

Impact de modifications microstructurales sur les propriétés macroscopiques des matériaux nucléaires : étude par simulations atomistiques de crayons combustibles

***Fabienne Ribeiro¹, Mehdi Colbert^{1,2}, Alice Dufresne^{1,2}, Jack Arayro^{1,2},
Roland J.M Pellenq^{2,3}, Andrei Jelea¹ et Guy Tréglia²***

1 IRSN, PSN-RES/SEMIA/LPTM, Centre d'études de Cadarache, 13115 St Paul lez Durance

2 CINaM, Campus de Luminy, Case 913, 13288 Marseille Cedex 9

3 MIT-CNRS Joint Laboratory, 77 Massachusetts Avenue, Cambridge, 02139, MA

**→ L'Institut de Radioprotection
et Sûreté Nucléaire**

La réforme de 2002 réunit sûreté nucléaire et radioprotection, sépare les fonctions de police technique de celles d'expertise et de celles d'exploitation d'installations.

**Expert public en charge de l'évaluation scientifique
du risque nucléaire et radiologique**

Cette expertise s'appuie sur la recherche

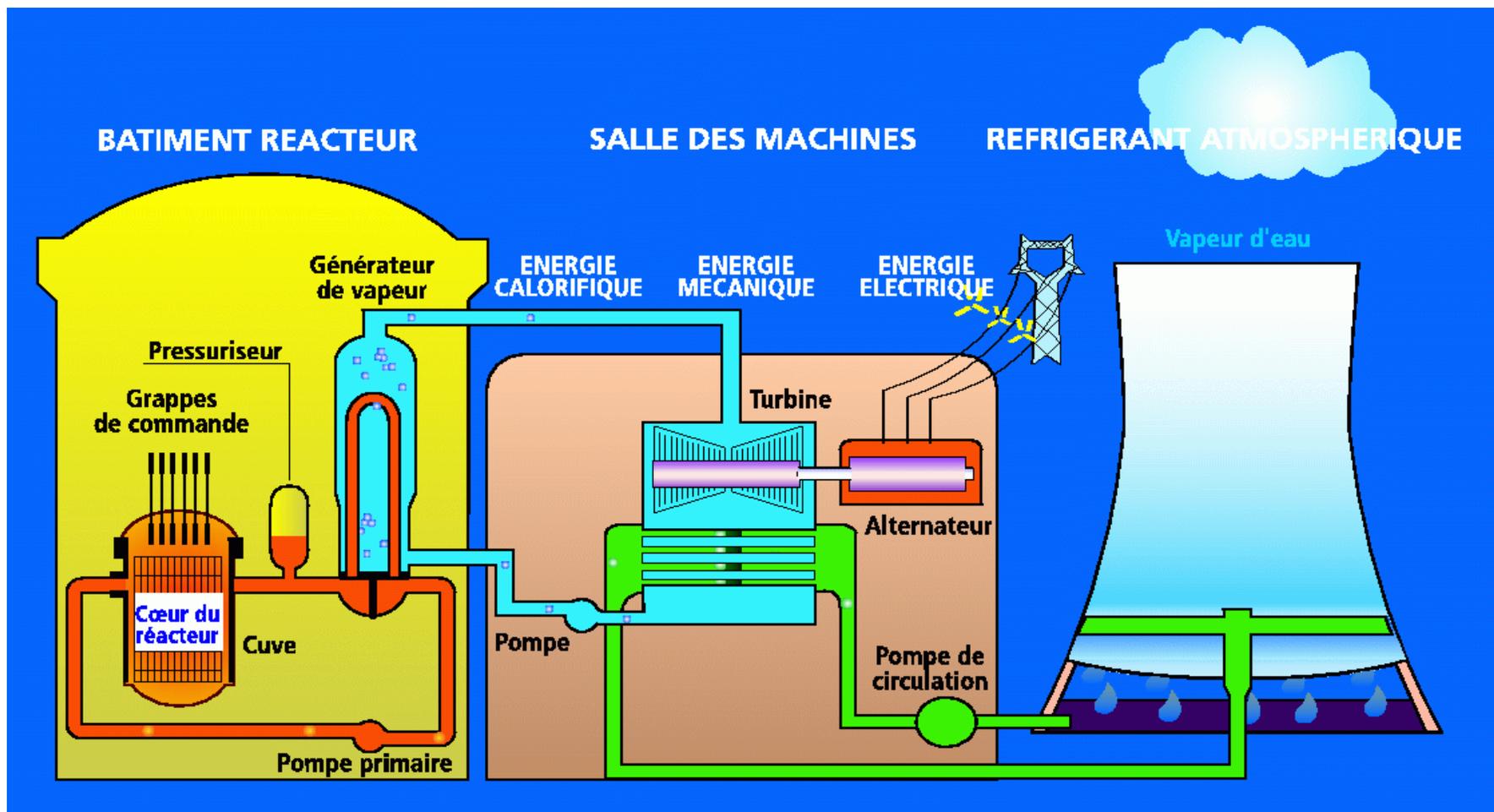
- Environnement, radioprotection, sûreté des installations

Le Laboratoire de Physique et Thermomécanique des Matériaux (LPTM-Cadarache)

- 14 permanents
 - Thermique des matériaux
 - Mécanique des structures
 - Physique du solide
 - Interaction thermique de type explosif
 - Développement de logiciel scientifique
- 2 principaux axes de recherches
 - R&D combustible
 - Modélisation du combustible en RIA
 - R&D Vieillissement
 - Modélisation des composants métalliques
 - Modélisation des bétons

Fonctionnement d'une centrale nucléaire

Schéma de principe



Le Laboratoire de Physique et Thermomécanique des Matériaux (LPTM)

- 14 permanents
 - Thermique des matériaux
 - Mécanique des structures
 - **Physique du solide**
 - Interaction thermique de type explosif
 - Développement de logiciel scientifique
- 2 principaux axes de recherches
 - R&D combustible
 - **Modélisation du combustible en RIA**
 - R&D Vieillissement
 - **Modélisation des composants métalliques**
 - Modélisation des bétons

Le Laboratoire de Physique et Thermomécanique des Matériaux (LPTM)

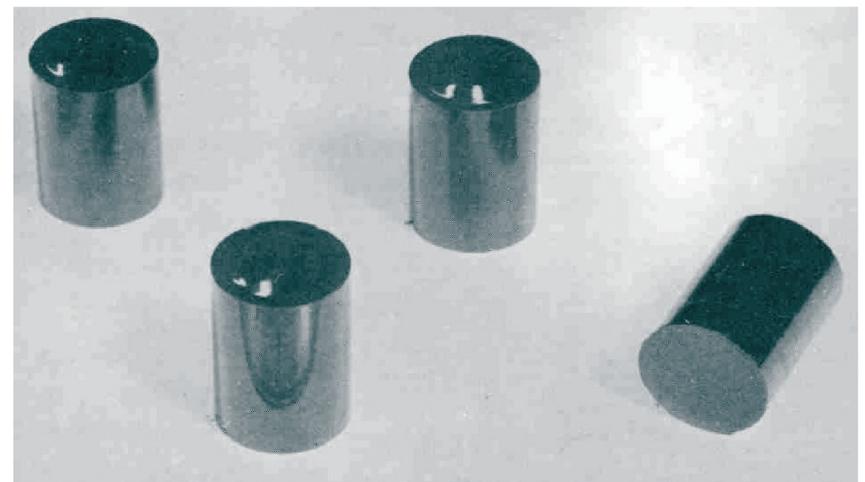
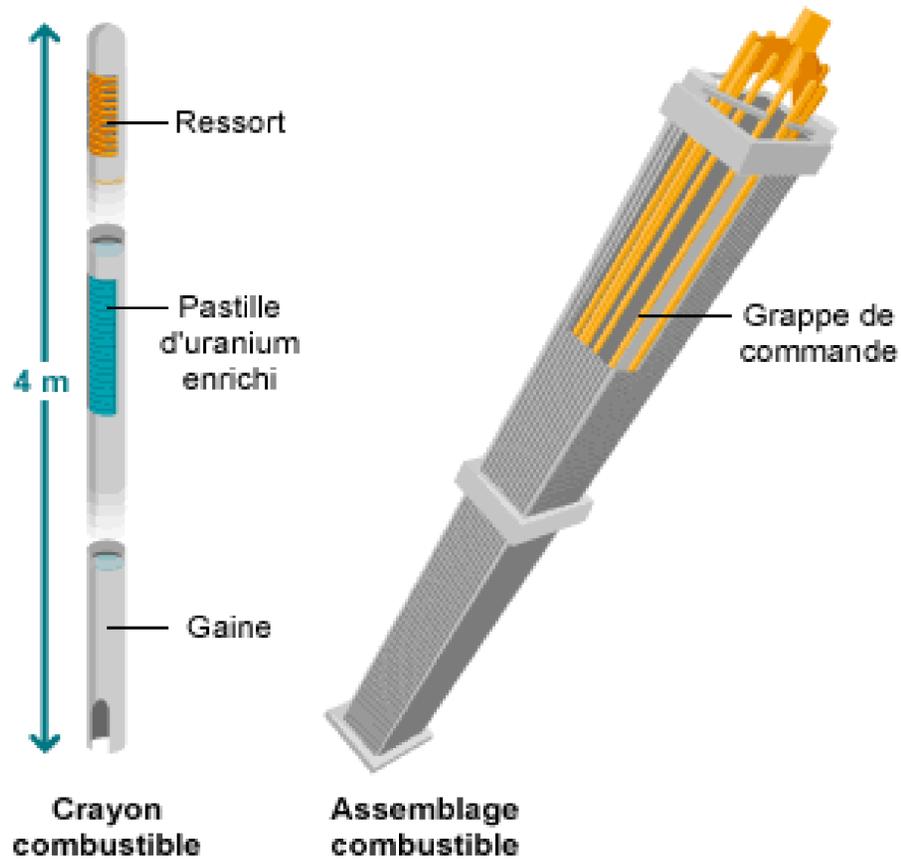
- 14 permanents
 - Thermique des matériaux
 - Mécanique des structures
 - **Physique du solide**
 - Interaction thermique de type explosif
 - Développement de logiciel scientifique
- 2 principaux axes de recherches
 - R&D combustible
 - **Modélisation du combustible en RIA**
 - R&D Vieillissement
 - **Modélisation des composants métalliques**
 - Modélisation des bétons
- 1 laboratoire commun IRSN/CNRS/Université Montpellier II : MIST
- Collaboration : CINaM, MATEIS

Le Laboratoire de Physique et Thermomécanique des Matériaux (LPTM)

- 14 permanents
 - Thermique des matériaux
 - Mécanique des structures
 - **Physique du solide**
 - Interaction thermique de type explosif
 - Développement de logiciel scientifique
- 2 principaux axes de recherches
 - R&D combustible
 - **Modélisation du combustible en RIA**
 - R&D Vieillessement
 - **Modélisation des composants métalliques**
 - Modélisation des bétons
- 1 laboratoire commun IRSN/CNRS/Université Montpellier II : MIST
- Collaboration : CINaM, MATEIS
- → Le Laboratoire d'Etude du corium et du Transfert de Radioéléments (LETR)

Fonctionnement d'une centrale nucléaire

Crayon combustible

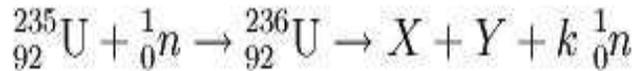


→ Impact de la présence de nanobulles de gaz rares sur le comportement thermomécanique d'une matrice combustible ?

Influence des gaz rares sur le RIA

Présence de Gaz

Réaction de fission

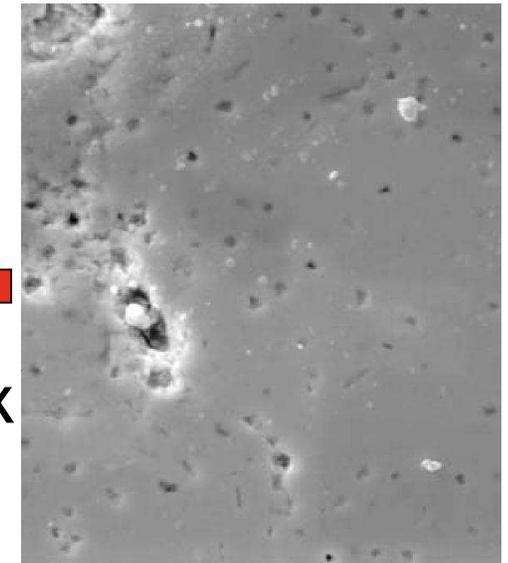
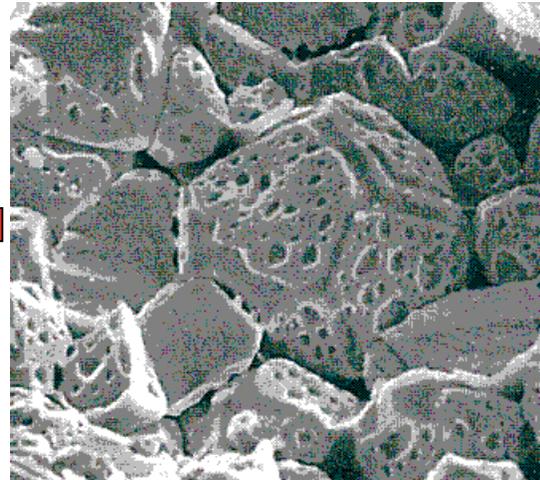


Produits gazeux (Xe, Kr)
insolubles dans la matrice de l'UO₂

Diffusion jusqu'aux
joints
de grain

Précipitation

Formation de
réseaux
interconnectés
+
Fragmentation
du combustible



T > 1800 K

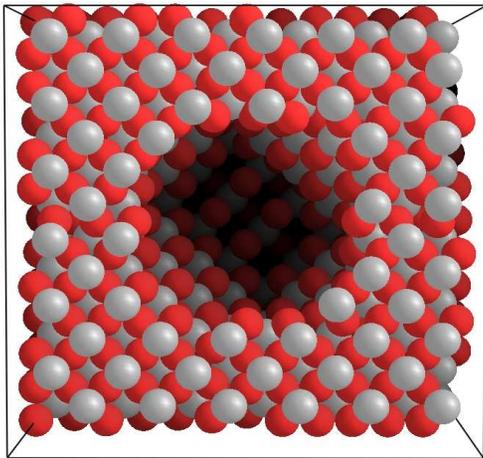
Libération
dans le jeu

Bulles
intergranulaires
(20-100 nm)

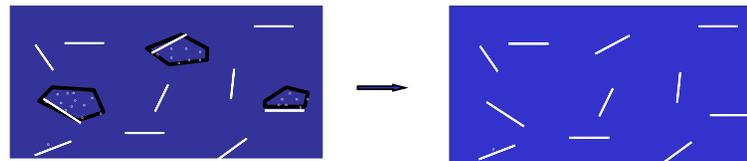
Bulles
intragranulaires
(1-10 nm)

Problématique : Une approche 'bottom-up'

Études atomistiques



Études mésoscopiques



homogénéisation ↓



Modèle global

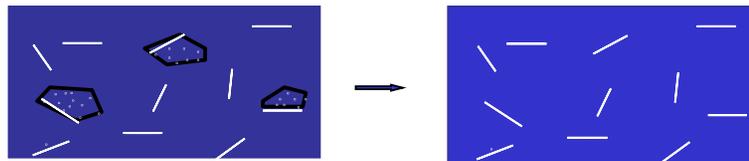
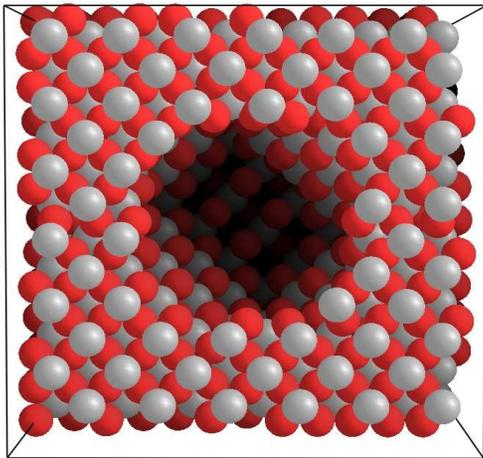


- $P_m = P_g - 2\gamma/R$
- $P_g = NRT/V$

Problématique : Une approche 'bottom-up'

—————→

Études atomistiques *Études mésoscopiques* *Modèle global*



homogénéisation ↓



~~$$\begin{aligned} \bullet P_m &= P_g - 2\gamma/R \\ \bullet P_g &= NRT/V \end{aligned}$$~~



Méthodologie : modèle énergétique

Calcul d'énergie → modélisation des interactions

Grand nombre d'atomes
Structure électronique précise
non indispensable } → Potentiels semi-empiriques

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

Coulomb Buckingham-Hill Morse

Interactions U-O

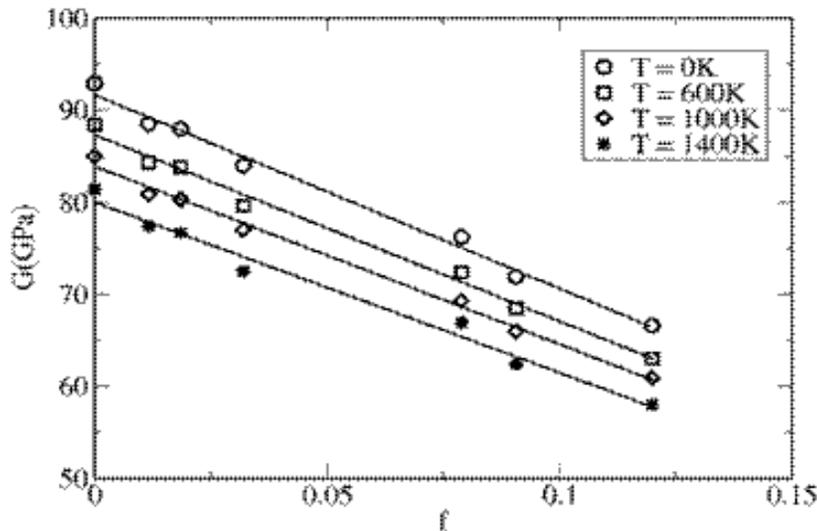
Potentiel de Basak (*BH* + *M*)
Somme d'Ewald (*C*)

Interactions Xe-Matrice
Interactions Xe-Xe

Potentiel de Grimes (BH)
Potentiel de Brearley (BH)

1) Impact de cavités sur les propriétés thermo-mécaniques

→ Minimisation d'énergie libre / Dynamique Moléculaire (NPT)



Bonne concordance avec les résultats micro-mécaniques et expérimentaux

Analyse plus fine de la dépendance en porosité :

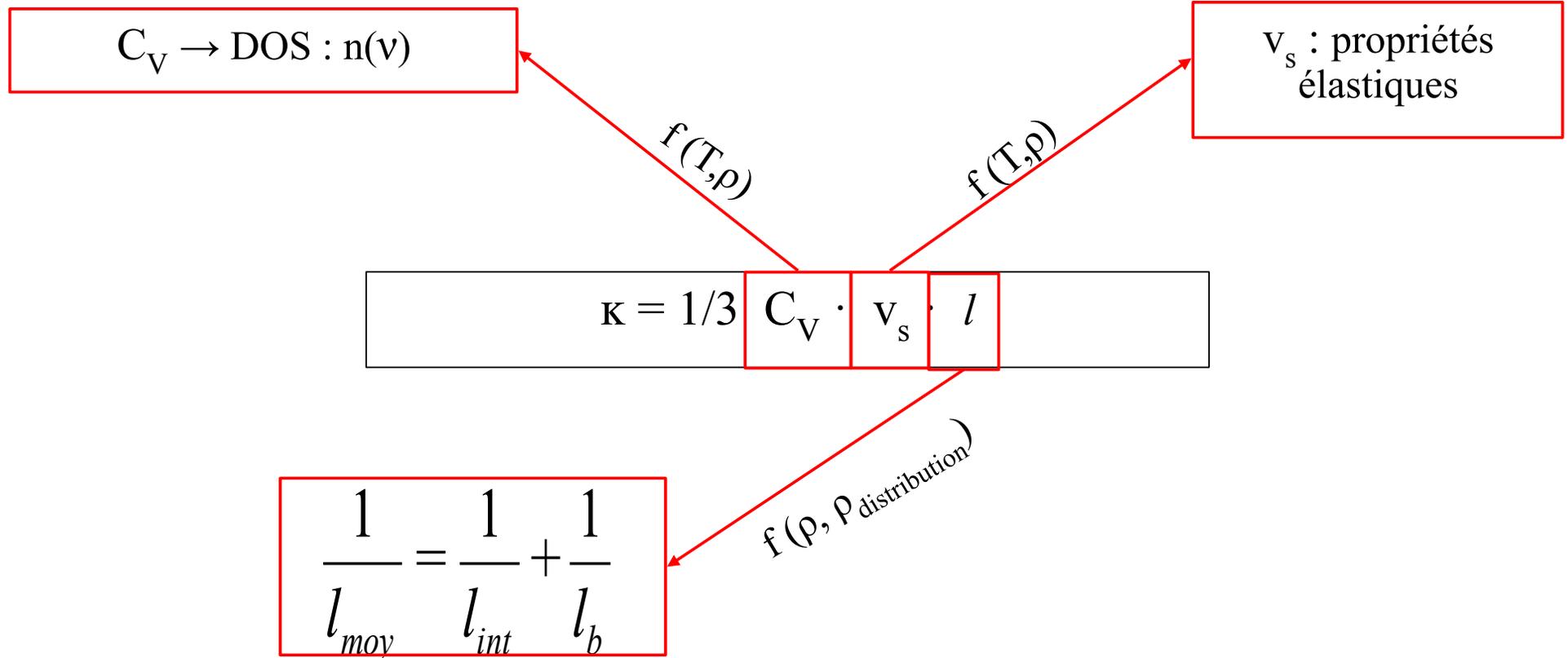
==>effets de surface importants

==>prise en compte aux échelles supérieures

$$\left. \begin{aligned} \frac{G}{G_m} &= 1 - a_G f \\ \frac{E}{E_m} &= 1 - a_E f \end{aligned} \right\} \text{Impact de la porosité}$$

$$\left. \begin{aligned} G_m(T) &= c_G + b_G T + a_G T^2 \\ E_m(T) &= c_E + b_E T + a_E T^2 \end{aligned} \right\} \text{Impact de la température}$$

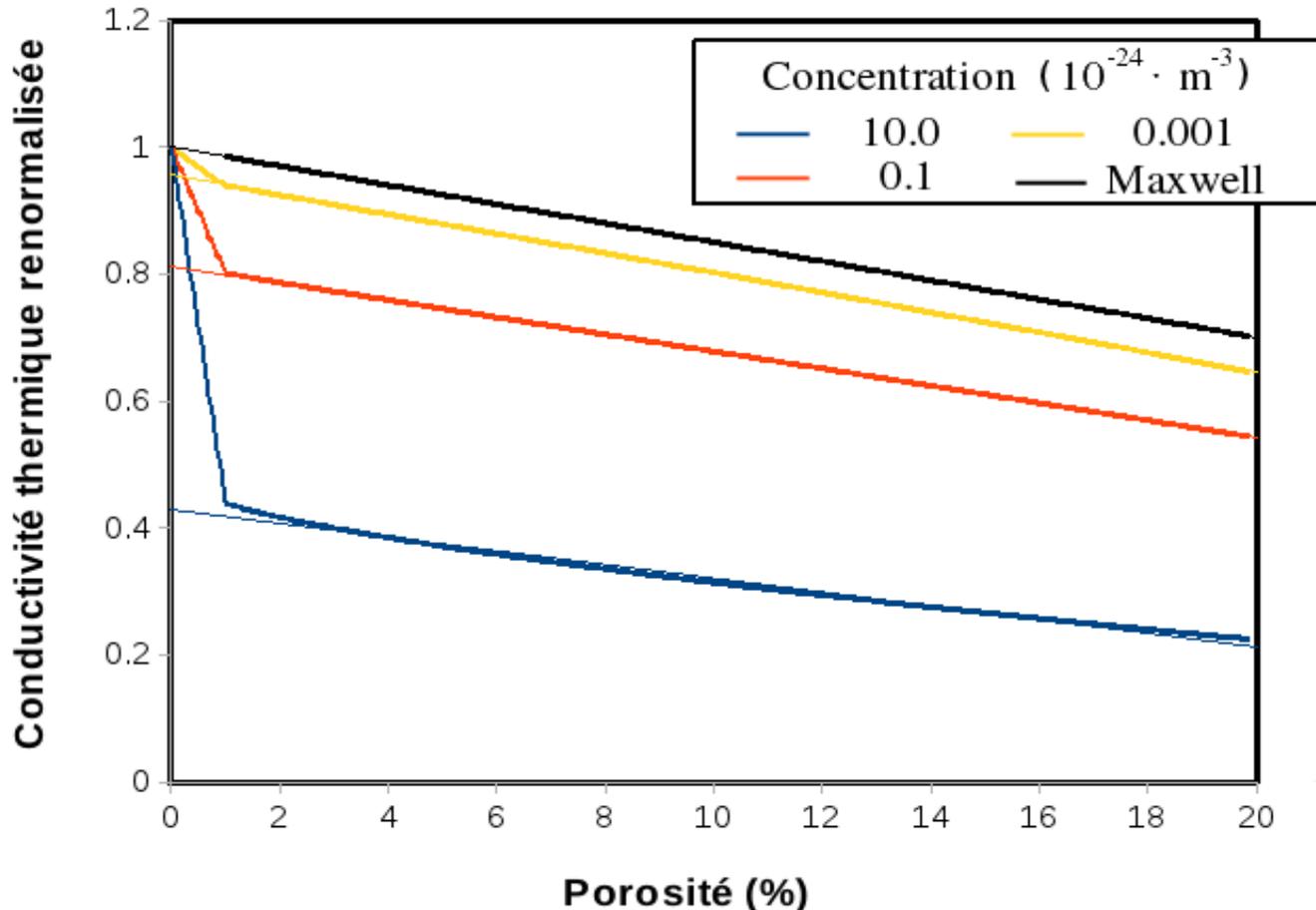
2) Évolution de la conductivité thermique avec la porosité



→ Expression ANALYTIQUE entre κ et T / porosité / concentration de bulles

2) Évolution de la conductivité thermique avec la porosité

Comparaison modèle de Maxwell : modèle limite traditionnel



Calcul de K :

→ Température : 800K

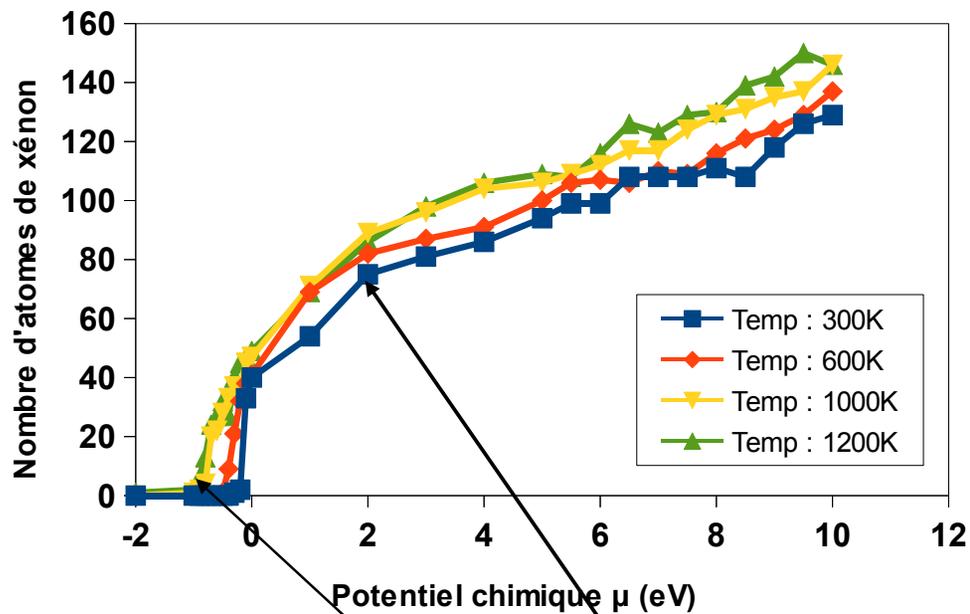
→ Densité de bulles
 $1.0 \times 10^{24} / \text{m}^3$

→ Les porosités intragranulaires vont jouer un rôle important sur la conductivité thermique de l' UO_2

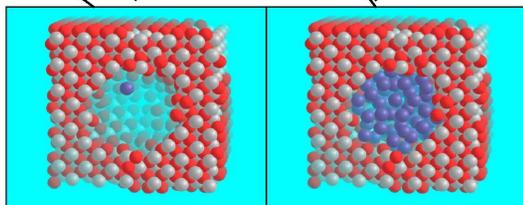
3) Caractérisation des bulles de xénon et calcul de pression

Remplissage de cavités par du xénon –
Monte-Carlo Grand Canonique dans une matrice fixe

Isotherme d'incorporation
Cavité 10Å



→ Transition d'un système dilué à un système dense

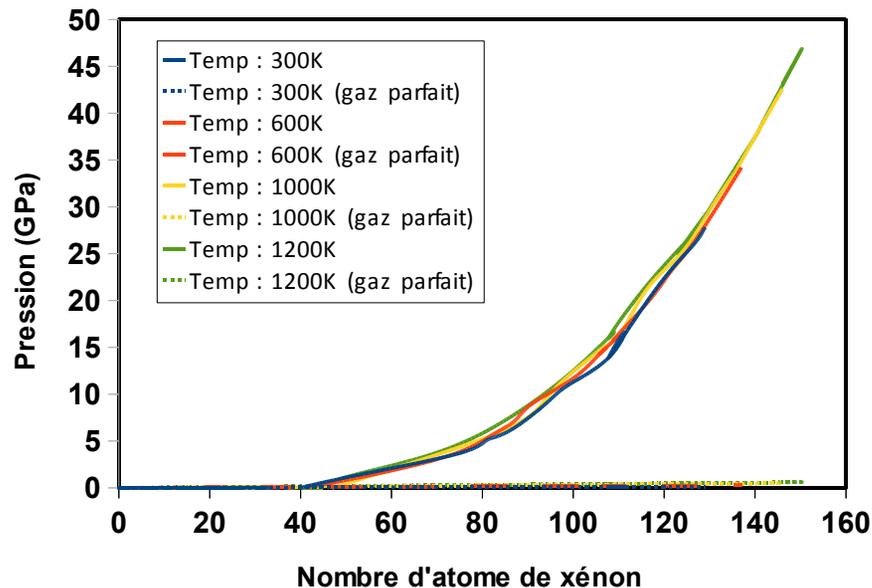


3) Caractérisation des bulles de xénon et calcul de pression

Calcul de pression dans la bulle

$$P_{bubble} = \left\langle \frac{N_{Xe} kT}{V} \right\rangle + \left\langle \frac{1}{3V} \left(\sum_{i<j} r_{ij} f_{ij} + \sum_{Xe} \sum_{mat.} \frac{1}{2} r_{ij} f_{ij} \right) \right\rangle$$

Cavité 10Å



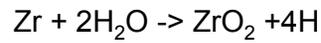
→ Faible effet de la température sur la pression à densité constante

**→ Fragilisation des gainages par
hydruration**

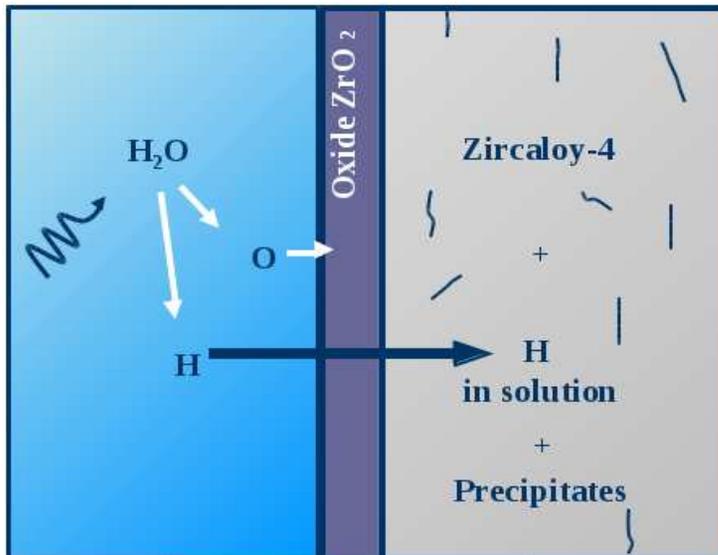
Précipitation d'hydrures de zirconium

pendant l'irradiation :

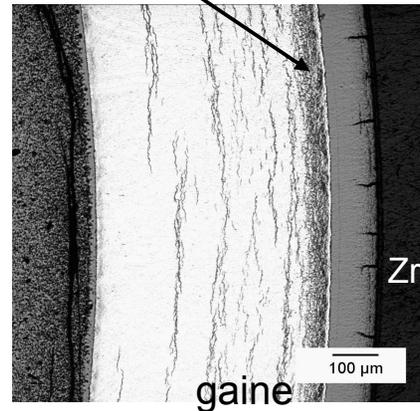
- oxydation des matériaux de gainage



- absorption d'Hydrogène (800-1000 ppm)



Rim d'Hydrures



Précipitation sous contrainte
Fragilisation des gainages

Diagramme de Phase ZrH

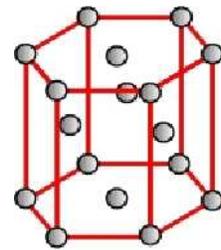
Phases en présence

→ Thermostatistiques

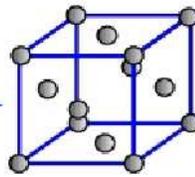
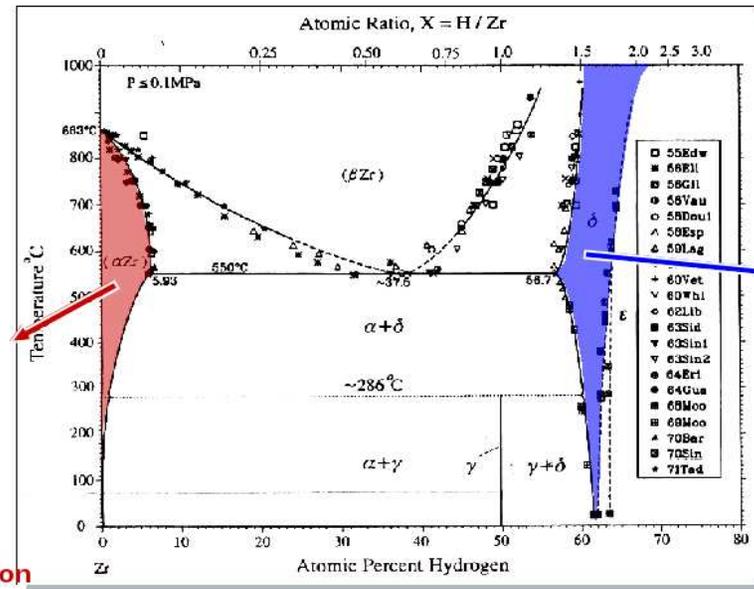
Transition de phases

→ Cinétiques

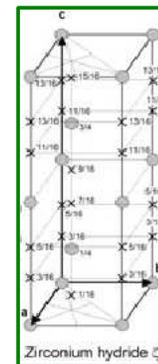
Impact des contraintes locales



Zr-α
• HCP
• H in insertion (tetrahedral sites)



ZrH_x-δ
• FCC
• H in random tetrahedral sites



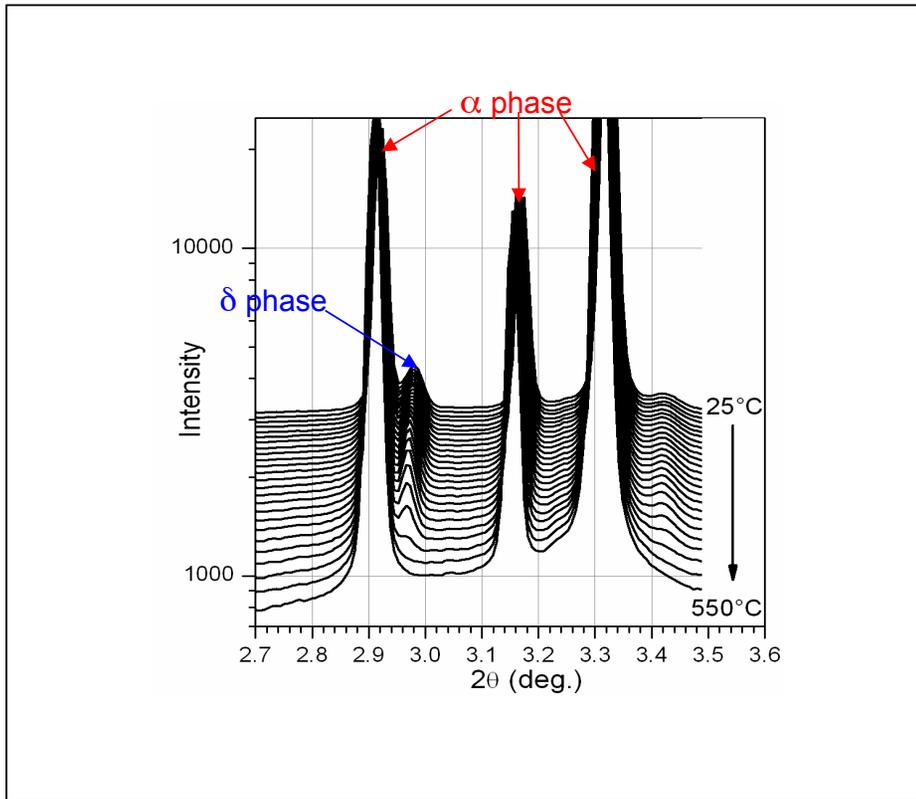
ZrH_x-ζ ?

Z. Zhao et al. J.Microscopy, 232 (2010) 410

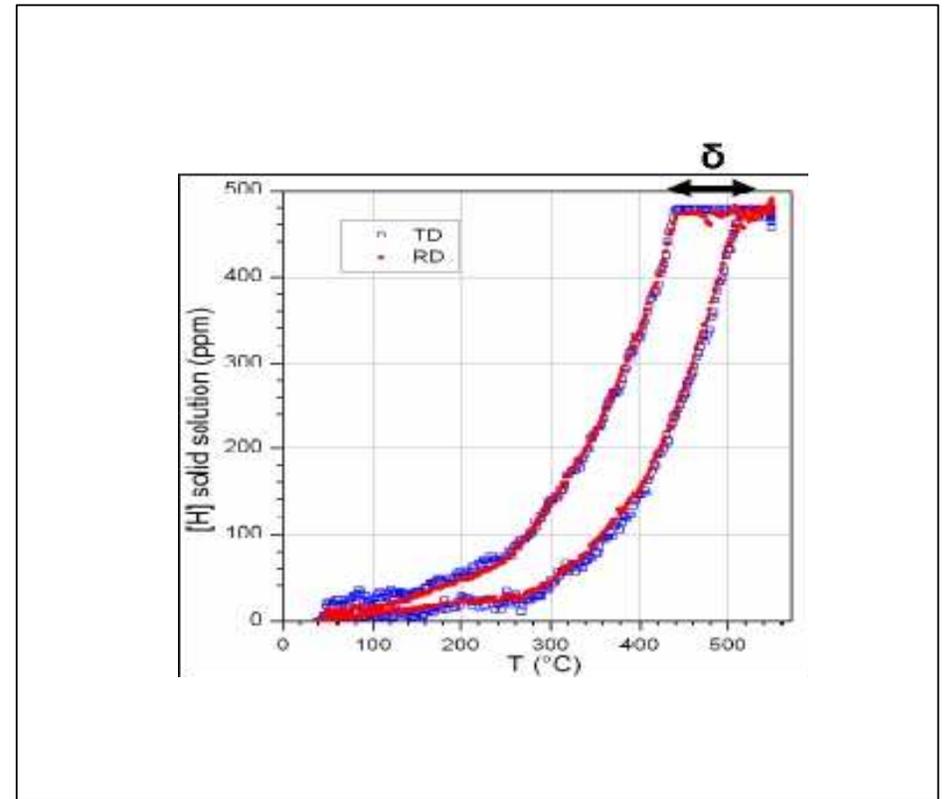
Observations expérimentales

Olivier Zanellato (IRSN-MATEIS-Manchester University)

- X-Ray synchrotron diffraction
- Suivi in situ de la résolution/ précipitation des hydrures



Variation du paramètre de maille Zr ?



Retard à la précipitation?

Etude théorique : modélisation atomistique

Objectif: découplage des paramètres

- Temperature
- H concentration
- Contraintes locales

→ Resultats expérimentaux à l'échelle atomique

→ Modélisation atomistique ==> Tight-Binding

→ Exploration du diagramme de phase

→ Besoin de thermostatistique: Monte Carlo

→ *Travail en cours (A. Dufresne)*

Conclusion

Matériaux Nucléaires = Problématique intrinséquement multiéchelle !!!

→ de l' *ab initio* aux codes combustibles

Diversité des approches mises en places :

ab initio...

TB...

Potentiels semi empiriques...

approches analytiques....

Micromécanique / champ moyen...

→ *Code combustible*

