

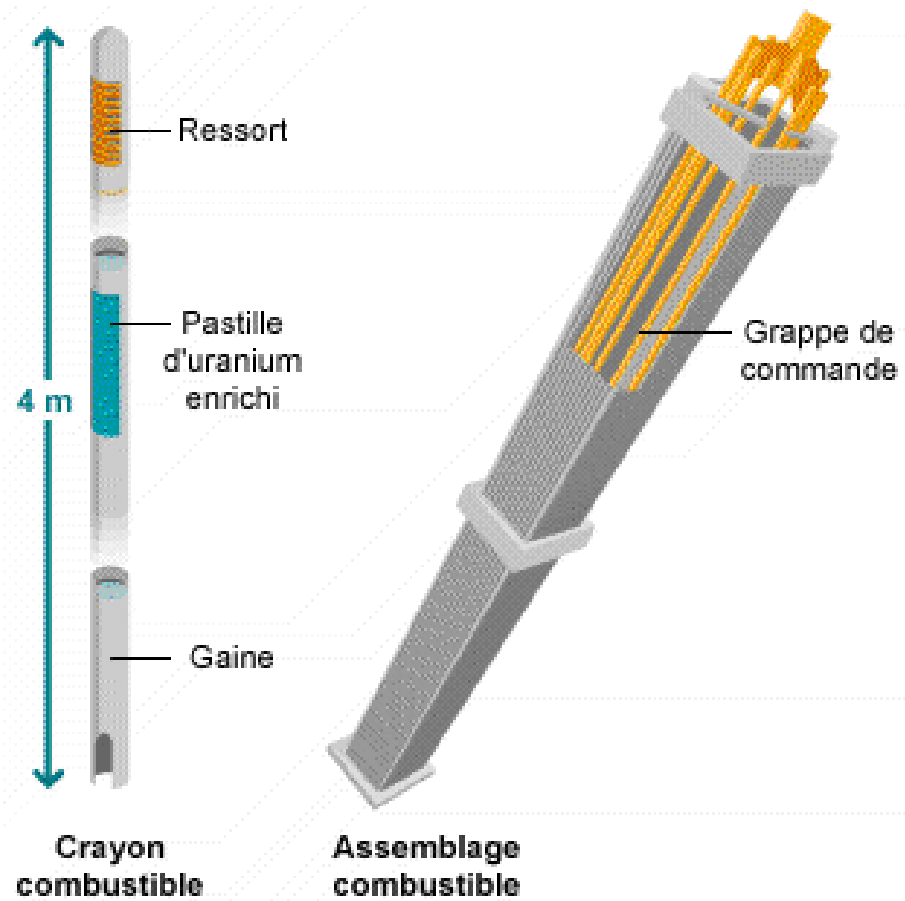
Modélisation semi-empirique des bulles de gaz rare dans l' UO_2 *Effets de surfaces*

IRSN/DPAM/SEMCA/LEC
CNRS/CINAM/DTSN

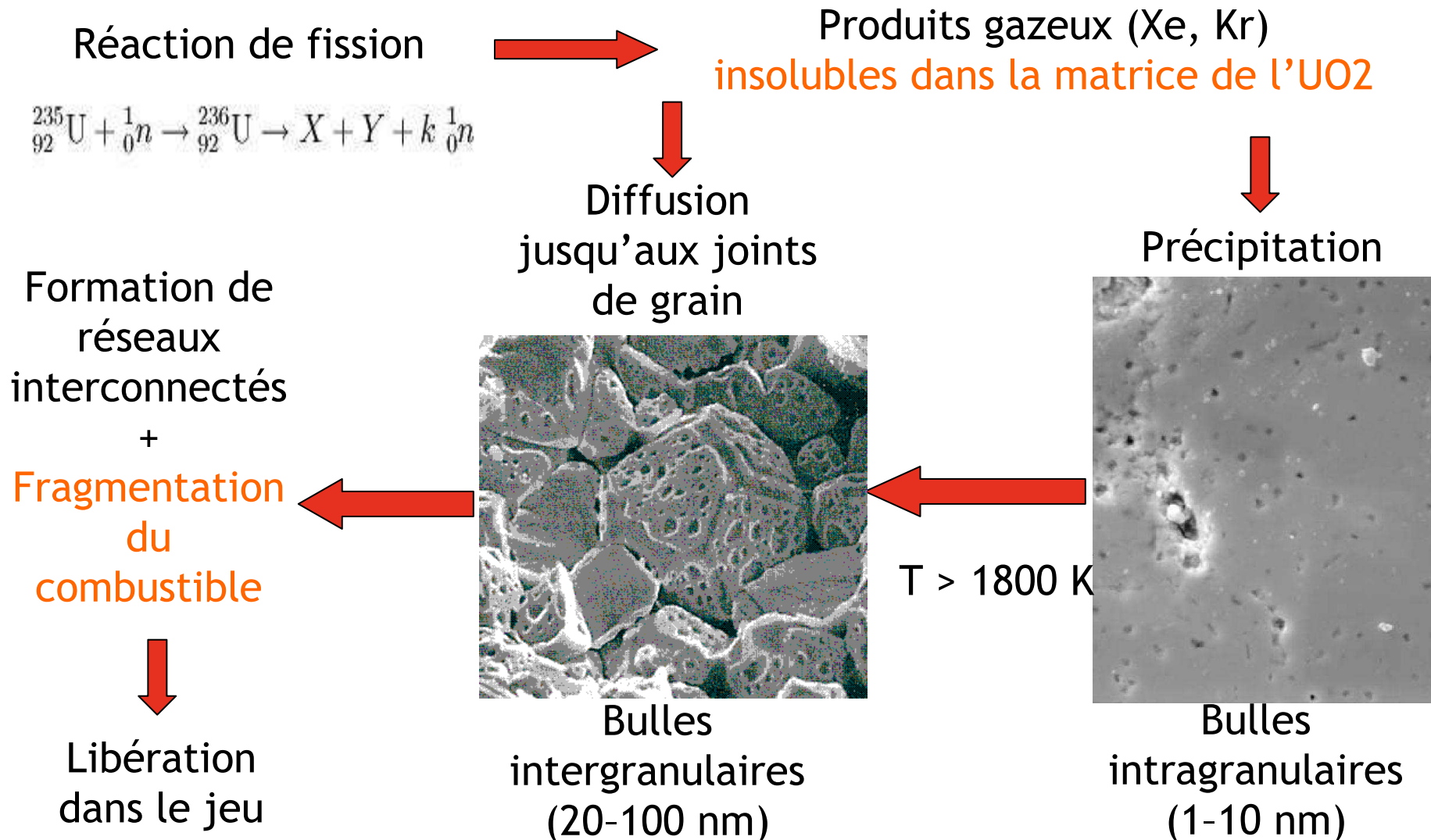
*M. Colbert, A. Jelea, F. Ribeiro
G. Trégliá, R. Pellenq*



CONTEXTE : assemblage combustible



CONTEXTE :Présence de Gaz



CONTEXTE : Impact sur la sûreté nucléaire

RIA, IPG,...

Bulles de gaz



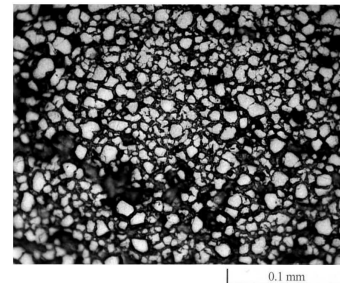
Gonflement

Thermomécanique

Fragmentation



Gonflement gazeux
Rupture de la gaine



Fragmentation

gaz relâché



Pressurisation crayon

Conductivité thermique



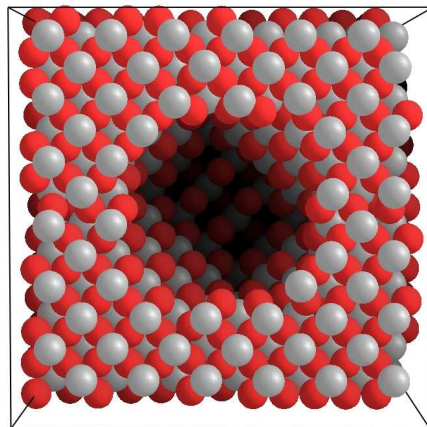
Chargement gazeux
Rupture post-DNB

→ *Cinétique ?*

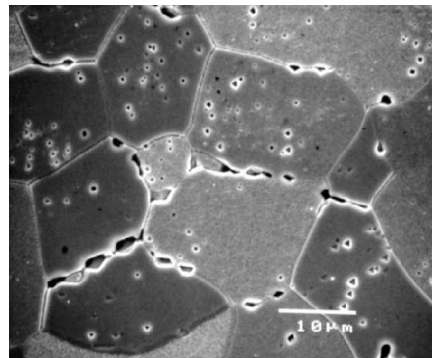
CONTEXTE : Méthodologie globale

Une approche 'bottom-up'

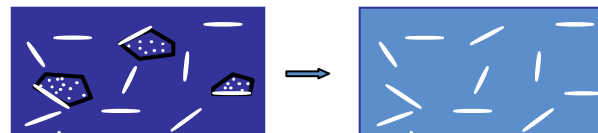
Etudes atomistiques



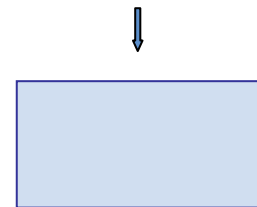
Etudes mésoscopiques



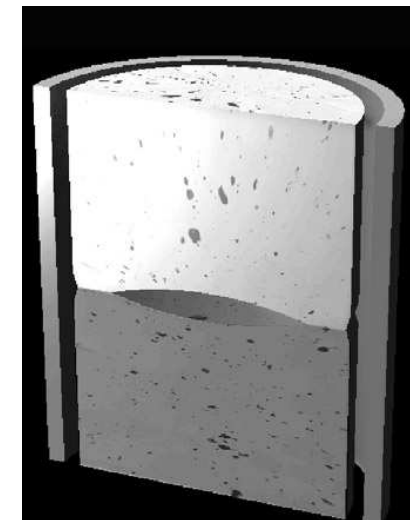
MFPR



homogenisation



Modèle global



OBJECTIF

Comportement des PFs

- Remise en solution ?
- Diffusion ?
- Gonflement ?

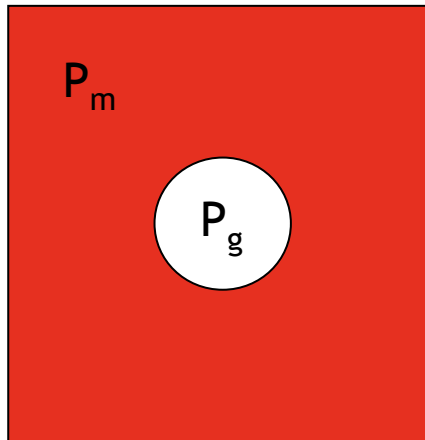
→ MFPR



Impact des bulles de gaz
sur le comportement
thermomécanique du
crayon

$$\bullet P_m = P_g - 2\gamma/R$$

$$\bullet P_g = NRT/V$$



OBJECTIF

Comportement des PFs

- Remise en solution ?
- Diffusion ?
- Gonflement ?

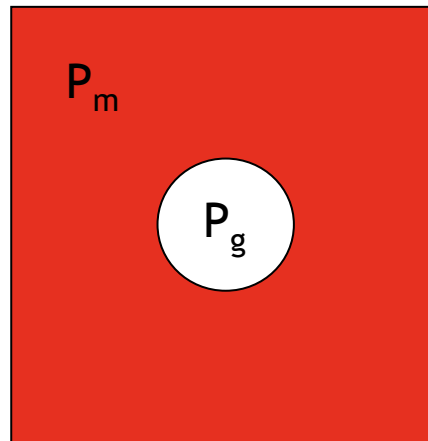
→ MFPR



Impact des bulles de gaz
sur le comportement
thermomécanique du
crayon

~~• $P_m = P_g - 2\gamma/R$~~

~~• $P_g = NRT/V$~~



OBJECTIF

Prévoir l'influence des bulles de gaz rares sur les propriétés thermomécaniques de l' UO_2

Étapes

1) propriétés thermomécaniques = f(porosités vides)

2) Remplissage des porosités par du Xe

3) propriétés thermomécaniques = f(porosités +Xe)

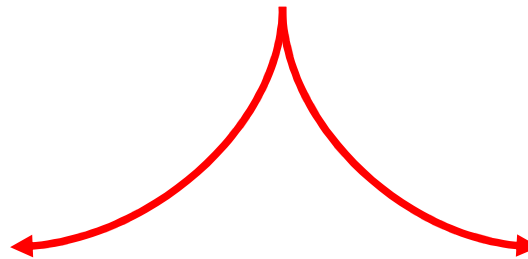
METHODOLOGIE -

1- création de la cellule poreuse

2- Relaxation

→ à 0K

Minimisation d'énergie



→ en température

Dynamique Moléculaire

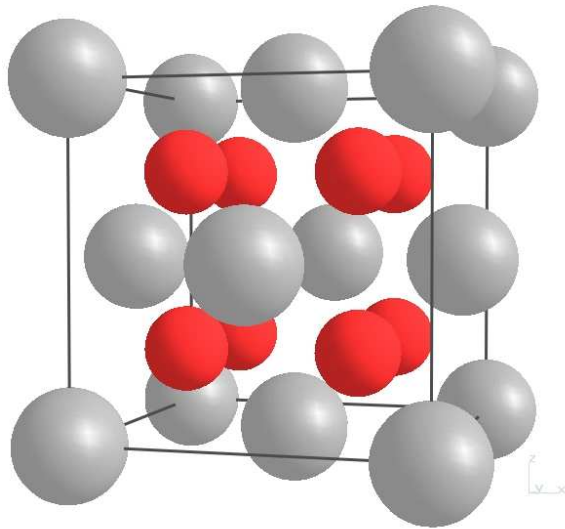
3- Calcul des propriétés

→ Propriétés physiques (Energy, Volume,)

→ Propriétés thermomécaniques (Bulk Modulus, Shear modulus ...)

METHODOLOGIE - création de la ϕ poreuse

Maille élémentaire d' UO_2



fluorite (CaF_2)

4 atomes d'uranium (gris)
8 atomes d'oxygène (rouge)

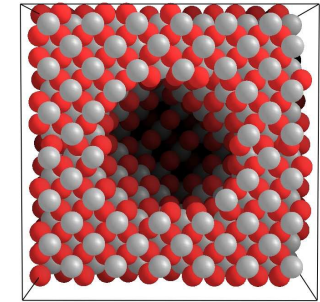
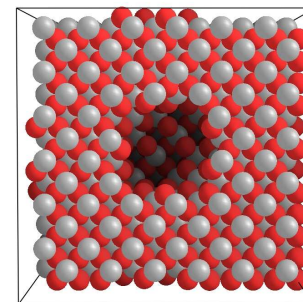
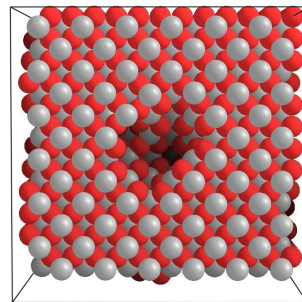
Supercellule 6 x 6 x 6 de 2592 atomes



Création de pores de rayons r ($r = 4 - 10 \text{ \AA}$)

$f=0-0.12$

préserver la stoechiométrie



Système poreux

METHODOLOGIE - *choix du potentiel*

Potentiels pour les interactions U/O, U/U et O/O

Thèse de Kevin Govers: 20 potentiels testés

→ en température : 3 satisfaisants (anharmonicité)

Etude de Geng loin de l'équilibre :

→ Potentiel de Basak

$$\phi_{ij} = \frac{z_i z_j e^2}{r_{ij}} + A_{ij} \exp\left(-\frac{r_{ij}}{\rho_{ij}}\right) - \frac{C_{ij}}{r_{ij}^6} + D_{ij} \left\{ \left[1 - \exp(\beta_{ij}(r_{ij} - r_{ij}^*)) \right]^2 - 1 \right\}$$

Coulomb Buckingham-Hill Morse

[1] K. Govers, PhD Thesis, Université libre de Bruxelles (2008)

[2] H.Y. Geng et al., J. Alloys Comp., 457 (2008) 465

METHODOLOGIE - *choix du potentiel*

- Calcul d'énergie de surface - validation du potentiel ?

→ Vérifier la bonne modélisation des effets de surface

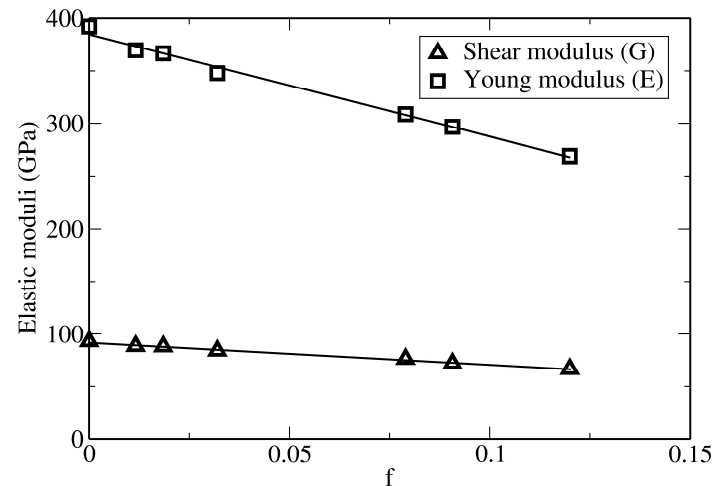
Calculation	Catlow1	Catlow2	Meis & Gale	Jackson	Grimes	Busker	Basak	QMD/QM
$E_{(100)}(\text{J/m}^2)$	2.32	1.62	-0.26	2.37	2.99	2.81	2.22	2.01/1.04
$E_{(111)}(\text{J/m}^2)$	1.19	0.91	0.86	1.19	1.48	1.27	1.24	0.86/0.27

*F.N. Skomurski, R.C. Ewing, A.L. Rohl, J.D. Gale, U. Becker, American Mineralogist 91 (2006) 1761-1772.
M. Abramovski, R.W. Grimes, S. Owens, J. Nucl. Mater. 275 (1999) 12-18.*

→ *Description satisfaisante des surfaces*

RESULTATS

Impact de la porosité sur les propriétés élastiques à 0K



$$\frac{G}{G_m} = 1 - a_G f$$

$$\frac{E}{E_m} = 1 - a_E f$$

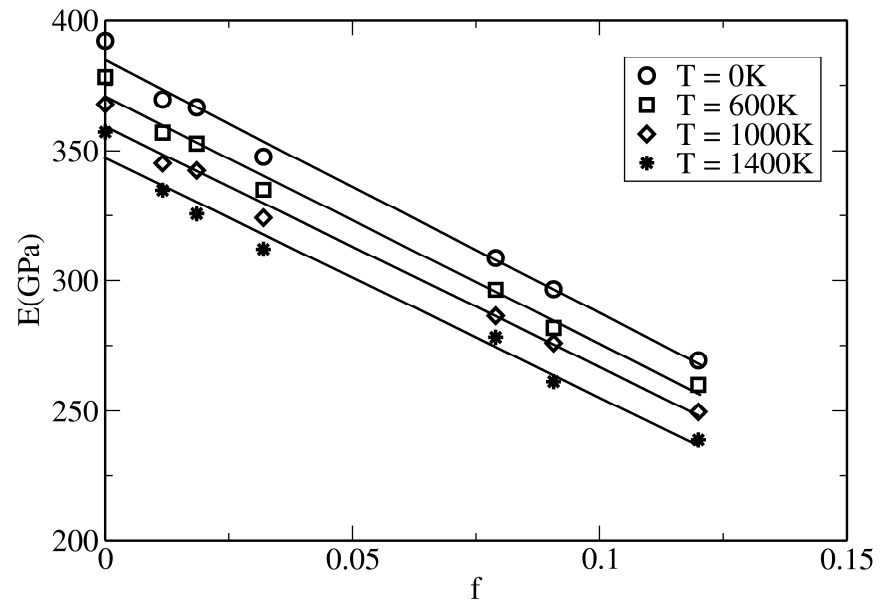
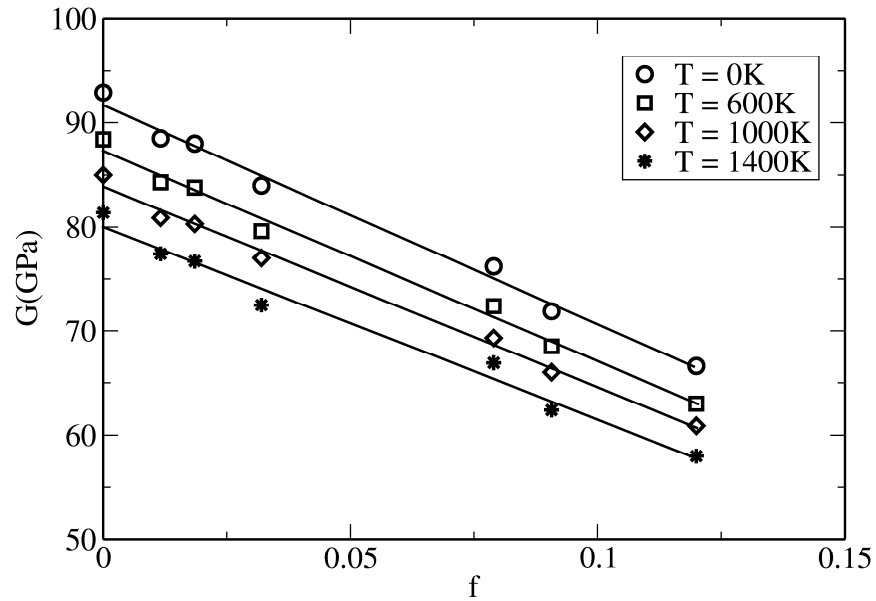
Travaux	a_G	a_E
Simulations atomistiques	2.30	2.53
Simulations micromécaniques [1]	1.92	2.03
Experiment [1]	2.48	2.62
Experiment [2]	2.25	2.50

[1] J.M. Gatt, Y. Monerie, D. Laux, D. Baron, J. Nucl. Mat., 336 (2005) 145

[2] D.G. Martin, High Temp. High Press., 21 (1989) 13

RESULTATS

Impact de la porosité sur les propriétés élastiques à $T > 0K$



Description appropriée par des fonctions affines

RESULTATS

Impact de la porosité sur les propriétés élastiques à T>0K

$$G = G_m (1 - a_G f)$$

$$E = E_m (1 - a_E f)$$

T(K)	a_G	a_E
0	2.30	2.53
600	2.32	2.57
800	2.30	2.58
1000	2.30	2.59
1200	2.25	2.60
1400	2.31	2.66

Pratiquement aucune dépendance en température de a_G et a_E [1]

	c_0^G	c_1^G	c_2^G	c_0^E	c_1^E	c_2^E
$G_m(T) = c_G + b_G T + a_G T^2$						
SA	91.8	-6.8×10^{-3}	-1.2×10^{-6}	384.6	-2.1×10^{-2}	-4.2×10^{-6}
$E_m(T) = c_E + b_E T + a_E T^2$						
Exp.[2]	85.8	-5.2×10^{-3}	-3.8×10^{-6}	226.9	-1.5×10^{-2}	-9.6×10^{-6}

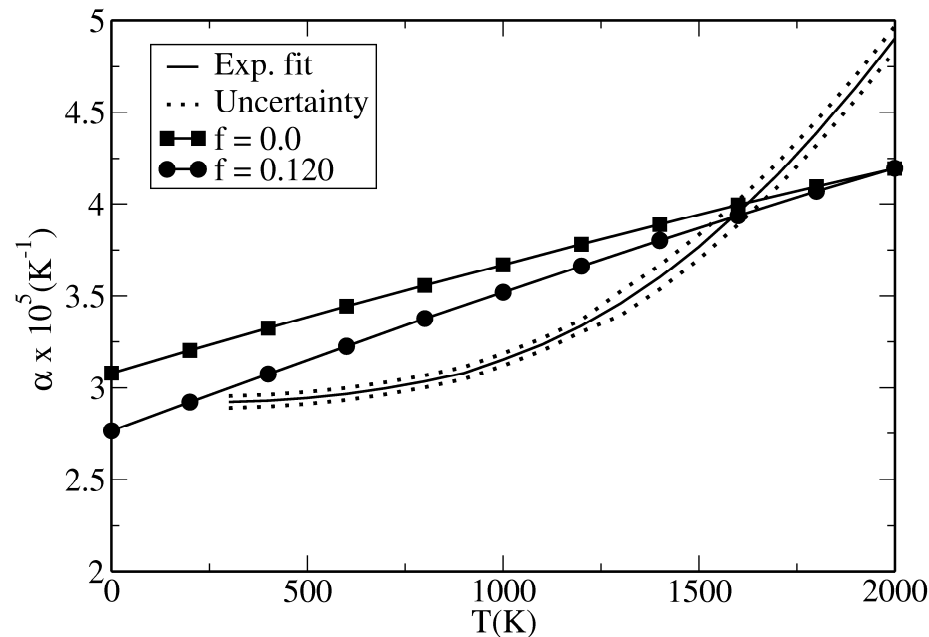
[1] J.M. Gatt, Y. Monerie, D. Laux, D. Baron, J. Nucl. Mat., 336 (2005) 145

[2] D.G. Martin, High Temp. High Press., 21 (1989) 13

RESULTATS

Impact de la porosité sur le coefficient de dilatation thermique

Simulation de dynamique moléculaire en ensemble NPT



Dans le domaine expérimental, mais ...

anharmonicité mal décrite

$$N, P, T_1 \Rightarrow V_e(N, P, T_1) \Rightarrow V_e(T_1)$$

$$N, P, T_2 \Rightarrow V_e(N, P, T_2) \Rightarrow V_e(T_2)$$

$$\dots$$
$$N, P, T_n \Rightarrow V_e(N, P, T_n) \Rightarrow V_e(T_n)$$

$$V(T) = aT^2 + bT + c$$

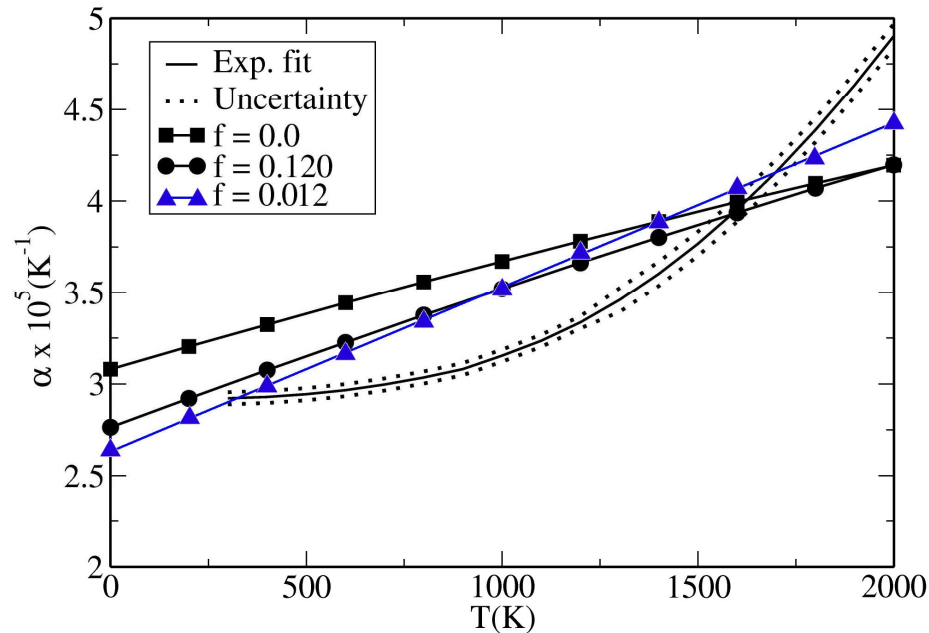
$$\alpha = \frac{1}{V(T)} \left(\frac{\partial V}{\partial T} \right)_{P=1atm}$$

$$P=1atm; t_s=20ps (dt=1fs)$$

RESULTATS

Impact de la porosité sur le coefficient de dilatation thermique

Simulation de dynamique moléculaire en ensemble NPT



Dans le domaine expérimental, mais ...

anharmonicité mal décrite

+effet de surface ?

$$N, P, T_1 \Rightarrow V_e(N, P, T_1) \Rightarrow V_e(T_1)$$

$$N, P, T_2 \Rightarrow V_e(N, P, T_2) \Rightarrow V_e(T_2)$$

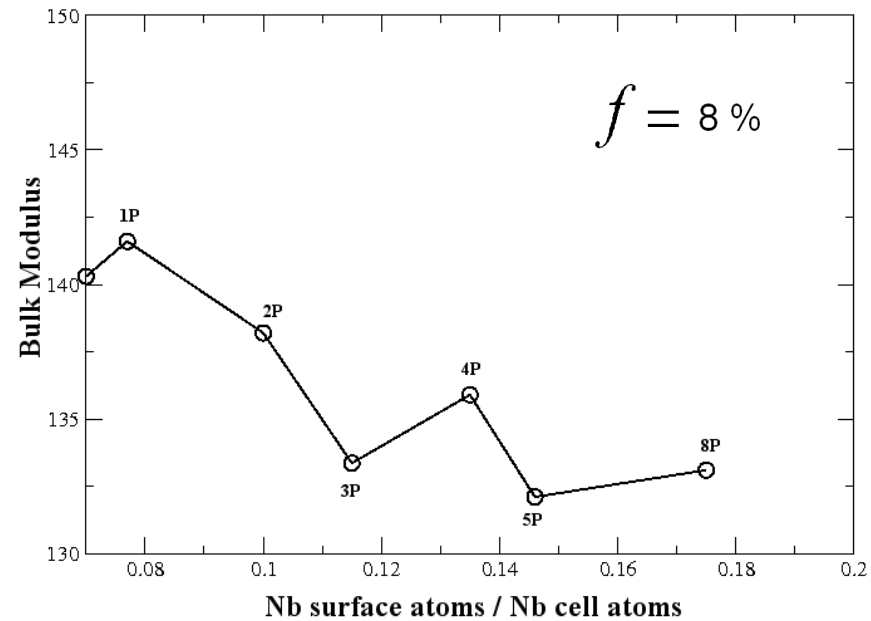
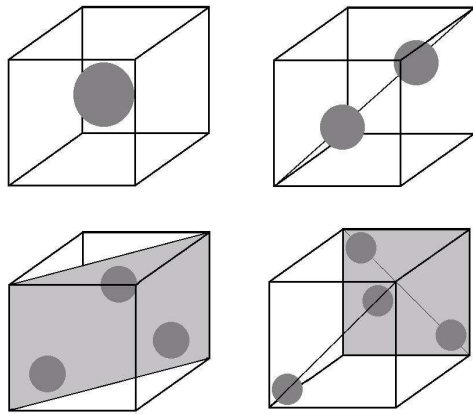
$$\dots\dots\dots$$
$$N, P, T_n \Rightarrow V_e(N, P, T_n) \Rightarrow V_e(T_n)$$

$$V(T) = aT^2 + bT + c$$

$$\alpha = \frac{1}{V(T)} \left(\frac{\partial V}{\partial T} \right)_{P=1atm}$$

$P=1atm$; $t_s=20ps$ ($dt=1fs$)

RESULTATS - effets de distribution de pores

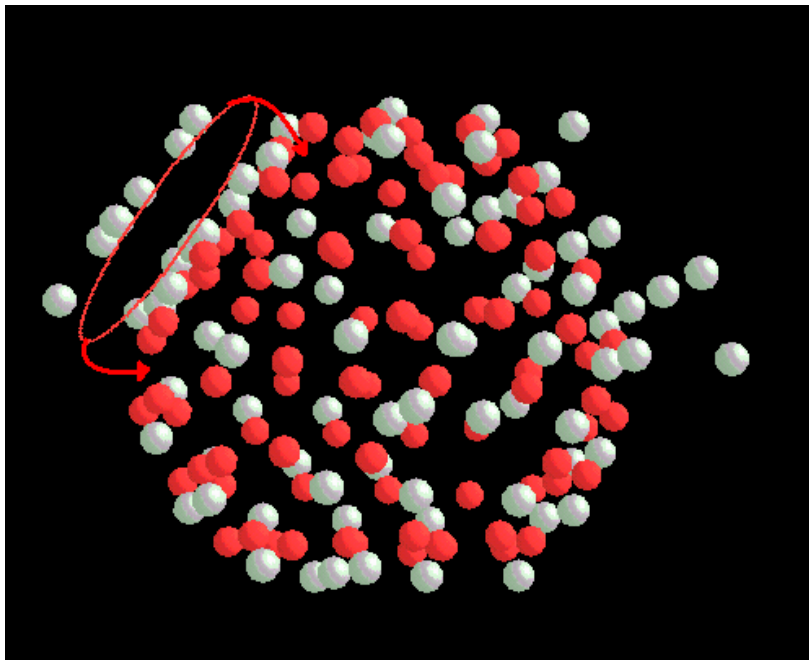


	1 pore	2 pores	3 pores	4 pores
G (Gpa)	76.1	73.2	71.2	71.3
E (GPa)	309.2	295.7	282.7	280.0
Etot(eV)	-34313.2	-34275.1	-34253.0	-34252.9
Nbsurf. Atoms	184	242	275	334

→ Fort impact de la surface

RESULTATS - *analyse de la surface des bulles*

	1 pore	2 pores	3 pores	4 pores
Pre-relax Stoichiometry U/O	0.36	0.83	0.74	0.73
Post-relax Stoichiometry U/O	1	0.88	0.94	0.93



- Migration des oxygènes observée
- Lacunes formées près de la bulle

→ Réorganisation globale de la surface

MAIS: bulk sans autre défauts

→ Les surfaces ont besoin de plus de liberté durant la relaxation

- **MONTE CARLO** - méthode en cours d'utilisation

CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Conclusion

→ Détermination de l'impact de porosités vides sur les propriétés thermomécaniques du combustible : excellent accord avec les approches mesoscopiques

→ Très fort effet de surface à préciser

Perspectives

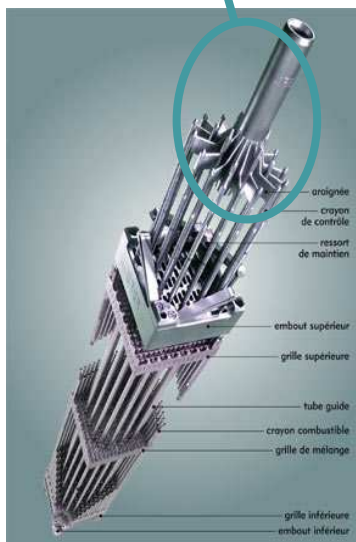
→ étude de la relaxation des surfaces

→ Prise en compte du gaz (Xe/Kr) dans les porosités



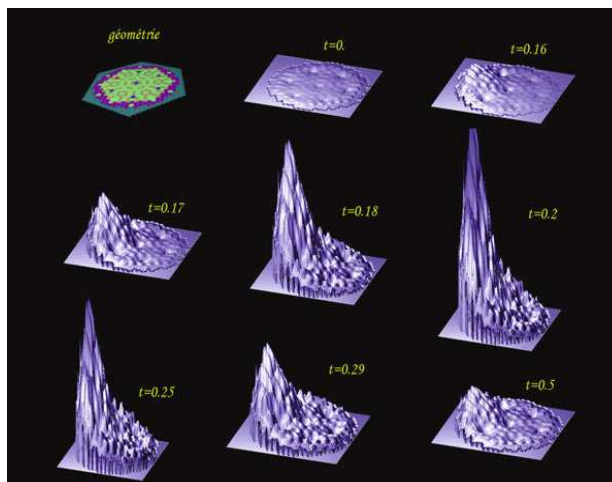
Problématique RIA

Grappe de commande

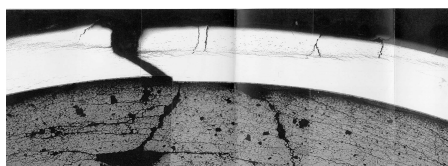
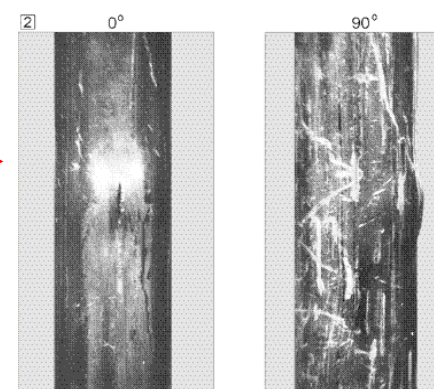


Éjection

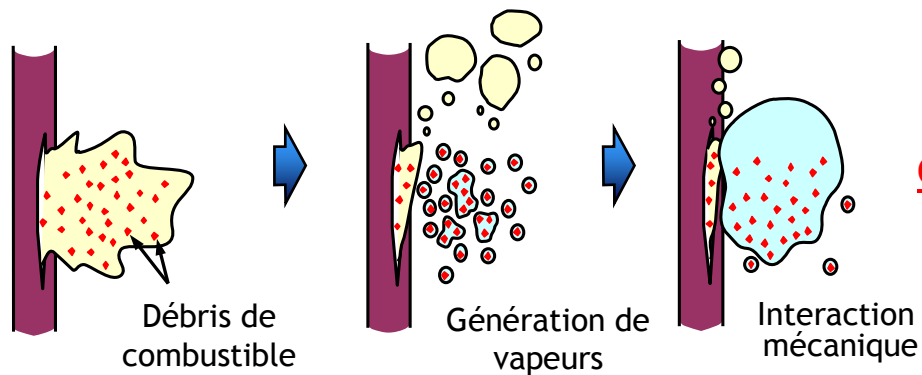
Évolution de la puissance dans le cœur après une éjection de grappe de commande



Gonflement du crayon



Rupture du crayon



Contamination du réfrigérant