

## Modélisation du comportement des combustibles à particules : caractérisation d'un Volume Élémentaire Représentatif pour un milieu hétérogène aléatoire

Victor Blanc<sup>1,2</sup>, B. Michel<sup>1</sup>, JM. Ricaud<sup>1</sup>, M. Garajeu<sup>2</sup>, JC. Michel<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Laboratoire de Simulations des Combustibles,  
CEA Cadarache, DEN/DEC/SESC  
13108 St Paul Lez Durance  
[Victor.Blanc@cea.fr](mailto:Victor.Blanc@cea.fr)

<sup>2</sup> Laboratoire de Mécanique et d'Acoustique,  
CNRS, 31 chemin Joseph Aiguier,  
13402 Marseille CEDEX 20

### Résumé :

Les combustibles à particules sont constitués de particules sphériques d'oxyde d'uranium enrobé de plusieurs couches de confinement, noyées dans une matrice graphite. Pour prendre en compte l'influence de la répartition aléatoire des particules sur les chargements thermomécaniques locaux, une modélisation multi-échelles est nécessaire. Le choix s'est porté vers la méthode des éléments-finis au carré, où interviennent deux échelles distinctes de discrétisation : une structure « macroscopique » homogène dont les propriétés en chaque point d'intégration sont calculées sur une seconde structure « microscopique » hétérogène (Volume Élémentaire Représentatif). La première partie de l'étude vise à caractériser la microstructure aléatoire par un indicateur morphologique basé sur la distribution des distances minimales entre les centres des particules. Le comportement élastique des VER, obtenu par calcul éléments finis, a ensuite été comparé à un modèle analytique. Enfin, nous avons défini des indicateurs de représentativité thermique et mécanique basés sur les modes de rupture des particules sous irradiation.

### Abstract :

HTR fuel is based on spherical coated particles of uranium dioxide inserted in graphite blocks. To take into account the effects of the random distribution of fuel particles on local thermomechanical fields, the simulation propose a multi scale approach based on the Finite Element Square method. This method make use of a two scale discretization: a finite element computation on the Representative Volume Element (RVE) is carried out simultaneously at each integration point of the homogeneous macrostructure. The first characterization of the random geometry is given by a distribution indicator: the minimal distance between centres of particles. After, we used finite element computation to obtain the effective behaviour, which have been compared with an analytic model. Finally, we define thermal and mechanical representativity criteria, inspired by particles failure under irradiation.

**Mots-clefs : Homogénéisation ; Volume Élémentaire représentatif ; Combustible à particules**

### 1 Introduction

Le CEA travaille actuellement au développement d'une nouvelle génération de réacteurs à fission à caloporteur gaz à haute température, le concept HTR (High Temperature Reactor). Le combustible HTR est constitué de particules sphériques d'un millimètre de diamètre composées d'Oxyde d'Uranium enrobé de plusieurs couches de confinement, constituées de carbone pyrolytique (PyC) et de carbure de silicium (SiC). Ces particules sont noyées dans une matrice graphite, de forme sphérique, les « boulets », de six centimètres de diamètre (cf. Fig.1), ou cylindrique de quinze millimètres de diamètre, les « compacts ». La fraction volumique de particules y est respectivement de

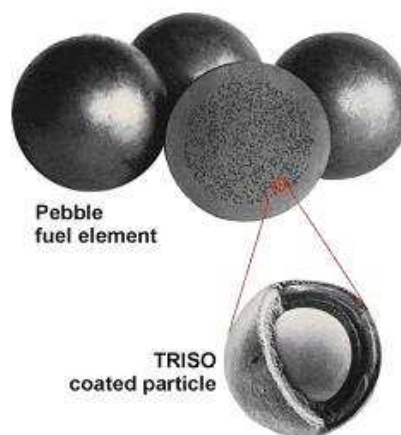


FIG. 1 : Coupes d'un boulet et d'une particule

dix et quinze pourcent, ce qui correspond à environ dix mille particules par boulet et quatre mille par compact.

Notre étude s'intègre dans un travail de thèse visant à développer un outil de simulation du comportement thermo-mécanique du combustible sous irradiation ; l'objectif est l'estimation des chargements locaux, dont dépend l'intégrité de la couche de SiC. Dans cette optique, une modélisation multi-échelles est nécessaire pour prendre en compte l'influence de la répartition aléatoire des particules sur l'intégrité du combustible. Le choix s'est porté vers la méthode des Eléments-finis au carré (EF<sup>2</sup>) développée par F. Feyel (2000), où interviennent deux échelles distinctes de discrétisation : une structure « macroscopique » homogène (échelle du boulet) dont les propriétés en chaque point d'intégration sont calculées sur une seconde structure « microscopique » hétérogène (Volume Élémentaire Représentatif), où le comportement individuel des phases ainsi que leurs interactions sont pris en compte.

Le VER doit donc être représentatif de l'hétérogénéité du milieu, tout en étant aussi petit que possible pour limiter le temps de calcul, Kanit et Al. (2003). Le changement d'échelle se base sur l'homogénéisation des milieux périodiques, ce qui détermine le type de conditions aux limites à imposer au VER.

## 2 Caractérisation morphologique des VER

Le choix d'un VER, pour le calcul EF<sup>2</sup>, est basé dans un premier temps sur un critère morphologique. La sélection sur des critères thermomécaniques se fait dans un second temps. Un des objectifs de fabrication pour le combustible à particules est d'obtenir une distribution de particules homogène dans le boulet. Ne disposant pas de données expérimentales, nous avons généré des microstructures à partir d'un schéma de sphères dures, dans un cube périodique. La fraction volumique de particules a été fixée à 10 %, ce qui correspond au combustible de type boulet, et les particules ont été supposées de taille identique.

### 2.1 Indicateur morphologique : fonction distance

La fonction distance est un outil efficace pour distinguer les microstructures aléatoires en amas, Bilger (2003). Cependant elle nécessite de discrétiser entièrement l'image. Afin de pouvoir accéder à des structures de grande taille sans alourdir les temps de calcul, nous avons utilisé une fonction distance simplifiée : la fonction de distribution des distances minimales entre les centres des particules. A chaque particule correspond sa distance minimale :

$$d_i = \min_{\substack{j=1,\dots,N \\ j \neq i}} \left\{ d_j = \sqrt{(x_j - x_i)^2 + (y_j - y_i)^2 + (z_j - z_i)^2} \right\},$$

où  $(x_i, y_i, z_i)$  sont les coordonnées du centre de la particule  $i$ .

Cette fonction ne fait donc intervenir que les coordonnées des centres des particules.

### 2.2 Donnée asymptotique

A ce jour, nous ne disposons pas de données expérimentales récentes sur la distribution géométrique des particules dans le combustible, le procédé de fabrication étant en cours d'amélioration. Afin de définir un milieu de référence, nous avons généré des microstructures aléatoires tridimensionnelles contenant 1000 et 10.000 particules, sur lesquelles nous avons mesuré la fonction de distribution des distances minimales centre à centre.

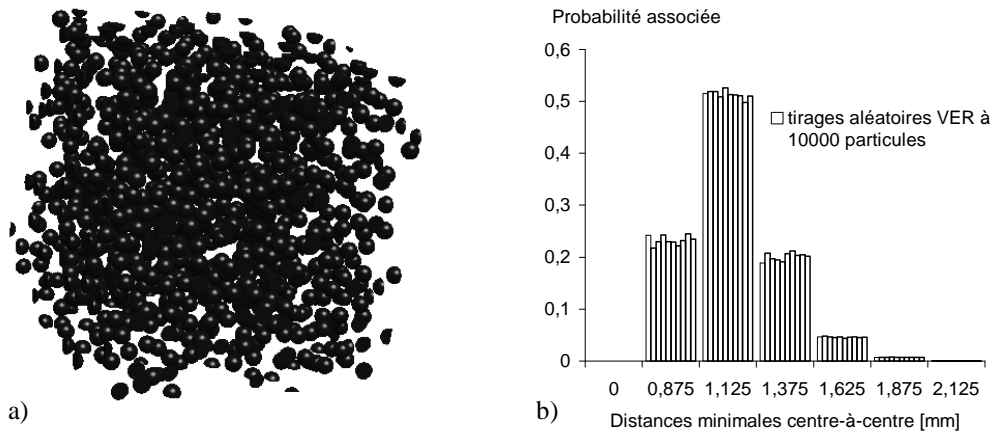


FIG. 2 : a) Tirage aléatoire de 1000 particules. b) Fonctions de distribution des distances minimales centre à centre associées à dix VER de 10.000 particules.

Les résultats de cette série de mesure sur des tirages aléatoires montrent que plus le nombre de particules est important, moins la fonction distance utilisée devient sensible au tirage. Cette fonction tend bien vers une forme « asymptotique », qui a été utilisée comme forme de distribution référence, pour pouvoir y comparer les microstructures périodiques dont la cellule de base contient une dizaine de particules.

### 2.3 Critère morphologique de représentativité

Afin de caractériser la représentativité morphologique du VER, nous avons défini un indicateur basé sur la variance. Il est égal à la somme des carrés des écarts obtenus entre la distribution du VER et la distribution idéale, pour chaque valeur distance :

$$E = \sum_{i=1..N} (p(d_i) - p(d_i)_{\text{asymptotique}})^2.$$

Nous avons ensuite généré des microstructures aléatoires périodiques contenant 3, 5, 7, 8 et 10 particules. Ne pouvant obtenir sur ces VER à quelques particules une fonction de distribution riche, nous avons mesuré celle-ci sur des milieux d'environ 10.000 particules, reconstruits par périodicité à partir de ces mêmes cellules de base, comme l'indique la figure 3.

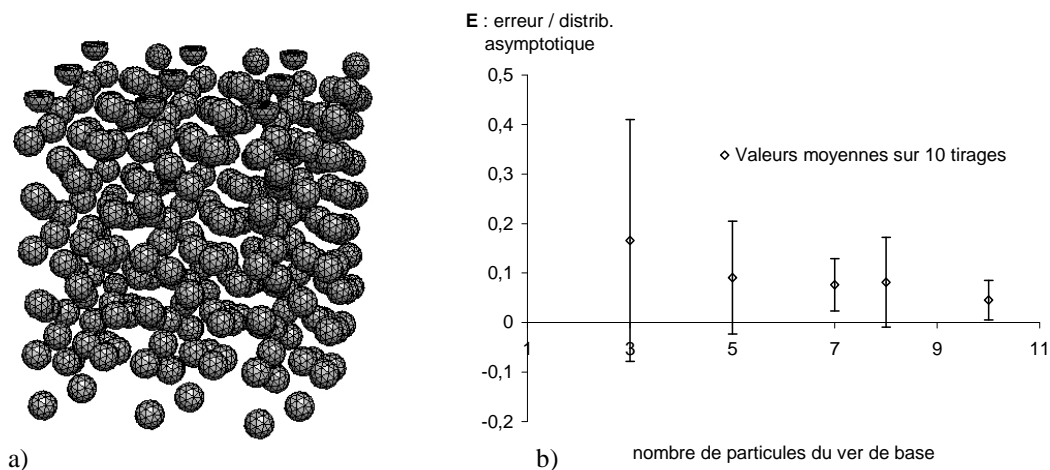


FIG. 3 : a) Milieu périodique de VER à 10 particules. b) évolution de l'indicateur morphologique mesuré sur des milieux périodiques avec la taille de cellule de base. Les barres d'erreur représentent l'écart type mesuré sur dix tirages.

On observe sur la figure 3b que l'indicateur diminue en moyenne de façon significative. Il en est de même pour les écarts types. Cependant, ce n'est pas le cas des tirages à 8 particules. Le nombre de tirages en est peut-être une cause. La fonction de distribution des distances minimales permet néanmoins d'apprécier une forme de représentativité géométrique de ces microstructures vis-à-vis du milieu purement aléatoire. L'indicateur sera donc utilisé par la suite pour sélectionner les tirages de microstructure.

### 3 Comportement effectif des VER

Pour la mise en œuvre de la méthode EF<sup>2</sup>, le comportement thermomécanique du combustible à particules doit être décrit à deux échelles distinctes :

- l'échelle de la microstructure, les particules, de l'ordre du millimètre ;
- l'échelle du combustible, boulet ou compact, de l'ordre du centimètre.

A l'échelle inférieure, le comportement effectif est déterminé par un Volume Élémentaire Représentatif (VER). Pour caractériser la représentativité thermomécanique du VER, nous avons comparé deux méthodes : une première méthode par éléments finis sur différentes tailles de VER, et une deuxième méthode admettant une solution analytique, le modèle n+1-phases proposé par Hervé et Zaoui (1993).

#### 3.1 Modélisation en élasticité linéaire

Une série de 50 tirages de VER contenant 5, 10 et 20 particules a été sélectionnée, en fonction du critère morphologique basé sur la fonction de distribution des distances minimales. Chaque VER a ainsi été sélectionné parmi 1000 tirages. Pour pouvoir étudier l'intégrité du combustible, le modèle éléments finis devait prendre en compte les 4 couches de confinement, dont les propriétés sont décrites dans le tableau 1. Le maillage des couches contient donc plusieurs éléments dans l'épaisseur, malgré sa dimension. Les éléments utilisés sont des prismes coniques centrés sur le centre des particules ou sur leur intersection avec les frontières du cube.

Le combustible est macroscopiquement isotrope. Afin de vérifier la pertinence de la réponse mécanique du VER vis-à-vis de cette isotropie, nous avons simulé la réponse de ces microstructures à 6 chargements élémentaires, trois de traction et trois de cisaillement, pour retrouver 21 coefficients indépendants définissant le comportement élastique.

Désignation du matériau des couches	Module d'Young [MPa]	Coefficient de Poisson	Module de compressibilité [MPa]	Module de cisaillement [MPa]	Rayon extérieur [µm]
Noyau UO <sub>2</sub>	186 000	0.3	155 000	71 538.46	250
Buffer PyC poreux	1	0.3	0.833	0.385	345
PyC interne	13 000	0.21	7 471.26	5 371.9	385
SiC	421 000	0.3	350 833.33	161 923.08	420
PyC externe	19 000	0.21	10 919.54	7 851.24	460
Matrice Graphite	12 000	0.126	5 347.59	5 328.6	-

TAB. 1 : Récapitulatif des dimensions et des propriétés élastiques des constituants

Dans la matrice de raideur, on observe une erreur maximale de 1 % entre les coefficients qui devraient être identiques non nuls, ainsi qu'entre ceux qui devraient être nuls et ceux non nuls. Ce premier résultat que nous n'avons pas développé ici, obtenu par calcul éléments finis dès 5 particules, est une validation de l'isotropie du comportement. Ceci a également pu être vérifié dans le cadre de la thermique linéaire. Les coefficients indépendants du modèle isotrope,  $k$  et  $\mu$ , ont ensuite été calculés en moyennant les valeurs obtenues suivant les trois directions (cf. Fig. 4). En raison de problèmes de mémoire (maillages à 160 000 nœuds), nous n'avons obtenu le résultat que sur 11 VER à 20 particules.

Le second modèle utilisé pour calculer le comportement effectif est une sphère multicouche noyée dans un milieu infini. Lorsqu'on assimile le comportement effectif du milieu

infini à celui du milieu homogène équivalent, le module de compressibilité effectif peut être déduit d'une équation de récurrence simple, et le module de cisaillement d'une équation du second degré (Hervé et Zaoui, 1993). La valeur de ces modules est montrée Figure 4.

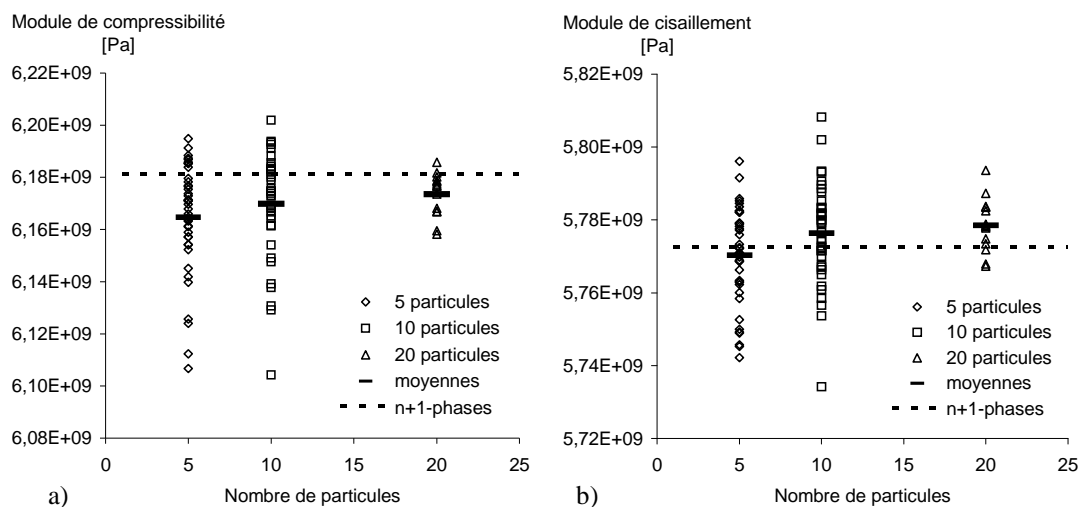


FIG. 4 : Evolution des modules de compressibilité (a) et de cisaillement (b) effectifs calculés par EF. et comparaison avec le modèle n+1-phases.

### 3.2 Validation du comportement effectif

Les calculs éléments finis montrent que, pour des VER à 5 et 10 particules, l'écart maximal est de 1,5 pourcent sur les modules de compressibilité et de cisaillement. Pour les VER à 20 particules cet écart serait apparemment réduit, mais le nombre de réalisation ne permet pas de conclure. Contrairement à nos attentes, la valeur moyenne sur les tirages augmente légèrement dans les deux cas ; peut-être que, là encore, un plus grand nombre de réalisations serait nécessaire pour tirer une conclusion. En effet les travaux de Michel et Al. (1999) montrent en utilisant une méthode par Transformée de Fourier Rapide que la moyenne du comportement est identique pour des réalisations contenant 8, 64 et 420 inclusions, cela à partir d'une centaine de réalisations à 8 particules. D'autres réalisations par EF sur des VER à 20 particules sont en cours, pour confirmer cette tendance. L'augmentation de ces valeurs moyennes reste toutefois en accord avec l'estimation autocohérente.

## 4 Modélisation du comportement sous irradiation

Une méthode de choix du VER sur des critères locaux nous a paru nécessaire. Nous avons donc cherché à évaluer l'influence de la répartition des particules, et donc des interactions, sur les champs de température et de contrainte locaux dans les conditions d'irradiation.

### 4.1 Fonctionnement sous irradiation

Sous irradiation, la réaction de fission des noyaux d'UO<sub>2</sub> provoque un fort dégagement de chaleur dans les noyaux des particules ( $3.10^9$  W/m<sup>3</sup>), qui est évacué vers l'extérieur du combustible et provoque un flux de chaleur radial, d'où une dissymétrie du chargement des particules. D'autre part, la fission produit des gaz qui, eux, doivent rester confinés dans les particules par les couches d'enrobage. Leur tenue mécanique est alors assurée par la mise en compression de la couche de SiC, grâce à la densification des couches de PyC sous l'effet du flux neutronique. Malgré ce procédé, une fraction des particules est rompue après irradiation.

## 4.2 Critère thermique

Nous avons simulé par EF la réponse thermomécanique linéaire à un chargement d'irradiation, pour la série de VER déjà utilisée. Afin de reproduire l'effet du flux de chaleur, un « gradient macroscopique » de température entre deux des faces du VER a été imposé, tout en tenant en compte de la périodicité. Les sources de chaleur ont été appliquées dans les noyaux. Seuls les résultats en thermique sont présentés pour des raisons de concision, la démarche est identique en mécanique.

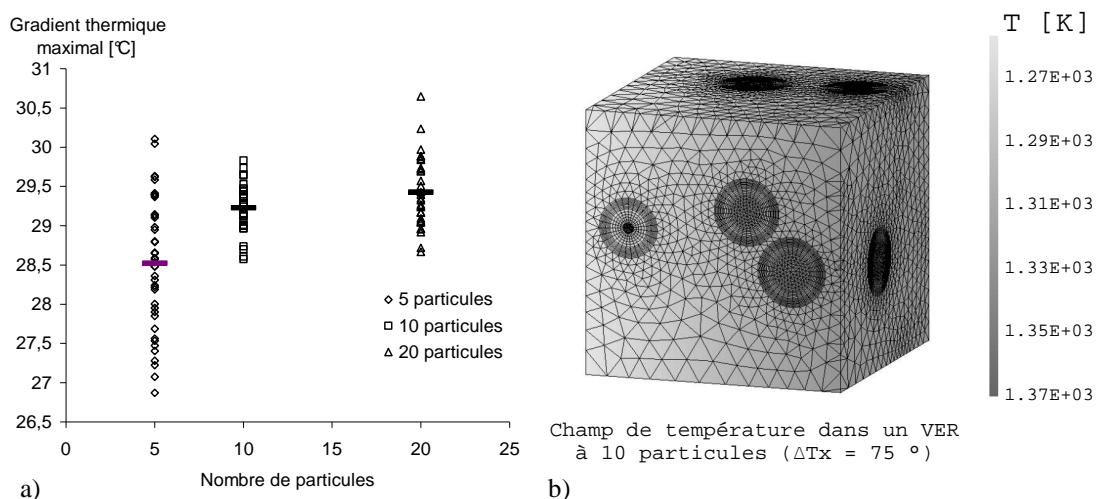


FIG. 5 : a) Evolution du gradient thermique maximal dans l'OPyC pour différents tirages de VER. b) champ de température associé à un gradient macroscopique unidirectionnel.

Ces calculs ont montré que les interactions influencent le gradient thermique maximal dans les couches de PyC externe au sein d'un VER. Nous avons donc relevé la valeur maximale du gradient par VER, ce qui est tracé sur la figure 5a. Les valeurs fluctuent respectivement de 10, 5 et 7 % pour les VER à 5, 10 et 20 particules. Leur moyenne augmente d'un degré avec le nombre de particules. Ce critère du gradient thermique maximal par VER peut donc être utilisé pour une première sélection. Sa valeur moyenne sur le VER, ou sa fonction de distribution pourront aussi intervenir dans le choix du VER.

## 5 Conclusion

Cette étude du comportement du combustible permet de choisir un VER en fonction de trois critères : un critère morphologique, un critère lié au comportement effectif, et un critère lié au comportement local. Ces deux derniers pourront de plus être choisis en thermique ou en mécanique. L'impact de ce choix sera ensuite évalué sur la réponse globale du modèle EF<sup>2</sup>.

## Références

- Bilger, N., 2003. Etude micromécanique de l'effet de la présence d'amas d'inclusions sur la transition fragile-ductile d'aciers nucléaires. Thèse de doctorat de l'Ecole Polytechnique.
- Feyel, F., Chaboche, J.L. 2000. FE<sup>2</sup> multiscale approach for modelling the elastoviscoplastic behaviour of long fibre SiC/Ti composite materials. *Comp. Meth. Appl. Mech. Engrg.* Vol.183, p 309-330.
- Hervé, E., Zaoui, A., 1993. *n*-layered inclusion-based micromechanical modelling. *Int. J. Engng. Sci.*, Vol. 31, No. 1, p 1-10.
- Kanit, T., Forest, S., Galliet, I., Mounoury, V., Jeulin, D., 2003. Determination of the size of the representative volume element for random composites: statistical and numerical approach. *Int. J. Sol. Stru.* Vol. 40, p 3647-3679.
- Michel, J.C., Moulinec, H., Suquet, P., 1999. Effective properties of composite materials with peiodic microstructure: a computational approach. *Comp. Meth. Appl. Mech. Engrg.* Vol. 172, p109-143.