels de type EAM** ("Embedded atom method" en anglais) qui sont principalement employés pour décrire les interactions entre les atomes au sein d'un métal pur ou d'un alliage métallique.

L'énergie potentielle d'un système est exprimée à l'aide de potentiels de type EAM de la manière suivante :

$$\mathcal{U}_{\text{pot}}(\mathbf{R}) \approx \frac{1}{2}\sum_{A,B} U_{t_A,t_B}(R_{AB}) + \sum_{A} F_{t_A}(\rho_A) \tag{2.40}$$

où $U_{t_A,t_B}(R_{AB})$ sont des potentiels de paires et les fonctionnelles F_{t_A} donnent l'énergie d'immersion de l'atome A dans le nuage électronique de densité ρ_A générée au site A par tous les autres atomes B :

$$\rho_A(\mathbf{R}) = \sum_{B} \rho_{t_B}(R_{AB}) \tag{2.41}$$

Le terme d'énergie d'immersion donne, par sa forme fonctionnelle, un caractère à N-corps au potentiel.

Un autre potentiel à N-corps et qui sera utilisé dans la présente étude est le potentiel à charges variables SMTB-Q [3] construit sur la base du formalisme des liaisons fortes dans l'approximation du second moment. Ce potentiel a été développé pour permettre la description des interactions atomiques au sein des oxydes métalliques. Le chapitre suivant présente le potentiel SMTB-Q tel qu'il ait été conçu pour décrire le dioxyde d'uranium.

2.1.5 Le potentiel interatomique SMTB-Q

L'UO_2 est un matériau complexe, où les liaisons (interactions) entre les atomes d'uranium et d'oxygène sont de type iono-covalent, ou covalent polaire. Les atomes d'uranium et d'oxygène possèdent ainsi des charges partielles, une bonne partie de la densité électronique étant localisée entre les atomes constituant ce qu'on appelle des liaisons chimiques. De nombreux potentiels semi-empiriques, d'une forme plus ou moins complexe, ont été développés pour décrire les interactions dans l'UO_2. Ces potentiels sont souvent des potentiels de paires exprimés comme une somme de potentiels plus usuels (Buckingham-Hill, Morse, potentiel coulombien, etc), mais ils peuvent être aussi de type EAM [71]. La plupart de ces potentiels utilisent dans le calcul de l'énergie d'interaction coulombienne les charges formelles de $+4$ pour l'uranium et de -2 pour l'oxygène, ce qui ne lui permet pas de prendre en compte la dé-localisation de la charge sur la liaison covalente uranium-oxygène. D'autres potentiels prennent en compte cette dé-localisation d'une manière statique en utilisant des charges fractionnaires qui, cependant, ne dépendent pas de l'environnement de chaque atome et de sa modification dans le temps. Les propriétés de l'UO_2 prédites en utilisant ces potentiels sont parfois très différentes d'un potentiel à l'autre. Il n'est pas possible de favoriser la prédiction d'un potentiel par rapport à une autre, du moment où les potentiels, malgré leurs formes analytiques et paramètres très différents, partagent la même vision simplifiée d'une interaction uranium-oxygène fortement ionique avec des charges atomiques independentes de l'évolution de l'environnement atomique.

L'utilisation du potentiel à charges variables SMTB-Q [3] rend possible, tout en gardant des temps de simulation raisonnables, de prendre en compte d'une manière dynamique la variation de la distribution des charges atomiques suivant la modification de l'environnement local des atomes. Ce potentiel, qui capte le caractère covalent de la liaison $U-O$,

permet de reproduire des nombreuses propriétés de l'UO_2 en bon accord avec l'expérience et les calculs quantiques. Parmi ces propriétés, on peut citer : l'énergie de cohésion de l'UO_2 fluorite et la variation de son paramètre de réseau avec la température, les charges des atomes d'uranium et d'oxygène dans l'UO_2 fluorite, les énergies de surface de trois surfaces d'UO_2 de bas indice de Miller et les énergies de formation des paires de Frenkel d'oxygène et d'uranium et des défauts de Schottky [3]. Le potentiel SMTB-Q, avec des différents ensembles de paramètres, a été aussi utilisé pour étudier les transitions de phase pouvant se produire sous contraintes de compression et de traction [72] ou la mobilité des dislocations activée thermiquement [73].

Le potentiel SMTB-Q semble approprié pour étudier le comportement des joints de grains d'UO_2 sous hautes contraintes de traction, car les processus ayant lieu dans ces conditions (transitions de phase ou rupture des joints de grains) sont accompagnés par une importante modification de l'environnement local des atomes. Des travaux précédents [3, 72, 73] effectués avec ce potentiel suggèrent qu'il doit aussi avoir la capacité de prédire d'une manière correcte la structure et la stabilité des défauts étendus tels que les joints de grains.

Pour ces raisons, dans tous les calculs statiques (de minimisation d'énergie potentielle) ou dynamiques de cette étude, les interactions atomiques sont décrites en utilisant le potentiel SMTB-Q tel qu'implémenté dans le code atomistique LAMMPS [4].

Dans le formalisme SMTB-Q, l'énergie potentielle d'un système $\mathcal{U}_{\text{pot}}(\mathbf{R})$ est exprimée comme la somme de quatre termes énergétiques : un terme d'ionisation $\mathcal{U}_{ion}$, un terme colombien $\mathcal{U}_{coul}$, un terme covalent $\mathcal{U}_{cov}$ et un terme répulsif $\mathcal{U}_{rep}$:

$$\mathcal{U}_{\text{pot}}(\mathbf{R}) \approx \mathcal{U}_{ion} + \mathcal{U}_{coul} + \mathcal{U}_{cov} + \mathcal{U}_{rep} \tag{2.42}$$

Le terme d'ionisation Ce terme est obtenu par la somme :

$$\mathcal{U}_{ion} = \sum_{A=1}^{N_n} U_{ion}^{A}(Q_A) = \sum_{A=1}^{N_n} \left(\chi_0^X Q_A + \frac{1}{2} J_0^X Q_A^2 \right) \tag{2.43}$$

où N_n est le nombre total d'ions du système, $U_{ion}^{A}(Q_A)$ représente la variation de l'énergie de l'ion A due à son excès ou déficit de charges Q_A par rapport à l'atome neutre correspondant et les paramètres χ_0^X et J_0^X sont respectivement l'électronégativité [1] et la dureté [2] de l'atome A d'espèce X.

Le terme coulombien Ce terme décrit l'interaction entre des charges ayant des distributions sphériques et dont les centres sont situés à une distance R_{AB} l'un de l'autre. Il est donné par la sommation des interactions coulombiennes entre les ions du système :

1. L'électronégativité d'un atome est une grandeur physique qui caractérise sa capacité à attirer les électrons lors de la formation d'une liaison chimique avec un autre atome.
2. La dureté est associée à la répulsion coulombienne entre deux électrons occupant la même orbitale.

$$\mathcal{U}_{coul} = \frac{1}{2} \sum_{A,B=1,B\neq A}^{N_n} Q_A Q_B J_{AB}(R_{AB}) \tag{2.44}$$

Le terme $J_{AB}(R_{AB})$ correspond à l'intégrale coulombienne, qui est une fonction de la distance entre les ions A et B. Il est donné par la relation suivante :

$$J_{AB}(R_{AB}) = \int |\psi_A(r_A)|^2 \frac{1}{|\vec{r}_A - \vec{r}_B - \vec{R}_{AB}|} |\psi_B(r_B)|^2 dr_A dr_B \tag{2.45}$$

La fonction $\psi_A(r_A)$ est un orbitale de type Slater et elle représente la distribution de charge de l'ion A :

$$\psi_A(r_A) = K_n r_A^{n-1} exp\bigg(- \frac{(2n+1) r_A}{4 R_X^{eff}} \bigg) \tag{2.46}$$

où n est le nombre quantique principal de l'orbitale de valence de l'atome A, K_n est une constante de normalisation, r_A est la distance de l'électron au noyau atomique A et R_X^{eff} est le rayon effectif de l'atome A d'espèce X, un paramètre ajustable dont la valeur est comprise entre la valeur du rayon ionique et celle du rayon de covalence de l'atome A.

Le terme covalent Ce terme a été obtenu par le formalisme du réseau alterné en liaisons fortes approché au second moment. Il est décrit de la manière suivante :

$$\mathcal{U}_{cov} = - \sum_{A=U,O} \Bigg\{ \sum_{\substack{B=O,U \\ R_{AB}<R_c}} \eta_A^X (\omega \xi^0)^2 exp\bigg[- 2q \bigg(\frac{R_{AB}}{R_0} - 1 \bigg) \bigg] \Delta Q_A \Bigg\}^{\frac{1}{2}} \tag{2.47}$$

La sommation se fait uniquement entre des paires d'uranium-oxygène. Le paramètre ξ^0 est lié à l'intégrale de saut entre les sites oxygène et uranium, $\omega = 1,2071$, η_A^X est la stoechiométrie de l'ion A d'espèce X ($\eta^O = 2$ et $\eta^U = 1$), R_{AB} est la distance entre les ions d'uranium et d'oxygène, R_c est le rayon de coupure de l'interaction covalente et ΔQ_A est donné par la relation :

$$\Delta Q_A = (|Q_F^X| - |Q_A|) \bigg[\frac{12}{\eta_A^X} - (|Q_F^X| - |Q_A|) \bigg] \tag{2.48}$$

où Q_A et Q_F^X sont respectivement la charge réelle et la charge formelle de l'ion A d'espèce X. En fonction de l'espèce, O ou U, on a : $Q_F^O = -2$ et $Q_F^U = 4$.

Le terme répulsif Ce terme décrit la somme des interactions répulsives oxygène-uranium et oxygène-oxygène. Il ne contient pas d'une manière explicite les interactions répulsives uranium-uranium. Il est exprimé de la manière suivante :

$$\mathcal{U}_{rep} = \mathcal{U}_{rep}^{UO} + \mathcal{U}_{rep}^{OO} \tag{2.49}$$

où chaque type d'interaction répulsive est décrite par une fonction de Born-Mayer :

$$\mathcal{U}_{rep}^{UO} = \sum_{A=U,O} \sum_{\substack{B=O,U \\ R_{AB}<R_c}} a \exp \bigg[- p \bigg(\frac{R_{AB}}{R_0} - 1 \bigg) \bigg] \tag{2.50}$$

Paramètre U-O		Paramètre O-O			U	O
a(eV)	0,2618	b (eV)	580,44	χ_0^X	2,217	6,570
p	8,9121	ρ (Å)	0,354	J_0^X	8,233	10,220
ξ^0	0,5715	R_0 (Å)	2,362	R_X^{eff}	0,776	0,53
q	2,074	R_c (Å)	8,5			

TABLEAU 2.1 – Paramètres du potentiel SMTB-Q.

et

$$\mathcal{U}_{rep}^{OO} = \frac{1}{2} \sum_{A=O} \sum_{\substack{B=O \\ R_{AB}<R_c \\ B\neq A}} b \exp\left(- \frac{R_{AB}}{\rho} \right) \tag{2.51}$$

Lors d'une minimisation d'énergie potentielle ou d'une simulation de dynamique moléculaire employant le potentiel SMTB-Q, les charges de tous les atomes d'un système sont calculées pour chaque configuration atomique à l'aide d'un algorithme d'équilibration de charges.

Pour une configuration donnée d'un système à N_n ions, l'équilibration des charges est atteinte lorsque toutes les dérivées partielles de l'énergie potentielle du système par rapport aux charges Q_A des atomes sont égales. Cette égalité est exprimée par un système de $N_n - 1$ équations :

$$\left(\frac{\partial \mathcal{U}_{pot}}{\partial Q_1} \right)_{Q_{A\neq 1}} = \left(\frac{\partial \mathcal{U}_{pot}}{\partial Q_2} \right)_{Q_{A\neq 2}} = ... = \left(\frac{\partial \mathcal{U}_{pot}}{\partial Q_{N_n}} \right)_{Q_{A\neq N_n}} \tag{2.52}$$

Si à cet ensemble d'équations, on ajoute la condition de conservation de la charge totale :

$$Q_{tot} = \sum_{A=1}^{N_n} Q_A \tag{2.53}$$

on obtient un système de N_n équations dont la solution permet de déterminer la charge de chaque atome du système en fonction de son environnement. Les systèmes utilisés dans nos calculs sont tous électriquement neutres ($Q_{tot} = 0$).

Le potentiel SMTB-Q fait usage de onze paramètres liés intrinsèquement au type de matériaux étudiés [3]. Ces paramètres sont les suivants : l'électronégativité χ_0^X, la dureté J_0^X, le rayon effectif R_X^{eff}, les constantes de répulsion (U-O) a, p et R_0, la constante de répulsion (O-O)b, le paramètre de saut de site (U-O) ξ^0, ρ, le paramètre de la liaison covalente q et le rayon de coupure de l'interaction covalente R_c.

2.2 Étude des propriétés et du comportement sous contrainte de traction uniaxiale des joints de grains d'UO_2

2.2.1 Modèles pour les systèmes étudiés

Les calculs de cette étude sont effectués en utilisant des conditions limites périodiques 3D. Les motifs des modèles périodiques (Figure 2.3) représentant les structures de joints de grains sont réalisés à l'aide du logiciel ATOMSK [74]. Les joints de grains sont construits à partir d'un monocristal dont la partie supérieure est soumise à une opération de rotation d'un angle θ_1 autour d'un certain axe et la partie inférieure est tournée d'un angle θ_2 autour du même axe, mais dans la direction opposée. Il en résulte un système bicristallin où les monocristaux se rejoignant (au joint de grains) ont un angle de déviation θ ($\theta = \theta_1 + \theta_2$).

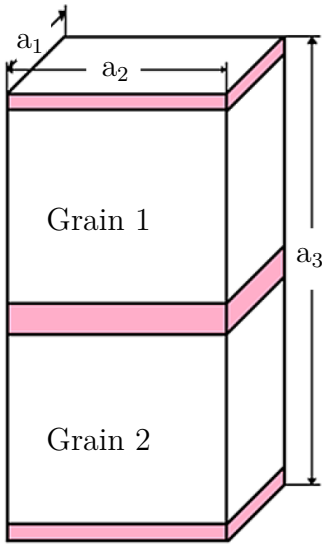


FIGURE 2.3 – Motif du modèle périodique représentant un système de joints de grains. La périodicité impose l'existence de deux joints de grains (rose) dans le système, séparés par un bulk d'UO_2 (blanc). a_1 et a_2 sont les tailles du système le long des axes parallèles au joint de grain ; a_3 est la taille du système le long de l'axe normal au joint de grain.

Un joint de grains peut être caractérisé par le vecteur d'axe de rotation $\hat{e}$, le vecteur perpendiculaire au plan du joint de grains $\hat{e}_{GB}$ et l'angle de déviation θ (Figure 2.4a).

Dans le cas des structures cubiques, les joints de grains sont décrits de manière complète par la notation θ $[l_1, l_2, l_3]$, (k_1, k_2, k_3), (k'_1, k'_2, k'_3), où θ est l'angle de déviation, $[l_1, l_2, l_3]$ est l'ensemble des indices de Miller qui définit l'orientation de l'axe de rotation des monocristaux et les triplets (k_1, k_2, k_3) et (k'_1, k'_2, k'_3) sont les ensembles d'indices de Miller qui caractérisent les facettes des deux monocristaux formant le joint de grains.

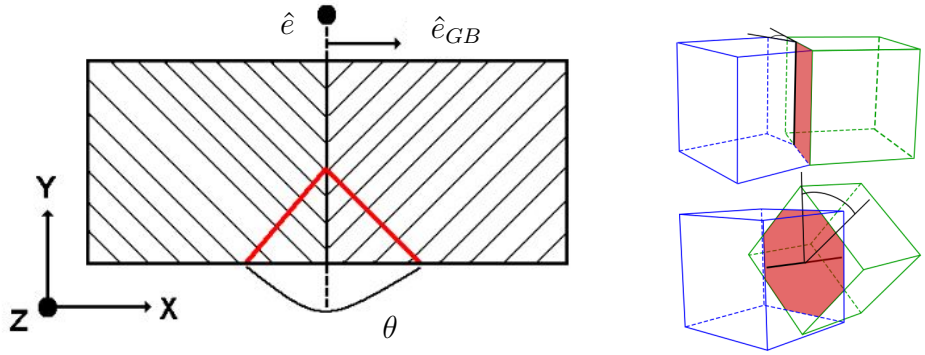


FIGURE 2.4 – (a) Représentation d'un joint de grains avec ses paramètres caractéristiques et (b) schéma illustratif de la rotation de deux monocristaux autour d'un axe (en haut tilt et en bas twist).

Le joint de grains est de type tilt si l'axe de rotation lui est parallèle et de type twist si l'axe de rotation lui est perpendiculaire (Figure 2.4b). Les joints de grains qui n'entrent dans aucun de ces groupes sont de type mixte ou général. Le plan d'un joint de grains de type tilt peut diviser l'angle de déviation θ en deux angles égaux ($\theta_1 = \theta_2$). Dans ce cas particulier, le joint de grains est symétrique et les facettes des deux monocristaux qui le forment sont identiques. Par conséquent, dans ce cas, $k_i = k_i$' (i = 1,2,3) et la formule représentant le joint de grains devient θ $[l_1, l_2, l_3]$, (k_1, k_2, k_3).

La rotation des deux monocristaux, nécessaire pour créer un joint de grains, génère à l'interface des sites atomiques communs aux deux sous-réseaux. Ces sites atomiques communs forment par translation un réseau propre, appelé Coincident Site Lattice (CSL). Pour cette raison, de nombreux auteurs utilisent la notation alternative $[l_1, l_2, l_3]$,(k_1, k_2, k_3) Σn pour les joints de grains, où "Σn" indique la réciproque de la densité des sites coïncidents. C'est cette deuxième notation qui est employée dans la présente étude.

Les résultats des études expérimentales sur la population de joints de grains présentés dans des différentes publications varient selon les échantillons considérés par les auteurs. De ce fait, il est difficile d'établir une population de joints de grains représentative pour l'UO_2 avec les données de la littérature. Néanmoins, plusieurs auteurs [75,76] s'accordent sur la présence systématique, même pour un petit échantillon, des joints de grains de type tilt symétrique Σ3, Σ5, Σ9 et Σ11. Environ 80% des joints de grains sont de type général et sont parmi les moins stables.

Tenant compte de ces résultats expérimentaux, trois joints de grains d'UO_2 de type tilt symétrique sont sélectionnés pour cette étude : [110] (111) Σ3, [001] (310) Σ5 et [100] (520) Σ29. [110] (111) Σ3 est le joint de grains le plus stable dans l'UO_2 selon différentes études théoriques [75–77], tandis que [100] (520) Σ29 est l'un des joints de grains symétriques d'UO_2 les moins stables [76,78]. [001] (310) Σ5 est de stabilité intermédiaire mais relativement commun dans l'UO_2 [75,76]. C'est aussi l'un des joints de grains d'UO_2 les plus étudiés [75,77,79].

Paramètre	Σ3	Σ5	Σ29
θ	70.50°	36.87°	43.60°
a_1 (nm)	2.321	2.188	2.188
a_2 (nm)	10.719	10.379	11.783
a_3 (nm)	15.159	17.298	17.674
N	27648	28800	33408

TABLEAU 2.2 – Caractéristiques des modèles des trois systèmes de joints de grains analysés : θ est l'angle de déviation, a_1, a_2 et a_3 sont les tailles des systèmes (Figure 2.3) et N est le nombre total d'atomes d'uranium et d'oxygène dans le système.

Pour des raisons de simplicité, les trois joints de grains sont souvent désignés dans le texte par Σ3, Σ5 et Σ29. Les caractéristiques les plus importantes de nos modèles de systèmes de joints de grains sont présentées dans le Tableau 2.2.

2.2.2 Propriétés des joints de grains d'UO_2

L'une des propriétés les plus importantes d'un joint de grains est sa stabilité. La grandeur physique permettant de la caractériser (à 0 K) est l'énergie du joint de grains, $\mathcal{E}_{GB}^{\Sigma n}$, qui se calcule à l'aide de l'équation suivante :

$$\mathcal{E}_{GB}^{\Sigma n} = \frac{\mathcal{E}_{GBS} - M\mathcal{E}_{perf}}{2A} \tag{2.54}$$

où $\mathcal{E}_{GBS}$ est l'énergie totale du système de joints de grains formé de M unités UO_2, $\mathcal{E}_{perf}$ est l'énergie d'une unité UO_2 dans le matériau parfait (cristal de fluorite) et A est la surface du joint de grains. La surface A est comptée deux fois car, en raison de la périodicité du modèle, il existe deux joints de grains dans le système (voir la Figure 2.3).

Dans cette étude, les valeurs de $\mathcal{E}_{GB}^{\Sigma n}$ sont déterminées (à 0 K) après une relaxation préliminaire en dynamique moléculaire des systèmes de joints de grains construits avec le logiciel ATOMSK, suivie d'une optimisation à 0 K avec minimisation de l'énergie potentielle. Les températures élevées utilisées dans la relaxation de la dynamique moléculaire intensifient les mouvements atomiques et accélèrent leur réorganisation, ce qui donne des structures de joints de grains plus stables que celles générées avec ATOMSK. Les relaxations de dynamique moléculaire sont effectuées dans l'ensemble NPT et consistent en trois étapes : 60 ps de simulation à 1000 K, suivies de 60 ps supplémentaires à 500 K, 1000 K ou 1500 K et enfin 20 ps de simulation à basse température (20 K) afin de "refroidir" les systèmes et de les préparer pour l'optimisation à 0 K. Au cours des trois étapes de relaxation de la dynamique moléculaire, les systèmes ne sont soumis à aucune contrainte mécanique (les composantes du tenseur de pression sont maintenues à zéro).

Les valeurs des énergies des joints de grains relaxés ainsi obtenues sont données dans le Tableau 2.3. A titre de comparaison, les moyennes des valeurs obtenues dans des études antérieures à 0 K ou 300 K en utilisant différents potentiels semi-empiriques à charges

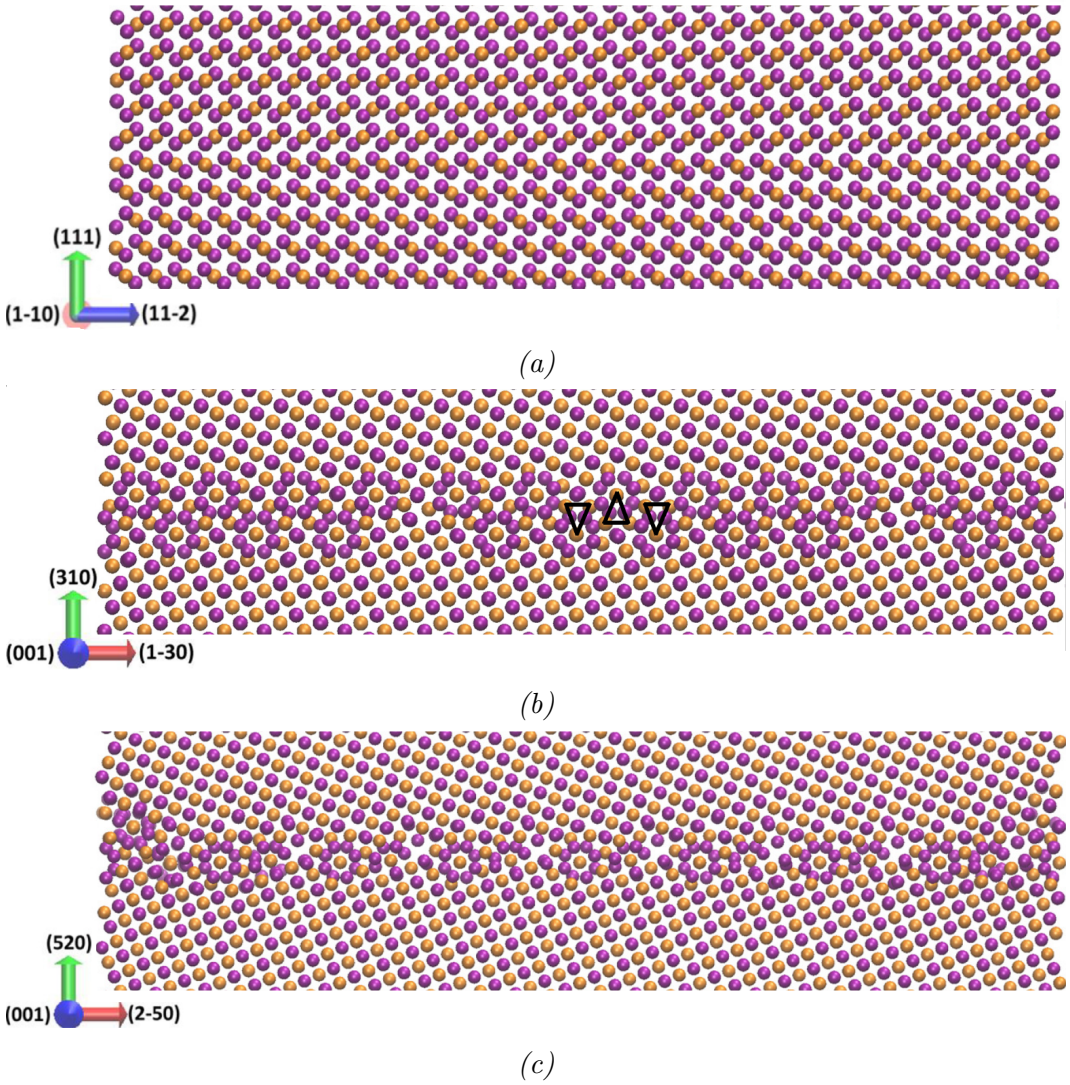


FIGURE 2.5 – Exemples de joints de grains Σ3 (a), Σ5 (b) et Σ29 (c) relaxés en dynamique moléculaire. Les motifs formés par les atomes d'uranium au niveau du joint de grains Σ5 sont indiqués par des triangles noirs. Les atomes d'uranium sont représentés par des sphères orange et les atomes d'oxygène par des sphères violettes.

	Σ3	Σ5	Σ29
$\mathcal{E}_{GB}^{\Sigma n}$ (J/m^2)	1.04	1.77 - 1.79	2.20 - 2.23

TABLEAU 2.3 – Valeurs des énergies de joints de grains obtenues après relaxation en dynamique moléculaire (MD) à trois températures intermédiaires différentes, suivies d'une optimisation à 0K.

fixes [76, 77, 80] sont : 1,17±0,31 J/m^2 pour Σ3, 1,81±0,67 J/m^2 pour Σ5 et 1,75±0,12 J/m^2 pour Σ29. Les résultats du Tableau 2.3 montrent que le joint de grains Σ3 est le plus stable, suivi de Σ5 puis de Σ29. Bien que partiellement caché par les valeurs moyennes données ci-dessus, le même ordre de stabilité a été prédit par les études précédentes à

chaque fois que le même potentiel a été utilisé pour calculer les énergies des trois joints de grains [76, 80].

La relaxation du système Σ3 n'apporte aucune modification structurale significative par rapport à la structure non relaxée, générée avec ATOMSK (voir l'exemple de la Figure 2.5a). Dans le joint de grains Σ5 relaxé, les atomes d'uranium présentent des motifs triangulaires (illustrés sur la Figure 2.5b) résultant de la translation des deux monocristaux formant le joint de grains. Cette disposition locale spécifique des atomes d'uranium dans un joint de grains Σ5 est également prédite par certains potentiels à charges fixes [81, 82] et a été observée expérimentalement dans une étude récente [81] sur des bicristaux d'UO_2 préparés par une méthode de "diffusion-bonding" à haute température. Les joints de grains Σ5 et Σ29 relaxés présentent tous une réorganisation du sous-réseau d'oxygène avec la formation de motifs en forme d'anneaux (exemples dans la Figure 2.5b et c). Bien que l'apparition de ces motifs ait déjà été prédite pour le joint de grains Σ5 relaxé en utilisant des potentiels à charges fixes [75, 82], à notre connaissance, aucune confirmation expérimentale n'est disponible.
Les Figures 2.6 et 2.7 montrent, pour chaque type d'atome (U ou O), les profils d'énergie potentielle par atome (U_p^U et U_p^O) et de charge atomique (Q^U et Q^O) le long de la direction normale au joint de grains, pour les trois structures de joint de grains étudiées. Ces profils sont obtenus en effectuant la moyenne sur 10^3 configurations échantillonnées à partir de simulations de dynamique moléculaire effectuées dans l'ensemble NVT à 500 K sur les systèmes relaxés correspondants.

JdG	Épaisseur (nm)	U_p^{gb} (eV/at)	U_p^b (eV/at)
Σ3	1.3	-7.35	-7.40
Σ5	2.4	-7.35	-7.41
Σ29	2.1	-7.33	-7.41

TABLEAU 2.4 – Épaisseur des trois joints de grains et énergies potentielles moyennes par atome aux joints de grains U_p^{gb} et dans le bulk U_p^b.

Aux joints de grains, l'énergie potentielle par atome et les charges atomiques s'écartent de leurs valeurs globales. Cet écart permet d'estimer l'épaisseur des régions de joints de grains, de l'ordre de 2 nm (voir Tableau 2.4). Cette valeur relativement faible valide les modèles adoptés, dans le sens où les tailles des systèmes le long de l'axe y (15 à 18 nm) sont suffisantes pour éviter toute interaction entre les joints de grains et leurs images périodiques.

Les profils d'énergie potentielle par atome de la Figure 2.6 montrent une légère stabilisation du sous-réseau d'uranium aux joints de grains par rapport au bulk [3]. Cette stabilisation est très probablement un artefact dû à l'absence d'un terme répulsif UU dans le potentiel interatomique (voir la section 2.1.5). Une autre étude, utilisant un potentiel

3. Le bulk ou phase bulk correspond au volume du cristal.

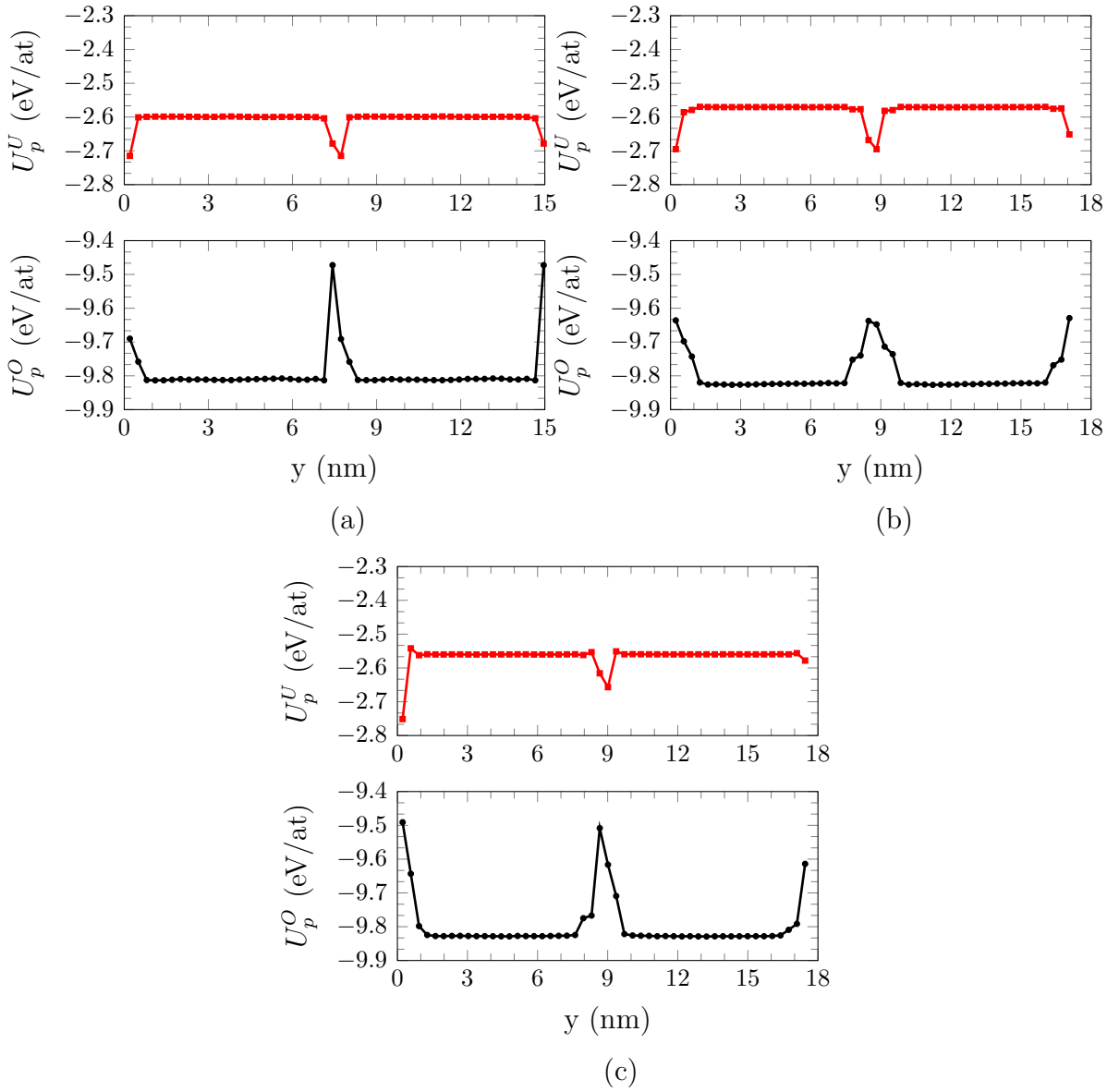


FIGURE 2.6 – Profils d'énergie potentielle par atome pour les atomes d'uranium (U_p^U) et d'oxygène (U_p^O) le long des axes normaux aux joints de grains pour les trois systèmes de joints de grains relaxés : (a) Σ3, (b) Σ5 et (c) Σ29.

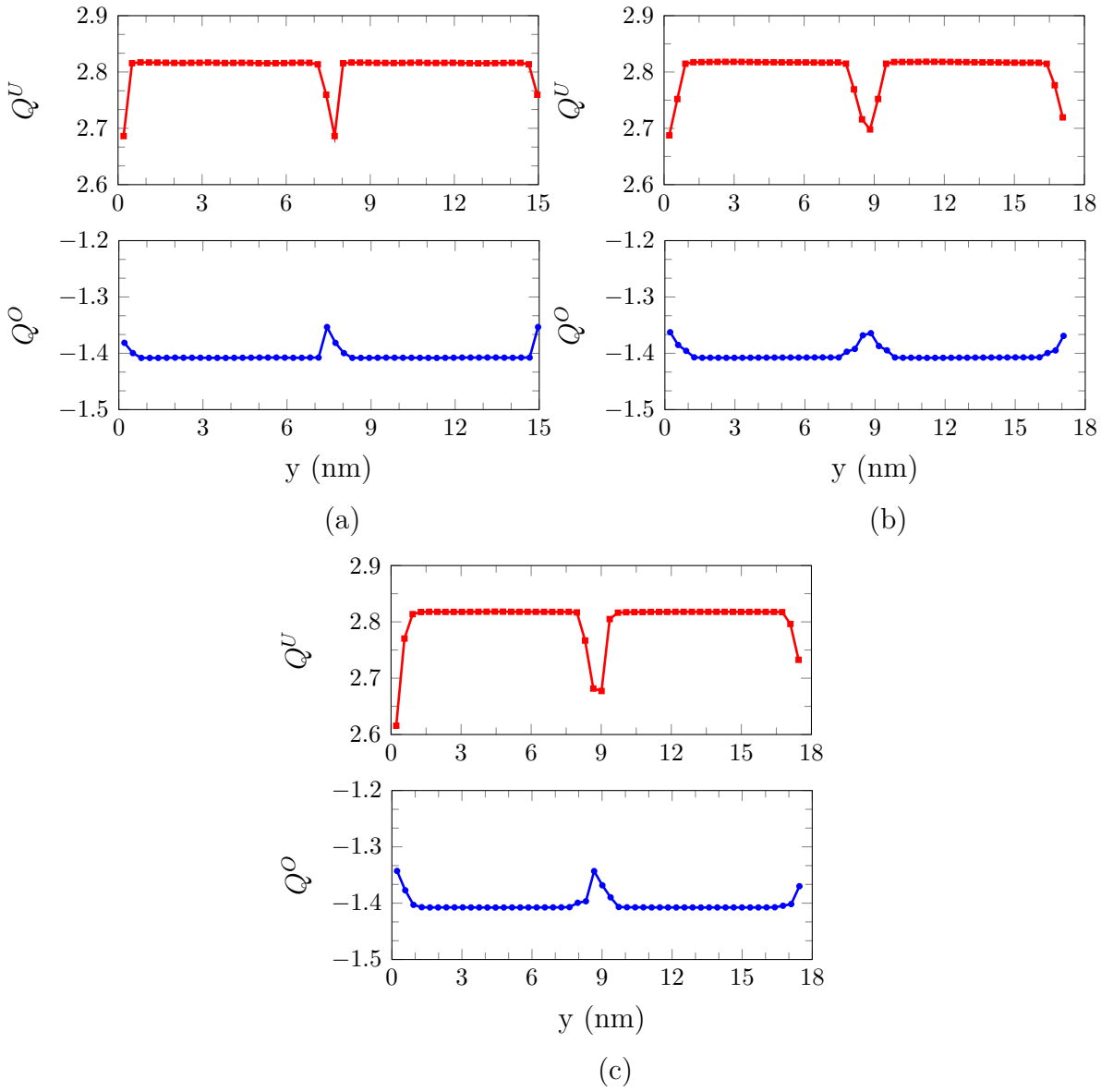


FIGURE 2.7 – Profils de charges atomiques pour les atomes d'uranium (Q^U) et d'oxygène (Q^O) le long des axes normaux aux joints de grains pour les trois systèmes de joints de grains relaxés : (a) Σ3, (b) Σ5 et (c) Σ29.

interatomique à charges fixes avec un terme répulsif UU [79], prédit une déstabilisation du sous-réseau d'uranium dans la région des joints de grains. La légère stabilisation du sous-réseau d'uranium de la présente étude est compensée par une déstabilisation locale relativement forte du sous-réseau d'oxygène (Figure 2.6) qui garantit que les régions des joints de grains, qui contiennent environ deux atomes d'oxygène pour un atome d'uranium, seraient globalement moins stables que les autres régions du système. C'est effectivement le cas, comme le montrent les valeurs moyennes de l'énergie par atome (U_p^{gb} et U_p^b) du Tableau 2.4. Ces énergies par atome ont été calculées comme le rapport entre l'énergie potentielle totale d'une région du système (bulk ou joint de grains) et le nombre d'atomes contenus dans cette région, indépendamment du type d'atome.

Les profils de charge atomique (Figure 2.7) montrent une diminution de 4 à 5% (en valeur absolue) des charges des atomes d'uranium et d'oxygène aux joints de grains par rapport au bulk. Les valeurs des charges atomiques dans l'UO_2 bulk calculées avec SMTB-Q sont $Q^U = 2.82$ et $Q^O = -1.41$, en très bon accord avec les charges Mulliken de l'uranium et de l'oxygène dans l'UO_2 fluorite obtenues à l'aide de méthodes quantiques hybrides Hartree-Fock DFT [83].

La faible variation des charges atomiques aux joints de grains pourrait constituer l'une des raisons pour lesquelles les prédictions de certains potentiels à charges fixes et celles de SMTB-Q concernant la structure et la stabilité des trois joints de grains relaxés sont similaires [75, 76, 80–82].

2.2.3 Comportement sous contrainte de traction uniaxiale : analyse structurale

Certaines simulations de dynamique moléculaire d'essais de traction uniaxiale réalisés sur des systèmes de joints de grains d'UO_2 [77, 84, 85] ont montré la formation de phases bulk telles que le rutile et la scrutinyite à la pointe de fissures (Figure 2.8), les joints de grains jouant le rôle de centres de nucléation [84, 85]. Au cours des essais de traction, à mesure que la déformation du système progresse, des quantités croissantes de nouvelles phases bulk sont formées, ce qui réduit la contrainte uniaxiale dans le système. En conséquence, les courbes contrainte-déformation présentent un plateau indiquant un comportement plastique. L'énergie dépensée pour la transition de phase contribue à augmenter, parfois considérablement, le travail de déformation. D'autres simulations d'essais de traction ne prévoient aucune transition de phase. Dans ce cas, les joints de grains présentent un comportement fragile à la rupture. La formation ou non de nouvelles phases bulk, et donc le comportement des joints de grains à la rupture prédit par les différentes simulations de dynamique moléculaire, dépendent du potentiel interatomique utilisé. Les simulations citées ci-dessus ont été réalisées à l'aide de potentiels de paires interatomiques à charges fixes, dont aucun ne prend en compte de manière dynamique l'évolution de la charge atomique accompagnant la transition de phase. Un aspect important du processus n'est donc pas pris en compte, puisque la modification de la distribution des charges atomiques a un impact sur les barrières énergétiques que le système doit franchir ou sur la force des liaisons iono-covalentes U-O, donc sur les stabilités relatives des différentes

phases de l'UO_2 impliquées. Les prédictions très différentes des potentiels à charges fixes mentionnés ci-dessus ne sont attribuables qu'à leurs divers paramètres et formes analytiques et pas au contenu physique qu'ils portent, qui est pratiquement le même. Par conséquent, pour décider quel potentiel prédit un résultat plus proche de la réalité, une référence théorique ou expérimentale est nécessaire. La référence théorique habituelle, les calculs quantiques, fait défaut car, à notre connaissance, aucune simulation d'essais de traction n'a été réalisée sur les joints de grains de l'UO_2 à l'aide de ces méthodes. Cependant, des études expérimentales récentes [5], réalisées sur des échantillons bicristallins de taille micrométrique à 300 K, où des contraintes de traction maximales supérieures à 3 GPa ont été atteintes, ont montré un comportement fragile à la rupture pour les joints de grains de l'UO_2. Cela prouve indirectement l'absence de transitions de phase ou d'autres phénomènes liés à la plasticité aux joints de grains sous une contrainte de traction jusqu'à la rupture.

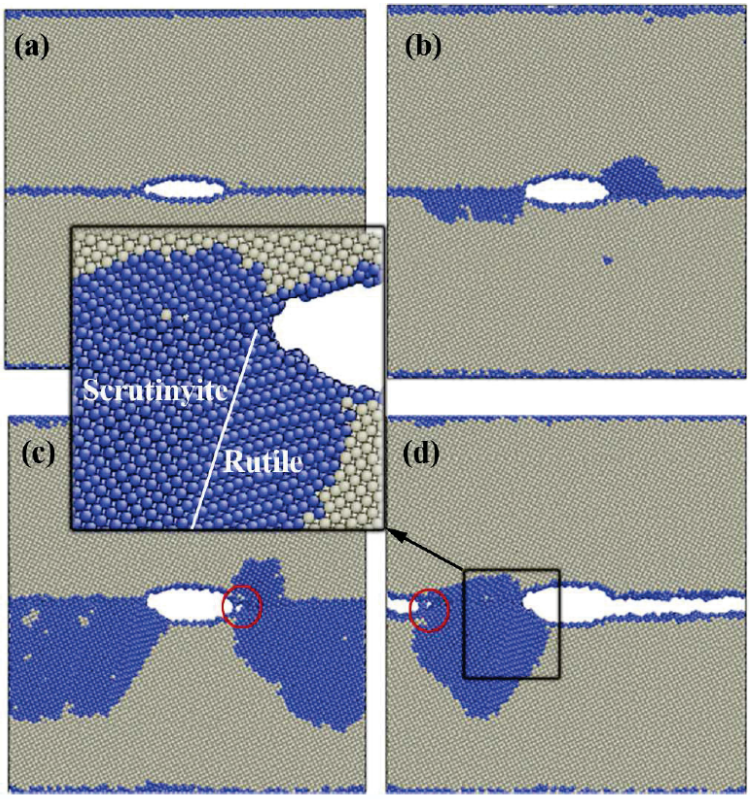


FIGURE 2.8 – Exemple de transitions de phase fluorite-scrutinyte et fluorite-rutile ayant lieu à la pointe de fissures prédites par une simulation de traction à 900 K sur le joint de grains $\Sigma 5$ *: a)* $\varepsilon = 0{,}0$ *; b)* $\varepsilon = 0{,}04$ *; c)* $\varepsilon = 0{,}06$ *; d)* $\varepsilon = 0{,}08$ *[86]*

Alors que la formation de rutile ou de scrutinyite lors de tests de traction uniaxiale n'est pas confirmée expérimentalement et qu'aucun consensus n'a été atteint par les différentes études atomistiques, la stabilisation de ces deux polymorphes d'UO_2 par rapport à la fluorite sous des contraintes de traction isotropes relativement élevées (pressions négatives) a été unanimement prédite par différentes études avec des potentiels semi-empiriques ou

Méthode/Potentiel ou Fonctionnelle	P_{FR} (GPa)	P_{FS} (GPa)	Transition de phase
$NQ/Basak$ [87]	-1.7	-1.7	M [15, 84, 85]
$NQ/Arima$ [88]	-8.3	-9.6	F [88]
$NQ/Potashnikov$ [88]	-10.6	-12.1	N [88]
$NQ/Cooper$ [88]	-6.8	-8.0	M [88]
$NQ/Yakub$ [87]	-1.9	-1.4	N [77]
$NQ/Morelon$ [87]	-9.0	-10.0	-
$NQ/SMTB-Q$ [72]	-14.0	-14.0	-
$NQ/SMTB-Q$ (Cette étude)	-12.5	-13.5	N (Cette étude)
$DFT/GGA(PBE)$ [87]	-11.0	-10.0	-
$DFT/GGA+U(PBE)$ [89]	-7.0	-	-

TABLEAU 2.5 – Pressions de transition fluorite-rutile (P_{FR}) et fluorite-scrutinyite (P_{FS}) calculées à 0 K en utilisant des méthodes DFT quantiques (DFT) ou des méthodes non quantiques (NQ) avec différents potentiels semi-empiriques. Dans la dernière colonne, il est précisé si le potentiel prédit une transition de phase massive (M), faible (F) ou nulle (N) sous une charge de traction uniaxiale..

DFT quantiques [72, 87–89]. Il a également été démontré que la pression sous laquelle le rutile devient plus stable que la fluorite (pression de transition de phase) n'est pas affectée par la température jusqu'à au moins 1800 K [89].

Le Tableau 2.5 résume les pressions de transition de phase calculées dans différentes études atomistiques. Les pressions de transition de phase obtenues à l'aide de potentiels à charges fixes, qui figurent dans les six premières lignes du tableau, couvrent une plage assez large, allant de -12 GPa à -2 GPa. Celles obtenues par les méthodes DFT sont plus proches de la limite inférieure de cette plage, ce qui indique que le rutile ou la scrutinyite se stabiliseraient à des contraintes de traction plus élevées que celles prédites par certains potentiels à charges fixes. La même tendance est suggérée par les valeurs SMTB-Q, déterminées dans la présente étude et dans un travail antérieur (avec un ensemble différent de paramètres) [72] en comparant à 0 K les énergies libres de Gibbs des polymorphes UO_2 en fonction de la pression (Figure 2.9).

En général, les potentiels prédisant des pressions de transition de phase faibles à moyennes (en valeur absolue) entre le fluorite et le rutile et entre le fluorite et la scrutinyite prédisent également une transition de phase massive lors de simulations d'essais de traction uniaxiale sur des monocristaux ou des bicristaux d'UO_2 (voir le Tableau 2.5). Cependant, ce n'est pas toujours le cas. Les pressions de transition de phase calculées à l'aide du potentiel de Yakub [90] sont très faibles (en valeur absolue), mais les simulations d'essais de traction uniaxiale réalisées avec ce potentiel n'ont prédit aucune transition de phase [77]. Ce retard de transition de phase lors des essais de traction est très probablement dû au franchissement des barrières énergétiques associées à la formation des

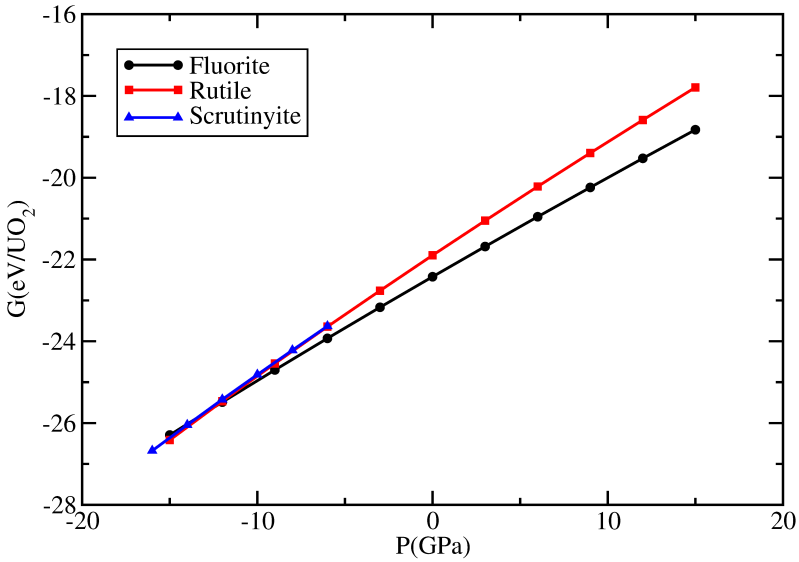


FIGURE 2.9 – Variation de l'énergie libre de Gibbs en fonction de la pression calculée dans la présente étude à 0 K pour les trois polymorphes d'UO_2 : fluorite, rutile et scrutinyite.

interfaces fluorite/rutile et fluorite/scrutinyite.
Le potentiel SMTB-Q est capable de décrire l'évolution de la distribution des charges atomiques au cours d'une transition de phase avec son impact sur la cinétique (barrières énergétiques) et la thermodynamique (stabilités relatives des phases) du processus. Par conséquent, ce potentiel donnerait, du moins en principe, une description plus précise des modifications structurelles qui se produisent près des joints de grains d'UO_2 sous l'effet de fortes contraintes de traction. C'est la raison pour laquelle ces phénomènes sont étudiés ici par le biais de simulations de dynamique moléculaire d'essais de traction uniaxiale à l'aide du potentiel SMTB-Q. Les calculs sont effectués à cinq températures : 300 K, 500 K, 1000 K, 1500 K et 1750 K. Dans ces simulations, une déformation graduelle est imposée le long de la direction (ici y) normale au joint de grains jusqu'à la rupture des systèmes. Pendant ce temps, les structures sont relaxées à une contrainte nulle le long des directions x et z en utilisant la dynamique moléculaire dans l'ensemble NPT. Afin de maintenir des temps de calcul raisonnables, un taux de déformation très élevé de 10^8 s^{-1} est imposé aux systèmes.

Une méthode permettant de suivre les évolutions structurales des systèmes au cours des essais de traction est l'analyse des voisins communs (Common Neighbor Analysis, CNA). Cette méthode permet de déterminer les atomes d'uranium fcc et non-fcc et la variation de leurs proportions au cours de l'essai. Les atomes d'uranium de type fcc sont ceux qui caractérisent les régions du système ayant la structure fluorite (structure standard pour le bulk d'UO_2) tandis que les atomes d'uranium non-fcc sont caractéristiques des régions

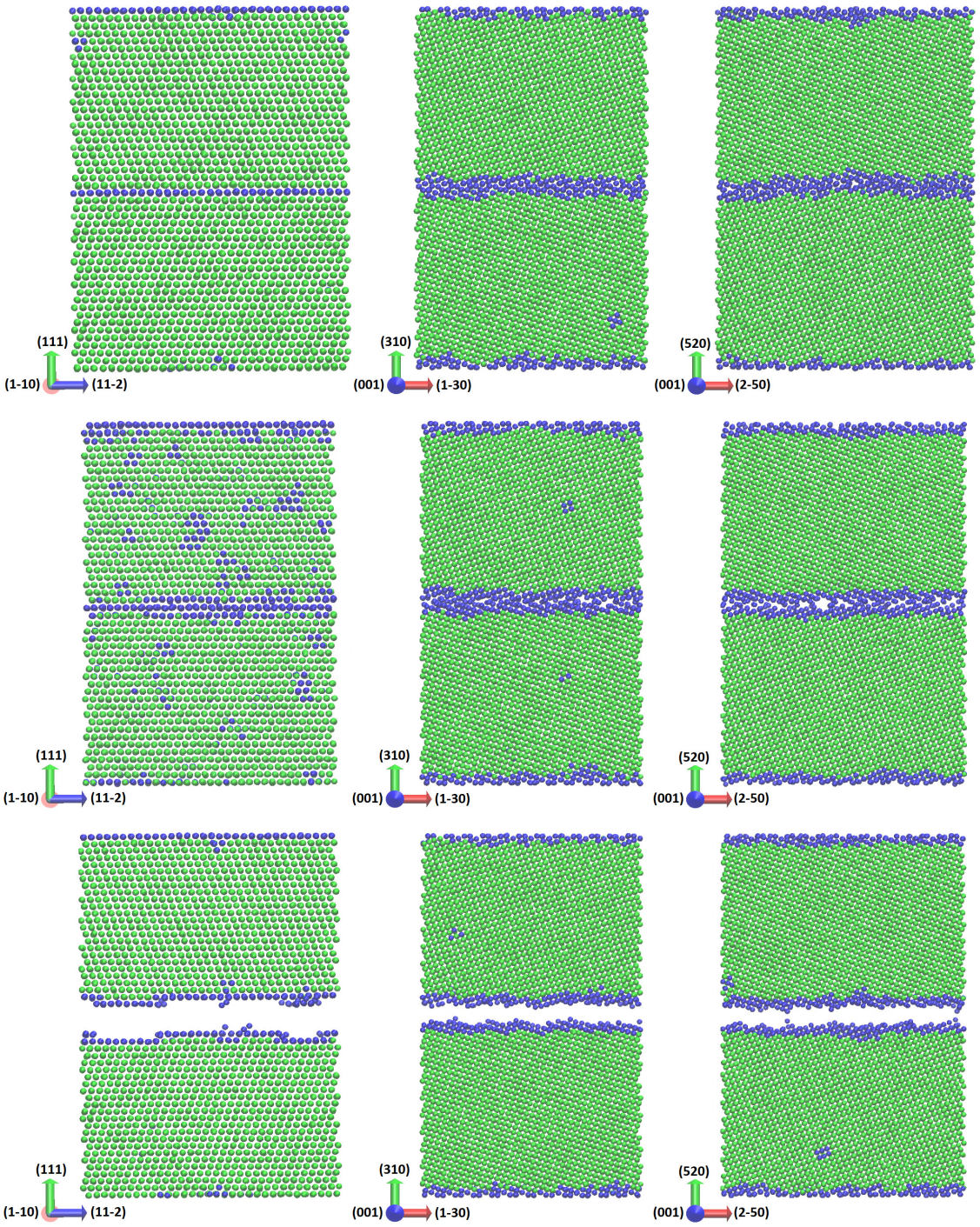


FIGURE 2.10 – Exemples de distributions des atomes d'uranium non-fcc dans les configurations initiales non déformées (première ligne), intermédiaires (deuxième ligne) et finales fracturées (troisième ligne) des trois systèmes de joints de grains : Σ3 (première colonne), Σ5 (deuxième colonne) et Σ29 (troisième colonne). Les configurations sont échantillonnées à partir de simulations à 1750 K. Seuls les atomes d'uranium sont affichés.

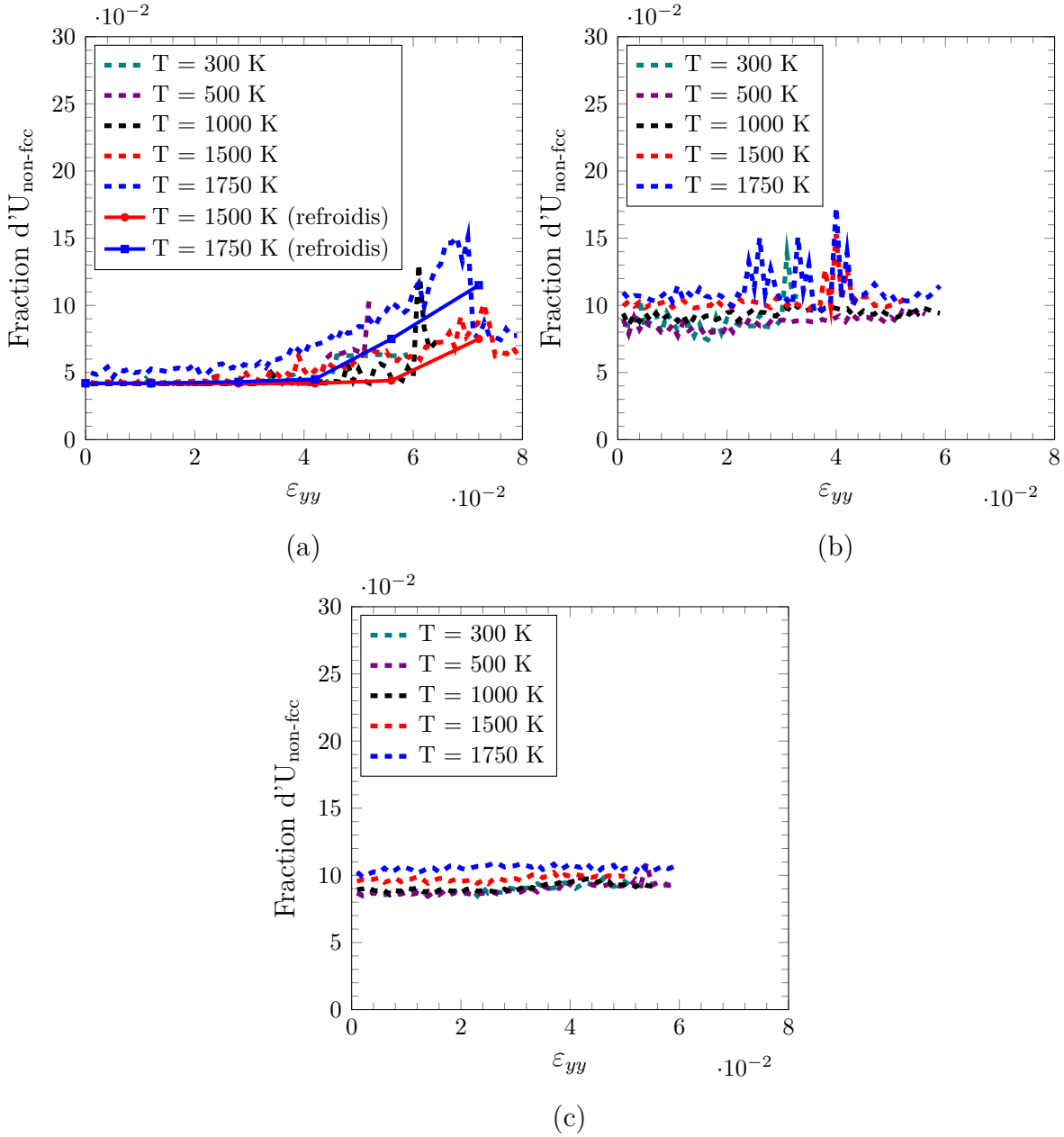


FIGURE 2.11 – Variation de la fraction d'atomes d'uranium non-fcc au cours des essais de traction uniaxiale à différentes températures et à une vitesse de déformation de 10^8 s^{-1} *: (a)* $\Sigma 3$*, (b)* $\Sigma 5$ *et (c)* $\Sigma 29$*.*

où l'arrangement fcc est perturbé ou inexistant : c'est le cas de nouvelles phases (rutile ou scrutinyite), de dislocations ou d'interfaces (surfaces et joints de grains). Ce type d'analyse a déjà été utilisé avec succès par d'autres auteurs sur l'UO_2 [15,77,84,85]. L'analyse CNA est réalisée ici pour tous les systèmes étudiés, sur des configurations échantillonnées à différents moments des simulations d'essais de traction. Les configurations analysées sont échantillonnées directement à partir de la simulation de l'essai de traction, sans trempe intermédiaire à 0 K, comme celle employée par d'autres auteurs, afin de ne pas produire de rupture prématurée des systèmes à forte déformation imposée (initiée par la contraction thermique).

L'analyse CNA montre que les atomes d'uranium non-fcc sont presque entièrement situés aux joints de grains (Figure 2.10), qui constituent également les zones des systèmes où les fissures se forment (deuxième ligne de la Figure 2.10) et se propagent jusqu'à la rupture (troisième ligne de la Figure 2.10). Tous les atomes d'uranium non-fcc situés dans le bulk et certains de ceux situés aux joints de grains sont dus à des fluctuations thermiques locales de la signature CNA (bruit thermique) qui, en l'absence de trempe préalable, n'ont pas été éliminées. L'impact du bruit thermique sur la signature CNA, plus prononcé à des températures élevées (1500 K et 1750 K) pour tous les systèmes (Figure 2.11), est plus évident dans le cas de $\Sigma 3$ (Figure 2.11a). En éliminant partiellement le bruit thermique des différentes configurations à haute température (1500 K et 1750 K) des systèmes $\Sigma 3$, en les "refroidissant" à 1000 K tout en préservant la déformation, les atomes d'uranium non-fcc disparaissent du bulk et leur fraction diminue (Figure 2.11a).

L'impact du bruit thermique sur la signature CNA mis à part, la fraction d'atomes d'uranium non-fcc ne varie pas de manière significative au cours des essais de traction uniaxiale et reste faible, de l'ordre de 0,1 ou moins (Figure 2.11). Aucune émission de dislocation ou formation de nouvelle phase n'est observée aux joints de grains ou dans les zones de bulk de nos systèmes. Sur la base de ces résultats et dans les limites de nos méthodes et modèles de simulation (taux de déformation très élevé, absence de dislocations dans les structures initiales et taille relativement petite des systèmes), un comportement fragile à la rupture peut être prédit pour les trois joints de grains de l'UO_2 jusqu'à 1750 K.

2.2.4 Comportement sous contrainte de traction uniaxiale : analyse thermodynamique

Tous les systèmes soumis à une charge de traction uniaxiale analysés dans cette étude se rompent le long des joints de grains qui, comme le montre le section 2.2.2, sont leurs régions les moins stables. Dans le même temps, les régions de bulk situées entre les joints de grains, où aucune source de plasticité n'a été identifiée (voir le chapitre précédent), affichent un comportement élastique au cours des essais. Les systèmes de joints de grains étudiés sont donc constitués de sous-systèmes subissant des déformations réversibles pendant les essais de traction (les régions de bulk) et de sous-systèmes (les régions de joints de grains) qui, en raison des processus liés à la rupture qui ont lieu localement, subissent des déformations irréversibles. Par conséquent, les systèmes de joints de grains ont globalement un comportement irréversible.

La déformation réversible d'un système lors d'une charge de traction le long d'un axe (y dans notre cas) à une température donnée peut être caractérisée en utilisant comme variables d'état la température T et la composante $V_0\varepsilon_{yy}$ du tenseur de déformation $V_0\underline{\underline{\varepsilon}}$ (V_0 est le volume du système initial non déformé). Le potentiel thermodynamique (énergie libre) $\mathcal{F}$, associé à cet ensemble de variables, est la transformée de Legendre de l'énergie interne U_e par rapport à l'entropie S du système [91] :

$$\mathcal{F} = \mathcal{F}(T, V_0\varepsilon_{yy}) = U_e - TS \tag{2.55}$$

La différentielle de $\mathcal{F}$ est :

$$d\mathcal{F} = -SdT + \sigma_{yy}V_0 d\varepsilon_{yy} \tag{2.56}$$

où σ_{yy} est la composante yy du tenseur des contraintes.
Comme la température est maintenue constante pendant l'essai de traction ($dT = 0$), la différentielle se simplifie :

$$d\mathcal{F} = \sigma_{yy}V_0 d\varepsilon_{yy} \tag{2.57}$$

En général, lorsqu'un système subit une déformation (qui peut être irréversible), on peut définir, par rapport au milieu extérieur, le travail infinitésimal δW effectué sur le système ou par le système :

$$\delta W = \delta W^{irrev} = \sigma_{yy}^{ext} V_0 d\varepsilon_{yy} \tag{2.58}$$

où σ_{yy}^{ext} est la charge appliquée par l'environnement externe sur le système (charge externe) le long de la direction y et $irrev$ signifie irréversible.

Dans le cas particulier d'une déformation réversible, la charge externe σ_{yy}^{ext} est égale à la composante yy de la contrainte dans le système ($\sigma_{yy}^{ext} = \sigma_{yy}$) et l'équation (2.58) devient identique à (2.57) où $d\mathcal{F} = \delta W = \delta W^{rev}$ (rev signifie réversible).

Le travail de déformation total (réversible ou non) effectué par l'environnement sur le système jusqu'à la rupture au cours d'un essai de traction uniaxiale est calculé en intégrant l'équation (2.58) depuis l'état initial non déformé ($\varepsilon_{yy} = 0$) jusqu'à l'état final de rupture ($\varepsilon_{yy} = \varepsilon^{fr}$) :

$$W = V_0 \int_0^{\varepsilon^{fr}} \sigma_{yy}^{ext} d\varepsilon_{yy} \tag{2.59}$$

La thermodynamique d'un joint de grains soumis à une charge de traction uniaxiale est étudiée ici par le biais de simulations de dynamique moléculaire telles que celles décrites dans le chapitre précédent. Nous nous concentrons sur des sous-systèmes des systèmes $\Sigma 3$, $\Sigma 5$ et $\Sigma 29$ qui comprennent une région de joint de grains (zone rouge de la Figure 2.12) et dont les limites supérieures et inférieures sont situées dans les régions de bulk.

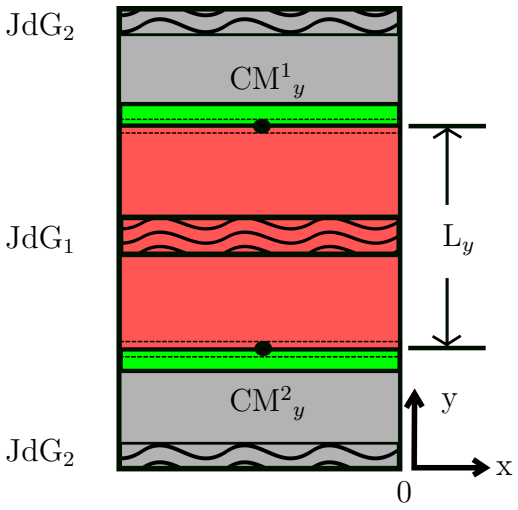


FIGURE 2.12 – Représentation schématique des sous-systèmes des systèmes de joints de grains sélectionnés pour l'analyse thermodynamique (en rouge). Les régions de joints de grains (JdG_1 et JdG_2) sont marquées par des lignes ondulées.

Les sous-systèmes ont la forme d'un parallélépipède rectangle. Leur volume initial V_0 peut donc être exprimé par $V_0 = L_x^0 L_y^0 L_z^0$, où L_x^0, L_y^0 et L_z^0 sont les tailles des sous-systèmes dans l'état initial non déformé.

En introduisant dans l'équation (2.59) l'expression de V_0 et en divisant ses deux côtés par l'aire initiale du joint de grains $L_x^0 L_z^0$, on obtient le travail par unité de surface W^{sub} ($W^{sub} = W/L_x^0 L_z^0$) effectué sur le sous-système au cours d'un essai de traction uniaxiale :

$$W^{sub} = L_y^0 \int_0^{\varepsilon^{fr}} \sigma_{yy}^{ext} d\varepsilon_{yy} = \int_{L_y^0}^{L_y^{fr}} \sigma_{yy}^{ext} dL_y \tag{2.60}$$

La deuxième égalité de (2.60) découle du fait que $L_y^0 d\varepsilon_{yy} = dL_y$.

Pour chaque étape de déformation, la taille d'un sous-système le long de l'axe y L_y est calculée comme la valeur moyenne de la différence entre les coordonnées y des centres de masse de deux régions minces bordant le sous-système : $L_y = \langle CM_y^1 \text{ - } CM_y^2 \rangle$ (moyenne spatiale). La charge de traction σ_{yy}^{ext} appliquée par l'environnement externe sur le sous-système est calculée (en utilisant la formulation des contraintes atomiques de [69]) comme la composante yy de la contrainte dans deux régions stœchiométriques étroites situées aux limites supérieure et inférieure du sous-système (zones vertes de la Figure 2.12). Dans ces régions, qui font partie du bulk, la déformation est réversible et une contrainte peut être rigoureusement définie d'un point de vue thermodynamique.

Une fois que les valeurs de σ_{yy}^{ext} et L_y sont connues à chaque étape de la déformation, l'équation (2.60) permet de calculer le travail total effectué sur le sous-système W^{sub} pendant l'essai de traction uniaxiale entre l'état initial non déformé et l'état final fracturé. Afin de déterminer la part de ce travail qui revient au joint de grains, il convient de noter que la taille du sous-système le long de l'axe y peut être exprimée comme suit :

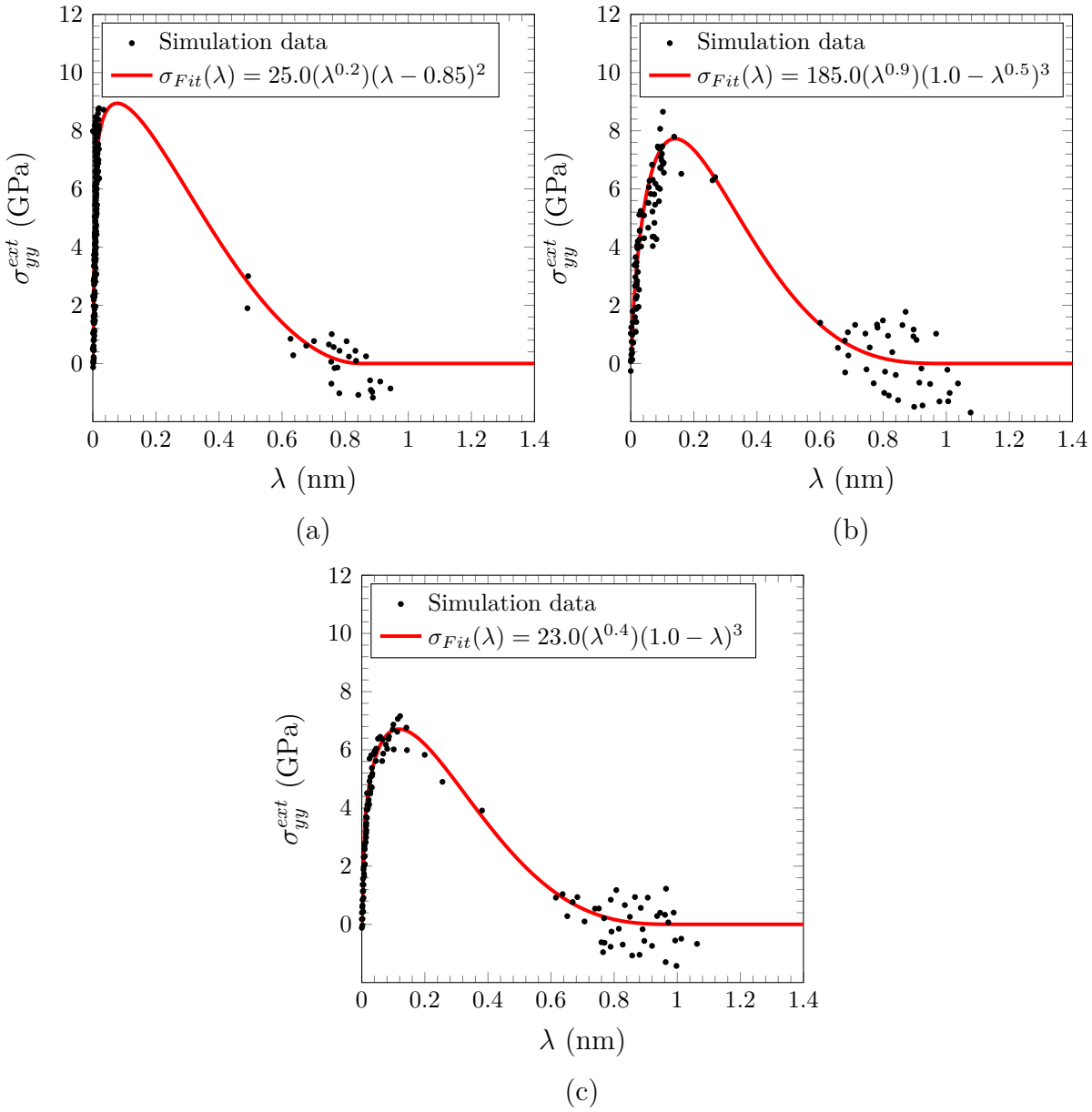


FIGURE 2.13 – Charge externe σ_{yy}^{ext} en fonction de λ (cercles pleins) et fonction d'ajustement correspondante (ligne continue) pour les trois joints de grains à 300 K : (a) $\Sigma 3$, (b) $\Sigma 5$ et (c) $\Sigma 29$.

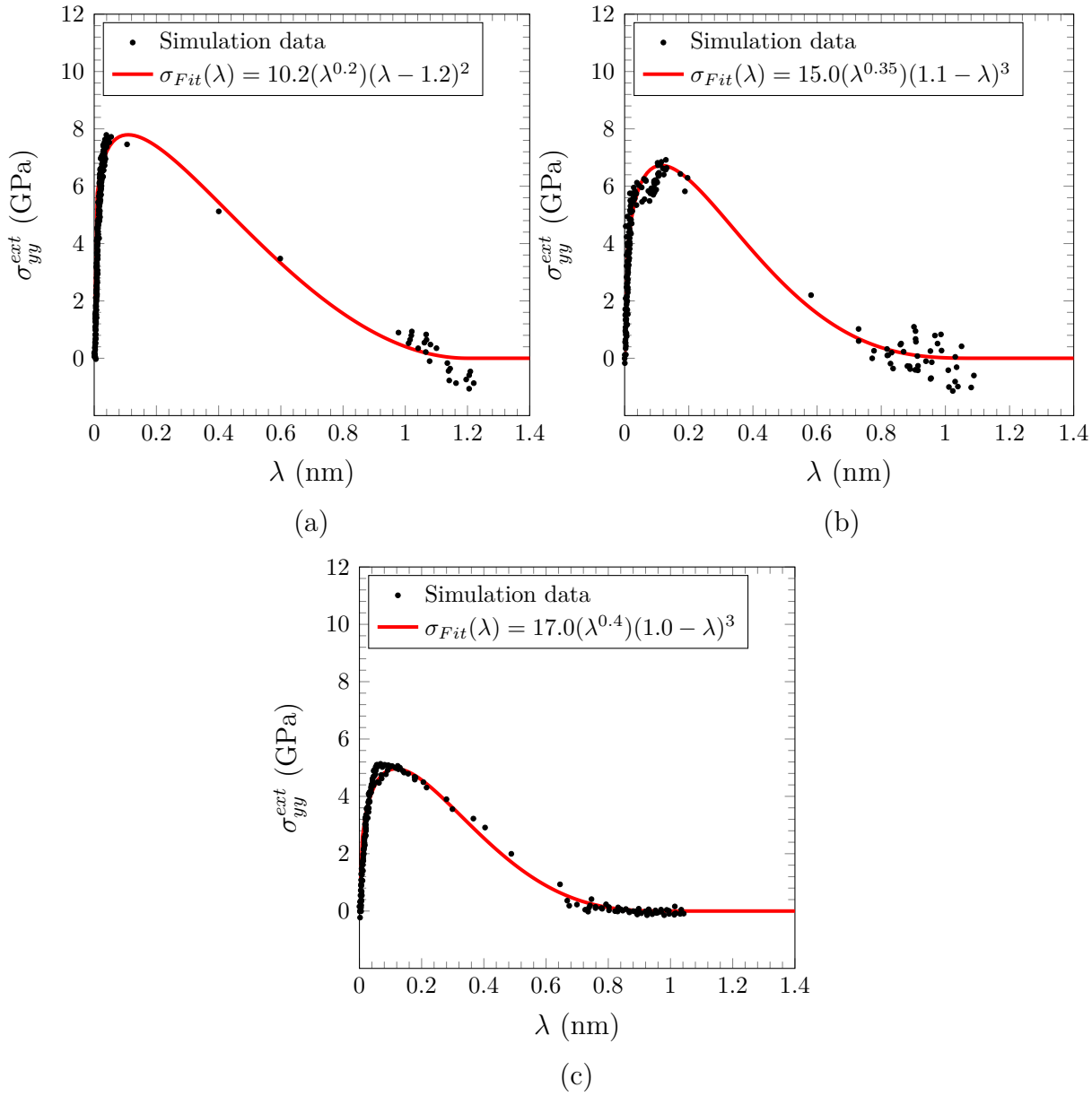


FIGURE 2.14 – Charge externe σ_{yy}^{ext} en fonction de λ (cercles pleins) et fonction d'ajustement correspondante (ligne continue) pour les trois joints de grains à 1750 K : (a) $\Sigma 3$, (b) $\Sigma 5$ et (c) $\Sigma 29$.

$$L_y = \beta_y + \lambda \tag{2.61}$$

où β_y est la taille le long de l'axe y d'un système pur bulk avec le même nombre d'unités UO_2, la même orientation cristallographique et soumis à la même contrainte externe σ_{yy}^{ext} que le sous-système contenant le joint de grains. La variable λ englobe l'excès de longueur dû aux processus liés à la fracture et au joint de grains lui-même, dont les propriétés élastiques sont légèrement différentes de celles du bulk.

Le travail effectué sur le sous-système contenant le joint de grains peut alors être décomposé en une composante de bulk (W^B) et une composante d'excès de joint de grains (W^e) :

$$W^{sub} = W^B + W^e \tag{2.62}$$

où

$$W^B = \int_{\beta_y^0}^{\beta_y^{fr}} \sigma_{yy}^{ext} d\beta_y \tag{2.63}$$

et

$$W^e = \int_{\lambda^0}^{\lambda^{fr}} \sigma_{yy}^{ext} d\lambda \tag{2.64}$$

Les valeurs de σ_{yy}^{ext} et λ sont calculées dans la présente étude pour les trois joints de grains à partir des résultats de simulation d'essai de traction uniaxiale par dynamique moléculaire obtenus à 300 K (température ambiante) et à 1750 K (température à laquelle la rupture des joints de grains est censée se produire dans les combustibles nucléaires [92]). Pour chaque température et système, 2 ou 3 simulations sont réalisées en utilisant différentes configurations initiales. Les valeurs de σ_{yy}^{ext} en fonction de λ sont représentées sur les Figures 2.13 et 2.14. Des valeurs maximales de 5 GPa à 9 GPa sont atteintes par σ_{yy}^{ext} à des λ très faibles (moins de 0,2 nm). Après ces pics, lorsque des processus liés à la fracture se produisent, λ varie considérablement. Cela montre que la quasi-totalité de la contribution à λ provient de la fracture (ouverture de la fissure) et, dans une bien moindre mesure, du joint de grains lui-même (dans la région précédant le pic).

Remarque : concernant les Figures 2.13 et 2.14, les lissages s'arrêtent dès que la contrainte atteint zéro.

2.3 Proposition de paramètres de lois cohésives

Des paramètres des lois de la zone cohésive normale pour les joints de grains d'UO_2 peuvent être déterminés en ajustant une fonction appropriée aux ensembles de points de données de dynamique moléculaire (λ, σ_{yy}^{ext}) représentés dans les Figures 2.13 et 2.14.

Conformément à [93], une loi de puissance à cinq paramètres (a, b, c, d et n), qui s'annule à $\lambda = 0$ et $\lambda = d^{\frac{1}{c}}$, est choisie pour l'ajustement :

$$\sigma_{Fit}(\lambda) = \begin{cases} a\lambda^b(\lambda^c - d)^n & \lambda < d^{\frac{1}{c}} \\ 0 & \lambda \geq d^{\frac{1}{c}} \end{cases} \tag{2.65}$$

Les paramètres des lois de la zone cohésive, à savoir la contrainte maximale σ^{max}, le déplacement de l'ouverture de la fissure à la rupture λ^{fr} et l'énergie de rupture des joints de grains, qui est en fait le travail excédentaire jusqu'à la rupture W^e, sont tous répertoriés dans le Tableau 2.6. σ^{max}_{yy} et λ^{fr} sont obtenus à partir des caractéristiques de la fonction d'ajustement. L'énergie de rupture des joints de grains est donnée par l'équation (2.64) où $\sigma^{ext}_{yy} = \sigma_{Fit}(\lambda)$ et $\lambda^{fr} = d^{\frac{1}{c}}$.

JdG/T(K)	σ^{max}_{yy} (GPa)	λ^{fr} (nm)	W^e (J/m^2)
Σ3/300	8.94	0.85	3.52
Σ5/300	7.73	1.00	3.09
Σ29/300	6.71	1.00	2.75
Σ3/1750	7.79	1.20	4.33
Σ5/1750	6.72	1.10	2.95
Σ29/1750	4.96	1.00	2.03

TABLEAU 2.6 – Les valeurs des paramètres des lois de zones cohésives normales obtenues à 300 K et 1750 K pour les trois joints de grains (JdG) : Σ3, Σ5 et Σ29.

Enfin, nous soulignons que les lois de la zone cohésive normale pour les joints de grains d'UO_2 sont ici construites à partir de données de simulation obtenues à un taux de déformation très élevé (10^8 s^{-1}). Comme elles sont destinées à être utilisées dans de futures simulations à micro-échelle de processus de traction qui sont plusieurs ordres de grandeur plus lents que ceux simulés en dynamique moléculaire, une question se pose quant à l'impact de la vitesse de déformation sur les lois de la zone cohésive. Bien qu'un tel impact soit hautement probable, il pourrait être négligeable (au moins d'un point de vue énergétique) comparé à l'impact sur le comportement du bulk qui pourrait devenir viscoplastique à des vitesses de déformation plus faibles et à des températures élevées. Des simulations à micro-échelle réalisées à des différentes températures et vitesses de chargement en utilisant plusieurs ensembles de paramètres de zone cohésive pourraient jeter une lumière quant à l'impact de la vitesse de chargement sur le comportement du bicristal à l'échelle mésoscopique.

En plus des paramètres de la loi cohésive, pour les simulations à l'échelle mésoscopique, on a également besoin des propriétés élastiques de l'UO_2, telles que le module de Young, le coefficient de Poisson, ainsi que le module de cisaillement. Dans la section suivante, on détermine par voie atomistique ces propriétés élastiques.

2.4 Calcul des propriétés élastiques d'un monocristal d'UO_2

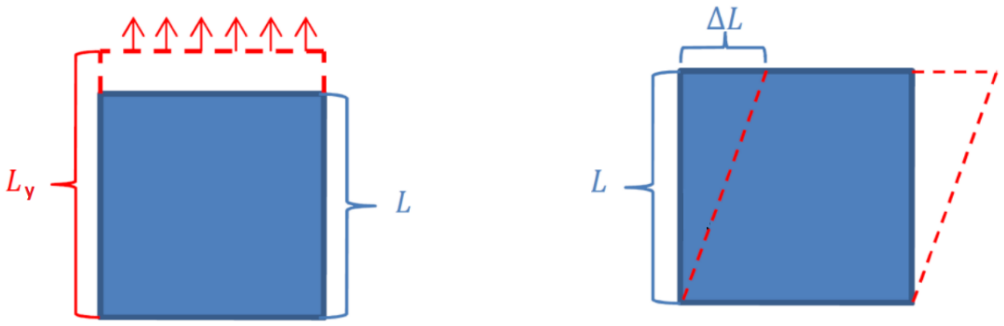
Les constantes et les modules élastiques du cristal d'UO_2 parfait ont été calculés en utilisant des conditions limites périodiques 3D. Le motif du modèle périodique est une supercellule 7x7x7 d'UO_2 fluorite. Tout d'abord, cette supercellule a été soumise à une relaxation à pression nulle pour des températures de 0 K, 500 K, 1500 K et 2500 K. La relaxation à 0 K a été effectuée en utilisant la méthode du gradient conjugué, tandis que pour les températures non nulles, la dynamique moléculaire dans l'ensemble NPT a été employée.

Après relaxation, toutes les composantes du tenseur de contraintes dans les systèmes relaxés ont des valeurs moyennes nulles. Deux types de déformations ont été appliquées à ces systèmes relaxés. Le premier type de déformation est une déformation suivant y (ou 1) (Figure 2.15a), où la dimension du système selon la direction y (ou 1) a été augmentée progressivement tout en maintenant constantes les dimensions du système selon les directions x (ou 2) et z (ou 3). Le tenseur caractérisant ce type de déformation a la forme suivante :

$$\underline{\underline{\varepsilon}} = \begin{bmatrix} \varepsilon_{11} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \tag{2.66}$$

Le deuxième mode de déformation correspond à un glissement pur (Figure 2.15b), impliquant une modification graduelle de l'angle dièdre entre les plans yz et xz, tout en conservant la dimension du système constante le long de l'axe y. Ce type de déformation est caractérisé par un tenseur ayant la forme suivante :

$$\underline{\underline{\varepsilon}} = \begin{bmatrix} 0 & \varepsilon_{12} & 0 \\ \varepsilon_{12} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \tag{2.67}$$



(a) essai de traction *(b) essai de glissement*

FIGURE 2.15 – Types d'essais pour la détermination des constantes élastiques

Les coordonnées atomiques ont été relaxées pour chaque pas de déformation en utilisant la méthode du gradient conjugué à 0 K, tandis que pour les températures non-nulles, la relaxation a été effectuée en utilisant la dynamique moléculaire dans l'ensemble NVT. Les composantes du tenseur de contraintes ont été calculées avec la formule de la contrainte atomique.

À partir des composantes du tenseur de contraintes de l'équation (2.68), on peut déterminer les trois constantes élastiques correspondantes à la symétrie cubique du cristal d'UO_2 fluorite (trois coefficients indépendants : C_{11}, C_{12} et C_{44}) à l'aide des équations (2.69).

$$\begin{bmatrix} \sigma_{11} \\ \sigma_{22} \\ \sigma_{33} \\ \sigma_{23} \\ \sigma_{13} \\ \sigma_{12} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{21} & C_{22} & C_{23} & 0 & 0 & 0 \\ C_{31} & C_{32} & C_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{55} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{66} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \varepsilon_{11} \\ \varepsilon_{22} \\ \varepsilon_{33} \\ 2\varepsilon_{23} \\ 2\varepsilon_{13} \\ 2\varepsilon_{12} \end{bmatrix} \tag{2.68}$$

où C_{11} =C_{22} = C_{33}, C_{12} = C_{21} = C_{31} = C_{32} = C_{23} = C_{13} et C_{44} = C_{55} = C_{66} sont les composantes du tenseur de rigidité, σ_{ij} sont les composantes du tenseur de contrainte et ε_{ij} sont les composantes du tenseur de déformation avec $\{i, j\} = \{1, 2, 3\}$.

$$\begin{aligned} \sigma_{11} &= C_{11}\varepsilon_{11} \\ \sigma_{22} = \sigma_{33} &= C_{12}\varepsilon_{11} \\ \sigma_{12} &= 2C_{44}\varepsilon_{12} \end{aligned} \tag{2.69}$$

Par la suite, à partir de ces constantes élastiques, on peut calculer les modules élastiques (module de Young E, module de cisaillement μ et coefficient de Poisson ν) « isotrope cubique » à l'aide des relations suivantes :

$$\text{(a)} \quad C_{11} = \frac{E(1-\nu^2)}{1-3\nu^2-2\nu^3}, \qquad \text{(b)} \quad C_{12} = \frac{E(1-\nu^2)}{1-3\nu^2-2\nu^3}, \qquad \text{(c)} \quad C_{44} = \mu \tag{2.70}$$

Tant que $1-3\nu^2-2\nu^3 \neq 0$, le module de Young E et le coefficient de Poisson ν peuvent être exprimés en fonction des constantes élastiques tels que :

$$\nu = \frac{1}{1+C_{11}/C_{12}} \qquad\qquad E = C_{11}\frac{1-3\nu^2-2\nu^3}{1-\nu^2} \tag{2.71}$$

Les modules élastiques calculés pour de l'UO_2 fluorite de 0K à 2000 K, qui servent de données d'entrée au calcul macroscopique Xper, sont regroupés dans le Tableau 2.7.

T(K)	E (GPa)	ν	μ (GPa)
0 K	329.6	0.23	79.10
300 K	323.7	0.24	75.00
500 K	313.6	0.23	77.60
1000 K	298.0	0.23	67.00
1500 K	276.7	0.21	61.50
1750 K	266.6	0.20	59.50
2000 K	252.8	0.21	56.90

TABLEAU 2.7 – Propriétés élastiques du fluorite à différentes températures.

Les modules élastiques correspondants aux directions cristallographiques d'intérêt pour cette étude peuvent être déterminés en effectuant des rotations d'axes à l'aide de la matrice de rotation tridimensionnelle $\mathbf{P}$ basée sur les angles d'Euler (θ_1, θ_2 et θ_3) :

$$\Big\{\mathbf{P}\Big\} = \begin{bmatrix} \cos\theta_1\cos\theta_3 - \cos\theta_2\sin\theta_1\sin\theta_3 & \cos\theta_2\cos\theta_1\sin\theta_3 + \sin\theta_1\cos\theta_3 & \sin\theta_2\sin\theta_3 \\ -\cos\theta_1\sin\theta_3 - \cos\theta_2\sin\theta_1\cos\theta_3 & \cos\theta_2\cos\theta_1\cos\theta_3 - \sin\theta_1\sin\theta_3 & \sin\theta_2\cos\theta_3 \\ \sin\theta_2\sin\theta_1 & -\sin\theta_2\cos\theta_1 & \cos\theta_2 \end{bmatrix} \tag{2.72}$$

La relation permettant le changement de base des matrices de rigidité s'écrit comme suit :

$$\{\mathbb{C}'\} = [\mathbb{M}]\{\mathbb{C}\}[\mathbb{M}]^t \tag{2.73}$$

où $\mathbb{C}$ représente la matrice de rigidité de la fluorite dans la base $\{(100),(010),(001)\}$ et $\mathbb{C}'$ est la matrice de rigidité de la fluorite dans la base correspondante à la direction d'intérêt. La matrice $\mathbb{M}$ corresponds à la matrice de passage. Son expression s'écrit de la manière suivante :

$$\Big\{\mathbb{M}\Big\} = \begin{Bmatrix} [\mathbf{D_1}] & 2[\mathbf{A}] \\ [\mathbf{B}] & [\mathbf{D_2}] \end{Bmatrix} \tag{2.74}$$

où les expressions des composants sont données par :

$$\Big[\mathbf{A}\Big] = \begin{bmatrix} P_{21}P_{31} & P_{11}P_{31} & P_{11}P_{21} \\ P_{22}P_{32} & P_{12}P_{32} & P_{12}P_{22} \\ P_{23}P_{33} & P_{13}P_{33} & P_{13}P_{23} \end{bmatrix} \tag{2.75}$$

$$\Big[\mathbf{B}\Big] = \begin{bmatrix} P_{12}P_{13} & P_{22}P_{23} & P_{32}P_{33} \\ P_{11}P_{13} & P_{21}P_{23} & P_{31}P_{33} \\ P_{11}P_{12} & P_{21}P_{22} & P_{31}P_{32} \end{bmatrix} \tag{2.76}$$

$$\left[\mathbf{D_1}\right] = \begin{bmatrix} P_{11}^2 & P_{21}^2 & P_{31}^2 \\ P_{12}^2 & P_{22}^2 & P_{32}^2 \\ P_{13}^2 & P_{23}^2 & P_{33}^2 \end{bmatrix} \tag{2.77}$$

$$\left[\mathbf{D_2}\right] = \begin{bmatrix} P_{22}P_{33} + P_{32}P_{23} & P_{12}P_{33} + P_{32}P_{13} & P_{12}P_{23} + P_{22}P_{13} \\ P_{21}P_{33} + P_{31}P_{23} & P_{11}P_{33} + P_{31}P_{13} & P_{11}P_{23} + P_{21}P_{13} \\ P_{21}P_{32} + P_{31}P_{22} & P_{11}P_{32} + P_{31}P_{12} & P_{11}P_{22} + P_{21}P_{12} \end{bmatrix} \tag{2.78}$$

où P_{ij} sont les composants de la matrice de rotation tridimensionnelle $\mathbf{P}$.

Les bases correspondantes aux trois directions d'intérêt pour cette étude sont :

- {(111),(112),(110)} : s'obtient par une rotation d'un angle $\theta = 70.5°/2$ autour de l'axe [100] puis $\theta = 45°$ autour de l'axe [010]
- {(310),(130),(001)} : s'obtient par une rotation d'un angle $\theta = 36.87°/2$ autour de l'axe [001]
- {(520),(250),(001)} : s'obtient par une rotation d'un angle $\theta = 43.6°/2$ autour de l'axe [001]

La forme générale de la matrice de rigidité obtenue en projetant dans l'une de ces trois bases est la suivante :

$$\left\{C'\right\} = \begin{bmatrix} C'_{11} & C'_{12} & C'_{13} & 0 & 0 & C'_{16} \\ C'_{21} & C'_{22} & C'_{23} & 0 & 0 & C'_{26} \\ C'_{31} & C'_{32} & C'_{33} & 0 & 0 & C'_{36} \\ 0 & 0 & 0 & C'_{44} & C'_{45} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C'_{45} & C'_{55} & 0 \\ C'_{16} & C'_{26} & C'_{36} & 0 & 0 & C'_{66} \end{bmatrix} \tag{2.79}$$

En faisant une projection dans la base orthotrope à symétrie carrée, les composants non diagonaux C_{16}, C_{26}, C_{36}, C_{45} et leurs symétriques s'annulent. La matrice de rigidité dans cette base devient :

$$\left\{C\right\} = \begin{bmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{21} & C_{22} & C_{23} & 0 & 0 & 0 \\ C_{31} & C_{32} & C_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{55} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{66} \end{bmatrix} \tag{2.80}$$

T(K)	GB	E_x	E_y	E_z	ν_{xy}	ν_{xz}	ν_{yz}	μ_{xy}	μ_{xz}	μ_{yz}
300	$\{(111),(112),(110)\}$	231.6	200.9	214.4	0.39	0.24	0.34	111.9	112.0	93.5
	$\{(310),(130),(001)\}$	291.1	291.1	323.7	0.32	0.22	0.22	94.95	75.0	75.0
	$\{(520),(250),(001)\}$	279.7	279.7	323.7	0.34	0.21	0.21	101.4	75.0	75.0
500	$\{(111),(112),(110)\}$	208.8	179.1	216.8	0.36	0.23	0.32	111.0	111.1	94.3
	$\{(310),(130),(001)\}$	284.9	284.9	313.6	0.30	0.21	0.21	95.6	77.6	77.6
	$\{(520),(250),(001)\}$	274.9	274.9	313.6	0.32	0.20	0.20	101.4	77.6	77.6
1000	$\{(111),(112),(110)\}$	208.8	179.1	191.9	0.39	0.24	0.34	103.2	103.2	85.1
	$\{(310),(130),(001)\}$	266.6	266.6	298.1	0.31	0.20	0.20	86.6	67.0	67.0
	$\{(520),(250),(001)\}$	255.6	255.6	298.1	0.34	0.19	0.19	92.8	67.0	67.0
1500	$\{(111),(112),(110)\}$	191.7	163.2	175.0	0.38	0.21	0.33	96.9	97.0	79.2
	$\{(310),(130),(001)\}$	246.8	246.8	276.7	0.29	0.18	0.18	80.6	61.5	61.5
	$\{(520),(250),(001)\}$	236.3	236.3	276.7	0.32	0.18	0.18	86.8	61.5	61.5
1750	$\{(111),(112),(110)\}$	185.0	157.6	168.9	0.38	0.21	0.32	93.7	93.7	76.6
	$\{(310),(130),(001)\}$	238.0	238.0	266.6	0.29	0.18	0.18	78.0	59.5	59.5
	$\{(520),(250),(001)\}$	227.9	227.9	266.6	0.32	0.17	0.17	83.9	59.5	59.5

TABLEAU 2.8 – Propriétés élastiques de la fluorite calculées dans les directions cristallographiques d'intérêt pour cette étude : E - module de Young (GPa), μ - module de cisaillement (GPa) et ν - coefficient de Poisson.

Les modules d'élasticité pour le cas d'un matériau orthotrope, donnés dans le Tableau 2.8, sont calculés par les relations suivantes :

$$E_1 = \frac{\Delta C}{C_{22}C_{33} - C_{23}^2}, \qquad E_2 = \frac{\Delta C}{C_{33}C_{11} - C_{13}^2}, \qquad E_3 = \frac{\Delta C}{C_{11}C_{22} - C_{12}^2} \tag{2.81}$$

$$\nu_{23} = E_2\frac{C_{13}C_{12} - C_{11}C_{23}}{\Delta C}, \ \nu_{13} = E_1\frac{C_{12}C_{23} - C_{22}C_{13}}{\Delta C}, \ \nu_{12} = E_1\frac{C_{23}C_{13} - C_{33}C_{12}}{\Delta C} \tag{2.82}$$

$$G_{23} = C_{44}, \qquad G_{13} = C_{55}, \qquad G_{12} = C_{66} \tag{2.83}$$

où $\Delta C = C_{11}C_{22}C_{33} + 2C_{12}C_{23}C_{31} - C_{12}^2C_{33} - C_{23}^2C_{11} - C_{22}C_{13}^2$

2.5 Bilan du chapitre

L'utilisation du potentiel semi-empirique à charges variables SMTB-Q constitue un bon compromis entre la précision et le temps de calcul. Les résultats obtenus avec ce potentiel pour le calcul des différentes propriétés de volume, telles que les pressions de transition fluorite-rutile et fluorite-scrutinyite, ainsi que des charges, montrent un bon accord avec les résultats quantiques [87] .

Les joints de grains induisent des perturbations locales d'énergie potentielle et de charges atomiques. Ces perturbations permettent d'estimer l'épaisseur des joints à environ 2 nm, validant les modèles adoptés pour des tailles de système de 15 à 18 nm et évitant ainsi les interactions entre les joints de grains.

Le joint de grains relaxé $\Sigma 3$ est le plus stable, puis $\Sigma 5$ et enfin $\Sigma 29$. Alors que la relaxation du système de joint de grains $\Sigma 3$ n'entraîne pas de réarrangements atomiques significatifs, les systèmes relaxés $\Sigma 5$ et $\Sigma 29$ montrent une réorganisation des sous-réseaux d'uranium et d'oxygène aux joints de grains. Dans le joint de grains relaxé $\Sigma 5$, les atomes d'uranium présentent un arrangement local spécifique avec des motifs triangulaires observés expérimentalement [81].

L'analyse structurale des systèmes de joints de grains sous traction uniaxiale jusqu'à la rupture, effectuée dans une large gamme de températures, de 300 K à 1750 K, ne révèle aucune source de plasticité. Ceci suggère un comportement fragile à la rupture pour les joints de grains UO_2 considérés. De plus, la rupture se produit systématiquement le long des joints de grains. Ces résultats sont tous corroborés par des études expérimentales récentes [5] menées sur des échantillons de taille micrométrique à 300 K.

L'identification des paramètres des lois cohésives des joints de grains de l'UO_2 à partir de simulations de dynamique moléculaire est établie. Ces lois sont ajustées à des données de simulation à différentes températures. Cependant, afin de maintenir des temps de calcul raisonnables, un taux de déformation très élevé de 10^8 s^{-1} est imposé aux systèmes. La validité de ces lois à des vitesses de déformation plus basses (10^{-1} s^{-1}), comme celles présentes dans les simulations à l'échelle mésoscopique, est sujet à questions. La réalisation de simulations à micro-échelle à diverses températures et vitesses de chargement, en utilisant plusieurs ensembles de paramètres de zone cohésive, pourrait fournir des éléments de réponse sur l'impact de la vitesse de chargement sur le comportement d'un bicristal.

En plus des paramètres de la loi cohésive, pour les simulations à l'échelle mésoscopique, les propriétés élastiques de l'UO_2, telles que le module de Young, le coefficient de Poisson et le module de cisaillement, sont déterminées à l'échelle atomistique pour les différents joints de grains.

Chapitre 3

Critères de rupture des joints de grains

Ce chapitre est consacré à la détermination de critères de rupture de joint de grains d'un combustible irradié contenant une ou plusieurs bulles soumis à une traction (dilatation du combustible) et à une pressions hydrostatique dans bulles (gaz de fission). La modélisation à l'échelle mésoscopique repose sur une approche micromécanique cohésive et volumétrique basée sur un modèle de zone cohésive frictionnelle (FCZM). Après quelques rappels de mécanique linéaire de la rupture, le modèle de zone cohésive frottante utilisé est présenté. Les paramètres volumiques et cohésifs sont obtenus à partir de calculs atomistiques (voir la section 2.3). Une étude préliminaire est menée pour déterminer la taille optimale des mailles en présence de bulles et la taille du domaine. Puis l'effet des bulles est étudié. D'une part, l'impact de la taille d'une bulle, lenticulaire et ellipsoïdale, sous chargement en traction et en pression hydrostatique sur la rupture des joints de grains est étudié. D'autre part, l'interaction entre deux bulles lenticulaires est investiguée. Enfin, un critère de rupture est proposé.

Sommaire

3.1 Rappel sur la mécanique de la rupture 86
3.1.1 Critère en contrainte 86
3.1.2 Critère énergétique 86
3.2 Hypothèses de modélisation 87
3.2.1 Cas d'étude 87
3.2.2 Approche numérique de la fissuration 89
3.2.3 Comportement volumique 89
3.2.4 Comportement surfacique : Modèle de Zones Cohésives Frottantes 89
3.3 Étude préliminaire 93
3.3.1 Sensibilité au maillage 93
3.3.2 Influence de la taille du domaine 95
3.4 Cas d'une bulle 98
3.4.1 Traction uniaxiale 99

3.4.2 Pression hydrostatique 103
3.5 Cas de deux bulles 106
3.5.1 Traction uniaxiale 107
3.5.2 Pression hydrostatique 108
3.6 Critère de rupture des joints de grains 112
3.7 Bilan du chapitre 114

3.1 Rappel sur la mécanique de la rupture

La mécanique linéaire de la rupture repose sur la théorie de l'élasticité et sur l'utilisation des paramètres K_{I}, K_{II} et K_{III}, qui caractérisent l'intensité de contrainte et la déformation à la pointe de la fissure. La mécanique linéaire de la rupture, initialement introduite par Griffith [94] pour les matériaux fragiles, permet de décrire la rupture à l'aide d'un critère en contrainte ou énergétique. Pour plus de détails, voir [95].

3.1.1 Critère en contrainte

Les avancées en mécanique de la rupture après Griffith [94] ont permis de développer des modèles capables de prendre en comptes la géométrie du défaut (micro-fissure) selon le type de chargement. Dans le cas d'un chargement de traction uniaxiale, pour un défaut lenticulaire de faible rapport d'aspect, proche de la forme "penny shape" abordée dans la section 1.2.2, permettant l'utilisation de l'angle dièdre pour calculer le facteur d'intensité K, l'expression analytique de la concentration de contrainte de type Griffith-Sack [8] en pointe de fissure s'écrit :

$$\sigma_{\alpha}^{rup} = \frac{K}{\sqrt{r}} \cos\frac{\alpha}{2}\left(1 + \sin\frac{\alpha}{2}\sin\frac{3\alpha}{2}\right) \tag{3.1}$$

avec

$$K = \sqrt{\frac{\pi E \gamma_0}{2(1-\nu^2)}} \tag{3.2}$$

où α est l'angle dièdre, r est le rayon de la bulle, γ_0 correspond à l'énergie nécessaire pour créer une surface, E est le module d'Young et ν est le coefficient de Poisson.

Remarque : la formulation de Griffith-Sack est valide pour des matériaux isotropes. Étant donné que l'UO_2 présente un comportement isotrope cubique, voire transverse selon l'orientation des joints de grains (cas du $\Sigma 29$), le module d'Young E est choisi selon la direction de traction (axe y) et le coefficient de Poisson ν est calculé selon la moyenne suivant les trois directions.

La limite de cette approche en contrainte est l'utilisation de la singularité en pointe de fissure dans la prédiction de la propagation de fissures. La contrainte devient infinie lorsque r tend vers 0, ce qui pose un problème compte tenu que la physique exige que les contraintes demeurent finies dans l'ensemble du matériau. Une approche énergétique globale surmonte cette limitation locale en contrainte.

3.1.2 Critère énergétique

L'approche énergétique de Griffith, basée sur l'étude des processus de fissuration quasi-statiques pour des solides élastiques, intègre l'énergie de surface générée par la fissure comme une énergie supplémentaire. Le critère de propagation de fissure repose sur la comparaison de l'énergie totale avant ($\mathcal{E}_{tot}$) et après ($\mathcal{E}'_{tot}$) la propagation de fissure :

$$\mathcal{E}'_{tot}(\mathcal{S}) = \mathcal{E}_{tot}(\mathcal{S}) + 2\mathcal{E}_{\mathcal{S}}, \tag{3.3}$$

où $\mathcal{S}$ est la surface de la fissure, $\mathcal{E}_{tot}$ représente l'énergie totale du système (énergie interne élastique stockée + énergie des chargements appliqués) avant la propagation de fissure, $2\mathcal{E}_{\mathcal{S}}$ correspond à l'énergie de surface associée aux deux lèvres de la fissure.

Lorsqu'une fissure de surface $\mathcal{S}$ s'accroît de $d\mathcal{S}$, l'énergie totale de la structure fissurée évolue de $\mathcal{E}'_{tot}(\mathcal{S})$ à $\mathcal{E}'_{tot}(\mathcal{S} + d\mathcal{S})$. Le principe du minimum de l'énergie entraine une propagation de fissure si :

$$\mathcal{E}'_{tot}(\mathcal{S} + d\mathcal{S}) = \mathcal{E}_{tot}(\mathcal{S} + d\mathcal{S}) + 2\mathcal{E}_{\mathcal{S}} + 2d\mathcal{E}_{\mathcal{S}} \leq \mathcal{E}_{tot}(\mathcal{S}) + 2\mathcal{E}_{\mathcal{S}} = \mathcal{E}'_{tot}(\mathcal{S}) \tag{3.4}$$

Le critère de propagation de fissure s'écrit alors :

$$\begin{cases} G < 2\mathcal{E}_{\mathcal{S}}{}' & \Longrightarrow \quad \dot{\mathcal{S}} = 0 \\ G = 2\mathcal{E}_{\mathcal{S}}{}' & \Longrightarrow \quad \dot{\mathcal{S}} > 0 \end{cases} \tag{3.5}$$

où $G = -(\partial\mathcal{E}_{tot}/\partial\mathcal{S})$ est le taux de restitution d'énergie et $\mathcal{E}_{\mathcal{S}}{}'$ est une énergie par unité de surface.

Cette notion de taux de restitution de l'énergie peut être étendue dans une formulation thermodynamique plus complète telle que celle qui prend en compte la notion d'entropie (température) [95].

Relation entre l'approche énergétique et l'approche en contrainte L'approche énergétique et l'approche en contrainte de la mécanique linéaire de la rupture sont reliées grâce à la formulation d'Irwin [96] :

$$G = \frac{k+1}{2\mu}\left(K_{\mathrm{I}}^2 + K_{\mathrm{II}}^2\right) + \frac{1}{2\mu}K_{\mathrm{III}}^2 \tag{3.6}$$

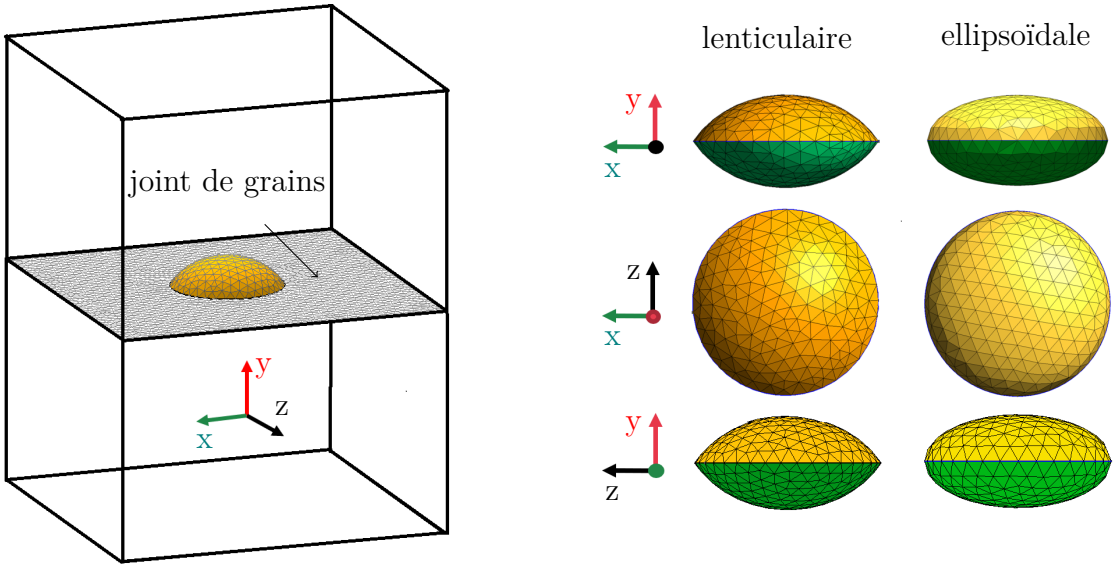
L'équation (3.6), valable en élasticité linéaire isotrope et lors d'une progression quasi-statique de la fissure, établit une corrélation entre les facteurs d'intensité de contrainte K_{I} (traction normale), K_{II} (cisaillement plan), K_{III} (cisaillement plan) et le module de cisaillement μ ainsi que la variable k qui dépend de l'hypothèse adoptée (contrainte plane ou déformation plane).

3.2 Hypothèses de modélisation

3.2.1 Cas d'étude

La structure tridimensionnelle étudiée est constituée de bicristaux d'UO_2 séparés par un joint de grains (voir la Figure 3.1 (a)). Dans la suite, le joint de grains $\Sigma 29$ à une température de 300K, caractérisé par un niveau de désordre similaire à un joint de grains général (ou aléatoire) à température ambiante , est retenu. Un comportement élastique volumique est appliqué au volume et un comportement surfacique endommageable au joint de grains. En effet, les observations atomistiques ont démontré que la rupture se

produit principalement au sein des joints, et les analyses structurelles effectuées n'ont pas révélé l'apparition de dislocations ou changement de phase (voir la section 2.2.3).
Les systèmes étudiés sont des parallélépipèdes contenant une ou plusieurs bulles (entre 0.1 et 4 µm) de forme lenticulaire ou ellipsoïdale (voir Figure 3.1 (b)).

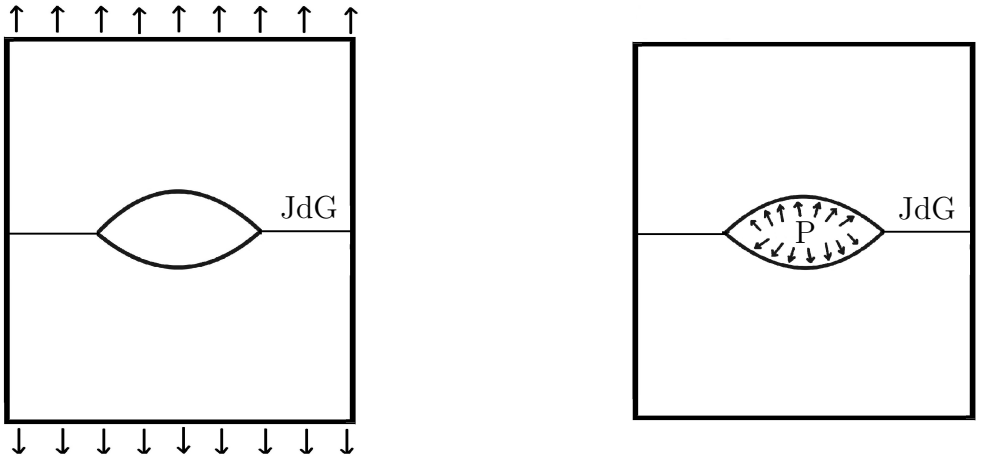


(a) Domaine d'étude

(b) Bulles

FIGURE 3.1 – Géométrie du domaine (a) et des bulles suivant les plans d'observation (b).

Deux types de chargement sont appliqués : un chargement en traction uniaxiale engendré par le chargement thermomécanique de la pastille d'UO_2 (voir Figure 3.2a) ou une pression hydrostatique représentant la pression des gaz de fission (voir Figure 3.2b) lors d'une situation accidentelle (voir section 1.1.4).



(a) Traction

(b) Pression

FIGURE 3.2 – Types de chargement appliqué : (a) traction et (b) pression.

3.2.2 Approche numérique de la fissuration

L'approche numérique utilisée pour résoudre la fissuration est une approche multicorps [97].
Dans la stratégie multicorps, le comportement du matériau est décomposé en :

- un **comportement volumique** durcissant avec une loi décrivant le comportement sans endommagement introduite en chaque points d'intégration ou points de Gauss,
- un **comportement surfacique** adoucissant avec une loi décrivant l'ensemble des processus d'endommagement.

Cette stratégie est illustrée sur la Figure 3.3.

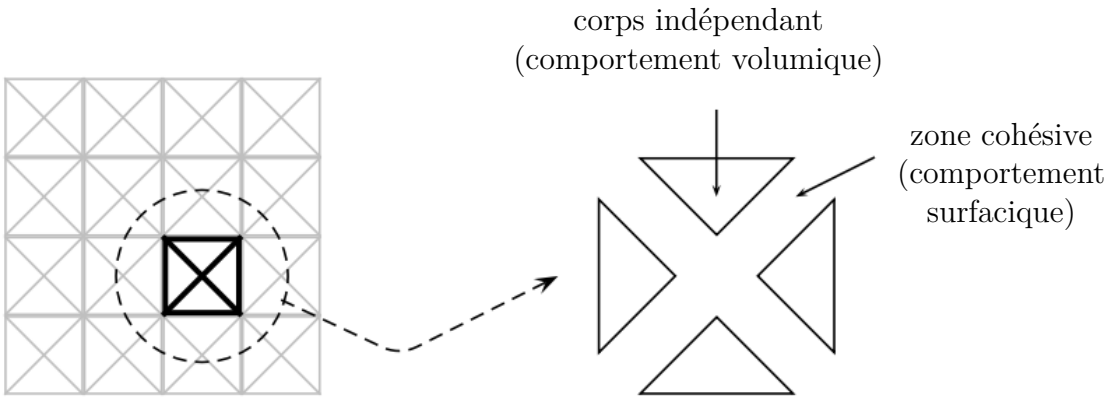


FIGURE 3.3 – Stratégie multicorps : chaque maille est un corps (solide) lié aux autres mailles par des zones cohésives [7].

3.2.3 Comportement volumique

Les propriétés élastiques pour Σ29 à 300 K obtenues à l'échelle atomistique (voir section 2.4), sont décrits dans le Tableau 3.1, manifestant un comportement volumique isotrope transverse.

Module d'Young (GPa)			Coefficient de Poisson			Module de cisaillement (GPa)		
E_x	E_y	E_z	ν_{xy}	ν_{xz}	ν_{yz}	μ_{xy}	μ_{xz}	μ_{yz}
279.7	279.7	323.7	0.34	0.21	0.21	101.4	75.0	75.0

TABLEAU 3.1 – Modules d'élasticité des grains.

3.2.4 Comportement surfacique : Modèle de Zones Cohésives Frottantes

Les Modèles de Zone Cohésive (MZC) ont été initiés par Dugdale [98] et Barenblatt [99]. L'approche MZC permet d'étudier l'initiation et la propagation de fissure à l'aide d'une

relation entre la contrainte appliquée sur les lèvres de fissure et le saut de déplacement (voir Figure 3.4). Cette approche permet d'aborder des problèmes mécaniques complexes, tels que la fissuration de matériaux multiphasiques [95, 100–102], ou hétérogènes [97, 103] sous sollicitations mécaniques complexes.

La fissuration est décrite par une relation entre la contrainte appliquée sur les lèvres de la fissure ($\mathfrak{R} = \mathfrak{R}_N \mathbf{n} + \mathfrak{R}_T$) et la discontinuité de déplacement ($[\mathbf{u}] = \mathbf{u}^+ - \mathbf{u}^-$), où $\mathbf{u}^+$ et $\mathbf{u}^-$ représentent respectivement les déplacements de chaque lèvre de la fissure.

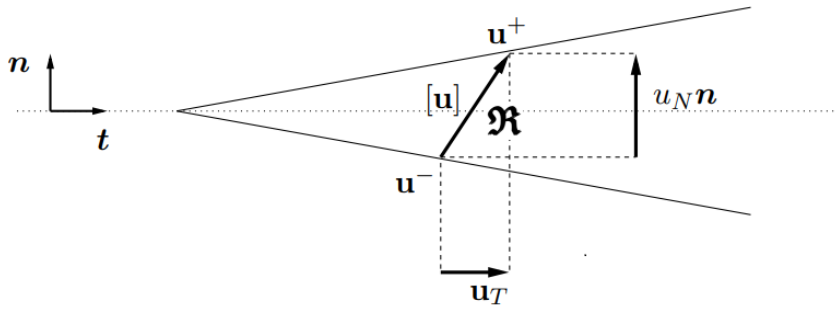


FIGURE 3.4 – Contrainte $\mathfrak{R}$ appliquée sur les lèvres de la fissure et discontinuité du déplacement $[\mathbf{u}]$ dans le plan normal et tangent [97].

Un modèle de comportement surfacique relie le vecteur contrainte $\mathfrak{R}$ au saut de déplacement $[\mathbf{u}]$ par un tenseur d'élasticité surfacique endommageable $\mathbf{K}(\beta)$ tel que [104] :

$$\mathfrak{R} = \mathbf{K}(\beta) \cdot [\mathbf{u}] \tag{3.7}$$

où $\beta \in [0, 1]$ est une variable d'endommagement surfacique ($\beta = 1$ interface saine, $\beta = 0$ interface rompue).
Les phénomènes post-ruptures sont pris en compte par des relations de contact unilatéral et de frottement de Coulomb tels que [105] :

$$-(\mathfrak{R}_N + \mathfrak{R}_N^{coh}) \in \partial I_{\mathbb{R}_+}(u_N), \tag{3.8}$$

$$(\mathfrak{R}_T + \mathfrak{R}_T^{coh}) \in \partial_{\dot{\mathbf{u}}_\mathbf{T}} \left(\mu_{frot} |\mathfrak{R}_N + \mathfrak{R}_N^{coh}| \|\dot{\mathbf{u}}_\mathbf{T}\| \right) \tag{3.9}$$

$$\mathfrak{R}^{coh} = \beta \left(C_N \mathbf{n} \otimes \mathbf{n} + C_T \frac{\mathbf{u_T} \otimes \mathbf{u_T}}{\|\mathbf{u_T}\|^2} \right) \cdot [\mathbf{u}] \tag{3.10}$$

où $\mathbf{n}$ est le vecteur normal unitaire de la zone cohésive, I_J est la fonction indicatrice de l'ensemble J. Le coefficient de frottement de Coulomb est noté μ_{frot}, tandis que C_N et C_T désignent respectivement les raideurs normale et tangentielle initiales (MPa/m).

Les MZC avec la prise en compte du contact et du frottement sont appelés Modèles de Zones Cohésives Frottantes (MZCF).

Afin de prendre en compte une pression P post-rupture agissant sur les bords de la fissure, un terme est ajouté à la contrainte cohésive $\mathfrak{R}^{coh}$ de la manière suivante [97, 106] :

$$\mathfrak{R}_P^{coh} = \mathfrak{R}^{coh} - (1-\beta)^{\varphi} P\mathbf{n} \tag{3.11}$$

où P est la pression exercée sur les lèvres de la fissure (MPa), φ est un terme permettant de relier l'endommagement à la pression.

L'évolution de la variable d'endommagemment est régie par le système décrit dans [104] :

$$\begin{cases} \beta = \min\Big(g([\mathbf{u}]_{\max}), g([\mathbf{u}])\Big) \\ g(x) = \begin{cases} 1 & \text{si } \|x\| \leqslant \delta_c \\ \dfrac{\delta_c}{\|x\|}\left(1 - \left(\dfrac{\|x\| - \delta_c}{\delta_r - \delta_c}\right)^2\right) & \text{si } \delta_c < \|x\| < \delta_r \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \end{cases} \tag{3.12}$$

où $[\mathbf{u}]_{max}$ est la valeur maximale atteinte par le saut de déplacement $[\mathbf{u}]$, $\delta_r = \dfrac{\mathfrak{R}^{\max}}{2}\Big(\dfrac{1}{C_N} + \dfrac{1}{C_T}\Big)$, $\delta_c = \dfrac{3}{2}\left(\dfrac{w}{\mathfrak{R}^{\max}} + \dfrac{\delta_0}{6}\right)$, $0 \leq \beta_0 \leq 1$, , $\mathfrak{R}^{\max}$ et $\|[\mathbf{u}]\|_{\max}$ sont les valeurs maximales atteintes respectivement par la réaction adhésive (MPa) et par $\|[\mathbf{u}]\|$. w une énergie de référence (en J/m^2), correspondant à l'énergie de création de surface, équivalent au travail W^e calculé à l'échelle atomistique (voir la section 2.2.4) sous l'hypothèse d'une fissure droite.

L'évolution de la loi cohésive est décrite sur la Figure 3.5.

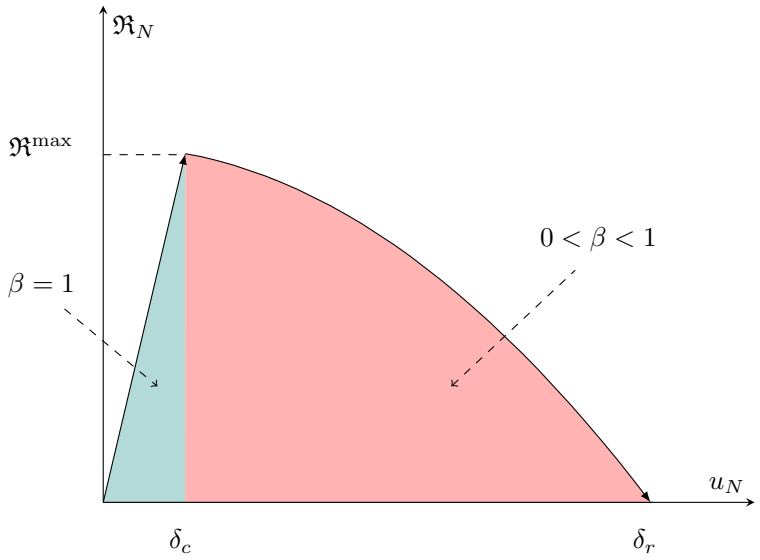


FIGURE 3.5 – Évolution de la loi cohésive normale : courbe contrainte cohésive normale $\mathfrak{R}_N$ en fonction du saut de déplacement u_N [106].

[107] ont introduit la mixité d'ouverture de fissure dans la détermination du saut de déplacement critique δ_c et du saut de déplacement à rupture δ_r.

Dans le cadre de cette étude, la pression post-rupture ne sera pas pris en compte.

Remarque : cette pression permettrait de considérer, lors d'un chargement en pression hydrostatique des bulles, la pression exercée par les gaz de fission sur les bords de la fissure après son initiation.

En l'absence de frottement et de pression post-rupture, le modèle surfacique peut être entièrement défini par 6 paramètres : C_N, C_T, $\mathfrak{R}_N^{max}$, $\mathfrak{R}_T^{max}$, ω_N et ω_T. Les paramètres C_N et C_T sont des paramètres numériques dépendant de la taille de la maille et des propriétés élastiques du matériau. Le critère d'usage, qui permet d'estimer ces paramètres en fonction du type de maillage plan adopté [108], se présente sous la forme suivante :

$$C_N \geq \frac{\kappa E}{l_c(1-2\nu)} \qquad \text{et} \qquad C_T = \left(2\frac{1-2\nu}{1+3\nu}\right) C_N \tag{3.13}$$

où κ est un paramètre lié au type de maillage (Delaunay $\kappa = 23$, maillage carré coupé en 4 triangles $\kappa = 30$), E est le module d'Young, ν est le coefficient de Poisson, l_c est la taille de maille.

Pour un maillage structuré, l_c correspond à la longueur du plus grand côté du triangle. Pour le cas du maillage de type Delaunay, $l_c = 2\sqrt{A_e/\sqrt{3}N_t}$ avec N_t le nombre de triangles de la discrétisation et A_e l'aire du domaine maillé.
Ce critère permet de maîtriser la perte de rigidité due à l'introduction d'éléments cohésifs.

Les paramètres $\mathfrak{R}_N^{max}$, $\mathfrak{R}_T^{max}$, ω_N et ω_T sont déterminés à l'échelle atomistique et représentent des propriétés intrinsèques à l'UO_2 (voir section 2.3). $\mathfrak{R}_N^{max}$ et $\mathfrak{R}_T^{max}$ correspondent aux contraintes maximales que le matériau peut supporter en traction et en cisaillement. ω_N et ω_T représentent l'énergie de décohésion en traction et en cisaillement. Ces énergies sont obtenues en intégrant l'aire sous la courbe $\mathfrak{R}_N$ en fonction de u_N et $\mathfrak{R}_T$ en fonction de u_T.

Dans le chapitre précédent, seuls les paramètres de cohésion normale ont été calculés. Afin de compléter le modèle, des calculs supplémentaires de dynamique moléculaire ont été menés pour obtenir une estimation des contraintes cohésives tangentielles. Les valeurs de contraintes et d'énergies de cisaillement ont été obtenues en utilisant directement le système global. Par conséquent, les valeurs des énergies de rupture en cisaillement peuvent être surestimées, incluant l'énergie élastique. Cela nécessite une analyse plus approfondie pour aborder le cas du cisaillement. Pour un joint de grains Σ29 à 300 K, les paramètres de la loi cohésive sont décrits dans le Tableau 3.2.

$\mathfrak{R}_N^{\max} = \sigma_{yy}^{\max}$	$\mathfrak{R}_T^{\max}$	$\omega_N = W^e$	ω_T
6.71 (GPa)	2.30 (GPa)	2.75 (J/m^2)	1.00 (J/m^2)

TABLEAU 3.2 – Paramètres de la loi cohésive.

Remarque : pour le besoin du modèle, la valeur de la contrainte cohésive tangentielle présentée dans le Tableau 3.2 correspond à la composante $\sigma_{xy}^{\max}$ calculée lors d'un essai de cisaillement pur à l'échelle atomistique ($\sigma_{xy}^{\max} = \sigma_{zy}^{\max}$ pour le joint de grains $\Sigma 29$).

3.3 Étude préliminaire

Cette étude préliminaire vise à analyser la sensibilité au maillage ainsi que l'influence de la taille du système contenant une bulle, en vue de déterminer les dimensions optimales, en terme de temps calcul, des mailles et du domaine.

3.3.1 Sensibilité au maillage

La sensibilité au maillage est étudiée sur des domaines composés d'une bulle lenticulaire (bords pointus) et d'une bulle ellipsoïdale (bords arrondis).

Le maillage est de type Delaunay, uniforme sur tout le domaine. Les tailles de mailles étudiées varient entre 0.125 et 0.7 µm (voir Figure 3.6). Le système de taille 6 µm x 8 µm x 6 µm est composé d'une bulle de rayon $r = 1.8$ µm avec un rapport d'aspect w $= h/r = 0.5$ (h représente la demi-hauteur de la bulle).

Les rigidités interfaciales initiales normale et tangente sont supposées égales, $C_N = C_T$, et sont calculées à partir de l'équation (3.13) en prenant une valeur moyenne des modules d'élasticité. Les valeurs du paramètre C_N, données dans le Tableau 3.3, dépendent de la taille de maille.

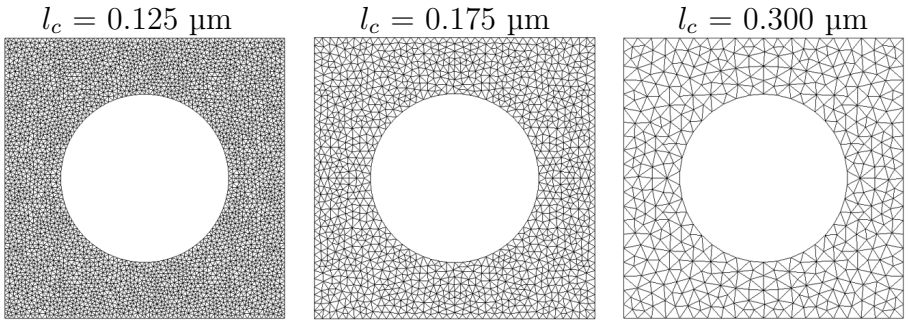


FIGURE 3.6 – Exemples de maillage de la zone cohésive contenant une bulle de rayon r = 1.8 µm *avec trois tailles de mailles : $l_c = 0.125$* µm*, $l_c = 0.175$* µm *et $l_c = 0.3$* µm*.*

l_c (µm)	0.700	0.500	0.300	0.200	0.175	0.150	0.125
$C_N = C_T$ (Pa/m)	0.3e+20	0.4e+20	0.6e+19	0.9e+20	1.0e+20	1.2e+20	1.4e+20

TABLEAU 3.3 – Rigidité interfaciale initiale $C_N = C_T$ en fonction de la taille de maille l_c.

Les courbes contrainte-déformation et contrainte maximale à rupture en fonction de la taille de maille sont présentés sur les Figures 3.7 (bulle lenticulaire) et 3.8 (bulle ellipsoïdale). Dans le cas d'une bulle lenticulaire, la présence de singularité au bord de la

bulle nécessite un maillage plus fin par rapport au cas d'une bulle ellipsoïdale avec bord arrondi. La convergence est obtenue à partir de $l_c = 0.175$ µm pour une bulle lenticulaire et $l_c = 0.3$ µm pour une bulle ellipsoïdale. Dans la suite, la taille de maille $l_c = 0.175$ µm est retenue.

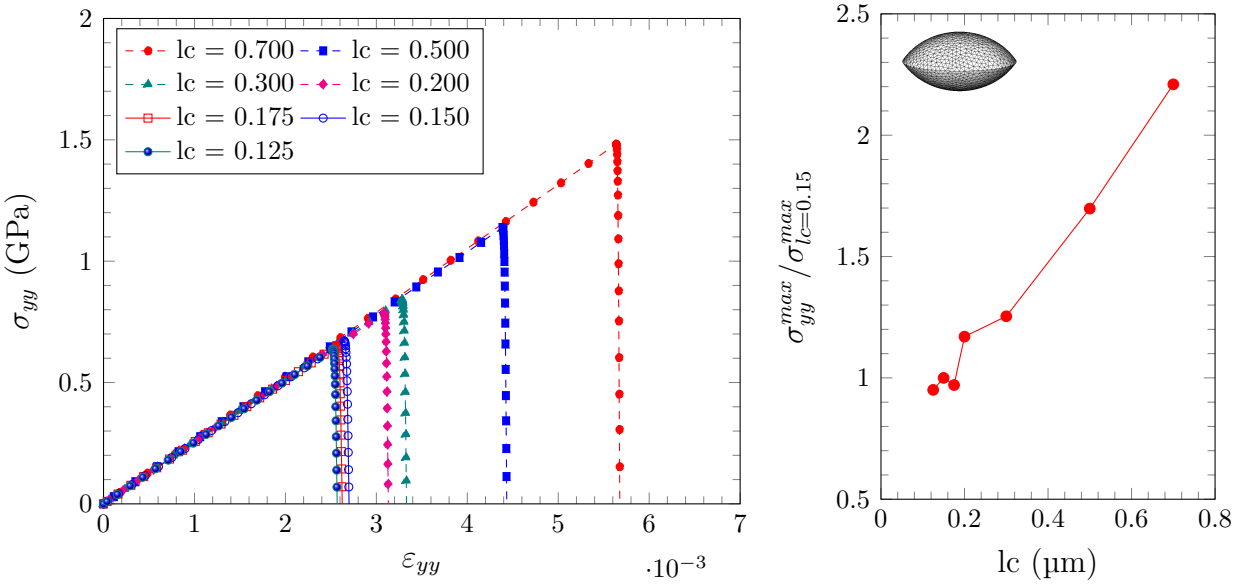


FIGURE 3.7 – Sensibilité au maillage pour le cas d'une bulle lenticulaire (bords pointus) : contrainte-déformation (gauche) et courbe de convergence de la contrainte maximale adimensionnée en fonction de la taille de mailles l_c (droite).

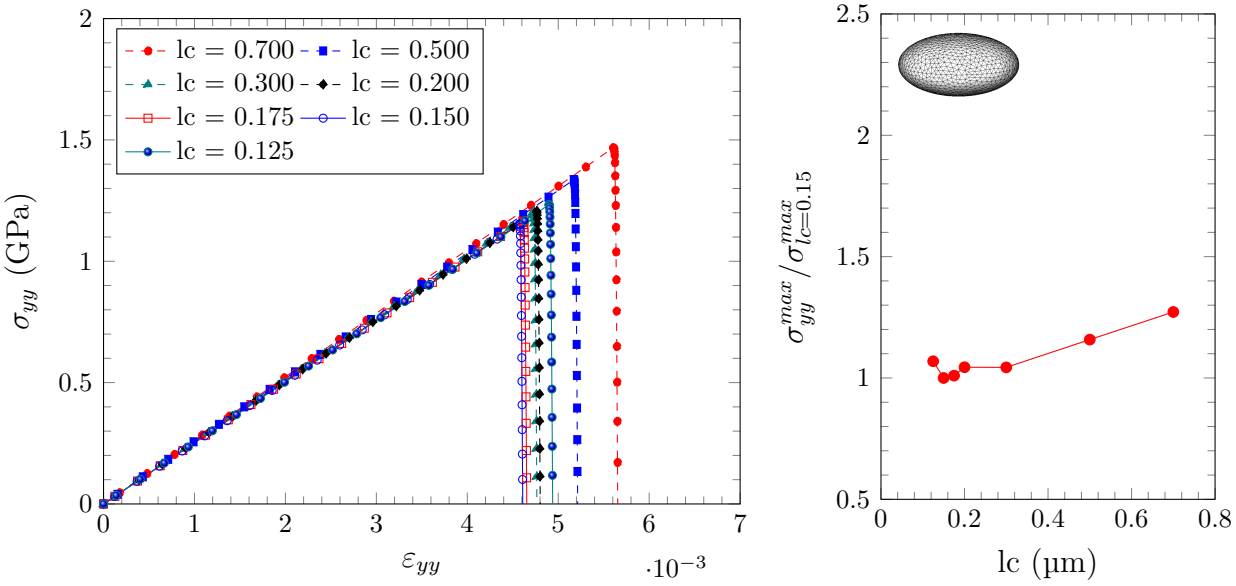


FIGURE 3.8 – Sensibilité au maillage pour le cas d'une bulle ellipsoïdale (bords arrondis) : contrainte-déformation (gauche) et contrainte maximale adimensionnée en fonction de la taille de mailles l_c (droite).

Remarque : avec cette taille de maille, une facettisation des bulles ellispoïdales est obtenue pour des rayons inférieurs à 0.4 µm (voir Figure 3.9). Afin de pallier ce problème, le maillage doit être raffiné mais le temps calcul associé devenant prohibitif, il ne sera pas mis en œuvre dans cette étude. Ainsi, compte tenu de la facettisation et des bords pointus, le comportement des bulles ellipsoïdales devient comparable à celui des bulles lenticulaires à partir d'un rayon inférieur à 0.4 µm.



(a) r = 0.2 µm (b) r = 0.4 µm (c) r = 0.2 µm (d) r = 0.4 µm

FIGURE 3.9 – Illustration de la facettisation des bulles pour une taille de maille de $l_c = 0.175$ µm *avec* w=*0.5 : (a) et (b) bulles lenticulaires , (c) et (d) bulles ellipsoïdales.*

3.3.2 Influence de la taille du domaine

Les effets de bord sont étudiés d'une part pour une taille de domaine fixé (6 µm x 8 µm x 6 µm) et d'autre part en conservant une distance constante de 3 µm du bord de la bulle au bord du domaine (distance notée L_{lig}, voir Figure 3.10) pour les deux types de chargement, traction uniaxiale et pression hydrostatique. Les tailles des domaines étudiés en fonction du rayon des bulles sont données dans le Tableau 3.4.

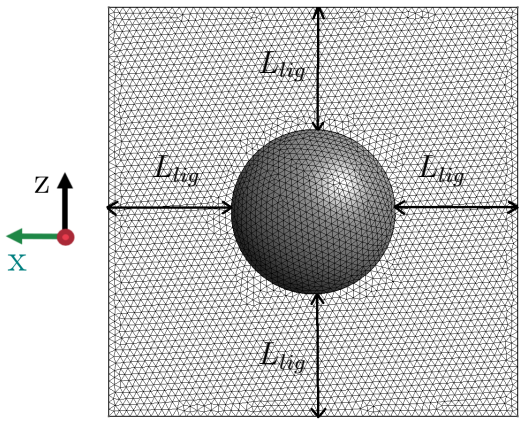


FIGURE 3.10 – Ligament restant L_{lig} *entre la bulle et le bord.*

Dans le cas de la traction uniaxiale, la Figure 3.11(gauche) met en évidence des effets de bord non négligeables lorsque les ligaments restants sont inférieurs à $L_{lig} = 1.5$ µm. Ces effets deviennent importants à mesure que les bulles se rapprochent des bords. À partir d'un ligament de 2 µm, les effets de bord peuvent être négligés. Les erreurs relatives $\sigma_{yy}^{max}/\sigma_{yy}^{max}$(domaine variable) sont inférieures à 3% à partir de cette taille de ligament (Figure 3.11(droite)).

rayon des bulles	**Domaine constant**		**Ligament constant**	
	Domaine	L_{lig}	Domaine	L_{lig})
r (µm)	(µm^3)	(µm)	(µm^3)	(µm)
0.5	6 x 8 x 6	2.5	7 x 8 x 7	3.0
1.0	6 x 8 x 6	2.0	8 x 8 x 8	3.0
1.5	6 x 8 x 6	1.5	9 x 8 x 9	3.0
2.0	6 x 8 x 6	1.0	10 x 8 x 10	3.0

TABLEAU 3.4 – Dimensions du domaine et des ligaments en fonction du rayon des bulles dans le cas d'une taille de domaine constante et d'une taille de bulle constante.

Ce résultat est confirmé par la visualisation des contraintes de von Mises (voir Figure 3.12), le champs est perturbé lorsque la distance entre le bord des bulles et le bord du domaine est faible ($L_{lig} = 1$ µm).

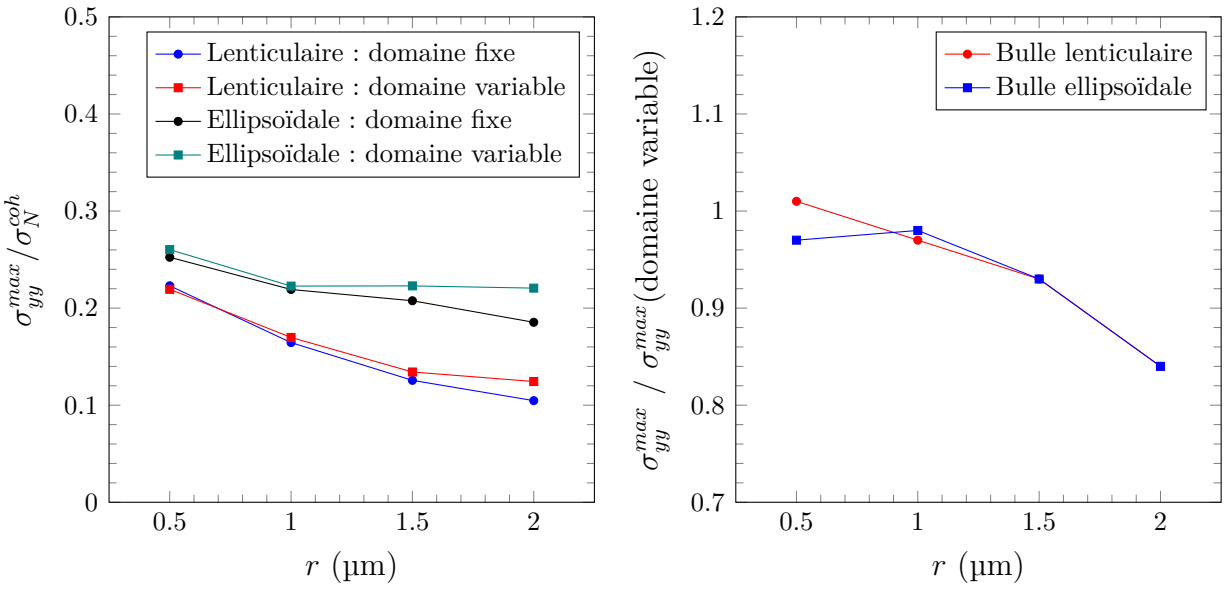


FIGURE 3.11 – Influence de la taille du domaine dans le cas d'une traction uniaxiale : (gauche) courbe adimensionnée $\sigma_{yy}^{max}/\sigma_N^{coh}$ et (droite) courbe d'erreur $\sigma_{yy}^{max}/\sigma_{yy}^{max}$(domaine variable) en fonction du rayon r.

Pour le cas hydrostatique, la réponse macroscopique est dépendante de la taille du domaine considéré (voir Figure 3.13). Les Figure 3.14 et 3.15, montrant les champs de contraintes de von Mises pour des domaines fixes et variables et différentes tailles de bulles, soulignent l'apparition des effets de bord en dessous d'une taille de ligament $L_{lig} = 1.5$ µm.

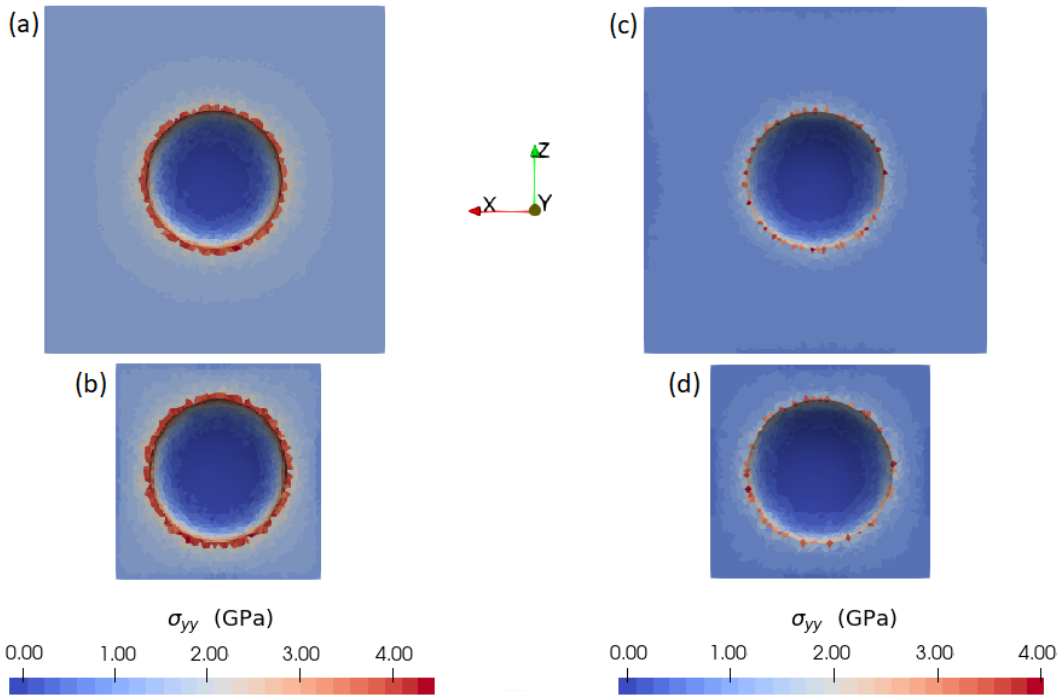


FIGURE 3.12 – Champs de contraintes de von Mises dans le cas d'un chargement en traction uniaxiale dans le repère (x,z) montrant la surface cohésive et la bulle ((a) et (b) : ellipsoïdale, (c) et (d) : lenticulaire) de rayon $r = 2$ µm et w*= 0.5 dans (b) et (d) un domaine fixe (*6 x 8 x 6 µm^3*, $L_{lig} = 1$ µm*) et, (a) et (c) un domaine variable (*10 x 8 x 10 µm^3*, $L_{lig} = 3$ µm*).*

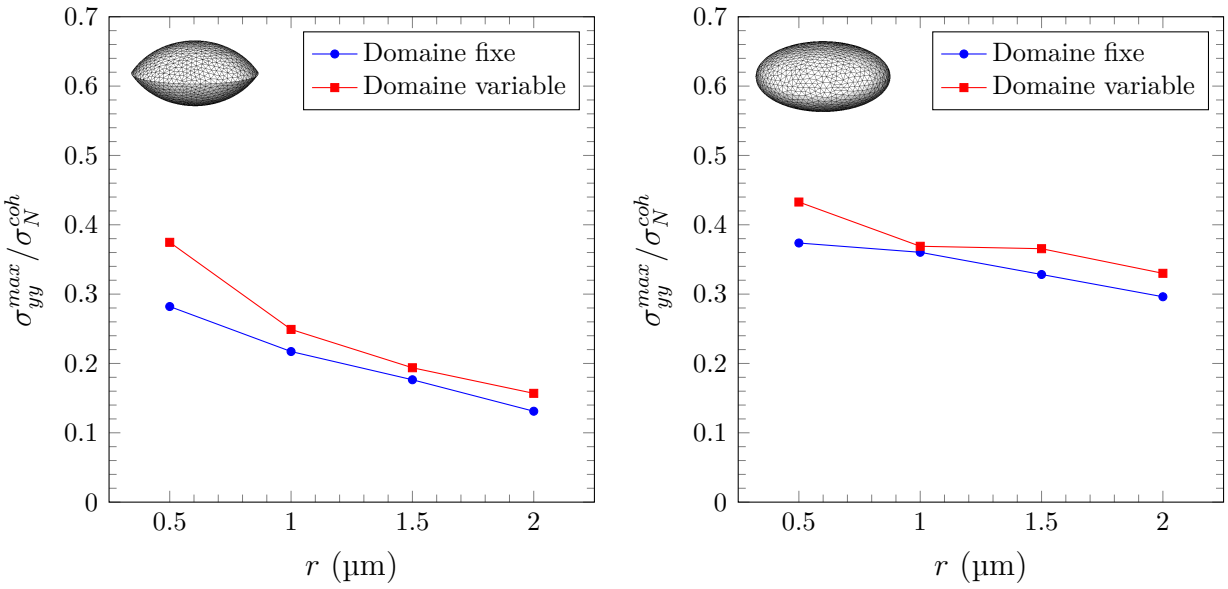


FIGURE 3.13 – Influence de la taille du domaine dans le cas d'un chargement hydrostatique de la bulle : courbe adimensionnée $P_{yy}^{rup}/\sigma_N^{coh}$ en fonction du rayon r, (gauche) bulle lenticulaire avec w*= 0.5 et (droite) bulle ellipsoïdale avec* w*= 0.5 .*

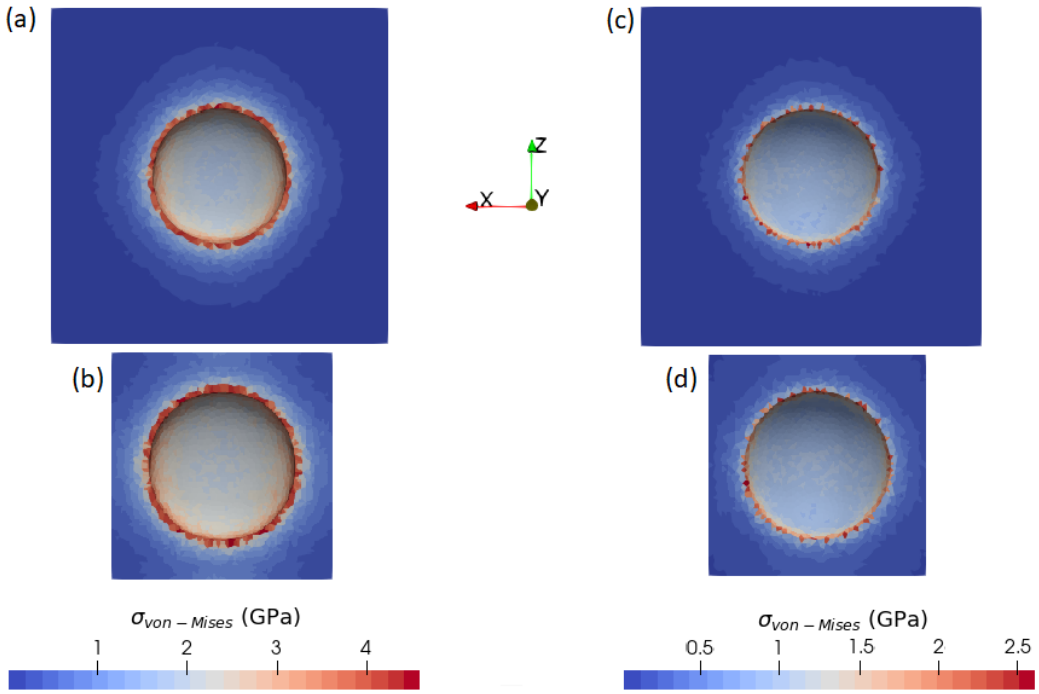
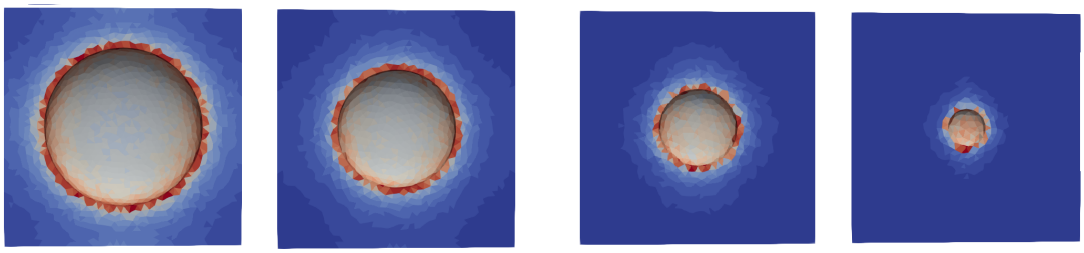


FIGURE 3.14 – Champs de contraintes de von Mises dans le cas d'un chargement hydrostatique dans le repère (x,z) montrant la surface cohésive et la bulle ((a) et (b) : ellipsoïdale,(c) et (d) : lenticulaire) de rayon $r = 2.0$ µm *et* w= *0.5 dans (b) et (d) un domaine fixe* 6 x 8 x 6 μm^3 *et, (a) et (c) un domaine variable* 10 x 8 x 10 μm^3



(a) r = 2.0 µm (b) r = 1.5 µm (c) r = 1.0 µm (d) r = 0.5 µm

FIGURE 3.15 – Champs de contraintes de von Mises dans le cas d'un chargement hydrostatique pour des systèmes 6 x 8 x 6 μm^3 *contenant une bulle ellipsoïdale de différents rayons (*2.0 µm, 1.5 µm, 1.0 µm *et* 0.5 µm*) avec* w = 0.5.

Dans la suite, afin de conserver un temps calcul raisonnable, la taille du domaine sera définie de telle sorte que la taille du ligament L_{lig} soit supérieure à 2.0 µm.

3.4 Cas d'une bulle

Dans cette section, l'étude concerne la rupture dans le cas d'une bulle. Une étude paramétrique sur la forme de la bulle, sa taille, le rapport d'aspect et le type de chargement appliqué (traction ou pression hydrostatique) est menée.
Le rapport d'aspect w peut être déduit de la relation 1.13 en fonction de l'angle dièdre

α (voir Figure 1.17). Les observations expérimentales montrent que les angles dièdres, pour les bulles intergranulaires, sont compris entre 33.5° et 53.0° avec une valeur médiane de 47° [20]. Les correspondances entre ces angles dièdres et le rapport d'aspect w sont données dans le Tableau 3.5. Pour chaque forme de bulle, lenticulaire ou ellipsoïdale, deux valeurs du rapport d'aspect, w = 0.5 et w = 0.3, sont considérées (voir Figure 3.16).

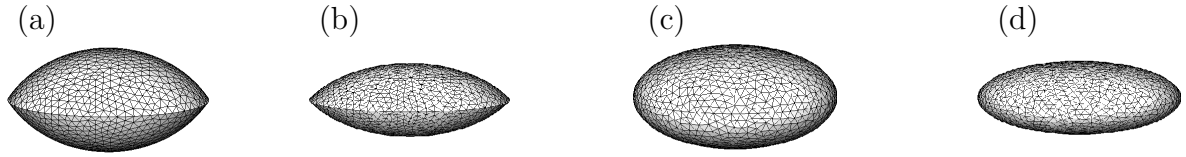


FIGURE 3.16 – Schéma illustrant les rapports d'aspect : (a) et (b) sont des bulles lenticulaires avec w = 0.5 *et* w = 0.3*, (c) et (d) sont des bulles ellipsoïdales avec* w = 0.5 *et* w = 0.3.

angle α	**ratio** w = h/r
53.0°	0.5
43.6°	0.4
33.5°	0.3

TABLEAU 3.5 – Valeurs des angles dièdres α et ratio w = h/r correspondant.

3.4.1 Traction uniaxiale

Les Figures 3.17 à 3.20 montrent (a) les courbes contrainte-déformation pour plusieurs tailles de bulles et (b) la contrainte maximale adimensionnée par la contrainte cohésive (5.9 GPa)-rayon de bulle, pour respectivement des bulles lenticulaires et ellipsoïdales de rapports d'aspect w= 0.3 et w= 0.5. Comme attendu, la contrainte à rupture diminue lorsque la taille des bulles augmente, entraînant une augmentation de la fragilité de la structure avec la taille de bulle.

Pour les bulles lenticulaires (Figures 3.17 –3.18), la contrainte maximale diminue rapidement pour les tailles de bulles de 0.1 µm à 0.4 µm et atteint un palier, $\sigma_{yy}^{max} \simeq 0.12\sigma_N^{coh}$, à partir d'une taille de bulle de 1.5 µm.

Pour les bulles ellipsoïdales (Figures 3.19 –3.20), les valeurs des contraintes maximales varient peu en fonction de la taille des bulles.

Un lissage de type Griffith de la contrainte maximale adimensionnée est mise en œuvre pour chaque type de bulle et chaque rapport d'aspect :

- bulle lenticulaire, w=0.5 : $\sigma_{fit}^{rup} = 1.25K\sqrt{r}$,
- bulle lenticulaire, w=0.3 : $\sigma_{fit}^{rup} = 1.14K\sqrt{r}$,
- bulle ellipsoïdale, w=0.5 : $\sigma_{fit}^{rup} = 1.64K\sqrt{r}$,
- bulle ellipsoïdale, w=0.3 : $\sigma_{fit}^{rup} = 1.21K\sqrt{r}$.

Remarque : pour les bulles ellispsoïdales, compte tenu de la taille de maille, la facettisation pour les rayons inférieurs à $r = 0.5$ µm (voir section 3.3.1) entraînent un comportement similaire aux bulles lenticulaires (encadré en rouge sur la Figure 3.19 (b)). Les lissages sont ainsi réalisées pour des rayons supérieurs à 0.5 µm.

Sur les Figures 3.17(b) −3.18(b) sont tracés les lissages des contraintes maximales adimensionnées, le critère de Griffith-Sack (voir section 3.3.1) et la contrainte pour des fissures de type "penny-shaped". Ce critère est conservatif [1] pour toutes les configurations. Pour les bulles lenticulaires, le lissage de type Griffith de la contrainte maximale est correct et correspond bien au critère de Griffith-Sack qui prend en compte l'angle dièdre.

Enfin, les contraintes maximales suivant yy sont plus élevées pour les bulles ellipsoïdales que pour les bulles lenticulaires (voir Figure 3.21).

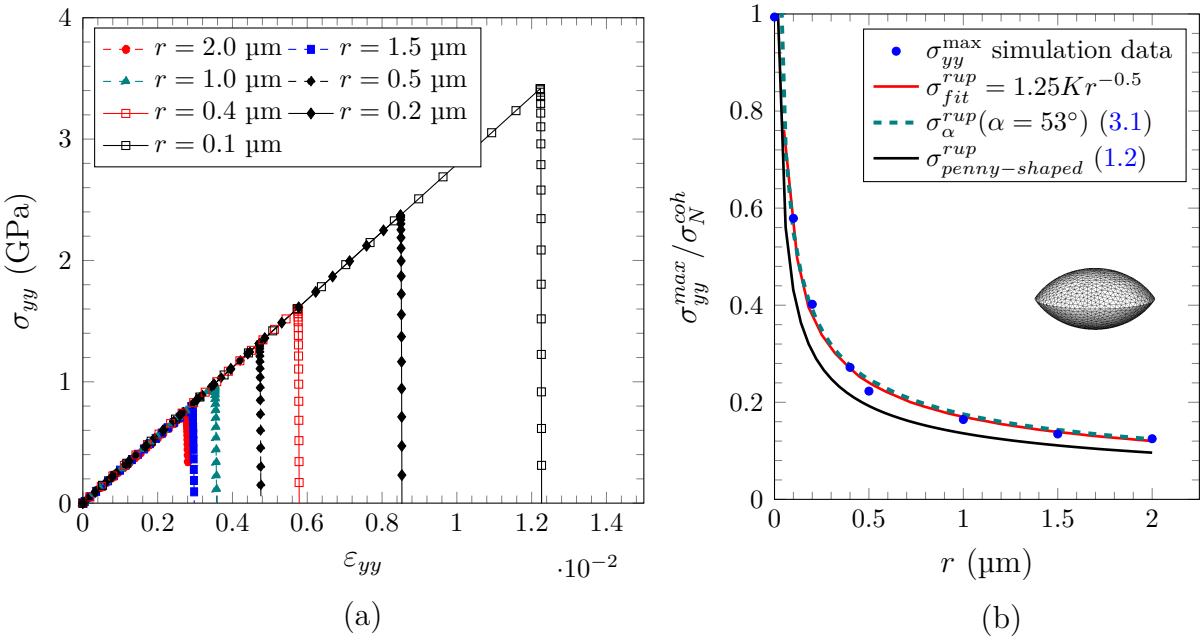


FIGURE 3.17 – Chargement en traction : influence de la taille de bulle de forme lenticulaire avec w $= 0.5$ *: (a) courbe contrainte-déformation pour plusieurs tailles de bulles et (b) courbe adimensionnée* $\sigma_{yy}^{max}/\sigma_N^{coh}$ *en fonction du rayon des bulles* r*.*

1. Le terme conservatif correspond au cas le plus pénalisant en termes de sûreté.

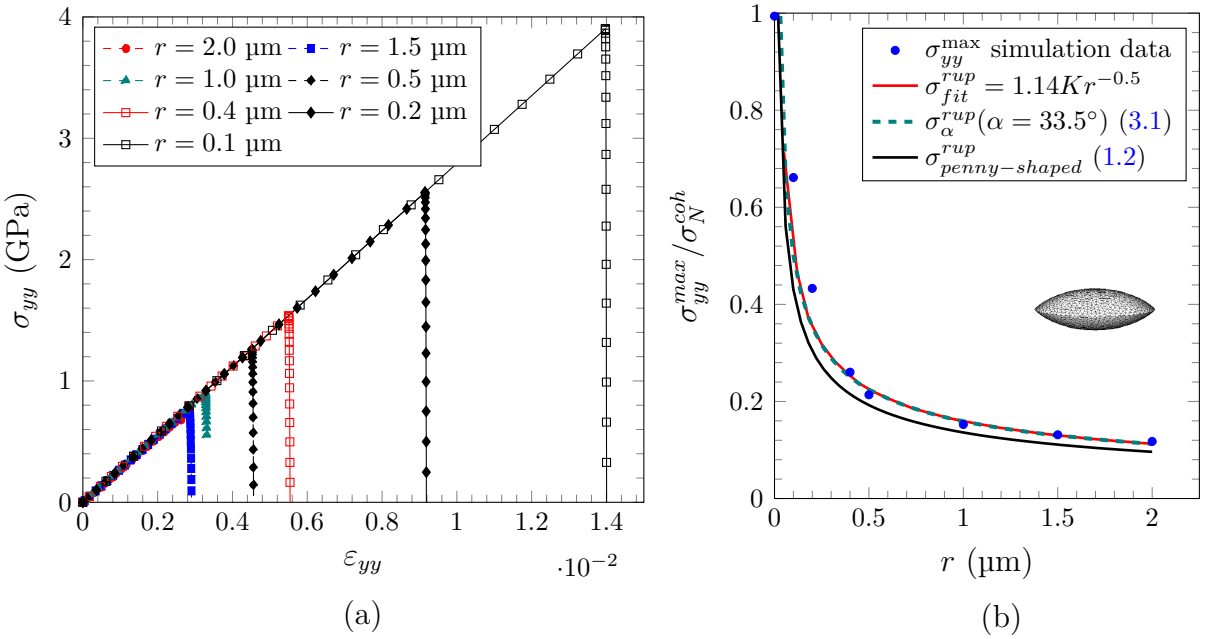


FIGURE 3.18 – Chargement en traction : influence de la taille de bulle de forme lenticulaire avec w *= 0.3 : (a) courbe contrainte-déformation pour plusieurs tailles de bulles et (b) courbe adimensionnée $\sigma_{yy}^{max}/\sigma_N^{coh}$ en fonction du rayon des bulles r.*

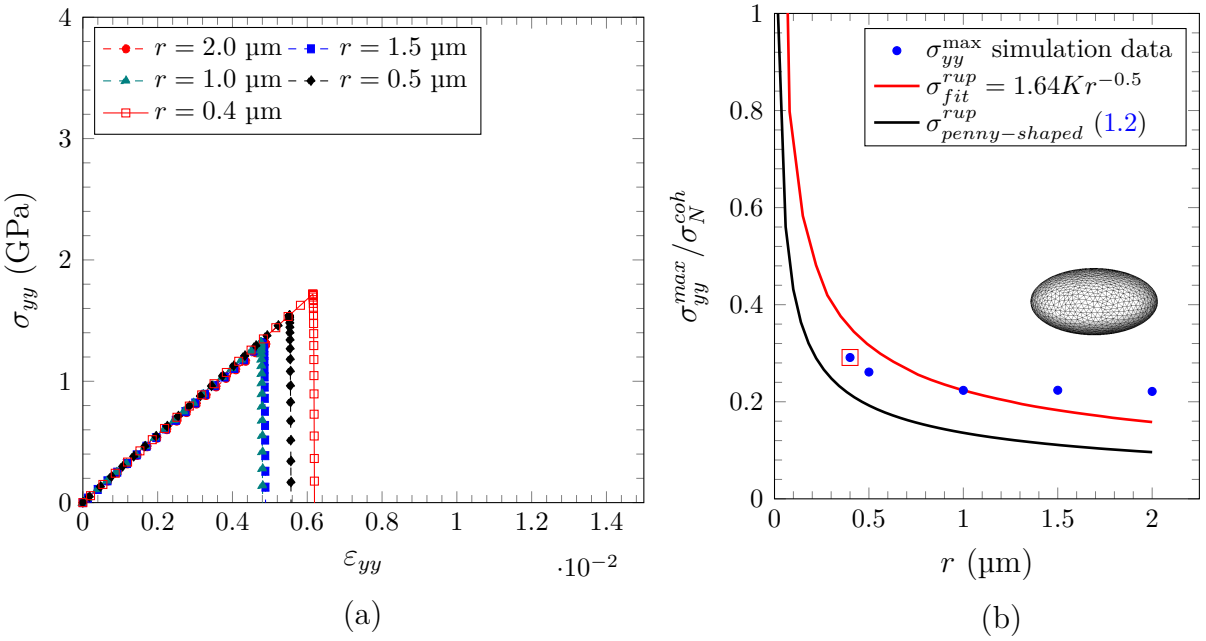


FIGURE 3.19 – Chargement en traction : influence de la taille de bulle de forme ellipsoïdale avec w *= 0.5 : (a) courbe contrainte-déformation pour plusieurs tailles de bulles et (b) courbe adimensionné $\sigma_{yy}^{max}/\sigma_N^{coh}$ en fonction du rayon des bulles r ,□ indique que la bulle est facettisée.*

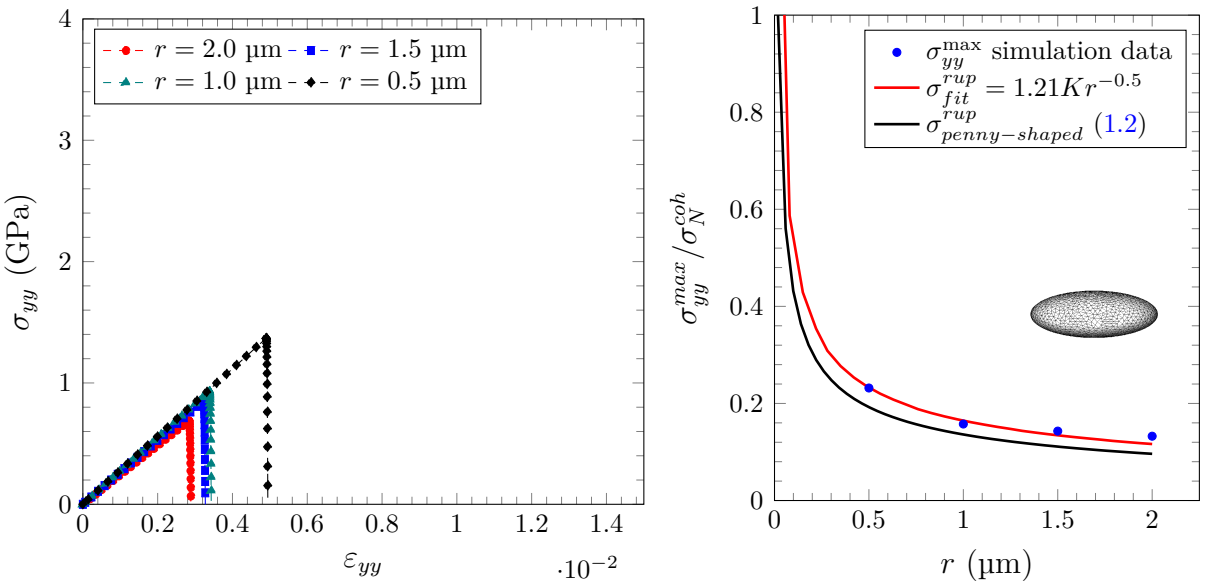
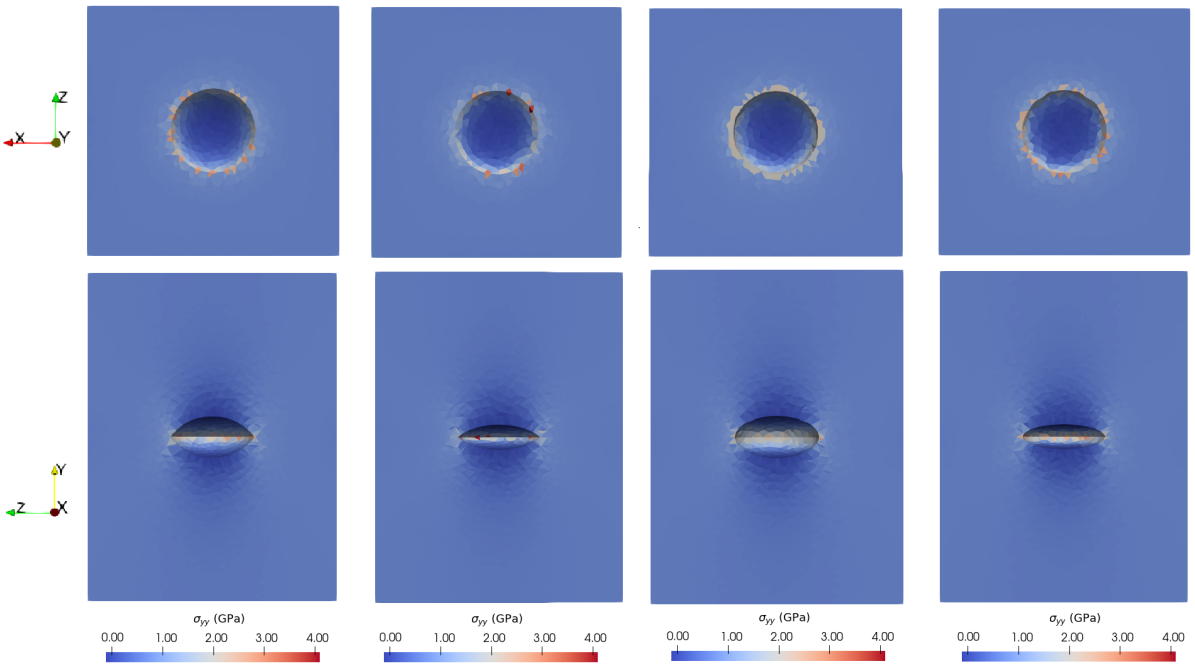


FIGURE 3.20 – Chargement en traction : influence de la taille de bulle de forme ellipsoïdale avec w = *0.3 : (a) courbe contrainte-déformation pour plusieurs tailles de bulles et (b) courbe adimensionnée* $\sigma_{yy}^{max}/\sigma_N^{coh}$ *en fonction du rayon des bulles* r.



(a) lenticulaire w = 0.5 (b) lenticulaire w = 0.3 (c) ellispoïdale w = 0.5 (d) ellispoïdale w = 0.3

FIGURE 3.21 – Champs de contrainte yy pour un chargement en traction des systèmes contenant une bulle de rayon $r = 1.0$ µm *suivant les plans (x,z) et (y,z).*

Le critère de rupture obtenu pour le cas de la traction uniaxiale, pour les bulles lenticulaires, concorde avec le critère de Griffith-Sack de l'équation 3.1. Ce critère permet de calculer analytiquement le facteur d'intensité des contraintes. Ces résultats sont en conformité avec les données expérimentale [5]. La précision du maillage entraîne des résultats moins pertinents pour les bulles ellipsoïdales.

3.4.2 Pression hydrostatique

Les Figures 3.22-3.25 montrent (a) le taux de surfaces rompues en fonction de la pression hydrostatique appliquée pour plusieurs tailles de bulles et (b) la pression à rupture adimensionnée par la contrainte cohésive (5.9 GPa)-rayon de bulle, pour respectivement des bulles lenticulaires et ellipsoïdales de rapports d'aspect w= 0.3 et w= 0.5. Le taux de surfaces rompues correspond à la surface cohésive rompue adimensionnée par la surface cohésive totale.

Remarque : pour des raisons de discrétisation, la pression ne peut être appliquée numériquement dans des bulles de rayon inférieur à 0.1 µm.

Pour des rayons de bulles supérieurs à 1.0 µm, une rupture brutale du joint de grains est observée. Dans ce cas, la rupture est quasi immédiate dès l'initiation de la fissure pour des pressions imposées de l'ordre de 2 GPa (voir Figure 3.22(a)-3.25(a)). Pour des rayons inférieurs à 1.0 µm, la rupture est plus progressive entraînant des pressions imposées plus élevées, supérieures à 5 GPa. Ce résultat s'explique par l'absence de pression post-rupture, qui correspondrait à la diffusion des gaz de fission dans les fissures nouvellement créées. En effet, sans pression post-rupture, seule la pression à l'intérieure de la bulle est le moteur de la rupture pouvant entraîner des déformations élevées pour des petites bulles (< 1 µm) pour rompre de grandes surfaces de joints de grains. Cependant, l'objectif étant l'obtention d'un critère d'initiation, la pression post-rupture n'est pas prise en compte.

Un lissage de type Griffith de la pression à rupture adimensionnée se révèle moins pertinente que dans le cas d'une traction uniaxiale. Ainsi, un lissage du type $\lambda_1 Kr^{\lambda_2}$ (pour rappel, pour Griffith, $\lambda_2 = -0.5$) semble plus adaptée :

- bulle lenticulaire, w=0.5 : $P_{fit}^{rup} = 0.26Kr^{-0.62}$,
- bulle lenticulaire, w=0.3 : $P_{fit}^{rup} = 0.02Kr^{-0.81}$,
- bulle ellipsoïdale, w=0.5 : $P_{fit}^{rup} = 30.87Kr^{-0.32}$,
- bulle ellipsoïdale, w=0.3 : $P_{fit}^{rup} = 0.23Kr^{-0.64}$.

Ces lissages ainsi que la contrainte pour des fissures de type "penny-shaped" sont tracées sur les Figures 3.22(b)-3.25(b). Le critère de type "penny-shaped" reste conservatif pour toutes les configurations.

La visualisation des champs de contraintes de von Mises (voir Figure 3.26) révèle une très forte concentration de la contrainte au niveau des frontières des bulles présentant de faibles rapports d'aspect, permettant ainsi d'atteindre la contrainte cohésive maximale pour de faibles pressions imposées.

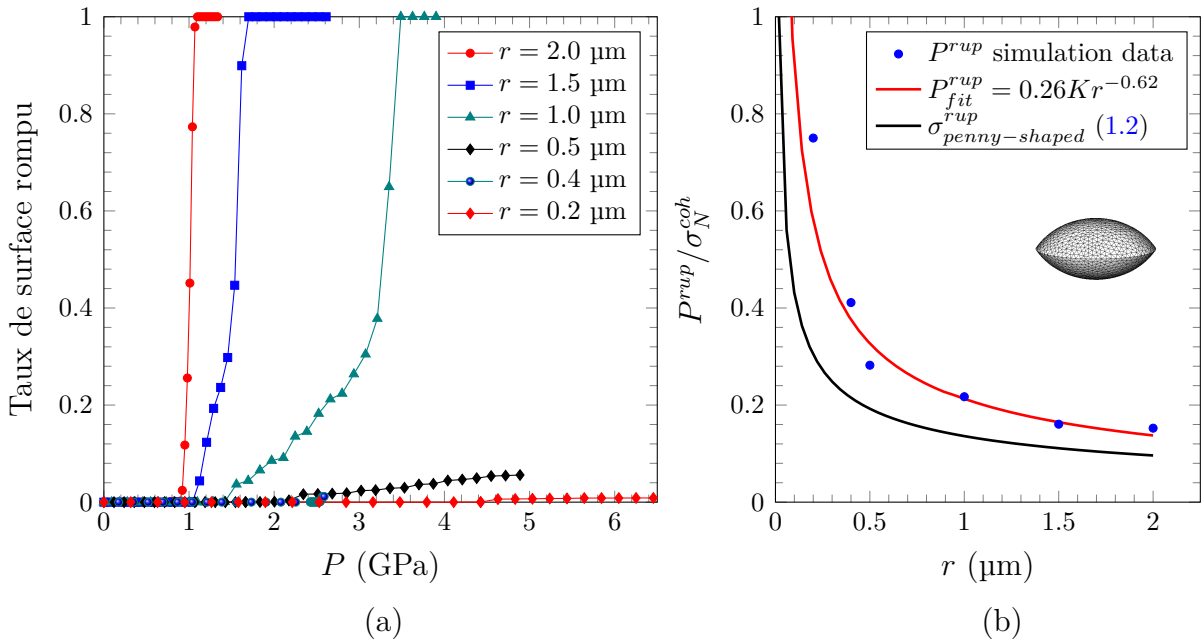


FIGURE 3.22 – Chargement en pression hydrostatique : influence de la taille de bulle de forme lenticulaire avec w= *0.5 : (a) courbe taux de surfaces rompues en fonction de la pression hydrostatique appliquée pour plusieurs tailles des bulles et (b) courbe adimensionnée* P^{rup}/σ_N^{coh} *en fonction du rayon des bulles* r*.*

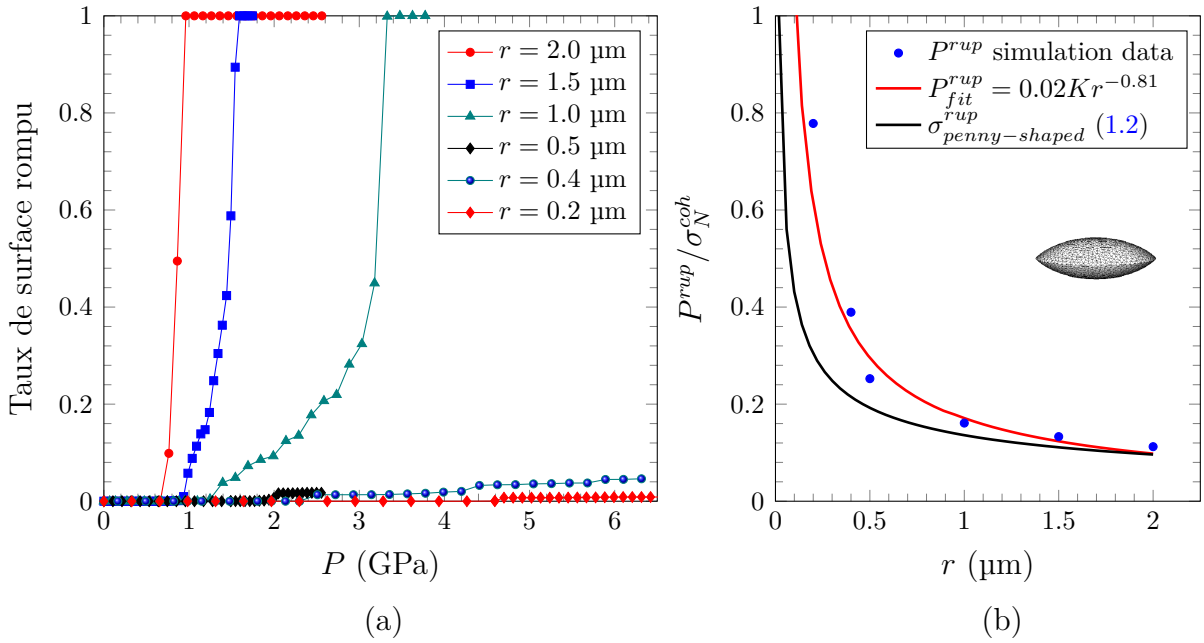


FIGURE 3.23 – Chargement en pression hydrostatique : influence de la taille de bulle de forme lenticulaire avec w= *0.3 : (a) courbe taux de surfaces rompues en fonction de la pression hydrostatique appliquée pour plusieurs tailles des bulles et (b) courbe adimensionnée* P^{rup}/σ_N^{coh} *en fonction du rayon des bulles* r*.*

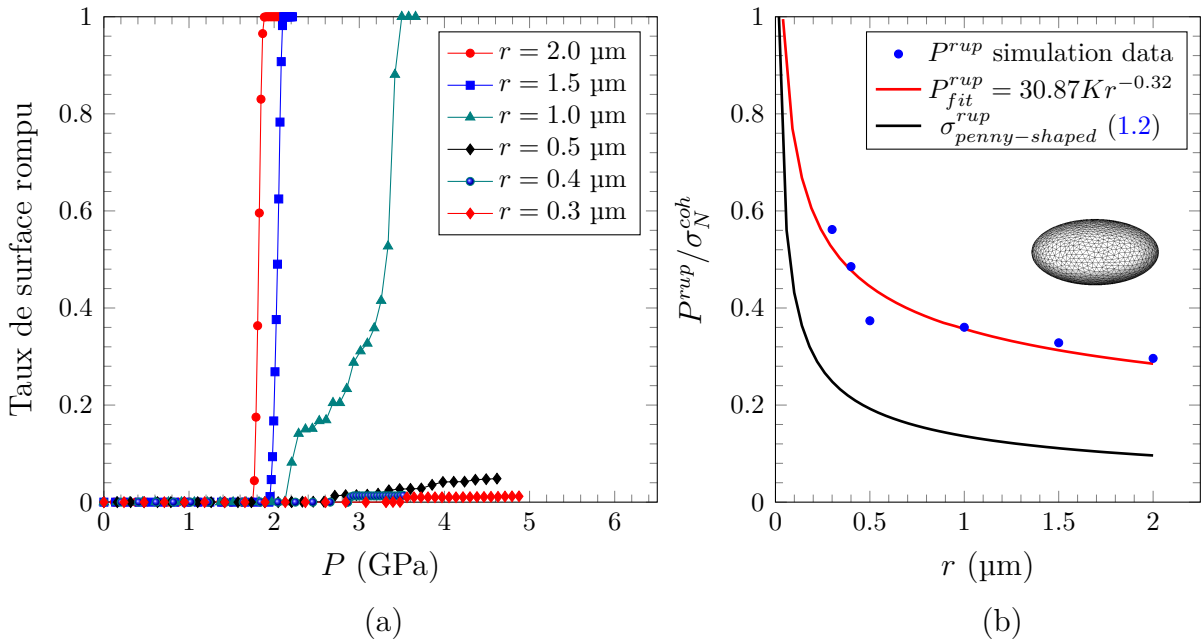


FIGURE 3.24 – Chargement en pression hydrostatique : influence de la taille de bulle de forme ellipsoïdale avec w= *0.5 : (a) courbe taux de surfaces rompues en fonction de la pression hydrostatique appliquée pour plusieurs tailles des bulles et (b) courbe adimensionnée* P^{rup}/σ_N^{coh} *en fonction du rayon des bulles* r*.*

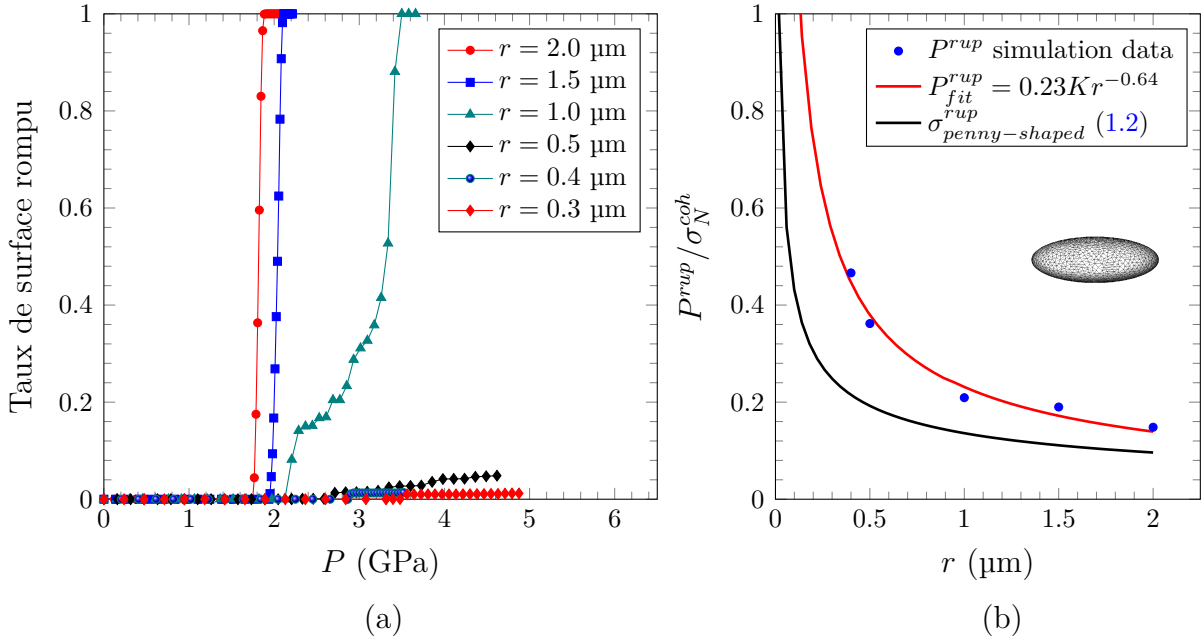
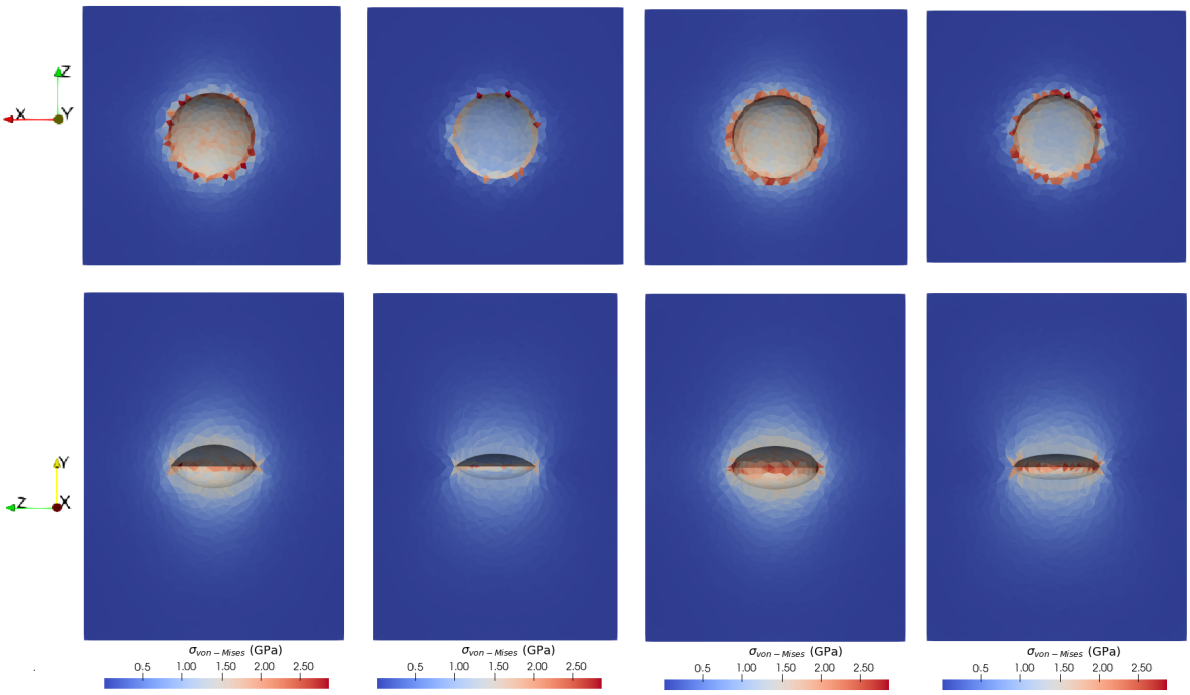


FIGURE 3.25 – Chargement en pression hydrostatique : influence de la taille de bulle de forme ellipsoïdale avec w= *0.3 : (a) courbe taux de surfaces rompues en fonction de la pression hydrostatique appliquée pour plusieurs tailles des bulles et (b) courbe adimensionnée* P^{rup}/σ_N^{coh} *en fonction du rayon des bulles* r*.*



(a) lenticulaire w = 0.5 (b) lenticulaire w = 0.3 (c) ellispoïdale w = 0.5 (d) ellispoïdale w = 0.3

FIGURE 3.26 – Champs de contrainte de von Mises pour un chargement en pression hydrostatique des systèmes contenant une bulle de rayon r = 1.0 µm suivant les plans (x,z) et (yz).

Le critère de Griffith-Sack, dépendant de la racine carrée du rayon, s'avère moins adapté pour le cas de la pression hydrostatique. Les paramètres du critère obtenus, tels que le facteur de contrainte, sont des données empiriques nécessitant une évaluation systématique pour chaque configuration. Le critère de type "penny-shaped" reste conservatif pour toutes les configurations.

3.5 Cas de deux bulles

Dans cette section, l'étude concerne l'effet de la distance inter-bulles sur la rupture dans le cas de deux bulles (voir Figure 3.27).
Compte tenu de la discrétisation adoptée (voir section 3.3.1), seule la forme lenticulaire est considérée. En effet, la forme ellipsoïdale entraîne des maillages particuliers lorsque les bulles sont très proches et nécessite l'utilisation de tailles de mailles très petites.

Les rapports d'aspect considérés sont w= 0.5 et w= 0.3 et le rayon est 1.0 µm. Pour toutes les configurations, la taille du domaine est ajustée à la distance inter-bulles (voir Tableau 3.6) afin de réduire le temps de simulation tout en respectant une taille minimale pour éviter les effets de bord (une analyse des champs de contrainte est systématiquement effectuée, voir l'annexe A).

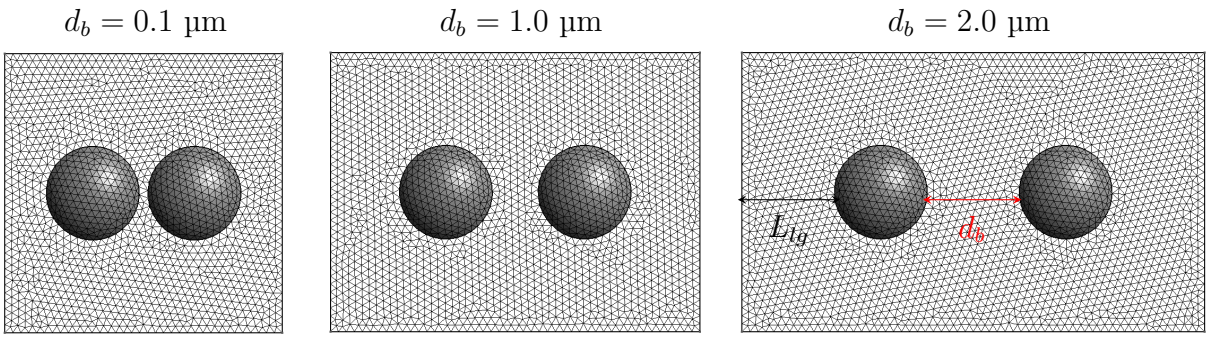


FIGURE 3.27 – Domaines contenant deux bulles de forme lenticulaire de rayon $r = 1.0$ µm, de rapport d'aspect w $= 0.5$ *avec une taille de maille $l_c = 0.175$ µm selon le plan (x,y) d_b désigne la distance entre les bulles.*

distance inter-bulles d_b (µm)	**taille du domaine** (µm^3)
0.1	6 x 8 x 6
0.2	6 x 8 x 6
0.5	6 x 8 x 6
1.0	8 x 8 x 6
1.5	9 x 8 x 6
2.0	10 x 8 x 6

TABLEAU 3.6 – Dimensions du domaine en fonction de la distance entre les deux bulles d_b de rayon de 1.0 µm

3.5.1 Traction uniaxiale

Les Figures 3.28-3.29 montrent (a) les courbes contrainte-déformation pour plusieurs distances inter-bulles et (b) la contrainte maximale adimensionnée par la contrainte cohésive (5.9 GPa)-distance inter-bulles pour des bulles lenticulaires de rayon 1.0 µm et de rapports d'aspect w= 0.5 et w= 0.3.

Une fonction puissance de type $\lambda_1 d_b^{\lambda_2}$ permet d'interpoler les contraintes maximales adimensionnées pour les deux rapports d'aspect :

— $r = 1$ µm et w= 0.5 : $\sigma_{fit}^{rup} = 2.63 d_b^{0.076}$,
— $r = 1$ µm et w= 0.3 : $\sigma_{fit}^{rup} = 2.69 d_b^{0.083}$.

Ces lissages ainsi que la contrainte maximale adimensionnée pour les cas d'une seule bulle de même rayon et d'un rayon double sont tracées sur les Figures 3.28(b)-3.29(b). Les cas avec une seule bulle constituent une borne inférieure pour un rayon double et une borne supérieure pour le même rayon.

Ainsi, suivant la distance inter-bulles, deux comportements sont mis en évidence :

— Lorsque la distance inter-bulles est inférieure à 0.1 µm, le système se comporte comme s'il ne contenait qu'une seule bulle de rayon deux fois le rayon considéré (2 µm pour des bulles de 1 µm). La Figure 3.30 (a) montre une interaction des champs de contraintes yy autour des bulles.

— Lorsque la distance inter-bulles est supérieure au rayon des bulles, le système se comporte comme s'il ne contenait qu'une seule bulle de même rayon. La Figure 3.30 (b) montre une indépendance des champs de contraintes yy autour des bulles.

3.5.2 Pression hydrostatique

Les Figures 3.31-3.32 montrent (a) le taux de surfaces rompues en fonction de la pression hydrostatique appliquée pour plusieurs distance inter-bulles et (b) la pression à rupture adimensionée par la contrainte cohésive (5.9 GPa)-distance inster-bulles pour des bulles lenticulaires de rayon 1.0 µm et de rapports d'aspect w= 0.5 et w= 0.3.

Dans tous les cas, une rupture brutale du joint de grains est observé avec une rupture quasi immédiate dès l'initiation des fissures (Figures 3.31(a)-3.32(a)).

Un lissage en loi puissance de type $\lambda_1 d_b^{\lambda_2}$ de la pression à rupture adimensionnée est réalisée :

— $r = 1$ µm et w= 0.5 : $P_{fit}^{rup} = 7.18 d_b^{0.12}$,

— $r = 1$ µm et w= 0.3 : $P_{fit}^{rup} = 4.90 d_b^{0.11}$.

Ces lissages ainsi que la pression à rupture adimensionnée pour les cas d'une seule bulle de même rayon et d'un rayon double sont tracées sur les Figures 3.31(b)-3.32(b). Comme pour la traction uniaxiale, les cas avec une seule bulle constituent une borne inférieure pour un rayon double et une borne supérieure pour le même rayon.
Les deux comportements suivants sont mis en évidence :

— Lorsque la distance inter-bulles est inférieure à 0.1 µm, le système se comporte comme s'il ne contenait qu'une seule bulle de rayon deux fois le rayon considéré (2 µm). La Figure 3.33 (a) montre une interaction des champs de contraintes yy autour des bulles.

— Lorsque la distance inter-bulles est supérieure à 1 µm ou à 2 µm pour respectivement les rapports d'aspect w= 0.5 et w= 0.3, le système se comporte comme s'il ne contenait qu'une seule bulle de même rayon. La Figure 3.33 (b) montre une indépendance des champs de contraintes yy autour des bulles.

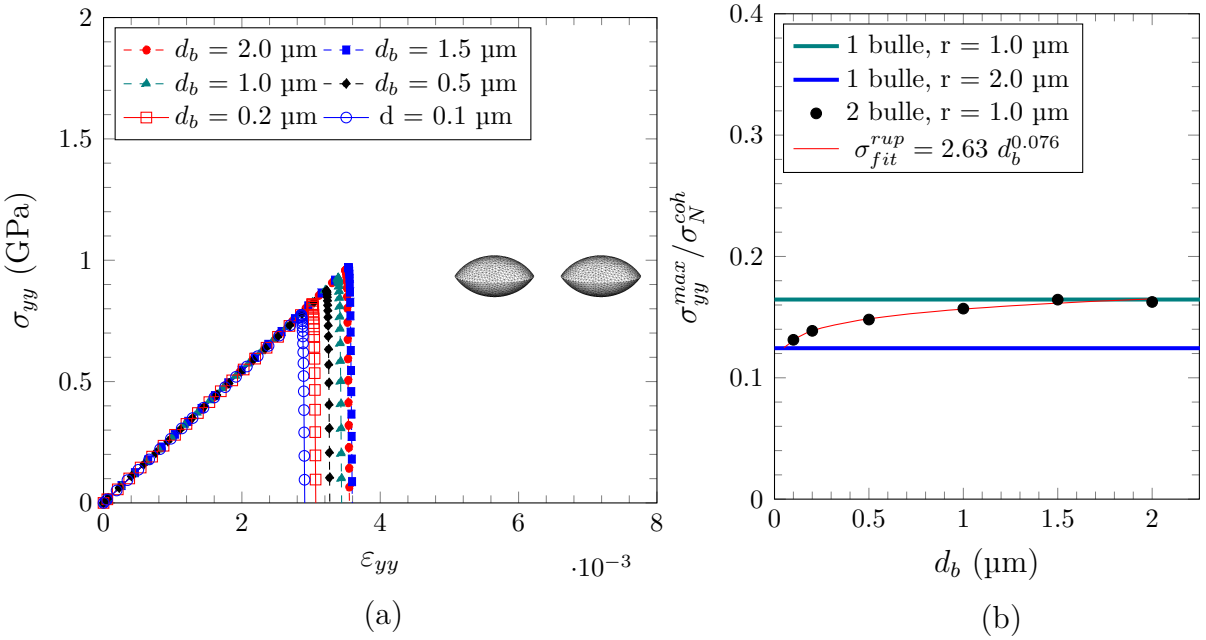


FIGURE 3.28 – Chargement en traction : influence de la distance entre les bulles d_b pour une forme lenticulaire avec w *= 0.5 et r = 1.0* µm *: (a) courbe contrainte-déformation pour plusieurs distances inter-bulles et (b) courbe adimensionnée $\sigma_{yy}^{max}/\sigma_N^{coh}$ en fonction de la distance entre les bulles d_b.*

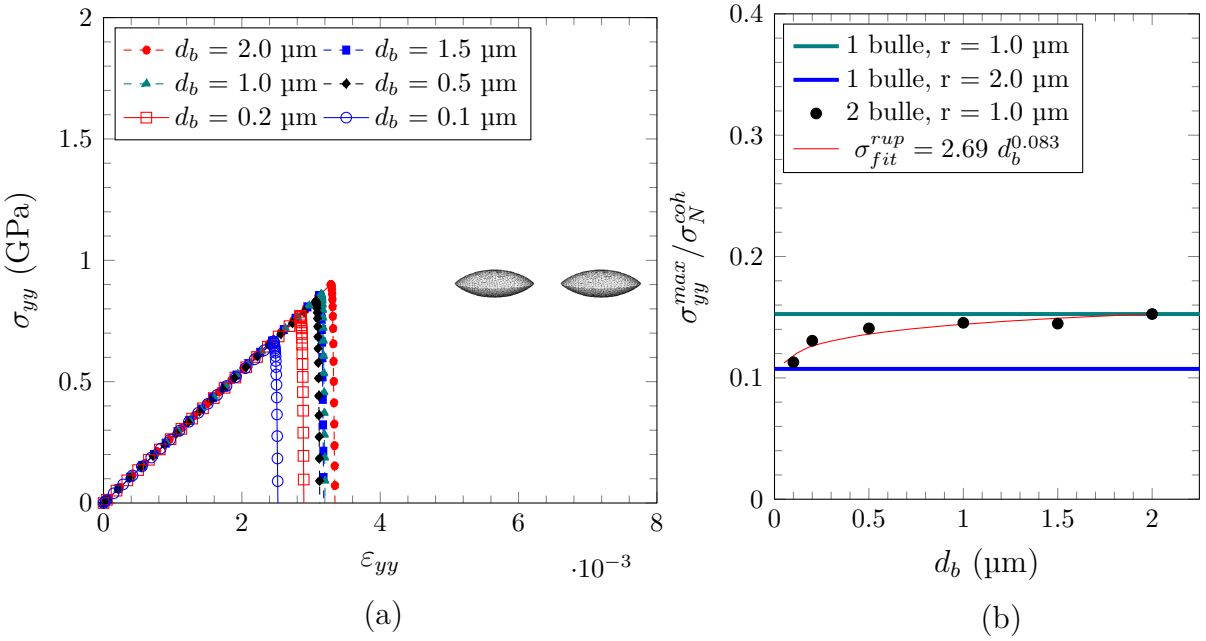
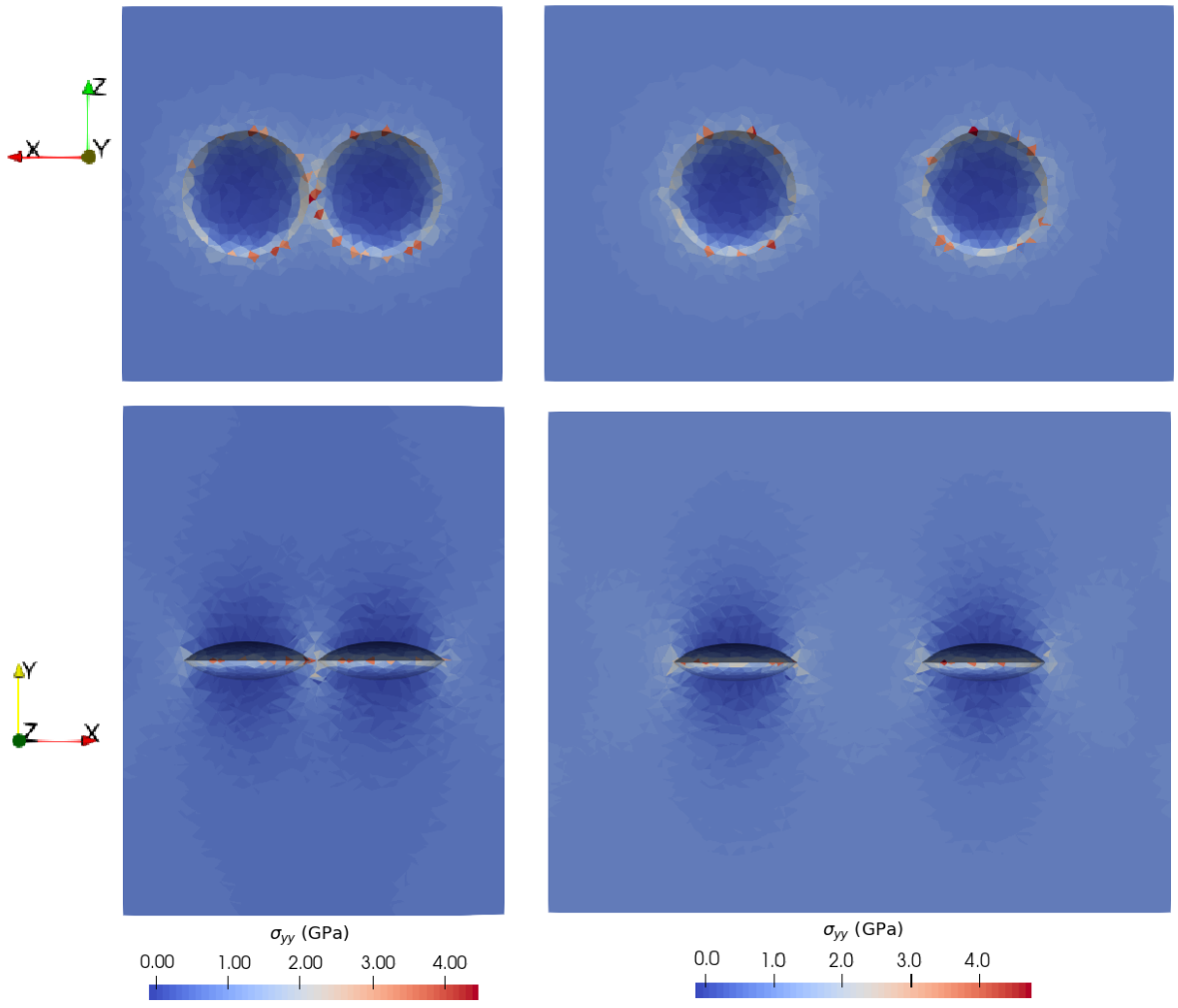


FIGURE 3.29 – Chargement en traction : influence de la distance entre les bulles d_b pour une forme lenticulaire avec w *= 0.3 et r = 1.0* µm *: (a) courbe contrainte-déformation pour plusieurs distances inter-bulles et (b) courbe adimensionnée $\sigma_{yy}^{max}/\sigma_N^{coh}$ en fonction de la distance entre les bulles d_b.*



(a) $d_b = 0.1$ µm (b) $d_b = 2.0$ µm

FIGURE 3.30 – Champs de contrainte yy pour un chargement en traction des systèmes contenant deux bulles lenticulaires de rayon $r = 1.0$ µm et $w = 0.3$ pour des distances inter-bulles de (a) $d_b = 0.1$ µm et (b) $d_b = 2$ µm.

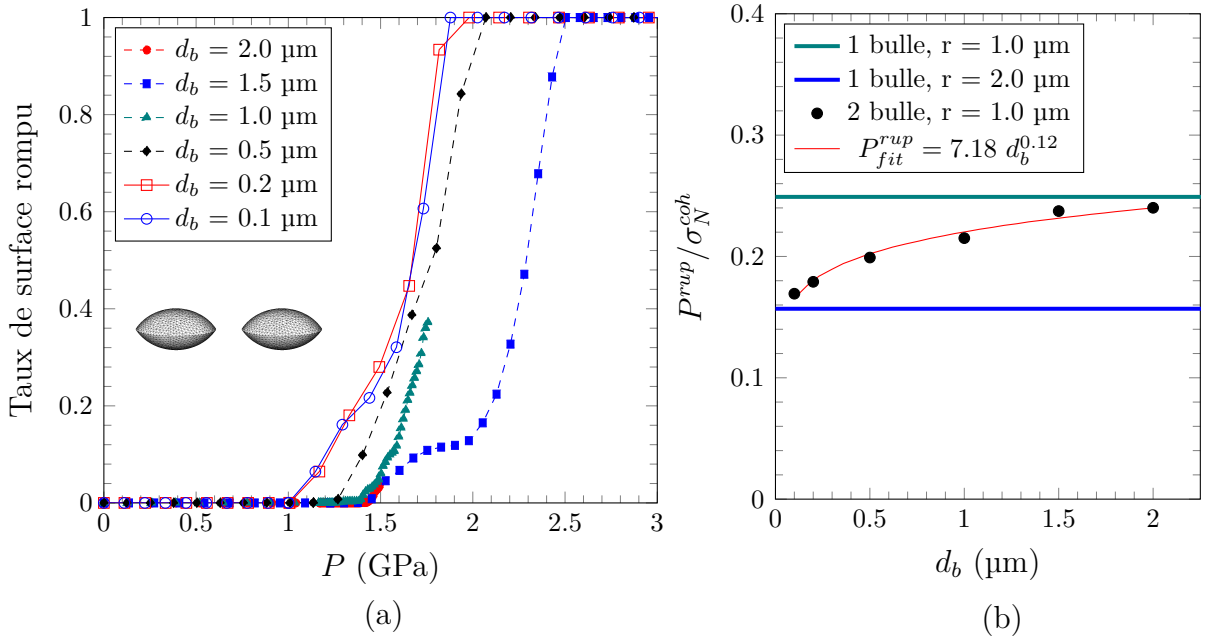


FIGURE 3.31 – Chargement en pression hydrostatique : influence de la distance entre les bulles d_b pour une forme lenticulaire avec w = 0.5 *et* r = 1.0 µm *: (a) courbe pression-taux de surface rompu pour plusieurs distances inter-bulles et (b) courbe de la pression à rupture adimensionnée P^{rup}/σ_N^{coh} en fonction de la distance entre les bulles d_b.*

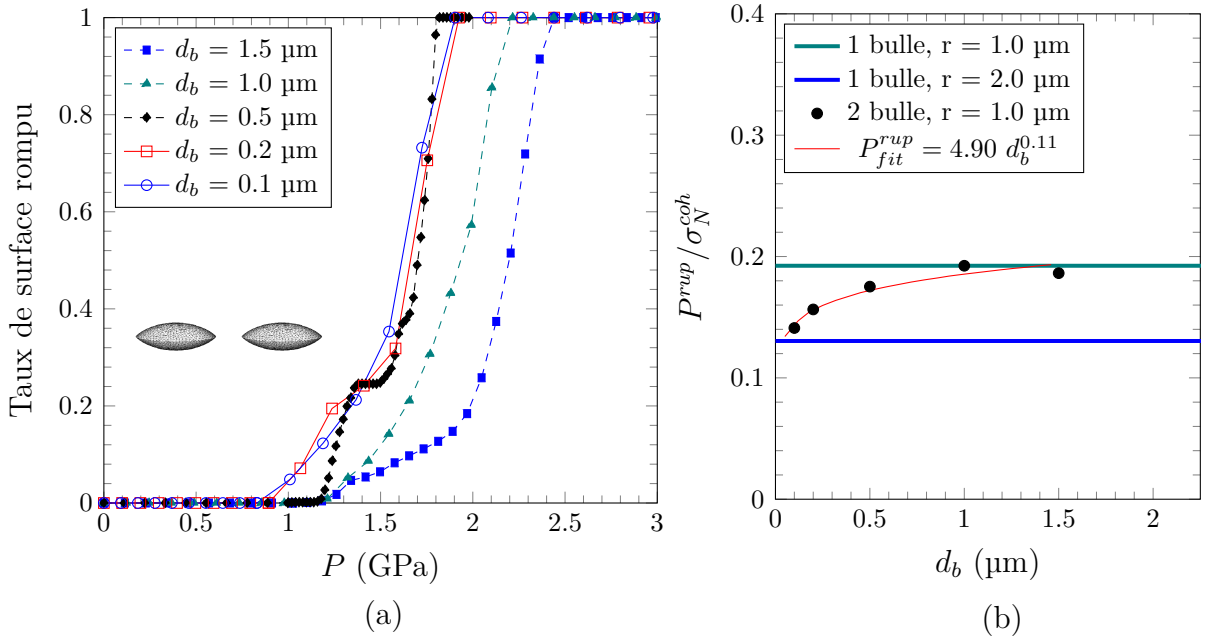
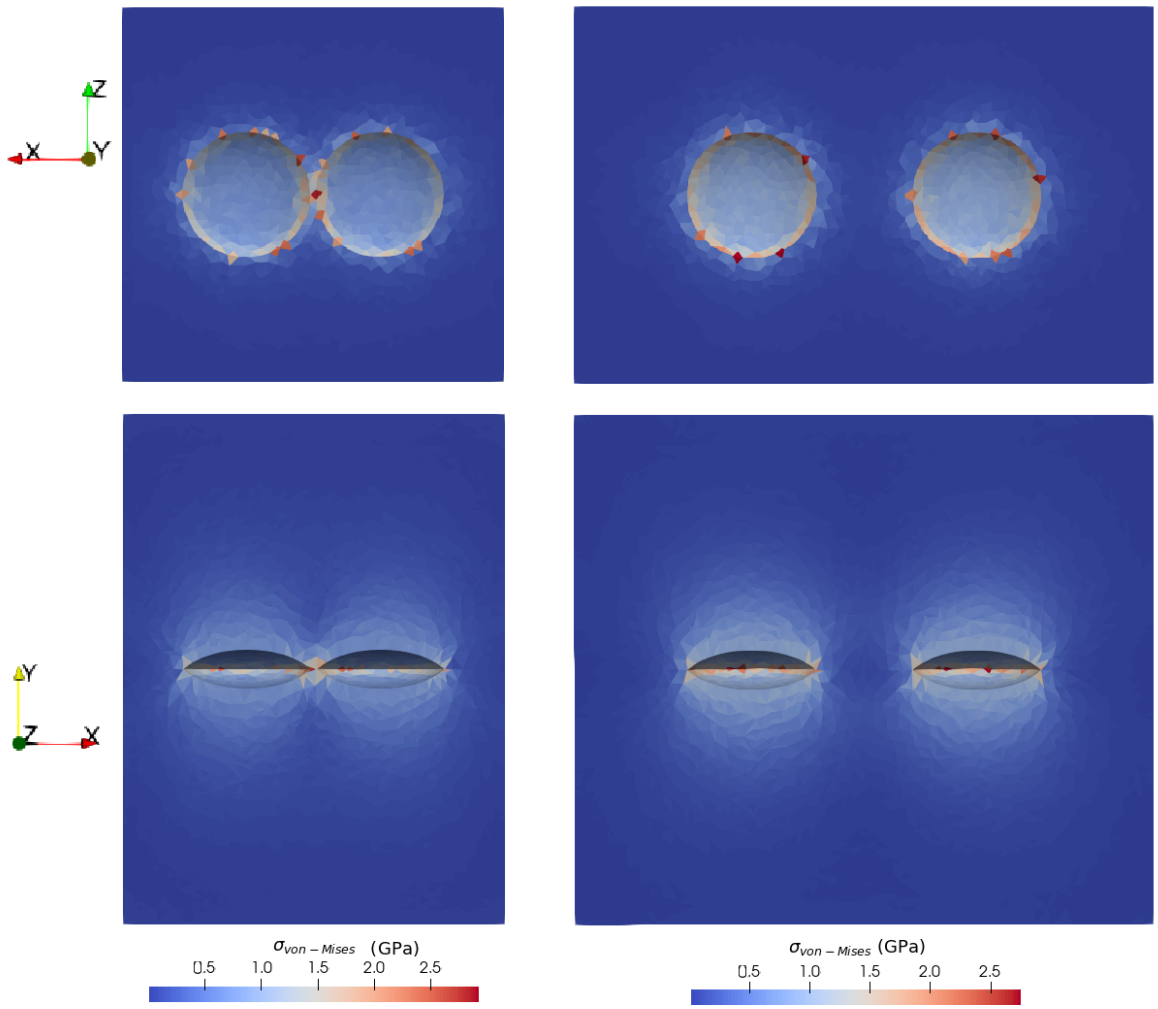


FIGURE 3.32 – Chargement en pression hydrostatique : influence de la distance entre les bulles d_b pour une forme lenticulaire avec w = 0.3 *et* r = 1.0 µm *: (a) courbe pression-taux de surface rompu pour plusieurs distances inter-bulles et (b) courbe de la pression à rupture adimensionnée P^{rup}/σ_N^{coh} en fonction de la distance entre les bulles d_b.*



(a) $d_b = 0.1$ µm (b) $d_b = 1.5$ µm

FIGURE 3.33 – Champs de contrainte de von Mises pour un chargement en pression hydrostatique des systèmes contenant deux bulles lenticulaires de rayon $r = 1.0$ µm *et* w= 0.3 *pour des distances inter-bulles de (a)* $d_b = 0.1$ µm *et (b)* $d_b = 2.0$ µm.

3.6 Critère de rupture des joints de grains

Un critère de rupture des joints de grains est proposé pour les bulles de forme lenticulaire. Il repose sur les résultats suivants :

— Lorsque la distance inter-bulles d_b est inférieure à une distance caractéristique d_b^{cr}, les bulles se comportent comme une seule bulle de rayon nr ($n \in \mathbb{N}$) avec n le nombre de bulles. Ce comportement est décrit par la fonction :

$$\sigma_{nr,d_b}^{rup} = \lambda_1 K (nr)^{\lambda_2} \sigma_N^{coh} \quad \text{si } d_b < d_b^{c1} \tag{3.14}$$

— Lorsque la distance inter-bulles d_b est supérieure à une distance caractéristique d_b^{c2}, les bulles se comportent comme une seule bulle isolée de rayon r. Ce comportement est décrit par la fonction :

$$\sigma^{rup}_{nr,d_b} = \lambda_1 K r^{\lambda_2} \sigma^{coh}_N \quad \text{si } d_b > d^{c2}_b \tag{3.15}$$

— Lorsque la distance inter-bulles $d_b \in]d^{c1}_b, d^{c2}_b[$, les bulles se comportent comme une bulle de rayon intermédiaire dont le comportement est décrit par la fonction :

$$\sigma^{rup}_{nr,d_b} = \lambda_3 d_b^{\lambda_4} \left(\lambda_1 K r^{\lambda_2} \sigma^{coh}_N \right) \tag{3.16}$$

Les données concernant les paramètres λ_1, λ_2, λ_3 et λ_4 en fonction du rapport d'aspect et du type de chargement sont regroupées dans le Tableau 3.7.

Type d'essai / w	λ_1	λ_2	λ_3	λ_4
Traction / 0.5	1.25	-0.5	2.63	0.076
Traction / 0.3	1.14	-0.5	2.69	0.083
Pression / 0.5	0.26	-0.62	7.18	0.12
Pression / 0.3	0.02	-0.81	4.90	0.11

TABLEAU 3.7 – Valeurs des paramètres λ_1, λ_2, λ_3 et λ_4 lorsque la distance inter-bulles $d_b \in]0.1, 2[$ µm pour des bulles lenticulaires.

Dans les équations 3.14, 3.15 et 3.16, σ^{coh}_N représente la contrainte cohésive, K est le facteur d'intensité des contraintes, n correspond au nombre de bulles, et les paramètres λ_1, λ_2, λ_3 et λ_4 dépendent du type de chargement, de la forme et de la taille des bulles. Sous un chargement en traction, $\lambda_1 = \cos\frac{\alpha}{2}\left(1 + \sin\frac{\alpha}{2}\sin\frac{3\alpha}{2}\right)$ correspond à l'angle dièdre, et $\lambda_2 = -0.5$. Ce critère est représenté graphiquement sur la Figure 3.34.

Les seuils de rupture obtenus pour une bulle isolée sont du même ordre de grandeur que les résultats expérimentaux de [5]. Pour des rayons de bulle de 0.1 µm et 2.0 µm, les contraintes à rupture obtenues par [5] sont respectivement de 1.5 GPa et de 0.1 GPa, et environ de 3.5 GPa et de 0.8 GPa respectivement pour le cas d'une bulle lenticulaire avec w=0.5. Ces valeurs plus élevées sont dues à la prise en compte d'un matériau parfait ne contenant que des joints de grains comme seuls défauts. D'une part, un modèle plus complet prenant en La prise en compte des bulles de diamètres inférieurs à 50 nm pourrait fournir des résultats proches de ceux des expérimentaux. De plus, une étude paramétrique sur la position des bulles, par exemple aléatoire comme [5], dans pourrait offrir une meilleure compréhension.

La revue de bibliographique de [109] sur les critères de rupture des chapelets de bulles intergranulaires, montre que les critères dépendent généralement des propriétés géométriques telles que la taille, la forme et le taux de recouvrement des bulles. Parmi les critères existants, les critères énergétique de Chakraborty et al. [52] et en contrainte d'Olander [110] (utilisé dans SCANAIR [1, 2]) sont les plus pertinent. Ces critères sont présentés dans la section 1.2.2.

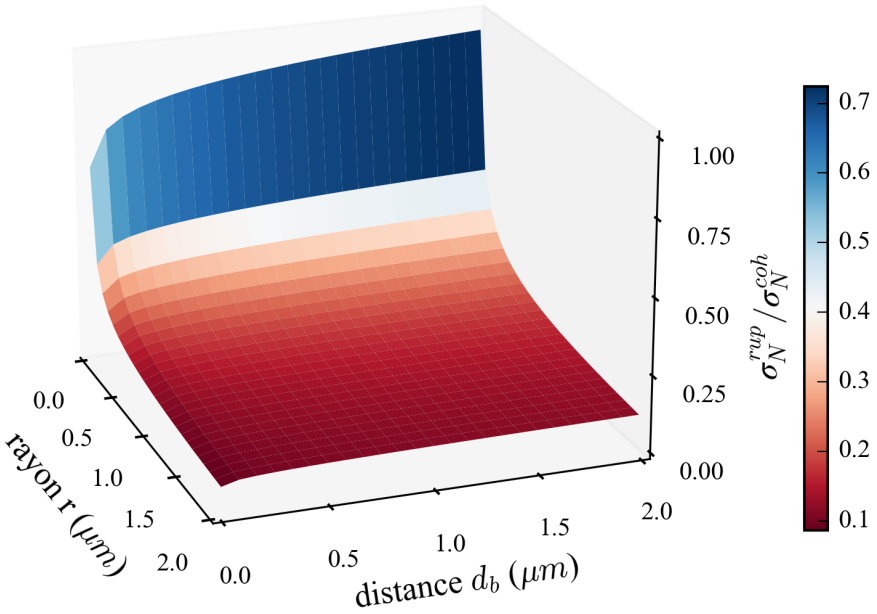


FIGURE 3.34 – Critère de rupture des joints de grains en fonction du rayon des bulles r et de la distance inter-bulles pour des bulles de forme lenticulaire : cas du rapport d'aspect w=0.5 *sous un chargement en traction.*

Le critère proposé, fondé sur la théorie de Griffith (critère énergétique), peut permettre d'établir une corrélation entre la distance inter-bulle et le taux de recouvrement dans le critère de Chakraborty et al. [52].

3.7 Bilan du chapitre

L'étude à l'échelle des grains, à l'aide d'un modèle de zone cohésive, permet de décrire le comportement à la rupture des joints de grains dans l'UO_2, en utilisant des données identifiées à l'échelle atomistique. Cette étude vise à établir un critère de rupture des joints de grains en fonction des paramètres matériaux (module d'élasticité, énergie de fissuration et contrainte à la rupture) et des sollicitations.

Les paramètres de la loi cohésive, déterminés à l'échelle atomistique, sont compatibles avec les simulations micro mécaniques à l'échelle mésoscopique.

Les études préliminaires sur la sensibilité au maillage, ainsi que l'influence de la taille du système contenant une bulle, ont permis de déterminer les dimensions optimales en termes de temps de calcul pour les mailles et le domaine. La taille de maillage adoptée, étant un compromis entre la précision et le temps de calcul, permet d'analyse que des bulles de tailles supérieures à 0.1 µm. L'adoption d'un maillage plus fin conduit à des temps de calcul prohibitifs.

La présence de bulles fait rapidement chuter la résistance de la structure. La contrainte à la rupture diminue à mesure que la taille des bulles augmente, entraînant une fragilisation croissante de la structure.

Concernant les analyses des systèmes contenant une bulle, les résultats obtenus sont en conformité avec les données de la littérature [5,52]. Des critères de rupture sont proposés, obtenus par lissage des courbes associant la contrainte maximale au rayon des bulles. Pour le cas de la traction uniaxiale, le critère de Griffith-Sack se révèle approprié pour les bulles lenticulaires, permettant ainsi l'utilisation de l'angle dièdre pour calculer le facteur d'intensité des contraintes. Quant aux bulles ellipsoidales, des données empiriques sont nécessaires afin d'évaluer le facteur d'intensité de contrainte en fonction du rapport d'aspect. Pour le cas de la pression hydrostatique, le modèle de Griffith-Sack, dépendant de la racine carrée du rayon, s'avère moins adapté. Le critère de type "penny-shaped" reste conservatif pour toutes les configurations.

Un critère de distance inter-bulles est proposé, permettant de prédire le comportement à la rupture des joints de grains en fonction de la distance entre les bulles. Si la distance inter-bulles est très faible, le système se comporte comme s'il ne contenait qu'une seule bulle de rayon deux fois le rayon considéré. Si la distance inter-bulles est suffisamment grande, le système se comporte comme s'il ne contenait qu'une seule bulle de même rayon.

Conclusion et perspectives

Ce travail de thèse contribue à l'analyse du comportement thermomécanique du combustible nucléaire en conditions accidentelles. Pendant un accident de réactivité (RIA), la température du combustible augmente rapidement, entraînant une surpression des bulles intergranulaires et la rupture des joints de grains, libérant les gaz de fission. Le code SCANAIR [1, 2], développé à l'IRSN, simule ce relâchement, mais utilise des seuils de rupture empiriques [110] nécessitant une définition plus rigoureuse en se basant sur des données expérimentales et sur la théorie. Dans cette étude, on cherche à déterminer ces seuils de rupture des joints de grains à l'aide d'une approche multiéchelle atomistique/mésoscopique. L'approche multiéchelle consiste, à identifier les paramètres mécaniques à l'échelle atomistique afin de simuler la rupture des joints de grains à l'échelle mésoscopique.

À l'échelle atomistique, le potentiel semi empirique à charges variables prenant en compte l'environnement des atomes, SMTB-Q, est utilisé pour l'étude des phénomènes de rupture des joints de grains dans l'UO_2 à l'aide du logiciel LAMMPS [4]. À partir des paramètres mécaniques identifiés à cette échelle, la rupture des joints de grains contenant des bulles intergranulaires est étudiée à l'échelle mésoscopique, à l'aide d'une approche cohésive-volumétrique basée sur des concepts de zone cohésive frottante (MZCF) [104]. La modélisation numérique des systèmes multicorps s'appuyant sur l'approche Non Smooth Contact Dynamics (NSCD) [7] est utilisée. Les calculs micro mécaniques sont réalisés à l'aide du code de calcul XPER [7] développé par l'IRSN.

Résultats à l'échelle atomistique

À l'échelle atomistique, le travail consiste à déterminer les paramètres cohésifs du modèle micro mécanique.

Dans un premier temps, une étude est réalisée sur les stabilités relatives et la structure de trois joints de grains considérés comme représentatifs pour l'UO_2. Les résultats obtenus sont en accord avec les données théoriques et expérimentales de la littérature. Le joint de grains relaxé $\Sigma 3$ est le plus stable, puis $\Sigma 5$ et enfin $\Sigma 29$. Alors que la relaxation du système de joints de grains $\Sigma 3$ n'entraîne pas de réarrangements atomiques significatifs, les systèmes relaxés $\Sigma 5$ et $\Sigma 29$ montrent une réorganisation des sous-réseaux d'uranium et d'oxygène aux joints de grains. Dans le joint de grains relaxé $\Sigma 5$, les atomes d'uranium présentent un arrangement local spécifique avec des motifs triangulaires observés expérimentalement [81].

L'analyse structurale des systèmes de joints de grains sous traction uniaxiale jusqu'à la

rupture, effectuée dans une large gamme de températures, de 300 K à 1750 K, ne révèle aucune formation de nouvelles phases ou de dislocations. Ceci suggère un comportement fragile à la rupture pour les joints de grains d'UO_2 considérés. De plus, tous les systèmes subissent la rupture au long du joint de grains. Ces résultats sont tous corroborés par des études expérimentales récentes [5] menées sur des échantillons de taille micrométrique à 300 K.

L'identification des paramètres des lois cohésives des joints de grains de l'UO_2 à partir de simulations de dynamique moléculaire est établie. Ces lois sont ajustées à des données de simulation à différentes températures. Cependant, leur validité à des vitesses de déformation plus faibles, comme celles présentes dans les simulations à l'échelle mésoscopique, peut être remise en question. Des études plus approfondies, utilisant plusieurs paramètres de zone cohésive à différentes températures et vitesses de chargement, pourraient fournir des informations sur le comportement mésoscopique du bicristal de dioxyde d'uranium.

Résultats à l'échelle mésoscopique

Les paramètres de la loi cohésive, déterminés à l'échelle atomistique, sont compatibles avec les simulations micro mécaniques à l'échelle mésoscopique. Les résultats obtenus sont en conformité avec les données de la littérature [5, 52]. Le modèle de zone cohésive utilise, en tant que données d'entrée, les modules d'élasticité, l'énergie de fissuration, et la contrainte à la rupture.

L'étude de la rupture dans le cas d'une bulle isolée permet d'établir plusieurs critères en fonction du chargement et de la forme des bulles. Le critère de Griffith-Sack se révèle approprié pour prédire le comportement de l'UO_2 contenant des bulles intergranulaires de forme lenticulaire lors d'une traction uniaxiale. Le rapport de forme peut être calculé analytiquement en fonction de l'angle dièdre. En revanche, le modèle racine carrée de Griffith-Sack est moins adapté dans le cas d'un chargement en pression hydrostatique, nécessitant l'utilisation de fonctions analytiques appropriées. Le rapport de forme est évalué à l'aide des données de simulations. Le critère de type "penny-shaped" reste conservatif pour toutes les configurations.

L'étude de la rupture dans le cas de plusieurs bulles a permis d'établir un critère en fonction de la distance entre les bulles. Lorsque la distance entre les bulles (d_b) est très faible, elles agissent comme une seule bulle de rayon deux fois le rayon considéré. Lorsque la distance est suffisamment grande, le système se comporte comme s'il ne contenait qu'une seule bulle de même rayon. Entre ces deux distances, les bulles se comportent comme une bulle de rayon intermédiaire. Ce critère, basé sur la théorie de Griffith, pourrait permettre d'établir une corrélation entre la distance inter-bulles et le taux de recouvrement dans le critère de Chakraborty et al. [52], pour ensuite être intégré dans SCANAIR.

Perspectives

Le présent travail a permis d'ouvrir la voie de la remontée d'échelle atomistique/ mésoscopique, étape nécessaire dans les études multi-échelle des phénomènes de rupture des

joints de grains, comme ceux ayant lieu dans les combustibles nucléaires tel l'UO_2. Ainsi, des paramètres de lois cohésives et des propriétés élastiques ont été déterminés à partir de données de simulations atomistiques de dynamique moléculaire et employés avec succès dans des calculs micromécaniques. À leur tour, les calculs micromécaniques ont fourni des résultats qui alimenteront des critères de rupture utilisables dans des simulations du comportement thermomécanique global des crayons combustibles dans les réacteurs nucléaires, en conditions normales de fonctionnement, mais également en situations accidentelles. Cependant, les résultats obtenus dans cette étude sur des bicristaux d'UO_2 doivent être complétés par des analyses plus approfondies des différents aspects.

D'abord, les paramètres de la loi cohésive ont été déterminés en utilisant un taux de déformation très élevé (10^8 s^{-1}) dans les simulations atomistiques. Par conséquent, comme mentionné précédemment, leur validité à des vitesses de déformation plus faibles, comme celles employées dans les simulations à l'échelle mésoscopique est sujet à questions. Une réponse pourra être apportée suite à de futures campagnes de calculs micro-mécaniques à différentes températures et vitesses de chargement, où plusieurs jeux de paramètres cohésifs seront employés.

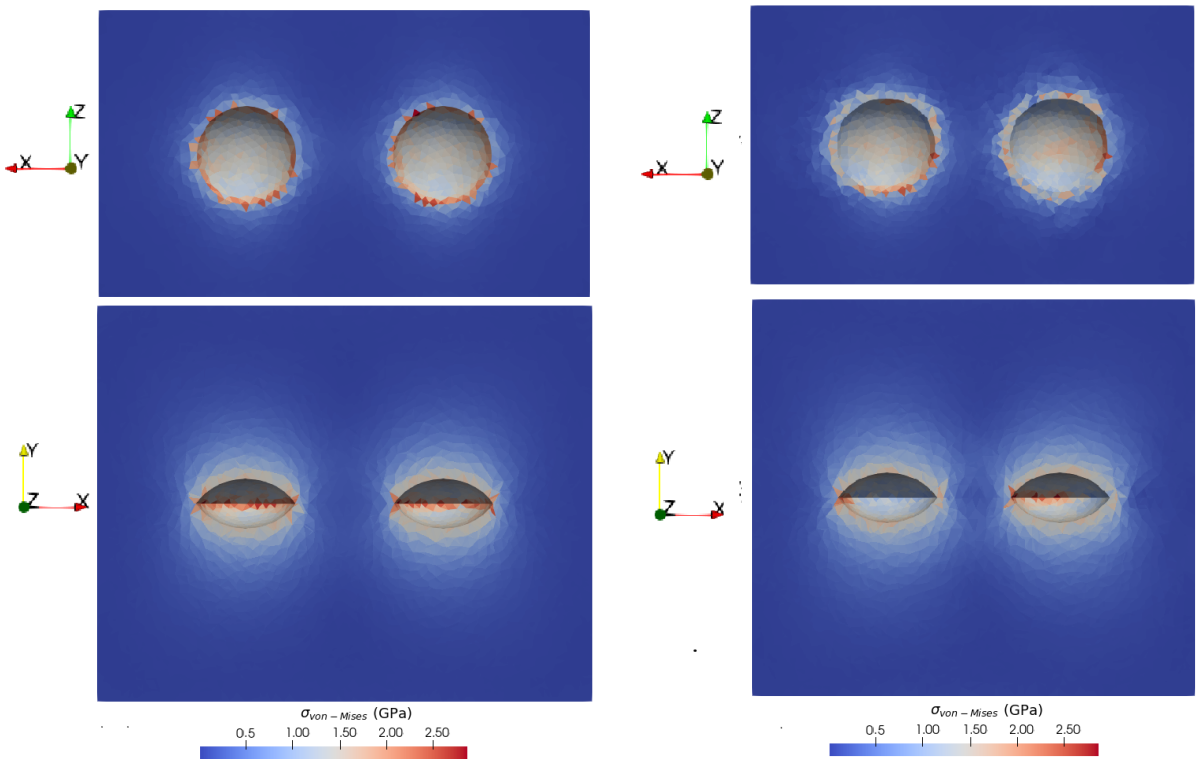
Ensuite, vu le fait que, dans les présentes simulations, la viscoplasticité n'a pas été prise en compte dans les lois de comportement volumique, elle devra être considérée dans de futurs calculs. Il est important d'établir si à des vitesses de chargement et températures caractéristiques à des différentes situations accidentelles, la plasticité joue un rôle dans les processus de rupture des joints de grains.

Enfin, la rupture des joints de grains a été traitée à l'échelle mésoscopique uniquement pour le cas d'un joint de grains de type $\Sigma 29$. Il faudra étendre cette analyse aux autres deux joints de grains, $\Sigma 3$ et $\Sigma 5$, les paramètres cohésifs et les propriétés élastiques nécessaires pour les simulations micromécaniques étant disponibles. Détenir l'ensemble complet des résultats micromécaniques sur les trois joints de grains permettra ensuite de tirer des conclusions à caractère plus général que celles de la présente étude.

Dans un autre ordre d'idées, l'étude multi-échelle des processus de rupture ayant lieu dans l'UO_2 devra être étendu du cas bicristallin au cas polycristallin. À cette fin, de nouveaux paramètres de lois cohésives normales et tangentielles pour les joints de grains et les monocristaux d'UO_2 seront déterminés à l'échelle atomistique. A l'échelle mésoscopique, sera étudié le comportement mécanique à rupture d'un polycristal d'UO_2 contenant des défauts tels que des pores et des bulles intragranulaires et intergranulaires.

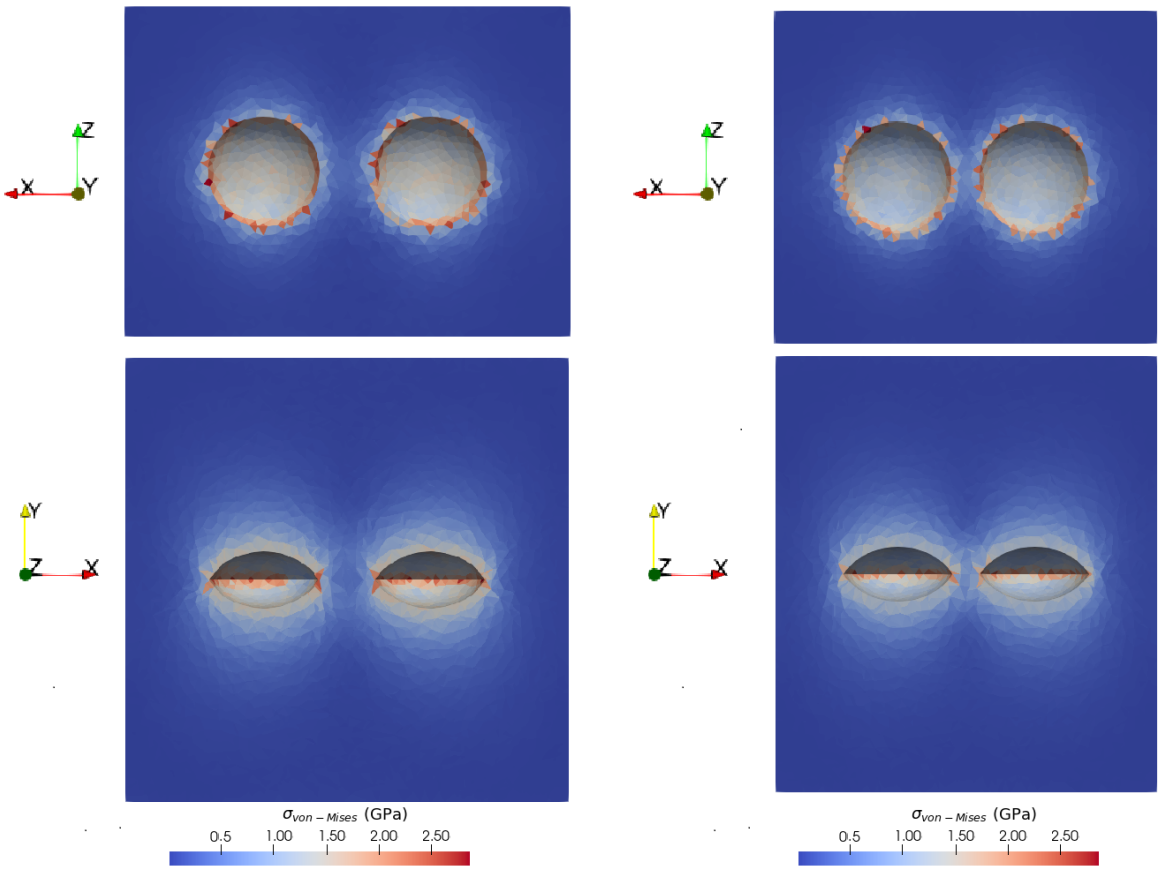
Annexe A

Quelques visualisations de champs de contrainte : cas de deux bulles



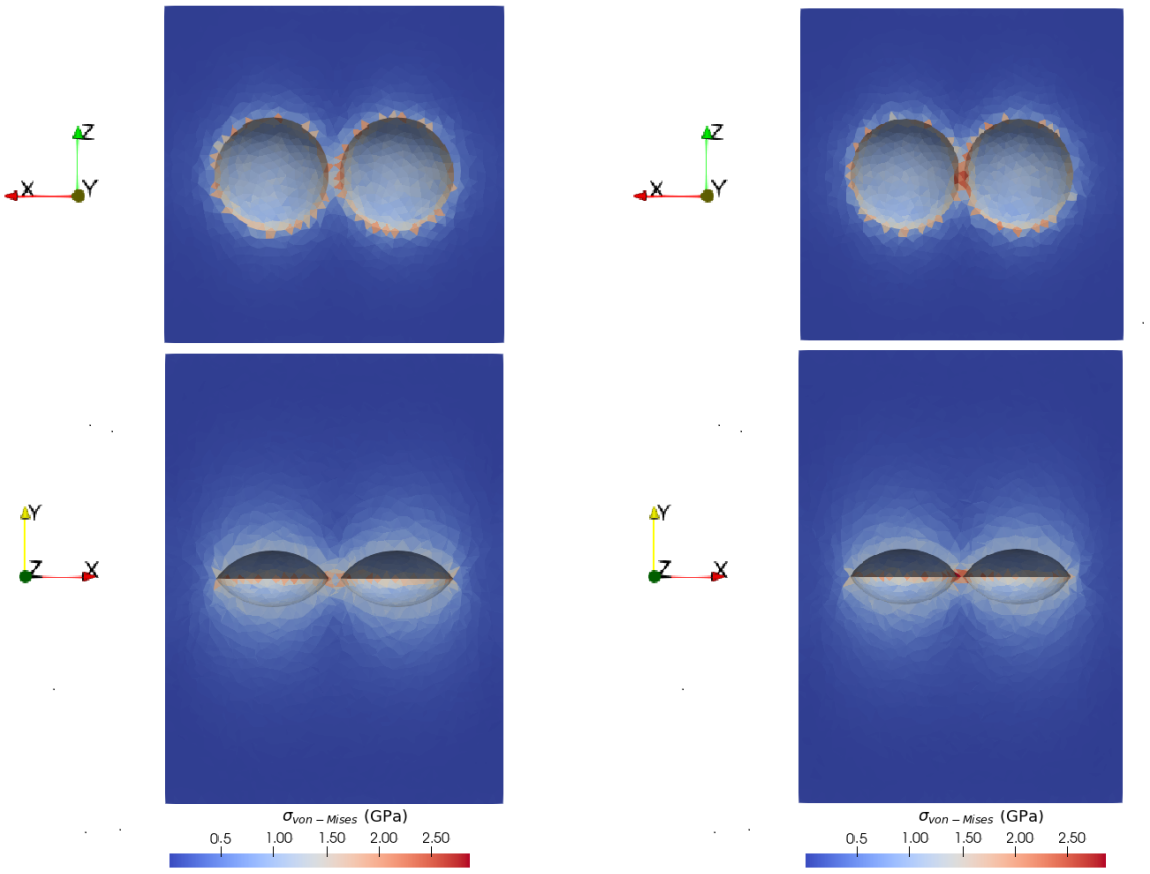
(a) (b)

Figure A.1 – Champs de contrainte de von Mises pour un chargement en pression hydrostatique des systèmes contenant deux bulles lenticulaires de rayon $r = 1.0$ µm *et* w$= 0.5$ *pour des distances inter-bulles de (a)* $d_b = 2.0$ µm *et (b)* $d_b = 1.5$ µm.



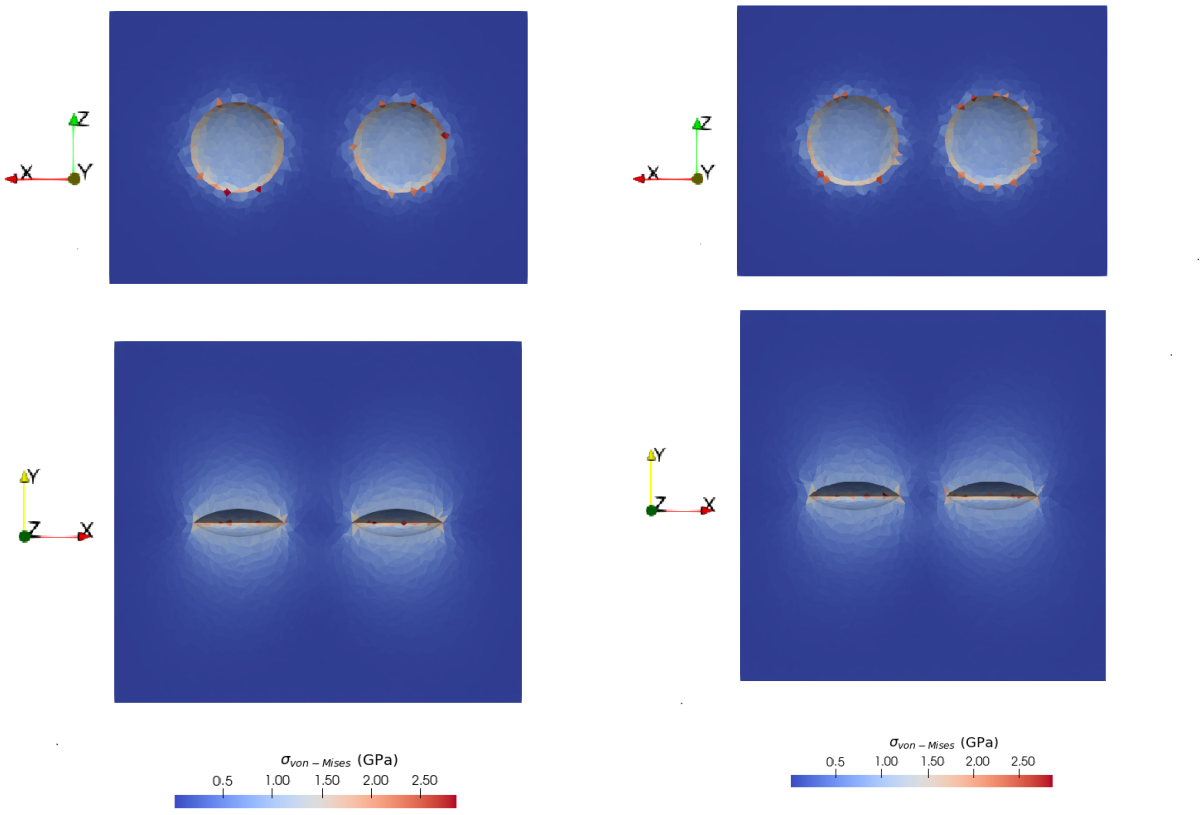
(a) (b)

FIGURE A.2 – Champs de contrainte de von Mises pour un chargement en pression hydrostatique des systèmes contenant deux bulles lenticulaires de rayon $r = 1.0$ µm *et* w= 0.5 *pour des distances inter-bulles de (a)* $d_b = 1.0$ µm *et (b)* $d_b = 0.5$ µm.



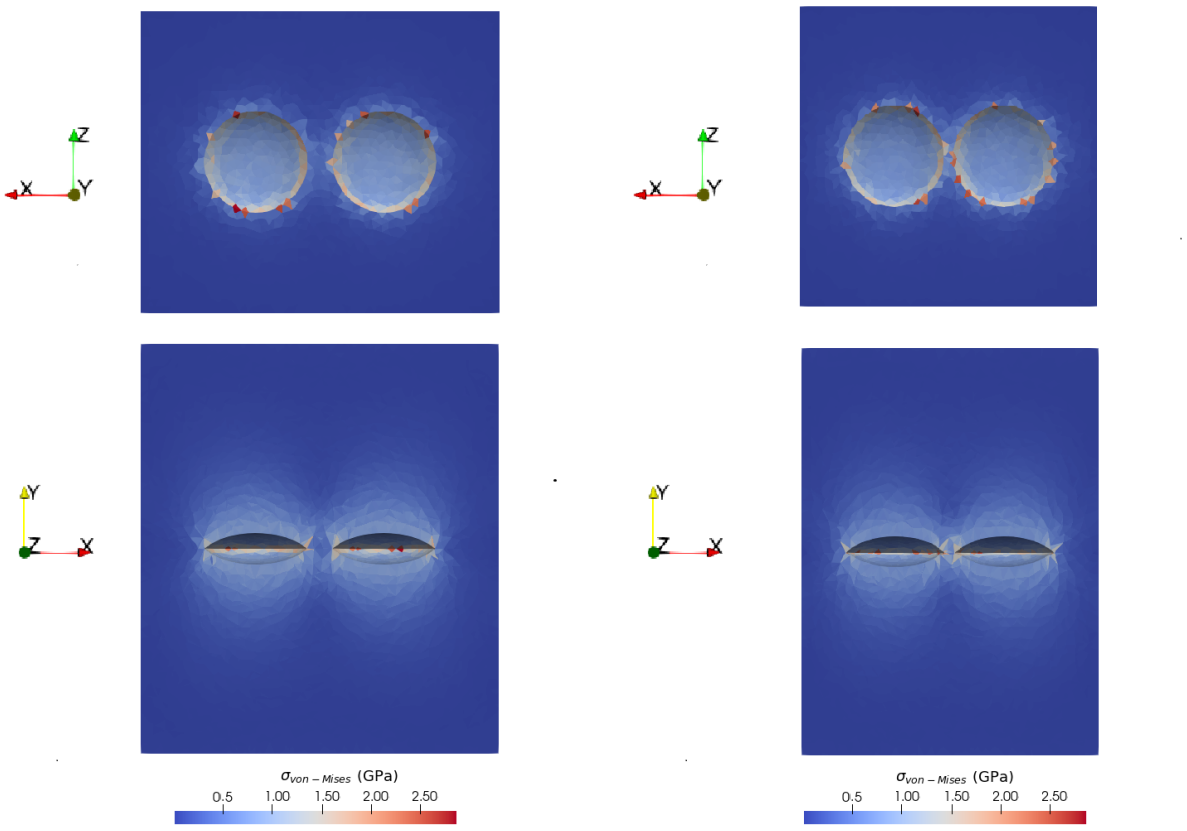
(a) (b)

FIGURE A.3 – Champs de contrainte de von Mises pour un chargement en pression hydrostatique des systèmes contenant deux bulles lenticulaires de rayon $r = 1.0$ µm *et* w= 0.5 *pour des distances inter-bulles de (a)* $d_b = 0.2$ µm *et (b)* $d_b = 0.1$ µm.



(a) (b)

FIGURE A.4 – Champs de contrainte de von Mises pour un chargement en pression hydrostatique des systèmes contenant deux bulles lenticulaires de rayon $r = 1.0$ µm *et* w= 0.3 *pour des distances inter-bulles de (a)* $d_b = 1.5$ µm *et (b)* $d_b = 1.0$ µm.



(a) (b)

FIGURE A.5 – Champs de contrainte de von Mises pour un chargement en pression hydrostatique des systèmes contenant deux bulles lenticulaires de rayon $r = 1.0$ µm *et* w= 0.3 *pour des distances inter-bulles de (a)* $d_b = 0.5$ µm *et (b)* $d_b = 0.2$ µm.

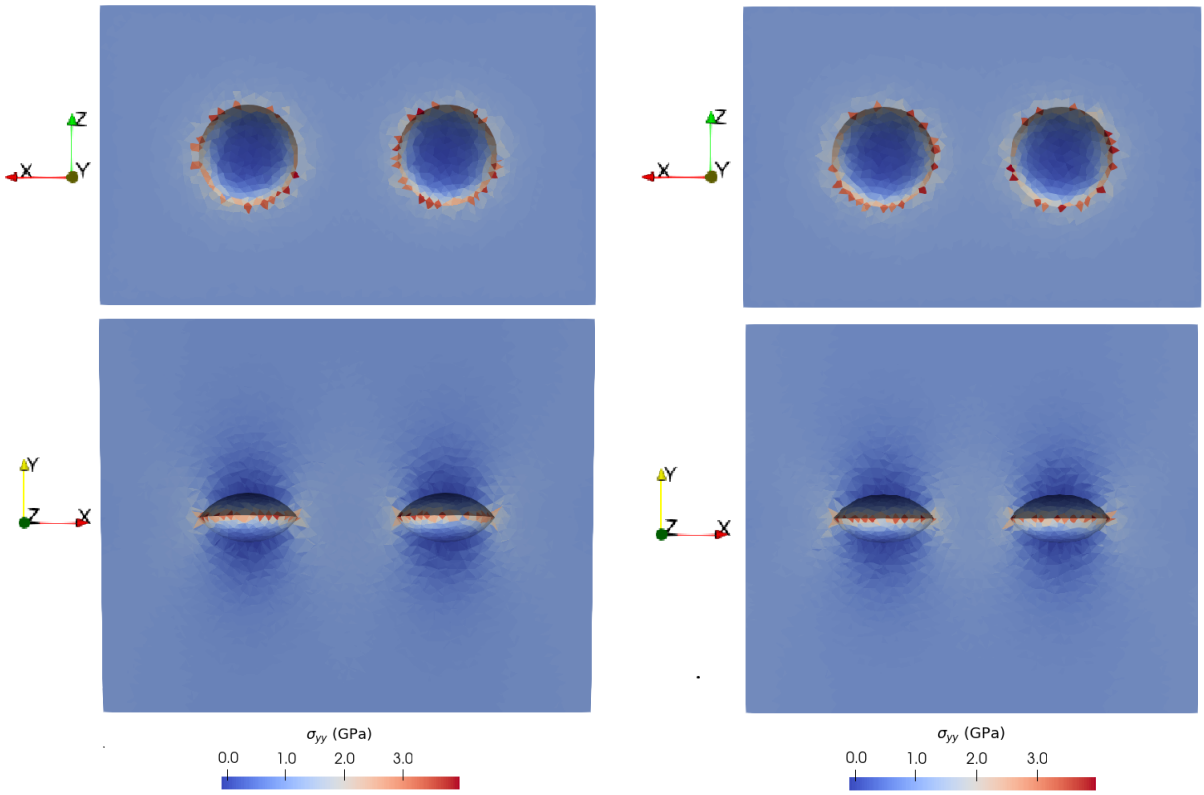


FIGURE A.6 – Champs de contrainte yy pour un chargement en traction des systèmes contenant deux bulles lenticulaires de rayon $r = 1.0$ µm *et* w= 0.5 *pour des distances inter-bulles de (a)* $d_b = 2.0$ µm *et (b)* $d_b = 1.5$ µm.

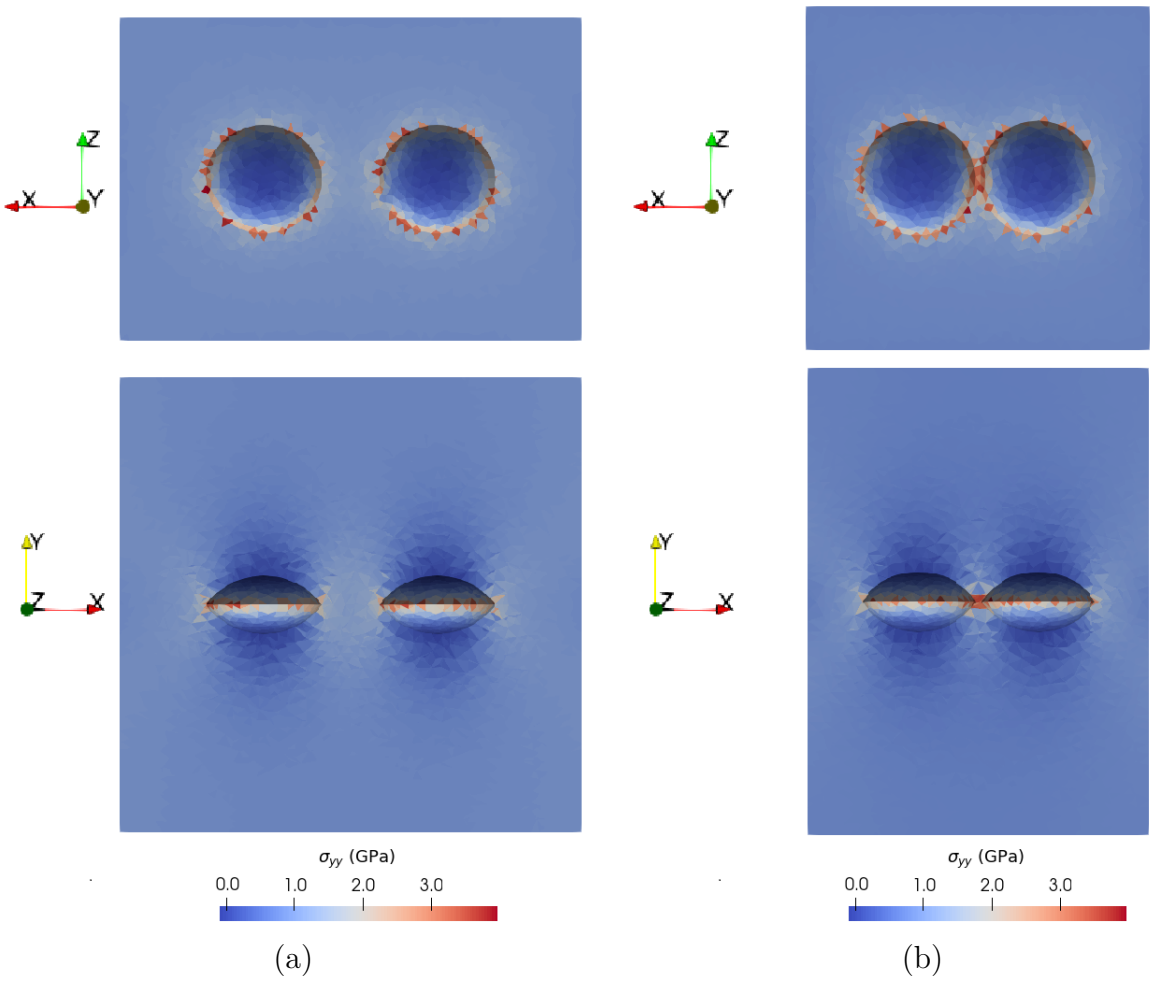
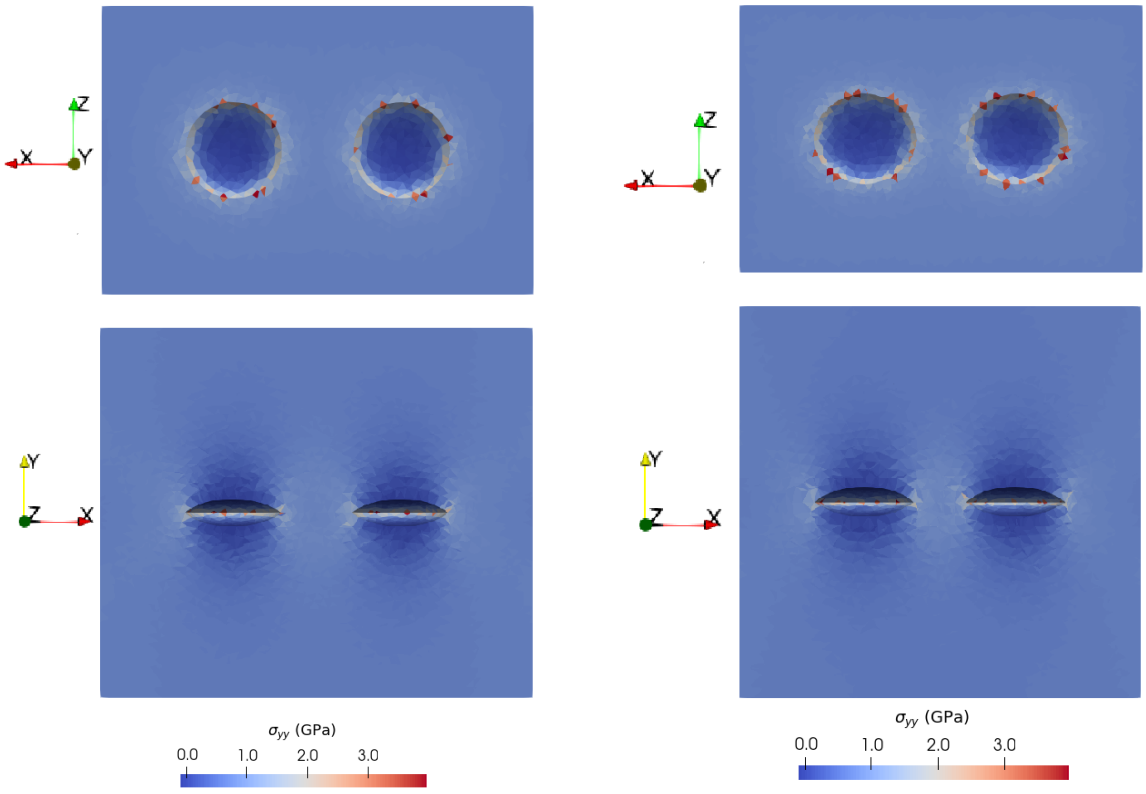


FIGURE A.7 – Champs de contrainte yy pour un chargement en traction des systèmes contenant deux bulles lenticulaires de rayon $r = 1.0$ µm et w= 0.1 *pour des distances inter-bulles de (a) $d_b = 1.0$ µm et (b) $d_b = 0.1$ µm.*



(a) (b)

FIGURE A.8 – Champs de contrainte yy pour un chargement en traction des systèmes contenant deux bulles lenticulaires de rayon $r = 1.0$ µm *et* w= 0.3 *pour des distances inter-bulles de (a)* $d_b = 1.5$ µm *et (b)* $d_b = 1.0$ µm.

Bibliographie

[1] Alain Moal, Vincent Georgenthum, and Olivier Marchand. Scanair : A transient fuel performance code : Part one : General modelling description. Nuclear Engineering and Design, 280 :150–171, 2014.

[2] Vincent Georgenthum, Alain Moal, and Olivier Marchand. Scanair a transient fuel performance code part two : Assessment of modelling capabilities. Nuclear Engineering and Design, 280 :172–180, 2014.

[3] G. Sattonnay and R. Tétot. Bulk, surface and point defect properties in UO_2 from a tight-binding variable-charge model. Journal of Physics Condensed Matter, 25(12), 2013.

[4] Steve Plimpton. Fast Parallel Algorithm for Short-Range Molecular Dynamics. Journal of computational Physics, 117 :1–19, 1995.

[5] Ronan Henry, Isabelle Zacharie-Aubrun, Thierry Blay, Nicolas Tarisien, Smail Chalal, Xaviere Iltis, Jean-Marie Gatt, Cyril Langlois, and Sylvain Meille. Irradiation effects on the fracture properties of UO2 fuels studied by micro-mechanical testing. Journal of Nuclear Materials, 536 :152179, 2020.

[6] Ronan Henry, Isabelle Zacharie-Aubrun, Thierry Blay, Smail Chalal, Jean-Marie Gatt, Cyril Langlois, and Sylvain Meille. Fracture properties of an irradiated PWR UO2 fuel evaluated by micro-cantilever bending tests. Journal of Nuclear Materials, 538 :152209, 2020.

[7] Frederic Perales, Frederic Dubois, Yann Monerie, Bruno Piar, and Laurent Stainier. A NonSmooth Contact Dynamics-based multi-domain solver : Code coupling (Xper) and application to fracture. European Journal of Computational Mechanics, 21(3-6) :242–253, 2010.

[8] R A Sack. Extension of griffith's theory of rupture to three dimensions. Proceedings of the Physical Society, 58(6) :729, 1946.

[9] https ://www.edf.fr. Le nucléaire en chiffres. Site Web, (accessed : 01.07.2023), 2019.

[10] https ://www.irsn.fr. Fonctionnement d'un réacteur nucléaire. Site Web, (accessed : 01.07.2023), 2017.

[11] https ://mediatheque.irsn.fr. Cuve d'un réacteur nucléaire de 900 mwe. Site Web, (accessed : 01.07.2023), 2015.

[12] David B. Williams and C. Barry Carter. Transmission Electron Microscopy. Springer New York, NY, 2009.

[13] Myeongkyu Lee. X-Ray Diffraction for Materials Research : From Fundamentals to Applications. CRC Press, 2016.

[14] J. Faber and G. H. Lander. Neutron diffraction study of uo_2 : Antiferromagnetic state. Phys. Rev. B, 14 :1151–1164, 1976.

[15] Yongfeng Zhang, Xiang Yang Liu, Paul C. Millett, Michael Tonks, David A. Andersson, and Bulent Biner. Crack tip plasticity in single crystal UO2 : Atomistic simulations. Journal of Nuclear Materials, 430(1-3) :96–105, 2012.

[16] A. Ndiaye. Microstructures d'UO2 à propriétés pilotées : compréhension des mécanismes d'élaboration et du comportement mécanique en température. PhD thesis, Université de Grenoble, 2012.

[17] I.L.F. Ray, H. Thiele, and Hj. Matzke. Transmission electron microscopy study of fission product behaviour in high burnup uo2. Journal of Nuclear Materials, 188 :90–95, 1992.

[18] Vincenzo V. Rondinella and Thierry Wiss. The high burn-up structure in nuclear fuel. Materials Today, 13(12) :24–32, 2010.

[19] K. Nogita and K. Une. Radiation-induced microstructural change in high burnup uo2 fuel pellets. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms, 91(1) :301–306, 1994.

[20] G. L. Reynolds, W. B. Beeré, and P. T. Sawbridge. The effect of fission products on the ratio of grains boundary energy to surface energy in irradiated uranium dioxide. Journal of Nuclear Materials, 41 :112–114, 1971.

[21] C. Cagna. Influence des gaz de fission sur l'état mécanique des combustibles oxydes irradiés. PhD thesis, l'École Nationale Supérieure d'Arts et Métiers, 2016.

[22] J. Noirot, L. Desgranges, and J. Lamontagne. Detailed characterisations of high burn-up structures in oxide fuels. Journal of Nuclear Materials, 372(2) :318–339, 2008.

[23] B. Michel, J. Sercombe, G. Thouvenin, and R. Chatelet. 3d fuel cracking modelling in pellet cladding mechanical interaction. Engineering Fracture Mechanics, 75(11) :3581–3598, 2008.

[24] L. Dehaudt et al. Le combustible nucléaire et son état physico-chimique à la sortie des réacteurs. Rapport Technique CEA-R-5923, 1999.

[25] J.A. Turnbull and R.M. Cornell. The re-solution of fission-gas atoms from bubbles during the irradiation of uo2 at an elevated temperature. Journal of Nuclear Materials, 41(2) :156–160, 1971.

[26] S. Kashibe, K. Une, and K. Nogita. Formation and growth of intragranular fission gas bubbles in uo2 fuels with burnup of 6–83 gwd/t. Journal of Nuclear Materials, 206(1) :22–34, 1993.

[27] K. Nogita and K. Une. Effect of grain size on microstructural change and damage recovery in uo2 fuels irradiated to 23 gwd/t. Journal of Nuclear Science and Technology, 31(9) :929–936, 1994.

[28] K. Nogita and K. Une. Irradiation-induced recrystallization in high burnup uo2 fuel. Journal of Nuclear Materials, 226(3) :302–310, 1995.

[29] J. Noirot, P. Lhuillery, P. Delion, T. Blay, and X. Pujol. Programme concerto. examen des microstructures des lots 1010, 1004 et 1000 irradiés 1 cycle dans le crayon fx13av/3018/d11 (densité, céramographie, meb, analyses d'images). Note Technique DEC/SA3C/03-053, 2023.

[30] L. Desgranges, J. Lamontagne, B. Pasquet, I. Roure, Th. Blay, and X. Pujol. Examens du crayon uo2 5 cycles fx0k35/f01 par meb, microsonde et sims. Note Technique DEC/SA3C/04-065, 2004.

[31] J. Noirot, P. Delion, and E. Brochard. Analyse d'images meb. caracterisation intergranulaire et intragranulaire de la porosite. Note Technique CEA/DEN/CAD/DEC/SA3C 14-002, 2014.

[32] S. Kashibe and K. Une. Effects of temperature cycling and heating rate on fission gas release of bwr fuels. Journal of Nuclear Science and Technology, 28(12) :1090–1099, 1991.

[33] K Nogita and K Une. High resolution tem observation and density estimation of xe bubbles in high burnup uo2 fuels. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms, 141(1) :481–486, 1998.

[34] P. Martin, P. Garcia, G. Carlot, C. Sabathier, C. Valot, V. Nassif, O. Proux, and J.-L. Hazemann. Xas characterisation of xenon bubbles in uranium dioxide. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms, 266(12) :2887–2891, 2008.

[35] J. Lamontagne, L.Desgranges, C.Valot, J. Noirot, T. Blay, I. Roure, and B. Pasquet. Fission gas bubbles characterisation in irradiated uo2 fuel by sem, epma and sims. Microchimica Acta, 155 :183–187, 2006.

[36] L.E. Thomas, S.E. Donnelly, and J.H. Evans. Fundamental Aspects of Inert Gases in Solids, Plenum Press. New York, 1991.

[37] C.T. Walker, S. Bremier, S. Portier, R. Hasnaoui, and W. Goll. Sims analysis of an uo2 fuel irradiated at low temperature to 65mwd/kghm. Journal of Nuclear Materials, 393(2) :212–223, 2009.

[38] F. Lemoine. High burnup fuel behavior related to fission gas effects under reactivity initiated accidents (ria) conditions. Journal of Nuclear Materials, 248 :238–248, 1997.

[39] Evans A. G and R W Davidge. The strength and fracture of stoichiometric polycrystalline UO_2. Journal of Nuclear Materials, 33 :249–260, 1969.

[40] R. F. Canon, J. T. A. Roberts, and R. J. Beals. Deformation of uo2 at high temperatures. Journal of the American Ceramic Society, 54(2) :105–112, 1971.

[41] J. T. A. Roberts. Brittle fracture of oxide nuclear fuel." Journal of Nuclear Materials. Journal of Nuclear Materials, 47 :125–128, 1973.

[42] Toshimichi Tachibana, Hirotaka FURUYA, and Masumichi KOIZUMI. Effect of temperature and deformation rate on fracture strength of sintered uranium dioxide. Journal of Nuclear Science and Technology, 16 :266–277, 1978.

[43] J. T. A. Roberts and Y. Ueda. Influence of Porosity on Deformation and Fracture of UO_2. Journal of The American Ceramic Society, 55 :117–124, 1972.

[44] J. B. Ainscough and P. F. Messer. The room temperature fracture strength of sintered UO2 rings containing deliberately introduced impurities. Journal of Materials Science, 11 :767–775, 1976.

[45] A.W. Cronenberg and T.R. Yackle. Intergranular fracture of unrestructed uo2 fuel, during film-boiling operation. Journal of Nuclear Materials, 84(1) :295–318, 1979.

[46] C. Gandhi and M.F. Ashby. Fracture-mechanism maps for materials which cleave : F.c.c., b.c.c. and h.c.p. metals and ceramics. Acta Materialia, pages 1565–1602, 1979.

[47] M. Oguma. Microstructure Effects on Fracture Strength of $U0_2$ Fuel Pellets. European Journal of Computational Mechanics, 19(12) :1005–1014., 1982.

[48] Davide Di Maio and Steve Roberts. Measuring fracture toughness of coatings using focused-ion-beam-machined microbeams. Journal of Materials Research, 20 :299 – 302, 2005.

[49] https ://fr.m.wikipedia.org. A penny shaped crack in an infinite medium. wikipedia, (accessed : 01.07.2023), 2011.

[50] R.O.A. Hall, M.J. Mortimer, and D.A. Mortimer. Surface energy measurements on uo2 — a critical review. Journal of Nuclear Materials, 148(3) :237–256, 1987.

[51] D.G Martin. The elastic constants of polycrystalline uo_2 and (u,pu) mixed oxides : a review and recommendations. High Temp. High. Pres., 21 :13–24, 1989.

[52] Pritam Chakraborty, Michael R. Tonks, and Giovanni Pastore. Modeling the influence of bubble pressure on grain boundary separation and fission gas release. Journal of Nuclear Materials, 452(1) :95–101, 2014.

[53] Roger W. Davidge and Anthony G. Evans. The strength of ceramics. Materials Science and Engineering, 6(5) :281–298, 1970.

[54] T.R.G. Kutty, K.N. Chandrasekharan, and J.K. Panakkal J.P.and Ghosh. Fracture toughness and fracture surface energy of sintered uranium dioxide fuel pellets. Journal of Materials Science, 18 :260–262, 1987.

[55] A. Michel. Etude du comportement des gaz de fission dans le dioxyde d'uranium : mécanismes de diffusion, nucléation et grossissement de bulles. PhD thesis, Université de Caen Normandie, 2011.

[56] L. Noirot. Margaret : A comprehensive code for the description of fission gas behavior. Nuclear Engineering and Design, 241(6) :2099–2118, 2011.

[57] Brent R. Moody, John E. McCarthy, and Roberta D. Sengelmann. The apical angle : A mathematical analysis of the ellipse. Dermatologic Surgery, 27 :61–63, 2001.

[58] A. Jelea. Comportement des crayons m5 en ria. Rapport Technique DPAM-SEMCA-2011-083, 2011.

[59] V. Geogenthum. Scanair v-7-5 : Standard validation report. Rapport Technique PSN-RES/SEMIA-2014-00413, 2014.

[60] A. R. Leach. Molecular Modelling : Principles and Applications. Pearson Education, 2001.

[61] Peter Atkins and Ronald Friedman. Molecular Quantum Mechanics. Number 4. Oxford University Press, 2005.

[62] Verlet Loup. Computer "Experiments" on Classical Fluids. I. Thermodynamical Properties of Lennard-Jones Molecules. Physical Review, 159(1) :99–103, 1967.

[63] Frenkel Daan, Michael Klein, Michelle Parrinello and Berend Smit. Understanding molecular simulation : from algorithms to applications. Computational Science, 2001.

[64] D. H. Tsai. The virial theorem and stress calculation in molecular dynamics. The Journal of Chemical Physics, 70(3) :1375–1382, 1979.

[65] Robert J. Hardy. Formulas for determining local properties in molecular-dynamics simulations : Shock waves. The Journal of Chemical Physics, 79(1) :622–628, 1982.

[66] Robert J. Hardy. Formulas for determining local properties in molecular-dynamics simulations : Shock waves. The Journal of Chemical Physics, 64(3) :1152–1154, 1988.

[67] J. Cormier, J. M. Rickman, and T. J. Delph. Stress calculation in atomistic simulations of perfect and imperfect solids. Journal of Applied Physics, 89(1) :99–104, 2001.

[68] Nikhil Chandra Admal and E.B. Tadmor. A unified interpretation of stress in molecular systems. Journal of Elasticity, 2010.

[69] Aidan P. Thompson, Steven J. Plimpton, and William Mattson. General formulation of pressure and stress tensor for arbitrary many-body interaction potentials under periodic boundary conditions. Journal of Chemical Physics, 131(15), 2009.

[70] J. Benkemoun F. Dal Maso and H. Toulhoat. Possibilités actuelles du calcul des constantes élastiques de polymères par des méthodes de simulation atomistique. Institut Français du Pétrole, 52(6) :625–641, 1997.

[71] COT Galvin, MWD Cooper, MJD Rushton, and RW Grimes. Thermophysical properties and oxygen transport in (thx, pu1- x) o2. Scientific Reports, 6(1) :36024, 2016.

[72] D. Mbongo, R. Tétot, R. Ducher, R. Dubourg, and N. Salles. Improved SMTB-Q model applied to oxygen migration and pressure phase transitions in UO_2. Journal of Physics Condensed Matter, 32(9), 2020.

[73] Aurélien Soulié, Jean-Paul Crocombette, Antoine Kraych, Frédérico Garrido, Gael Sattonnay, and Emmanuel Clouet. Atomistically-informed thermal glide model for edge dislocations in uranium dioxide. Acta Materialia, 150 :248–261, 2018.

[74] Pierre Hirel. Atomsk : A tool for manipulating and converting atomic data files. Computer Physics Communications, 197 :212–219, 2015.

[75] Pankaj V. Nerikar, Karin Rudman, Tapan G. Desai, Darrin Byler, Cetin Unal, Kenneth J. McClellan, Simon R. Phillpot, Susan B. Sinnott, Pedro Peralta, Blas P. Uberuaga, and Christopher R. Stanek. Grain boundaries in uranium dioxide : Scanning electron microscopy experiments and atomistic simulations. Journal American Ceramic Society, 94(6) :1893–1900, 2011.

[76] Emeric Bourasseau, Alexandre Mouret, Paul Fantou, Xavière Iltis, and Renaud C. Belin. Experimental and simulation study of grain boundaries in UO2. Journal of Nuclear Materials, 517 :286–295, 2019.

[77] Yongfeng Zhang, Paul C. Millett, Michael R. Tonks, Xian Ming Bai, and S. Bulent Biner. Molecular dynamics simulations of intergranular fracture in UO2 with nine empirical interatomic potentials. Journal of Nuclear Materials, 452(1-3) :296–303, 2014.

[78] A. Ksibi, E. Bourasseau, X. Iltis, D. Drouan, M. Gaudet, A. Germain, A. Pena, G. Lapertot, J.-P. Brison, and R.C. Belin. Experimental and numerical assessment of grain boundary energies in polycristalline uranium dioxide. Journal of the European Ceramic Society, 40 :4191–4201, 2020.

[79] L. Van Brutzel and E. Vincent-Aublant. Grain boundary influence on displacement cascades in UO2 : A molecular dynamics study. Journal of Nuclear Materials, 377(3) :522–527, 2008.

[80] Xian Ming Bai, Yongfeng Zhang, and Michael R. Tonks. Testing thermal gradient driving force for grain boundary migration using molecular dynamics simulations. Acta Materialia, 85 :95–106, 2015.

[81] Emeric Bourasseau, Claire Onofri, Amani Ksibi, Xavière Iltis, Renaud C. Belin, and Gérard Lapertot. Atomic structure of grain boundaries in UO2 Bicrystals : A coupled high resolution transmission electron Microscopy/Atomistic simulation approach. Scripta Materialia, 206 :114191, 2022.

[82] L. Yang and B.D. Wirth. Tilt grain boundary stability in uranium dioxide and effect on xenon segregation. Journal of Nuclear Materials, 577 :154302, 2023.

[83] Robert Evarestov, Andrei Bandura, and Eugeny Blokhin. Surface modelling on heavy atom crystalline compounds : HfO2 and UO2 fluorite structures. Acta Materialia, 57(2) :600–606, 2009.

[84] Tapan G. Desai and Blas P. Uberuaga. Stress-induced phase transformation in nanocrystalline UO_2. Scripta Materialia, 60 :878–881, 2009.

[85] Tapan G. Desai, Pankaj Nerikar, and Blas P. Uberuaga. The role of grain boundary structure in stress-induced phase transformation in UO_2. Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering, 17 :064001, 2009.

[86] Yongfeng Zhang, Paul C Millett, Michael R Tonks, Xian-Ming Bai, and S Bulent Biner. Intergranular fracture in uo2 : derivation of traction-separation law from atomistic simulations. Conference : GLOBAL 2013 : International Nuclear Fuel Cycle Conference,, 10 2013.

[87] A. Chartier Fossati, L. Van Brutzel. Simulation of uranium dioxide polymorphs and their phase transitions. Physical review b, 88 :214112–12, 2013.

[88] Hector Balboa, Laurent Van Brutzel, Alain Chartier, and Yann Le Bouar. Assessment of empirical potential for MOX nuclear fuels and thermomechanical properties. Journal of Nuclear Materials, 495 :67–77, 2017.

[89] Xiaofeng Tian, Yu Wang, Liangquan Ge, Wanjun Dong, Zhenjiang You, Pingping Ding, and You Yu. First principles calculation of uo_2 polymorphs and phase transitions under compressive and tensile loading. Computational Materials Science, 169 :109124, 2019.

[90] E. Yakub, C. Ronchi, and D. Staicu. Molecular dynamics simulation of premelting and melting phase transitions in stoichiometric uranium dioxide. The Journal of Chemical Physics, 127 :094508, 2007.

[91] A. Van der Ven and G. Ceder. The thermodynamics of decohesion. Acta Materialia, 52(5) :1223–1235, 2004.

[92] Michael Tonks, David Andersson, Ram Devanathan, Roland Dubourg, Anter El-Azab, Michel Freyss, Fernando Iglesias, Katalin Kulacsy, Giovanni Pastore, Simon R. Phillpot, and Michael Welland. Unit mechanisms of fission gas release : Current understanding and future needs. Journal of Nuclear Materials, 504 :300–317, 2018.

[93] Viggo Tvergaard. Effect of fibre debonding in a whisker-reinforced metal. Materials Science and Engineerging, A125 :203–213, 1990.

[94] Alan Arnold Griffith and Geoffrey Ingram Taylor. Vi. the phenomena of rupture and flow in solids. Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical or Physical Character, 221(582-593) :163–198, 1920.

[95] Yann Monerie. Fissuration des matériaux composites : rôle de l'interface fibre/matrice. PhD thesis, Université d'Aix-Marseille, 2000.

[96] G. R. Irwin. Analysis of Stresses and Strains Near the End of a Crack Traversing a Plate. Journal of Applied Mechanics, 24(3) :361–364, September 1957.

[97] Frédéric Perales. Fissuration des matériaux à gradient de propriétés -Application au Zircaloy hydruré. PhD thesis, Université de Montpellier, 2005.

[98] D. S. Dugdale. Yelding of steel sheets containing slits. J. Mech. Phys. Solids, 15 :100–104, 1960.

[99] G. N. Barenblatt. The mathematical theory of equilibrium cracks dormed in brittle fracture. J. Mech. Phys. Solids, 109(4) :3–56, 1962.

[100] A. Needleman. A Continuum Model for Void Nucleation by Inclusion Debonding. Journal of Applied Mechanics, 54(3) :525–531, 1987.

[101] A. Needleman. An analysis of tensile decohesion along an interface. Journal of the Mechanics and Physics of Solids, 38(3) :289–324, 1990.

[102] A. Needleman and A.J. Rosakis. The effect of bond strength and loading rate on the conditions governing the attainment of intersonic crack growth along interfaces. Journal of the Mechanics and Physics of Solids, 47(12) :2411–2449, 1999.

[103] Zhiqiang Wang and Toshio Nakamura. Simulations of crack propagation in elastic–plastic graded materials. Mechanics of Materials, 36(7) :601–622, 2004.

[104] Frederic Perales, Stéphane Bourgeois, A. Chrysochoos, and Y. Monerie. Two field multibody method for periodic homogenization in fracture mechanics of non linear composites. Engineering Fracture Mechanics, 75 :3378–3398., 2008.

[105] Y. Monerie and V. Acary. Formulation dynamique d'un modèle de zone cohésive tridimensionnel couplant endommagement et frottement. Revue Européenne des élements finis, 10 :489–503, 2001.

[106] Adrien Socié. Modélisation chimio-mécanique de la fissuration de matériaux cimentaires : vieillissement et tenue des enceintes de confinement des centrales nucléaires. PhD thesis, Université de Montpellier, 2019.

[107] F. Dubois M. Bisoffi-Sauve, S. Morel. Modelling mixed mode fracture of mortar joints in masonry building. Engineering Structures, 182 :316–330, 2019.

[108] N. Blal, L. Daridon, Y. Monerie, and S Pagano. Artificial compliance inherent to the intrinsic cohesive zone models : criteria and application to planar meshes. International Journal of Fracture, (178) :71–83, 2011.

[109] Lars O. Jernkvist. A review of analytical criteria for fission gas induced fragmentation of oxide fuel in accident conditions. Progress in Nuclear Energy, 119 :103188, 2020.

[110] Olander D. R. Ria-related issues concerning fission gas in irradiated pwr fuel. Visiting Scientist Report, IPSN internal document, Cadarach, 1997.