

Approche multi-échelle atomistique-continue pour l'étude de la rupture des joints de grains dans le dioxyde d'uranium - UO_2

Z. A. Manorosoa

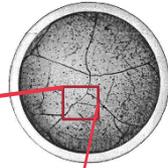
A. Jelea, F. Perales (IRSN)

A. Chrysochoos, Y. Monerie (U. Montpellier)

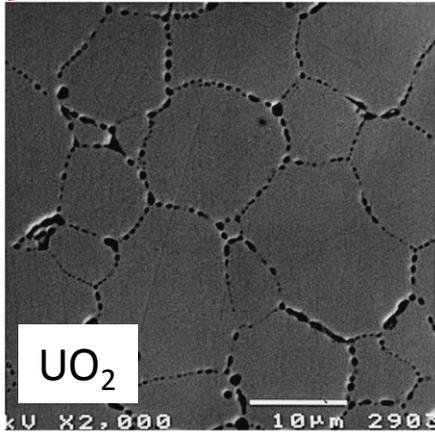
J.J. Vermoyal (EDF)

CSMA 16 – 20 MAI 2022, GIENS

Contexte



D = 8 mm

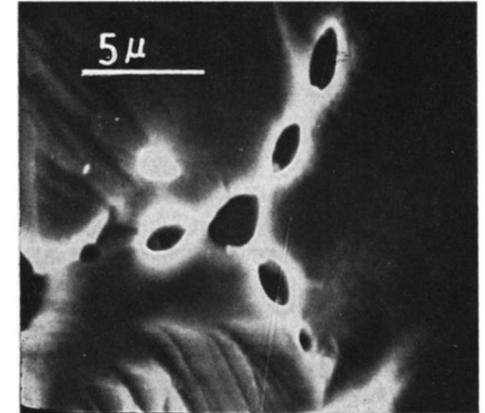


bulles intergranulaires

Accident **RIA**



- montée rapide en **température**
- **pressurisation** des bulles

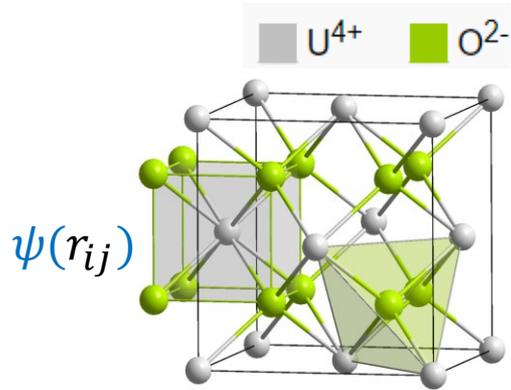


rupture des joints de grains

Objectif :

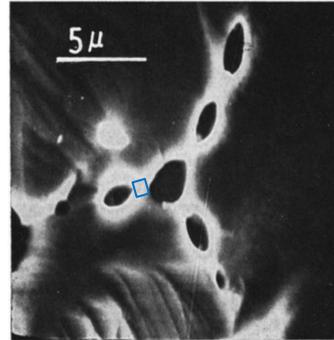
compréhension du phénomène de rupture des joints de grains
à l'aide d'une **approche multiéchelle (atomique/mésoscopique)**

Démarche multi-échelle



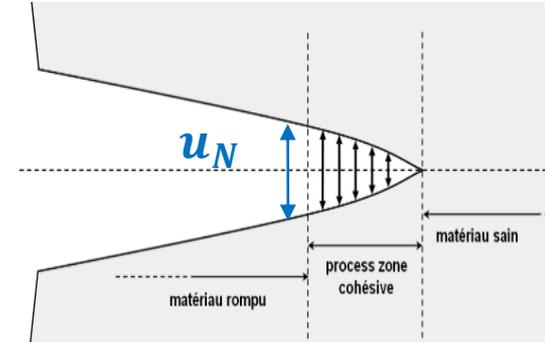
Atomistique : $L \sim 150 \text{ \AA}$

Dynamique moléculaire (LAMMPS)
avec potentiel semi-empirique à
charges variables (SMTB-Q)



Mésoscopique : $L \times 10^3$

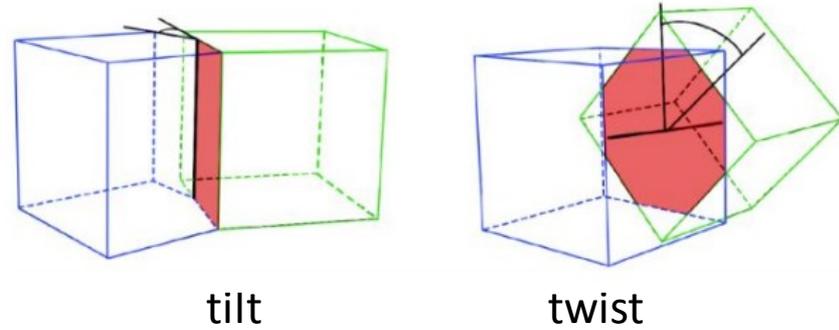
Mécanique des milieux continus (XPER)
Fissuration par **endommagement surfacique** (zones cohésives)



- Considérations **thermodynamiques**
- **Consistance** cinématique et sthénique

Généralités sur l'UO₂

- **Nomenclature** : Angle θ -- Axe $[l_1, l_2, l_3]$ -- Facettes (Plan) (k_1, k_2, k_3)

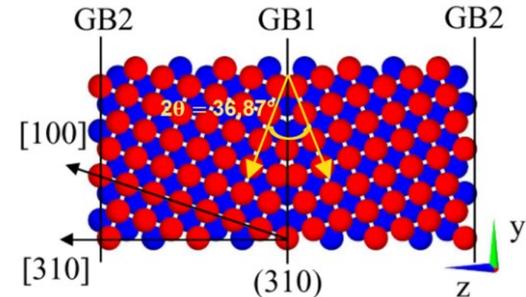


- **Population de joints de grains (GB)**

- **Distribution des joints de grains** (Nerikar et al., 2011)
 - 16% GB de type CSL
 - Plus de 80% GB généraux (aléatoires)
- **GB CSL les plus fréquents** (Tonks, 2015; Bourasseau et al., 2019)
 - $\Sigma 3$ (70,50°) - [110], (111) (tilt)
 - $\Sigma 5$ (36,87°) - [001], (310) (tilt)
- **GB généraux** (T.G Desai et al. 2009)
 - $\Sigma 29$ (43,60°) - [100], (520) (tilt)

- **Stabilité des GB**

- Plus stable - $\Sigma 3$
- Stabilité intermédiaire - $\Sigma 5$
- Moins stable - $\Sigma 29$



$\Sigma 5$ [001], (310)
(E. Vitková et al, 2016)

Échelle atomique: dynamique moléculaire DM

Intégration des équations du mouvement

- Équations de Newton, algorithme de Verlet
- Trajectoire dans l'espace des phases à 6M dimensions (3M coordonnées et 3M impulsions)

Conditions de simulation : Nombre de particules, Volume/Pression, Température constants

Energie d'interaction interatomique $E_{\text{pot}}(\vec{R})$, potentiel SMTB-Q (Second Moment Tight-Binding potential with charge equilibration) [Satonnay et al., 2013]

Grandeurs d'intérêt : moyennes temporelles $\langle \mathbf{A} \rangle = \lim_{\tau \rightarrow +\infty} \frac{1}{\tau} \int_0^\tau \mathbf{A}(\vec{R}(t), \vec{p}(t)) dt$

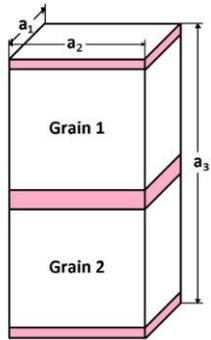
- Contrainte atomique (Basinski, et al. 1971) $\sigma = -\frac{1}{|V|} \left\langle \sum_{i \in V} m_i \vec{v}_i \otimes \vec{v}_i + \sum_{i \in V} \vec{r}_i \otimes \vec{F}_i \right\rangle$

- Travail de séparation, énergie (Tonks, 2010) $G_1^{\Sigma^n} = L_y \int_0^{\epsilon_c} \sigma_{yy} d\epsilon_{yy}$

Échelle atomique : modèle de systèmes

Construction des joints de grains (ATOMSK)

- 3 types de joints de grains (tilt)
- Préalablement relaxés en DM
- 5 températures : 0 K – 500 K - 1000 K - 1500K - 2000 K



Joints de grains – assemblage de deux monocristaux

Joint de grains	[110], (111) $\Sigma 3$	[001], (310) $\Sigma 5$	[100], (520) $\Sigma 29$
θ°	70,50°	36,87°	43,6°
$a_1 \times a_2 \times a_3$ (Å ³)	23,21 × 107,19 × 151,59	21,88 × 103,79 × 172,98	21,88 × 117,83 × 176,74
Nombre d'atomes	27648	28800	33408

Caractéristiques des systèmes contenant les joints de grains analysés en DM

Échelle atomique : modèle de systèmes

Stabilité des joints de grains

$$E_{GB}^{\Sigma n} = \frac{E^{\Sigma n} - N \cdot E_{coh}}{2A}$$

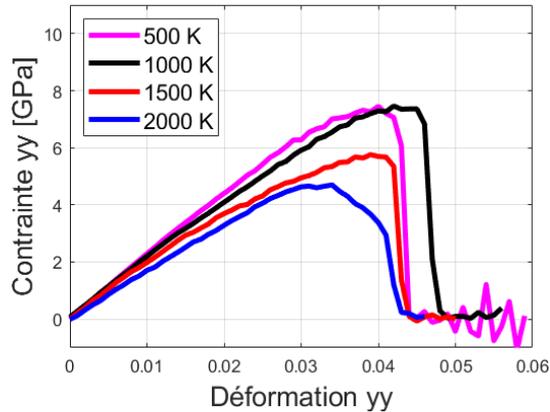
Energie du système contenant le GB
Energie de cohésion du cristal parfait
nombre d'UO₂ du système contenant le GB
aire de la surface du joints de grains

Méthode de relaxation	MD (500K) + CG	MD(1000K) + CG	MD(1500K) + CG	MD(2000K) + CG
$E_{GB}^{\Sigma 3}$	1,04	1,04	1,04	1,48
$E_{GB}^{\Sigma 5}$	1,79	1,78	1,78	1,85
$E_{GB}^{\Sigma 29}$	2,20	2,20	2,24	2,25

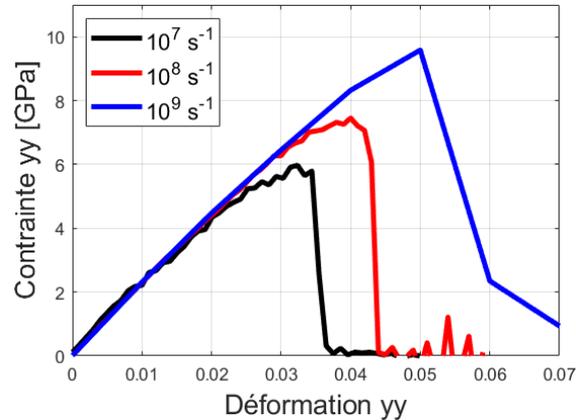
Énergies de joints de grains relaxés en DM puis en statique (CG)

Essai de traction uniaxiale en température (LAMMPS) - $\Sigma 29$

Température



Vitesse

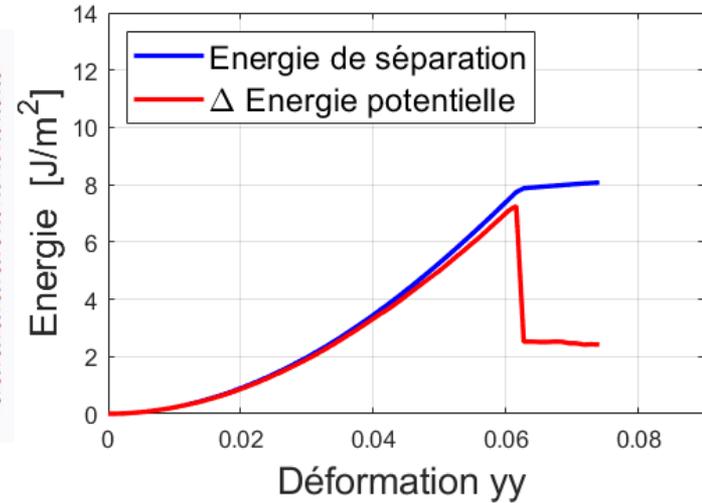
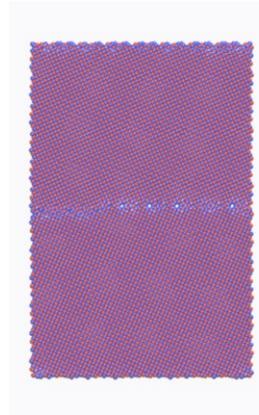
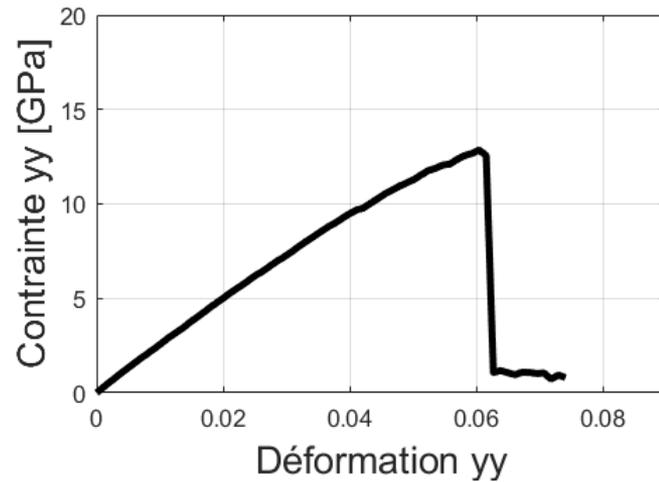


Énergie de séparation

T(K)	$G_i^{\Sigma 29}$ (J/m ²)
500	3,40
1000	3,71
1500	2,71
2000	2,20

- rigidité \searrow lorsque la température \nearrow
- rupture quasi-fragile
- rupture au niveau des joints de grains
- dépendance à la vitesse de chargement

Essai de traction à 0 K (LAMMPS) - Σ29



- **Energie cinétique nulle** ($E_p = U$);
- Énergie de décohésion $E_{décoh}^{\Sigma n} = E(\text{rompu}) - E(\text{initial})$;
- $\sigma_{max} = 12,51 \text{ GPa}$, $G_I^{\Sigma n} = 8,73 \text{ J/m}^2$ et $E_{décoh}^{\Sigma n} = 2,50 \text{ J/m}^2$

Passage à l'échelle : essai de traction à 0 K (LAMMPS) - Σ29

Loi élastique fragile (tendance)

Formulation thermodynamique (vérification)

Estimation

Constantes élastiques: $C_{ijkl} = \frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial \epsilon_{kl}}$

Contraintes (viriel) $\sigma = -\frac{1}{|V|} \left\langle \sum_{i \in V} m_i \vec{v}_i \otimes \vec{v}_i + \sum_{i \in V} \vec{r}_i \otimes \vec{F}_i \right\rangle$

Vérification

Constantes élastiques ($\psi = U = E_p$):

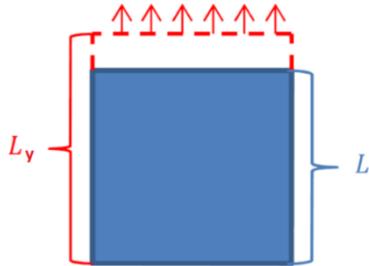
$C_{ijkl} = \frac{1}{|V_0|} \frac{\partial^2 U}{\partial \epsilon_{ij} \partial \epsilon_{kl}}$

Contraintes: $\sigma_{ij} = \frac{1}{|V_0|} \frac{\partial U}{\partial \epsilon_{ij}}$

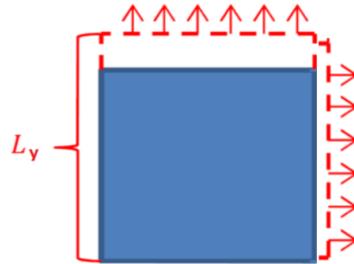
(Cauchy)

Passage à l'échelle : validation de la contrainte atomique

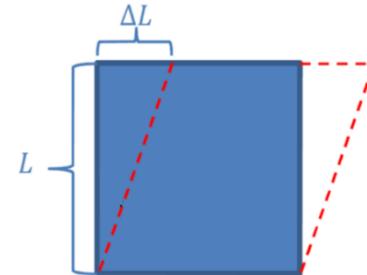
Essai de traction (uniaxiale et biaxiale) / glissement



$$C_{2222} = \frac{1}{V_0} \frac{\partial^2 U}{\partial \varepsilon_{22} \partial \varepsilon_{22}}$$



$$C_{3322} = \frac{1}{V_0} \frac{\partial^2 U}{\partial \varepsilon_{33} \partial \varepsilon_{22}}$$



$$C_{3232} = \frac{1}{4 \cdot V_0} \frac{\partial^2 U}{\partial \varepsilon_{32} \partial \varepsilon_{32}}$$

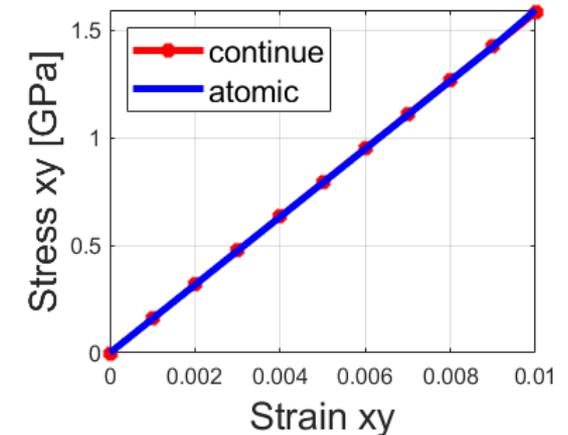
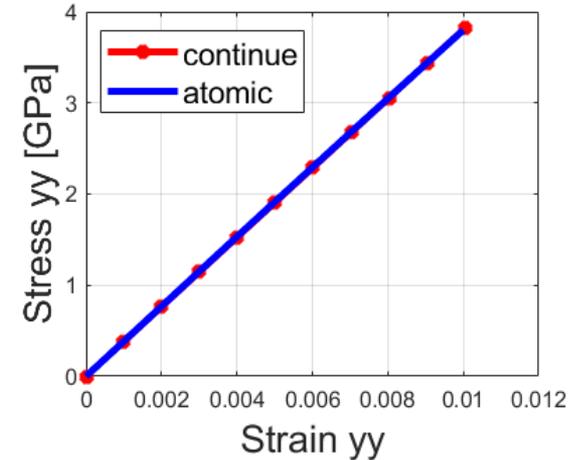
estimation	vérification	Δ
$C_{11} = 382,15 \text{ GPa}$	$C_{11} = 374,9 \text{ GPa}$	-1,9 %
$C_{12} = 114,14 \text{ GPa}$	$C_{12} = 110,05 \text{ GPa}$	-3,6 %
$C_{44} = 79,10 \text{ GPa}$	$C_{44} = 78,95 \text{ GPa}$	-0,2%

- Bonne concordance
- Équivalence de la contrainte de viriel et de Cauchy.

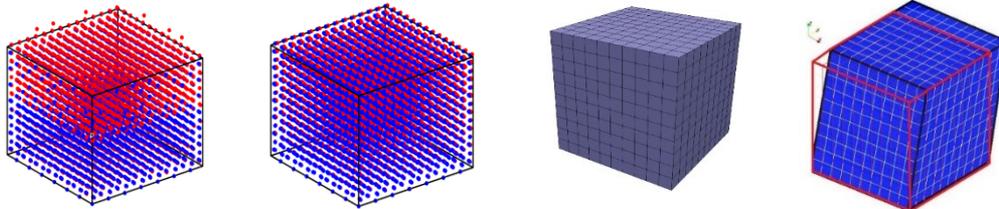
Passage à l'échelle

estimation des constantes élastiques

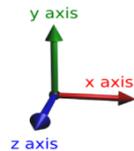
Module de Young E	Coefficient de Poisson ν	Module de cisaillement G
328,83 GPa	0,23	79,1 GPa



validation de la contrainte atomique



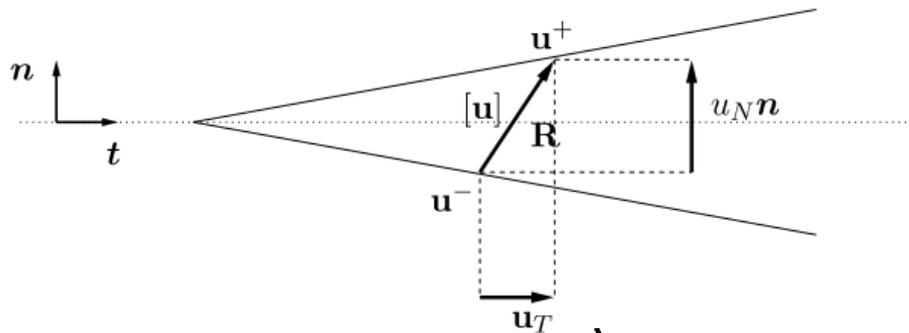
- « cristal parfait d' UO_2 »
- 4116 atomes
- Potentiel SMTB-Q
- Taille : 38,082 Å
- CG à 0 K



- Solide homogène
- Maille 10 x 10 x 10
- Isotrope cubique
- Taille : 1 m
- Éléments finis

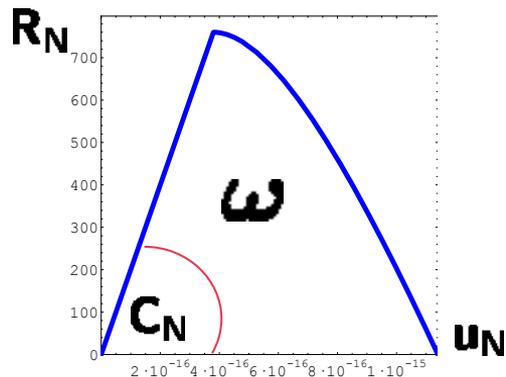
Échelle mésoscopique : modèle de zone cohésive

Modèle d'endommagement surfacique pour l'amorçage et la propagation de fissures



$$\vec{R} = \beta \left(C_N \vec{n} + C_T \frac{\vec{c}_T \otimes \vec{c}_T}{\|\vec{c}_T\|^2} \right) \cdot [\vec{c}]$$

Loi de traction séparation $\vec{R} - [\vec{c}]$



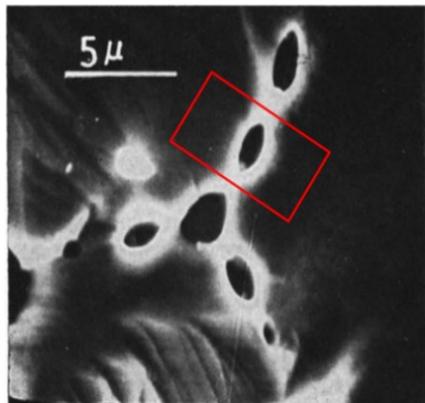
Paramètres à déterminer : C_N C_T ω

Échelle mésoscopique : volumes élémentaires

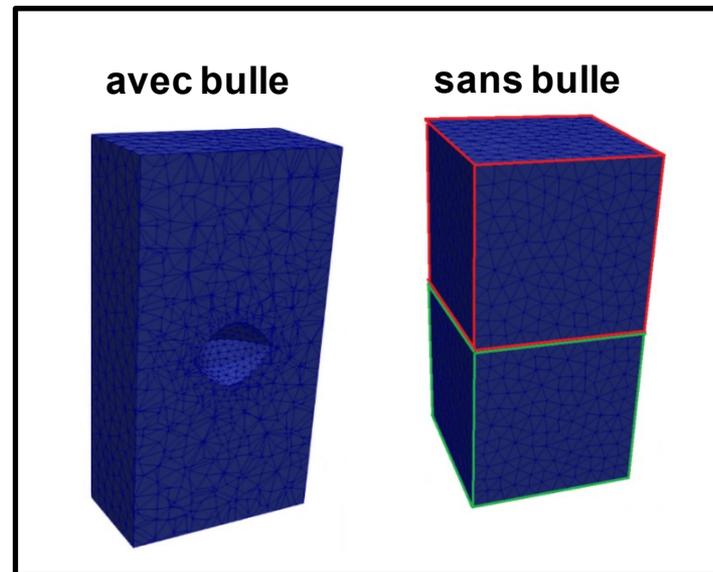
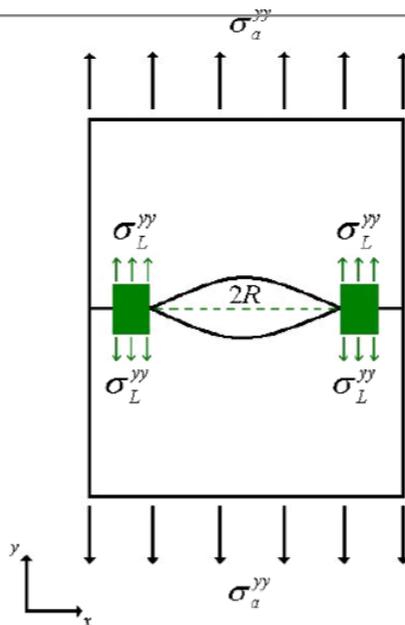
Volume	$5 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$
Bulle	$\phi = 2,25 \mu\text{m}, h = 0,9 \mu\text{m}$
Modules élastiques	$E = 306,25 \text{ GPa}, \nu = 0,21, G = 74,8 \text{ GPa}$

$$\mathbf{C}_N = \mathbf{C}_T = 10^{18} \text{ Pa/m}$$

$$\omega = 5 \text{ J/m}^2$$

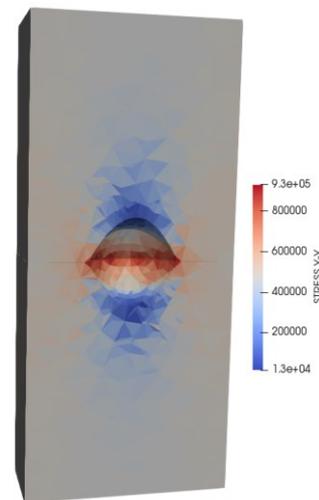
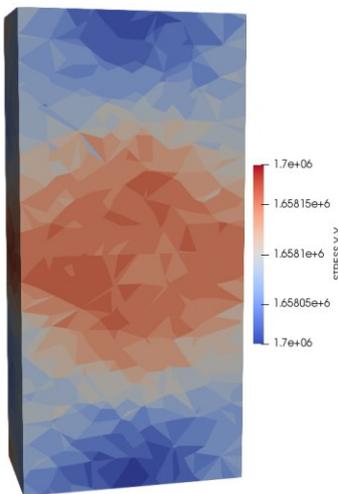
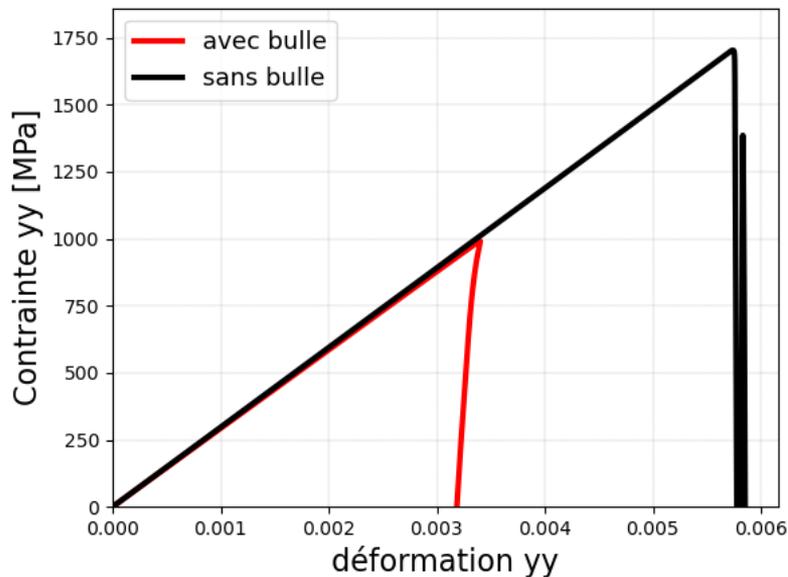


en rouge,
VER $5 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$
contenant une bulle



Échelle mésoscopique : essai de traction uniaxiale (XPER)

Influence de la présence de bulle



- Présence de la bulle => **baisse de la contrainte maximale**
- Initiation de la fissure **aux frontières de la bulle**, au niveau de la zone cohésive

Conclusions

Échelle atomique

- vitesse de traction basse permet une meilleure relaxation du système;
- la rupture se produit de préférence au niveau des deux joints de grains du système;
- le profil des courbes de traction sont toutes caractéristiques d'une rupture fragile;
- la contrainte maximale et le travail de séparation atteintes et à température non-nulle : pour $\dot{\epsilon} = 10^8 \text{ s}^{-1}$: $\sigma_{max} \in [4,7 ; 9,4] \text{ GPa}$ et $G_i^{\Sigma n} \in [2,2 ; 5,44] \text{ J/m}^2$
- l'essai de traction à 0 K a permis de déterminer l'énergie de décohésion.

Échelle mésoscopique

- Les modèles de zones cohésives permettent de modéliser les joints de grains;
- La présence de la bulle fait baisser la contrainte à rupture;
- Les fissures s'initient aux frontières de la bulle où on observe les pics de contraintes.

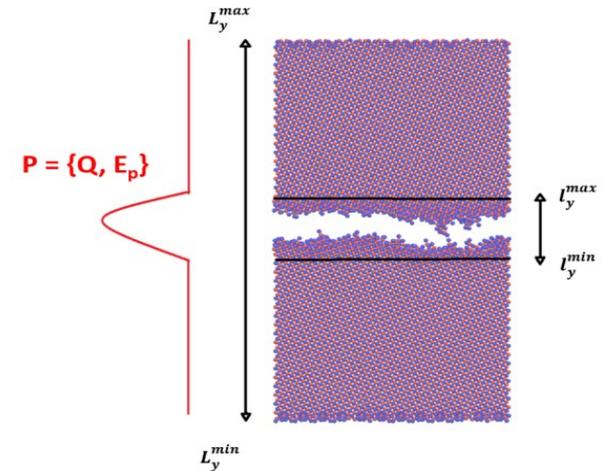
Perspectives

Echelle atomique

- Calculer le travail de séparation en minimisant la contribution volumique;
- Homogénéisation des grandeurs d'intérêt.

Echelle mésoscopique

- Évaluer les paramètres cohésifs;
- Étudier la sensibilité vis-à-vis de la taille de la bulle;
- Prise en compte des pressions internes des bulles.



$$G_I^{\Sigma_n} = L_y \int_0^{\epsilon_c} \sigma_{yy} d\epsilon_{yy}$$

Annexes

$$E_{tot} = E_{ion} + E_{coul} + E_{cov} + E_{rep}$$

- Terme ionisation
- Terme coulombien
- Terme covalent
- Terme répulsif

$$E_{ion} = \sum_{i=1}^N E_{ion}^i(Q_i) = \sum_{i=1}^N \left(\chi_0^X Q_i + \frac{1}{2} J_0^X Q_i^2 \right)$$

$$E_{coul} = \frac{1}{2} \sum_{i,k=1, k \neq 1}^N Q_i Q_k J_{ik}(R_{ik})$$

$$E_{cov} = \sum_{i(i=U,O)} \left(\sum_{k(k=U,O), R_{ik} < R_c} \eta_X(\omega \xi^0) \exp \left[-2q \left(\frac{R_{ik}}{R_0} \right) \right] \Delta Q_i \right)^{\frac{1}{2}}$$

$$E_{rep}^{UO} = \sum_{i(i=U,O)} \sum_{k(k=U,O), R_{ik} < R_c} A \exp \left[-p \left(\frac{R_{ik}}{R_0} - 1 \right) \right]$$

$$E_{rep}^{OO} = \sum_{i(i=U,O)} \sum_{k(k=U,O), R_{ik} < R_c} B \exp \left[-p \left(\frac{R_{ik}}{\rho} \right) \right]$$