HAL open science

Caractérisation du réseau de porosité d'une céramique de dioxyde d'uranium en vue de la modélisation de sa conductivité thermique

Joane Meynard, Christelle Duguay, Arnaud Monnier, Renaud Masson, Mihail Garajeu, Michel Bornert

To cite this version:

Joane Meynard, Christelle Duguay, Arnaud Monnier, Renaud Masson, Mihail Garajeu, et al.. Caractérisation du réseau de porosité d'une céramique de dioxyde d'uranium en vue de la modélisation de sa conductivité thermique. Colloque National MECAMAT - 2018, Jan 2018, Aussois, France. hal-02415478

HAL Id: hal-02415478

https://hal.science/hal-02415478v1

Submitted on 17 Dec 2019

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Distributed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License

CARACTÉRISATION DU RÉSEAU DE POROSITÉ D'UNE CÉRAMIQUE DE DIOXYDE D'URANIUM EN VUE DE LA MODÉLISATION DE SA CONDUCTIVITÉ THERMIQUE

J. Meynard [a], C. Duguay[a], A. Monnier[a], R. Masson [a], M. Garajeu[b], M. Bornert[c]
[a] CEA Cadarache, DEN/DEC (SESC et SFER) , 13108 Saint-Paul-lez-Durance, joane-valerie.meynard@cea.fr ;
[b] Laboratoire de Mécanique et d'Acoustique, CNRS UPR 7051, 4 impasse Nikola Tesla, 13013 Marseille, France ;
[c] Laboratoire Navier, Université Paris Est, Ecole des Ponts ParisTech, 6-8 avenue Blaise Pascal, Champs-sur-Marne, 77455 Marne-la-Vallee Cedex, France.

Mots-clefs : Dioxyde d'uranium, porosité, conductivité thermique, traitement d'images, paramètres descripteurs, homogénéisation, tomographie à rayons X.

1 Introduction

Les céramiques de dioxyde d'uranium (UO_2) obtenues par frittage sont utilisées comme combustibles dans les réacteurs à Eau Pressurisée (REP) du parc électronucléaire français. Ces céramiques possèdent une microstructure constituée d'une matrice solide d'UO_2 et d'un réseau de porosités. La porosité totale est l'ensemble des pores présents dans un combustible. Deux familles de porosités peuvent être distinguées : les pores isolés dans la phase solide (la porosité fermée) et ceux interconnectés et accessibles à des fluides extérieurs (la porosité ouverte).

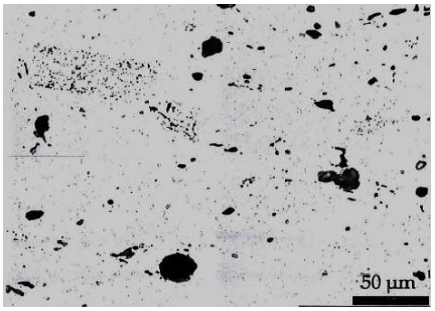


FIGURE 1 – Microstructure de combustible standard REP (Fig. issue de [1])

Les combustibles UO_2 utilisés dans les REP possèdent une microstructure dite standard (voir Fig.1) avec un réseau constitué essentiellement de porosité fermée (5 à $6\,\%$) et une fraction volumique de porosité ouverte inférieure à $0,1\,\%$. Les pores fermés ont une forme sphérique et un diamètre moyen de $20\,\mu m$.

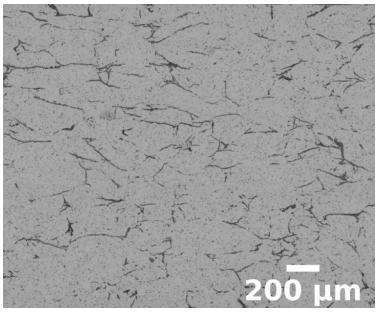


FIGURE 2 – Exemple de microstructure de combustibles UO_2 alternatifs

La modification des paramètres de fabrication des céramiques d'UO_2 entraîne une microstructure différente du combustible, en particulier au niveau du réseau de porosité ouverte (comme sur la Fig.2). Ces combustibles alternatifs présentent des fractions volumiques de porosité ouverte plus importantes ($> 1\,\%$). Les pores ouverts sont de forme lenticulaire et de longueur caractéristique de l'ordre de $150\,\mu m$ (Fig.2). La conductivité thermique λ d'un combustible UO_2 vierge dépend de plusieurs paramètres dont la température, la microstructure et le rapport stœchiométrique O/U. L'influence de la microstructure sur la conductivité thermique d'un combustible

UO_2 a été établie pour des combustibles standards REP au travers du modèle semi-empirique actuel de type Maxwell-Eucken :

$$\boldsymbol{\lambda} = \frac{1 - c_T}{1 + 2\,c_T}\,\boldsymbol{\lambda_{UO_2}}(T, O/U) \tag{1}$$

avec c_T la fraction de porosité totale du combustible et $\boldsymbol{\lambda_{UO_2}}(T, O/U)$ la conductivité thermique de l'UO_2 dense qui dépend de la température d'étude T et du rapport stœchiométrique O/U.
Le paramètre descripteur de la porosité utilisé dans ce modèle semi-empirique est la fraction volumique de porosité totale. Or, dans le cas de combustibles alternatifs, la seule connaissance de la fraction volumique totale de porosité ne permet pas de discriminer deux microstructructures ayant des ratios porosité ouverte / porosité fermée différents et ayant pourtant des comportements thermiques distincts. Le modèle de type Maxwell-Eucken (1) n'est donc pas représentatif du comportement de la conductivité thermique de tels combustibles.
Le développement d'un nouveau modèle donnant l'influence de la porosité sur la conductivité thermique des combustibles alternatifs s'appuie sur la caractérisation expérimentale des paramètres descripteurs du réseau de porosité du combustible (morphologie, taille, orientation, ...) au travers du traitement d'images. La validation du modèle se fait par comparaison à des mesures expérimentales indirectes de conductivité thermique par méthode Flash.

2 Homogénéisation analytique

Compte tenu du réseau de porosité observé sur des images de combustibles d'étude obtenues par microscopie optique (Fig.2), ce réseau est assimilé à un ensemble de fissures. Le domaine d'étude de température est de $20\,°C$ à $500\,°C$. Les transferts par rayonnement thermique sont supposés négligeables. La taille moyenne des pores fermés est de l'ordre de $20\,\mu m$ tandis que celle des pores ouverts est au moins 10 fois plus grande. C'est pourquoi l'hypothèse de séparation d'échelle entre les deux familles de pores est posée. Cette hypothèse permet d'étudier séparément d'abord l'influence de la porosité fermée et ensuite celle de la porosité ouverte sur la conductivité thermique d'un combustible.

2.1 Modélisation de la porosité fermée

La géométrie sphérique des pores fermés, leur distribution isotrope dans le matériau et la fraction volumique de porosité fermée ($c_f < 2\,\%$) permettent d'effectuer le choix d'un modèle de type "milieu dilué" pour exprimer le tenseur de conductivité thermique de la matrice $\boldsymbol{\lambda_m}$. En première approximation, la conduction dans les pores est négligée par rapport à celle qui a lieu dans la phase solide UO_2 ($\boldsymbol{\lambda_f} = 0$). Le tenseur $\boldsymbol{\lambda}$ s'exprime de la façon suivante :

$$\boldsymbol{\lambda_m} = \left(1 - \frac{3}{2}\,c_f\right)\boldsymbol{\lambda_{UO_2}}(T, O/U) \tag{2}$$

avec c_f la fraction volumique de porosité fermée.
Ce modèle (2) est une approximation au premier ordre en c_f du modèle de Maxwell [2].

2.2 Modélisation de la porosité ouverte

Pour modéliser la morphologie des pores ouverts, la porosité ouverte est considérée de forme ellipsoïdale.

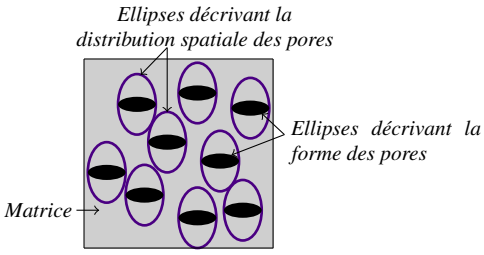


FIGURE 3 – Description du milieu biphasé d'étude avec le modèle de P. Ponte Castañeda et J.R. Willis [3] : illustration dans le cas où les pores sont tous alignés suivant un axe préférentiel

Le schéma d'homogénéisation sélectionné pour la modélisation de l'influence de la porosité ouverte (Fig.3) est celui de P. Ponte Castañeda et J.R. Willis [3] adapté pour la thermique [4]. L'expression du tenseur de conductivité thermique est :

$$\boldsymbol{\lambda} = \boldsymbol{\lambda_m} + (c_o \boldsymbol{T_o} \boldsymbol{P^d})^{-1} (c_o \boldsymbol{T_o}) \tag{3}$$

avec $\boldsymbol{\lambda_m}$ et $\boldsymbol{\lambda_o}$ les tenseurs de conductivité thermique respectifs de la matrice (voir équation (2)) et de la porosité ouverte, le tenseur $\boldsymbol{T_o}$ défini comme $\boldsymbol{T_o} = \left[(\boldsymbol{\lambda_o} - \boldsymbol{\lambda_m})^{-1} + \boldsymbol{P^I}\right]^{-1}$, c_o la fraction volumique de la porosité ouverte et les tenseurs d'interaction d'ordre 2 $\boldsymbol{P^d}$ et $\boldsymbol{P^I}$ décrivant respectivement la distribution spatiale et la morphologie des porosités ouvertes.
Dans le cas où la morphologie et la distribution spatiale des pores sont décrites par des sphéroïdes, et en posant $(\boldsymbol{u_1}, \boldsymbol{u_2}, \boldsymbol{u_3})$ une base orthonormée de l'espace où $\boldsymbol{u_3}$ est parallèle à l'axe de révolution du sphéroïde, les tenseurs d'interaction $\boldsymbol{P^I}$ et $\boldsymbol{P^d}$ s'expriment de la façon suivante :

$$\boldsymbol{P^k} = \frac{1}{\lambda_m}\Big(Q_k\,[\boldsymbol{u_1} \otimes \boldsymbol{u_1} + \boldsymbol{u_2} \otimes \boldsymbol{u_2}] + (1 - 2\,Q_k)\,\boldsymbol{u_3} \otimes \boldsymbol{u_3}\Big) \qquad \text{avec } k = I, d \tag{4}$$

avec Q_k le paramètre géométrique du sphéroïde étudié qui dépend du paramètre de forme de ce sphéroïde ω_k (avec $k = I, d$)
La morphologie de la porosité ouverte de forme lenticulaire est supposée aplatie (*oblate* en anglais), soit $\omega_I \ll 1$. Pour illustrer le modéle utilisé (Fig. 4), deux distributions spatiales de la porosité ouverte (de paramètre de forme $\omega_I = 0,5$) ont été étudiées : la distribution isotrope ($\omega_d = 1$) et l'alignement de tous les pores suivant une direction préférentielle. Les pores ouverts sont plus rapprochés dans les plans orthogonaux à l'axe de révolution des pores dans le cas où les pores sont alignés ($\omega_d > 1$). La distribution spatiale des centres des pores de symétrie ellipsoïdale se traduit par une condition de non-interpénétrabilité des ellipses décrivant la distribution spatiale des pores ouverts. Cela induit une dépendance des paramètres de forme ω_I, ω_d et de la fraction volumique de porosité ouverte c_o. Dans le cas où les pores ouverts sont plus rapprochés dans les plans orthogonaux à l'axe de révolution des pores ($\omega_d > \omega_I$), la relation est :

$$c_o = h_o \frac{\omega_I}{\omega_d} \tag{5}$$

avec h_o la fraction volumique des sphéroïdes (valeur comprise entre 0 et 100 %)

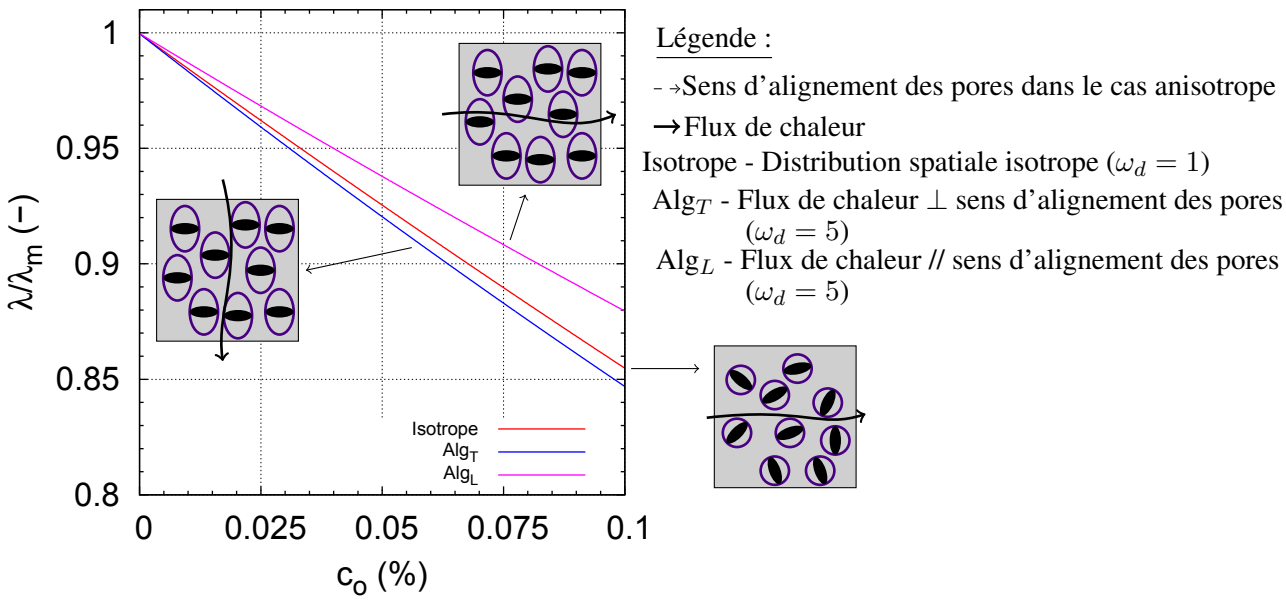


FIGURE 4 – Influence de la distribution spatiale de la porosité ouverte sur la conductivité thermique avec le modèle de P. Ponte Castañeda et J.R. Willis [3] dans le cas $\omega_I = 0,5$

Une variation d'au plus $3,5\,\%$ est observée sur la dégradation de la conductivité thermique en fonction de la distribution spatiale des pores étudiée (voir Fig.4). De plus, dans le cas des pores alignés suivant une direction

préférentielle, le transfert de flux de chaleur est facilité dans le sens d'alignement des pores (courbe Alg_L sur la Fig.4) par rapport aux directions orthogonales au sens d'alignement (courbe Alg_T).
Ce modèle décrit le réseau de porosité ouverte au travers de trois paramètres descripteurs indépendants : la fraction volumique, les paramètres de forme des ellipses décrivant la géométrie et la distribution spatiale de cette famille de pores.

2.3 Premier modèle décrivant l'ensemble du réseau poreux

Le volume élémentaire représentatif (VER) est constitué de la phase solide d'UO_2 dense, des pores fermés et des pores ouverts. Avec l'hypothèse de séparation d'échelle, le tenseur de conductivité thermique effectif $\overline{\boldsymbol{\lambda}}$ s'explicite de la façon suivante :

$$\overline{\boldsymbol{\lambda}} = \left\{1 - \frac{3}{2}\,c_f\right\} \boldsymbol{\lambda_{UO_2}}(T, O/U) + (c_o\,\boldsymbol{T_o}\,\boldsymbol{P^d})^{-1}\,(c_o\,\boldsymbol{T_o}) \tag{6}$$

Un développement limité en c_o à l'ordre 2 de (6) donne :

$$\overline{\boldsymbol{\lambda}} = \left\{1 - \frac{3}{2}\,c_f\right\} \boldsymbol{\lambda_{UO_2}}(T, O/U) + c_o\,\boldsymbol{T_o} + (c_o\,\boldsymbol{T_o})\,\boldsymbol{P^d}\,(c_o\,\boldsymbol{T_o}) + O[(c_o)^3] \tag{7}$$

Dans le cas de pores ouverts sphériques distribués de façon isotrope ($\boldsymbol{P^d} = \boldsymbol{P^I} = \frac{1}{3}\,\boldsymbol{I}$) et en posant le paramètre $\alpha = \lambda_0\,[\{1 - \frac{3}{2}\,c_f\}\,\lambda_{UO_2}(T, O/U)]^{-1}$, (7) donne :

$$\overline{\boldsymbol{\lambda}} = \left\{1 - \frac{3}{2}\,c_f\right\}\left(1 + c_o\left([\boldsymbol{\alpha} - \boldsymbol{I}]^{-1} + \frac{1}{3}\,\boldsymbol{I}\right)^{-1} + \frac{1}{3}\left[c_o\left([\boldsymbol{\alpha} - \boldsymbol{I}]^{-1} + \frac{1}{3}\,\boldsymbol{I}\right)^{-1}\right]^2\right) \boldsymbol{\lambda_{UO_2}}(T, O/U) + O[(c_o)^3] \tag{8}$$

avec $\boldsymbol{I}$ la matrice unité de l'espace.
En supposant la conduction négligeable dans la porosité ouverte par rapport à celle ayant lui dans la matrice ($\alpha \ll 1$), (8) se simplifie de la façon suivante :

$$\overline{\boldsymbol{\lambda}} = \left(\left\{1 - \frac{3}{2}\,c_f\right\}\left\{1 - \frac{2}{3}\,c_o\right\} + \frac{4}{27}\,c_o^2\right) \boldsymbol{\lambda_{UO_2}}(T, O/U) + O[(c_o, c_f)^3] \tag{9}$$

L'équation (9) a été exprimé dans le cas particulier où les pores ouverts sont de forme sphérique et distribués de façon isotrope dans le matériau. Elle permet d'observer que le modèle développé (6) est bien plus complet que le modèle usuel (1). Le modèle (6) fait intervenir les fractions volumiques des différentes familles de porosités, la morphologie des pores ouverts à l'ordre 1 et la distribution du réseau de porosité ouverte à l'ordre 2.
La conductivité thermique de l'UO_2 dense $\boldsymbol{\lambda_{UO_2}}$ est connue à une température donnée. Les fractions volumiques des porosités sont caractérisables par mesures de porosité par immersion [5]. Les paramètres caractérisant la morphologie et la distribution spatiale des pores ouverts sont quant à eux extraits de l'analyse d'images de microstructures de combustibles alternatifs.

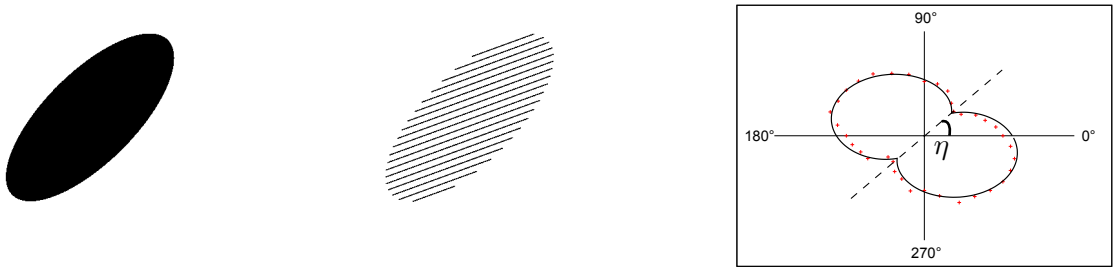
3 Caractérisation 2D

Des images de coupes d'échantillons de combustibles alternatifs ont été obtenues par microscopie optique et traitées par analyse d'images avec le logiciel ImageJ [7]. Le traitement de ces images a pour objectif la détermination de paramètres décrivant la géométrie des pores ouverts et leur distribution spatiale dans le matériau. Pour ce qui est de la distribution spatiale des pores, il a été choisi de l'étudier à l'aide de la méthode des traversées [8].
La méthode des traversées consiste à superposer une série de lignes parallèles distantes les unes des autres d'un pas Δd suivant un angle θ à l'image étudiée. L'angle θ est formé avec l'axe horizontal. Le pas Δd est déterminé de telle façon que ce paramètre n'influe pas sur la fraction surfacique d'objets détectés sur l'image. Le nombre d'intercepts N de lignes parallèles avec les objets présents sur l'image est recensé. Ce nombre est ensuite normalisé par la longueur totale de lignes parallèles afin d'obtenir un paramètre stéréologique nommé nombre d'intercepts par unité de longueur et noté N_L. Cette opération est répétée pour différentes valeurs de θ variant de 0 à 360°. Le réseau de porosité présent sur une image est modélisé comme la superposition de deux réseaux de fissures : un réseau isotrope ainsi qu'un réseau constitué d'un ensemble de pores alignés suivant

une direction préférentielle. L'approximation des points expérimentaux obtenus se fait à l'aide de la formule suivante :

$$N_L(\theta) = N_{L,iso} + N_{L,algmax} \left| cos(\theta - \eta + \frac{\pi}{2}) \right| \tag{10}$$

avec η l'angle formé avec l'axe horizontal et qui correspond au sens d'alignement des pores, $N_{L,iso}$ la contribution du réseau de porosité isotrope et $N_{L,algmax}$ la valeur maximale de la contribution du réseau aligné de porosités. La détermination de η permet d'obtenir l'angle préférentiel de l'image.



(a) Ellipse inclinée à $45\,°$

(b) Illustration de la superposition de la Fig.5(a) avec une série de lignes ($\Delta\, d = 10\, pix$ et $\theta = 20\,°$)

(c) Rose des intercepts avec $\Delta\theta = 10\,°$ et $\Delta\, d = 10\, pix$ ($\eta = 50\,°$)

FIGURE 5 – Principe de la méthode des traversées

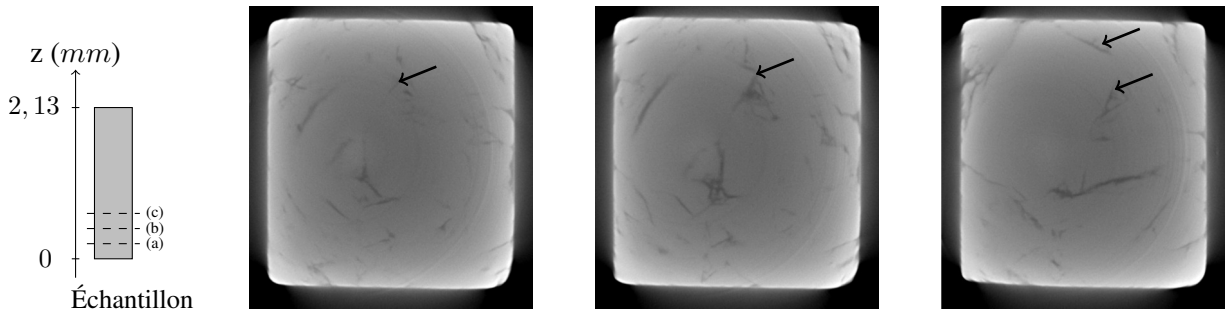
Cette technique de caractérisation de l'orientation d'une image est illustrée à l'aide de la Fig.5. Sur l'exemple Fig.5, la valeur de l'angle préférentielle de l'image est estimée à $50\,°$, ce qui est cohérent avec l'orientation que possède l'ellipse sur la Fig.5(a). Pour compléter les informations sur la distribution spatiale, le degré d'orientation Ω est défini [9] :

$$\Omega = \frac{N_{L,max} - N_{L,min}}{N_{L,max} + (\frac{\pi}{2} - 1)\, N_{L,min}} \qquad 0 \leq \Omega \leq 1 \tag{11}$$

avec $N_{L,max}$ et $N_{L,min}$ les valeurs maximale et minimale prises par $N_L(\theta)$. Ω prend la valeur 0 pour un réseau isotrope de pores et 1 pour un réseau purement anisotrope (sur la Fig.5(a), on a $\Omega = 0,47$).
L'utilisation de cette méthode des traversées sur une image complète comme la Fig.2 permettra d'obtenir une estimation de l'orientation de la microstructure sur l'image. En comparant les angles d'orientation et le degré d'orientation des images, l'idée est de pouvoir arriver à discriminer des microstructures présentant des répartitions spatiales différentes. Cette méthode est encore en cours de développement sur les images de microstructures de combustibles d'étude.
Des expériences de tomographie par absorption de rayons X ont été réalisées afin de venir compléter la caractérisation du matériau. Elles permettent de se faire une idée plus précise de la distribution volumique des pores ouverts.

4 Vers une caractérisation 3D

Des images 3D ont été obtenues suite à des premières expériences de tomographie par absorption de rayons X au laboratoire Navier [10].
Des pores qui paraissent indépendants les uns des autres sur une coupe 2D (comme sur la Fig.6(c)) peuvent en fait appartenir au même réseau de pores dans le volume (Fig.6(a) et Fig.6(b)). Les pores sont donc interconnectés dans le volume d'étude au vu de ces premiers résultats obtenus.
Les pores agissent comme des obstacles aux transferts thermiques dans le matériau. Le caractère interconnecté du réseau de porosité ouverte influe sur les chemins pris par le flux thermique lors du transfert de chaleur. Il semble donc que ce paramètre puisse jouer un rôle dans les transferts thermiques au sein du combustible. L'influence de l'interconnection des porosités ouvertes dans le volume sur la conductivité thermique est à étudier afin de déterminer si elle s'avère être un paramètre important de la description de la microstructure.



(a) $\Delta z = 0,35\,\mu m$ (b) $\Delta z = 0,37\,\mu m$ (c) $\Delta z = 0,41\,\mu m$

FIGURE 6 – Évolution du réseau de porosité ouverte sur différentes coupes d'un échantillon de dimensions 0,65 x 0,66 x 2,13 mm^3 (source 160 kV utilisée à 140 kV, 60 μA et taille de spot moyen)

5 Conclusions et perspectives

Cette étude a pour objectif de déterminer l'influence de la porosité sur la conductivité thermique d'un combustible alternatif. Un premier modèle (6) a été développé en faisant intervenir les fractions volumiques des deux familles de pores, la morphologie des pores ainsi que leur distribution spatiale. La représentativité de cette loi de comportement reste encore à tester en comparant ce modèle à des mesures indirectes de conductivité thermique sur des combustibles d'étude. Afin de pouvoir tester la validité du modèle développé, il nous reste encore à caractériser la morphologie des pores ouverts sachant que la géométrie de ces pores est représentée par un sphéroïde dans le modèle.
Il est question de multiplier les caractérisations expérimentales (autres expériences de tomographie, imagerie MEB, MEB-FIB, ...) de la microstructure du combustible afin d'en avoir une description plus approfondie et affiner ainsi la sélection des paramètres descripteurs. Un nouveau paramètre descripteur semble, de plus, présenter de l'importance (l'interconnection des pores ouverts) au vu des récentes observations de la microstructure sous l'angle de la tomographie à rayons X. Dans le cas où le modèle actuel ne serait pas représentatif, il est envisagé d'utiliser une approche par motifs morphologiques [11] et / ou une approche par "champs complets" (FFT) afin de prendre en compte l'interconnection des porosités ouvertes.

Références

[1] S. Portier. *Modélisation du comportement des gaz de fission en régime transitoire dans le combustible à plaques*. Thèse de doctorat, ECP, 2003.

[2] J.C. Maxwell. A treatise on electricity and magnetism. 3rd edition :435–441, New York, Dover, 1954.

[3] P. Ponte Castañeda and J.R. Willis. The effect of spatial distribution on the effective behavior of composite materials and cracked media. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 43(12) :1919–1951, 1995.

[4] C. Gruescu, A. Giraud, F. Homand, D. Kondo and D.P. Do. Effective thermal conductivity of partially saturated porous rocks. *International Journal of Solids and Structures*, 44(3-4) :811–833, 2007.

[5] P. Duffaut and F. Homand. Physique des roches. In : Manuel de mécanqique des roches Tome I, Comité français de mécanique des roches. Presses de l'Ecole des Mines (eds), Paris, 2000.

[6] M. Coster and J.L. Chermant. *Précis d'analyse d'images*. CNRS plus. Presses du CNRS, Paris, édition 22, 1989.

[7] C.A. Schneider, W.S. Rasband and K.W. Eliceiri. NIH Image to ImageJ : 25 years of image analysis. *Nature Methods*, 9 :671–675, 2012.

[8] A. Ammouche, J. Riss, D. Breysse and J. Marchand. Image analysis for the automated study of microcracks in concrete. *Cement and Concrete Composites*, 23(2) :267–278, 2012.

[9] E.E. Underwood. Quantitative Stereology for Microstructural Analysis. In : McCall J.L., Mueller W.M. (eds) Microstructural Analysis, Springer, Boston, MA, 1973.

[10] Laboratoire Navier – UMR 8205. n.d., https ://navier.enpc.fr/, vu le 14/11/2017

[11] M. Bornert, C. Stolz and A. Zaoui. Morphologically representative pattern-based bounding in elasticity. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 44(3) :307–331, 1996.