

AIX-MARSEILLE UNIVERSITÉ

ECOLE DOCTORALE 353

Laboratoire de Mécanique et d'Acoustique, Aix-Marseille Université
Laboratoire Navier, ENPC

Département d'Étude des Combustibles, CEA

Thèse présentée pour obtenir le grade universitaire de docteur

Discipline : Sciences pour l'ingénieur
Spécialité : Mécanique des solides

Influence de la taille, de la morphologie et de la distribution spatiale des pores sur la conductivité thermique de céramiques UO_2

Effect of pore size, morphology and spatial distribution on the thermal conductivity of UO_2 ceramics

Joane MEYNARD

Soutenue le 04/12/2019 devant le jury composé de :

Hélène DUMONTET	Institut d'Alembert, Sorbonne Université	Rapporteur
Gérard VIGNOLES	Laboratoire des Composites ThermoStructuraux, Université de Bordeaux	Rapporteur
Albert GIRAUD	Laboratoire Géoressources, Université de Lorraine	Examineur
François WILLOT	Centre de Morphologie Mathématique, ENSMP	Examineur
Michel BORNERT	Laboratoire Navier, ENPC	Examineur
Arnaud MONNIER	Département d'Étude des Combustibles, CEA	Examineur
Mihail GARAJEU	Laboratoire de Mécanique et d'Acoustique, Aix-Marseille Université	Directeur de thèse
Renaud MASSON	Département d'Étude des Combustibles, CEA	Directeur de thèse
Christelle DUGUAY	Département d'Étude des Combustibles, CEA	Invitée

Résumé

En modifiant les conditions de fabrication, il est possible d'obtenir des microstructures de dioxyde d'uranium (UO_2) possédant des réseaux de porosité différents (en termes de fraction volumique de pores, de taille, de morphologie et de distribution spatiale) par rapport à celui des céramiques utilisées comme combustibles standard dans le parc électronucléaire français.

L'objectif est d'évaluer l'impact de la microstructure sur les propriétés thermiques d'un combustible UO_2 . Pour cela, un modèle donnant l'influence du réseau poreux sur la conductivité thermique d'une céramique UO_2 est développé à partir d'une étude à 50 °C sur des céramiques vierges représentatives de microstructures après fabrication et simulant l'évolution avec l'irradiation du réseau poreux observé sur des combustibles UO_2 non standard.

Le développement et la validation de ce modèle sont basés sur deux approches complémentaires : des caractérisations expérimentales de la microstructure des céramiques et des études par homogénéisation double-échelle (analytique et numérique).

Des lots différents de céramiques UO_2 ont été fabriqués de façon à obtenir des céramiques présentant des réseaux poreux variés en termes de fractions volumiques de porosité totale, ouverte et fermée. Deux familles de porosité ont été identifiées à l'aide de différentes techniques d'imagerie (microscopie optique, MEB-FIB et tomographie X) : la porosité occluse de forme quasi-sphérique et localisée dans les granulats d' UO_2 et un réseau interconnecté de porosité localisée à l'interface des granulats (ce réseau est appelé dans cette étude porosité d'assemblage). Des paramètres descripteurs (taux, morphologie, taille pour les deux familles de pores et distribution angulaire pour la porosité d'assemblage) ont été déterminés par mesures par imbibition et par analyse d'images. La tomographie X et le MEB-FIB ont permis d'observer le caractère interconnecté 3D des pores d'assemblage. Des études par homogénéisation analytique et numérique (calculs par transformée de Fourier rapide) ont été réalisées afin d'évaluer l'impact de ces caractéristiques sur la conductivité thermique. Les calculs numériques ont été réalisés sur des images issues de plans de coupes obtenues par imagerie et ainsi que sur des images 2D et 3D générées avec un modèle morphologique original reproduisant les spécificités des structures poreuses observées. Ces études ont mis en évidence l'impact important de la morphologie de type fissures, de la répartition spatiale et de l'interconnexion de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 . Des caractérisations sur céramiques proches du 100 % dense ont par ailleurs permis d'évaluer la conductivité thermique de ces céramiques dans ce cas limite. Finalement, le modèle proposé dépend du taux de porosité occluse et de la porosité d'assemblage, laquelle est assimilée à un réseau interconnecté de fissures distribuées autour des granulats UO_2 et associée à une densité de fissures donnée. La comparaison de ce modèle aux mesures expérimentales de diffusivité thermique (méthode Flash) confirme le rôle majeur joué par la porosité d'assemblage qui permet effectivement de différencier les propriétés thermiques des différents lots. Par ailleurs, le modèle reproduit les tendances associées à la dégradation de la conductivité thermique mesurée sur les céramiques étudiées.

Mots-clés : conductivité thermique, porosité, homogénéisation, méthode FFT, traitement d'images, tomographie à rayons X, MEB-FIB, microscopie optique, méthode Flash.

Abstract

Inside a nuclear reactor core, the behavior of nuclear fuels is largely controlled by thermal phenomena. That is why it is very important to model the thermal behavior of fuels very precisely. A precise estimation of the fuel thermal conductivity is a key part of controlling the thermal phenomena occurring in irradiated fuels. This thermal property depends on several parameters such as the shape and spatial distribution of the pores in fuel microstructures.

Standard UO_2 nuclear fuels have been used in pressurized water reactors (PWR). They exhibit a standard network of pores with near-spherical shape. The effect of this porosity on the thermal conductivity of standard UO_2 fuels has been studied extensively and accordingly modelled. By changing the manufacturing conditions of UO_2 fuels, the fuels can exhibit very different pore networks compared to standard UO_2 fuels in terms of shape, spatial distribution and volume fraction. However, the standard models only show the influence of the porosity volume fraction on the thermal conductivity of standard UO_2 fuels and do not represent the thermal behavior of the manufactured UO_2 fuels.

The objective of this study is to develop a model that indicates the influence of porosity on thermal conductivity and that is representative of the thermal behavior of the manufactured UO_2 nuclear fuels. This study is performed on non-irradiated UO_2 fuels which simulate microstructures of non-irradiated and irradiated UO_2 fuels.

Two complementary approaches were used to develop and validate this model: 1) experimental characterizations of UO_2 microstructures and 2) studies based on analytical and numerical homogenization.

UO_2 fuels were manufactured and their microstructures were studied using optical microscopy, SEM-FIB and X-ray tomography. Two types of porosity were identified: 1) sealed and near-spherical pores which are located in UO_2 aggregates, and 2) an interconnected network of pores located at the interfaces of aggregates (named here “assembly porosity”). Several descriptive parameters (porosity volume fraction, shape, size, spatial distribution, angular distribution and interconnection) were estimated by immersion measurements and image analysis. Studies based on analytical and numerical homogenization were conducted. Numerical calculations using the Fast Fourier Transform method were performed on images of slice planes obtained with imaging technologies or 3D simulated microstructures generated with an original morphological model reproducing some characteristics of the observed porosity networks. The impact of the descriptive parameters on thermal conductivity was investigated. The significant impact of the spatial distribution and the interconnection of the assembly porosity on the thermal conductivity of manufactured UO_2 fuels were highlighted. Finally, the proposed model was compared with experimental thermal diffusivity measurements obtained by the Flash method. Discrepancies between the model and the experimental measurements have been largely reduced with the proposed model compared with the standard models, which means that the developed model is more representative of the UO_2 thermal behavior.

Keywords : thermal conductivity, porosity, homogeneisation, FFT method, image analysis, X-ray tomography, FIB-SEM, Flash method.

Remerciements

J'aimerais adresser mes remerciements à tous ceux qui ont contribué à la bonne réalisation de cette thèse, dont :

- Arnaud pour ton support au quotidien et pour m'avoir appris à être plus rigoureuse dans ma façon d'être et de faire.
- Christelle pour m'avoir aidé à faire le lien avec le LCU et pour ton sens de l'écoute.
- Renaud pour avoir toujours su prendre le temps (même quand tu n'en avais pas !) et pour ta pédagogie.
- Michel pour toutes les suggestions que tu as pu apporter en réunions d'avancement et pour le temps que tu as su trouver pour cette thèse.
- Mihail pour avoir toujours été présent et pour cette discussion très intéressante sur les modèles analytiques lors de la rédaction du manuscrit.
- Andréa, Mathias, Philippe, Patrick, Thierry, Laurent, Isabelle, Jean et Xavière pour m'avoir conseillé et épaulé lors des expériences que j'ai réalisées au cours de ma thèse.
- Marcelle et Etienne pour leur gentillesse et pour m'avoir aidé dans la compréhension et la génération des codes de simulations utilisées au cours de la thèse.
- Laure, Régine, Armande et Laetitia pour votre bonne humeur, votre réactivité et votre soutien pendant ces trois ans.
- Romain pour avoir pu au travers de son stage donner une dimension statistique aux études réalisées.
- mon jury de thèse pour leur intérêt et pour avoir permis la concrétisation de ce doctorat.
- Jules, Daria, Luc, Orianne, Margarita, Marie, Alan, Thomas, Nicolas, Vincent, Sébastien, Julien, Akram, Veronica, Sarah et toutes les autres personnes, avec qui j'ai partagé des repas, des fous rires et des sorties, pour leur amitié.
- Thomas pour être entré dans ma vie.
- mes parents, mon frère et plus généralement ma famille pour leur écoute, patience, affection et attention à mon égard (pour ne citer que ça).

Table des matières

Résumé	2
Abstract	3
Remerciements	4
Table des matières	5
Table des figures	9
Liste des tableaux	15
Introduction	17
1 État de l'art	21
1.1 Caractérisation du comportement thermique de céramiques UO_2	21
1.1.1 Définitions associées à la conductivité thermique d'un matériau	21
1.1.2 Classification des différentes techniques pour des matériaux peu conducteurs	23
1.1.3 Principe de la caractérisation indirecte de la conductivité thermique par méthode Flash en face arrière	27
1.1.4 Paramètres impactant la conductivité thermique d'une céramique UO_2 .	29
1.2 Principes de techniques de caractérisation des milieux poreux ou fissurés	33
1.2.1 Quantification de la porosité à l'aide d'une méthode par immersion dans un liquide	33
1.2.2 Imagerie par microscopie optique	34
1.2.3 Tomographie par absorption des rayons X	34
1.2.4 MEB-FIB	36
1.3 Traitement d'images numériques	37
1.3.1 Quelques principes de base	37
1.3.2 Représentations dans l'espace de Fourier et ondelettes	39
1.3.3 Segmentation d'images	41
1.3.4 Filtrages	42
1.3.5 Morphologie mathématique	43
1.3.6 Stéréologie	46
1.4 Évaluation des propriétés thermiques d'un matériau hétérogène par homogénéisation	46
1.4.1 Démarche générale d'une méthode d'homogénéisation	47
1.4.2 Modèles par homogénéisation analytique suivant le degré d'informations sur la microstructure	54
1.4.3 Modèles numériques pour l'évaluation de microstructures poreuses ou fissurées	70
1.5 Conclusions du chapitre	74
2 Matériaux et méthodes	76

2.1	Fabrication des céramiques UO_2	76
2.1.1	Principe du procédé de fabrication des céramiques UO_2	76
2.1.2	Étude préliminaire et fabrication des céramiques UO_2	79
2.1.3	Évaluation du domaine d'étude à l'aide de mesures par immersion	80
2.2	Caractérisations par imagerie de la microstructure poreuse des céramiques UO_2	82
2.2.1	Observation de coupes par microscopie optique	82
2.2.2	Observation 3D de la microstructure par tomographie X à l'échelle microscopique	89
2.2.3	Observation 3D de la microstructure par MEB-FIB à l'échelle nanométrique	99
2.3	Estimation du comportement thermique des céramiques UO_2 100 % à 50 °C	106
2.3.1	Caractérisation du comportement thermique d'une céramique UO_2 par méthode Flash	106
2.3.2	Détermination de l'influence de la porosité sur la conductivité thermique à partir des mesures réalisées	108
2.3.3	Présentation des outils numériques pour l'étude du comportement thermique des céramiques	109
2.4	Conclusions du chapitre	113
3	Modélisation double-échelle de la porosité des combustibles UO_2 par des inclusions sphéroïdales	115
3.1	Représentation double-échelle de la porosité des céramiques UO_2	115
3.1.1	Classification des pores observés par tomographie X	117
3.1.2	Classification des pores observés par MEB-FIB	121
3.1.3	Mise en place d'une modélisation double-échelle basée sur les observations réalisées	124
3.2	Modélisation de l'effet de la porosité occluse sur la conductivité thermique effective des céramiques UO_2	126
3.2.1	Étude à l'échelle nanométrique à partir de l'image MEB-FIB	126
3.2.2	Étude à l'échelle microscopique à partir de l'image de tomographie X	128
3.2.3	Impact sur les mesures de diffusivité thermique réalisées	135
3.3	Modélisation de l'effet de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique effective des céramiques UO_2	137
3.3.1	Développement de modèles analytiques pour la porosité d'assemblage	138
3.3.2	Détermination du facteur de forme des inclusions représentant les pores d'assemblage	140
3.3.3	Critique de la représentativité des modèles proposés pour la porosité d'assemblage	143
3.4	Conclusions du chapitre	146
4	Modélisation de la porosité d'assemblage à l'aide de fissures orientées	149
4.1	Développement d'un modèle de type fissures pour la porosité d'assemblage	149
4.1.1	Rappels sur la densité de fissures	149
4.1.2	Évaluation du choix de modélisation des pores d'assemblage à l'aide d'objets de type fissure	150

4.1.3	Détermination du comportement thermique d'un ensemble dilué de fissures orientées	151
4.2	Caractérisation 2D des paramètres microstructuraux du modèle développé . . .	154
4.2.1	Étude analytique de la caractérisation 2D de ces paramètres	155
4.2.2	Développement d'une méthodologie de traitement d'images pour la caractérisation des paramètres descripteurs 2D	161
4.2.3	Caractérisation des paramètres descripteurs associés au modèle développé	167
4.3	Étude de validité et proposition d'une amélioration du modèle	171
4.3.1	Effet de la distribution angulaire des fissures sur la conductivité thermique effective	171
4.3.2	Retour sur le modèle donnant l'impact de la porosité occluse sur la conductivité thermique	172
4.3.3	Étude de la représentativité du modèle proposé associé à la porosité d'assemblage	173
4.3.4	Estimation de l'impact de la répartition spatiale des pores d'assemblage à l'aide d'une étude FFT 2D	175
4.4	Conclusions du chapitre	183
5	Simulation de la répartition spatiale des pores d'assemblage modélisés par des fissures	185
5.1	Génération du réseau de joints de cellules à l'aide d'une tessellation de Voronoï érodée	187
5.1.1	Estimation de la représentativité de la taille de volume d'étude	187
5.1.2	Étude de la génération des cellules de Voronoï	189
5.1.3	Impact de l'épaisseur des joints de cellules	192
5.2	Génération du réseau de fissures à l'aide de sphères délimitantes	193
5.2.1	Étude du schéma utilisé pour la génération des sphères délimitantes . . .	196
5.2.2	Étude de la définition de l'ensemble $\cap \{JdC + Sph\}$, du nombre et du rayon des sphères délimitantes	197
5.3	Étude du comportement thermique des microstructures synthétiques générées . .	202
5.3.1	Modélisation numérique de l'impact de la répartition de fissures autour de cellules	203
5.3.2	Étude de la représentativité des modèles proposés associés à la porosité d'assemblage	206
5.3.3	Évaluation du modèle développé donnant l'influence de la porosité totale	212
5.4	Conclusions du chapitre	213
	Conclusions	218
	Bibliographie	218
	Annexes	232
A	Modèle analytique de type « milieu dilué » : cas d'une inclusion sphéroïdale dans un milieu infini	232
B	Caractéristiques des céramiques UO_2 observées par microscopie optique	234

C	Conditions d'acquisition des scans de tomographie X et coupes tirées des images 3D brutes obtenues	239
D	Acquisitions réalisées par MEB-FIB et présentation de différentes coupes tirées des images brutes obtenues avec le détecteur SESI	244
E	Vérification informatique du plug-in de traitement d'images nommé Crackcut . .	246
F	Autour du tirage des sphères délimitantes pour les microstructures numériques générées	252
F.1	Notions de bases sur les ensembles aléatoires	252
F.2	Qualité de l'approximation du tirage booléen des sphères délimitantes avec le schéma utilisé dans cette étude	252
F.3	Relation entre la densité de fissures et les paramètres d'entrée de la génération des microstructures numériques	254

Table des figures

1	Observation de coupes par microscopie optique de microstructures de céramiques UO_2 obtenues suivant le procédé de référence (a) et le procédé de laboratoire (b) utilisés pour la fabrication des céramiques étudiées dans ce travail	17
1.1	Schéma de principe de la plaque chaude gardée [Deg94]	23
1.2	Schéma de principe de la méthode fluxmétrique [DK02]	24
1.3	Schéma de principe de la méthode du fil chaud	25
1.4	Schéma du principe d'une mesure par méthode Flash en face arrière	27
1.5	Micrographie d'une céramique UO_2 irradiée à $33\text{ GW }j/TU$ et portée à 2000 K pendant 3 h (d'après la figure 2(a) de [Dub+05])	32
1.6	Principe de la tomographie à rayons X (d'après la figure 2.2 de [Hos17])	35
1.7	Principe du MEB-FIB (image de [Coc+13])	36
1.8	Exemple d'histogramme d'une image en niveaux de gris	38
1.9	Notion du voisinage d'un pixel (en gris)	39
1.10	Exemple de segmentation par seuillage binaire sur une image en niveaux de gris	41
1.11	Application de filtres gaussiens sur la figure 1.10b	42
1.12	Application d'opérations élémentaires de base sur la figure 1.10b avec un élément structurant carré de 2 pixels de côté	44
1.13	Application de la fermeture et de l'ouverture morphologiques sur la figure 1.10b avec un élément structurant B carré de 2 pixels de côté	45
1.14	Exemples de squelettisation	46
1.15	Notion de séparation d'échelles pour un matériau hétérogène constitué d'une matrice (de conductivité thermique λ_m) et d'une phase d'inclusions (de conductivité thermique λ_i)	47
1.16	Définition des angles d'Euler	49
1.17	Représentation des ellipsoïdes de sûreté [BBG01]	66
2.1	Procédé de fabrication des céramiques UO_2 [BMP96]	77
2.2	Observation de coupes par microscopie optique de microstructures de céramiques UO_2 obtenues suivant les deux procédés de fabrication	78
2.3	Observation par microscopie optique de deux microstructures de céramiques UO_2 fabriquées par le procédé alternatif (zoom)	80
2.4	Domaines de fractions volumiques de porosité balayés par les céramiques UO_2 fabriquées	81
2.5	Zone observée par microscopie optique de la microstructure d'un échantillon UO_2 (en bleu)	83
2.6	Zoom sur une image de microscopie optique caractéristique obtenue avec le protocole présenté dans le tableau 2.1	84
2.7	Observation à différentes échelles d'un objet présentant un gradient d'intensité	84
2.8	Histogrammes de la figure 2.7a associés aux trois canaux RVB	85
2.9	Histogramme des niveaux de gris de la figure 2.7a	86
2.10	Coupes successives sur l'échantillon $E_{1,2}$	87

2.11	Différentes étapes de traitement d'images optimal : de l'image brute à l'extraction des pores d'assemblage	88
2.12	Protocole optimisé de traitement d'images pour obtenir le squelette des pores d'assemblage à partir de l'image 2.11c	89
2.13	Vue schématique d'un échantillon (en gris) et de son positionnement dans le tomographe X	90
2.14	Influence de la longueur x_d de la diagonale de la base des échantillons et de l'énergie des photons sur la transmission du flux de rayons X pour l' UO_2	91
2.15	Montages expérimentaux utilisés dans le cadre de la caractérisation du réseau poreux des céramiques UO_2 par tomographie X	93
2.16	Exemple d'anneaux associés aux défauts de l'imageur	94
2.17	Coupe normale à l'axe \mathbf{u}_y associée à l'image 3D de l'échantillon « fils » de $E_{1,1}$ obtenue par tomographie X avec le protocole présenté dans le tableau 2.2	96
2.18	Comparaison des lois de transmission d'une feuille de cuivre de $0,35 \text{ mm}$ et d'un échantillon UO_2 avec $x_d = 0,8 \text{ mm}$ (lois déterminées à partir de la base de données NIST [Ber+10])	96
2.19	Illustration des différentes étapes de traitement d'images retenues pour le traitement de l'image brute à l'image binaire souhaitée	98
2.20	Artefact présent sur une coupe à une abscisse z donnée de l'échantillon	99
2.21	Préparation de l'échantillon E_3 avant acquisition au MEB-FIB	100
2.22	Images obtenues avec les détecteurs SESI et ESB du MEB-FIB (acquisition 1)	102
2.23	Images obtenues avec les détecteurs SESI et « In lens » du MEB-FIB (acquisition 3)	103
2.24	Illustration des différentes étapes du traitement optimisé des images MEB-FIB : de l'image brute à l'image binaire souhaitée	104
2.25	Évolution du rapport signal sur bruit noté S/B en fonction des coupes après atténuation des artefacts « rideaux »	105
2.26	Schéma de principe du banc de mesure HyperFlash LFA 467 (Netzch)	107
2.27	Domaine balayé en diffusivité thermique par les céramiques UO_2 fabriquées	108
2.28	Étude préliminaire FFT sur un objet d'épaisseur 1 pixel	110
2.29	Chemins potentiels (flèches bleues) du flux en un pixel donné (en gris) pour différents obstacles de type squelette d'épaisseur 1 pixel (en noir)	111
2.30	Étude préliminaire FFT sur un objet d'épaisseur 1 pixel (figure 2.28a) puis dilaté à l'aide d'un disque de 1 pixel de rayon	112
2.31	Carte normalisée de flux 2D de la figure 2.30a avec un filtrage de Willot [Wil15] ($\bar{\sigma} = 0,691 \text{ W/m}^2$)	113
3.1	Zones caractéristiques sur des coupes obtenues par microscopie optique associées aux échantillons caractérisés par imagerie 3D	116
3.2	Étude des ellipsoïdes représentant les objets présents sur l'image 3D obtenue par tomographie X	118
3.3	Porosité de demi grand-axe de $41,2 \mu\text{m}$	119
3.4	Observation par microscopie optique sur l'échantillon $E_{1,1}$ d'une porosité de morphologie particulière et de diamètre de Feret de l'ordre de $150 \mu\text{m}$	120
3.5	Classification des objets sur l'image binarisée 3D de tomographie X présentée sur une coupe parallèle à l'axe \mathbf{u}_y (à une abscisse y donnée)	121

3.6	Classification des objets sur l'image MEB-FIB binarisée illustrée sur une coupe à une abscisse z donnée	122
3.7	Étude des ellipsoïdes représentant les objets présents sur l'image MEB-FIB étudiée	123
3.8	Représentation double-échelle d'une céramique UO_2	125
3.9	Étude de la morphologie des sphéroïdes représentant les pores occlus identifiés sur l'image obtenue par MEB-FIB	127
3.10	Étude de la morphologie des sphéroïdes représentant les pores occlus identifiés sur l'image obtenue par tomographie X	128
3.11	Exemples de coupes selon les trois directions de l'espace obtenues sur l'échantillon $E_{1,1}$ par tomographie X présentant le réseau de porosité occluse	129
3.12	Étude de la circularité moyenne des pores occlus de l'échantillon $E_{1,1}$ par tomographie X selon l'axe auquel sont parallèles les coupes étudiées	131
3.13	Écart par rapport au modèle 2D proposé (équation 3.13) et les simulations FFT 2D réalisées sur les coupes normales à l'axe \mathbf{u}_z obtenues sur l'échantillon $E_{1,1}$ par tomographie X et le modèle avec $\omega_{2D} = 0,53$ (équation 3.14)	134
3.14	Impact de la porosité occluse sur la diffusivité thermique des céramiques telles que $c_o \leq 1\%$ et $c_o/c_T \leq 0,2$	136
3.15	Observation par microscopie optique de pores d'assemblage caractéristiques sur différents échantillons UO_2	138
3.16	Exemples de représentation d'une trace d'un pore d'assemblage à l'aide d'inclusions elliptiques (en vert)	141
3.17	Intersection d'un plan de coupe quelconque avec une distribution de particules de forme quelconque (extrait de [SP98])	142
3.18	Évolution du facteur de forme ω_a en fonction de la coupe étudiée selon z sur les échantillons $E_{1,2}$ et $E_{1,3}$	143
3.19	Validation des modèles proposés (équations 3.19 et 3.20) par comparaison au modèle associé aux mesures de diffusivité thermique (équation 3.21)	145
4.1	Morphologie caractéristique des pores d'assemblage observés sur des zooms des coupes de céramiques UO_2 obtenues par microscopie optique et seuillées	151
4.2	Caractérisation d'un plan dans \mathbb{R}^3 à l'aide du système de coordonnées sphériques (r, θ, β)	155
4.3	Intersection de la fissure C contenue dans $(O, \mathbf{u}_x, \mathbf{u}_z)$ avec un plan (en vert)	156
4.4	Description de la trace d'une fissure (en bleu) de vecteur normal \mathbf{u}_f dans le plan défini par la base $(\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_y)$	158
4.5	Principe de fonctionnement du plug-in Crackcut	162
4.6	Description d'une branche (visualisation numérique où les pixels la constituant sont en gris) à l'aide de trois segments de droite	163
4.7	Cas-test étudié avec une résolution spatiale de $1 \mu\text{m}/\text{pix}$ ($l_{tot,th} = 237,37 \mu\text{m}$)	165
4.8	Évolution de la représentation en segments de droite de l'arc de cercle présenté sur la figure 4.7 en fonction de la consigne $Taillemax$ (taille maximale du segment de droite élémentaire)	165
4.9	Impact de $Taillemax$ sur l'estimation de la longueur de l'arc de cercle	166
4.10	Étude du choix de $Taillemax = 15 \mu\text{m}$ pour la description d'une image squelettisée caractéristique de la porosité d'assemblage	167

4.11	Exemple caractéristique du squelette d'un pore d'assemblage	168
4.12	Évolution de la densité de fissures ρ_{3D} avec la représentation « branche » en fonction de la coupe étudiée selon z sur les échantillons $E_{1,2}$ et $E_{1,3}$ d'un même lot de fabrication	169
4.13	Impact de l'orientation des fissures sur le modèle proposé (équation 4.13) selon \mathbf{u}_y	171
4.14	Impact de la porosité occluse sur la diffusivité thermique des céramiques telles que $\rho_{3D} \leq 0,02$	173
4.15	Validation du modèle proposé (équation 4.13) en le comparant au modèle associé aux mesures de diffusivité thermique (équation 3.21)	174
4.16	Schéma explicatif de l'orientation d'une fissure-ruban (en bleu) dans un plan $(\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_y)$	176
4.17	Zooms sur les squelettes dilatés à l'aide d'un disque de rayon de 1 pixel des microstructures synthétique générées	177
4.18	Fonctions de distribution d'orientation 2D associées aux microstructures synthétiques 2D présentées sur la figure 4.17	178
4.19	Erreur absolue de l'histogramme de la microstructure générée (figure 4.18b) par rapport à celui de la microstructure idéale où les pores sont distribués de façon aléatoire	179
4.20	Zoom sur le squelette dilaté à l'aide d'un disque d'un rayon de 1 pixel associé à la céramique E_{11} ($\rho_{3D} = 0,053$, $S_{tot} = 22,4 \text{ mm}^2$, $M = 3497$ et $l_{tot} = 127,06 \text{ mm}$)	181
4.21	Cartes de flux thermique normalisées par le flux moyen $\bar{\sigma}$ pour un chargement selon l'axe \mathbf{u}_y et associées aux microstructures présentées sur la figure 4.17 . . .	182
5.1	Principe de génération des microstructures synthétiques 3D	186
5.2	Observation de coupes de céramiques UO_2 squelettisées dilatées avec un disque de rayon 1 pixel	191
5.3	Coupe en $z = 329 \text{ vox}$ (soit $500 \mu\text{m}$) de la microstructure synthétique 2 du tableau 5.2 pour laquelle $r_V = 75 \mu\text{m}$	191
5.4	Étude du choix de $Taille_{max} = 15 \mu\text{m}$ pour la description d'une coupe squelettisée caractéristique de la microstructure optimisée de joints de cellules (microstructure 1 du tableau 5.3)	194
5.5	Estimation de la densité de fissures ρ_{3D} sur la microstructure 1 du tableau 5.3 en fonction de la position z de la coupe normale à l'axe \mathbf{u}_z	195
5.6	Observation du réseau des squelettes des traces associées aux porosités d'assemblage sur des coupes squelettisées puis dilatées avec un disque de rayon 1 pixel	198
5.7	Exemples de microstructures étudiées pour le choix de la définition de l'ensemble $\cap \{JdC + Sph\}$ pour $r_S = 30 \mu\text{m}$	199
5.8	Fonctions de distribution d'orientation 2D des normales aux plans des traces des fissures	202
5.9	Effet 2D /3D sur l'impact $\kappa_{a,y}$ de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique des microstructures synthétiques évalué sur un échantillon par lot observé par microscopie optique avec une résolution de $1,52 \mu\text{m}/\text{pix}$	203

5.10	Comparaison des simulations 3D réalisées sur les microstructures synthétiques et du modèle semi-analytique 3D proposé (équation 5.5) aux estimations associées aux mesures expérimentales	207
5.11	Étude de la représentativité des simulations 2D réalisées sur des coupes en $z = 329 \text{ pix}$ des microstructures synthétiques par comparaison à celles réalisées sur des coupes réelles	209
5.12	Cartes de flux normalisées par le flux thermique moyen $\bar{\sigma}$ obtenues par FFT 2D avec un chargement thermique selon \mathbf{u}_y sur des coupes de microstructures réelle et synthétique	210
5.13	Histogrammes de flux associés aux cartes normalisées de flux de la figure 5.12 obtenues par FFT 2D avec un chargement thermique imposé selon \mathbf{u}_y	210
5.14	Seuillage avec $Flux[y] = 0,5$ des cartes normalisées de flux de la figure 5.12	211
B.1	Zoom sur une image en niveaux de gris obtenue par microscopie pour les échantillons $E_{1,1}$, $E_{1,2}$, $E_{1,3}$, E_2 , E_3 et E_4	235
B.2	Zoom sur une image en niveaux de gris obtenue par microscopie pour les échantillons E_5 , E_6 , E_7 , E_8 , E_9 et $E_{10,1}$	236
B.3	Zoom sur une image en niveaux de gris obtenue par microscopie pour les échantillons $E_{10,2}$, E_{11} , $E_{12,1}$, $E_{12,2}$, $E_{12,3}$ et $E_{12,4}$	237
B.4	Zoom sur une image en niveaux de gris obtenue par microscopie pour les échantillons E_{13} et E_{14}	238
C.1	Exemples de coupes et leurs rapports signal sur bruit pour différentes conditions d'essai de la campagne 1 (tableau C.1). La taille des coupes est de l'ordre de $0,60 \mu m \times 0,60 \mu m$	242
C.2	Exemples de coupes et leurs rapports signal sur bruit pour différentes conditions d'essai de la campagne 2 (tableaux C.2 et C.3). La taille des coupes est de l'ordre de $0,55 \mu m \times 0,53 \mu m$ pour l'échantillon A, de $0,56 \mu m \times 0,53 \mu m$ pour l'échantillon B et de $0,55 \mu m \times 0,64 \mu m$ pour l'échantillon C.	243
D.1	Coupes associées à l'image 3D obtenue par MEB-FIB avec le détecteur SESI et les conditions d'acquisition 1	244
D.2	Coupes associées à l'image 3D obtenue par MEB-FIB avec le détecteur SESI et les conditions d'acquisition 2	245
D.3	Coupe associée à l'image 3D obtenue par MEB-FIB avec le détecteur SESI et les conditions d'acquisition 3 (champ de la coupe : $10,2 \mu m \times 9,0 \mu m$)	245
E.1	Présentation de trois cas-tests avec un objet de type segment de droite par image, où la distance centre à centre entre deux pixels voisins est constante. Les images sont dilatées avec un élément structurant disque de rayon 1 pix pour plus de visibilité.	246
E.2	Résultats du plug-in Crackcut sur les longueurs l_{seg} et orientations θ_{seg} des segments de droite décrivant les cas-tests de la figure E.1	247
E.3	Segment oblique ($l_{tot,th} = 164,01 \text{ mm}$ et $\theta_{th} = -52,4^\circ$). L'image est dilatée avec un élément structurant disque de rayon 1 pix pour plus de visibilité.	248
E.4	Autre cas de segment oblique ($l_{th} = 150 \text{ mm}$ et $\theta_{th} = -36,9^\circ$). L'image est dilatée avec un élément structurant disque de rayon 1 pix pour plus de visibilité.	249
E.5	Étude de l'agencement des pixels du segment de droite de la figure E.4	250

F.1	Évolution de c_a et $E[F]$ en fonction de $N_S r_S^3$ et de l'ensemble $\cap \{JdC + Sph\}$ pour des microstructures avec le réseau de joints de cellules optimisé généré dans la section 5.1 et des sphères délimitantes de rayon $r_S = 30 \mu m$	255
F.2	Relation entre la fraction volumique de fissures c_a et la densité de fissures ρ_{3D} pour des microstructures avec le réseau de joints de cellules généré dans la section 5.1 et un réseau de sphères tel que $r_S = 30 \mu m$	256

Liste des tableaux

1	Caractéristiques de deux céramiques UO_2 fabriquées avec le procédé de fabrication alternatif	18
1.1	Comparaison des réponses du modèle PCW et du modèle « milieu dilué » pour des inclusions penny-shape dans le cas où $\tau \approx 0$	70
2.1	Conditions d'acquisition des images 2D par microscopie optique	83
2.2	Protocole expérimental optimisé donnant les images 3D de tomographie X pour un échantillon de $x_d = 0,8 \text{ mm}$ et $h = 2 \text{ mm}$	95
2.3	Paramètres utilisés pour l'étude FFT	110
3.1	Caractéristiques des échantillons caractérisés par imagerie 3D	117
4.1	Évaluation des valeurs propres du tenseur \mathbf{B}'_{3D} pour des céramiques UO_2	170
4.2	Conditions de génération et évaluation des densités de fissures associées aux microstructures de la figure 4.17	177
4.3	Comparaison modèle/simulation sur les microstructures synthétiques 2D générées	180
4.4	Caractéristiques associées aux cartes normalisées de flux thermique pour un chargement selon l'axe \mathbf{u}_y présentées sur la figure 4.21	182
5.1	Impact du volume V_{tot} sur la réponse thermique des microstructures synthétiques générées	188
5.2	Impact de (N_V, r_V) sur la conductivité thermique des microstructures générées .	190
5.3	Impact de l'épaisseur e_p des joints de cellules sur le comportement thermique des microstructures synthétiques générées	193
5.4	Estimation des bornes minimale et maximale de l'intervalle de densité de fissures non balayé avec le schéma RSA en définissant $\cap \{JdC + Sph\}$ comme des obstacles ou des ponts thermiques	196
5.5	Caractéristiques des microstructures synthétiques de la figure 5.7	199
5.6	Impact du rayon r_S des sphères délimitantes sur la longueur moyenne des branches des microstructures synthétiques générées	200
5.7	Conditions optimisées de génération des microstructures synthétiques	201
5.8	Estimation de la conductivité thermique effective selon \mathbf{u}_y pour le réseau de pores constitué de 100 % du réseau de joints de cellules	205
5.9	Estimation de l'amélioration du modèle κ_y des céramiques UO_2 à l'aide du modèle développé dans cette étude (début de section 5.3.3) par rapport au modèle classique	213
B.1	Fractions de porosités volumiques, diffusivité thermique à 50°C et densités de fissures ρ_{3D} des céramiques UO_2 sélectionnées pour une caractérisation de leurs microstructures par microscopie optique	234
C.1	Conditions d'essai de la première campagne de tomographie sur un échantillon UO_2 n'appartenant pas au domaine d'étude (orientation portrait du détecteur) .	239
C.2	Conditions d'essai de la deuxième campagne de tomographie (partie 1) sur un échantillon fils nommé « A » de la céramique $E_{1,1}$	240

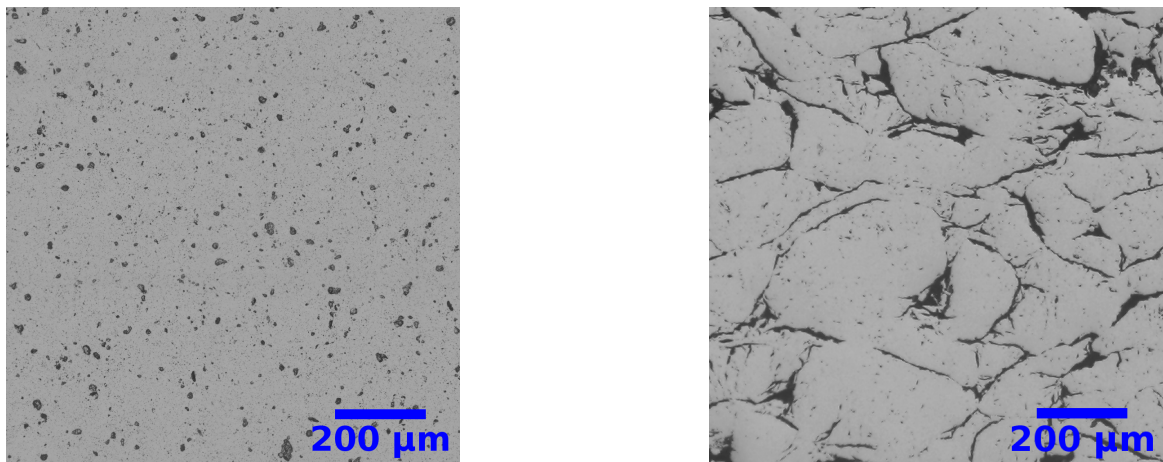
C.3	Conditions d'essai de la deuxième campagne de tomographie (partie 2) sur trois échantillons fils nommés « A, B et C » de la céramique $E_{1,1}$	241
D.1	Conditions d'acquisition des images 3D obtenues par MEB-FIB sur l'échantillon E_3	244
E.1	Résultats associés aux cas-tests de la figure E.1 pour toute consigne $Taillemax$ supérieure ou égale à $\sqrt{2} mm$	247
E.2	Influence de $Taillemax$ sur les résultats de Crackcut obtenus à partir de la figure E.3 (où M_{seg} est le nombre de segments de droite décrivant l'image) . . .	248
E.3	Influence de $\frac{Taillemax}{Res}$ sur les possibles orientations θ_{seg} des segments de droite décrivant l'image étudiée	249
E.4	Influence de $\frac{Taillemax}{Res}$ sur l'évaluation de la longueur totale et de l'orientation des objets présents sur l'image E.4	250
F.1	Évaluation de l'approximation du schéma booléen par le tirage réalisé avec $N_S = 3200$, $r_S = 30 \mu m$ et $V_{tot} = 1 mm^3$	253

Introduction

La conductivité thermique des céramiques UO_2 joue un rôle majeur dans les phénomènes thermiques, et impacte par répercussion les phénomènes mécaniques, physiques et chimiques mis en jeu lors de l'irradiation de ces matériaux en réacteur nucléaire [BMP96]. Une bonne estimation de la conductivité thermique de ces céramiques UO_2 permet de prédire finement leur comportement pour ainsi contrôler les transformations qu'elles subissent en réacteur.

Les céramiques UO_2 sont généralement fabriquées à l'aide d'un procédé de fabrication de référence. Ce procédé de fabrication fait intervenir un agent solide (dit porogène) qui se calcine lors du frittage des échantillons ce qui permet d'augmenter artificiellement la porosité de ces matériaux. Or, la calcination du porogène induit des problématiques de nettoyage des fours de frittage. Pour s'affranchir de ces problématiques, des céramiques UO_2 ont été fabriquées en laboratoire sans porogène et de telle façon qu'elles possèdent des taux de porosité similaires à ceux des céramiques de référence.

Le réseau de porosité des céramiques UO_2 développées en laboratoire est plus complexe que celui des céramiques UO_2 utilisées dans les réacteurs à eau pressurisée (REP) en termes de fraction volumique, de morphologie, de répartition spatiale et de distribution angulaire de pores (figure 1).



(a) Procédé de fabrication de référence

(b) Procédé de fabrication alternatif

FIGURE 1. – Observation de coupes par microscopie optique de microstructures de céramiques UO_2 obtenues suivant le procédé de référence (a) et le procédé de laboratoire (b) utilisés pour la fabrication des céramiques étudiées dans ce travail

Plusieurs études ont été réalisées afin de déterminer l'influence de la porosité sur la conductivité thermique de céramiques UO_2 et les modèles proposés se présentent sous la forme d'une expression de Loeb modifiée [Loe54] :

$$\lambda = \lambda_{100\%} (1 - \beta c_T) \quad (1)$$

où c_T désigne la fraction volumique de porosité totale et β un facteur qui prend en compte la morphologie réelle des pores et leur répartition.

Un tel modèle (équation 1) peut être vu comme une linéarisation d’une réalité plus complexe, valable pour des fractions volumiques de porosité faibles (typiquement de quelques pourcents).

Par exemple, J. R. MacEwan et al. [MSN67] ont étudié l’influence de la porosité sur la conductivité thermique de céramiques UO_2 standard vierges (c’est-à-dire non irradiées) et irradiées à 60°C avec une méthode fluxmétrique. L’intervalle balayé en fraction volumique c_T des céramiques vierges s’étend de 2,00 % à 6,02 %. En réalisant une régression linéaire aux moindres carrés sur les points et en l’extrapolant pour $c_T = 0$, les auteurs obtiennent : $\lambda_{100\%} = 8,55 \text{ W}/(m.K)$ [MSN67; Mar71] et $\beta = 2,98$. Ils concluent en supposant que différentes voies de fabrication peuvent induire d’autres valeurs de β et recommandent alors de ne pas considérer la valeur de β proposée comme une valeur appropriée pour toutes les céramiques UO_2 .

En considérant les corrélations établies par J. R. MacEwan et al. [MSN67], A. M. Ross [Ros60], J. C. Van Craeynest et al. [VS70], J. P. Moore et al. [MM71], C. F. Lucks et al. [LD60], celle du code MATPRO [HR79] et la recommandation de l’IAEA [IAE66], nous obtenons des écart-types de 0,86 $\text{W}/(m.K)$ et de 0,68 pour respectivement $\lambda_{100\%}$ et β à 60°C . Étant donné qu’une seule valeur de β et deux valeurs de $\lambda_{100\%}$ sont disponibles dans la littérature ouverte à 50°C [LD60; HR79], il a été choisi de considérer que les écart-types associés à la littérature pour 50°C sont identiques à ceux évalués à 60°C .

La variation des deux paramètres $\lambda_{100\%}$ et β semble être principalement induite par le procédé de fabrication des céramiques UO_2 comme le suggèrent J. R. MacEwan et al. [MSN67].

En résumé, l’ensemble de ces études proposent différents modèles semi-empiriques donnant l’influence de la porosité sur la conductivité thermique pour des céramiques UO_2 standard REP ou des céramiques de laboratoire. Tous ces modèles permettent d’estimer de façon satisfaisante l’influence de la porosité totale sur la conductivité thermique pour ces types de céramiques. Cependant, il est important de noter qu’aucune des céramiques étudiées dans la littérature n’est fabriquée à l’aide du procédé alternatif utilisé dans cette étude. Afin d’évaluer la représentativité des modèles de la littérature pour des échantillons fabriqués à l’aide du procédé de fabrication étudié ici, nous avons étudié deux céramiques dont les caractéristiques sont présentées dans le tableau 1).

Fraction volumique c_T de porosité totale (%)	$4,1 \pm 0,1$	$4,1 \pm 0,1$
Diffusivité thermique à 50°C (mm^2/s)	$2,76 \pm 0,08$	$2,46 \pm 0,07$

TABLEAU 1. – Caractéristiques de deux céramiques UO_2 fabriquées avec le procédé de fabrication alternatif

Les deux céramiques UO_2 mentionnées dans le tableau 1 possèdent une même fraction volumique de porosité totale mais des valeurs de diffusivité thermique significativement différentes (la relation entre la conductivité thermique et la diffusivité thermique est présentée dans le chapitre 1). D’autres paramètres microstructuraux que la fraction volumique de porosité totale influent donc sur la conductivité thermique des céramiques étudiées. Or, comme tous les modèles de la littérature dépendent linéairement de la fraction volumique de porosité totale (équation 1), aucun ne peut être représentatif du comportement thermique de ce type de matériaux.

L’étude présentée dans ce document se propose de développer un modèle décrivant l’influence de la porosité sur la conductivité thermique de céramiques UO_2 à partir d’une étude sur des

céramiques vierges simulant la microstructure de céramiques vierges et irradiées.

Dans le premier chapitre de ce mémoire, nous dressons un état de l'art des connaissances sur plusieurs points clés de cette étude : les techniques de mesure des propriétés thermiques, les techniques de caractérisation des milieux poreux, les méthodes de traitement d'images ainsi que la modélisation par homogénéisation des milieux hétérogènes.

Dans le deuxième chapitre, nous présentons les matériaux et méthodes utilisés dans cette étude : le procédé de fabrication des céramiques UO_2 étudiées, les techniques d'imagerie ainsi que la technique de mesure de leurs propriétés thermiques à $50\text{ }^\circ\text{C}$. Nous verrons en particulier que les fabrications spécifiées dans le cadre de cette étude permettent de disposer de lots de céramiques présentant des réseaux de porosité significativement différents. Nous terminons ce chapitre en précisant comment des objets de type fissures sont simulés dans les calculs en champ complet par méthode FFT.

Dans le troisième chapitre, nous présentons les résultats de nos observations des combustibles d'étude à différentes échelles. En complément des images obtenues par microscopie optique, des images 3D obtenues par tomographie X et MEB-FIB pour deux échantillons sont présentées et analysées. Nous verrons comment ces images nous permettent de mettre en évidence deux familles de pores présentant des morphologies différentes et de caractériser la forme des pores associées à chaque famille en considérant ces objets comme des inclusions volumiques sphéroïdales. Des calculs 2D sur des coupes de microstructures réelles mais représentatives seulement du réseau d'une famille de pores (appelée dans la suite porosité ocluse) sont également utilisés lors de cette analyse. Finalement, ces observations nous amènent à proposer un premier modèle donnant l'impact des pores sur la conductivité thermique. Une comparaison des résultats obtenus avec ce modèle aux expériences est présentée. Les limites d'une représentation volumique de la deuxième famille de pores (appelée dans la suite porosité d'assemblage) sont également expliquées.

Dans le quatrième chapitre, la représentation volumique des pores d'assemblage est donc abandonnée au profit d'une représentation surfacique (de type fissures). Nous présentons notamment la méthodologie mise en œuvre pour caractériser par analyse d'images (sur des images obtenues par microscopie optique) la densité ainsi que la distribution angulaire de ces fissures. Ces nouveaux paramètres descripteurs nous permettent de construire un modèle analytique qui est comparé aux données expérimentales. En complément, des simulations FFT 2D menées sur des réseaux de fissures obtenus après traitement d'images de microscopie optique des matériaux réels sont comparées à des résultats de calculs obtenus sur des milieux 2D synthétiques. Ces comparaisons mettent en évidence les limites de ce premier modèle « fissures ».

Dans le cinquième et dernier chapitre, nous développons des microstructures 3D plus réalistes vis-à-vis des observations, les pores d'assemblages représentés par des fissures n'étant pas distribués aléatoirement dans l'espace mais localisés dans des zones bien définies. Les résultats de calculs en champ complet des propriétés thermiques de ces microstructures 3D synthétiques sont alors comparés aux résultats expérimentaux (données macroscopiques). Ces comparaisons sont enrichies par des comparaisons de cartes de flux thermiques obtenues sur des coupes 2D des microstructures réelles et synthétiques.

L'ensemble de ces résultats nous permet de tirer des conclusions claires quant aux paramètres descripteurs clés de ce réseau poreux vis-à-vis du comportement thermique des céramiques UO_2 étudiées. Ces conclusions sont rapportées dans le dernier chapitre de ce mémoire, dernier cha-

pitre dans lequel sont également discutées les principales perspectives qui se dégagent à l'issue de cette étude.

Les notations utilisées dans l'ensemble du document sont les suivantes :

- les champs scalaires sont en caractère normal (par exemple : le champ de température T),
- les tenseurs d'ordre 1 et 2 sont en gras (par exemple : le champ local de densité de flux thermique $\boldsymbol{\sigma}$),
- $\langle \mathbf{X} \rangle_{V_R}$ la moyenne d'un tenseur \mathbf{X} (d'ordre 1 ou 2) sur un volume V_R ,
- $\overline{\mathbf{X}}$ la moyenne du tenseur \mathbf{X} sur le volume V du Volume Élémentaire Représentatif (VER) étudié,
- \widehat{F}_k le coefficient k de Fourier d'une fonction \widehat{F} . La même notation sera utilisée pour la transformée de Fourier.

Afin de faire la différence entre la nature des pores et le taux de porosité, nous appellerons, dans le reste du document, « porosité » les vides dans un matériau et « fraction volumique de porosité » le pourcentage de porosité présente dans le matériau étudié.

1. État de l'art

Dans ce chapitre, nous présentons l'état de l'art associé à l'étude réalisée.

Nous définissons la conductivité thermique (section 1.1.1) et décrivons les principes de plusieurs techniques de mesure de la conductivité thermique d'un matériau (section 1.1.2) en nous intéressant tout particulièrement à la méthode Flash en face arrière qui est utilisée dans cette étude (section 1.1.3). Les paramètres impactant les mesures réalisées sont aussi présentés dans la section 1.1.4.

Les principes des techniques de caractérisation des milieux poreux et fissurés utilisées dans cette étude, dont en particulier plusieurs techniques d'acquisition d'images, sont décrites dans la section 1.2.

Pour analyser ces images, des traitements d'images sont réalisés. Le principe des traitements d'images utilisés dans cette étude sont explicités dans la section 1.3.

Comme il est question d'estimer la conductivité thermique des céramiques UO_2 à l'aide d'une démarche par homogénéisation, le principe de cette méthode est décrit dans la section 1.4.1. Plusieurs modèles analytiques classiques donnant l'effet de la porosité sur la conductivité thermique sont présentés dans le cas d'inclusions sphéroïdales (section 1.4.2). Des méthodes d'homogénéisation numériques basées sur les transformées de Fourier rapides sont aussi décrites (section 1.4.3).

1.1. Caractérisation du comportement thermique de céramiques UO_2

1.1.1. Définitions associées à la conductivité thermique d'un matériau

La conductivité thermique d'un matériau est une propriété qui quantifie la capacité de ce matériau à transmettre le flux thermique par conduction. La conductivité thermique λ ($\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$) est un tenseur d'ordre 2 symétrique et positif défini par la loi de Fourier [Fou22] :

$$\sigma = \lambda e \quad (1.1)$$

où σ (W/m^2) est le vecteur de densité de flux thermique et e (K/m) l'opposé du gradient de température ∇T soit $e = -\nabla T$.

La diffusivité thermique d'un matériau est une autre propriété qui décrit, tout comme la conductivité thermique, le transfert de chaleur dans un matériau. Elle quantifie la vitesse d'évolution d'un champ de température hétérogène du fait de la conduction thermique. La conductivité thermique et la diffusivité thermique sont liées par la relation :

$$\lambda = \rho C_p \alpha \quad (1.2)$$

où ρ (kg/m^3) est la densité apparente du matériau étudié, C_p ($\text{J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$) la chaleur spécifique ou capacité thermique massique de ce matériau et α (m^2/s) le tenseur d'ordre 2 de diffusivité thermique associé à ce matériau.

Dans le cas de matériaux poreux, la densité apparente ρ dépend de la fraction volumique de

porosité totale c_T du matériau :

$$\rho = (1 - c_T) \rho_{100\%} \quad (1.3)$$

où $\rho_{100\%}$ est la densité du matériau UO_2 pur non poreux (aussi appelé matériau « 100 % dense ») et vaut $\rho_{100\%} = 10950 \text{ kg/m}^3$ pour l' UO_2 .

La chaleur spécifique C_p quantifie la quantité d'énergie qu'il est nécessaire d'apporter à un kilogramme du matériau étudié pour élever sa température d'un Kelvin à pression P constante :

$$C_p = \frac{1}{m} \left(\frac{\partial H}{\partial T} \right)_P \quad (1.4)$$

où H est l'enthalpie de l'échantillon étudié et m sa masse.

Différentes lois donnant l'influence de la température sur la chaleur spécifique des céramiques UO_2 ont été développées pour une large plage de températures :

- Suite à une étude calorimétrique sur des poudres UO_2 , Moore and Kelley [MK47] ont déterminé une expression pour C_p (en $\text{cal}/(\text{mol K})$) sur le domaine de température T compris entre 300 K et 1500 K :

$$C_p = 19,20 + 1,62 \times 10^{-3} T - (3,957 \times 10^5) T^{-2} \quad (1.5)$$

- Afin de mieux prendre en compte l'impact de la température sur C_p autour de 1000 K , Engel [Eng69] a réalisé une étude calorimétrique sur une céramique UO_2 stœchiométrique (dont les propriétés microstructurales ne sont pas précisées) et a proposé une autre loi (en $\text{cal}/(\text{g K})$) entre 300 K et 1100 K :

$$C_p = 0,0493 + (5,058 \times 10^{-5}) T - (2,515 \times 10^{-8}) T^2 \quad (1.6)$$

- Fink et al. [Fin00] ont compilé les mesures expérimentales réalisées par d'autres auteurs pour une plage de température plus large comprise entre $298,15 \text{ K}$ et 3120 K et ont aussi proposé la loi (en $\text{J}/(\text{mol K})$) suivante :

$$C_p = C_1 \theta^2 e^{\theta/T} T^{-2} (e^{\theta/T} - 1)^{-2} + 2 C_2 T + C_3 E_a e^{E_a/T} T^{-2} \quad (1.7)$$

où les paramètres valent $C_1 = 81,613 \text{ J}/(\text{mol K})$, $\theta = 548,68 \text{ K}$, $C_2 = 2,285 \times 10^{-3} \text{ J}/(\text{mol K}^2)$, $C_3 = 2,360 \times 10^7 \text{ J/mol}$ et $E_a = 18531,7 \text{ K}$.

- Carbajo et al. [Car+01] ont examiné les différentes lois $C_p = f(T)$ existantes et la loi de Fink et al. est recommandée pour décrire la chaleur spécifique des céramiques UO_2 solides de l'ambiante ($298,15 \text{ K}$) jusqu'à la température de fusion de l' UO_2 (3120 K).

Par la suite, nous avons choisi d'utiliser la recommandation de Carbajo et al. afin d'estimer la chaleur spécifique C_p des céramiques UO_2 .

Les techniques de caractérisation de la conductivité thermique pour des matériaux peu conducteurs comme les céramiques UO_2 sont présentées par la suite.

1.1.2. Classification des différentes techniques pour des matériaux peu conducteurs

Diverses techniques de caractérisation permettent de mesurer la conductivité thermique d'un matériau en se basant sur la résolution de l'équation de la chaleur pour un milieu isotrope dans le cas où il n'y a pas de génération d'énergie au sein du système :

$$\alpha \nabla^2 T = \frac{\partial T}{\partial t} \quad (1.8)$$

où α est la diffusivité thermique du matériau, ∇^2 l'opérateur laplacien, T la température absolue et t le temps.

En régime permanent, l'équation 1.8 de la chaleur devient alors $\nabla^2 T = 0$ et cette équation est une équation de Poisson.

Il existe diverses façons de classer les techniques de caractérisation de la conductivité thermique. Il a été choisi de les classer ici suivant le régime thermique durant lequel a été déterminée la grandeur thermo-physique recherchée [Deg94] :

- Régime permanent ou régime stationnaire,
- Régime quasi-établi,
- Régime variable ou régime transitoire.

1.1.2.1. Méthodes en régime permanent

En régime thermique stationnaire ou permanent, la dépendance temporelle dans l'équation de la chaleur (équation 1.8) est négligée.

Ces techniques de caractérisation mettent en œuvre des géométries particulières afin de se ramener à un problème unidirectionnel et permettent de caractériser la conductivité thermique d'un matériau. Cette propriété peut être déterminée à l'aide d'une méthode en régime permanent en mesurant le différentiel de température qui est induit par un flux de chaleur imposé au système et en prenant en compte les propriétés géométriques de ce dernier. Deux techniques de caractérisation de la conductivité thermique utilisant une méthode en régime permanent [Deg94 ; DK02 ; Le 98] sont présentées ci-dessous.

Méthode de la plaque chaude gardée

Cette technique est la méthode en régime permanent la plus utilisée pour caractériser la conductivité thermique de matériaux isolants ($\lambda < 0,3 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$). Le principe de cette méthode est explicité sur la figure 1.1.

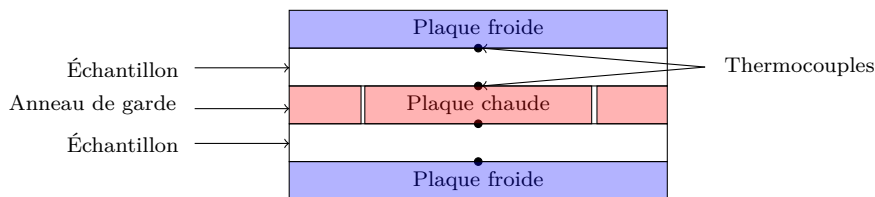


FIGURE 1.1. – Schéma de principe de la plaque chaude gardée [Deg94]

Un flux de chaleur constant imposé au niveau de la plaque chaude de surface S , noté Σ_0/S , est obtenu par effet Joule (à l'aide d'une résistance placée au centre de la plaque). Comme la plaque chaude est prise en sandwich entre deux blocs identiques constitués du matériau à caractériser d'épaisseur e et d'une plaque froide, la moitié du flux traverse chaque échantillon. Les plaques extérieures dites froides sont maintenues à une température constante à l'aide d'un bain thermostaté.

Le montage est optimisé afin de se rapprocher du transfert thermique d'une plaque infinie d'épaisseur e (échantillon) prise en sandwich entre deux plans parallèles et isothermes (plaques froide et chaude). Ainsi, toutes les grandeurs sont invariantes par translation dans le plan de l'échantillon. Pour assurer le transfert unidirectionnel dans la zone centrale, dite zone de mesure, un anneau de garde entoure la zone chauffée. Cet anneau de garde est régulé en température pour que les températures de cet anneau et de la zone de mesure soient identiques afin de minimiser ainsi les transferts thermiques latéraux.

Une fois le régime thermique stationnaire atteint, des thermocouples placés sur les faces des échantillons permettent de mesurer les températures des échantillons proche de la plaque chaude et proche de la plaque froide afin de remonter aux écarts de température ΔT_1 et ΔT_2 associés aux deux échantillons. La conductivité thermique est obtenue en intégrant la loi de Fourier (équation 1.1) sur l'épaisseur des deux échantillons et vaut :

$$\lambda = \frac{e \Sigma_0}{S (\Delta T_1 + \Delta T_2)} \quad (1.9)$$

Cette méthode est utilisée pour des matériaux pour lesquels les résistances de contact peuvent être négligées par rapport à la résistance du matériau à caractériser, c'est-à-dire principalement les matériaux isolants.

Méthode fluxmétrique

Le principe de cette méthode est le même que celui de la plaque chaude gardée. En effet, cette méthode est basée sur la mesure d'un gradient de température après l'établissement du régime thermique permanent avec une densité de flux unidirectionnel et uniforme dans l'espace. L'échantillon est pris en sandwich entre deux plaques dont les températures sont respectivement imposées à T_1 et T_2 (figure 1.2).

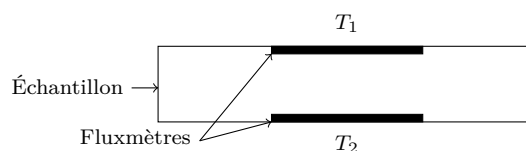


FIGURE 1.2. – Schéma de principe de la méthode fluxmétrique [DK02]

Un gradient thermique est ainsi généré dans l'épaisseur de l'échantillon d'étude et le flux de chaleur le traversant est mesuré dans la partie centrale de l'échantillon afin d'éviter les pertes thermiques. Comme précédemment, la loi de Fourier (équation 1.1) permet de remonter à l'estimation de la conductivité thermique du matériau étudié.

Cette méthode est plus rapide que celle de la plaque chaude gardée (possibilité d'effectuer des mesures toutes les 15 à 30 minutes pour des isolants légers). Cependant, elle possède une

incertitude de mesure plus importante étant donné que son procédé d'étalonnage utilise les mesures sur plaque chaude gardée pour la définition des étalons.

1.1.2.2. Méthodes en régime quasi-établi

Dans le cas des méthodes en régime quasi-établi, le système initialement à l'équilibre thermique est perturbé par un flux de chaleur constant et évolue vers un nouvel état d'équilibre. Le suivi de l'évolution de la température au cours du temps au travers d'une courbe appelée thermogramme permet de remonter aux caractéristiques thermophysiques recherchées comme la conductivité thermique. Ces techniques de caractérisation sont plus rapides que celles en régime permanent mais une bonne connaissance des phénomènes thermiques ayant lieu dans le matériau est nécessaire. Les méthodes en régime quasi-établi peuvent être classées selon la géométrie du matériau étudié.

Méthode du fil chaud

Cette méthode de caractérisation est la méthode de caractérisation la plus utilisée dans l'industrie [Deg94; DK02; Le 98]. Le montage associé à la méthode du fil chaud est présenté sur la figure 1.3.

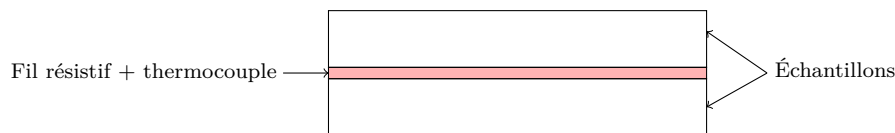


FIGURE 1.3. – Schéma de principe de la méthode du fil chaud

Le matériau à caractériser est disposé autour d'un fil résistif sous forme de deux blocs solides le prenant en sandwich ou de particules entourant le fil résistif dans une cellule. Le système présente une géométrie cylindrique. Au repos, les deux blocs du matériau à étudier sont à l'équilibre thermique à la température T_0 . Le fil résistif est considéré comme une source idéale linéaire, infiniment longue, de capacité thermique nulle et de conductivité thermique infinie. En notant r_0 le rayon de ce fil, une densité de flux linéique constante est émise par effet Joule et elle est notée par la suite $\frac{\sigma}{2\pi r_0}$.

Pendant tout le temps où la perturbation n'a pas atteint les autres faces de l'échantillon, l'hypothèse de milieu semi-infini est valide et le transfert thermique est supposé radial au centre de l'échantillon. La température est mesurée par un thermocouple placé à proximité du fil résistif sur un intervalle de temps où l'hypothèse de milieu semi-infini est vérifiée. En posant $\Delta T(r, t) = T(r, t) - T_0$ (où r est la variable associée au rayon de l'échantillon et t celle associée au temps d'acquisition), l'équation de la chaleur (équation 1.8) s'écrit en coordonnées cylindriques :

$$\frac{1}{\alpha} \frac{\partial \Delta T(r, t)}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial \Delta T(r, t)}{\partial r} \right) \quad (1.10)$$

Les conditions initiales et aux limites associées à la méthode du fil chaud sont les suivantes :

$$\left\{ \begin{array}{l} \Delta T(r, t \leq 0) = 0 \\ \Delta T(r, t > 0) \xrightarrow{r \rightarrow \infty} 0 \\ r \frac{\partial \Delta T(r, t > 0)}{\partial r} \xrightarrow{r \rightarrow \infty} -\frac{\sigma}{2 \pi \lambda} \end{array} \right. \quad (1.11)$$

La troisième équation de la relation 1.11 exprime la conservation du flux thermique sans échauffement observé très loin du fil résistif.

La résolution de ce problème du fil chaud à l'interface entre le matériau à caractériser et le fil (c'est-à-dire en $r = r_0$) aux temps « longs » est alors :

$$\Delta T(r_0, t) = \frac{\sigma}{4 \pi \lambda} \left\{ \ln(t) + \ln \left(\frac{4 \alpha}{r_0^2 e^\gamma} \right) \right\} \quad (1.12)$$

où γ est la constante d'Euler ($\gamma = 0,5772\dots$).

Dans le cas du problème idéal du fil chaud, le thermogramme obtenu à l'aide de l'équation 1.12 est une fonction linéaire en logarithme du temps. L'étude de ce thermogramme permet de remonter à la conductivité thermique λ du matériau étudié (avec la pente) et à la diffusivité thermique α de ce matériau (avec la pente et l'ordonnée à l'origine). En connaissant alors la densité du matériau étudié, il est possible avec la relation 1.2 de remonter à la chaleur spécifique C_p de ce matériau.

Le contact imparfait entre le fil et les échantillons et les effets de bord peuvent augmenter les incertitudes de mesure de la conductivité thermique.

Sondes thermiques

Un instrument nommé sonde thermique [Deg94] générant une source de chaleur à une température T_1 est mis en contact avec le matériau à étudier qui est à une température T_2 . Ce contact est réalisé principalement de façon mécanique ce qui induit des résistances thermiques de contact associées à des défauts d'interface entre la sonde et le matériau étudié. L'exploitation du thermogramme à des « temps longs » permet de remonter à l'effusivité thermique E de l'échantillon à caractériser définie comme :

$$E = \sqrt{\lambda \rho C_p} \quad (1.13)$$

Cette propriété quantifie l'inertie thermique du matériau étudié tout comme la diffusivité thermique.

Il existe plusieurs géométries de sondes (de type cylindrique, sphérique) permettant la caractérisation d'échantillons de géométries variées. Ces sondes présentent l'avantage d'être des instruments compacts donc facilement déplaçables. Les incertitudes liées à la méthode sont essentiellement liées aux défauts de contact sonde/échantillon.

1.1.2.3. Méthodes en régime variable

Les méthodes en régime variable permettent de caractériser les propriétés thermophysiques (diffusivité et effusivité thermique) suite à l'étude d'une perturbation thermique contrôlée du matériau étudié.

La température de l'échantillon étudié est mesurée après l'excitation thermique (tout en connaissant la forme et la durée du signal thermique d'excitation) et l'étude du thermogramme lors du régime thermique variable permet d'identifier la grandeur thermophysique recherchée. Il existe plusieurs méthodes en régime variable qui varient suivant le signal de perturbation thermique (de type périodique, Dirac, aléatoire) et la technologie permettant de mesurer la température de l'échantillon [Deg94 ; Fal95].

Dans cette étude, il a été choisi de caractériser la conductivité thermique des céramiques UO_2 à l'aide de la méthode (indirecte) dite « Flash » en face arrière qui est simple de mise en œuvre et permet des acquisitions rapides.

1.1.3. Principe de la caractérisation indirecte de la conductivité thermique par méthode Flash en face arrière

La méthode Flash a été proposée par Parker et al. [Par+61] en 1961 afin de caractériser de façon non destructive la diffusivité thermique α d'un matériau. Cette méthode de caractérisation peut s'appliquer à différents types de matériaux solides, liquides, conducteurs et isolants. Il est aussi possible à l'aide de cette technique de caractérisation d'évaluer le paramètre α sur un vaste domaine de températures pouvant aller jusqu'à 3000°C .

La figure 1.4 présente le principe d'une mesure de diffusivité thermique par méthode Flash en face arrière.

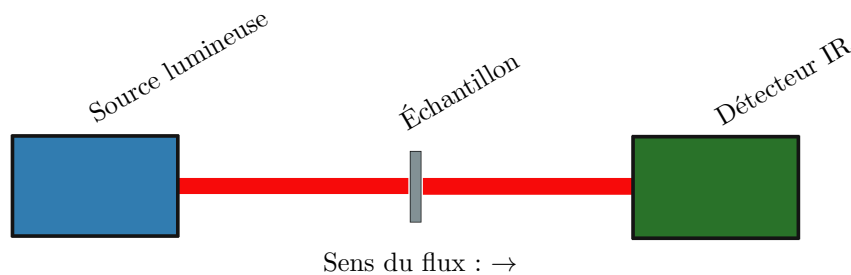


FIGURE 1.4. – Schéma du principe d'une mesure par méthode Flash en face arrière

Le matériau étudié est placé dans une enceinte dont la température est régulée. Une fois la température spécifiée atteinte, la source lumineuse émet un flash lumineux unidirectionnel de courte durée qui vient exciter thermiquement la face de l'échantillon la plus proche de la source. La zone excitée par l'impulsion thermique est petite par rapport à la surface totale de l'échantillon exposée à la source. Sous l'effet de l'impulsion thermique, la chaleur diffuse dans le matériau.

Un détecteur placé en vis-à-vis de la source d'excitation thermique enregistre la température venant de la face qu'il caractérise. Étant donné que le détecteur enregistre le signal sur la face opposée à celle exposée à l'excitation thermique, cette méthode Flash est dite « en face arrière ».

Le signal est par la suite traité afin de déterminer la diffusivité thermique de l'échantillon à l'aide de la réponse temporelle de la température ou thermogramme [HFB17; Hay+05].

Il existe différentes méthodes pour analyser les thermogrammes obtenus. Deux d'entre elles sont présentées dans cette étude : la méthode historique de Parker et la méthode de Cape et Lehman.

1.1.3.1. Méthode de Parker

Parker et al. [Par+61] proposent une méthode de détermination de la diffusivité thermique effective d'un échantillon cylindrique pour un transfert thermique en supposant que :

- le transfert de chaleur est unidirectionnel selon la direction \mathbf{u}_x ,
- l'excitation est considérée comme une impulsion de Dirac en temps et selon l'axe \mathbf{u}_x .
Toute l'énergie est déposée quasi instantanément sur la surface $x = 0$ (face d'entrée),
- la distribution de flux thermique est homogène,
- le système de mesure se trouve dans des conditions adiabatiques.

Suite à une excitation impulsionnelle thermique, le thermogramme associé à la face de l'échantillon la plus proche du détecteur s'exprime de la façon suivante :

$$\Delta T(x, t) = \frac{Q}{\rho C e} \left[1 + 2 \sum_{n=0}^{\infty} \cos\left(\frac{n\pi}{e} x\right) \exp\left(\frac{-n^2 \pi^2 \alpha}{e^2} t\right) \right] \quad (1.14)$$

où $\Delta T(x, t) = T(x, t) - T_0$ (avec T_0 la température du système avant excitation), e est la distance entre les deux faces de l'échantillon, Q l'énergie d'excitation avec laquelle est sollicité l'échantillon lors de la mesure, C la capacité thermique à pression constante de l'échantillon ($C = C_p$ car l'échantillon étudié est solide) et x caractérise la position dans l'échantillon où est évaluée la réponse du système par rapport à la face exposée à l'excitation thermique (la face de l'échantillon soumise à l'excitation lumineuse correspond alors à $x = 0$ et la face proche du détecteur à $x = e$).

En notant $\Delta T_{lim} = \frac{Q}{\rho C e} = T_{lim} - T_0$ où T_0 est la température vers laquelle la température de l'échantillon tend après un temps infini dans des conditions adiabatiques, l'équation 1.14 peut alors s'exprimer comme :

$$\frac{\Delta T(x, t)}{\Delta T_{lim}} = 1 + 2 \sum_{n=0}^{\infty} \cos\left(\frac{n\pi}{e} x\right) \exp\left(\frac{-n^2 \pi^2 \alpha}{e^2} t\right) \quad (1.15)$$

La relation 1.15 évolue de façon monotone de 0 (en $t = 0$) à 1 (lorsque t tend vers l'infini) et vaut $\frac{1}{2}$ lorsque $\frac{\pi^2 \alpha t_{1/2}}{e^2} = 1,38$ (où $t_{1/2}$ est le temps de demi-montée de la réponse temporelle de la température défini tel que $\Delta T(x, t = t_{1/2}) = \frac{1}{2} \Delta T_{lim}$). À partir de l'expression du thermogramme obtenu après caractérisation de la température de la face opposée à celle soumise

à l'excitation thermique (équation 1.15 avec $x = e$), il est possible de remonter à la diffusivité thermique du matériau étudié en mesurant ΔT_{lim} de la façon suivante :

$$\alpha = 0,139 \frac{e^2}{t_{1/2}} \quad (1.16)$$

La diffusivité thermique est déterminée en $t_{1/2}$ car l'erreur induite par le bruit de mesure est minimale en ce point du thermogramme et la fonction de sensibilité de la réponse thermique à la diffusivité thermique du matériau étudié est maximale.

La méthode de Parker permet donc de déterminer la diffusivité thermique dans le cas d'un transfert thermique adiabatique idéal.

D'autres méthodes d'analyse des thermogrammes, comme celle de Cape et Lehman, ont été développées par la suite pour prendre en compte le caractère non idéal des expériences réalisées (pertes thermiques, forme et durée du signal d'excitation).

1.1.3.2. Méthode de Cape et Lehman

Cape et Lehman [CL63 ; DDG15] ont développé une méthode de détermination de la diffusivité thermique pour un échantillon cylindrique de rayon r_0 et d'épaisseur e lors d'un transfert thermique tel que :

- les pertes de chaleur radiales sont prises en compte,
- le transfert de chaleur est axisymétrique et bidimensionnel,
- l'excitation thermique est absorbée de façon uniforme et dans son intégralité sur la surface en $x = 0$.

La résolution analytique de l'équation de chaleur avec les conditions ci-dessus est présentée par Cape et Lehman [CL63] pour des pertes de chaleur et des formes de signal thermique d'entrée diverses et permet de remonter à la valeur de la diffusivité α du matériau étudié.

La méthode Flash est donc une méthode de caractérisation indirecte de la conductivité thermique d'un matériau. Afin de comprendre à quoi correspondent les mesures expérimentales réalisées, il est nécessaire de déterminer les paramètres qui ont un impact sur la conductivité thermique.

1.1.4. Paramètres impactant la conductivité thermique d'une céramique UO_2

Il est classique dans la littérature [BMP96 ; IAE66] de présenter la conductivité thermique d'une céramique UO_2 comme dépendant de la stœchiométrie en oxygène de la céramique UO_2 étudiée, de sa microstructure, de son taux de combustion ainsi que de la température d'étude. L'influence de chacun de ces paramètres est présentée séparément.

1.1.4.1. Effet de la stœchiométrie en oxygène

Le rapport Oxygène/Uranium noté O/U quantifie l'écart à la stœchiométrie en oxygène d'une céramique UO_2 . Une céramique UO_2 est dite stœchiométrique lorsque sa composition est telle que le rapport O/U vaut 2, c'est-à-dire qu'il y a exactement 2 fois plus d'atomes d'oxygène que

d'atomes d'uranium dans la structure cristalline de la céramique. Plus la concentration de défauts ponctuels présents dans le réseau cristallin augmente et plus le rapport O/U s'éloigne de 2.

Le rapport O/U d'une céramique vierge est fixé par la pression partielle d'oxygène, à une température donnée, de l'atmosphère en équilibre avec le matériau lors de sa fabrication.

Lors de l'irradiation des céramiques UO_2 en réacteur (lorsqu'elles sont utilisées comme combustibles nucléaires), la stœchiométrie en oxygène des matériaux irradiés évolue du fait de l'apparition de produits de fission en solution solide consommant les atomes d'oxygène libérés lors de la fission d'uranium (dans le cas des céramiques UO_2) et de la migration de certains produits de fission au sein de la céramique irradiée.

La présence de lacunes d'oxygène dans une céramique UO_2 (soit $O/U \neq 2$) induit une détérioration de sa conductivité thermique.

1.1.4.2. Effet de la microstructure

La présence de défauts ou d'hétérogénéités dans la microstructure entraîne une modification de la conductivité thermique.

Les hétérogénéités (telles que les pores, les joints de grains ou plusieurs phases dans le matériau) agissent comme des obstacles au transfert thermique. La présence de défauts, tels que des impuretés dans la structure cristalline du matériau et des dislocations [Kle58; Den+13], induisent une diminution de la conductivité thermique à basse température [YI03; Zou+02]. L'écart à la stœchiométrie en oxygène permettant de quantifier l'imperfection du réseau cristallin des céramiques étudiées peut être englobé dans les paramètres de la microstructure.

Dans le cas de matériaux monophasiques (comme les céramiques UO_2), l'étude de l'influence de la microstructure sur les propriétés d'un matériau se limite souvent à l'impact du réseau poreux présent dans ce matériau. En effet, la prise en compte de l'impact de la quantité, de la taille, de la distribution et de la répartition spatiale du réseau poreux suffit la plupart du temps à décrire de façon satisfaisante l'impact de la microstructure sur les propriétés mécaniques [Ogu82; RU72] et thermiques [Rhe75; IAE66] du matériau étudié.

1.1.4.3. Effet de la température sur les céramiques vierges

La température est un autre paramètre qui impacte la conductivité thermique d'un matériau. L'équation 1.2 relie la conductivité thermique d'un matériau aux paramètres C_p , ρ et α , qui présentent tous aussi une dépendance thermique :

- C_p dépend de la température (équation 1.4).
- Sous l'effet d'une variation de température, le volume de ce matériau peut se dilater ou se contracter. La masse volumique apparente ρ à une température T donnée (proche de T_0) s'exprime de la façon suivante :

$$\rho(T) = \rho_0 \frac{1}{[1 + \gamma \Delta T]^3} \quad (1.17)$$

avec ρ_0 la masse volumique du matériau à T_0 (température de référence), γ son coefficient

de dilatation thermique linéique et $\Delta T = T - T_0$ la variation de température par rapport à T_0 .

- La diffusivité thermique α quantifie la vitesse de propagation du flux thermique par conduction dans un matériau donné. Or, plus la température est élevée, plus les mécanismes de dispersion de chaleur sont importants ce qui induit donc une diminution de la diffusivité thermique du matériau.

Jusqu'à environ 1500 °C, la conduction dans les céramiques UO_2 est essentiellement réalisée par les phonons (particules associées aux ondes d'agitation thermique des atomes ou des ions constituant le réseau cristallin de l'échantillon étudié). La conductivité thermique de l' UO_2 diminue quand la température augmente [BMP96]. Au-delà de 1500 °C, d'autres phénomènes de transfert thermique sont mis en jeu (transfert radiatif et conduction électronique) induisant une augmentation de la conductivité thermique de l' UO_2 avec la température.

Ainsi, l'impact de la microstructure diffère suivant la température étudiée.

1.1.4.4. Effet de l'irradiation

Le taux de combustion (ou *burn up* en anglais) est un facteur permettant de quantifier l'irradiation subie par un combustible (comme une céramique UO_2) lors de son séjour en réacteur. Dans le cas de céramiques UO_2 , il correspond au pourcentage d'atomes d'uranium ayant subi la fission pendant le séjour des combustibles en réacteur. Il peut aussi s'exprimer selon l'énergie fournie par les réactions nucléaires dont l'unité est le gigawatt-jour par tonne d'uranium dans le cas des combustibles UO_2 notée aussi GWj/TU .

Les phénomènes modifiant la microstructures des céramiques UO_2 lors de l'irradiation sont présentés ci-dessous :

- Le réseau de porosité présent dans les céramiques vierges (ou porosité de fabrication) évolue fortement. La porosité de fabrication qui possède une taille micrométrique diminue fortement en taille et en nombre.
- Des cavités pressurisées et remplies de gaz de fission apparaissent et sont appelées bulles. Deux familles de bulles peuvent être distinguées : celles en position intragranulaire et celles en position intergranulaire. Un exemple de microstructure de céramique UO_2 irradiée possédant ces deux familles de bulles est présenté sur la figure 1.5.

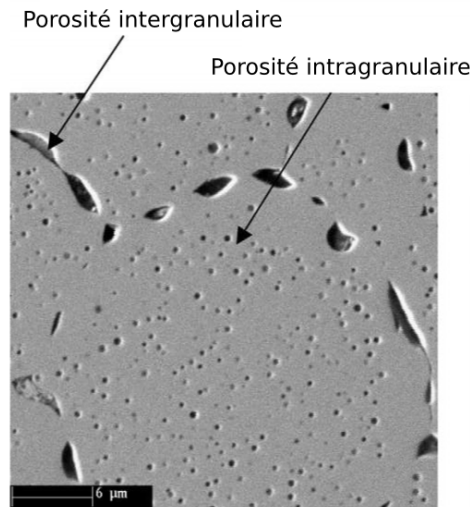


FIGURE 1.5. – Micrographie d’une céramique UO_2 irradiée à 33 GW j/TU et portée à 2000 K pendant 3 h (d’après la figure 2(a) de [Dub+05])

Les bulles intragranulaires présentent une forme sphérique et se localisent à l’intérieur des grains. La taille caractéristique de ces bulles est de l’ordre de quelques nanomètres ($1 - 30 \text{ nm}$) [Lö00 ; RTM91]. La diffusion des gaz de fission vers les joints de grains induit aussi la formation de bulles intergranulaires qui sont de forme lenticulaire et possèdent une taille caractéristique de quelques micromètres [Lö00 ; VMS09 ; KU91]. Une évolution de la taille et de la densité des bulles est observée en fonction de la température de la céramique et du taux de combustion [Lö00 ; KUN93 ; RTM91].

- Des produits des réactions de fission sont créés et peuvent alors former des phases séparées ou se mettre en solution dans la matrice.
- Lors d’une élévation de température en réacteur, la dilatation différentielle de la céramique UO_2 entre son centre et sa périphérie induit des contraintes tangentielles de traction ce qui engendre de la fissuration dans les échantillons [Noi09]. Au cours du séjour d’une céramique UO_2 en réacteur, une fragmentation des joints de grains peut aussi avoir lieu. Ce phénomène est dans certains cas attribué à la surpression dans les bulles de gaz se trouvant aux joints de grains [Pap+07 ; Lem97]. La fragmentation des joints induit l’apparition de fissures à l’échelle des grains.

L’historique d’irradiation des céramiques UO_2 modifie leur microstructure et impacte donc leur comportement thermique.

1.1.4.5. Bilan des paramètres impactant la conductivité thermique

En conclusion, la conductivité thermique d’un matériau dépend de sa microstructure, de son historique d’irradiation et de la température d’étude.

L’effet de la microstructure prend en compte l’effet des hétérogénéités et des défauts de la microstructure (section 1.1.4.2). Pour une céramique vierge, l’effet de la microstructure dépend seulement de la température.

Pour une céramique irradiée, étant donné que le cycle d’irradiation modifie le matériau, la

microstructure évolue selon l'historique de température et d'irradiation auquel elle a été soumise. Or, comme la conductivité thermique est impactée par la microstructure du matériau étudié, son évolution sous irradiation induit aussi une évolution de la conductivité thermique de la céramique.

Nous avons choisi de considérer qu'au premier ordre l'effet de la microstructure sur la conductivité thermique est celui de la porosité. Nous nous limiterons donc dans cette étude à l'étude de l'impact de la porosité sur la conductivité thermique.

Afin de comprendre le lien qui existe entre la porosité et la conductivité thermique des céramiques UO_2 , il est nécessaire de caractériser les pores présents dans les céramiques étudiées.

1.2. Principes de techniques de caractérisation des milieux poreux ou fissurés

1.2.1. Quantification de la porosité à l'aide d'une méthode par immersion dans un liquide

Cette technique de caractérisation consiste à mesurer la porosité accessible à un liquide spécifique dans un matériau. C'est une méthode simple et sans doute une des plus utilisées en géologie [De 02 ; Pin15]. Elle permet de calculer la masse volumique apparente ρ du matériau étudié, sa fraction de porosité totale c_T et de porosité ouverte c_o .

En plongeant l'échantillon dans un récipient rempli du liquide mouillant choisi pour l'étude et de densité ρ_{liq} , le réseau de porosité accessible à ce liquide est rempli. Le liquide est choisi de telle façon qu'il est possible de le supposer parfaitement mouillant : le réseau de porosité accessible correspond alors à celui de l'ensemble des pores ouverts du matériau. Plusieurs mesures sont effectuées sur :

- l'échantillon sec. La masse m_{sec} correspond alors à celle de la matrice UO_2 . De plus, une mesure dimensionnelle de l'échantillon permet de déterminer son volume V_{tot} .
- l'échantillon lorsqu'il est immergé dans le liquide et que son réseau de pores est saturé par ce liquide. Le volume V_{liq} de liquide déplacé par l'échantillon lorsqu'il est immergé est évalué.
- l'échantillon après qu'il ait été extrait du récipient plein de liquide et essuyé. Lors de cette pesée, le réseau de pores ouverts est encore saturé de liquide et la masse $m_{sat,air}$ évaluée correspond à celle de la matrice UO_2 et des pores ouverts.

Dans cette méthode de caractérisation, les pores sont supposés être tous accessibles au liquide utilisé (aux problèmes cinétiques près) ce qui permet alors de déterminer la densité apparente du matériau étudié comme $\rho = \frac{m_{sec}}{V_{tot}}$. À partir de la relation 1.3, la fraction volumique c_T de porosité totale s'exprime alors comme :

$$c_T = 1 - \frac{\rho}{\rho_{100\%}} \quad (1.18)$$

La fraction volumique c_o de porosité ouverte est alors calculée ainsi :

$$c_o = \frac{m_{sat,air} - m_{sec}}{V_{tot} \rho_{liq}} \quad (1.19)$$

1.2.2. Imagerie par microscopie optique

La microscopie optique (ou microscopie photonique) est la plus ancienne des techniques d'imagerie [Rob98]. Cette technique de caractérisation est destructive car des plans 2D (coupes) de la microstructure sont observés à une résolution donnée. Le processus de préparation des surfaces observées est un élément essentiel dans la caractérisation de la microstructure.

Le microscope optique est muni essentiellement de deux lentilles (une lentille de tube et un objectif) qui projettent dans un plan image une représentation de l'objet observé avec un certain grandissement. Cette image peut être observée par l'utilisateur au travers d'un oculaire, ou enregistrée sous forme numérique par une caméra dont l'élément principal est un capteur photosensible.

La résolution des images obtenues dépend du pouvoir de résolution (capacité de séparation des détails d'une image) du microscope utilisé. Elle dépend principalement des caractéristiques de la lentille objectif mais aussi de l'ensemble du dispositif et en particulier de la caméra numérique (taille de pixel, définition, bruit, ...). En pratique, elle est de l'ordre du micromètre du fait de la taille des tâches de diffraction produites par la lumière visible.

Les objets observés sur ces coupes sont donc une vue 2D, à une résolution spécifique, des hétérogénéités présentes dans le matériau étudié suivant le plan de découpe utilisé [Hay73].

1.2.3. Tomographie par absorption des rayons X

La tomographie par absorption de rayons X (aussi appelée tomographie X) est une technique d'imagerie non destructive qui permet d'obtenir des images volumiques d'un échantillon et qui se base sur l'interaction des rayons X avec la matière.

La figure 1.6 présente le principe de la tomographie par absorption de rayons X.

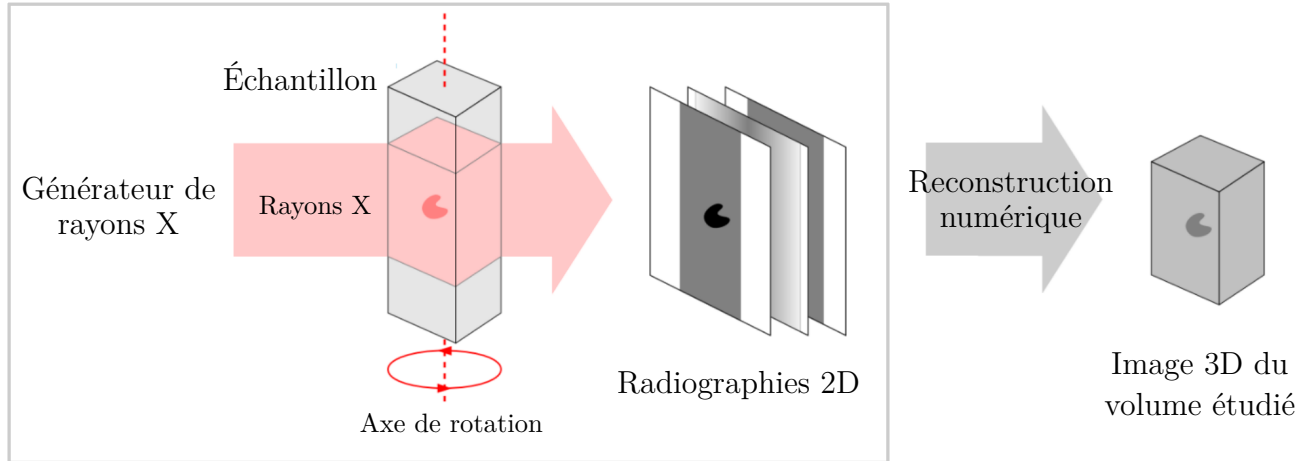


FIGURE 1.6. – Principe de la tomographie à rayons X (d’après la figure 2.2 de [Hos17])

Dans le générateur, un filament est soumis à de hautes températures. La chauffe de ce filament induit l’émission d’électrons qui sont ensuite accélérés puis condensés sur la cible. Les rayons X sont générés lors de l’interaction électrons/cible. En passant au travers de l’échantillon, les rayons X sont absorbés selon une loi de type Beer-Lambert :

$$\frac{I}{I_0} = \exp\left(\int_{s_0}^{s_1} -\mu_{lin}(s) ds\right) \quad (1.20)$$

où $\frac{I}{I_0}$ est le rapport de transmission, c’est-à-dire le rapport d’intensité du rayonnement qui traverse l’échantillon I sur celui en sortie de source I_0 , μ_{lin} est le coefficient d’atténuation linéique, s_0 et s_1 sont les abscisses curvilignes correspondant respectivement aux points d’entrée et de sortie des rayons X dans l’échantillon lors d’une radiographie.

Les rayons X sont par la suite collectés par l’imageur ce qui permet d’obtenir une radiographie de l’échantillon (projection 2D de celui-ci sur le détecteur). Différentes radiographies de l’objet sur 360° sont obtenues soit en faisant tourner l’échantillon sur lui-même soit en faisant tourner le générateur et le détecteur.

Par la suite, une reconstruction numérique d’images 3D est effectuée à l’aide d’algorithmes de reconstruction qui permettent de résoudre le problème inverse suivant : reconstruire le volume d’un échantillon à partir de l’ensemble des radiographies obtenues sur 360° .

La résolution spatiale de l’image dépend principalement de la taille des pixels du détecteur 2D, du facteur de grandissement géométrique (ratio des distance générateur/objet et générateur/détecteur), de l’étendue spatiale de la zone émettant des rayons X sur la cible du générateur, et de la stabilité mécanique du dispositif de rotation de l’échantillon. Elle peut être de l’ordre du micromètre pour un dispositif de laboratoire actuel.

Différents auteurs ont étudié la microstructure de leurs échantillons avec cette technique [VO16] comme des céramiques UO_2 pour évaluer la morphologie des grains de poudres UO_2 [Lec+04], l’orientation des grains [Des+10 ; Rei+13 ; Ric+14 ; Pok+17] et leur taille [Pok+17] ainsi que la porosité présente dans les céramiques [Pok+17].

1.2.4. MEB-FIB

L'imagerie par MEB-FIB est une technique de caractérisation 3D destructive permettant d'étudier la microstructure d'un échantillon. Cette technique repose sur l'interaction entre un faisceau d'électrons ou d'ions et la surface de l'échantillon observé.

Un MEB-FIB est composé d'un microscope électronique à balayage (MEB) équipé d'une sonde ionique focalisée (plus connue sous le sigle FIB pour *Focused Ion Beam* en anglais).

Le FIB permet de projeter un faisceau d'ions focalisés de gallium sur la surface de l'échantillon étudié afin de l'abraser et de révéler des tranches perpendiculaires à la surface du matériau étudié. Le faisceau FIB peut être aussi utilisé pour réaliser des dépôts sur la surface de l'échantillon pour, par exemple, protéger la surface exposée aux faisceaux ou graver localement la surface des échantillons.

Le MEB permet quant à lui d'observer une surface étudiée et utilise le principe d'interaction électron-matière. Il existe plusieurs systèmes de détection MEB suivant le type de particules détectées et la caractérisation souhaitée. Les détecteurs les plus communément utilisés sont :

— le détecteur d'électrons secondaires.

Ces électrons possèdent une faible énergie (de l'ordre de 50 eV). De ce fait, ils ne parcourent qu'une très faible distance dans l'échantillon avant d'être arrêtés. Ils apportent des informations de surface qui sont fortement associées à la topographie de l'échantillon. Un montage dans la lentille objectif de la colonne du MEB (ou « In lens ») permet d'obtenir des images de la surface de meilleure résolution pouvant atteindre le nanomètre.

— le détecteur d'électrons rétrodiffusés ou BSE (*BSE Back-Scattered Electron* en anglais).

Les électrons rétrodiffusés sont des électrons primaires du faisceau incident qui ont interagi de manière quasi-élastique avec les atomes de l'échantillon et sont réémis par ce dernier. Plus l'élément chimique possède un numéro atomique élevé et plus il produit d'électrons rétrodiffusés. Le détecteur BSE permet donc d'obtenir des informations sur les éléments chimiques du matériau étudié en fonction du contraste de phase chimique observé avec ce détecteur. Un montage « In lens » peut aussi être envisagé avec ce type de détecteur.

La figure 1.7 montre le principe du MEB-FIB.

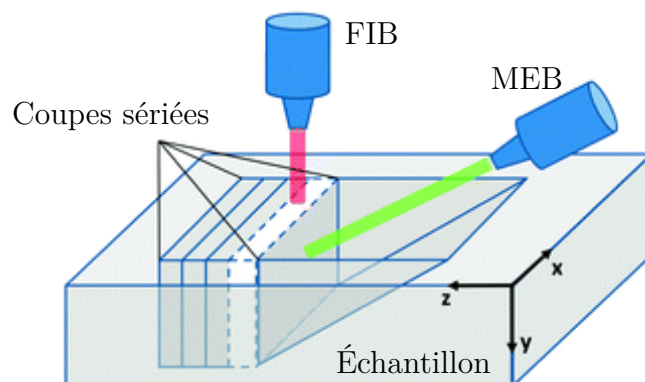


FIGURE 1.7. – Principe du MEB-FIB (image de [Coc+13])

Le balayage synchrone de l'abrasion de la surface par le FIB et de l'observation de la coupe à l'aide du MEB permet de reconstruire l'image 3D de la microstructure.

Différents auteurs ont évalué la microstructure des céramiques avec cette technique de caractérisation :

- Une caractérisation de la structure au centre d'une céramique UO_2 irradiée à 73 GWj/TU a été réalisée par Noirod et al. [NZB18] à l'aide d'une étude par MEB-FIB et en utilisant un détecteur d'électrons rétrodiffusés. Cette analyse a permis d'évaluer entre autres la localisation des bulles de gaz aux frontières des grains.
- Des images MEB-FIB ont été obtenues par Gerczak et al. [Ger+18] sur des céramiques UO_2 commerciales avec un détecteur d'électrons rétrodiffusés afin d'étudier les structures à haut taux de combustion (aussi appelées HBS pour *High Burn Up Structures* car ces transformations microstructurales de la céramique n'apparaissent que pour des taux de combustion supérieurs à 60 GWj/t). Ces images ont permis de montrer des différences de morphologie et de taille des bulles entre celles présentes au centre de la céramique, celles ayant une position radiale intermédiaire et celles à la périphérie.
- L'évolution d'une microstructure UO_2 lors de l'électroréduction de UO_2 en U dans une solution eutectique LiCl - KCl a été étudiée par Brown [Bro+16] à l'aide d'un MEB-FIB équipé d'un détecteur secondaire. La reconstruction 3D de la microstructure de l'électrode d' UO_2 partiellement réduite a permis d'étudier la modification de la porosité et de la tortuosité de cette phase.

La microstructure des céramiques UO_2 a donc déjà été étudiée par MEB-FIB et le détecteur choisi diffère suivant la caractérisation envisagée.

Dans le cas où les techniques de caractérisation utilisées sont des techniques d'imagerie, il est nécessaire par la suite de traiter les images obtenues afin d'extraire les paramètres descripteurs souhaités.

1.3. Traitement d'images numériques

Le traitement d'images est l'ensemble des méthodes et des outils permettant de modifier les propriétés d'une image numérique afin d'améliorer la qualité de l'image étudiée ou d'en extraire des informations spécifiques.

1.3.1. Quelques principes de base

Une image numérique est définie comme une image dont le signal qu'elle décrit est discrétisé sur une grille régulière et de taille finie. L'élément de base pour une image numérique est :

- le pixel pour les images en 2D (contraction de *picture element*),
- le voxel pour les images 3D (pour *volume element*).

La taille de l'élément de base de l'image numérique est liée à la résolution spatiale Res de l'image étudiée (unité de longueur/élément de base) de l'image numérique. En général, lorsque la résolution spatiale Res est plus grande que la taille des éléments de base, les objets présents sur l'image apparaissent « flous ».

Chaque élément de base d'une image numérique est associé à une quantité de mémoire (dont la taille est exprimée en nombre de bits) permettant de décrire la couleur de cet élément. Le

nombre de bits utilisés pour décrire une image est appelé profondeur de codage. Les standards de codage de profondeur les plus utilisés sont :

- le codage 1-bit où l'élément de base peut prendre uniquement 2 ($= 2^1$) valeurs (0 et 1). L'image associée à ce codage est dite binaire.
- le codage 8-bit (ou un octet) où l'élément de base peut être associé à une palette de 256 ($= 2^8$) valeurs de dégradés de gris allant du noir (associé à la valeur 0) au blanc (associé à 255). L'image codée en 8-bits est alors dite « en niveaux de gris ».
- le codage 24-bits où l'information d'un élément de base est codée sur trois octets dont chacun est associé à une des trois couleurs primaires : rouge, vert et bleu. Il existe alors 16 millions de possibilités de couleurs pour l'élément de base. Ce codage permet de décrire les images couleur.

Pour une image, la distribution en fréquence du nombre de pixels en fonction de l'intensité de couleurs de cette image est appelée histogramme. La figure 1.8 présente un exemple d'histogramme pour une image « en niveaux de gris ».

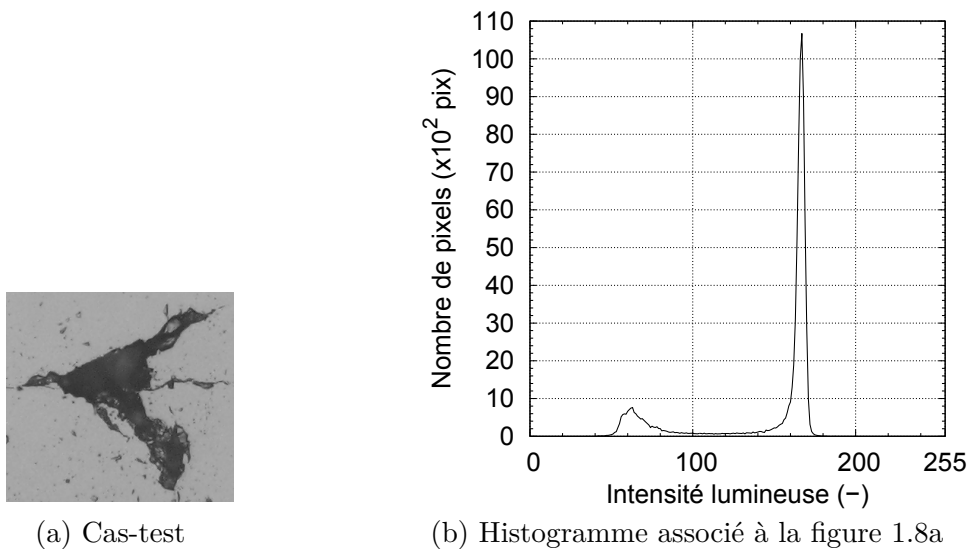


FIGURE 1.8. – Exemple d'histogramme d'une image en niveaux de gris

L'histogramme permet d'obtenir des informations sur la répartition en intensité des éléments de base décrivant l'image étudiée.

Une image numérique peut aussi être vue comme un ensemble de composantes connexes. Une composante connexe est un ensemble d'éléments de base de l'image possédant une relation de voisinage par contact direct. L'étude des relations de voisinage se fait à l'aide d'une grille ou trame qu'il faut définir. Les règles de connexité les plus utilisées sont :

- en 2D : La figure 1.9 présente les deux règles de connexité les plus communément utilisées.



FIGURE 1.9. – Notion du voisinage d'un pixel (en gris)

Dans la grille 4-connexité, deux pixels sont considérés connexes s'ils partagent une arête en commun ce qui correspond aux positions latérales.

Dans la grille 8-connexité, deux pixels sont considérés connexes s'ils partagent un sommet en commun ce qui correspond aux positions latérales et diagonales.

— en 3D : Deux voxels sont considérés comme connexes s'ils partagent une face, une arête ou un sommet dans les grilles respectives 6-connexité, 18-connexité et 26-connexité.

1.3.2. Représentations dans l'espace de Fourier et ondelettes

1.3.2.1. Transformée de Fourier discrète

La transformée de Fourier discrète ou DFT (pour *Discrete Fourier Transform*) est une méthode de décomposition de signal utilisée en traitement d'images afin d'obtenir une représentation fréquentielle des images étudiées.

Soit une fonction 1D périodique f de période L , celle-ci peut être représentée à l'aide d'une série de Fourier en tout point x [CHP09] :

$$f(x) = \sum_{k=-N/2}^{N/2} \widehat{F}_k \exp\left(2i\pi \frac{kx}{L}\right) \quad (1.21)$$

où \widehat{F}_k sont les composantes complexes pour chaque fréquence $\omega_k = 2\pi k$.

La valeur de f sur une grille périodique de taille N à un nœud $x_n = \frac{nL}{N}$ est notée f_n et peut être décrite de la façon suivante [Mun09] :

$$f_n = \sum_{k=0}^{N-1} \widehat{F}_k \exp\left(i\omega_k \frac{n}{N}\right) \quad \text{avec} \quad 0 \leq n \leq N-1 \quad (1.22)$$

Dans cette équation, l'information spatiale associée à la coordonnée du point (et liée au paramètre n) est entièrement représentée dans chaque valeur de f_n contrairement à l'information fréquentielle ω_k qui est distribuée sur l'ensemble des f_n . Cette information fréquentielle n'est donc pas accessible avec cette représentation.

En inversant l'équation 1.22, il est possible d'exprimer la composante \widehat{F}_k dans le domaine fréquentiel comme :

$$\widehat{F}_k = \frac{1}{N} \sum_{n=0}^{N-1} f_n \exp\left(-i\omega_k \frac{n}{N}\right) \quad \text{avec} \quad 0 \leq k \leq N-1 \quad (1.23)$$

Cette équation montre que, dans l'espace fréquentiel, les informations associées à la structure du signal sont entièrement comprises dans la fréquence ω_k et sont accessibles en évaluant chaque composante F_k .

Un raisonnement similaire peut être réalisé en 2D en généralisant le cas 1D présenté ici. Le passage en fréquence à l'aide de la DFT permet donc d'accéder à des caractéristiques fréquentielles des images étudiées.

La transformée de Fourier discrète est principalement utilisée pour caractériser des textures sur des images [AWY97; ZFS01] ou en réduction de bruit d'images [Mun09] (sachant que le bruit d'images est contenu dans les basses fréquences des signaux).

1.3.2.2. Transformée en ondelettes

Tout comme la DFT, la méthode d'ondelettes permet de décomposer un signal à l'aide de fonctions de base ψ dites ondelettes. Toute fonction d'ondelettes ψ complexe vérifie [LY94] :

$$c_\psi = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{|\widehat{\Psi}|^2}{|\omega|} d\omega < \infty \quad \text{et} \quad \int_{-\infty}^{\infty} |\psi(t)|^2 dt < \infty \quad (1.24)$$

où $\widehat{\Psi}$ est la transformée de Fourier de ψ .

Suivant le choix de la fonction d'ondelettes réalisé, la décomposition du signal obtenu sera différente. Il est intéressant de noter que ces fonctions ne sont pas forcément périodiques contrairement aux transformées de Fourier discrètes.

Soit une fonction f continue, sa transformée en ondelettes ψ est définie comme :

$$S(b, a) = \int_{-\infty}^{\infty} \psi'_{a,b}(t) f(t) dt \quad \text{avec} \quad (b \in \mathbb{R}, a > 0) \quad (1.25)$$

où $\psi'_{a,b}$ est le complexe conjugué de $\psi_{a,b}$ défini tel que $\psi_{a,b}(t) = \frac{1}{\sqrt{a}} \psi\left(\frac{t-b}{a}\right)$ où a et b sont les paramètres décrivant respectivement l'échelle de ψ et le décalage temporel de cette analyse.

Les valeurs de S notées $S_{m,n}$ (m et n nombres entiers) sur une grille discrète valent en tout point :

$$S_{m,n} = \int_{-\infty}^{\infty} \psi'_{m,n}(t) f(t) dt \quad (1.26)$$

où $\psi'_{m,n}$ est le complexe conjugué de $\psi_{m,n}$ défini tel que $\psi_{m,n}(t) = a_0^{-m/2} \psi\left(\frac{t-nb_0}{a_0^m}\right)$ avec les paramètres discrétisés $a_0^m = a$ et $nb_0 = b$.

En inversant l'équation 1.26, il est possible de représenter la fonction f à l'aide des transformées en ondelettes discrètes $S_{m,n}$ de la façon suivante :

$$f(t) = k_\psi \sum_m \sum_n S_{m,n} \psi_{m,n}(t) \quad (1.27)$$

où k_ψ est une constante de normalisation.

Cette équation montre que l'utilisation des transformées en ondelettes fait intervenir simul-

tanément des notions de localisation au travers de b_0 et d'échelle au travers de a_0 .

Les transformées en ondelettes sont utilisées en traitement d'images principalement pour compresser des images [Ant91 ; Rio93], les débruiter [Ran+03 ; FB09], détecter des contours [For92] et tatouer les images numériques pour y rajouter par exemple des informations de copyright [Man01 ; Lou10].

1.3.3. Segmentation d'images

Afin d'extraire des caractéristiques particulières d'une image, il est souvent nécessaire de passer par une représentation compacte de l'image étudiée à l'aide d'une étape de segmentation. Cette étape de segmentation consiste à extraire les régions d'intérêt sur une image en considérant soit :

- des régions (ensembles d'éléments de base de l'image possédant les mêmes caractéristiques suivant un critère donné),
- des contours (interfaces filiformes entre deux régions homogènes distinctes selon un critère donné).

Suivant les zones qui sont considérés d'intérêt sur l'image numérique étudiée, le critère de segmentation et l'image segmentée varient.

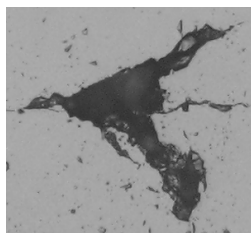
La technique de segmentation la plus couramment utilisée est l'approche globale de segmentation par seuillage. Elle consiste à réaliser une partition de l'image en plusieurs sous-ensembles en se basant sur l'étude de l'histogramme de cette image. À partir de cette étude, une valeur seuil est choisie afin d'extraire les zones d'intérêt de l'image.

Le seuillage le plus courant est le seuillage binaire où la fonction de seuillage S dans le cas d'une image en niveaux de gris s'exprime de la façon suivante [BB08] :

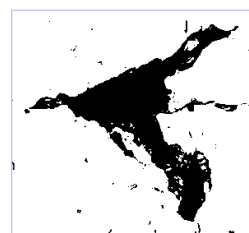
$$S : \quad I(\mathbf{x}) \longrightarrow \begin{cases} 255 & \text{si } I(\mathbf{x}) > I_S \\ 0 & \text{si } I(\mathbf{x}) \leq I_S \end{cases} \quad (1.28)$$

où $I(\mathbf{x})$ est l'intensité d'un élément de base de coordonnée \mathbf{x} et I_S la valeur seuil choisie.

La figure 1.10 présente un exemple de seuillage binaire sur une image en niveaux de gris.



(a) Figure 1.8a



(b) Figure 1.8a binarisée avec $I_S = 106$

FIGURE 1.10. – Exemple de segmentation par seuillage binaire sur une image en niveaux de gris

Cette méthode de segmentation permet alors de réaliser une partition de l'image en régions et contours associés aux niveaux de gris des éléments de base de l'image.

Il existe aussi d'autres méthodes de traitement d'images qui peuvent être scindées en deux familles :

- les opérateurs linéaires qui comprennent tous les opérateurs dont la modification apportée à un élément de base d'une image est une combinaison linéaire de l'intensité lumineuse d'un voisinage de cet élément.
- les opérateurs non linéaires nommés par opposition à la première famille.

1.3.4. Filtrages

Les filtres sont des opérateurs qui ont pour objectif entre autres de débruiter les images étudiées et le filtrage gaussien en fait partie.

1.3.4.1. Filtrage gaussien

L'image filtrée E_{filt} d'une image E avec un filtre gaussien de noyau G en un pixel (x, y) correspond à la convolution :

$$E_{filt}(x, y) = \sum_i \sum_j E(x - i, y - j) G(i, j) \quad (1.29)$$

où le filtre G est défini comme l'approximation discrète de la fonction gaussienne 2D g :

$$\forall (x, y) \in E \quad g(x, y, \sigma) = \frac{1}{2\pi\sigma^2} \exp\left(-\frac{x^2 + y^2}{2\sigma^2}\right) \quad (1.30)$$

où σ est l'écart-type de g et impose la taille du masque (qui correspond à l'étendue des valeurs pouvant être prises par les indices i et j de la relation 1.29).

La figure 1.11 présente des applications de filtres gaussiens.



(a) Figure 1.10b (rappel)

(b) $\sigma = 0,8$

(c) $\sigma = 1,6$

FIGURE 1.11. – Application de filtres gaussiens sur la figure 1.10b

Étant donné que le filtrage gaussien a été réalisé avec la fonction *Gaussian Blur* d'ImageJ (logiciel de traitement d'images développé par les *National Institutes of Health*), la taille du noyau est choisie automatiquement par ImageJ pour que les valeurs aux bords du noyau soient proches de 0 et il n'a pas été possible d'accéder à cette information. Cependant, il est attendu que la taille du noyau dépende de σ .

Il est possible d'observer que plus σ augmente et plus l'image est lissée. Cela induit de plus une forte atténuation des contours de l'image. Le choix de l'écart-type σ du filtre permet donc de déterminer le degré de lissage de la fonction gaussienne.

1.3.4.2. Filtrage médian

L'image filtrée E_{Med} d'une image E par un filtre médian est définie en un pixel (x, y) par :

$$E_{Med}(x, y) = \text{médiane}\{E(n, m) | (n, m) \in S(x, y)\} \quad (1.31)$$

Le filtrage médian remplace donc la valeur du pixel (x, y) par la valeur médiane des pixels évalués dans un voisinage $S(x, y)$. La taille du voisinage évalué dépend de la taille du filtre choisie. Ce filtre permet de réduire le bruit sur les images.

1.3.4.3. Filtrage hessien

Le filtre hessien fait partie des filtres dérivateurs qui permettent d'évaluer les variations locales d'intensité sur une image. Il est basé sur l'analyse de la fonction matricielle hessienne H qui est définie à partir de l'intensité lumineuse I de l'image étudiée comme :

$$H(I) = \begin{pmatrix} \frac{\partial^2 I}{\partial x^2} & \frac{\partial^2 I}{\partial x \partial y} \\ \frac{\partial^2 I}{\partial x \partial y} & \frac{\partial^2 I}{\partial y^2} \end{pmatrix} \quad (1.32)$$

L'étude de cette matrice permet d'obtenir des informations sur la morphologie des objets présents sur l'image. Les valeurs propres et les vecteurs propres de H représentent respectivement les courbures principales de l'image et leurs directions.

Le filtre hessien est souvent utilisé pour détecter l'orientation locale et la morphologie des objets présents sur les images étudiées [Fra+98 ; Tan+09 ; Cha+18].

1.3.5. Morphologie mathématique

La morphologie mathématique est une théorie ensembliste de traitement d'images initiée par G. Matheron [Mat67]. La segmentation par morphologie mathématique [Blo12 ; CC89] passe par la comparaison de l'ensemble d'étude par rapport à un ensemble de géométrie et de taille connues appelé « élément structurant » à l'aide d'opérations morphologiques.

Cet élément structurant peut posséder une forme (carré, cercle, triangle ...) et une taille quelconques. L'image est parcourue à l'aide de cet élément structurant B ; le centre de B est placé en chaque pixel et la relation donnée par l'opérateur morphologique utilisé est vérifiée.

1.3.5.1. Opérateurs élémentaires de morphologie mathématique

Considérons un ensemble I dans l'espace \mathbb{R}^2 en niveaux de gris et B un élément structurant. Les opérateurs de base en morphologie mathématique sont les suivants :

- Érosion morphologique : L'ensemble érodé de l'ensemble I par B est défini de la façon suivante :

$$(I \ominus B)(x, y) = \min_{(u,v) \in B} \left\{ I(x + u, y + v) - B(u, v) \right\}$$

- Dilatation morphologique : De façon analogue, il est possible de définir l'ensemble induit par la dilatation de I par B ainsi :

$$(I \oplus B)(x, y) = \max_{(u,v) \in B} \left\{ I(x + u, y + v) + B(u, v) \right\}$$

Ces opérateurs correspondent respectivement à la soustraction et l'addition de Minkowski [Min89] en remplaçant B par son transposé $-B$.

La figure 1.12 présente un exemple d'application de ces deux opérateurs.

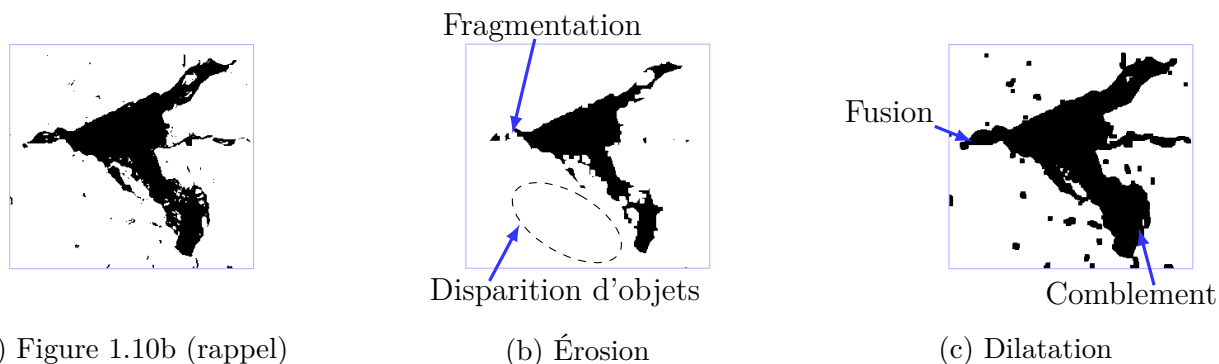


FIGURE 1.12. – Application d'opérations élémentaires de base sur la figure 1.10b avec un élément structurant carré de 2 pixels de côté

L'érosion consiste à « amincir » les objets présents sur l'image (figure 1.12b) ; de ce fait, des objets peuvent disparaître ou être fragmentés. La dilatation consiste quant à elle à « grossir » la taille des objets de l'image, ce qui peut entraîner la fusion d'objets ou le comblement d'espaces vides (figure 1.12c).

Étant donné que ces opérateurs de base ne conservent pas la forme et la taille des objets présents sur l'image, il est fréquent d'utiliser des combinaisons de ces opérateurs élémentaires :

- Fermeture morphologique : La fermeture d'un ensemble correspond à la succession d'une dilatation et d'une érosion effectuées avec le même élément structurant :

$$I \bullet B = (I \oplus B) \ominus B$$

- Ouverture morphologique : De manière analogue à la fermeture, un ensemble ouvert est produit par l'application d'une érosion puis d'une dilatation tout en utilisant le même élément structurant :

$$I \circ B = (I \ominus B) \oplus B$$

La figure 1.13 présente une application de ces deux opérateurs élémentaires sur une image.

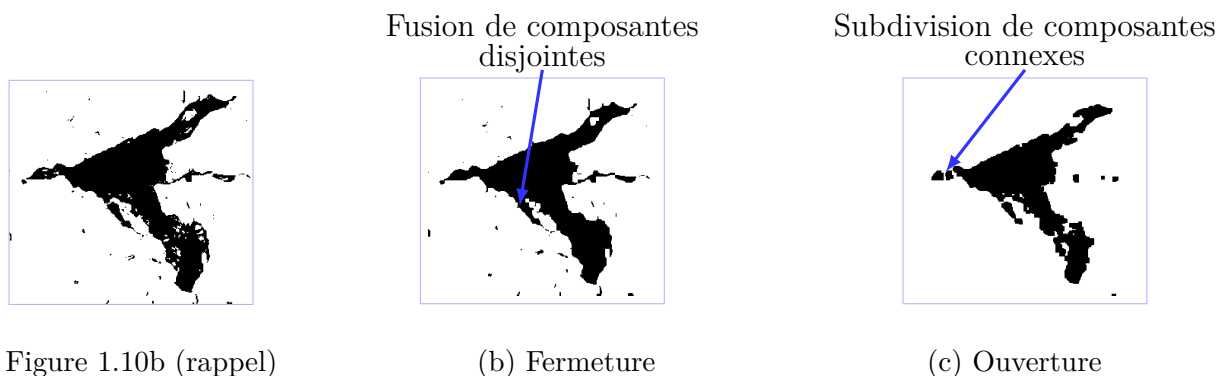


FIGURE 1.13. – Application de la fermeture et de l'ouverture morphologiques sur la figure 1.10b avec un élément structurant B carré de 2 pixels de côté

La figure 1.10b montre que la fermeture induit un comblement des trous plus « petits » et soude les objets « proches ». La notion de taille et de proximité des objets est directement déterminée à l'aide de l'élément structurant avec lequel la fermeture est effectuée. En effet, lorsque la distance entre deux objets sur l'image I est plus petite que la taille de l'élément structurant, alors cet opérateur comble l'espace entre les deux objets. Deux composantes séparées sur l'image seront alors décrites comme un seul ensemble après l'application de l'opérateur fermeture (voir figure 1.13b).

Lorsque la taille des objets étudiés est plus petite que celle de B , l'ouverture entraîne un adoucissement des contours et une possible disparition des objets plus petits que l'élément structurant utilisé induisant alors la séparation d'un objet connexe en plusieurs composantes (figure 1.13c).

Ces opérateurs permettent d'avoir un meilleur respect de la morphologie des objets présents sur l'image que la dilatation et l'érosion.

À partir des opérateurs morphologiques précédents, il est possible de définir une transformation d'images très communément utilisée en analyse d'images : la squelettisation.

1.3.5.2. Squelettisation

Le squelette d'un objet dans un espace continu est défini comme l'ensemble des points constituant cet objet qui sont situés à égale distance d'au moins deux points de la frontière de l'ensemble d'intérêt. Coster et Chermant [CC89] ont donné en 1989 une définition plus rigoureuse du squelette en passant par un type de relation de voisinage qui décrit alors un ensemble topologique appelé boule. Soit le point x dans l'ensemble I , une boule de centre x et de rayon r est définie comme l'ensemble des points y appartenant à I dont la distance à x vaut exactement r .

Le squelette d'un objet se définit alors comme l'ensemble des centres des boules B de rayon maximal contenues dans I :

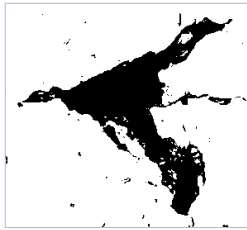
$$u \in Sq(I) \quad \Leftrightarrow \quad \exists (v_1, v_2) \in \delta I^2 \text{ et } v_1 \neq v_2, \quad d(u, \delta I) = d(u, v_1) = d(u, v_2)$$

où $d(i, k)$ est la distance euclidienne entre les points i et k .

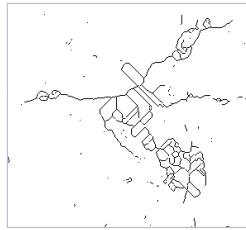
L'ensemble des points u appartenant au squelette $Sq(I)$ de l'ensemble I contient les points qui

sont à équidistance des contours δI de cet ensemble. Cette transformation réduit l'information de l'ensemble I à un ensemble de courbes définissant le squelette. Cependant, le squelette et I gardent les mêmes propriétés topologiques.

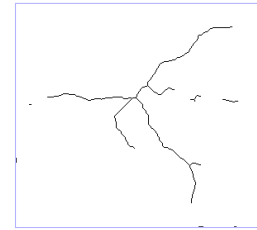
La figure 1.14 présente un exemple de squelettisation sur une image.



(a) Figure 1.10b (rappel)



(b) Squelette de la figure 1.10b



(c) Squelette de la figure 1.13b

FIGURE 1.14. – Exemples de squelettisation

Il est possible d'observer que le squelette de la figure 1.14c est plus représentatif de l'image étudiée que celui de la figure 1.14b. Cela s'explique par le fait que la squelettisation est sensible aux variations de forme de l'ensemble.

Ainsi, comme l'image après fermeture (figure 1.13b) possède des contours plus lisses que celle de la figure 1.10b ainsi que moins de trous dans l'ensemble noir, le squelette obtenu présente moins de « barbules » qui peuvent être décrits comme des artefacts reliant la forme générale de l'ensemble I (qui peut aussi être appelée axe du squelette) aux aspérités de contour. La présence de ces artefacts introduit donc un biais lors de l'identification du squelette.

Il est donc nécessaire de les éliminer par des transformations d'« ébarbulation » (en réalisant par exemple une opération de fermeture au préalable sur l'image) tout en gardant à l'esprit qu'une information utile peut être éliminée lors de ces transformations de traitement. Les transformations d'« ébarbulation » sont complexes et une réflexion doit être effectuée au préalable pour trouver un compromis entre informations utiles et perte d'information.

1.3.6. Stéréologie

La stéréologie est une approche mathématique qui a pour but de déterminer des paramètres géométriques sur un espace de dimension donnée à partir d'informations obtenues à une dimension inférieure. Cette science se base sur des données statistiques.

Du fait que la plupart du temps, les caractérisations sont réalisées en 2D sur des microstructures 3D, les relations stéréologiques permettent de faire le lien entre les données obtenues et les propriétés 3D du matériau étudié [DeH62; Cru97].

Les approches stéréologiques utilisées dans cette étude seront présentées par la suite.

1.4. Évaluation des propriétés thermiques d'un matériau hétérogène par homogénéisation

Un matériau hétérogène est constitué de plusieurs phases qui sont caractérisées par des propriétés physiques distinctes.

Il existe différents types de matériaux hétérogènes suivant leur microstructure. Les propriétés physiques et la composition d'un matériau hétérogène peuvent varier de manière continue dans

tout le volume du matériau (comme par exemple des matériaux ayant subi un traitement induisant des gradients de composition [Sor+06 ; Hua+05]) ou elles peuvent être considérées comme uniformes dans des sous-domaines (comme par exemple les matériaux constitués d'une matrice contenant des inclusions).

Dans cette étude, une inclusion est définie comme un objet connexe possédant une valeur de conductivité thermique constante sur tout son volume et différente de celle de la matrice. En plus de ses propriétés thermiques, elle est caractérisée par sa morphologie et son orientation dans le matériau. Une phase d'inclusions est définie quant à elle comme l'ensemble des inclusions présentes dans un matériau ayant la même morphologie, orientation et valeur de conductivité thermique. Un matériau de type matrice/inclusions est alors constitué d'une phase continue de matrice et de plusieurs phases d'inclusions.

1.4.1. Démarche générale d'une méthode d'homogénéisation

L'homogénéisation est une technique de changement d'échelle permettant l'évaluation d'une propriété physique macroscopique d'un matériau hétérogène à partir des caractéristiques physiques et géométriques des phases présentes dans ce matériau.

Un matériau hétérogène peut être considéré comme macroscopiquement homogène (ou statistiquement homogène) sous certaines conditions. La figure 1.15 permet d'illustrer la notion de matériau macroscopiquement homogène dans le cas d'un matériau constitué d'une matrice et de plusieurs phases d'inclusions.

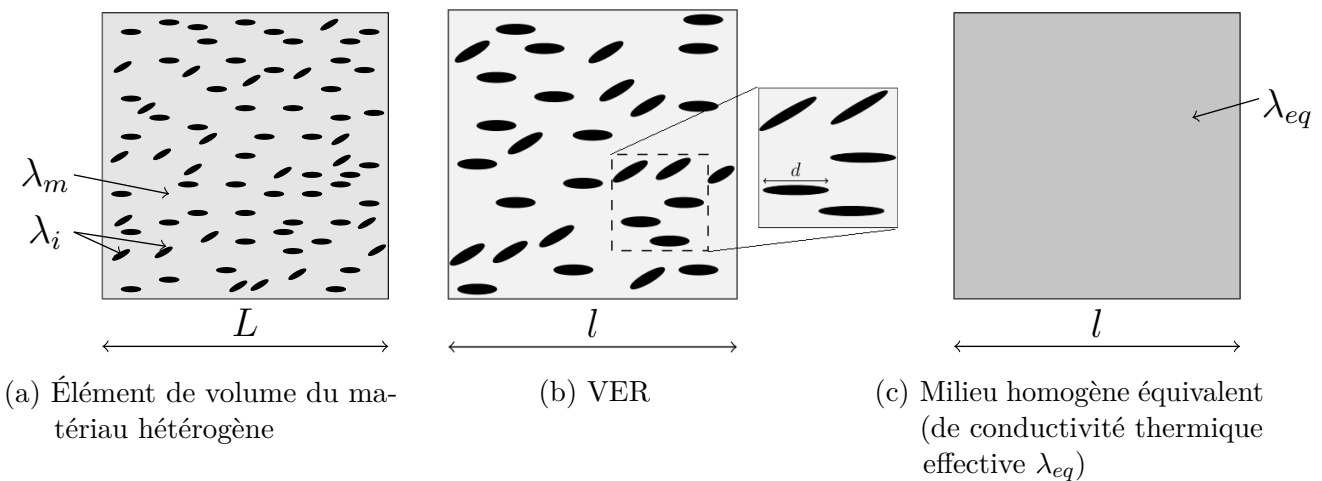


FIGURE 1.15. – Notion de séparation d'échelles pour un matériau hétérogène constitué d'une matrice (de conductivité thermique λ_m) et d'une phase d'inclusions (de conductivité thermique λ_i)

Il est possible d'étudier un matériau hétérogène par homogénéisation lorsque la dimension l du volume étudié est significativement plus petite que la dimension caractéristique L de la structure étudiée constituée de matériau hétérogène (ou plus précisément des variations spatiales de ses conditions de chargement) et qu'il y a séparation d'échelles entre la dimension du volume étudié et la dimension d caractéristique des hétérogénéités, soit $d \ll l \ll L$ (figure 1.15).

Dans ce cas, le volume étudié est considéré comme représentatif et est alors appelé volume élémentaire représentatif (VER). Le milieu peut alors être considéré comme statistiquement homogène. Le choix du VER est tel que les caractéristiques globales du matériau (comme les fractions volumiques des différentes phases, leur orientation et leur morphologie) sont les mêmes dans le VER quel que soit l'endroit dans le matériau d'où est extrait le VER.

Le volume V du VER est constitué de $p + 1$ phases (celle de la matrice m et $1 \dots p$ phases d'inclusions). Dans la notation indicielle, la phase de la matrice est notée comme la phase $p + 1$. Les phases du VER sont homogènes et occupent des domaines V_r disjoints et complémentaires de V (avec $r \in [1, p + 1]$). La description de ces phases passe par l'utilisation des fonctions caractéristiques ν_r (avec $r \in [1, p + 1]$) définies comme :

$$\forall \mathbf{x} \in V, \quad \forall r \in [1, p + 1], \quad \nu_r(\mathbf{x}) = \begin{cases} 1 & \text{si } \mathbf{x} \in V_r \\ 0 & \text{si } \mathbf{x} \notin V_r \end{cases} \quad (1.33)$$

Ces fonctions vérifient :

$$\forall \mathbf{x} \in V, \quad \sum_{r=1}^{p+1} \nu_r(\mathbf{x}) = 1 \quad (1.34)$$

D'où, en notant $\boldsymbol{\lambda}_r$ les conductivités thermiques locales des différentes phases, le tenseur local de conductivité thermique en tout point $\mathbf{x} \in V$ est défini comme $\boldsymbol{\lambda}(\mathbf{x}) = \sum_{r=1}^{p+1} \nu_r(\mathbf{x}) \boldsymbol{\lambda}_r$.

Les fractions volumiques c_r des différentes phases sont définies par :

$$\forall \mathbf{x} \in V, \quad \forall r \in [1, p + 1], \quad \frac{1}{|V|} \int_V \nu_r(\mathbf{x}) dV_x = c_r \quad (1.35)$$

On retrouve bien la propriété $\sum_{r=1}^{p+1} c_r = 1$ en combinant les équations 1.34 et 1.35.

Pour un matériau macroscopiquement homogène, les propriétés thermiques de ce matériau peuvent être obtenues par une démarche d'homogénéisation. Le comportement du matériau est évalué sur le VER et la grandeur évaluée sur ce milieu est appelée la conductivité thermique effective (aussi appelée conductivité équivalente, globale, apparente, efficace ou homogénéisée) [QW87].

Lorsque l'approche par homogénéisation n'est pas possible, une description microscopique est alors à privilégier pour la détermination des propriétés de ce type de matériau (présence de gradients de propriétés dans le matériau, fissuration, ...) [Whi69].

Pour la suite, on pose $(\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_y, \mathbf{u}_z)$ la base cartésienne de l'espace.

1.4.1.1. Démarche par homogénéisation

Le but d'une démarche par homogénéisation est de définir un milieu homogène équivalent au matériau hétérogène dont la réponse globale est identique à celle du VER lorsque le VER et le milieu homogène équivalent sont soumis aux mêmes sollicitations. La démarche de l'homogénéisation se déroule en trois étapes :

1. la représentation, qui consiste à décrire le VER du matériau hétérogène étudié (sa composition, la répartition des phases et leurs propriétés),

2. la localisation, qui consiste à analyser la réponse mécanique du VER (conditions aux limites et relation entre champ microscopique et macroscopique),
3. l'homogénéisation, qui consiste à déterminer l'expression du comportement du milieu homogène équivalent.

Représentation

Lors de l'étape de représentation, la description du milieu hétérogène étudié est réalisée.

Il a été choisi de présenter cette étape en considérant par la suite un VER en lien avec l'étude réalisée ici. Ce VER est constitué d'une matrice de conductivité thermique λ_m et de $1 \dots p$ phases d'inclusions sphéroïdales représentant une famille d'inclusions de conductivité thermique λ_k où $k \in [1, \dots, p]$. Une représentation de ce VER est donnée sur la figure 1.15b.

Les phases des inclusions présentent des orientations différentes. L'orientation d'une inclusion est donnée par la position de la base locale $(\mathbf{u}_1, \mathbf{u}_2, \mathbf{u}_3)$ liée à l'inclusion sphéroïdale étudiée par rapport à la base cartésienne $(\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_y, \mathbf{u}_z)$ avec \mathbf{u}_3 comme axe de symétrie de révolution du sphéroïde. Le changement de bases de $(\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_y, \mathbf{u}_z)$ à $(\mathbf{u}_1, \mathbf{u}_2, \mathbf{u}_3)$ est réalisé à l'aide des angles d'Euler (figure 1.16).

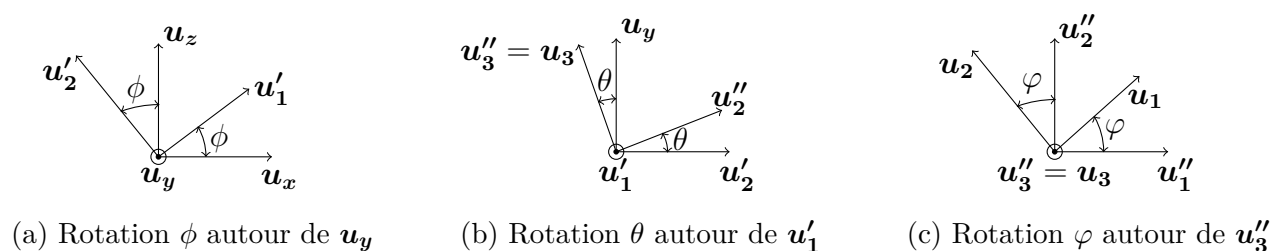


FIGURE 1.16. – Définition des angles d'Euler

Les angles d'Euler sont définis comme :

- $\phi = (\mathbf{u}_x, \mathbf{u}'_1)$ est l'angle de rotation autour de l'axe \mathbf{u}_y donnant la base intermédiaire $(\mathbf{u}'_1, \mathbf{u}'_2, \mathbf{u}_y)$,
- $\theta = (\mathbf{u}_y, \mathbf{u}''_3)$ est l'angle de rotation autour de l'axe \mathbf{u}'_1 donnant la base intermédiaire $(\mathbf{u}'_1, \mathbf{u}'_2, \mathbf{u}''_3)$,
- $\varphi = (\mathbf{u}'_1, \mathbf{u}_1)$ est l'angle de rotation autour de l'axe \mathbf{u}''_3 donnant la base locale liée à l'ellipsoïde $(\mathbf{u}_1, \mathbf{u}_2, \mathbf{u}_3)$ (d'où $\mathbf{u}''_3 = \mathbf{u}_3$).

Comme l'inclusion étudiée est sphéroïdale, ses propriétés sont invariantes par rotation autour de l'axe \mathbf{u}_3 (axe de symétrie de révolution du sphéroïde) et elles ne dépendent donc pas de l'angle φ .

L'axe de symétrie de révolution $\mathbf{u}_3(\theta_k, \phi_k)$ de la phase d'inclusions $k \in [1, p]$ peut être exprimé dans le repère cartésien comme (voir figure 1.16) :

$$\mathbf{u}_3(\theta_k, \phi_k) = \sin \theta_k \sin \phi_k \mathbf{u}_x + \cos \theta_k \mathbf{u}_y - \sin \theta_k \cos \phi_k \mathbf{u}_z \quad (1.36)$$

La distribution angulaire d'une phase d'inclusions $k \in [1, p]$ est alors définie par deux angles (ϕ_k, θ_k) .

La fonction $W(\theta, \phi)$ de densité de probabilité associée à la distribution angulaire des inclusions correspond à la probabilité que des inclusions présentes dans la microstructure étudiée présentent une distribution angulaire (θ, ϕ) et elle est choisie comme vérifiant la condition $\int_0^\pi \int_0^{2\pi} W(\theta, \phi) \sin \theta d\theta d\phi = 1$ [Dua+06] avec $\theta = [0, \pi]$ et $\phi = [0, 2\pi]$.

Par la suite, il a été choisi de considérer que toutes les phases d'inclusions présentent une même valeur de conductivité thermique λ_i (soit $\forall k \in [1, p], \lambda_k = \lambda_i$). En notant respectivement a_k et b_k le demi grand-axe et le demi petit-axe des inclusions sphéroïdales d'une phase k (où $k \in [1, p]$), nous définissons le facteur de forme ω_k associé à une phase comme $\omega_k = \frac{b_k}{a_k}$. Nous avons choisi de considérer que toutes les phases présentent le même facteur de forme (soit $\forall k \in [1, p], \omega_k = \omega$). Il est supposé que le matériau étudié et ses propriétés présentent une symétrie isotrope transverse ayant pour axe de révolution \mathbf{u}_y soit la densité de probabilité d'orientations dépend uniquement de l'angle θ . Dans ce cas, la densité de probabilité d'orientations ne dépend pas alors de l'angle ϕ , soit $W(\theta, \phi) = W(\theta)$.

Dans la suite de ce document, l'impact des sphéroïdes sur la conductivité thermique effective est présenté en étudiant l'influence de la morphologie et la distribution spatiale de ces inclusions.

Localisation

La phase de localisation consiste à analyser le comportement du VER sous diverses sollicitations. Il s'agit donc, en thermique, de déterminer le flux de chaleur local $\boldsymbol{\sigma}$ et le gradient de température local $\mathbf{e} = -\nabla T$ qui est induit dans le VER par un chargement imposé aux bords du volume. Les conditions aux limites peuvent être de type :

— flux de chaleur homogène σ_0 aux bords ∂V de l'élément de volume :

$$\forall \mathbf{x} \in \partial V, \quad \boldsymbol{\sigma}(\mathbf{x}) \cdot \mathbf{n}(\mathbf{x}) = \sigma_0 \cdot \mathbf{n}(\mathbf{x}) \quad (1.37)$$

où $\mathbf{n}(\mathbf{x})$ est le vecteur unitaire normal à ∂V en \mathbf{x} .

— gradient de température homogène \mathbf{e}_0 homogène aux bords de l'élément de volume :

$$\forall \mathbf{x} \in \partial V, \quad T(\mathbf{x}) = -\mathbf{e}_0 \cdot \mathbf{x} \quad (1.38)$$

Il est supposé qu'il n'y a pas de source de chaleur dans le système étudié, que le transfert thermique se fait uniquement par conduction dans le milieu et que le système a atteint le régime stationnaire. La formulation du problème peut se faire alors de deux façons différentes : en formulation forte ou en formulation faible (appelée aussi formulation variationnelle) en se basant sur une caractérisation énergétique du milieu.

Formulation forte

L'équation de la chaleur s'écrit en tout point \mathbf{x} du volume V :

$$\text{div} \boldsymbol{\sigma}(\mathbf{x}) = 0 \quad (1.39)$$

On peut écrire le comportement local en thermique linéaire stationnaire (loi de Fourier, voir équation 1.1) pour des petites variations de température :

$$\boldsymbol{\sigma}(\mathbf{x}) = \boldsymbol{\lambda}(\mathbf{x}) \mathbf{e}(\mathbf{x}) \iff \mathbf{e}(\mathbf{x}) = \mathbf{R}(\mathbf{x}) \boldsymbol{\sigma}(\mathbf{x}) \quad (1.40)$$

où $\boldsymbol{\lambda}$ et \boldsymbol{R} sont les tenseurs d'ordre 2 symétriques et positifs donnant respectivement la conductivité thermique locale et la résistivité thermique locale du matériau. Ces deux tenseurs sont inverses l'un de l'autre, soit pour tout point \boldsymbol{x} du volume V : $(\boldsymbol{\lambda R})(\boldsymbol{x}) = \boldsymbol{I}$ (avec \boldsymbol{I} le tenseur identité d'ordre 2). La conductivité de cet élément de volume n'est cependant pas homogène mais varie spatialement de sorte que le champ de température est inconnu.

Dans le cas où un gradient de température \boldsymbol{e}_0 est imposé aux bords du volume, définissons le gradient de température macroscopique $\bar{\boldsymbol{e}}$ comme :

$$\bar{\boldsymbol{e}} = \frac{1}{|V|} \int_V \boldsymbol{e}(\boldsymbol{x}) dV \quad (1.41)$$

En utilisant $\boldsymbol{e} = -\nabla T$, le théorème de la divergence ($\int_V [-\nabla T(\boldsymbol{x})] dV = -\int_{\partial V} T(\boldsymbol{x}) \cdot \boldsymbol{n}(\boldsymbol{x}) dS$) et les conditions homogènes aux bords, on obtient :

$$\bar{\boldsymbol{e}} = \boldsymbol{e}_0 \quad (1.42)$$

On définit alors le flux de chaleur macroscopique $\bar{\boldsymbol{\sigma}}$ comme :

$$\bar{\boldsymbol{\sigma}} = \frac{1}{|V|} \int_V \boldsymbol{\sigma}(\boldsymbol{x}) dV \quad (1.43)$$

De façon analogue, en s'intéressant à l'approche duale en imposant un flux thermique homogène $\boldsymbol{\sigma}_0$ aux bords du volume, on définit les grandeurs macroscopiques (équations 1.41 et 1.43) et on obtient :

$$\bar{\boldsymbol{\sigma}} = \boldsymbol{\sigma}_0 \quad (1.44)$$

Suivant les conditions imposées, la détermination des champs locaux passe par la résolution du système :

$$\operatorname{div} \boldsymbol{\sigma}(\boldsymbol{x}) = 0, \quad \boldsymbol{\sigma}(\boldsymbol{x}) = \boldsymbol{\lambda}(\boldsymbol{x}) \boldsymbol{e}(\boldsymbol{x}), \quad \boldsymbol{e}(\boldsymbol{x}) = -\nabla T(\boldsymbol{x}), \quad \forall \boldsymbol{x} \in \partial V, T(\boldsymbol{x}) = -\bar{\boldsymbol{e}} \cdot \boldsymbol{x} \quad (1.45)$$

ou :

$$\operatorname{div} \boldsymbol{\sigma}(\boldsymbol{x}) = 0, \quad \boldsymbol{\sigma}(\boldsymbol{x}) = \boldsymbol{\lambda}(\boldsymbol{x}) \boldsymbol{e}(\boldsymbol{x}), \quad \boldsymbol{e}(\boldsymbol{x}) = -\nabla T(\boldsymbol{x}), \quad \forall \boldsymbol{x} \in \partial V, \boldsymbol{\sigma}(\boldsymbol{x}) \cdot \boldsymbol{n}(\boldsymbol{x}) = \bar{\boldsymbol{\sigma}} \cdot \boldsymbol{n}(\boldsymbol{x}) \quad (1.46)$$

Les problèmes étudiés sont linéaires ce qui signifie que les champs locaux \boldsymbol{e} (respectivement $\boldsymbol{\sigma}$) dépendent alors linéairement du champ macroscopique imposé $\bar{\boldsymbol{e}}$ (respectivement $\bar{\boldsymbol{\sigma}}$). On peut alors définir, dans le cas où $\bar{\boldsymbol{e}}$ est imposé, le tenseur de localisation d'ordre 2 des champs \boldsymbol{e} noté \boldsymbol{A} et qui est tel que :

$$\forall \boldsymbol{x} \in V, \quad \boldsymbol{e}(\boldsymbol{x}) = \boldsymbol{A}(\boldsymbol{x}) \bar{\boldsymbol{e}} \quad (1.47)$$

De la même façon, dans le cas où $\bar{\boldsymbol{\sigma}}$ est imposé, on introduit \boldsymbol{B} le tenseur (d'ordre 2) de concentration des flux de chaleur tel que :

$$\forall \boldsymbol{x} \in V, \quad \boldsymbol{\sigma}(\boldsymbol{x}) = \boldsymbol{B}(\boldsymbol{x}) \bar{\boldsymbol{\sigma}} \quad (1.48)$$

Dans le cas où $\bar{\mathbf{e}}$ est imposé, on montre en combinant l'équation 1.47 avec la relation $\bar{\mathbf{e}} = \mathbf{e}_0$ que le tenseur de localisation macroscopique $\bar{\mathbf{A}}$ vérifie $\bar{\mathbf{A}} = \mathbf{I}$. De façon analogue, on montre que $\bar{\mathbf{B}} = \mathbf{I}$ lorsque $\bar{\boldsymbol{\sigma}}$ est imposé.

Formulation variationnelle

La formulation variationnelle est une autre formulation mathématique du problème basée sur des considérations énergétiques. L'évaluation de la propriété étudiée passe par un problème de minimisation d'une certaine énergie.

Nous définissons pour la suite l'ensemble $\mathcal{A}(\bar{\mathbf{e}})$ désignant l'ensemble des champs de vecteur $\tilde{\mathbf{e}}$ qui dérivent d'un champ de température et $\mathcal{B}(\bar{\boldsymbol{\sigma}})$ l'ensemble des champs de flux de chaleur admissibles qui satisfont respectivement :

$$\begin{cases} \mathcal{A}(\bar{\mathbf{e}}) = \{ \tilde{\mathbf{e}} : \exists \tilde{T} \text{ tel que } \tilde{\mathbf{e}} = -\nabla \tilde{T} ; \forall \mathbf{x} \in \partial V, T(\mathbf{x}) = -\bar{\mathbf{e}} \cdot \mathbf{x} \} \\ \mathcal{B}(\bar{\boldsymbol{\sigma}}) = \{ \tilde{\boldsymbol{\sigma}} : \text{div} \tilde{\boldsymbol{\sigma}} = 0; \forall \mathbf{x} \in \partial V, \tilde{\boldsymbol{\sigma}}(\mathbf{x}) \cdot \mathbf{n}(\mathbf{x}) = \bar{\boldsymbol{\sigma}} \cdot \mathbf{n}(\mathbf{x}) \} \end{cases} \quad (1.49)$$

Dans le cas où un gradient de température est imposé aux bords de l'élément de volume, on note \mathbf{e} le champ local qui est solution du problème 1.45 et qui vérifie donc la relation 1.40. Remarquons que le champ \mathbf{e} appartient à l'ensemble $\mathcal{A}(\bar{\mathbf{e}})$. Soit $\tilde{\mathbf{e}}$ un champ de vecteur admissible tel que $\tilde{\mathbf{e}} \in \mathcal{A}(\bar{\mathbf{e}})$, étudions le signe du terme suivant :

$$\begin{aligned} \int_V \tilde{\mathbf{e}} \boldsymbol{\lambda} \tilde{\mathbf{e}} dV - \int_V \mathbf{e} \boldsymbol{\lambda} \mathbf{e} dV &= \int_V (\tilde{\mathbf{e}} - \mathbf{e}) \boldsymbol{\lambda} (\tilde{\mathbf{e}} - \mathbf{e}) dV + 2 \int_V \tilde{\mathbf{e}} \boldsymbol{\lambda} \mathbf{e} dV - 2 \int_V \mathbf{e} \boldsymbol{\lambda} \mathbf{e} dV \\ &= \int_V (\tilde{\mathbf{e}} - \mathbf{e}) \boldsymbol{\lambda} (\tilde{\mathbf{e}} - \mathbf{e}) dV + 2 \int_V (\tilde{\mathbf{e}} - \mathbf{e}) \boldsymbol{\lambda} \mathbf{e} dV \end{aligned} \quad (1.50)$$

Du fait que le tenseur $\boldsymbol{\lambda}$ est positif en tout point de V , le premier terme est positif au sens des formes quadratiques. Il reste donc à déterminer le signe du dernier terme. Pour cela, en utilisant le théorème de divergence, le terme de droite se réécrit alors comme :

$$\int_V (\tilde{\mathbf{e}} - \mathbf{e}) \boldsymbol{\lambda} \mathbf{e} dV = \int_{\partial V} (\tilde{T} - T) \boldsymbol{\lambda} \mathbf{e} \cdot \mathbf{n} dS - \int_V (\tilde{T} - T) \text{div} \boldsymbol{\sigma} dV \quad (1.51)$$

Or, pour tout point \mathbf{x} appartenant à ∂V , les températures imposées aux bords sont les mêmes pour les deux champs vecteurs soit $\tilde{T}(\mathbf{x}) = T(\mathbf{x})$ et pour tout point du volume $\text{div} \boldsymbol{\sigma} = 0$ (voir relation 1.45) ce qui induit $\int_V (\tilde{\mathbf{e}} - \mathbf{e}) \boldsymbol{\lambda} \mathbf{e} dV = 0$. On montre ainsi que l'énergie thermique pour tout champ admissible $\tilde{\mathbf{e}} \in \mathcal{A}(\bar{\mathbf{e}})$ admet un minimum. Remarquons que ce minimum est atteint pour $\tilde{\mathbf{e}} = \mathbf{e}$. En définissant $\tilde{w}(\bar{\mathbf{e}}) = \frac{1}{2|V|} \int_V \mathbf{e} \boldsymbol{\lambda} \mathbf{e} dV$ la densité d'énergie potentielle macroscopique du volume d'étude V [BBG01], on obtient :

$$2 \tilde{w}(\bar{\mathbf{e}}) = \min_{\mathbf{e} \in \mathcal{A}(\bar{\mathbf{e}})} \left(\frac{1}{|V|} \int_V \mathbf{e} \boldsymbol{\lambda} \mathbf{e} dV \right) \quad (1.52)$$

En utilisant un raisonnement similaire dans le cas où le vecteur courant de chaleur $\bar{\boldsymbol{\sigma}}$ est imposé au bord de l'élément de volume V et en définissant $\tilde{u}(\bar{\boldsymbol{\sigma}}) = \frac{1}{2|V|} \int_V \boldsymbol{\sigma} \mathbf{R} \boldsymbol{\sigma} dV$ la densité d'énergie complémentaire macroscopique du volume d'étude V [BBG01], la caractérisation

variationnelle associée est :

$$2 \tilde{u}(\bar{\sigma}) = \min_{\sigma \in \mathcal{B}(\bar{\sigma})} \left(\frac{1}{|V|} \int_V \sigma \mathbf{R} \sigma dV \right) \quad (1.53)$$

Homogénéisation

L'étape d'homogénéisation a pour objectif de déterminer le comportement effectif du VER étudié en faisant intervenir les tenseurs de localisation.

Les tenseurs effectifs se définissent à l'aide de la loi de Fourier évaluée sur le milieu homogène équivalent :

$$\bar{\sigma} = \lambda_{eq} \bar{e} \quad \text{et} \quad \bar{e} = \mathbf{R}_{eq} \bar{\sigma} \quad (1.54)$$

où \mathbf{R}_{eq} est la résistivité thermique effective du milieu.

Il a été choisi d'explicitier l'expression du tenseur de conductivité thermique effective uniquement car c'est la grandeur d'intérêt dans la suite de l'étude.

En fonction du chargement imposé aux bords et à partir de l'équation 1.47, la conductivité thermique effective peut se définir (en utilisant l'équation 1.47 dans le cas où \bar{e} est imposé et l'équation 1.48 pour $\bar{\sigma}$ imposé) en utilisant la formulation forte comme :

$$\begin{cases} \lambda_{eq} = \overline{\lambda \mathbf{A}} \\ \mathbf{R}_{eq} = \overline{\mathbf{R} \mathbf{B}} \end{cases} \iff \lambda_{eq} = \left\{ \overline{(\lambda)^{-1} \mathbf{B}} \right\}^{-1} \quad (1.55)$$

L'équivalence de l'équation 1.55 a lieu en admettant que $\lambda_{eq} = \mathbf{R}_{eq}^{-1}$.

Il est alors possible d'établir une expression analytique de la conductivité thermique effective λ_{eq} en passant par le calcul de $\overline{\lambda \mathbf{A}}$. En définissant les moyennes des champs de localisation sur la phase $k \in \{m, 1, \dots, p\}$ telles que $\mathbf{A}_k = \frac{1}{c_k} \overline{\nu_k \mathbf{A}}$ et $\mathbf{B}_k = \frac{1}{c_k} \overline{\nu_k \mathbf{B}}$, la détermination de la conductivité thermique effective peut s'écrire sous deux formes :

$$\begin{cases} \lambda_{eq} = c_m \lambda_m \mathbf{A}_m + \sum_{k=1}^p c_k \lambda_k \mathbf{A}_k = \lambda_m + \sum_{k=1}^p c_k (\lambda_k - \lambda_m) \mathbf{A}_k \\ \mathbf{R}_{eq} = c_m \mathbf{R}_m \mathbf{B}_m + \sum_{k=1}^p c_k \mathbf{R}_k \mathbf{B}_k = \mathbf{R}_m + \sum_{k=1}^p c_k (\mathbf{R}_k - \mathbf{R}_m) \mathbf{B}_k \end{cases} \quad (1.56)$$

En utilisant la formulation variationnelle, la conductivité thermique effective peut aussi se définir à partir de $\tilde{w}(\bar{e})$ et $\tilde{u}(\bar{\sigma})$. Considérons un gradient de température \mathbf{e} solution du problème thermique présentée dans l'équation 1.45, la densité d'énergie potentielle macroscopique vaut (sachant qu'en tout point du volume $\sigma = \lambda \mathbf{e}$) :

$$\tilde{w}(\bar{e}) = \frac{1}{2|V|} \int_V \mathbf{e} \lambda \mathbf{e} dV = \frac{1}{2|V|} \int_V \mathbf{e} \sigma dV \quad (1.57)$$

En exprimant le gradient de température local comme $\mathbf{e} = -\nabla T$ et en utilisant le théorème de la divergence, la densité $\tilde{w}(\bar{e})$ s'exprime comme :

$$\tilde{w}(\bar{e}) = \frac{1}{2|V|} \int_V \left[-\nabla(T \sigma) + T \operatorname{div} \sigma \right] dV \quad (1.58)$$

Or, $\operatorname{div} \boldsymbol{\sigma} = 0$ (voir équation 1.45) et en utilisant le théorème de divergence :

$$\tilde{w}(\bar{\mathbf{e}}) = \frac{1}{2|\mathcal{V}|} \int_{\partial\mathcal{V}} [-T \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n}] \, dS \quad (1.59)$$

En considérant les conditions aux limites du problème (équation 1.45) et en utilisant à nouveau le théorème de la divergence, il vient que :

$$\tilde{w}(\bar{\mathbf{e}}) = \frac{1}{2|\mathcal{V}|} \bar{\mathbf{e}} \int_{\mathcal{V}} \boldsymbol{\sigma} \, dV = \frac{1}{2} \bar{\mathbf{e}} \bar{\boldsymbol{\sigma}} \quad (1.60)$$

D'où, en utilisant la définition du tenseur $\boldsymbol{\lambda}_{eq}$ (équation 1.54) :

$$\tilde{w}(\bar{\mathbf{e}}) = \frac{1}{2} \bar{\mathbf{e}} \boldsymbol{\lambda}_{eq} \bar{\mathbf{e}} = \frac{1}{2} \min_{\mathbf{e} \in \mathcal{A}(\bar{\mathbf{e}})} \left(\frac{1}{|\mathcal{V}|} \int_{\mathcal{V}} \mathbf{e} \boldsymbol{\lambda} \mathbf{e} \, dV \right) \quad (1.61)$$

De façon analogue, on montre que toute solution $\boldsymbol{\sigma}$ du problème thermique où un flux de chaleur homogène est imposé aux bords du volume vérifie :

$$\frac{1}{2} \bar{\boldsymbol{\sigma}} \mathbf{R}_{eq} \bar{\boldsymbol{\sigma}} = \frac{1}{2} \min_{\boldsymbol{\sigma} \in \mathcal{B}(\bar{\boldsymbol{\sigma}})} \left(\frac{1}{|\mathcal{V}|} \int_{\mathcal{V}} \boldsymbol{\sigma} \mathbf{R} \boldsymbol{\sigma} \, dV \right) \quad (1.62)$$

Les relations 1.56, 1.61 et 1.62 permettent donc d'exprimer les tenseurs effectifs.

1.4.2. Modèles par homogénéisation analytique suivant le degré d'informations sur la microstructure

La détermination d'un encadrement optimal pour le tenseur de conductivité thermique effective se fait à partir d'informations connues sur le volume d'étude (microstructure et comportement des phases). Aussi, plus les informations sur la microstructure sont complètes, plus l'estimation de la conductivité thermique effective est précise.

Dans le cas où le comportement thermique des phases constituant le matériau étudié est considéré comme connu et que les tenseurs de conductivité thermique des phases sont sphériques, alors la conductivité thermique d'une phase $k \in [1, p+1]$ est telle que $\boldsymbol{\lambda}_k = \lambda_k \mathbf{I}$ où λ_k est le coefficient de conductivité thermique associé à la phase k . Dans le cas où le milieu est macroscopiquement isotrope, le tenseur de conductivité thermique $\boldsymbol{\lambda}_{eq}$ est de la forme $\boldsymbol{\lambda}_{eq} = \lambda_{eq} \mathbf{I}$ où le coefficient λ_{eq} est borné par les propriétés thermiques maximales et minimales des phases constituant le matériau étudié :

$$\lambda_- \leq \lambda_{eq} \leq \lambda_+ \quad (1.63)$$

où $\lambda_- = \min\{\lambda_1, \dots, \lambda_{p+1}\}$ et $\lambda_+ = \max\{\lambda_1, \dots, \lambda_{p+1}\}$

Lorsque l'écart entre la conductivité thermique des phases est important soit $\lambda_- \ll \lambda_+$, l'encadrement de la conductivité thermique effective reste très large.

En rajoutant à la connaissance des propriétés thermiques des phases des informations sur les caractéristiques de la microstructure du matériau, il est possible d'affiner les bornes pour la conductivité thermique effective. Par la suite, il a été choisi de noter D le nombre de paramètres

descripteurs connus pour la microstructure étudiée.

1.4.2.1. Modèle basé sur la fraction volumique des phases ($D = 1$)

On suppose que les seules informations connues sur les phases constituant le matériau d'étude sont leurs comportements thermiques et leurs fractions volumiques qui sont notées :

- c_m la fraction volumique de la matrice,
- c_k la fraction volumique des phases d'inclusions (avec $k = [1, p]$).

Bornes élémentaires de Wiener

En utilisant la formulation variationnelle du problème de thermique, un encadrement élémentaire peut être donné pour la conductivité thermique effective λ_{eq} .

Dans le cas où un vecteur \bar{e} est imposé aux bords du volume V , on considère comme champ test celui correspondant à un gradient de température uniforme dans le volume V , ce qui induit qu'en tout point \mathbf{x} du volume V le champ local est tel que $\mathbf{e}(\mathbf{x}) = \bar{e}$. Remarquons que ce champ \mathbf{e} appartient bien à l'ensemble $\mathcal{A}(\bar{e})$. En écrivant la propriété variationnelle (équation 1.61), on obtient alors :

$$\bar{e} \lambda_{eq} \bar{e} \leq \bar{e} \lambda_1^W \bar{e} = \frac{1}{|V|} \int_V \bar{e} \lambda(\mathbf{x}) \bar{e} dV \quad (1.64)$$

où λ_1^W est le tenseur de conductivité thermique estimé avec l'hypothèse de gradients de température uniformes dans le volume V .

Le tenseur λ_1^W permet d'estimer par excès la conductivité thermique effective : on peut parler dans ce cas d'une borne supérieure pour la conductivité thermique effective. En partant de l'équation 1.56, le tenseur de la conductivité thermique λ_1^W s'exprime comme :

$$\lambda_1^W = \frac{1}{|V|} \int_V \lambda(\mathbf{x}) dV = \sum_{k=1}^p c_k \lambda_k + \left(1 - \sum_{k=1}^p c_k\right) \lambda_m \quad (1.65)$$

De façon duale, si $\bar{\sigma}$ est imposé aux bords de V , le champ test considéré est le champ courant de chaleur uniforme sur V : $\sigma(\mathbf{x}) = \bar{\sigma}$. En partant de l'équation 1.62 (car $\sigma \in \mathcal{B}(\bar{\sigma})$), il est possible d'observer que le tenseur \mathbf{R}_2^W est une approximation par excès du tenseur effectif de résistivité thermique :

$$\bar{\sigma} \mathbf{R}_{eq} \bar{\sigma} \leq \bar{\sigma} \mathbf{R}_2^W \bar{\sigma} = \frac{1}{|V|} \int_V \bar{\sigma} \mathbf{R}(\mathbf{x}) \bar{\sigma} dV \quad \iff \quad \bar{\sigma} (\lambda_{eq})^{-1} \bar{\sigma} \leq \bar{\sigma} (\lambda_2^W)^{-1} \bar{\sigma} \quad (1.66)$$

En partant de l'équation 1.62, l'approximation par excès de la résistivité thermique effective équivaut à une approximation par défaut pour la conductivité thermique effective (on peut parler alors d'une borne inférieure) avec :

$$\lambda_2^W = (\mathbf{R}_2^W)^{-1} = \left\{ \frac{1}{|V|} \int_V \mathbf{R}(\mathbf{x}) dV \right\}^{-1} = \left\{ \sum_{k=1}^p c_k \lambda_k^{-1} + \left(1 - \sum_{k=1}^p c_k\right) \lambda_m^{-1} \right\}^{-1} \quad (1.67)$$

Les bornes ainsi obtenues sont appelées bornes de Wiener [Wie12] et donnent un encadrement général du tenseur effectif de conductivité thermique (les inégalités sont écrites au sens des

formes quadratiques) :

$$\boxed{\left\{ \sum_{k=1}^p c_k \lambda_k^{-1} + \left(1 - \sum_{k=1}^p c_k\right) \lambda_m^{-1} \right\}^{-1} \leq \lambda_{eq} \leq \sum_{k=1}^p c_k \lambda_k + \left(1 - \sum_{k=1}^p c_k\right) \lambda_m} \quad (1.68)$$

Ces bornes ont été initialement développées pour l'évaluation de la conductivité électrique effective d'un milieu hétérogène puis adaptées en thermique (pour un milieu possédant des inclusions volumiques) [ST67]. Les bornes de Wiener appliquées au comportement mécanique (élasticité) sont connues sous le nom de bornes de Voigt et Reuss [Voi89 ; Reu29]. Ces bornes sont optimales car elles sont atteintes pour des matériaux biphasés stratifiés : la borne haute de Wiener est atteinte pour un matériau de type couches en parallèle et la borne basse pour un matériau de type couches en série. Les bornes de Wiener sont dites d'ordre $D = 1$ dans le cadre de la thermique linéaire car elles nécessitent seulement la connaissance des fractions volumiques de chaque phase du matériau étudié et de leurs propriétés thermiques.

Considérons le cas où les tenseurs de conductivité thermique des phases sont sphériques. Afin de simplifier les développements analytiques, le rapport des coefficients des conductivités thermiques entre une phase d'inclusions $k \in [1, p]$ et la matrice est noté :

$$\tau_k = \frac{\lambda_k}{\lambda_m} \quad (1.69)$$

L'encadrement du tenseur $\kappa_i^W (= \frac{1}{\lambda_m} \lambda_{eq})$ donnant l'influence des inclusions sur la conductivité thermique effective du VER étudié à l'aide des bornes de Wiener, dans le cas où la conductivité thermique des phases d'inclusions sont négligeables par rapport à celle de la matrice ($\forall k \in [1, p], \tau_k = 0$), est le suivant :

$$\mathbf{0} \leq \kappa_i^W \leq \left(1 - \sum_{k=1}^p c_k\right) \mathbf{I} \quad (1.70)$$

La fraction volumique des inclusions est donc un paramètre descripteur de la microstructure jouant au premier ordre sur la conductivité thermique effective. Cependant, lorsque l'écart relatif entre les conductivités thermiques de la matrice et des phases d'inclusions est infini, un encadrement lié aux approximations de Wiener reste large et donc peu précis (équation 1.70).

Afin d'affiner la prédiction du tenseur κ_i , l'idée est d'utiliser des modèles pour la conductivité thermique effective faisant intervenir un autre paramètre descripteur de la microstructure en plus de la fraction volumique des inclusions dans le matériau : leur morphologie ou leur distribution spatiale.

1.4.2.2. Modèles basés sur la fraction volumique des inclusions ainsi que sur leur morphologie ou leur distribution spatiale ($D = 2$)

Deux modèles dépendant de deux paramètres descripteurs ($D = 2$) sont développés par la suite :

- le modèle « milieu dilué » utilisant comme paramètres descripteurs la fraction volumique des phases et la morphologie des inclusions,
- les bornes de Hashin-Shtrikman utilisant comme paramètres descripteurs la fraction vo-

luminique des phases et leur distribution spatiale [HS63 ; CP15].

Modèle « milieu dilué »

Le modèle « milieu dilué » considère les interactions des inclusions comme négligeables du fait que la fraction volumique des phases d'inclusions est suffisamment petite.

Chaque inclusion se comporte donc comme si elle était seule dans un milieu infini. Le comportement d'une inclusion dans un milieu infini est présenté dans l'annexe A.

Pour rappel, le VER étudié est constitué d'une matrice (de conductivité thermique $\boldsymbol{\lambda}_m$ et de fraction volumique c_m) et de $1 \dots p$ phases d'inclusions sphéroïdales n'ayant pas d'interactions entre elles. Cette hypothèse est vérifiée à faible concentration de phases. Nous avons choisi d'étudier un matériau dont la microstructure et les propriétés obéissent à une symétrie isotrope transverse dont l'axe de symétrie de révolution est noté \mathbf{u}_y . On suppose en plus que toutes les phases d'inclusions possèdent la même morphologie et sont réparties de façon aléatoire dans le milieu. Notons ω_i le facteur de forme caractérisant la morphologie de l'ensemble des inclusions. Chaque phase $k \in [1, p]$ est caractérisée par une fraction volumique c_k , une conductivité thermique $\boldsymbol{\lambda}_k$ et une distribution angulaire $W(\theta)$. Il a été choisi de considérer deux types de morphologies d'inclusions :

- les inclusions sphériques soit $\omega_i = 1$,
- les inclusions penny-shape soit $\omega_i \ll 1$.

En considérant que toutes les phases d'inclusions présentent la même conductivité thermique isotrope notée $\boldsymbol{\lambda}_i = \lambda_i \mathbf{I}$, le coefficient de conductivité thermique d'une phase $k \in [1, p]$ est tel que $\lambda_k = \lambda_i$.

En partant de l'équation 1.56, le tenseur de conductivité thermique s'écrit :

$$\boldsymbol{\lambda}_{eq} = \boldsymbol{\lambda}_m + (\boldsymbol{\lambda}_i - \boldsymbol{\lambda}_m) \sum_{k=1}^p c_k \mathbf{A}_k \quad (1.71)$$

Notons le rapport du coefficient de conductivité thermique des inclusions sur celui de la matrice comme $\tau = \frac{\lambda_i}{\lambda_m}$. De plus, on pose la fraction volumique totale d'inclusions dans le matériau $c_i = \sum_{k=1}^p c_k$.

Pour chaque phase d'inclusions $k \in [1, p]$, le tenseur de localisation \mathbf{A}_k peut être estimé en supposant que chaque inclusion de cette phase ne subit pas d'interaction avec les inclusions voisines. Le comportement moyen des inclusions appartenant à une phase d'inclusions est alors donné par celui d'une inclusion sphéroïdale plongée dans un milieu infini de même forme (ω_i) et de même orientation que les inclusions de la phase étudiée et satisfaisant une condition de gradient de température homogène à l'infini.

À partir de l'équation A.9 et de l'expression de \mathbf{S}_E^k (équation A.4), le tenseur de localisation d'une phase d'inclusions $k \in [1, p]$ caractérisée par un axe de symétrie de révolution $\mathbf{u}_3(\phi_k, \theta_k)$ (équation 1.36) s'écrit :

$$\mathbf{A}_k = A_I(\omega_i, \tau) \mathbf{I} + A_3(\omega_i, \tau) \mathbf{u}_3(\phi_k, \theta_k) \otimes \mathbf{u}_3(\phi_k, \theta_k) = \mathbf{A}(\phi_k, \theta_k) \quad (1.72)$$

$$\text{avec } \begin{cases} A_I(\omega_i, \tau) = \left[1 + Q_i(\tau - 1)\right]^{-1} \\ A_3(\omega_i, \tau) = \left[1 + (1 - 2Q_i)(\tau - 1)\right]^{-1} - \left[1 + Q_i(\tau - 1)\right]^{-1} \end{cases}$$

L'expression du scalaire Q_i dépendant du facteur de forme ω_i des inclusions est présentée dans la relation A.5.

En regroupant toutes les phases d'inclusions en une seule phase car elles présentent toutes la même conductivité thermique, on définit alors le tenseur de localisation \mathbf{A}_i de cette phase. On a alors $c_i \mathbf{A}_i = \sum_{k=1}^p c_k \mathbf{A}_k$. Le tenseur de localisation \mathbf{A}_i s'exprime alors de la façon suivante :

$$\mathbf{A}_i = \sum_{k=1}^p \frac{c_k}{c_i} \mathbf{A}_k = \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \mathbf{A}(\theta, \phi) W(\theta, \phi) \sin \theta \, d\theta \, d\phi \quad (1.73)$$

où $W(\theta, \phi)$ est la densité de probabilité d'orientation de l'ensemble des inclusions qui vaut $W(\theta, \phi) = \sum_{k=1}^p \frac{c_k}{c_i} \frac{\delta(\theta - \theta_k) \delta(\phi - \phi_k)}{\sin \theta}$. Cette forme discrète de la fonction $W(\theta, \phi)$ peut être remplacée par une fonction continue en gardant l'expression du tenseur de localisation \mathbf{A}_i . Dans le cas où le VER présente une symétrie isotrope transverse autour de l'axe \mathbf{u}_y , la densité de probabilité d'orientation ne dépend pas de ϕ , d'où $W(\theta, \phi) = W(\theta)$. L'expression du tenseur de localisation de l'ensemble des inclusions devient alors :

$$\mathbf{A}_i = A_I(\omega_i, \tau) \mathbf{I} + A_3(\omega_i, \tau) \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \mathbf{u}_3(\phi, \theta) \otimes \mathbf{u}_3(\phi, \theta) W(\theta) \sin \theta \, d\theta \, d\phi \quad (1.74)$$

Le tenseur de conductivité thermique effective λ_{eq}^{DIL} s'exprime alors :

$$\boxed{\lambda_{eq}^{DIL} = \lambda_m \mathbf{I} + c_i \lambda_m (\tau - 1) \mathbf{A}_i} \quad (1.75)$$

Le tenseur de localisation \mathbf{A}_i est exprimé dans le modèle « milieu dilué » en fonction du facteur de forme ω_i et de la distribution angulaire $W(\theta)$ des inclusions présentes dans le matériau.

Dans les cas étudiés, les tenseurs de conductivité thermique estimés avec le modèle « milieu dilué » respectent les bornes de Wiener [Wie12].

Il a été choisi d'expliciter λ_{eq}^{DIL} pour deux types de distributions d'orientation $W(\theta)$:

- la distribution équiprobable de toutes les orientations des phases d'inclusions, soit $W(\theta) = \frac{1}{4\pi}$,
- l'alignement des inclusions selon \mathbf{u}_y , soit $W(\theta) = \frac{\delta(\theta)}{2\pi \sin \theta}$.

- Alignement de tous les axes de symétrie de révolution des inclusions selon \mathbf{u}_y

Dans la base cartésienne $(\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_y, \mathbf{u}_z)$, le tenseur de conductivité thermique effective s'écrit :

$$\lambda_{eq}^{DIL} = \begin{pmatrix} (\lambda_{eq}^{DIL})_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & (\lambda_{eq}^{DIL})_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & (\lambda_{eq}^{DIL})_{zz} \end{pmatrix} \quad (1.76)$$

L'invariance des propriétés des inclusions par rotation autour de l'axe \mathbf{u}_y conduit à un pro-

blème thermique isotrope transverse, ce qui induit : $(\lambda_{eq}^{DIL})_{xx} = (\lambda_{eq}^{DIL})_{zz}$.

On pose donc respectivement $\lambda_{eq}^{DIL}(T)$ et $\lambda_{eq}^{DIL}(L)$ les conductivités thermiques transversale et longitudinale par rapport au plan d'alignement des sphéroïdes, avec $\lambda_{eq}^{DIL}(L) = (\lambda_{eq}^{DIL})_{yy}$ et $\lambda_{eq}^{DIL}(T) = (\lambda_{eq}^{DIL})_{xx} = (\lambda_{eq}^{DIL})_{zz}$. On obtient alors :

$$\begin{cases} \lambda_{eq}^{DIL}(T) = \lambda_m \left(1 + \frac{\tau - 1}{1 + Q_i(\tau - 1)} c_i \right) \\ \lambda_{eq}^{DIL}(L) = \lambda_m \left(1 + \frac{\tau - 1}{1 + (1 - 2Q_i)(\tau - 1)} c_i \right) \end{cases} \quad (1.77)$$

ce qui donne pour le cas d'étude $\tau = 0$:

$$\begin{cases} \lambda_{eq}^{DIL}(T) = \lambda_m \left(1 - \frac{1}{1 - Q_i} c_i \right) \\ \lambda_{eq}^{DIL}(L) = \lambda_m \left(1 - \frac{1}{2Q_i} c_i \right) \end{cases} \quad (1.78)$$

Dans le cas d'inclusions sphéroïdales de type « penny-shape » [Dua+06] en partant de l'équation 1.78 :

$$\begin{cases} \lambda_{eq}^{DIL}(T) = \lambda_m \left(1 - \frac{4}{4 - \pi \omega_i} c_i \right) \approx \lambda_m (1 - c_i) \\ \lambda_{eq}^{DIL}(L) = \lambda_m \left(1 - \frac{2}{\pi} \frac{c_i}{\omega_i} \right) \end{cases} \quad (1.79)$$

On remarque que lorsque l'axe d'alignement est perpendiculaire au flux de chaleur, la conductivité thermique $(\lambda_{eq}^{DIL}(T))$ est peu dégradée tandis que lorsque l'axe d'alignement et le flux de chaleur sont parallèles, le transfert thermique $(\lambda_{eq}^{DIL}(L))$ est fortement impacté par la présence d'une phase d'inclusions dans le matériau.

- Distribution angulaire totalement aléatoire des inclusions

Dans cette configuration, le matériau possède des inclusions dont la distribution angulaire est aléatoire. Dans ce cas, le tenseur de localisation s'exprime comme :

$$\mathbf{A}_i = A_I(\omega_i, \tau) \mathbf{I} + \frac{A_3(\omega_i, \tau)}{4\pi} \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \mathbf{u}_3(\phi, \theta) \otimes \mathbf{u}_3(\phi, \theta) \sin \theta \, d\theta \, d\phi \quad (1.80)$$

On obtient par calcul direct $\int_0^\pi \int_0^{2\pi} \mathbf{u}_3(\phi, \theta) \otimes \mathbf{u}_3(\phi, \theta) \sin \theta \, d\theta \, d\phi = \frac{4\pi}{3} \mathbf{I}$ en utilisant l'expression du vecteur \mathbf{u}_3 (équation 1.36). On en déduit alors :

$$\mathbf{A}_i = \left(A_I(\omega_i, \tau) + \frac{1}{3} A_3(\omega_i, \tau) \right) \mathbf{I} \quad (1.81)$$

En partant de 1.75, le tenseur de conductivité thermique dans le cas d'une distribution

angulaire aléatoire des inclusions s'exprime alors :

$$\boldsymbol{\lambda}_{eq}^{DIL} = \lambda_m \left\{ 1 + \frac{1}{3} c_i (\tau - 1) \left(3 A_I(\omega_i, \tau) + A_3(\omega_i, \tau) \right) \right\} \mathbf{I} \quad (1.82)$$

Dans l'approximation $\tau = 0$, le tenseur de conductivité thermique effective s'écrit :

$$\boldsymbol{\lambda}_{eq}^{DIL} = \lambda_m \left(1 - \frac{1}{3} c_i \left\{ \frac{2}{1 - Q_i} + \frac{1}{2 Q_i} \right\} \right) \mathbf{I} \quad (1.83)$$

ce qui donne pour le cas d'inclusions de type « penny-shape » :

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\lambda}_{eq}^{DIL} &= \lambda_m \left(1 - \frac{2}{3} c_i \left\{ \frac{4}{4 - \pi \omega_i} + \frac{1}{\pi \omega_i} \right\} \right) \mathbf{I} \\ &= \lambda_m \left(1 - \frac{2}{3} \frac{4 + 3 \pi \omega_i}{\pi (4 - \pi \omega_i)} \frac{c_i}{\omega_i} \right) \mathbf{I} \\ &\approx \lambda_m \left(1 - \frac{2}{3 \pi} \frac{c_i}{\omega_i} \right) \mathbf{I} \end{aligned} \quad (1.84)$$

et dans le cas d'inclusions sphériques :

$$\boldsymbol{\lambda}_{eq}^{DIL} = \lambda_m \left(1 - \frac{3}{2} c_i \right) \mathbf{I} \quad (1.85)$$

L'expression obtenue pour le tenseur $\boldsymbol{\lambda}_{eq}^{DIL}$ permet de reconnaître une équation de Loeb pour la conductivité thermique effective avec $A = \frac{3}{2}$ ou un développement limité du modèle de Maxwell [Max73] ($\boldsymbol{\lambda}_{eq}^{MAX} = \frac{1-c_i}{1+c_i/2} \lambda_m \mathbf{I}$) au premier ordre en c_i .

Comme l'hypothèse de non-interaction des inclusions du modèle « milieu dilué » est forte, il semble judicieux de pousser la modélisation plus loin en ne posant pas cette hypothèse afin de voir si le degré d'information perdu en utilisant cette hypothèse est acceptable ou non.

Bornes de Hashin-Shtrikman

Un vecteur $\bar{\mathbf{e}}$ constant est imposé aux bords d'un matériau hétérogène qui est constitué de $p + 1$ phases (une phase matrice continue m et $1 \dots p$ phases d'inclusions). La loi de Fourier (équation 1.1) est vérifiée en tout point \mathbf{x} d'un élément de volume V représentatif de ce matériau. Pour une microstructure quelconque, la réponse du matériau réel est complexe et il n'est pas possible de résoudre le problème analytiquement.

Afin de simplifier ce problème, l'idée est d'assimiler le matériau réel à un matériau fictif homogène équivalent possédant une conductivité thermique $\boldsymbol{\lambda}_0$ choisie arbitrairement. Ce matériau fictif est soumis au même gradient thermique que le milieu réel avec un « chargement » supplémentaire. Le caractère non homogène de la réponse du matériau réel est pris en compte par l'ajout d'une sollicitation thermique supplémentaire dans le matériau fictif. Le comportement du matériau fictif se traduit alors par la loi :

$$\boldsymbol{\sigma}(\mathbf{x}) = \boldsymbol{\lambda}_0 \mathbf{e}(\mathbf{x}) + \boldsymbol{\tau}(\mathbf{x}) \quad (1.86)$$

Le champ de polarisation $\boldsymbol{\tau}$ décrit l'écart à l'homogénéité du matériau réel et se définit comme :

$$\boldsymbol{\tau}(\boldsymbol{x}) = (\boldsymbol{\lambda}(\boldsymbol{x}) - \boldsymbol{\lambda}_0) \boldsymbol{e}(\boldsymbol{x}) \quad (1.87)$$

La fonction de densité d'énergie s'explicitie de la façon suivante en faisant intervenir les propriétés du milieu fictif pour tout \boldsymbol{e} et $\boldsymbol{\sigma}$:

$$\frac{1}{2} \boldsymbol{e} \boldsymbol{\lambda} \boldsymbol{e} = \frac{1}{2} \boldsymbol{e} \boldsymbol{\lambda}_0 \boldsymbol{e} + \boldsymbol{e} \boldsymbol{\tau} + \frac{1}{2} \boldsymbol{e} (\boldsymbol{\lambda} - \boldsymbol{\lambda}_0) \boldsymbol{e} - \boldsymbol{e} \boldsymbol{\tau} \quad (1.88)$$

Remarquons que la fonction $\frac{1}{2} \boldsymbol{e} (\boldsymbol{\lambda} - \boldsymbol{\lambda}_0) \boldsymbol{e} - \boldsymbol{e} \boldsymbol{\tau}$ est un polynôme en \boldsymbol{e} du second ordre dont le signe dépend de celui de $(\boldsymbol{\lambda} - \boldsymbol{\lambda}_0)$. Dans le cas où $\forall \boldsymbol{x} \in V, \boldsymbol{\lambda}(\boldsymbol{x}) < \boldsymbol{\lambda}_0$, la parabole est tournée vers le bas et cette fonction admet un majorant en $\boldsymbol{e} = \boldsymbol{\tau} (\boldsymbol{\lambda}(\boldsymbol{x}) - \boldsymbol{\lambda}_0)$ qui vaut :

$$\frac{1}{2} \boldsymbol{e} (\boldsymbol{\lambda} - \boldsymbol{\lambda}_0) \boldsymbol{e} - \boldsymbol{e} \boldsymbol{\tau} \leq \frac{1}{2} \boldsymbol{\tau} (\boldsymbol{\lambda}_0 - \boldsymbol{\lambda}(\boldsymbol{x}))^{-1} \boldsymbol{\tau} \quad (1.89)$$

Le principe d'énergie minimum pour un tenseur $\boldsymbol{e} \in \mathcal{A}(\bar{\boldsymbol{e}})$ s'écrit alors :

$$\frac{1}{2} \bar{\boldsymbol{e}} \bar{\boldsymbol{\lambda}} \bar{\boldsymbol{e}} \leq \text{Min}_{\mathcal{A}(\bar{\boldsymbol{e}})} \left(\int_V \frac{1}{2} \boldsymbol{e} \boldsymbol{\lambda}_0 \boldsymbol{e} + \boldsymbol{e} \boldsymbol{\tau} \right) dV + \frac{1}{2} \int_V \boldsymbol{\tau} (\boldsymbol{\lambda}_0 - \boldsymbol{\lambda})^{-1} \boldsymbol{\tau} dV \quad (1.90)$$

La majoration de la fonction de densité d'énergie dépend alors de la conductivité thermique du milieu homogène $\boldsymbol{\lambda}_0$ (avec l'hypothèse $\forall \boldsymbol{x} \in V, \boldsymbol{\lambda}(\boldsymbol{x}) \leq \boldsymbol{\lambda}_0$) et du champ de polarisation $\boldsymbol{\tau}$.

Choix du champ de polarisation

La minimisation de 1.90 étant tout aussi difficile à résoudre que celle définie dans l'équation 1.61 pour un champ de polarisation quelconque, ce champ de polarisation est choisi homogène par phase :

$$\boldsymbol{\tau}(\boldsymbol{x}) = \sum_{r=1}^{p+1} \nu_r(\boldsymbol{x}) \bar{\boldsymbol{\tau}}_r \quad (1.91)$$

On note par la suite $\boldsymbol{\sigma}^*$ le courant de chaleur local et \boldsymbol{e}^* le gradient de température local estimés avec un champ de polarisation $\boldsymbol{\tau}$ homogène par phase. La majoration optimale de la fonction de densité d'énergie (Équation 1.90) est obtenue pour des champs de polarisation homogènes par phase vérifiant (selon l'équation 5.81 de [BBG01]) :

$$\forall r \in \{1, p+1\} \quad \bar{\boldsymbol{\tau}}_r = (\boldsymbol{\lambda}_r - \boldsymbol{\lambda}_0) \bar{\boldsymbol{e}}_r^* \quad (1.92)$$

Le choix de polarisation réalisé satisfait uniquement la relation 1.87 en moyenne par phase.

Calcul des moyennes par phase des champs réels

Pour tous les points $\boldsymbol{x} \in V$, l'équation de Lippmann et Schwinger (Équation (5.30) de [BBG01]) peut s'écrire :

$$\boldsymbol{e}^*(\boldsymbol{x}) - \bar{\boldsymbol{e}}^* = - \int_{V(\boldsymbol{x})} \boldsymbol{\Gamma}^0(\boldsymbol{x} - \boldsymbol{y}) [\boldsymbol{\tau}(\boldsymbol{y}) - \bar{\boldsymbol{\tau}}] dV_y \quad (1.93)$$

où $\boldsymbol{\Gamma}^0$ est l'opérateur de Green modifié en gradient de température associé au milieu infini homogène de conductivité thermique $\boldsymbol{\lambda}_0$ et $V(\boldsymbol{x})$ le petit volume autour du point \boldsymbol{x} et pouvant

être considéré comme un VER en \mathbf{x} . Ce tenseur est symétrique, soit $\mathbf{\Gamma}^0(\mathbf{x}) = {}^t \mathbf{\Gamma}^0(\mathbf{x})$ avec ${}^t \mathbf{\Gamma}^0$ la transposée de $\mathbf{\Gamma}^0$.

L'équation 1.93 s'exprime alors en utilisant l'expression du champ de polarisation 1.91 de la façon suivante :

$$\mathbf{e}^*(\mathbf{x}) - \bar{\mathbf{e}} = - \int_{V(\mathbf{x})} \mathbf{\Gamma}^0(\mathbf{x} - \mathbf{y}) \sum_{s=1}^n \left[(\nu_s(\mathbf{y}) - c_s) \bar{\boldsymbol{\tau}}_s \right] dV_y \quad (1.94)$$

En explicitant le tenseur $\bar{\mathbf{e}}_r^*$ et l'inversion de sommes (théorème de Fubini), la moyenne de la réponse en température de la phase r est :

$$\bar{\mathbf{e}}_r^* - \bar{\mathbf{e}} = - \frac{1}{c_r |V|} \sum_{s=1}^{p+1} \int_{V_{VER(\mathbf{x})}} \int_V \nu_r(\mathbf{x}) [\nu_s(\mathbf{y}) - c_s] \bar{\boldsymbol{\tau}}_s \mathbf{\Gamma}^0(\mathbf{x} - \mathbf{y}) dV_y dV_x \quad (1.95)$$

Notons \mathbf{P}_{rs}^0 les tenseurs tels que lorsque le gradient de température macroscopique $\bar{\mathbf{e}}$ imposé aux bords du volume V est nul ($\bar{\mathbf{e}} = 0$) :

$$\forall r \in \{1, p+1\} \quad \bar{\mathbf{e}}_r^* = - \sum_{s=1}^n \mathbf{P}_{rs}^0 \bar{\boldsymbol{\tau}}_s \quad (1.96)$$

Les tenseurs \mathbf{P}_{rs}^0 sont symétriques d'ordre 2 et ils sont définis comme :

$$\mathbf{P}_{rs}^0 = \frac{1}{c_r |V|} \int_{V_{VER(\mathbf{x})}} \int_V \nu_r(\mathbf{x}) [\nu_s(\mathbf{y}) - c_s] \mathbf{\Gamma}^0(\mathbf{x} - \mathbf{y}) dV_y dV_x \quad (1.97)$$

En faisant le changement de variable $\mathbf{y} = \mathbf{x} + \mathbf{h}$,

$$\mathbf{P}_{rs}^0 = \frac{1}{c_r |V|} \int_{V_{VER(\mathbf{x})}} \int_V \nu_r(\mathbf{x}) [\nu_s(\mathbf{x} + \mathbf{h}) - c_s] \mathbf{\Gamma}^0(-\mathbf{h}) dV_h dV_x \quad (1.98)$$

Nous introduisons les fonctions de covariance $C_{rs}(\mathbf{h})$ qui sont définies comme la probabilité de trouver le point \mathbf{x} dans la phase r et le point $\mathbf{x} + \mathbf{h}$ dans la phase s et s'expriment comme :

$$\begin{aligned} C_{rs}(\mathbf{h}) &= \langle \nu_r(\mathbf{x}) \nu_s(\mathbf{x} + \mathbf{h}) \rangle_V \\ &= \frac{1}{|V|} \int_V \nu_r(\mathbf{z}) \nu_s(\mathbf{z} + \mathbf{h}) dV_z \end{aligned} \quad (1.99)$$

Les covariances vérifient la propriété suivante :

$$C_{rs}(\mathbf{h}) = C_{sr}(-\mathbf{h}) \quad (1.100)$$

D'où, en repartant de l'expression des tenseurs \mathbf{P}_{rs}^0 (équation 1.98) en introduisant les fonctions de covariance, il est possible d'obtenir :

$$\boxed{\forall (r, s) \in \{1, p+1\}^2 \quad \mathbf{P}_{rs}^0 = \frac{1}{c_r} \int_{VER} [C_{rs}(\mathbf{h}) - c_r c_s] \mathbf{\Gamma}^0(\mathbf{h}) dV_h} \quad (1.101)$$

Cette équation montre que les tenseurs \mathbf{P}_{rs}^0 dépendent de la microstructure au travers des fonctions de covariance C_{rs} . Le problème thermique (de $p + 1$ inconnues) passe donc par la résolution du système (de $p + 2$ relations) :

$$\left\{ \begin{array}{l} \bar{\mathbf{e}} = \sum_{r=1}^{p+1} c_r \bar{\mathbf{e}}_r^* \\ \forall r \in \{1, p+1\} \quad \bar{\boldsymbol{\tau}}_r = (\boldsymbol{\lambda}_r - \boldsymbol{\lambda}_0) \bar{\mathbf{e}}_r^* \\ \forall r \in \{1, p+1\} \quad \bar{\mathbf{e}}_r^* = \bar{\mathbf{e}} - \sum_{s=1}^n \mathbf{P}_{rs}^0 \bar{\boldsymbol{\tau}}_s \end{array} \right. \quad (1.102)$$

Dans le cas d'un matériau biphasé ($p = 2$) comme le matériau d'étude, le système 1.102 (pour $p = 2$) se réduit à trois équations pour deux inconnues, il existe donc des relations entre les opérateurs tensoriels \mathbf{P}_{rs}^0 . Le champ de gradient de température dans chaque phase qui est solution du système 1.102 peut se réécrire de la façon suivante :

$$\bar{\mathbf{e}}_1^* = \bar{\mathbf{e}} - \mathbf{P}_{11}^0 \bar{\boldsymbol{\tau}}_1 - \mathbf{P}_{12}^0 \bar{\boldsymbol{\tau}}_2 \quad \text{et} \quad \bar{\mathbf{e}}_2^* = \bar{\mathbf{e}} - \mathbf{P}_{21}^0 \bar{\boldsymbol{\tau}}_1 - \mathbf{P}_{22}^0 \bar{\boldsymbol{\tau}}_2 \quad (1.103)$$

La définition du champ de gradient de température ($\bar{\mathbf{e}} = c_1 \bar{\mathbf{e}}_1^* + c_2 \bar{\mathbf{e}}_2^*$) donne :

$$(c_1 \mathbf{P}_{11}^0 + c_2 \mathbf{P}_{21}^0) \bar{\boldsymbol{\tau}}_1 + (c_1 \mathbf{P}_{12}^0 + c_2 \mathbf{P}_{22}^0) \bar{\boldsymbol{\tau}}_2 = \mathbf{0} \quad (1.104)$$

ce qui conduit aux relations suivantes pour tout $\bar{\boldsymbol{\tau}}_1$ et $\bar{\boldsymbol{\tau}}_2$:

$$c_1 \mathbf{P}_{11}^0 = -c_2 \mathbf{P}_{21}^0 \quad \text{et} \quad c_1 \mathbf{P}_{12}^0 = -c_2 \mathbf{P}_{22}^0 \quad (1.105)$$

Remarquons que pour le cas $\bar{\boldsymbol{\tau}}_1 = \bar{\boldsymbol{\tau}}_2$, le champ de gradient de température macroscopique vaut $\bar{\mathbf{e}} = \bar{\mathbf{e}}_1^* = \bar{\mathbf{e}}_2^*$ ce qui induit $\mathbf{P}_{11}^0 + \mathbf{P}_{12}^0 = \mathbf{0} = \mathbf{P}_{21}^0 + \mathbf{P}_{22}^0$. Le fait que le matériau soit composé de deux phases induit donc deux relations supplémentaires entre les paramètres du système qui sont explicitées ci-dessous.

$$\left\{ \begin{array}{l} \bar{\boldsymbol{\tau}}_1 = \bar{\boldsymbol{\tau}}_2 \quad \Rightarrow \quad \mathbf{P}_{11}^0 = -\mathbf{P}_{12}^0 \quad \text{et} \quad \mathbf{P}_{21}^0 = -\mathbf{P}_{22}^0 \\ \forall (\bar{\boldsymbol{\tau}}_1, \bar{\boldsymbol{\tau}}_2) \quad \Rightarrow \quad c_1 \mathbf{P}_{11}^0 = -c_2 \mathbf{P}_{21}^0 \quad \text{et} \quad c_1 \mathbf{P}_{12}^0 = -c_2 \mathbf{P}_{22}^0 \end{array} \right. \quad (1.106)$$

La particularité du milieu biphasé réside dans ces deux équations supplémentaires qui réduisent la détermination des quatre termes du tenseur \mathbf{P}_{rs}^0 à celle d'un seul terme. Notons \mathbf{P}^0 l'unique valeur à déterminer des tenseurs \mathbf{P}_{rs}^0 qui peut être explicitée entre autres en fonction du tenseur \mathbf{P}_{11}^0 :

$$\mathbf{P}^0 = \frac{1}{c_2} \mathbf{P}_{11}^0 = \frac{1}{c_1 c_2} \int [C_{11}(\mathbf{h}) - c_1^2] \Gamma^0(\mathbf{h}) dV_h \quad (1.107)$$

L'expression de la solution en température dans chaque phase (équation 1.103) se simplifie alors :

$$\bar{\mathbf{e}}_1^* = \bar{\mathbf{e}} - c_2 \mathbf{P}^0 (\bar{\boldsymbol{\tau}}_1 - \bar{\boldsymbol{\tau}}_2) \quad \text{et} \quad \bar{\mathbf{e}}_2^* = \bar{\mathbf{e}} - c_1 \mathbf{P}^0 (\bar{\boldsymbol{\tau}}_2 - \bar{\boldsymbol{\tau}}_1) \quad (1.108)$$

En exprimant alors $\bar{\boldsymbol{\tau}}_1$ et $\bar{\boldsymbol{\tau}}_2$ en fonction des opposés des champs de gradient de température par phase $\bar{\mathbf{e}}_1$ et $\bar{\mathbf{e}}_2$, on obtient un système 2×2 linéaire dont la résolution conduit aux relations

$\bar{\mathbf{e}}_r = \mathbf{A}_r \bar{\mathbf{e}}$ dans chaque phase $r \in \{1, 2\}$ avec :

$$\mathbf{A}_r \approx \mathbf{A}_r^{HS} = (\boldsymbol{\lambda}^* + \boldsymbol{\lambda}_r)^{-1} \left[\sum_{s=1}^2 c_s (\boldsymbol{\lambda}^* + \boldsymbol{\lambda}_s)^{-1} \right]^{-1} \quad (1.109)$$

où \mathbf{A}_r^{HS} est le tenseur de localisation de Hashin-Shtrikman de la phase r et $\boldsymbol{\lambda}^*$ un tenseur défini tel que $\boldsymbol{\lambda}^* = \mathbf{P}^{0^{-1}} - \boldsymbol{\lambda}_0$.

Le tenseur de conductivité thermique effective lié à ce modèle est appelé tenseur de conductivité thermique de Hashin-Shtrikman [HS63 ; CP15] et est noté $\boldsymbol{\lambda}^{HS}$. Pour un matériau biphasé, le tenseur $\boldsymbol{\lambda}^{HS}$ peut être décrit au travers de la formule $\boldsymbol{\lambda}^{HS} = \sum_{r=1}^2 c_r \boldsymbol{\lambda}_r \mathbf{A}_r^{HS}$ (équation 1.56), ce qui conduit à :

$$\boldsymbol{\lambda}^{HS} = \left[\sum_{r=1}^2 c_r \boldsymbol{\lambda}_r (\boldsymbol{\lambda}^* + \boldsymbol{\lambda}_r)^{-1} \right] \left[\sum_{s=1}^2 c_s (\boldsymbol{\lambda}^* + \boldsymbol{\lambda}_s)^{-1} \right]^{-1} \quad (1.110)$$

En remarquant que $\begin{cases} c_r \boldsymbol{\lambda}_r (\boldsymbol{\lambda}^* + \boldsymbol{\lambda}_r)^{-1} &= c_r (\boldsymbol{\lambda}^* + \boldsymbol{\lambda}_r) (\boldsymbol{\lambda}^* + \boldsymbol{\lambda}_r)^{-1} - c_r \boldsymbol{\lambda}^* (\boldsymbol{\lambda}^* + \boldsymbol{\lambda}_r)^{-1} \\ &= c_r - c_r \boldsymbol{\lambda}^* (\boldsymbol{\lambda}^* + \boldsymbol{\lambda}_r)^{-1} \end{cases}$ et en ré-injectant cette expression dans l'équation 1.110, le tenseur de Hashin-Shtrikman peut s'exprimer plus simplement de la façon suivante :

$$\boldsymbol{\lambda}^{HS} = \left[\sum_{r=1}^2 c_r (\boldsymbol{\lambda}^* + \boldsymbol{\lambda}_r)^{-1} \right]^{-1} - \boldsymbol{\lambda}^* \quad (1.111)$$

L'influence de la microstructure du matériau est uniquement prise en compte au travers de $\boldsymbol{\lambda}^*$ dans l'expression du tenseur de conductivité thermique de Hashin-Shtrikman.

En posant pour chaque phase r les tenseurs $\mathbf{T}_r = (\boldsymbol{\lambda}_r - \boldsymbol{\lambda}_0) (\boldsymbol{\lambda}^* + \boldsymbol{\lambda}_r)^{-1} (\mathbf{P}^0)^{-1}$ donnant les déformations moyennes par phase $\bar{\mathbf{e}}_r = (\mathbf{I} - \mathbf{P}^0 \mathbf{T}_r) \bar{\mathbf{e}}$, le tenseur de Hashin-Shtrikman s'écrit alors :

$$\boldsymbol{\lambda}^{HS} = \boldsymbol{\lambda}_0 + \left(\sum_{r=1}^2 c_r \mathbf{T}_r \right) \left(\mathbf{I} - \sum_{r=1}^2 c_r \mathbf{T}_r \mathbf{P}^0 \right)^{-1} \quad (1.112)$$

Le tenseur effectif de conductivité thermique du milieu réel est donc approché par le tenseur de Hashin-Shtrikman ($\boldsymbol{\lambda}_{eq} \approx \boldsymbol{\lambda}^{HS}$). Le tenseur $\boldsymbol{\lambda}^{HS}$ dépend du milieu de référence choisi et de la conductivité thermique $\boldsymbol{\lambda}_0$.

En s'intéressant à l'approche duale, il est possible de déterminer l'estimation de Hashin-Shtrikman pour le tenseur de résistivité thermique effective \mathbf{R}_{HS} (équation 5.92 de [BBG01]) tel que :

$$\begin{aligned} \mathbf{R}^{HS} &= \left[\sum_{r=1}^2 c_r \mathbf{R}_r (\mathbf{R}^* + \mathbf{R}_r)^{-1} \right] \left[\sum_{s=1}^2 c_s (\mathbf{R}^* + \mathbf{R}_s)^{-1} \right]^{-1} \\ &= \left[\sum_{r=1}^2 c_r (\mathbf{R}^* + \mathbf{R}_r)^{-1} \right]^{-1} - \mathbf{R}^* \\ &= \mathbf{R}_0 + \left(\sum_{r=1}^2 c_r \mathbf{R}_0 \mathbf{T}_r \mathbf{R}_0 \right) \left(\mathbf{I} - \sum_{r=1}^2 c_r \mathbf{Q}^0 \mathbf{R}_0 \mathbf{T}_r \mathbf{R}_0 \right)^{-1} \end{aligned} \quad (1.113)$$

où \mathbf{Q}^0 est le tenseur équivalent au tenseur \mathbf{P}^0 dans l'approche duale.

Étudions l'ensemble des solutions que peut prendre le tenseur de Hashin-Shtrikman suivant le choix de milieu de référence effectué à partir de l'expression de la fonction de densité d'énergie décrite dans l'équation 1.88 afin de choisir au mieux la valeur de λ_0 :

$$\frac{1}{2} \mathbf{e}^* \boldsymbol{\lambda} \mathbf{e}^* = \frac{1}{2} \mathbf{e}^* \boldsymbol{\lambda}_0 \mathbf{e}^* + \mathbf{e}^* \boldsymbol{\tau} + \frac{1}{2} \boldsymbol{\tau} (\boldsymbol{\lambda}_0 - \boldsymbol{\lambda})^{-1} \boldsymbol{\tau} \quad (1.114)$$

La fonctionnelle de Hashin-Shtrikman est stationnaire à la polarisation réelle $\boldsymbol{\tau}$ (section 5.3.4. de [BBG01]) et le point stationnaire dépend des valeurs que peut prendre le terme $(\lambda - \lambda_0)$. Suivant le choix du milieu de référence, il est possible de borner le tenseur de conductivité thermique effective :

$$\begin{aligned} \forall \lambda_0, \quad \forall r \in \{1, 2\} \quad \lambda_0 \geq \lambda_r \quad \lambda^{HS} \text{ est une borne supérieure de } \bar{\lambda} \\ \forall \lambda_0, \quad \forall r \in \{1, 2\} \quad \lambda_0 \leq \lambda_r \quad \lambda^{HS} \text{ est une borne inférieure de } \bar{\lambda} \end{aligned} \quad (1.115)$$

On fait alors l'hypothèse d'une distribution isotrope de phases. Dans ce cas, le tenseur \mathbf{P}^0 est identique au tenseur \mathbf{P}^0 relatif au problème d'Eshelby associé à une inclusion sphérique [BBG01]. Cette identification conduit aussi à remarquer que le tenseur $\boldsymbol{\lambda}^*$ est équivalent au tenseur d'influence introduit par Hill [Hil65] en mécanique (voir équation 1.110).

Dans le cas d'un milieu biphasé avec $\tau_i = 0$, les bornes inférieure $\boldsymbol{\lambda}_-^{HS}$ et supérieure $\boldsymbol{\lambda}_+^{HS}$ de Hashin-Shtrikman sont obtenues en choisissant le plus petit des minorants de la conductivité thermique effective (soit la conductivité thermique des inclusions) et le plus grand de ses majorants (soit celle de la matrice) :

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\lambda}_-^{HS} &= \mathbf{0} \\ \boldsymbol{\lambda}_+^{HS} &= \frac{1 - c_i}{1 + (c_i/2)} \boldsymbol{\lambda}_m \end{aligned} \quad (1.116)$$

La borne supérieure de Hashin-Shtrikman $\boldsymbol{\lambda}_+^{HS}$ est identique au tenseur de conductivité thermique effective donné par le modèle de Maxwell [Max73]. De plus, dans le cas d'étude $\boldsymbol{\tau} \approx \mathbf{0}$, la borne inférieure de Hashin-Shtrikman $\boldsymbol{\lambda}_-^{HS}$ est similaire à la borne inférieure de Wiener.

On peut vérifier que dans le cas où le milieu de référence conduit beaucoup moins bien la chaleur que les constituants, cela induit que le tenseur $\boldsymbol{\lambda}^*$ est négligeable devant tous les $\boldsymbol{\lambda}_r$ (avec $r \in \{1, 2\}$). L'expression 1.111 se réduit à celle de $\boldsymbol{\lambda}_2^W$ (équation 1.67). En suivant le même raisonnement, dans le cas où le milieu de référence conduit beaucoup plus la chaleur que les constituants alors on obtient $\boldsymbol{\lambda}_1^W$ (équation 1.65) en partant de l'expression 1.113. Le tenseur $\boldsymbol{\lambda}^{HS}$ est une fonction croissante du milieu de référence [BBG01] pour les milieux biphasés en distribution isotrope. Les estimations de Hashin-Shtrikman respectent donc alors les bornes de Wiener [Wie12] quel que soit le milieu de référence.

1.4.2.3. Modèle basé sur la fraction volumique, la morphologie et la distribution spatiale des inclusions ($D = 3$)

Le modèle de Castañeda et Willis (PCW) [PW95] a été développé en mécanique pour des comportements élastiques linéaires de microstructures formées d'inclusions (ou particules) disjointes dans une phase de matrice continue. Il permet de prendre en compte deux indicateurs

indépendants donnant respectivement la morphologie des inclusions et leur distribution spatiale dans l'expression de la propriété effective. La formulation théorique de ce modèle dans le cas de la thermique a été effectuée en s'appuyant sur l'article de Gruescu et al. [Gru+07], l'article de Chen [Che+15] et le livre de Bornert et al. [BBG01].

Ce modèle permet de construire à l'aide de l'approche de Hashin-Shtrikman des estimations pour le comportement effectif en se reposant sur un choix de champs de polarisation homogène par particule (et non homogène par phase comme dans la section précédente). Étant donné que ce modèle se base sur l'approche Hashin-Shtrikman, les estimations de ce modèle pour les tenseurs de conductivité thermique estimés respectent naturellement les bornes de Wiener [Wie12].

La microstructure étudiée est caractérisée par une phase de matrice continue (de conductivité thermique λ_m) et de $1 \dots p$ phases d'inclusions (ou particules) dont la répartition spatiale est plus ou moins aléatoire. Les particules sont supposées pouvoir se toucher mais pas se recouvrir, ce qui traduit le fait qu'en tout point \mathbf{x} du volume d'étude V il ne peut y avoir qu'une seule phase. La distribution des centres des particules est supposée ellipsoïdale afin d'estimer la contribution des interactions des particules entre elles. Il a été montré [PW95; BBG01] que la positivité du tenseur effectif de Ponte-Castañeda et Willis (noté λ^{PCW}) n'est vérifiée que s'il existe une quantité « suffisante » de matrice entre les particules. L'existence de cette quantité « suffisante » de matrice entre les particules disjointes est vérifiée si pour toutes les phases d'inclusions $k \in [1, p]$, le volume délimité par l'ellipsoïde I_d^k , appelée « ellipsoïde de sûreté », lié à cette phase d'inclusions k et dont la forme est associée à la distribution spatiale ellipsoïdale supposée des centres d'inclusions, circonscrit à la particule n dont le volume est noté I_n^k , n'interpénètre aucun autre ellipsoïde de sûreté (figure 1.17). Cette condition assure à la fois la positivité du tenseur effectif et la compatibilité géométrique entre les conditions de non-recouvrement des inclusions et de distribution ellipsoïdale de leurs centres.

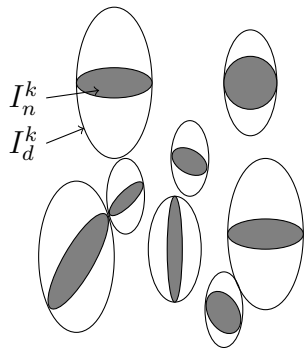


FIGURE 1.17. – Représentation des ellipsoïdes de sûreté [BBG01]

Les tenseurs \mathbf{P}_{ns}^0 de Hashin-Shtrikman donnant l'effet du voisinage de la particule s sur la particule n s'explicitent alors dans ce cas selon l'équation 5.148 de [BBG01] :

$$\forall (n, s) \in [1, p]^2, \quad \mathbf{P}_{ns}^0 = \delta_{ns} \mathbf{P}_{I_n}^0 - c_s \mathbf{P}_d^0 \quad (1.117)$$

où I_n fait référence à la forme I de la particule n et d à la symétrie de la distribution des centres (supposée identique pour toutes les paires de particules).

En explicitant le champ de polarisation moyen et en choisissant la matrice comme milieu de référence, l'estimation de Ponte-Castañeda et Willis pour le tenseur de conductivité thermique effective (équation 3.20 de l'article de Ponte-Castañeda et Willis [PW95]) s'exprime alors [Gru+07; Dua+06] :

$$\boldsymbol{\lambda}^{PCW} = \boldsymbol{\lambda}_m + \left[\mathbf{I} - \sum_{k=1}^p c_k \mathbf{T}_k \mathbf{P}_d^m \right]^{-1} \left[\sum_{k=1}^p c_k \mathbf{T}_k \right] \quad (1.118)$$

où \mathbf{T}_k est le tenseur lié à la phase d'inclusions $k \in [1, p]$ défini tel que :

$$\mathbf{T}_k = \left[(\boldsymbol{\lambda}_k - \boldsymbol{\lambda}_m)^{-1} + \mathbf{P}_{I_n}^m \right]^{-1} \quad (1.119)$$

Les tenseurs $\mathbf{P}_{I_n}^m$ et \mathbf{P}_d^m sont des tenseurs d'interaction : $\mathbf{P}_{I_n}^m$ quantifie la morphologie de la phase d'inclusions et \mathbf{P}_d^m permet de tenir compte de la distribution ellipsoïdale des centres. Du fait que les tenseurs d'interaction $\mathbf{P}_{I_n}^m$ et \mathbf{P}_d^m sont identiques à des tenseurs de polarisation relatifs à des problèmes d'inclusions dans un milieu infini (sous l'hypothèse d'une forme sphéroïdale des inclusions et d'une distribution spatiale des centres des particules à symétrie sphéroïdale). Ils peuvent donc être aussi définis de la façon suivante :

$$\mathbf{P}_j^m = (\boldsymbol{\lambda}_m)^{-1} \left(Q_j (\mathbf{u}_1 \otimes \mathbf{u}_1 + \mathbf{u}_2 \otimes \mathbf{u}_2) + (1 - 2Q_j) \mathbf{u}_3 \otimes \mathbf{u}_3 \right) \quad \text{avec } j = \{I_n, d\} \quad (1.120)$$

Les paramètres Q_{I_n} et Q_d dépendent des paramètres géométriques du sphéroïde étudié (voir équation A.5). Q_d est associé à l'ellipsoïde de sûreté décrivant la distribution ellipsoïdale des centres qui est caractérisée par le facteur de forme ω_d . Le paramètre Q_{I_n} est, quant à lui, associé à l'inclusion représentant chaque particule n caractérisée par un facteur de forme ω_i .

Le tenseur \mathbf{T}_k ($k \in [1, p]$) peut aussi être défini à partir d'un tenseur de localisation \mathbf{A}_k par : $\mathbf{T}_k = (\boldsymbol{\lambda}_k - \boldsymbol{\lambda}_m) \mathbf{A}_k$. L'équation 1.118 se réécrit alors :

$$\boldsymbol{\lambda}^{PCW} = \boldsymbol{\lambda}_m + \left[\mathbf{I} - \sum_{k=1}^p c_k (\boldsymbol{\lambda}_k - \boldsymbol{\lambda}_m) \mathbf{A}_k \mathbf{P}_d^m \right]^{-1} \sum_{k=1}^p c_k (\boldsymbol{\lambda}_k - \boldsymbol{\lambda}_m) \mathbf{A}_k \quad (1.121)$$

En posant $\mathbf{H} = \sum_{k=1}^p c_k \mathbf{T}_k$, un développement limité en c_i à l'ordre 2 de l'équation 1.118 a été réalisé afin d'évaluer l'importance de l'influence des deux paramètres d'interaction $\mathbf{P}_{I_n}^m$ et \mathbf{P}_d^m sur le tenseur de conductivité thermique effective [PW95] :

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\lambda}^{PCW} &= \boldsymbol{\lambda}_m + \left[\mathbf{H}^{-1} - \mathbf{P}_d^m \right]^{-1} \\ &\approx \boldsymbol{\lambda}^{DIL} + \mathbf{H} \mathbf{P}_d^m \mathbf{H} \end{aligned} \quad (1.122)$$

où $\boldsymbol{\lambda}^{DIL}$ est l'expression du tenseur de conductivité thermique effective exprimé avec le modèle « milieu dilué » (équation 1.75).

En comparant ce modèle avec le modèle « milieu dilué » (équation 1.75), le modèle PCW apparaît comme une amélioration du modèle « milieu dilué » car le facteur correctif $\mathbf{H} \mathbf{P}_d^m \mathbf{H}$ permet de prendre en compte les interactions des inclusions entre elles sous l'hypothèse d'une

distribution ellipsoïdale de leurs centres.

La morphologie des inclusions au travers des tenseurs $\mathbf{P}_{I_n}^m$ (qui se trouvent dans l'expression du tenseur \mathbf{H}) influence la conductivité thermique effective à l'ordre 1 en c_i tandis que la distribution spatiale au travers du tenseur \mathbf{P}_d influence λ_{eq} à l'ordre 2 (équation 1.75). Dans ce modèle, l'effet de la distribution spatiale est donc moins important que celui de la morphologie des pores sur la conductivité thermique.

On s'intéresse par la suite à un matériau constitué de deux phases, c'est-à-dire d'une matrice continue et d'une seule phase d'inclusions. L'impact des inclusions volumiques sphéroïdales sur ce modèle (voir équation 1.118) se fait à travers trois paramètres microstructuraux ($D = 3$) :

- de la concentration de la famille d'inclusions c_i ,
- de la forme des inclusions avec le facteur de forme ω_i se trouvant dans l'expression du tenseur d'interaction $\mathbf{P}_{I_n}^m = \mathbf{P}_I^m$,
- de la distribution ellipsoïdale des centres des inclusions avec le facteur de forme ω_d se trouvant dans l'expression du tenseur \mathbf{P}_d^m .

Comme dans l'article de Ponte-Castañeda et Willis [PW95], il est possible de définir une fraction volumique h_i caractéristique de la concentration d'ellipsoïdes de sûreté dans la microstructure d'étude suivant deux cas :

- $\omega_d > \omega_i$:

$$\frac{c_i}{\omega_i} = \frac{h_i}{\omega_d} \quad (1.123)$$

où h_i est tel que $0 < h_i < 1$.

Étant donné que c_i , ω_i et ω_d sont liés, les valeurs maximales et minimales des rapports d'aspect le sont aussi. À fraction volumique de porosité ouverte c_i et facteur de forme d'inclusions de sûreté ω_d donnés, on a : $\omega_{i(min)} = \omega_d c_i$. À c_i et facteur de forme d'hétérogénéités ω_i donnés, on a : $\omega_{d(max)} = \omega_i / c_i$.

- $\omega_d < \omega_i$:

$$c_i = h_i \left(\frac{\omega_d}{\omega_i} \right)^2 \quad (1.124)$$

À fraction volumique de porosité ouverte c_i et facteur de forme d'inclusions de sûreté ω_d donnés, on a : $\omega_{i(max)} = \omega_d / \sqrt{c_i}$ et, de même, à c_i et ω_i donnés, on a : $\omega_{d(min)} = \omega_i \sqrt{c_i}$.

Ainsi, la sélection d'un de ces trois paramètres (c_i , ω_i et ω_d) est contingentée par les deux autres.

Les expressions de la conductivité thermique effective approchée par le tenseur PCW seront développées par la suite à partir de l'équation 1.118 dans le cas où une seule phase d'inclusions est présente dans le matériau. Seuls deux cas de distribution spatiale sont envisagés (l'alignement de toutes les inclusions suivant une direction préférentielle soit $W(\theta) = \delta(\theta)$ ou la distribution angulaire aléatoire uniforme des inclusions soit $W(\theta) = \frac{1}{2\pi}$) et deux morphologies d'inclusions (« penny-shape » soit $\omega_i \ll 1$ ou sphériques soit $\omega_i = 1$).

- Alignement de tous les axes de symétrie de révolution des inclusions et des ellipsoïdes de sûreté selon \mathbf{u}_y

L'alignement des inclusions dans le domaine d'étude donne une expression simplifiée de l'équa-

tion générale 1.118 (équation 3.25 de [PW95]) :

$$\boldsymbol{\lambda}^{PCW} = \boldsymbol{\lambda}_m + c_i \left[(\boldsymbol{\lambda}_i - \boldsymbol{\lambda}_m)^{-1} + (1 - c_i) \mathbf{P}^m \right]^{-1} \quad (1.125)$$

où le tenseur d'interaction est défini à l'aide de 1.107 et 1.117 tel que $\mathbf{P}^m = \frac{1}{1 - c_i} (\mathbf{P}_I^m - c_i \mathbf{P}_d^m)$.

En faisant intervenir les tenseurs de dépolérisation associés aux tenseurs d'interaction, on obtient :

$$\boldsymbol{\lambda}^{PCW} = \boldsymbol{\lambda}_m \left\{ \mathbf{I} + (\tau - 1) \left[\frac{1}{c_i} (\mathbf{I} + (\tau - 1) \mathbf{S}_I^m) - (\tau - 1) \mathbf{S}_d^m \right]^{-1} \right\} \quad (1.126)$$

Dans le cas $\tau = 0$, on a alors :

$$\boldsymbol{\lambda}^{PCW} = \boldsymbol{\lambda}_m \left\{ \mathbf{I} - \left[\frac{1}{c_i} (\mathbf{I} - \mathbf{S}_I^m) + \mathbf{S}_d^m \right]^{-1} \right\} \quad (1.127)$$

En remplaçant le tenseur de dépolérisation \mathbf{S}_I^m lié à la forme des inclusions, le tenseur PCW s'exprime pour des inclusions sphéroïdales de type « penny-shape » ($\omega_i \ll 1$) tel que :

$$\begin{aligned} \lambda^{PCW}_{(T)} &= \lambda_m \left\{ 1 - \left[\left(\frac{4}{(4/\omega_i) - \pi} \frac{c_i}{\omega_i} \right)^{-1} + Q_d \right]^{-1} \right\} \\ \lambda^{PCW}_{(L)} &= \lambda_m \left\{ 1 - \left[\left(\frac{2}{\pi} \frac{c_i}{\omega_i} \right)^{-1} + 1 - 2Q_d \right]^{-1} \right\} \end{aligned} \quad (1.128)$$

Il reste encore à déterminer le paramètre morphologique Q_d dans le cas d'un alignement préférentiel de la phase d'inclusions suivant une direction pour compléter l'expression des modèles. Du fait que les inclusions étudiées possèdent des rapports de forme tels que $\omega_i \ll 1$, il paraît judicieux de choisir une distribution spatiale des centres vérifiant $\omega_d > \omega_i$. Les paramètres (c_i, ω_i et ω_d) sont alors reliés par 1.123. Deux possibilités de distribution ellipsoïdale des centres sont alors envisageables [PW95] :

- une distribution ellipsoïdale des centres prolata (soit $\omega_d \geq 1$) qui correspond au cas où les inclusions sont plus éloignées dans les plans transverses à leur axe de révolution.
- une distribution ellipsoïdale des centres oblate (soit $\omega_d \leq 1$) qui correspond au cas où les inclusions sont plus éloignées dans le plan lié à leur axe de révolution par rapport aux plans transverses.

• Distribution angulaire aléatoire des inclusions

La dispersion équiprobable d'une famille d'inclusions associée à une distribution isotrope des centres des particules induit une conductivité thermique isotrope (équation 3.27 de [PW95]) :

$$\boldsymbol{\lambda}^{PCW} = \boldsymbol{\lambda}_m \left\{ \mathbf{I} + \left[\mathbf{I} + c_i \langle \mathbf{T}_i \rangle \mathbf{P}^d \right]^{-1} c_i \langle \mathbf{T}_i \rangle \right\} \quad (1.129)$$

Dans le cas d'une distribution spatiale isotrope, soit $\omega_d = 1$ et $\mathbf{S}_d^m = \frac{1}{3} \mathbf{I}$, la conductivité thermique s'exprime alors de la façon suivante :

— pour des inclusions de type « penny-shape »

$$\boldsymbol{\lambda}^{PCW} = \lambda_m \left\{ 1 - \left[\left(\frac{2}{3} \frac{4 + 3\pi\omega_i}{4(4 - \pi\omega_i)} \frac{c_i}{\omega_i} \right)^{-1} + \frac{1}{3} \right]^{-1} \right\} \mathbf{I} \quad (1.130)$$

— pour des inclusions sphériques : Remarquons que l'on retrouve l'approximation de Maxwell [Max73] dans le cas où toutes les particules sont sphériques ($\mathbf{P}_{I_n}^m = \frac{1}{3}(\boldsymbol{\lambda}_m)^{-1}$) et distribuées de façon aléatoire ($\mathbf{P}_d^m = \frac{1}{3}(\boldsymbol{\lambda}_m)^{-1}$).

Distribution angulaire $W(\theta)$	$\boldsymbol{\kappa}_{1,i}^{PCW} - \boldsymbol{\kappa}_{1,i}^{DIL}$
Alignement selon \mathbf{u}_y : $W(\theta) = \frac{\delta(\theta)}{2\pi \sin\theta}$	$Q_d c_i^2 (\mathbf{e}_1 \otimes \mathbf{e}_1 + \mathbf{e}_2 \otimes \mathbf{e}_2) + (1 - 2Q_d) \left[\frac{2}{\pi} \frac{c_i}{\omega_i} \right]^2 \mathbf{e}_3 \otimes \mathbf{e}_3$
Aléatoire : $W(\theta) = \frac{1}{4\pi}$	$\frac{1}{3} \left\{ \frac{1}{6} \frac{c_i}{\omega_i} \right\}^2 \mathbf{I}$

TABLEAU 1.1. – Comparaison des réponses du modèle PCW et du modèle « milieu dilué » pour des inclusions penny-shape dans le cas où $\tau \approx 0$

La comparaison des deux modèles (« milieu dilué » et PCW) permet de mettre en exergue l'effet des interactions sur la conductivité thermique effective.

1.4.3. Modèles numériques pour l'évaluation de microstructures poreuses ou fissurées

Les méthodes d'homogénéisation numériques permettent d'approximer les propriétés effectives d'un matériau périodique en résolvant numériquement des équations aux dérivées partielles (EDP) basées sur la formulation faible du problème étudié sur un VER caractéristique de ce matériau.

La méthode la plus utilisée [Imb79 ; MBS00 ; IP99 ; Mou+06 ; Gro+04] est la méthode des éléments finis (MEF ou FEM en anglais) qui consiste à discrétiser le VER en un certain nombre de sous-domaines (ou éléments) et à approcher la propriété effective recherchée en résolvant des EDP simplifiées sur chacun des éléments du VER. La création d'un maillage qui soit conforme au VER présente cependant une grande complexité de mise en œuvre.

Une alternative à la méthode des éléments finis est la méthode basée sur les transformées de Fourier rapides (FFT pour Fast Fourier Transform en anglais) [MS98 ; Ngu10 ; SMK17]. Elles présentent l'intérêt de ne pas s'appuyer sur un maillage du volume d'étude et permettent donc de s'affranchir de la problématique du maillage qui peut générer des calculs coûteux lorsque les microstructures sont finement décrites. De plus, les méthodes FFT sont adaptées à la parallélisation [Van92] ce qui permet donc de réaliser des calculs plus volumineux.

Pour ces différentes raisons, il a été choisi d'utiliser les méthodes basées sur les algorithmes FFT dans cette étude et le principe de ces méthodes est présenté par la suite.

1.4.3.1. Homogénéisation numérique utilisant des algorithmes FFT

Les méthodes utilisant des algorithmes FFT (dites aussi méthodes FFT) ont été introduites dans les années 90 [MS98]. Ces algorithmes peuvent être utilisés afin de calculer les propriétés

effectives à partir entre autres d'images numériques segmentées du matériau étudié.

Le problème de localisation s'écrit sur un VER correspondant à une « cellule » périodique (voir section 1.4.3.2) notée Y . Les conditions imposées sur les bords du VER présentées dans la section 1.4.1.1 doivent être reconsidérées pour prendre en compte la périodicité des champs.

Pour un gradient de température \mathbf{e}_0 donné, un champ de température défini sur Y est recherché sous la forme :

$$T(\mathbf{x}) = -\mathbf{e}_0 \cdot \mathbf{x} + T^*(\mathbf{x}) \quad \Leftrightarrow \quad \mathbf{e}(\mathbf{x}) = \mathbf{e}_0 - \nabla T^*(\mathbf{x}) \quad (1.131)$$

avec un champ de température T^* périodique.

Le problème thermique local sur Y s'écrit alors :

$$\begin{cases} \operatorname{div} \boldsymbol{\sigma} = 0 \\ \boldsymbol{\sigma}(\mathbf{x}) = \boldsymbol{\lambda}(\mathbf{x}) \mathbf{e}(\mathbf{x}) \\ T^* \text{ périodique} \\ \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n} \text{ anti-périodique} \end{cases} \quad (1.132)$$

L'idée est par la suite d'assimiler le milieu réel à un milieu fictif homogène équivalent de conductivité thermique $\boldsymbol{\lambda}_0$, d'où :

$$\boldsymbol{\sigma}(\mathbf{x}) = \boldsymbol{\lambda}_0 \mathbf{e}(\mathbf{x}) + \boldsymbol{\tau}(\mathbf{x}) \quad (1.133)$$

où le champ de polarisation $\boldsymbol{\tau}$, a priori inconnu, est donné par l'équation 1.87, soit pour tout $\mathbf{x} \in Y$:

$$\boldsymbol{\tau}(\mathbf{x}) = (\boldsymbol{\lambda}(\mathbf{x}) - \boldsymbol{\lambda}_0) \mathbf{e}(\mathbf{x}) \quad (1.134)$$

On obtient ainsi l'équation de Lippmann et Schwinger (équation 1.93) dans l'espace réel et dans l'espace de Fourier :

$$\begin{cases} \forall \mathbf{x} \in Y & \mathbf{e}(\mathbf{x}) = -\boldsymbol{\Gamma}^0 * \boldsymbol{\tau}(\mathbf{x}) + \mathbf{e}_0 \\ \forall \boldsymbol{\xi} \neq 0 & \widehat{\mathbf{e}}(\boldsymbol{\xi}) = -\widehat{\boldsymbol{\Gamma}}^0 \cdot \widehat{\boldsymbol{\tau}}(\boldsymbol{\xi}) + \mathbf{e}_0 \quad \text{et} \quad \widehat{\mathbf{e}}(0) = \mathbf{e}_0 \end{cases} \quad (1.135)$$

où $\boldsymbol{\Gamma}^0$ est l'opérateur de Green périodique associé au milieu homogène de conductivité thermique $\boldsymbol{\lambda}_0$.

La résolution du problème est basée sur une procédure itérative qui utilise la relation 1.134 dans l'espace réel et l'équation de Lippmann et Schwinger (équation 1.135) dans l'espace de fréquentiel. Les transformées de Fourier des différents champs sont calculées numériquement en utilisant les algorithmes de transformées de Fourier rapides afin d'accélérer les calculs numériques. L'algorithme de FFT est présenté ci-dessous :

Initialisation :

$$\begin{cases} \mathbf{e}^0(\mathbf{x}) = \bar{\mathbf{e}} & \forall \mathbf{x} \in Y \\ \boldsymbol{\sigma}^0(\mathbf{x}) = \boldsymbol{\lambda}(\mathbf{x}) \bar{\mathbf{e}} & \forall \mathbf{x} \in Y \end{cases}$$

Itération $i + 1$: les champs $\mathbf{e}^i(\mathbf{x})$ et $\boldsymbol{\sigma}^i(\mathbf{x})$ sont connus pour tous les points \mathbf{x} de Y

1. Définition du tenseur de polarisation pour l'étape i : $\boldsymbol{\tau}^i(\mathbf{x}) = \boldsymbol{\sigma}^i(\mathbf{x}) - \boldsymbol{\lambda}_0 \mathbf{e}^i(\mathbf{x})$,

2. Passage dans l'espace fréquentiel : $\hat{\boldsymbol{\tau}}^i = \mathcal{F}(\boldsymbol{\tau}^i)$,
3. Test de convergence des calculs,
4. Détermination du champ de vecteur $i + 1$ lié au gradient de température :
 $\hat{\boldsymbol{e}}^{i+1}(\boldsymbol{\xi}) = -[\boldsymbol{\Gamma}^0 * \hat{\boldsymbol{\tau}}](\boldsymbol{\xi}) \quad \forall \boldsymbol{\xi} \neq \mathbf{0} \quad \text{et} \quad \hat{\boldsymbol{e}}^{i+1}(\mathbf{0}) = \mathbf{E}$
5. Passage dans l'espace temporel : $\boldsymbol{e}^{i+1} = \mathcal{F}^{-1}(\hat{\boldsymbol{e}}^{i+1})$
6. Détermination du champ de vecteur courant de chaleur locale $i + 1$ (loi de Fourier - équation 1.1) :
 $\boldsymbol{\sigma}^{i+1}(\boldsymbol{x}) = \lambda(\boldsymbol{x}) \boldsymbol{e}^{i+1}(\boldsymbol{x})$

où \mathcal{F} et \mathcal{F}^{-1} sont respectivement la transformée de Fourier et la transformée de Fourier inverse.

L'évaluation de la convergence de l'algorithme se fait à l'aide de l'erreur E^i commise à chaque itération i qui est évaluée à l'aide de la formule suivante :

$$E^i = \frac{\sqrt{\langle \|\text{div}(\boldsymbol{\sigma}^i)\|^2 \rangle}}{\|\langle \boldsymbol{\sigma}^i \rangle\|} = \frac{\sqrt{\langle \|\boldsymbol{\xi} \hat{\boldsymbol{\sigma}}^i(\boldsymbol{\xi})\|^2 \rangle}}{\|\langle \hat{\boldsymbol{\sigma}}^i(\mathbf{0}) \rangle\|} \quad (1.136)$$

Lorsque cette erreur est inférieure à un critère d'arrêt fixé préalablement, la convergence est atteinte et l'algorithme sort de la procédure itérative.

Des oscillations numériques aux hautes fréquences sont souvent observées dans la solution numérique FFT obtenue avec l'algorithme de base [MS98]. Un couplage de DFT et de schémas à différences finies pour le calcul des dérivées partielles spatiales peut être utilisé afin d'améliorer la réponse obtenue en se comportant comme des filtres passe-bas.

Cette méthode de filtrage a été développée pour la première fois en 2001 par Neumann [NHM01] avec un schéma de différences finies centrées. Willot a développé deux méthodes de filtrage basées l'une sur un schéma de différences finies avant et arrière [Wil] et l'autre sur les différences finies centrées sur une grille pivotée aussi appelée « rotated scheme » offrant de plus l'avantage d'une résolution plus rapide des calculs [Wil15]. Enfin, Schneider a proposé un schéma utilisant les différences finies mais sur une grille décalée [SOK16]. Cette méthode est efficace pour l'étude des propriétés mécaniques 3D des matériaux poreux.

1.4.3.2. Cellules périodiques : génération de microstructures

Les cellules périodiques utilisées pour les calculs FFT peuvent être générées numériquement. En fonction du problème étudié et de la microstructure du matériau, on peut utiliser des algorithmes permettant de remplir l'espace (on parle alors de pavage de l'espace) qui conduisent à des microstructures où aucune phase ne joue le rôle de matrice ou des algorithmes réalisant des tirages aléatoires d'inclusions dans une phase matricielle.

Pavage de l'espace

Il existe différentes méthodes de pavage (ou diagrammes) de l'espace afin de générer des microstructures de type agrégats : le schéma de Voronoï, Laguerre [LZ08] et Johnson-Mehl [Mø192].

Il a été choisi de ne présenter ici que le diagramme le plus utilisé (Voronoi). Pour plus de détails sur les autres diagrammes, il est conseillé de lire la thèse de J. Soulacroix [Sou14].

Le diagramme de Voronoi [Vor08 ; TOO83] est utilisé afin de générer des microstructures 2D ou 3D constituées d'agrégats [Pou04 ; Zeg05 ; Zan09]. La construction d'une microstructure constituée d'agrégats avec ce diagramme a lieu en deux étapes :

- Le tirage de N germes de Voronoi est réalisé de façon aléatoire dans la microstructure. La position d'un germe $i \in [1, N]$ est notée p_i .
- Le pavage de l'espace en cellules de Voronoi (régions adjacentes) ayant chacune un volume V_i ($i \in [1, N]$) se fait en évaluant pour tout point x du volume étudié la relation suivante :

$$x \in V_i \iff \min_{j \in [1, N]} (||p_j - x||) = ||p_i - x|| \quad (1.137)$$

Cela signifie que tous les points d'une cellule i de Voronoi sont plus proches de son germe de position p_i que de tout autre germe du volume. Les cellules de Voronoi sont de forme convexe et polyédrique. Pour une cellule i , tous les points étant à mi-distance du germe i et d'un autre germe voisin forment les frontières de cette cellule (ces frontières sont aussi appelées arrêtes de Voronoi).

Tirage aléatoire

Le diagramme de Voronoi fait intervenir un tirage aléatoire de la position des germes. Il existe plusieurs algorithmes de tirage permettant de simuler une distribution et répartition aléatoires de sphères et il a été choisi d'en présenter deux :

- l'algorithme booléen [HE14 ; AWJ15],
- l'algorithme RSA (pour *Random Sequential Adsorption* [Tor02 ; TUS06 ; ZT13]).

Le modèle booléen est un modèle versatile de positionnement de germes dans une microstructure. Un champ aléatoire $N(B)$ de points suivant une loi de Poisson est généré et possède une fonction de probabilité telle que :

$$P[N(B) = x] = \frac{\mu^x}{x!} e^{-\mu} \quad (1.138)$$

où μ est le paramètre de Poisson.

Dans un champ booléen, les germes sont distribués indépendamment les uns des autres. Lorsqu'un diagramme de Voronoi est généré avec un tirage booléen suivant une loi de probabilité de Poisson alors le diagramme est dit de Poisson-Voronoi.

Lorsque le schéma booléen est utilisé pour générer des sphères (où chaque germe généré correspond au centre d'une sphère), l'espérance $E[c_v]$ de la fraction volumique c_v de ces sphères de taille quelconque vaut [Mat75] :

$$E[c_v] = 1 - \exp(-\Lambda_P \overline{V_S}) \quad (1.139)$$

où Λ_P est la densité des sphères générées et $\overline{V_S}$ le volume moyen des sphères.

L'algorithme RSA, quant à lui, permet de générer les sphères de façon aléatoire sans autoriser

que les centres soient trop proches les uns des autres. Ces sphères ne peuvent pas s'intersecter lorsqu'elles sont générées en RSA.

En effet, les germes sont introduits les uns après les autres. Si un nouveau germe n'engendre pas de recouvrement avec les sphères ayant pour centres les autres germes déjà générés, alors il est accepté. Sinon, le germe n'est pas introduit dans le nuage de germes généré et un nouveau tirage pour son positionnement a lieu. Les germes générés ne sont plus modifiés par la suite.

Pour des sphères de taille uniforme, l'espérance $E[c_v]$ de leur fraction volumique c_v (ou fraction de remplissage) est alors de :

$$E[c_v] = \Lambda_P \overline{V_S} \quad (1.140)$$

Du fait que les sphères doivent respecter une certaine distance de sécurité, il existe une fraction de remplissage de saturation c_{sat} de sphères qui vaut :

- $c_{sat} = 74,75979203\dots\%$ en 1D (solution analytique du problème de Rényi [Rén63]),
- $c_{sat} \approx 55\%$ en 2D (approximations numériques [HFJ86 ; TUS06 ; ZT13]),
- $c_{sat} \approx 38\%$ en 3D (approximations numériques [Coo88 ; TST91 ; ZT13]).

Il n'est pas possible d'atteindre des fractions volumiques de sphères dans un milieu supérieures à c_{sat} avec le schéma RSA.

1.5. Conclusions du chapitre

Dans ce chapitre, nous avons :

- décrit les principes des différentes techniques permettant de caractériser expérimentalement le comportement thermique de matériaux peu conducteurs comme les céramiques UO_2 (section 1.1.2). L'accent est mis sur la méthode Flash (section 1.1.3) qui est la méthode expérimentale de caractérisation du comportement thermique des céramiques UO_2 utilisée dans cette étude,
- présenté les différents paramètres impactant la conductivité thermique d'une céramique UO_2 (section 1.1.4). Pour rappel, nous nous intéressons à l'impact du réseau de porosité présent dans les céramiques sur la conductivité thermique de ces matériaux.
- expliqué les principes des méthodes de caractérisation des microstructures des céramiques UO_2 utilisées dans cette étude (section 1.2),
- détaillé des principes de techniques de traitement d'images qui sont utilisées lors de cette étude (section 1.3),
- décrit plusieurs modèles analytiques obtenus à l'aide d'une démarche par homogénéisation donnant l'influence de la microstructure sur la conductivité thermique dont le modèle « milieu dilué » (section 1.4.2.2) qui est utilisé dans cette étude pour estimer le comportement thermique des céramiques UO_2 (chapitres 3, 4 et 5),
- décrit des outils d'homogénéisation numérique (section 1.4.3) tels que la méthode basée sur la FFT qui est utilisée dans cette étude afin d'évaluer le comportement de microstructures réelles et numériques (chapitres 3, 4 et 5).
- présenté les méthodes de pavage et de tirage aléatoire (RSA et booléen) avec des sphères réparties de façon aléatoire. Ces méthodes sont utilisées par la suite pour générer des microstructures numériques (chapitres 4 et 5).

Dans le prochain chapitre, nous présenterons les matériaux et méthodes utilisés lors de cette

étude afin d'estimer l'impact de la porosité sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 .

2. Matériaux et méthodes

Dans ce chapitre, nous décrivons les matériaux considérés et le principe des méthodes utilisées dans cette étude.

Des céramiques UO_2 présentant des réseaux poreux très différents en termes de fractions volumiques de pores ont été fabriquées à l'aide du procédé de fabrication alternatif d'intérêt et à l'aide du procédé standard. Le principe de ces deux procédés est présenté dans la section 2.1.1. Le choix des échantillons fabriqués a été réalisé afin de simuler des réseaux poreux de céramiques vierges et irradiées (section 2.1.2). Les fractions volumiques des pores ont été mesurées par imbibition dans du bromobenzène (section 2.1.3).

Les conditions d'acquisition des différentes techniques d'imagerie (microscopie optique, MEB-FIB et tomographie X) sont présentées dans la section 2.2 ainsi que les traitements d'images réalisés afin d'extraire de ces images les réseaux de pores observés.

Les conditions permettant la caractérisation de la diffusivité thermique des céramiques UO_2 par méthode Flash à 50 °C sont présentées (section 2.3.1) ainsi que la relation permettant de remonter à l'impact de la porosité sur la conductivité thermique à partir de ces mesures (section 2.3.2). Les codes de simulation utilisés et les conditions des calculs FFT sont présentés dans la section 2.3.3.

2.1. Fabrication des céramiques UO_2

La céramique UO_2 est élaborée par métallurgie des poudres à partir d'une poudre d'oxyde d'uranium. Les caractéristiques de la microstructure de cette céramique sont induites par son procédé de fabrication.

2.1.1. Principe du procédé de fabrication des céramiques UO_2

Les étapes constituant le procédé de fabrication des céramiques UO_2 [FG68 ; DL78 ; BMP96] sont présentées sur la figure 2.1.

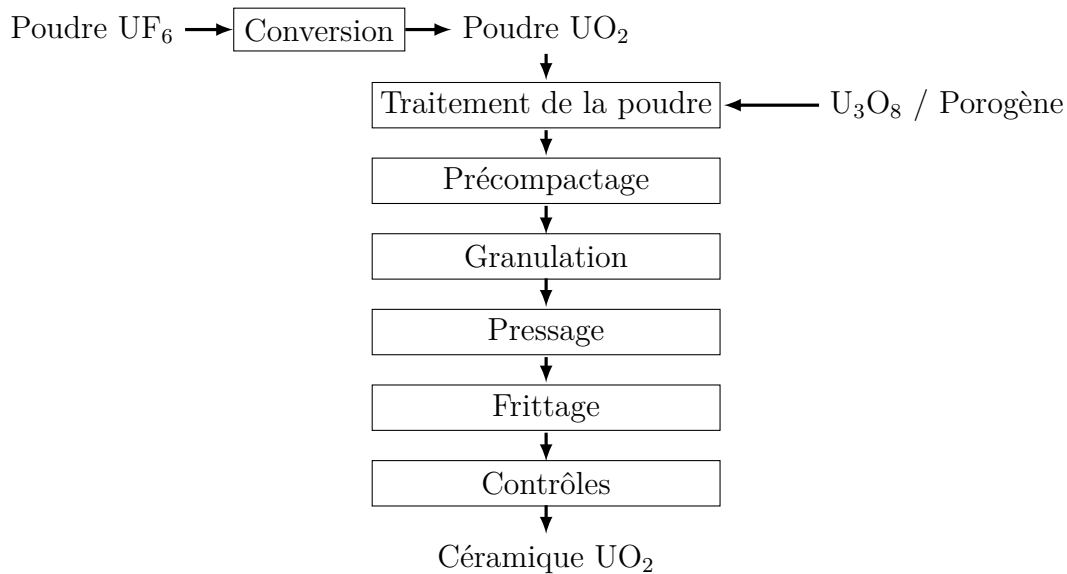


FIGURE 2.1. – Procédé de fabrication des céramiques UO_2 [BMP96]

La poudre d'oxyde d'uranium (UO_2) est obtenue par traitement d'une poudre d'hexafluorure d'uranium (UF_6). La poudre UO_2 subit ensuite plusieurs étapes de traitement pour améliorer ses propriétés mécaniques :

1. Le broyage et le tamisage permettent d'optimiser les caractéristiques granulométriques des poudres et ainsi d'augmenter la capacité à fritter (frittabilité) de la poudre.
2. Une certaine quantité de poudre U_3O_8 (provenant de rebuts de fabrication des céramiques UO_2) est aussi ajoutée aux poudres afin d'augmenter la résistance mécanique des échantillons mis en forme par la suite.
3. Un agent porogène peut aussi être ajouté aux poudres afin d'augmenter la fraction volumique de pores dans le matériau final. Une empreinte poreuse de cet additif organique est obtenue dans la microstructure des céramiques UO_2 après sa décomposition lors du frittage.

À cette étape du procédé, la poudre obtenue présente des propriétés mécaniques suffisantes pour permettre la cohésion mécanique de l'ébauche après mise en forme et frittage. Cependant, la coulabilité de cette poudre d' UO_2 est encore insuffisante pour remplir correctement les moules de presse. Pour améliorer cette propriété de la poudre, une étape de « précompactage » (avec une pression $P_{préc}$) suivie d'une étape de granulation sont réalisées. Les grains de poudre sont alors agglomérés sous forme de granulats de forme « sphéroïdale »¹. La mise en forme est ensuite effectuée par pressage uniaxial (avec une pression P_{press}) des granulats afin d'obtenir un comprimé dense et cohésif. Les comprimés ainsi formés (appelés aussi ébauches crues) présentent des dimensions géométriques proches de celles des échantillons finaux et un réseau de porosité interconnecté.

1. ayant la forme d'ellipsoïdes de révolution

Les ébauches crues sont frittées dans un four pendant 4 heures à 1700 °C afin de densifier le matériau. Le matériau se consolide par la formation d'interactions fortes entre les granulés. Ce traitement thermique est réalisé sous atmosphère réductrice et le produit obtenu est stœchiométrique ($O/U = 2$). Cette opération permet d'atteindre la spécification de densité visée pour la céramique fabriquée. Le frittage induit cependant un phénomène de retrait dans la pièce céramique et les dimensions du matériau sont alors réduites.

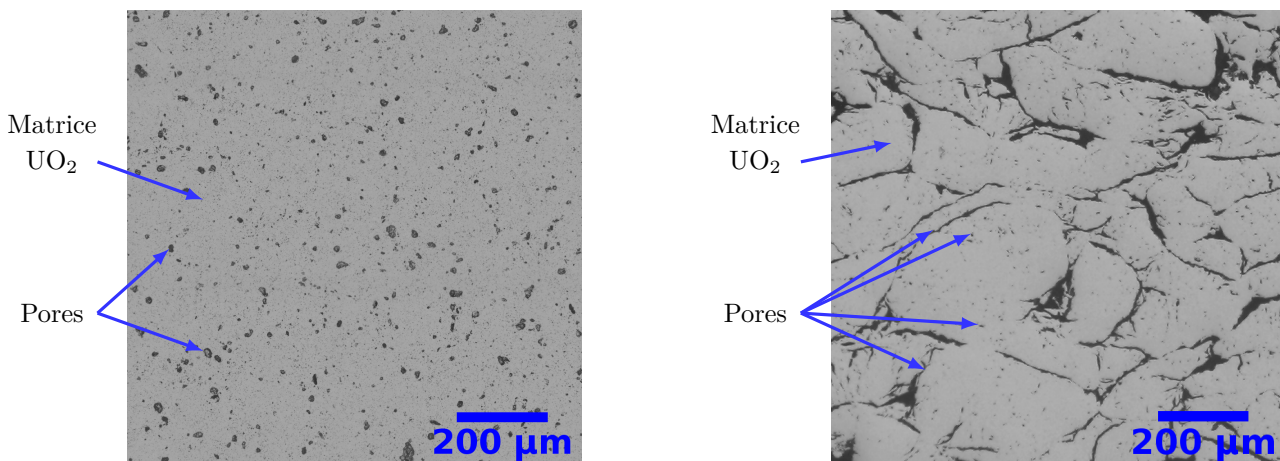
Dans le cas où un agent porogène est ajouté à la poudre UO_2 , celui-ci est calciné sous l'effet de la température au début de l'étape de frittage et des pores de la forme des particules de porogène sont formés dans la microstructure.

Les pièces obtenues sont par la suite contrôlées afin de s'assurer qu'elles respectent bien les spécifications auxquelles doivent répondre les céramiques (dimensions et absence de défauts d'aspect). Les échantillons qui ne passent pas le contrôle sont rebutés et sont, par la suite, retraités avant d'être réutilisés dans la fabrication des céramiques UO_2 .

Deux procédés de fabrication mettant en œuvre les étapes de fabrication présentées sur la figure 2.1 peuvent être différenciés :

- le procédé de référence (ou procédé standard) [GH17 ; BMP96] employé pour la fabrication des céramiques UO_2 industrielles utilisées dans les Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) du parc nucléaire français. Lors de ce procédé, la pression appliquée aux poudres lors du précompactage est inférieure à celle de mise en forme ($P_{préc} < P_{press}$).
- une méthode alternative de fabrication de céramiques UO_2 [FG68], à opposer au procédé de référence, où la pression appliquée aux poudres lors du précompactage est supérieure à celle de mise en forme ($P_{préc} > P_{press}$).

La figure 2.2 illustre une coupe (plan de coupe 2D) de microstructures caractéristiques obtenues avec les deux procédés de fabrication.



(a) Procédé de fabrication de référence

(b) Procédé de fabrication alternatif

FIGURE 2.2. – Observation de coupes par microscopie optique de microstructures de céramiques UO_2 obtenues suivant les deux procédés de fabrication

Sur la figure 2.2, la céramique UO_2 fabriquée à l'aide du procédé de fabrication de référence présente un réseau de pores isolés de forme quasi circulaire et répartis de façon aléatoire et homogène (figure 2.2a) tandis que la céramique fabriquée à l'aide du procédé de fabrication alternatif présente, en plus des pores isolés, un réseau interconnecté de pores de forme allongée (figure 2.2b).

Ces différences s'expliquent par les pressions appliquées lors des étapes de précompactage et de pressage. En effet, dans le cas des céramiques fabriquées par le procédé alternatif, le fait d'appliquer une pression $P_{press} < P_{préc}$ induit que la microstructure des céramiques garde l'empreinte des granulats qui les constituent ce qui n'est pas le cas des céramiques fabriquées avec le procédé de référence où $P_{préc} < P_{press}$.

Les microstructures des céramiques UO_2 sont impactées par le procédé de fabrication. Il est aussi attendu que ces différences de microstructures impactent les propriétés de ces matériaux.

2.1.2. Étude préliminaire et fabrication des céramiques UO_2

L'objectif de cette étude est d'évaluer l'impact du réseau de porosité sur la conductivité thermique pour des céramiques UO_2 vierges (c'est à dire non irradiées) et irradiées, fabriquées à l'aide des deux procédés de fabrication.

- La caractérisation du comportement thermique de céramiques irradiées est complexe car :
- peu de laboratoires possèdent des installations permettant de réaliser ce type de caractérisations sur céramiques irradiées. En Europe, seul le centre de recherche de Karlsruhe en Allemagne peut effectuer ce type d'expériences.
 - l'effet de l'irradiation vient s'ajouter à tous les effets qui impactent la conductivité thermique des céramiques vierges. Il est donc nécessaire de comprendre dans un premier temps le comportement thermique des céramiques vierges avant d'étudier leur comportement sous irradiation.

C'est pourquoi nous avons choisi dans cette étude d'évaluer l'impact de la porosité sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 à l'aide d'une étude sur des céramiques UO_2 vierges simulant les réseaux poreux de céramiques vierges et de céramiques irradiées.

Pour comprendre l'évolution de la porosité avec l'irradiation et comme aucune étude dans la littérature ouverte ne porte sur l'impact de la porosité sur les propriétés thermiques de céramiques fabriquées avec le procédé alternatif, nous avons étudié les céramiques fabriquées avec le procédé de référence :

- Les céramiques UO_2 vierges fabriquées pour les REP possèdent 5 à 6 % de fraction volumique de porosité totale. Ces matériaux présentent une porosité de fabrication sphérique de petite taille (de l'ordre du μm).
- Lors de l'irradiation d'une céramique REP, les réactions de fission des noyaux lourds présents induisent l'apparition de produits de fission et de défauts cristallins (comme par exemple des lacunes, des dislocations et des porosités) aussi nommés défauts d'irradiation [Noi09]. Les gaz de fission forment en particulier des pores, appelés « bulles », de volume inférieur à $1 \mu\text{m}^3$ [NDL08 ; Noi09 ; NZB18]. La porosité de fabrication voit sa

taille diminuer lors des premiers temps de l'irradiation, car le matériau continue à fritter légèrement, avant de se stabiliser. La forte modification de la microstructure des céramiques UO_2 lors de leur irradiation en réacteur participe à la dégradation progressive des propriétés thermiques de ces matériaux [Pak+14 ; BMP96].

Des échantillons représentatifs des microstructures des céramiques UO_2 vierges et irradiées ont été générés dans le cadre de cette étude. Ils présentent les caractéristiques suivantes :

- une composition stœchiométrique afin de négliger l'influence du rapport O/U .
- des réseaux de pores de petite taille (de l'ordre du μm) et de forme sphérique afin de simuler le réseau de porosité de fabrication et le réseau de bulles (uniquement pour les céramiques vierges),
- des réseaux de pores allongés (comme ceux observés sur figure 2.2b) plus ou moins marqués afin d'étudier l'impact de ce réseau, jusqu'alors non étudié, sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 .
- des microstructures telles que la porosité totale des échantillons ne dépasse pas 7% (en se basant sur les microstructures des céramiques UO_2 REP vierges).
- des microstructures avec une fraction volumique de porosité fermée inférieure à 7%.

Lors de l'irradiation, la proportion de pores isolés augmente du fait de la formation de bulles qui s'ajoutent aux pores de fabrication qui eux diminuent en taille. Il a été proposé de considérer que ces deux effets antagonistes s'annulent (bien que ce cas soit très peu probable) et d'assimiler les pores isolés à la porosité fermée des céramiques UO_2 simulant la microstructure.

2.1.3. Évaluation du domaine d'étude à l'aide de mesures par immersion

Le domaine d'étude obtenu est constitué de 94 céramiques UO_2 de composition stœchiométrique. La figure 2.3 présente deux microstructures fabriquées à l'aide du procédé alternatif, obtenues dans ce domaine d'étude.

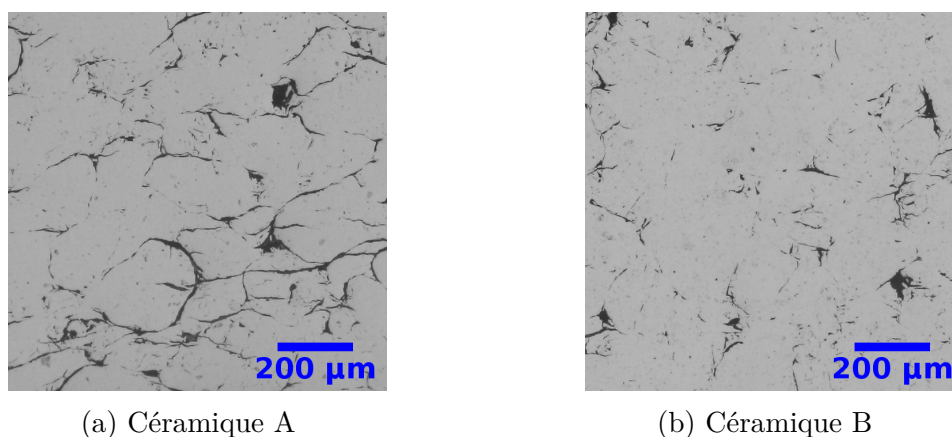


FIGURE 2.3. – Observation par microscopie optique de deux microstructures de céramiques UO_2 fabriquées par le procédé alternatif (zoom)

Les pores sont plus nombreux sur la coupe associée à la céramique A (figure 2.3a) en comparaison à la coupe associée à la céramique B (figure 2.3b). De plus, il apparaît que ceux-ci forment un réseau continu et plus tortueux.

Notons d'ailleurs que les microstructures pouvant être obtenues par le procédé de fabrication alternatif (figure 2.3) présentent un réseau poreux beaucoup plus varié en morphologie, en répartition spatiale et en distribution d'orientation de pores que celui des céramiques fabriquées avec le procédé de fabrication de référence (figure 2.2a).

Les fractions volumiques de porosité des céramiques fabriquées ont été évaluées à l'aide d'une méthode par immersion (section 1.2.1) où le liquide utilisé est le bromobenzène. Ce liquide offre une bonne mouillabilité de l' UO_2 [Cai+95 ; Zac+98] ce qui permet de supposer que tous les pores ouverts sont accessibles à ce fluide et qu'il est alors possible de réaliser les mesures de fractions volumiques. Cette technique de caractérisation permet de remonter aux fractions volumiques de porosité totale, ouverte et fermée des échantillons étudiés. L'écart-type associé à la fraction volumique de porosité totale et ouverte est de 0,05 % et de 0,1 % pour la fraction volumique de porosité fermée. Les lois d'occurrence de ces paramètres étant gaussiennes, l'incertitude de ces paramètres pour un intervalle de confiance de 95 % vaut alors deux fois leur écart-type.

La figure 2.4 présente le domaine de propriétés microstructurales obtenues pour les échantillons étudiés.

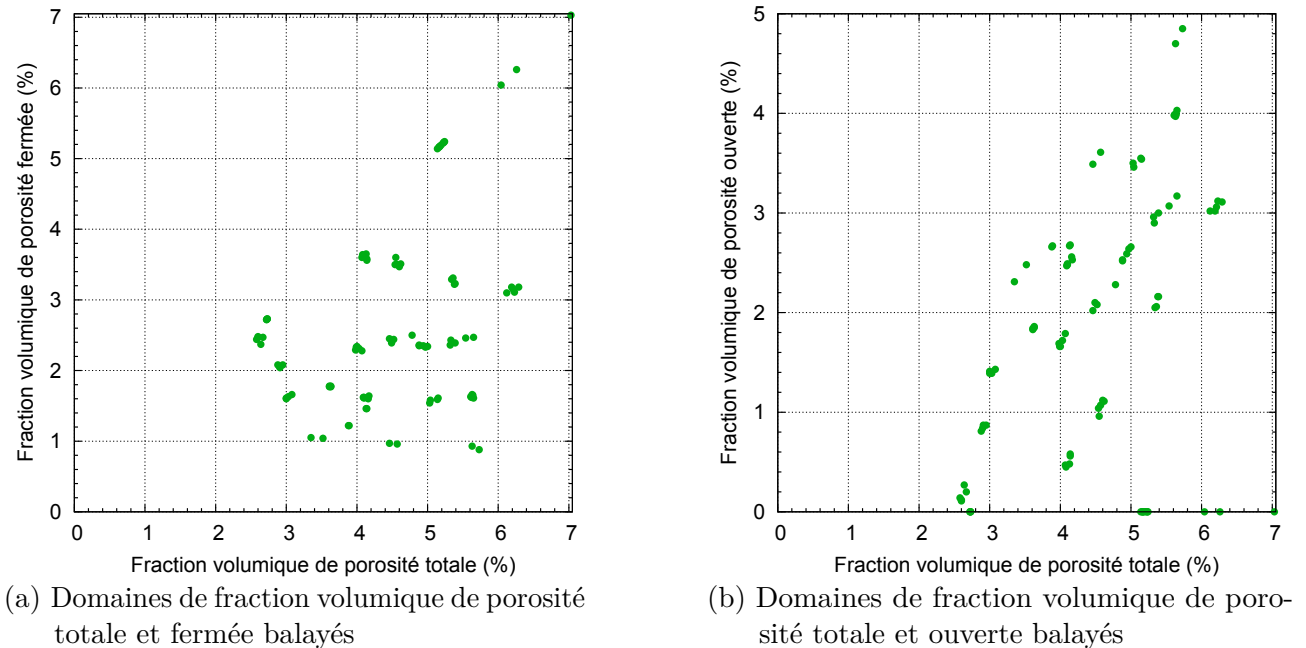


FIGURE 2.4. – Domaines de fractions volumiques de porosité balayés par les céramiques UO_2 fabriquées

Le domaine d'étude couvre les fractions volumiques suivantes :

- Porosité totale (notée c_T) comprise entre 2,6 et 7,0 %
- Porosité fermée (notée c_f) comprise entre 0,9 et 7,0 %
- Porosité ouverte (notée c_o) comprise entre 0 et 4,9 %

84 % des échantillons du domaine d'étude ont été fabriqués avec le procédé de fabrication alternatif et les 16 % restants avec le procédé standard. De plus, 55 échantillons sur les 94 du

domaine d'étude ont été fabriqués en utilisant du porogène afin d'augmenter le taux de porosité fermée.

La section suivante présente les méthodes de caractérisation par imagerie utilisées afin d'étudier la microstructure des céramiques UO_2 .

2.2. Caractérisations par imagerie de la microstructure poreuse des céramiques UO_2

Différentes techniques d'imagerie ont été mises en œuvre :

- la microscopie optique afin d'observer des coupes des céramiques UO_2 avec une résolution spatiale de l'ordre de $1,52 \mu\text{m}/\text{pix}$,
- la tomographie par absorption de rayons X (ou tomographie X) afin d'observer en 3D la microstructure des céramiques avec une résolution spatiale de l'ordre de $0,8 \mu\text{m}/\text{vox}$ (échelle microscopique),
- le MEB-FIB afin d'observer en 3D la microstructure des céramiques avec une résolution spatiale allant jusqu'à $30 \text{nm}/\text{vox}$ (échelle nanométrique).

2.2.1. Observation de coupes par microscopie optique

2.2.1.1. Mise au point d'un protocole d'acquisition d'images

La caractérisation de la microstructure des céramiques UO_2 par microscopie optique a pour objectif d'obtenir des informations quantitatives 2D sur le réseau de porosité. L'avantage de cette technique est sa relative facilité de mise en œuvre en comparaison aux autres techniques de caractérisation qui seront présentées par la suite. Elle peut donc être employée de façon systématique.

Les céramiques UO_2 sont préparées par métallographie afin d'obtenir un plan poli miroir observable par microscopie optique. Le polissage peut cependant engendrer un arrachement des grains d' UO_2 et induire alors des biais lors de l'observation de ces plans. Pour éviter au maximum les arrachements, le protocole a été optimisé. Il est constitué des étapes suivantes :

1. Les échantillons sont découpés à la scie à fil avec un fil de coupe de diamètre $0,3 \text{mm}$.
L'objectif de cette étude étant d'évaluer l'impact du réseau de porosité sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 , il a été choisi d'observer le réseau de pores impactant majoritairement le flux thermique lors des mesures du comportement thermique des céramiques. La partie centrale de l'échantillon étant directement exposée à l'excitation thermique du diffusivimètre, le flux thermique imposé lors de la mesure Flash (plus de détails dans la partie 2.3.1) est impacté majoritairement par les porosités présentes dans cette zone. Il a donc été choisi d'observer une section proche du centre de l'échantillon qui soit longitudinale au flux thermique imposé lors des mesures Flash. La zone observée est présentée sur la figure 2.5.

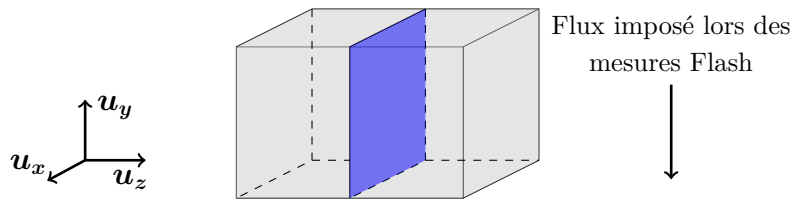


FIGURE 2.5. – Zone observée par microscopie optique de la microstructure d'un échantillon UO_2 (en bleu)

En se basant sur la figure 2.5, chaque coupe étudiée est donc un plan normal à l'axe \mathbf{u}_z à une abscisse z donnée. Il a été choisi par la suite de désigner les plans de coupe obtenus par microscopie optique par leurs coordonnées selon z .

2. Les échantillons sont enrobés dans une résine Epoxy (constituée de 25 volumes de résine Epofixrésine et 3 volumes d'Epofixdurcisseur) par imprégnation sous vide de manière à limiter les arrachements.
3. Les céramiques sont polies jusqu'à obtenir une finition poli miroir. Suivant l'état initial des échantillons, la série de papiers abrasifs (de $22\ \mu\text{m}$ à $5\ \mu\text{m}$) utilisés est adaptée afin d'arriver à l'état poli miroir souhaité. Pour la suspension de finition, un drap de polissage tissé et une suspension diamantée polycristalline de $1\ \mu\text{m}$ sont utilisés.

Une fois le plan de coupe obtenu, l'acquisition d'images a été effectuée sur le microscope opto-numérique Olympus DSX500 du laboratoire DEC/SA3E/LCU au CEA Cadarache. Ce microscope est équipé d'une caméra couleur CCD de dimensions $1688\ \text{pix} \times 1248\ \text{pix}$. Chaque image obtenue est le résultat d'un montage de plusieurs images : 8 images pour la longueur \times 1 image dans la largeur. Les conditions d'acquisition d'images retenues sont présentées dans le tableau 2.1.

Localisation des zones d'intérêt	Images toujours prises de façon à ce que le bord horizontal de l'échantillon soit le plus parallèle possible au bord de l'image
Type d'observation	Vue panoramique en champ clair (avec un rapport longueur/largeur de 8/1)
Codage couleur	RVB (Rouge - Vert - Bleu)
Grandissement	x 153
Résolution spatiale ($\mu\text{m}/\text{pix}$)	1,52 ou 1,54 (selon la coupe étudiée)
Temps d'exposition (ms)	1

TABLEAU 2.1. – Conditions d'acquisition des images 2D par microscopie optique

Il apparaît cependant que le fait de fixer le rapport longueur/largeur de la vue panoramique induit des tailles d'images et des résolutions spatiales légèrement différentes. Dans le but d'améliorer la reproductibilité du protocole d'acquisition, une piste d'amélioration serait de fixer plutôt la taille des images afin de travailler par la suite sur des images de même taille et de même résolution.

Plusieurs coupes parallèles ont été prises sur trois échantillons du domaine d'étude. Dans ce cas, les coupes ont été prises dans les conditions présentées dans le tableau 2.1 et sont toutes espacées de $30\ \mu\text{m}$.

Un exemple d'image caractéristique de celles obtenues avec le protocole retenu (tableau 2.1) est présenté sur la figure 2.6.

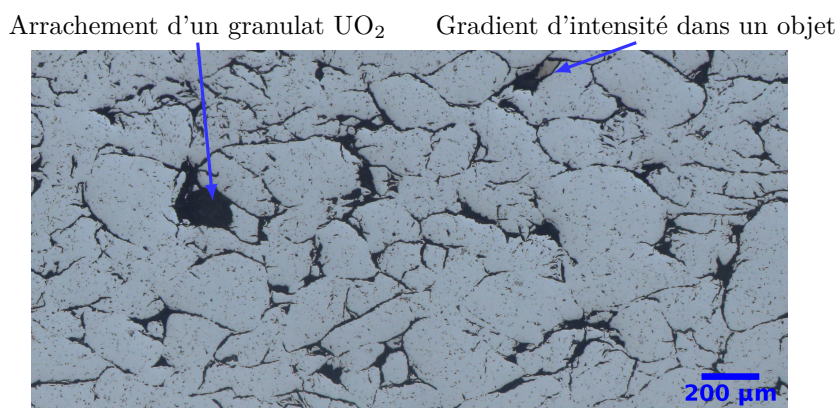


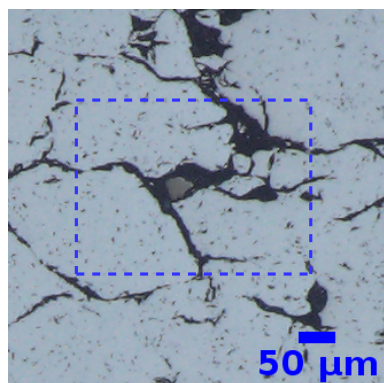
FIGURE 2.6. – Zoom sur une image de microscopie optique caractéristique obtenue avec le protocole présenté dans le tableau 2.1

Les images obtenues permettent d'observer le réseau de porosité des céramiques UO_2 comme souhaité. Cependant, elles présentent aussi deux types d'artefacts (figure 2.6) :

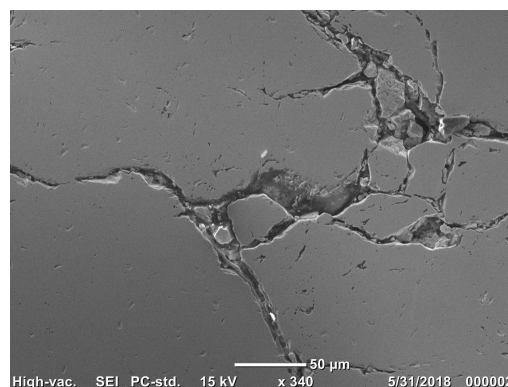
1. Des gradients d'intensité dans les porosités.

Ces gradients possèdent des luminosités intermédiaires entre celles des pores (zones très foncées de l'image) et de la matrice UO_2 (zones plus claires). Aussi, il est difficile de les classer dans une catégorie ou une autre.

Afin de déterminer l'origine de ce phénomène, une observation au MEB a été réalisée (figure 2.7).



(a) Microscope optique



(b) MEB (image associée à la zone en pointillé sur la figure 2.7a)

FIGURE 2.7. – Observation à différentes échelles d'un objet présentant un gradient d'intensité

En observant à une échelle plus petite que celle utilisée avec le microscope optique (figure 2.7b), on note la présence de petits fragments de grains ou de granulats d' UO_2 dans les objets présentant des gradients d'intensité. Le passage au bain à ultrasons ne permet pas d'éliminer ces fragments. Il semble donc qu'ils soient toujours attachés au reste du massif d'une certaine manière. Les plus gros fragments apparaissent comme étant inclinés par rapport à la surface du plan étudié (figure 2.7b) et, suivant le positionnement de la source lumineuse du microscope, la lumière peut alors se refléter sur ces surfaces inclinées induisant des gradients d'intensité lumineuse dans ces objets (figure 2.7a).

De plus, il n'a pas été possible d'éliminer ce phénomène en modifiant les conditions de prise d'images par microscopie optique. Comme ces objets sont peu nombreux sur la majorité des coupes observées (trois ou quatre par coupe), il a été supposé par la suite que l'impact de ce type d'objets sur les images obtenues est négligeable.

2. Des porosités agrandies.

Ce phénomène est induit par des arrachements de grains d' UO_2 bien que le procédé de prétraitement des échantillons ait été optimisé afin d'éviter au maximum les arrachements. Il est important donc de garder en tête que ces arrachements font partie des biais induits par la préparation des échantillons.

Les images obtenues comme celle de la figure 2.7 ont été acquises en mode RVB afin d'examiner la possibilité d'extraire le réseau de porosité à partir d'un des trois canaux de couleurs qui constituent l'image. La figure 2.8 présente les histogrammes associés aux trois canaux de la figure 2.7a.

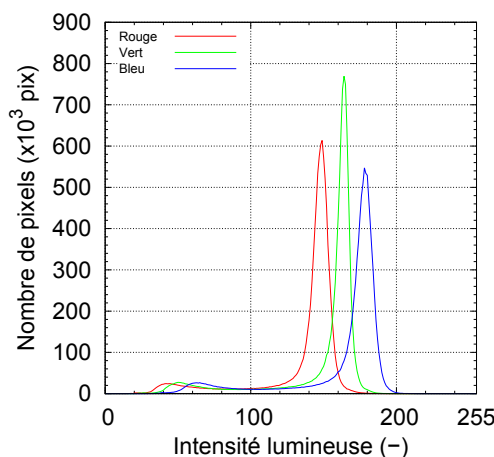


FIGURE 2.8. – Histogrammes de la figure 2.7a associés aux trois canaux RVB

Les histogrammes des trois canaux RVB possèdent la même allure avec un pic fin très intense associé à la matrice UO_2 (par exemple, sur la figure 2.8, le maximum de ce pic se situe à 165 pour le canal Vert) et un pic peu intense et large associé aux pores (sur la figure 2.8, le maximum de ce pic est à 55 pour le canal Vert). Étant donné que le pic associé aux pores est large, il n'y a pas de délimitation nette entre les deux pics.

Dans ces conditions, la segmentation n'est pas facilitée par l'étude d'un de ces canaux en particulier. Il a donc été choisi de convertir les images obtenues en niveaux de gris afin de

réduire la mémoire allouée à chaque image lors de leur traitement. Un pixel ou un voxel est alors associé à un niveau de gris défini comme l'entier le plus proche de $Gris$ défini de façon standard comme :

$$Gris = 0,299 Rouge + 0,587 Vert + 0,114 Bleu \quad (2.1)$$

où $Rouge$, $Vert$ et $Bleu$ sont respectivement les intensités lumineuses du pixel ou voxel étudié associées aux canaux rouge, vert et bleu.

L'histogramme en niveaux de gris associé à celui des canaux RVB de la figure 2.8 est présenté sur la figure 2.9.

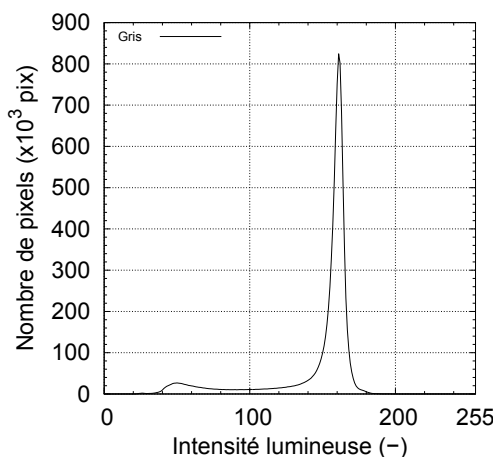


FIGURE 2.9. – Histogramme des niveaux de gris de la figure 2.7a

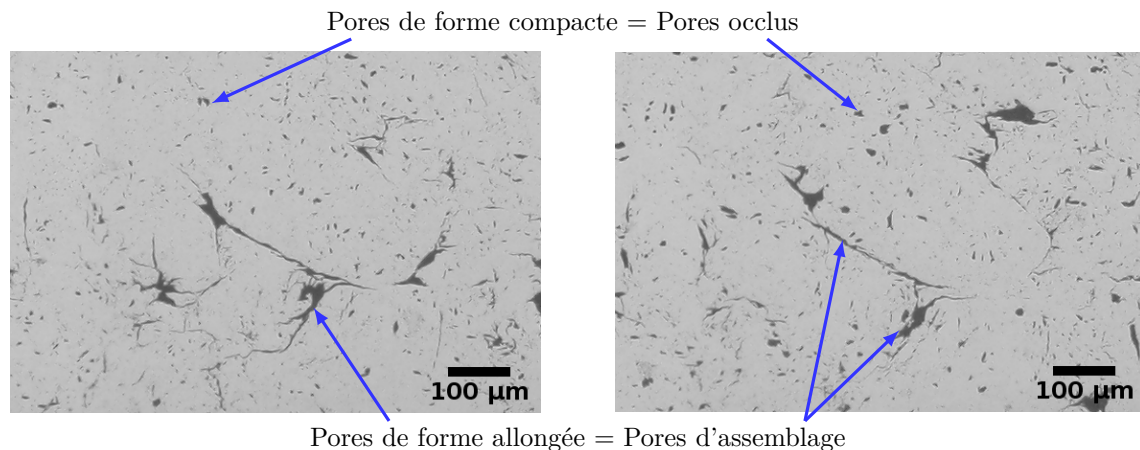
Comme attendu, cet histogramme possède la même allure que ceux associés à chaque canal de couleur de la figure 2.8. Par la suite, seules les images en niveaux de gris ont donc été étudiées.

Vingt échantillons du domaine d'étude ont été observés par microscopie optique. Ces céramiques UO_2 sont notées :

- E_k dans le cas où un seul échantillon d'un même lot de fabrication est étudié (k correspond alors au numéro de lot de l'échantillon étudié). Par convention, plus k est grand et plus la fraction de porosité totale des échantillons du lot est grande. Dans le cas où deux lots présentent des fractions de porosité totale similaires, ils sont classés par ordre décroissant de fraction volumique de porosité ouverte.
- $E_{k,i}$ dans le cas où plusieurs échantillons d'un même lot de fabrication k sont étudiés. i permet alors d'identifier l'échantillon étudié. Par convention, comme pour le classement des lots de fabrication, plus i est grand et plus la fraction volumique de porosité totale d'un échantillon est grande. Dans le cas où deux échantillons présentent des fractions de porosité totale identiques, ils sont classés par ordre décroissant de fraction volumique de porosité ouverte.

Les caractéristiques de ces échantillons sont présentées dans l'annexe B. L'ensemble des images brutes en niveaux de gris des échantillons de céramiques UO_2 qui ont été observés est présenté dans l'annexe B.

La figure 2.10 donne un exemple de deux coupes parallèles espacées de $\Delta z = 30 \mu m$ obtenues par microscopie optique sur un échantillon UO_2 .



(a) Zoom d'une coupe d'un échantillon UO_2 (b) Zoom d'une coupe espacée de $\Delta z = 30 \mu m$ par rapport à la figure (a)

FIGURE 2.10. – Coupes successives sur l'échantillon $E_{1,2}$

L'observation des coupes des microstructures UO_2 du domaine d'étude a permis d'observer deux types de porosités présentes dans le matériau, ayant des morphologies différentes : des pores de forme allongée et des pores de forme compacte.

Les pores de forme allongée possèdent des connexions avec d'autres pores lorsque différentes coupes successives sont observées (figure 2.10) ce qui laisse supposer qu'il existe une certaine interconnexion de ces pores en 3D (à quantifier). Étant donné que ces pores sont induits par le procédé de fabrication, il a été choisi d'appeler « porosité d'assemblage » cette famille de pores allongés.

Les pores de forme compacte sur les coupes obtenues par microscopie optique sont, quant à eux, de taille inférieure ou égale à $30 \mu m$ car il est difficile (voire impossible) de suivre sur deux plans successifs le même pore. De plus, sur les coupes, ces pores possèdent une taille très inférieure à celles des pores d'assemblage. Par opposition au caractère interconnecté des pores d'assemblage, il a été choisi d'appeler « porosité occluse » cette famille de pores.

Une estimation des dimensions 2D caractéristiques de la microstructure des céramiques a été réalisée afin d'évaluer les dimensions des hétérogénéités (pores) par rapport au matériau étudié :

- Élément de volume cubique caractéristique des céramiques étudiées de côté $\approx 1 mm$,
- Porosité d'assemblage : épaisseur caractéristique $\approx 1 \mu m$ et longueur caractéristique $\approx 0,1 mm$ entourant des granulats de diamètre de l'ordre de $150 \mu m$,
- Porosité occluse : diamètre allant du μm jusqu'à une dizaine de μm .

Le traitement des images obtenues par microscopie optique est présenté par la suite.

2.2.1.2. Traitement des images obtenues par microscopie optique

Étant donné que le diamètre des pores occlus peut aller jusqu'à $1 \mu m$, les images obtenues par microscopie optique avec une résolution spatiale de $1,52 \mu m/pix$ ou de $1,54 \mu m/pix$ sont peu appropriées pour caractériser cette famille de pores. Ces images seront donc utilisées uniquement

pour caractériser les pores d'assemblage.

L'objectif du traitement des images obtenues par microscopie optique est alors d'obtenir une image binaire où les pixels noirs représentent les pores d'assemblage et les blancs la matrice UO_2 . Le logiciel ImageJ avec la distribution Fiji [Sch+12] a été utilisé pour traiter et analyser les images obtenues.

Le protocole optimisé de traitement d'images est illustré sur la figure 2.11.

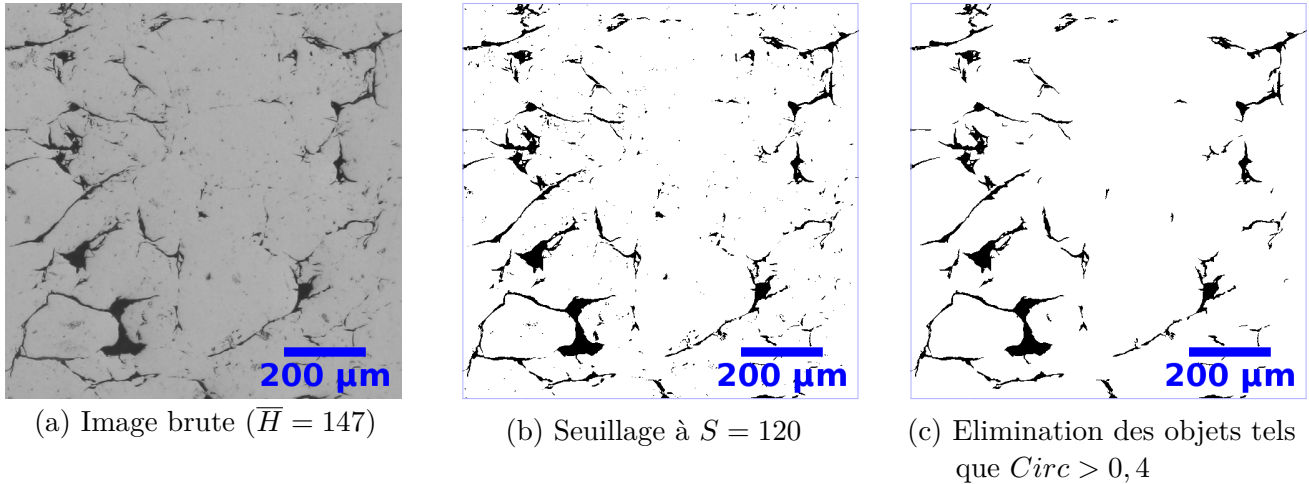


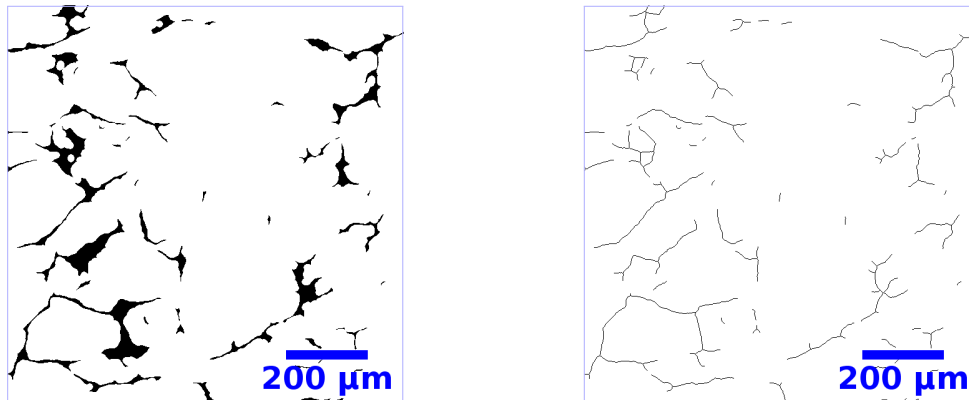
FIGURE 2.11. – Différentes étapes de traitement d'images optimal : de l'image brute à l'extraction des pores d'assemblage

Les étapes du protocole optimisé de traitement d'images permettant d'obtenir des images binaires les plus représentatives de ce qui est observé sur les images brutes en niveaux de gris sont :

1. Seuillage avec un seuil S tel que $S = \bar{H} - 27$ où \bar{H} est la valeur moyenne de l'histogramme de niveaux de gris de l'image brute (figure 2.11b). Les objets sombres présents sur la figure 2.11b sont associés aux pores d'assemblage, aux pores occlus et au bruit d'images.
2. Élimination de tous les objets possédant un indice de circularité $Circ > 0,4$ qui sont associés aux pores occlus et au bruit d'images (figure 2.11c). Les objets de la figure 2.11c sont alors associés uniquement aux pores d'assemblage.

Malgré les précautions prises lors de la préparation des échantillons, des arrachements peuvent être observés sur les images obtenues (figure 2.6). Étant donné que ces artefacts ont la même intensité lumineuse que les pores, ils sont associés à ces derniers lors de la segmentation des images. Les arrachements couvrent une surface très large et biaisent ainsi l'estimation de l'épaisseur des pores d'assemblage.

Pour s'affranchir du biais sur les épaisseurs des pores d'assemblage, il a été choisi d'étudier le squelette des pores d'assemblage. La figure 2.12 illustre la suite du protocole optimisé de traitement d'images présenté ci-dessus (figure 2.11) afin d'extraire le squelette des pores d'assemblage.



(a) Fermeture (disque avec $r = 7,6 \mu m$)

(b) Squelettisation

FIGURE 2.12. – Protocole optimisé de traitement d’images pour obtenir le squelette des pores d’assemblage à partir de l’image 2.11c

Pour extraire le squelette des pores d’assemblage, le protocole de traitement d’images présenté sur la figure 2.11 est complété par les étapes suivantes :

3. Fermeture morphologique [LAA16] avec un élément structurant de type disque de rayon $r = 5$ pixels, soit $7,6 \mu m$ (figure 2.12a). Cette étape est une étape de pré-traitement de l’image afin de lisser les aspérités de contours des objets présents sur l’image car la squelettisation est sensible à ce type d’aspérités.
4. Squelettisation des objets présents sur l’image [Arg08] (figure 2.12b).

2.2.2. Observation 3D de la microstructure par tomographie X à l’échelle microscopique

Les observations par tomographie X ont été réalisées avec le tomographe du laboratoire Navier (UMR 8205).

2.2.2.1. Montage expérimental

Le laboratoire Navier possède deux générateurs de rayons X :

- une source nano-foyer Hamamatsu L10712 en transmission pouvant monter en énergie jusqu’à $160 kV$ et $8 W$.

Le filament utilisé avec cette source peut être en tungstène ou en LaB_6 (ce matériau permet d’obtenir des tailles de spot plus fines que le tungstène). La cible de cette source est constituée d’une fine couche de tungstène sur un support diamant. Du fait de la géométrie de la cible, les rayons X générés sont essentiellement issus de la couche de tungstène traversée par les électrons primaires émis par la source et la taille de spot est relativement petite ce qui permet d’obtenir des projections plus finement résolues. La résolution d’image la plus petite accessible avec cette source est de $0,25 \mu m$.

- une source micro-foyer Hamamatsu L10801 en réflexion pouvant monter en énergie jusqu’à $230 kV$ et $200 W$.

Le filament utilisé avec cette source est en tungstène et la cible est constituée de tungstène massif. Lorsque le faisceau d’électrons pénètre la cible, il subit une succession de chocs

qui contribuent à le ralentir. L'ensemble des trajectoires décrites par ces électrons s'inscrit dans une forme de poire appelée « poire d'interaction ».

La forme de cette poire d'interaction est liée à l'énergie des électrons incidents et au numéro atomique moyen des atomes constituant la cible. Ainsi, plus les électrons arrivant sur la cible sont énergétiques, plus la poire d'interaction est grande, ce qui induit une augmentation de la taille de spot et aussi une diminution du temps d'acquisition (par rapport à la source en transmission). Il est donc possible de scanner des échantillons de plus grande taille (car les rayons X sont plus énergétiques donc plus pénétrants) que dans le cas de l'utilisation d'une source en transmission. La plus petite résolution d'image accessible avec cette source est de $5\ \mu\text{m}$.

Le laboratoire Navier possède aussi deux détecteurs de rayons X :

— un capteur plan Paxscan Varian 2520V produisant une image de $1920\ \text{pix} \times 1560\ \text{pix}$ avec une taille de pixel de $127\ \mu\text{m}$.

Les rayons X transmis sur ce détecteur sont absorbés par le matériau scintillateur qui les convertit en photons lumineux. Ces photons sont canalisés jusqu'au réseau de photodiodes qui génère alors un signal électrique proportionnel à l'intensité lumineuse détectée. La réponse d'une photodiode est amplifiée et associée à la réponse d'un pixel sur la radiographie obtenue. De cette façon, il est possible de générer une radiographie en compilant la réponse de toutes les photodiodes présentes dans le détecteur.

— une caméra HD PhotonicScience VHR produisant une image de $4008\ \text{pix} \times 2672\ \text{pix}$ avec une taille de pixel de $9\ \mu\text{m}$. Ce détecteur se compose d'une couche d'un matériau scintillateur et d'une caméra HD. Le système optique est directement positionné après le scintillateur et détecte les photons émis.

La reconstruction numérique est effectuée avec le logiciel Xact/UniCT fourni par le concepteur du tomographe (RX Solutions). L'algorithme de reconstruction utilisé est une rétroprojection filtrée adaptée à la projection conique [FDK84].

2.2.2.2. Protocole d'acquisition d'images par tomographie X

Les échantillons caractérisés en tomographie X sont tels que :

— la géométrie de ces échantillons est parallélépipédique avec une base carrée car il est plus facile d'usiner ce type d'échantillons.

La figure 2.13 présente la forme d'un échantillon pour la tomographie X et son positionnement dans le tomographe.

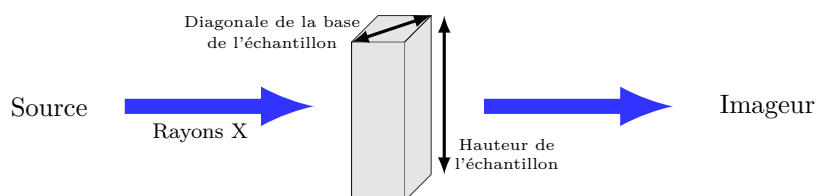


FIGURE 2.13. – Vue schématique d'un échantillon (en gris) et de son positionnement dans le tomographe X

Il a été choisi de noter x_d et h les dimensions respectives de la diagonale de la base des échantillons étudiés et de la hauteur du parallélépipède.

- la longueur x_d de la diagonale de la base des échantillons est telle que $x_d = 0,8 \text{ mm}$ pour s'assurer que des images de tomographie X exploitables seront obtenues.

En effet, comme les rayons X les plus atténués sont ceux qui traversent une longueur légèrement plus élevée que x_d (du fait de la projection conique), la distance qu'ils parcourent est directement liée à x_d . La figure 2.14 présente l'influence de x_d et de l'énergie des photons émis par le générateur de rayons X sur le rapport de transmission de l' UO_2 . Ces données sont obtenues à partir de la base de données du NIST [Ber+10].

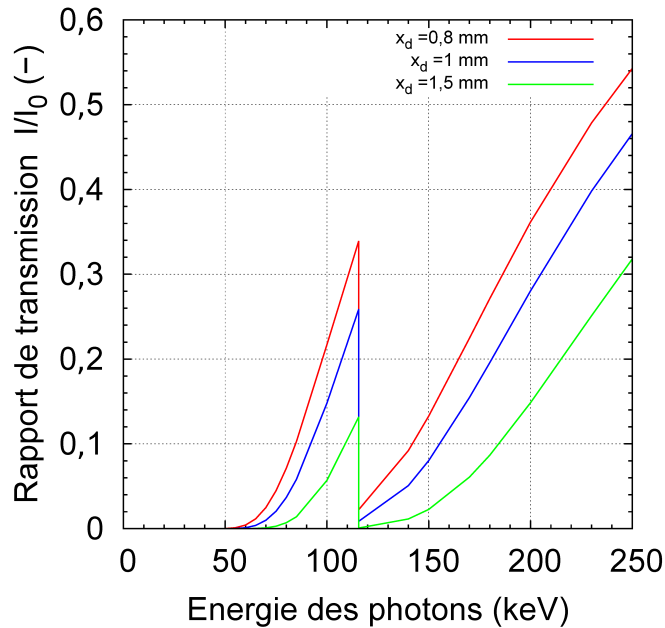


FIGURE 2.14. – Influence de la longueur x_d de la diagonale de la base des échantillons et de l'énergie des photons sur la transmission du flux de rayons X pour l' UO_2

Il est possible de voir sur la figure 2.14 la présence d'un pic de transmission à 115 keV qui est associé à la raie K de l'uranium. En effet, à une certaine valeur d'énergie autour de 115 keV , un électron de la couche K de l' UO_2 est éjecté, ce qui vient faire augmenter le rapport de transmission.

En posant le rapport critique $(I/I_0)_{crit} = 10\%$ en-dessous duquel la statistique de comptage des photons transmis n'est pas suffisante pour obtenir une image exploitable en tomographie X, ce seuil critique est atteint trois fois pour $x_d = 0,8 \text{ mm}$: à 80 keV , à 115 keV et à 140 keV . Or comme le rapport I/I_0 diminue exponentiellement en fonction de x_d (équation 1.20), il existe donc une valeur x_d critique ($\approx 1,5 \text{ mm}$) au-dessus de laquelle ce seuil est atteint une fois pour des énergies strictement supérieures à 115 keV .

Il a été choisi de se limiter à des échantillons tels que $x_d \leq 1,5 \text{ mm}$ afin de pouvoir exploiter le pic de transmission associé à la raie K de l'uranium. C'est pourquoi, pour s'assurer d'avoir des images exploitables, nous avons choisi de prendre $x_d = 0,8 < 1,5 \text{ mm}$.

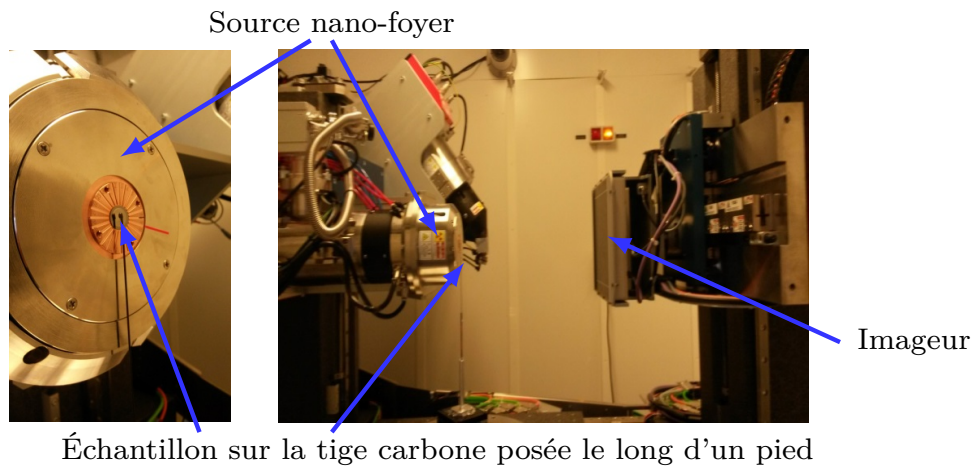
- la hauteur h des échantillons est de 2 mm afin d'étudier des volumes représentatifs de la microstructure des céramiques dans la direction associée à cette dimension.

Étant donné que le diamètre des granulats est estimé à $150\ \mu m$ par granulométrie lors de la fabrication (section 2.1.1) avant l'étape de pressage, les observations d'une coupe parallèle à la base d'un échantillon montreront au maximum 4×4 granulats pour une base telle que $x_d = 0,8\ mm$. En prenant $h = 2\ mm$, il est alors possible d'observer au maximum 13×13 granulats dans la direction associée à h ce qui induit une représentativité du réseau poreux meilleure dans cette direction que dans celle associée à la base.

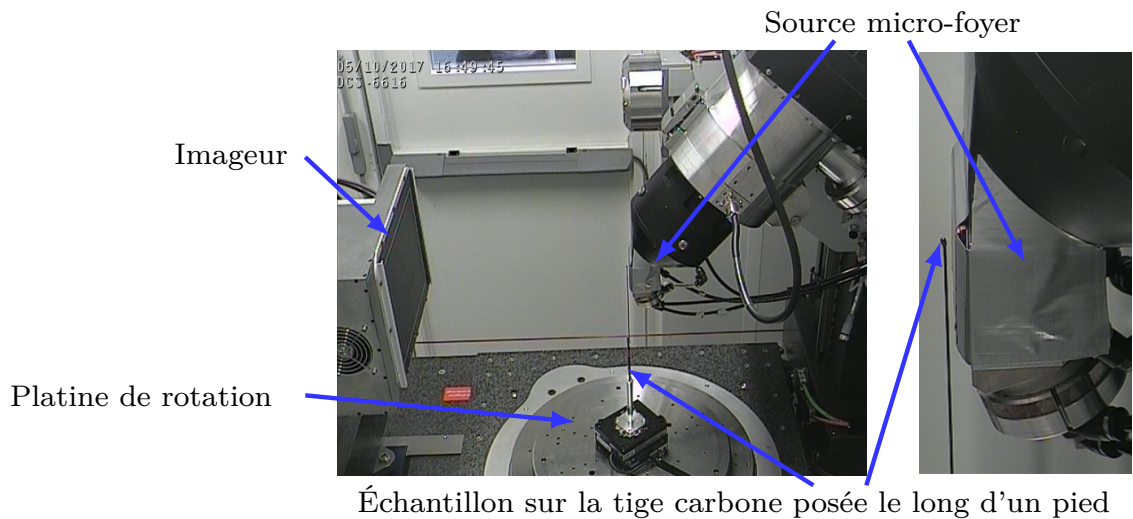
Des échantillons pour la tomographie ont été découpés dans l'échantillon $E_{1,1}$ dit « père » avec les dimensions précisées précédemment ($x_d = 0,8\ mm$ et $h = 2\ mm$) car cet échantillon présente une des fractions volumiques de porosité totale les plus grandes du domaine d'étude (5^e plus importante sur les 94 échantillons du domaine d'étude). Il correspond donc à l'échantillon du domaine d'étude où la probabilité d'observer le réseau poreux dans le volume étudié est maximisée.

Ces échantillons ont chacun été collés en haut d'une tige de carbone (très peu absorbante aux rayons X) de $1\ mm$ de diamètre et d'une quinzaine de centimètres de hauteur à l'aide de résine époxy EPOFIX (Struers) afin de permettre leur positionnement entre la source et l'imageur. L'échantillon est fixé parallèlement à la tige. Cette tige est positionnée le long d'un pied posé sur une platine de rotation qui va permettre la mise en rotation de l'ensemble (et donc de l'échantillon) lors de l'acquisition.

La figure 2.15 présente les montages expérimentaux mis en œuvre selon la source utilisée.



(a) Montage avec la source nano-foyer de tension maximale 160 kV avec un zoom sur la source et l'échantillon (à gauche)



(b) Montage avec la source micro-foyer de tension maximale de 230 kV avec un zoom sur la source et l'échantillon (à droite)

FIGURE 2.15. – Montages expérimentaux utilisés dans le cadre de la caractérisation du réseau poreux des céramiques UO_2 par tomographie X

Différents paramétrages ont été testés lors de ces campagnes afin de déterminer le protocole expérimental et d'optimiser la qualité²⁾ des images obtenues. Les conditions expérimentales d'acquisition, des coupes sur les images obtenues et une évaluation de la qualité de ces images sont présentées dans l'annexe C.

Les conditions évaluées sont les suivantes :

1. les caractéristiques du générateur de rayons X (type de générateur utilisé, filament employé, mode de focalisation des électrons dans la source, tension et courant d'utilisation

2. La qualité d'une image est définie par son rapport signal/bruit noté S/B . L'intensité du signal a été calculée comme la différence entre l'intensité de niveaux de gris de la matrice UO_2 et celle dans une porosité. Le bruit a été évalué à l'aide de la déviation standard des niveaux de gris sur l'image

et de calibration).

2. le décalage de la source afin de compenser les défauts du capteur de l'imageur.

Lors de l'acquisition des radiographies, l'erreur induite par ces défauts va se propager sur l'ensemble des pixels concernés par des rayons passant par ces pixels défectueux et donner lieu à des « anneaux ». La figure 2.16 présente un exemple caractéristique de ce type d'artefacts.

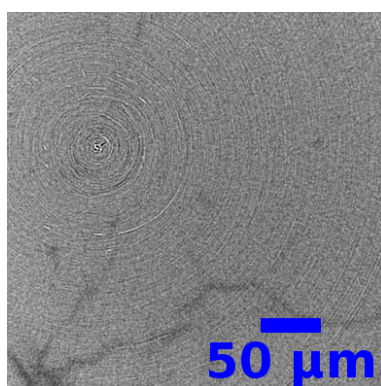


FIGURE 2.16. – Exemple d'anneaux associés aux défauts de l'imageur

Le centre de ces anneaux coïncide avec l'axe de rotation de l'échantillon. Il est possible de les supprimer en grande partie lors de la reconstruction des images. Cependant, il est préférable de les éliminer lors de la mesure afin de ne pas cumuler des erreurs numériques lors de la reconstruction des images. Le décalage de la source lors de l'acquisition des images permet une répartition plus homogène de l'impact de ces défauts du capteur sur plusieurs pixels d'une projection, ce qui induit une atténuation de l'artefact associé aux défauts de l'imageur.

3. l'activation ou non des coussins d'air de la source de rayons X.

Le générateur est posé sur des coussins d'air afin d'éviter que le signal envoyé ne soit pollué par des vibrations extérieures. Cependant, il a été observé des images floues lorsque la source nano-foyer est utilisée dans les très basses résolutions sur certaines expériences. Cela est dû au fait que la source de rayons X est entrée en résonance et comme elle est montée sur coussins d'air, le système n'a pas pu se stabiliser. La désactivation des coussins d'air a permis de supprimer la vibration parasite.

4. l'utilisation d'un filtre de cuivre pour diminuer le durcissement de faisceau (appelé « beam hardening » en anglais).

Ce phénomène se traduit par l'observation d'un gradient de niveaux de gris non physique entre les bords d'une phase homogène et son centre. Il est induit par une atténuation sélective des photons de basse énergie du fait qu'ils sont arrêtés plus facilement dans la matière. L'ajout dans le montage expérimental d'une feuille d'un matériau bloquant les photons de basse énergie (comme le cuivre) permet classiquement de supprimer le durcissement de faisceau.

5. les caractéristiques de l'imageur (positionnement et définition).

Le choix des paramètres de l'imageur a été réalisé en essayant d'exploiter au maximum l'ensemble des pixels constituant ce détecteur. Comme l'échantillon est placé verticalement

dans le montage expérimental, le positionnement optimal de l'imageur est dans le même sens (mode portrait, c'est-à-dire la longueur de l'imageur positionnée parallèlement à la verticale) afin d'avoir plus de pixels couvrant l'information présente dans la direction verticale.

6. le temps d'acquisition et la qualité de l'image obtenue.

Le temps de scan est lié au volume total à scanner, à la fréquence d'acquisition des projections (définie comme le nombre de projections acquises par unité de temps) et au nombre N_b d'images prises par direction de projection donnée (définissant le nombre de projections moyennées par direction de projection).

Pour un même nombre N_b , plus la fréquence d'acquisition des projections augmente et plus le temps d'acquisition diminue. Or, lorsque l'échantillon pivote d'une direction de projection à une autre, le temps de stabilisation diminue ce qui induit une diminution de la qualité des projections et de l'image obtenue.

Pour une même fréquence d'acquisition, plus N_b augmente et plus le temps d'acquisition augmente mais la qualité de la projection moyenne augmente ce qui induit des objets contrastés sur l'image obtenue.

Cependant, un temps d'acquisition trop long peut entraîner une dérive du scan rendant impossible la reconstruction par la suite.

Un compromis entre la qualité des images obtenues et le temps d'acquisition est donc nécessaire.

Les conditions expérimentales optimales permettant l'obtention d'images 3D par tomographie X sont présentées dans le tableau 2.2.

Source de rayons X	Type de générateur	Nano-foyer
	Filament utilisé dans la source	Tungstène
	Mode de focalisation des électrons dans la source	Small
	Tension (kV)	140
	Courant (μA)	19
	Courants de calibration (μA)	17 et 5
	Décalage de la source	Oui
	Générateur posé	Oui
Imageur	Définition de l'imageur (pix^2)	1920×1536
	Orientation de l'imageur	Portrait
	Fréquence d'acquisition des images (Hz)	0,5
	Nombre d'images moyennées par radiographie	20
	Taille du voxel (μm)	0,8
	Durée du scan	De l'ordre de 11 h

TABLEAU 2.2. – Protocole expérimental optimisé donnant les images 3D de tomographie X pour un échantillon de $x_d = 0,8 mm$ et $h = 2 mm$

Un seul scan a été réalisé dans ces conditions. L'échantillon « fils » de $E_{1,1}$ évalué lors de ce scan a été fabriqué de façon à ce que l'axe associé à la hauteur de cet échantillon corresponde

à l'axe \mathbf{u}_y de $E_{1,1}$ qui est aussi associé au sens du flux thermique lors des mesures Flash. Une coupe de l'image 3D normale à l'axe \mathbf{u}_y est présentée sur la figure 2.17.

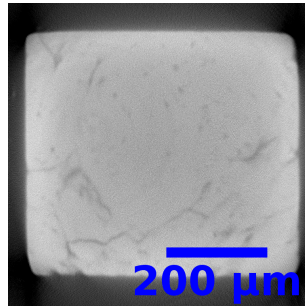


FIGURE 2.17. – Coupe normale à l'axe \mathbf{u}_y associée à l'image 3D de l'échantillon « fils » de $E_{1,1}$ obtenue par tomographie X avec le protocole présenté dans le tableau 2.2

Les pourtours de l'échantillon scanné sur la figure 2.17 sont plus clairs que son centre. Cela est induit par le fait qu'aucun filtre n'a été ajouté lors de l'acquisition.

Afin d'étudier le cas de l'ajout d'un filtre dans le dispositif expérimental, la figure 2.18 présente la loi de transmission associée à une feuille de cuivre de $0,35\text{ mm}$ d'épaisseur ainsi que celle des échantillons UO_2 avec $x_d = 0,8\text{ mm}$.

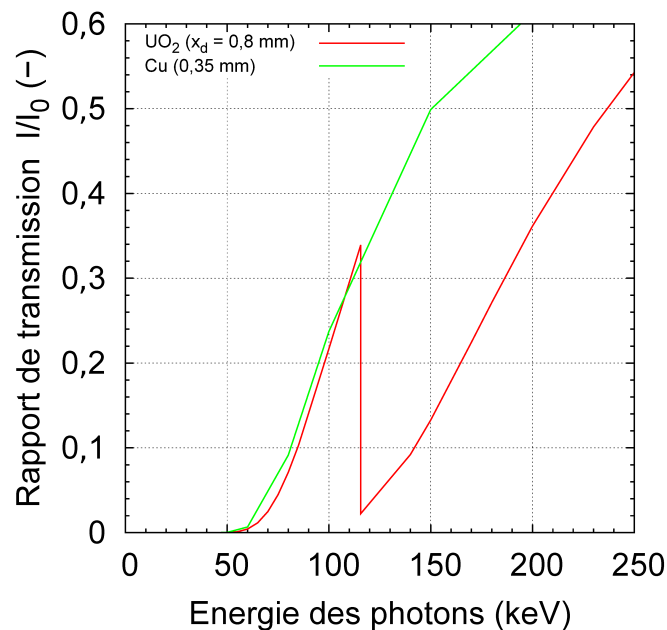


FIGURE 2.18. – Comparaison des lois de transmission d'une feuille de cuivre de $0,35\text{ mm}$ et d'un échantillon UO_2 avec $x_d = 0,8\text{ mm}$ (lois déterminées à partir de la base de données NIST [Ber+10])

Tous les rayons X dont l'énergie est inférieure à 50 keV sont arrêtés par le cuivre ($I/I_0 \approx 0$) mais pas les rayons plus énergétiques. Le cuivre agit donc comme un passe-haut pour les rayons X et correspond à une solution physique afin d'atténuer le durcissement de faisceau. De plus,

le filtrage envisagé sur la figure 2.18 impacte peu les énergies de photons associées à la raie K de l'uranium.

En perspective, une épaisseur de $0,35\text{ mm}$ de cuivre peut être utilisée pour s'affranchir des rayonnements de basse énergie sans pour autant trop réduire les rayonnements d'intérêt en dessous du pic d'absorption à 115 keV .

Des perspectives peuvent être envisagées pour améliorer les images obtenues en tomographie X des céramiques UO_2 :

- utiliser un filtre de cuivre lors de l'acquisition des scans.
- réaliser trois acquisitions de scans de tomographie X à différentes hauteurs de l'échantillon et les concaténer plutôt que de réaliser une longue acquisition de l'ensemble de la hauteur composée de trois scans. La qualité des trois scans devrait être meilleure que celle d'un seul scan long. Il est donc attendu d'avoir des objets plus contrastés dans cette nouvelle configuration.
- caractériser différents échantillons ayant des réseaux de pores très différents afin d'étudier en 3D les agencements des porosités.

Il a été choisi par la suite de traiter uniquement l'image 3D associée aux conditions expérimentales optimales.

2.2.2.3. Traitement des images brutes de tomographie X

L'image 3D issue de la tomographie X a été traitée afin d'extraire le réseau de porosité observé et d'évaluer des caractéristiques 3D de ces pores (comme par exemple leur morphologie). Le logiciel ImageJ avec la distribution Fiji [Sch+12] a été utilisé pour traiter et analyser les images obtenues.

Le protocole optimisé de traitement des images de tomographie X est illustré sur la figure 2.19.

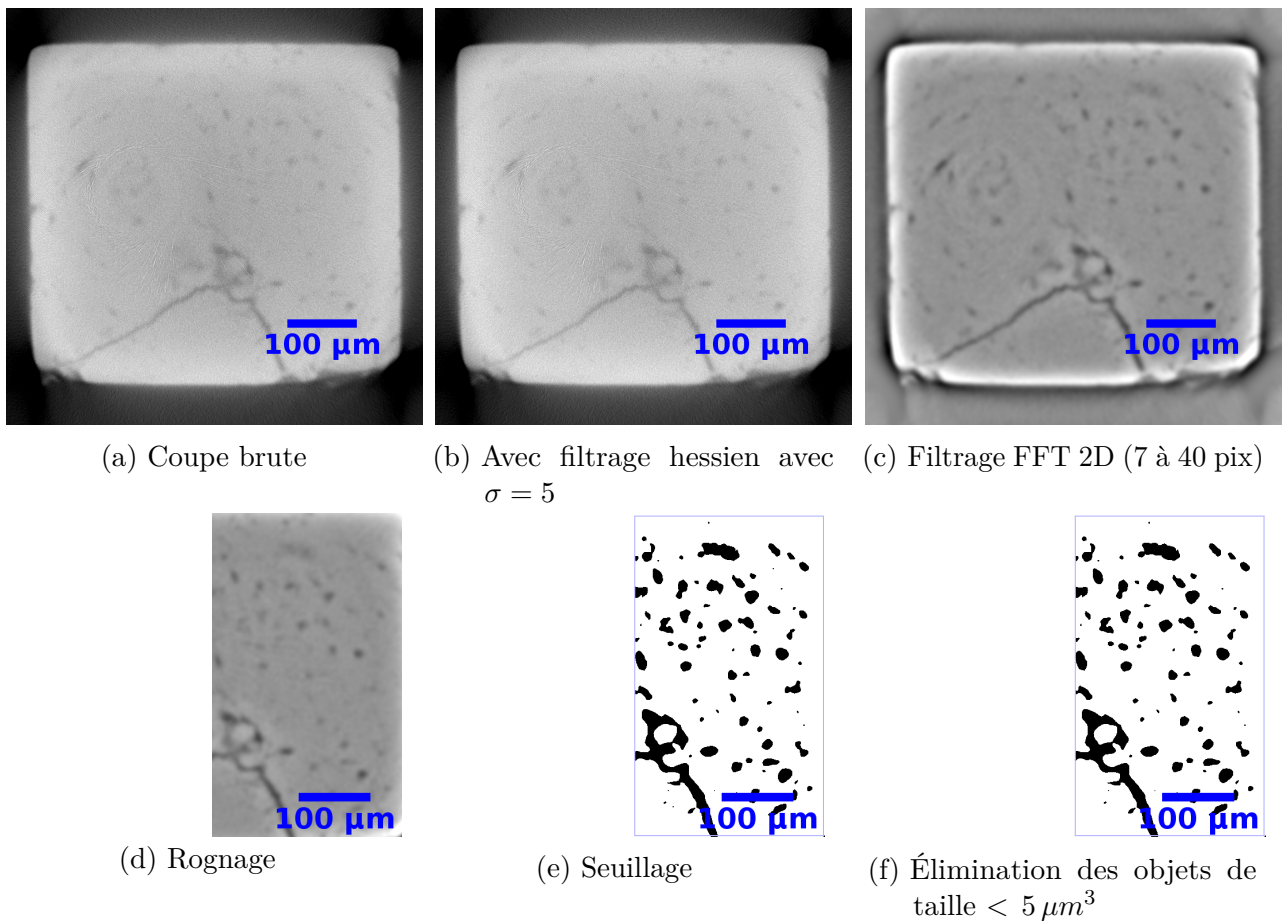


FIGURE 2.19. – Illustration des différentes étapes de traitement d'images retenues pour le traitement de l'image brute à l'image binaire souhaitée

Les étapes du protocole optimisé de traitement d'images sont les suivantes :

1. Amélioration de la détection des objets fins et tubulaires à l'aide du filtrage hessien 2D des coupes (figure 2.19b).
Le plug-in *Tubeness* utilisé [LPSan] applique dans un premier temps un filtre gaussien avec une déviation standard $\sigma = 5$ avant d'évaluer la matrice hessienne associée à l'image. Une fois la matrice hessienne calculée, il a été choisi de soustraire les valeurs moyennes de celle-ci à l'image brute afin d'améliorer la détection des objets tubulaires par la suite.
2. Atténuation des fluctuations radiales de luminosité par filtrage FFT 2D (figure 2.19c).
Les objets de moins de 7 pixels et de plus de 40 pixels sont filtrés des images obtenues [Wal01] ce qui induit un lissage de l'image et donc des fluctuations radiales. Ces objets sont filtrés à l'aide d'un filtre gaussien d'une taille souhaitée dans le domaine fréquentiel.
3. Rognage de l'image (figure 2.19d) afin d'évaluer une partie de l'image.
Il a été observé un artefact affectant l'ensemble du scan de l'échantillon (figure 2.20).

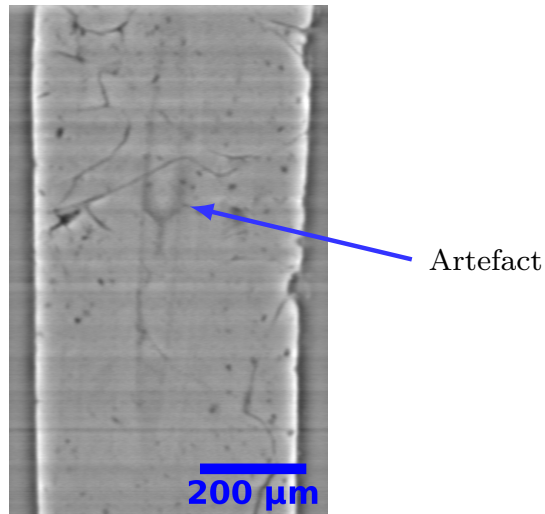


FIGURE 2.20. – Artefact présent sur une coupe à une abscisse z donnée de l'échantillon

Son origine n'est pas claire : cela pourrait être par exemple dû à des défauts du capteur ou à un autre phénomène non identifié. Il n'a pas été possible lors de cette étude de s'affranchir de cet artefact. Aussi, il a été choisi de caractériser uniquement la partie de l'échantillon qui n'est pas affectée par ce phénomène. L'image obtenue est ainsi quasiment réduite de moitié.

4. Segmentation binaire de chaque coupe avec un seuil S tel que $S = \bar{H} - 10$ (figure 2.19e). Suite à l'étape de filtrage et du lissage des histogrammes, chaque coupe possède un histogramme significativement différent de celui des autres coupes. Pour cette raison, il a été choisi de seuiller chaque coupe en se basant sur les caractéristiques de son histogramme et en utilisant la valeur moyenne de l'histogramme \bar{H} . Une étude sur le seuillage a permis de trouver un seuil adéquat pour extraire les pores observés.
5. Élimination des petits objets de taille inférieure à 10 voxels, ce qui correspond pour le scan étudié à un volume de l'ordre de $5 \mu m^3$ (figure 2.19f).

Il a été choisi d'éliminer ces objets qui correspondent essentiellement à du bruit d'images. Le plug-in *3D Object Counter* utilisé [BC06] évalue le nombre de voxels constituant chaque objet connexe présent sur l'image 3D et les filtre selon leur taille.

La différence entre les figures 2.19e et 2.19f n'est pas ou peu visible car seulement 10 % de l'ensemble des zones connexes noires présentes sur le volume étudié ont été affectées par l'opération d'élimination (ce qui correspond à 3819 petits objets sur les 12045 objets connexes de l'image 3D).

Une piste d'amélioration de ce protocole de traitement d'images serait de trouver une méthode de traitement d'images permettant de s'affranchir de l'artefact observé sur la figure 2.20 afin de pouvoir ainsi travailler sur l'ensemble de l'image 3D obtenue par tomographie X.

2.2.3. Observation 3D de la microstructure par MEB-FIB à l'échelle nanométrique

Les observations MEB-FIB ont été réalisées avec le microscope de la marque Zeiss de type Auriga 40 du laboratoire DEC/SA3E/LCPC du CEA Cadarache. La céramique caractérisée

est l'échantillon E_3 car il présente un des rapports de fraction volumique de porosité ouverte sur totale $c_o/c_T = 0,7$ les plus grands du domaine d'étude (le 9^e plus important sur les 94 échantillons). En supposant que le taux de porosité d'assemblage est proportionnel à celui de la porosité ouverte, la céramique E_3 correspond à un échantillon du domaine d'étude où la probabilité d'observer le réseau des pores d'assemblage est une des plus importantes.

2.2.3.1. Protocole d'acquisition d'images par MEB-FIB

Le protocole d'acquisition a été optimisé en amont de cette étude pour les céramiques nucléaires vierges ou irradiées à l'exception du choix de détecteur à utiliser pour l'acquisition. Les étapes du protocole optimisé d'acquisition des images MEB-FIB sont les suivantes :

1. Gravage de formes géométriques sur la surface de l'échantillon (proche de la zone d'intérêt) afin d'éviter la dérive des faisceaux lors de la préparation de l'échantillon en les recalant à l'aide de ces formes.
2. Recouvrement de la zone à observer avec un dépôt de platine à l'aide du micro-injecteur dont est équipé le microscope afin de protéger cette zone du faisceau ionique du FIB qui peut venir polluer l'échantillon en surface.
3. Gravage de marques sur le dépôt platine afin de recalibrer les faisceaux du MEB-FIB lors de l'acquisition des images.
4. Abrasion au FIB avec un courant de 16 nm pour creuser la partie en amont de l'échantillon et révéler le premier plan de la zone d'intérêt (appelé « mur ») qui est perpendiculaire à la surface de l'échantillon (figure 2.21).

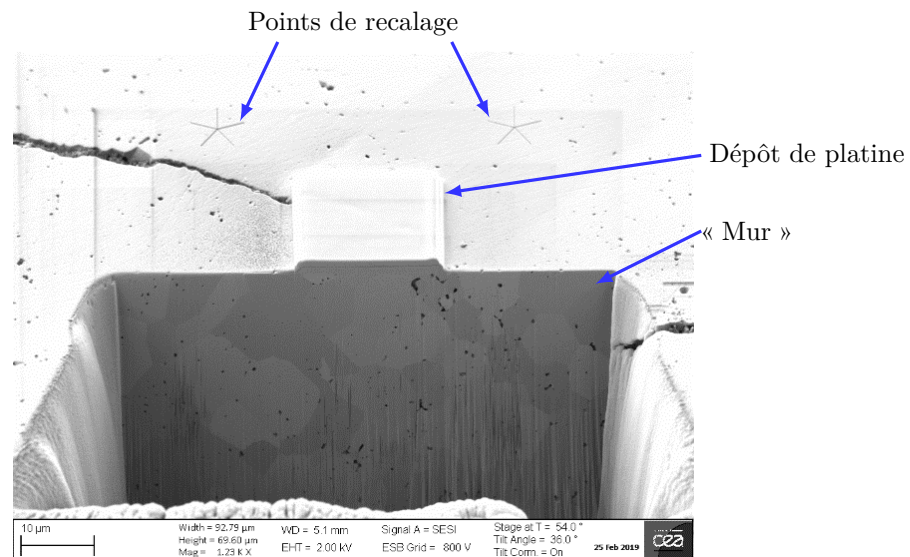


FIGURE 2.21. – Préparation de l'échantillon E_3 avant acquisition au MEB-FIB

Les marques présentes sur le dépôt platine ne sont pas visibles sur la figure 2.21.

5. Acquisition des images.

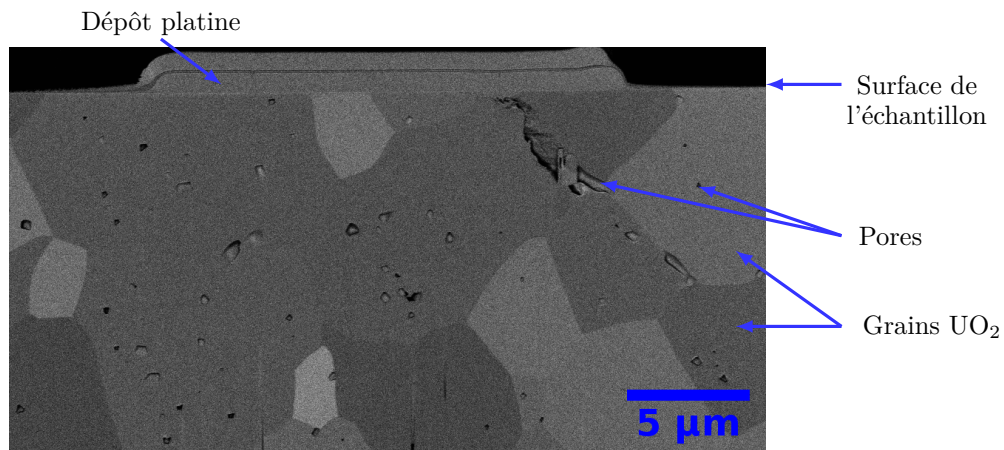
La résolution de l'image 3D à acquérir est adaptée au pas d'abrasion afin d'obtenir une

résolution identique sur les 3 axes. Une tension de 2 kV a été utilisée pour l'acquisition au MEB-FIB et les conditions du FIB utilisées pour l'abrasion sont une tension de 30 kV et une intensité de 600 pA .

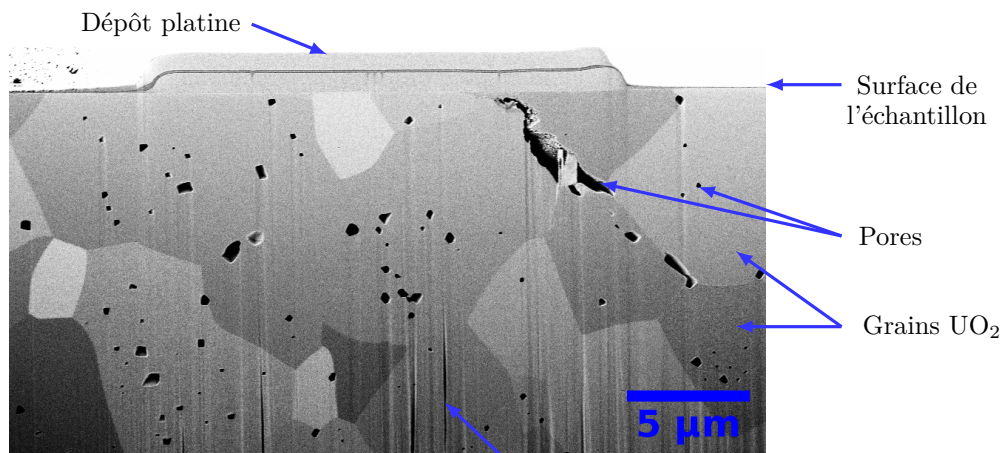
Nous avons choisi de considérer que le sens d'acquisition des images est normal à l'axe \mathbf{u}_z en posant $z = 0$ la position de la coupe associée au « mur » correspondant au début de l'acquisition.

Les conditions d'acquisition des coupes associées aux expériences réalisées sont présentées dans l'annexe D.

Trois détecteurs ont été utilisés : le détecteur d'électrons secondaires « In lens », le détecteur d'électrons rétrodiffusés (ESB, soit BSE en anglais pour *Back-Scattered Electron*) et un détecteur d'ions et électrons secondaires (SESI pour en anglais *Secondary Electron and Secondary Ion*). Il a été choisi de comparer les réponses données par ces trois détecteurs. Comme aucune acquisition n'a été réalisée avec les trois détecteurs en simultanément, la comparaison est faite deux détecteurs par deux. La figure 2.22 présente le type d'images obtenues avec tout d'abord les détecteurs ESB et SESI.



(a) Avec le détecteur ESB



(b) Avec le détecteur SESI

FIGURE 2.22. – Images obtenues avec les détecteurs SESI et ESB du MEB-FIB (acquisition 1)

Ces deux détecteurs permettent de révéler les grains (figure 2.22) des céramiques UO_2 . Sur ces images, les variations de niveaux de gris des grains UO_2 correspondent à des orientations différentes des grains.

Sur la figure 2.22a, il est possible d'observer que les bords des pores sont plus prononcés que l'intérieur de ces cavités. Étant donné le fort contraste chimique entre l' UO_2 et les porosités remplies de gaz (associé à l'atmosphère dans laquelle se fait l'acquisition), les pores sur l'image obtenue avec le détecteur SESI (figure 2.22b) apparaissent très sombres. Néanmoins quand le pore est peu profond, le SESI enregistre de l'information issue du « fond » de la porosité et cette porosité apparaît alors avec un niveau de gris plus grand. Enfin, contrairement aux images obtenues par ESB, les images par SESI sont fortement impactées par des artefacts en forme de bandes verticales appelés « rideaux » [GS99 ; Mun09]. Ces artefacts sont dus à des modifications de la vitesse de pulvérisation des électrons qui, elle, est très sensible à des variations de la structure de la surface observée. En particulier, le passage des ions par des pores et des fissures induit des changements de vitesse de pulvérisation qui se traduisent par l'observation d'artefacts sous ces structures sur les images obtenues.

Comme les zones associées aux porosités sont plus uniformes en niveaux de gris sur les images obtenues avec le détecteur SESI que ESB, il est donc plus facile d'extraire ce réseau poreux sur les images obtenues avec le détecteur SESI.

La figure 2.23 présente la comparaison des images obtenues avec les détecteurs SESI et « In lens ».

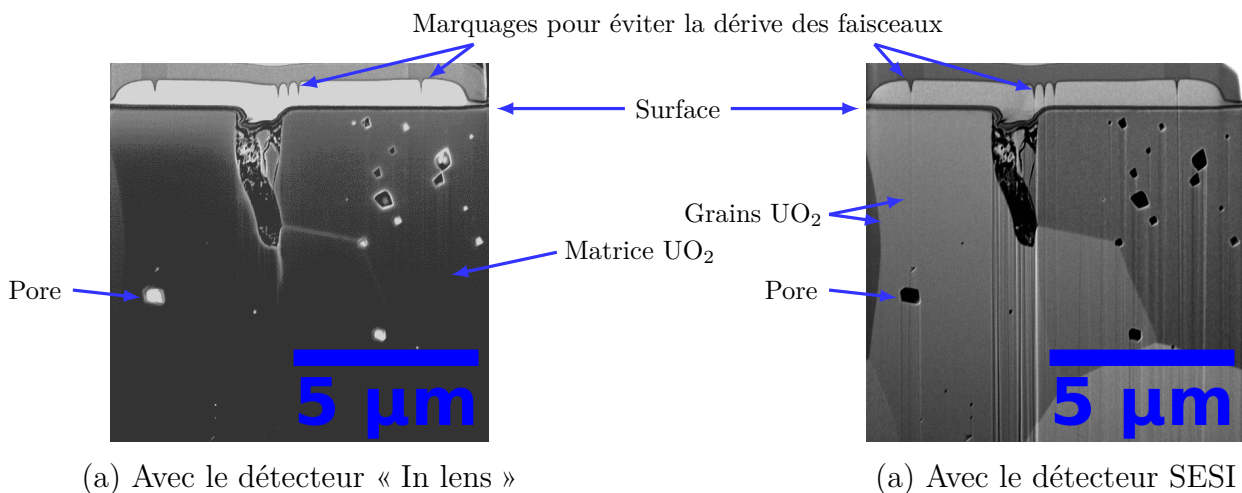


FIGURE 2.23. – Images obtenues avec les détecteurs SESI et « In lens » du MEB-FIB (acquisition 3)

Le détecteur « In lens » ne permet pas d'observer les grains UO_2 et les images obtenues avec ce détecteur ne présentent pas d'artefacts de type « rideau » contrairement à celles prises avec le détecteur SESI. Le contraste entre les pores et la phase UO_2 est accentué avec les deux détecteurs en comparaison aux images prises avec le détecteur ESB (figure 2.22a). Il apparaît cependant que des interfaces entre grains UO_2 sont aussi accentuées sur les images prises avec le détecteur « In lens » ce qui induirait des artefacts lors de l'extraction du réseau poreux.

En conclusion, du fait que les pores apparaissent de façon plus marquée sur les images obtenues avec le détecteur SESI et que les zones associées à ces pores sont plus homogènes en niveaux de gris, il a été choisi de traiter uniquement les images MEB-FIB obtenues avec le détecteur SESI.

Nous avons choisi par la suite d'étudier uniquement l'image associée à l'acquisition 1 (avec le détecteur SESI) car, parmi tous les scans réalisés, celui-ci correspond au plus grand volume caractérisé avec la résolution spatiale la plus fine (de $30 \text{ nm}/\text{vox}$).

2.2.3.2. Traitement des images MEB-FIB brutes obtenues

Comme pour les images obtenues par microscopie optique et tomographie X, l'objectif est de traiter les images MEB-FIB afin d'extraire le réseau de porosité. Le logiciel ImageJ avec la

distribution Fiji [Sch+12] a été utilisé pour traiter et analyser les images obtenues.

Le protocole optimisé est illustré sur la figure 2.24 en partant de la coupe brute présentée sur la figure 2.24a.

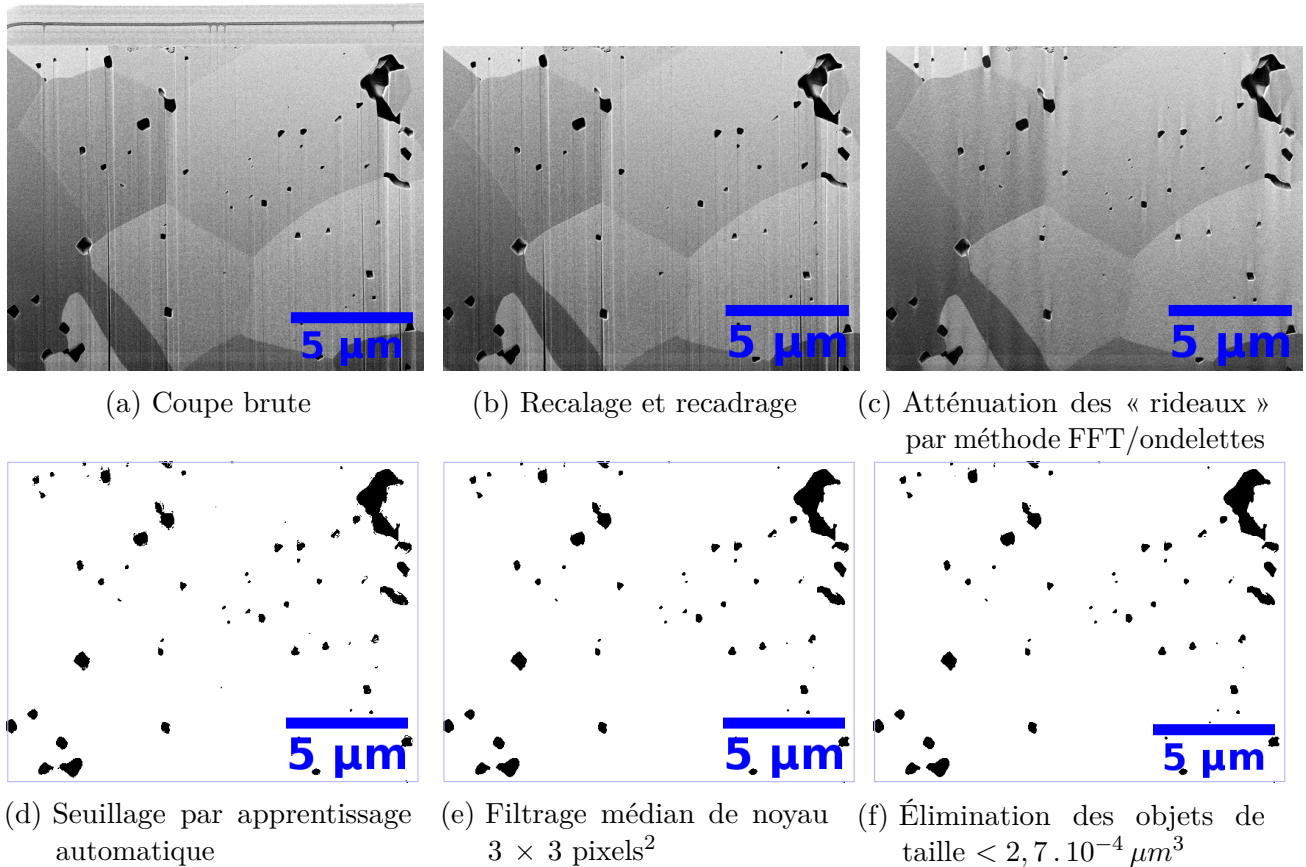


FIGURE 2.24. – Illustration des différentes étapes du traitement optimisé des images MEB-FIB : de l'image brute à l'image binaire souhaitée

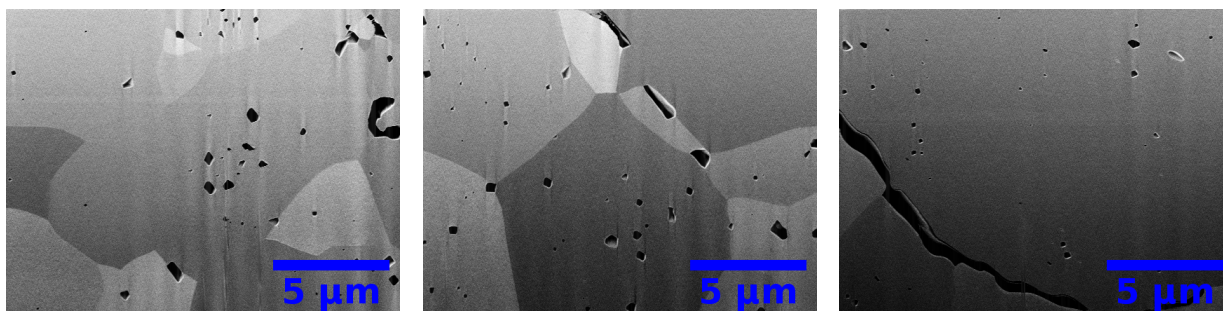
Le protocole optimisé de traitement des images MEB-FIB retenu est le suivant :

1. Recalage et recadrage des coupes à l'aide d'un plug-in développé sous Fiji par le laboratoire DEC/SA3E/LCPC (figure 2.24b).
Lors de l'acquisition, la dérive du faisceau a été atténuée en le recalant à l'aide des marques présentes sur la surface de l'échantillon. Cependant, les images ne sont pas encore alignées. Le plug-in du LCPC aligne les images en comparant les points invariants (marques sur la surface) par changement d'échelle à l'aide d'un critère de moindres carrés [Dow19]. Lors de cette étape, les images sont aussi recadrées afin de n'observer que la zone d'intérêt et d'éliminer la zone associée à la surface de l'échantillon et au dépôt de platine.
2. Atténuation des artefacts de type « rideau » à l'aide d'une méthode couplant FFT et transformée en ondelettes [Mun09] (figure 2.24c).
Dans un premier temps, le signal est décomposé en quatre portions à l'aide d'ondelettes de type Daubechies d'ordre 25 afin de séparer les informations structurales (verticales,

horizontales et diagonales) contenues dans ce signal. Le signal associé aux informations verticales (impactées par les artefacts de type « rideau ») est transformé en FFT ce qui permet de condenser ainsi l'information des artefacts. Pour les éliminer, ce signal est multiplié par une fonction d'amortissement de type gaussien avec un coefficient σ de 9.

3. Seuillage de l'image 3D par apprentissage automatique [Arg+17], nom dérivé de l'anglais *machine learning* (figure 2.24d).

La figure 2.25 montre l'évolution du rapport sur bruit S/B sur les coupes obtenues au fur et à mesure de l'acquisition.



(a) Coupe en $z = 4,5 \mu m$ ($S/B = 11$) (b) Coupe en $z = 6 \mu m$ ($S/B = 5$) (c) Coupe en $z = 13,5 \mu m$ ($S/B = 4$)

FIGURE 2.25. – Évolution du rapport signal sur bruit noté S/B en fonction des coupes après atténuation des artefacts « rideaux »

Plus le temps d'acquisition augmente et plus les images s'obscurcissent en partant du bas des images.

Lors de l'acquisition, le faisceau FIB vient abraser de fines couches d' UO_2 , ce qui se traduit par le dépôt continu de particules d' UO_2 sur les parois et le « fond » de la zone d'acquisition. Plus le temps d'acquisition augmente et plus l'épaisseur du dépôt augmente ce qui peut expliquer l'obscurcissement des images et la dégradation du rapport signal/bruit.

Or, le fait que le rapport signal/bruit diminue progressivement signifie que le contraste entre les pores et les grains UO_2 diminue au cours de l'acquisition. Cette modification induit qu'il est très difficile (voire impossible) de seuiller manuellement l'image 3D. C'est pourquoi il a été choisi de seuiller par apprentissage automatique en se basant sur des informations associées aux contours, à la valeur moyenne et à la variance des objets seuillés.

4. Élimination du bruit d'images à l'aide d'un filtre médian de noyau 3×3 pixels² sur les coupes (figure 2.24e) car le bruit d'images observé sur les coupes ressemble à du bruit impulsionnel (altération aléatoire des coupes) et touche à certains endroits les objets 3D.
5. Élimination des petits objets de moins de 10 voxels ce qui correspond pour l'acquisition étudiée à $2,7 \cdot 10^{-4} \mu m^3$ (figure 2.24f) pouvant appartenir au bruit de l'image 3D. Cette opération concerne uniquement 520 objets sur l'image 3D (sur les 3451 présents sur la figure 2.24e) ce qui explique le peu de différences observées sur les figures 2.24e et 2.24f).

Le fait d'utiliser un seuillage par apprentissage automatique est opérateur-dépendant, c'est-à-dire que l'image binaire obtenue peut être légèrement différente suivant l'opérateur réalisant le seuillage. Une piste d'optimisation du traitement des images MEB-FIB serait alors d'étudier la possibilité de s'affranchir de cette étape en essayant d'autres techniques de seuillage comme le seuillage par maillage 3D en régions présentant des caractéristiques géométriques communes [HHP09]. Cette technique peut être très robuste lorsqu'un grand nombre d'échantillons possédant des microstructures similaires est étudié.

2.3. Estimation du comportement thermique des céramiques UO_2 100 % à 50 °C

2.3.1. Caractérisation du comportement thermique d'une céramique UO_2 par méthode Flash

Afin de remonter à l'impact de la porosité sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 , il est nécessaire d'évaluer la réponse thermique de ces matériaux. La technique de caractérisation utilisée est la méthode Flash [Fal95 ; Hay+05] en face arrière.

Les céramiques UO_2 caractérisées dans cette étude sont des céramiques poreuses. Le caractère semi-transparent de ces matériaux induit qu'ils sont susceptibles d'absorber, de réfléchir et de réémettre une partie de l'énergie incidente ce qui peut alors introduire un biais dans les mesures obtenues. Pour homogénéiser la distribution thermique lors de l'acquisition, un dépôt de graphite est réalisé sur les faces avant et arrière de l'échantillon. De cette façon, le faisceau incident est absorbé de façon homogène sur la face avant et un rayonnement homogène induit par l'échauffement du milieu est réémis par la face arrière. Le graphite permet d'améliorer le signal de réponse et de la même façon d'améliorer la mesure. Ces fines couches n'ont pas d'influence sur la mesure de diffusivité thermique [MMB00].

Les études ont été conduites sur le banc HyperFlash LFA 467 (Netzch) du laboratoire DEC/SA3E/LCU au CEA Cadarache qui met en œuvre la méthode Flash en face arrière (figure 2.26).

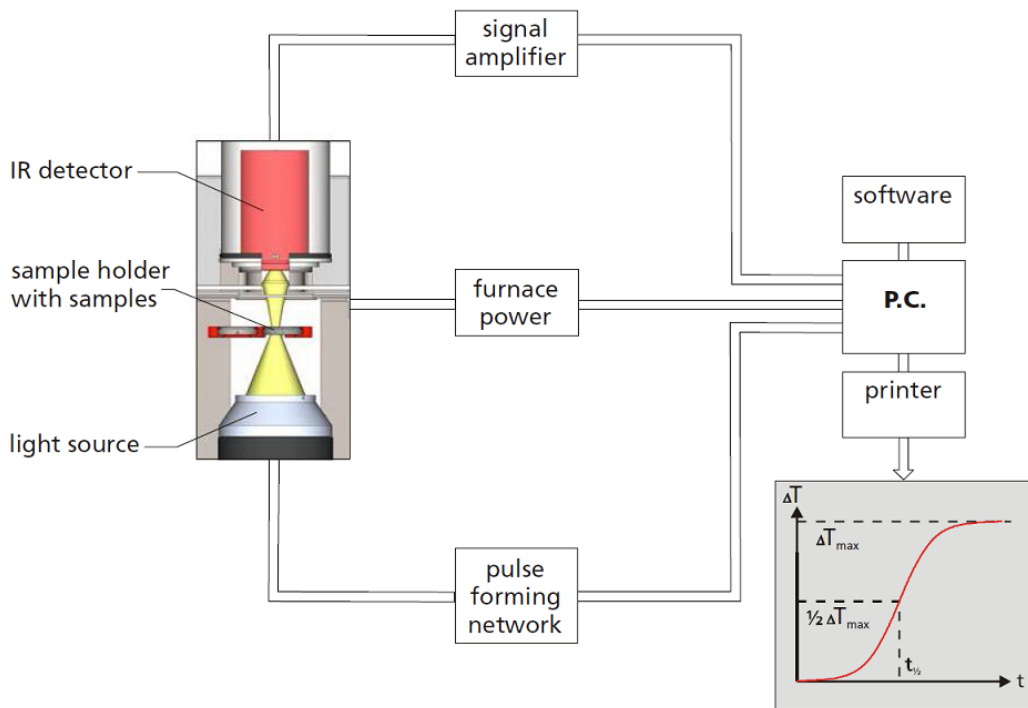


FIGURE 2.26. – Schéma de principe du banc de mesure HyperFlash LFA 467 (Netzch)

L'échantillon dont les deux faces sont recouvertes d'un dépôt de graphite est placé dans l'enceinte du diffusivimètre de façon à ce que le flux de chaleur soit parallèle à l'axe u_y qui est normal au plan d'isotropie de cet échantillon (figure 2.5). La température de l'enceinte est réglée à 50°C et le gaz environnant est l'air. Une fois la consigne de température atteinte, la source lumineuse (une lampe à Xénon) émet un flash de diamètre 25 mm sur la face du matériau exposée à la source (dite face avant). Une fois que le flux thermique a traversé l'échantillon jusqu'à atteindre l'autre face de l'échantillon parallèle à la face avant (aussi appelée face arrière), le détecteur à infrarouge d'antimoniure d'indium (InSb) enregistre la réponse temporelle du signal (appelée thermogramme) sur une zone de diamètre de $8,9\text{ mm}$ au centre de la face arrière. Le traitement du signal se fait à l'aide du logiciel Proteus associé aux machines LFA de Netzch avec une méthode de Cape-Lehman [BO02] en prenant en compte la forme du signal imposée par la source. Dans cette méthode, des approximations dans le modèle mathématique ont été réalisées pour améliorer les estimations de diffusivité thermique effectuées à hautes températures. Une correction liée à la forme réelle du signal excitateur (à l'aide d'un détecteur) a aussi été prise en compte. L'écart-type σ_{ET} lié à la mesure de diffusivité est de $1,5\%$ et il a été choisi d'évaluer l'incertitude de cette mesure comme $2\sigma_{ET}$ pour un intervalle de confiance de 95% soit 3% .

La figure 2.27 présente le domaine d'étude en diffusivité thermique balayé par les céramiques UO_2 fabriquées.

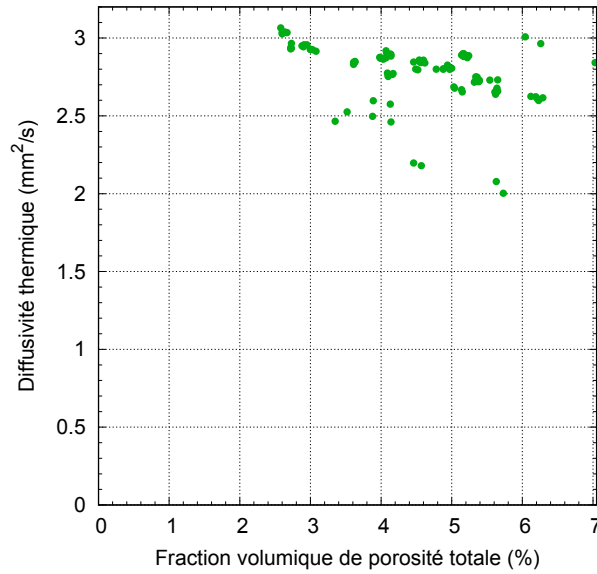


FIGURE 2.27. – Domaine balayé en diffusivité thermique par les céramiques UO_2 fabriquées

Le domaine balayé en diffusivité thermique est compris entre $2,003 \text{ mm}^2/\text{s}$ et $3,065 \text{ mm}^2/\text{s}$ à 50°C .

Les valeurs de diffusivité thermique des céramiques UO_2 caractérisées par imagerie sont présentées dans l'annexe B.

Le flux thermique imposé étant dirigé selon l'axe \mathbf{u}_y (qui est aussi la normale au plan d'isotropie des céramiques UO_2), nous avons choisi de noter α_y les valeurs de diffusivité thermique obtenues par méthode Flash.

2.3.2. Détermination de l'influence de la porosité sur la conductivité thermique à partir des mesures réalisées

Dans le cas de céramiques UO_2 vierges stœchiométriques, la conductivité thermique dépend uniquement de deux paramètres : la microstructure et la température. Il a été choisi dans un premier temps de considérer que l'impact de la microstructure peut être approximé au premier ordre par l'impact de la porosité sur la conductivité thermique.

L'impact de l'ensemble du réseau poreux sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 vierges est noté κ . À une température T donnée, le tenseur κ est défini pour une céramique UO_2 comme :

$$\kappa = \frac{1}{\lambda_{100\%}} \boldsymbol{\lambda} \quad (2.2)$$

où $\lambda_{100\%}$ est la conductivité thermique des céramiques UO_2 100 % denses à la température T et $\boldsymbol{\lambda}$ le tenseur d'ordre 2 de la conductivité thermique de la céramique étudiée à T donnée.

En faisant intervenir les diffusivités thermiques à l'aide de l'équation 1.2, le tenseur κ s'exprime de façon générale comme :

$$\kappa = \frac{1 - c_T}{\alpha_{100\%}} \boldsymbol{\alpha} \quad (2.3)$$

où c_T est la fraction volumique de porosité totale, $\alpha_{100\%}$ le coefficient de diffusivité thermique des céramiques UO_2 100 % denses à T donnée et $\boldsymbol{\alpha}$ le tenseur d'ordre 2 de la diffusivité thermique de la céramique étudiée à T donnée.

Les mesures de diffusivité thermique α_y par méthode Flash ont été réalisées en imposant un flux thermique selon l'axe \mathbf{u}_y à 50 °C (section 2.3.1). L'influence de la porosité sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 associée aux mesures expérimentales est notée κ_y et vaut :

$$\kappa_y = \frac{1 - c_T}{\alpha_{100\%}(T = 50^\circ\text{C})} \alpha_y(T = 50^\circ\text{C}) \quad (2.4)$$

La porosité totale c_T de chaque échantillon a été déterminée à l'aide de mesures par immersion (section 2.1.3).

Les valeurs de κ_y évaluées avec l'équation 2.4 ont été utilisées comme points de référence pour valider par la suite les différents modèles développés.

2.3.3. Présentation des outils numériques pour l'étude du comportement thermique des céramiques

2.3.3.1. Génération de microstructures synthétiques

L'outil utilisé pour la génération des microstructures synthétiques est l'application VER [Ibr16] (abréviation pour Volume Élémentaire Représentatif) de la plateforme PLEIADES [Mic+13], outil de référence du CEA pour la modélisation thermomécanique du combustible nucléaire sous irradiation en conditions REP. Il est possible avec ce code de modéliser des microstructures hétérogènes 2D ou 3D comme des microstructures de type aléatoire et périodique en utilisant des schémas de type RSA et booléen, de générer des maillages d'agrégats à l'aide de modèles basés par exemple sur des schémas de type Voronoi.

Un protocole de génération de microstructures synthétiques a été réalisé lors de cette étude et sera présenté dans le chapitre 5.

2.3.3.2. Évaluation numérique du comportement thermique de microstructures par FFT

L'impact de la porosité sur la conductivité thermique a aussi été évalué par homogénéisation numérique au cours de cette étude. L'outil de calcul utilisé est le code TMFFT [CHP09] (abréviation pour Thermo-Mechanics with Fast Fourier Transforms) de la plateforme PLEIADES qui utilise les méthodes FFT (section 1.4.3.1).

Les comportements thermiques des microstructures synthétiques 2D ou 3D en fichier VTK ou des coupes 2D d'images numériques en format TIFF ont été évalués par TMFFT.

Les paramètres utilisés pour l'évaluation FFT de la conductivité thermique d'un matériau bi-phasique constitué d'une matrice et d'une phase inclusionnaire sont présentés dans le tableau 2.3.

Gradient thermique $-e$ ($K/\mu m$)	0,1
Conductivité thermique λ_{mat} de la matrice ($W/(m K)$)	9,030
Critère de convergence de calcul ($K/\mu m$)	10^{-4}

TABLEAU 2.3. – Paramètres utilisés pour l'étude FFT

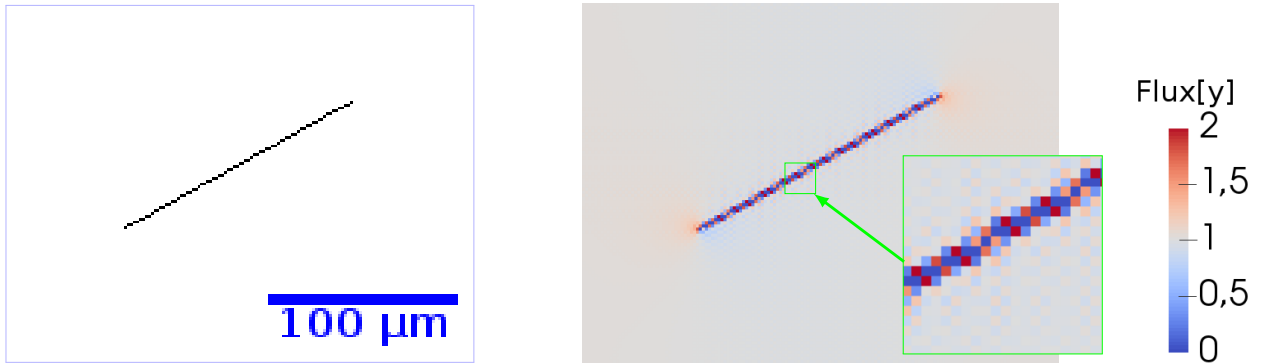
Étant donné que l'étude porte sur l'impact de la porosité sur le comportement thermique des céramiques UO_2 , les valeurs de conductivité thermique effective obtenues sont normalisées (équation 2.2). Le choix de λ_{mat} n'impacte pas les résultats obtenus concernant l'influence κ_y de la porosité sur la conductivité thermique. La conductivité thermique de la phase inclusionnaire est choisie suivant les études réalisées (pour plus de détails, voir les sections 3.2.2, 4.3.4 et 5).

Une fois toutes les données d'entrée spécifiées, le code résout le problème thermique à l'aide d'une méthode FFT. Il est possible de remonter à l'influence de la porosité sur la conductivité thermique selon une direction k (noté κ_k) d'un échantillon en utilisant l'équation suivante :

$$\kappa_k = \frac{\lambda_{e,k}}{\lambda_{mat}} \quad (2.5)$$

où $\lambda_{e,k}$ est la conductivité thermique effective évaluée par FFT selon la direction k .

Une étude FFT préliminaire a été réalisée sur un squelette d'épaisseur 1 pixel (figure 2.28).



(a) Exemple d'objet d'épaisseur de 1 pixel

(b) Carte normalisée de flux 2D de la figure 2.28a pour un chargement thermique selon \mathbf{u}_y ($\bar{\sigma} = 0,882 W/m^2$)

FIGURE 2.28. – Étude préliminaire FFT sur un objet d'épaisseur 1 pixel

Les conditions du calcul FFT sont présentées dans le tableau 2.3 et nous avons choisi d'imposer dans ce cas une conductivité thermique $\lambda_a = 0,02777 W/(m K)$ (conductivité thermique de l'air à $50^\circ C$ [SL85]) dans l'objet ayant une épaisseur 1 pixel présent sur la figure 2.28.

La carte de flux pour un chargement selon \mathbf{u}_y (figure 2.28b) a été normalisée par le flux moyen $\bar{\sigma}$ défini tel que :

$$\bar{\sigma} = \frac{\lambda_{e,y}}{-e} \quad (2.6)$$

où $\lambda_{e,y}$ est la conductivité thermique effective du milieu évaluée par FFT pour un chargement thermique selon \mathbf{u}_y .

Sur la carte normalisée de flux (figures 2.28b), le flux thermique est intense dans les zones rougeâtres contrairement aux zones bleutées. Il est possible d’observer des chemins de flux (zones rouges) passant au travers de l’objet présent sur l’image ce qui signifie que cet objet d’épaisseur 1 pixel n’est donc pas considéré comme une barrière par le flux en FFT 2D. Cela peut s’expliquer par le fait que la discrétisation spatiale associée à la méthode FFT est une grille régulière. En 2D, chaque pixel possède 8 voisins. Le flux se déplaçant de proche en proche, en chaque pixel il peut donc prendre 8 directions différentes (2 pixels connexes associés à la direction verticale, 2 à la direction horizontale et 4 aux directions diagonales). La figure 2.29 présente des exemples de chemins potentiels pour le flux face à un squelette d’épaisseur 1 pixel.



(a) Pixels connexes ayant uniquement en commun des arêtes (b) Pixels connexes pouvant avoir des sommets en commun

FIGURE 2.29. – Chemins potentiels (flèches bleues) du flux en un pixel donné (en gris) pour différents obstacles de type squelette d’épaisseur 1 pixel (en noir)

Dans le cas où deux pixels connexes d’un squelette d’épaisseur 1 pixel possèdent en commun un sommet, le flux peut traverser cet objet en passant par une direction diagonale (figure 2.29b) ce qui induit que ce type d’objets n’agit alors pas comme une barrière pour le flux thermique contrairement au cas où les pixels connexes possèdent uniquement des arêtes en commun (comme sur la figure 2.29a).

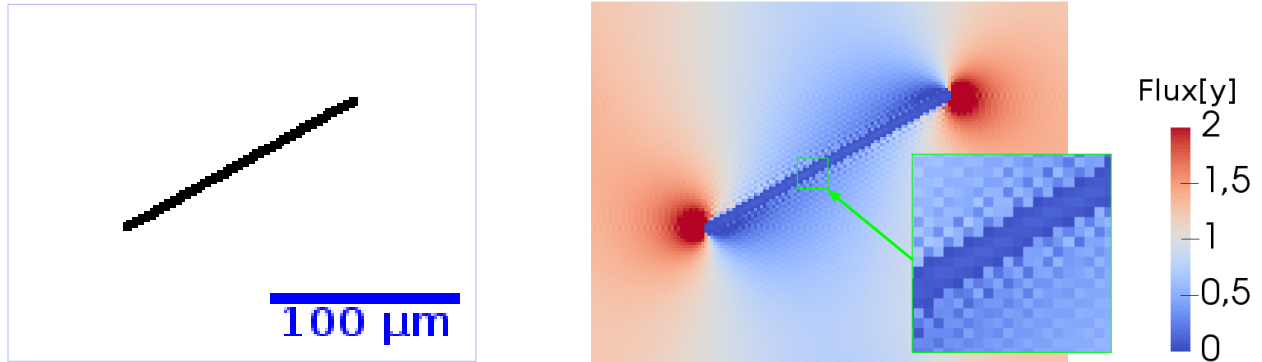
En dehors des squelettes de segments de droite horizontaux ou verticaux, il n’est donc pas possible de générer des objets de cette épaisseur qui bloquent le flux thermique. La même problématique est rencontrée en 3D. Le phénomène présenté sur la figure 2.28 et associé à l’utilisation d’une méthode FFT sur des milieux fissurés a été observé et étudié par différents auteurs comme Chen et al. [Che17] et Gasnier et al. [Gas+18a ; Gas+18b].

Il n’est donc pas possible de réaliser des études FFT 2D (ou 3D) sur des objets d’épaisseur 1 pixel (ou 1 voxel) car ils ne représentent pas de barrières pour le flux thermique. Il n’est donc pas possible d’estimer correctement par FFT le comportement thermique d’images squelettisées.

Dans cette étude, deux possibilités ont été envisagées pour s’affranchir de l’artefact numérique induit par l’utilisation de la FFT sur des images squelettisées : simuler les microstructures par éléments finis ou réaliser des études FFT en utilisant une épaisseur de ces objets suffisamment grande pour s’affranchir de l’artefact décrit ci-dessus.

Comme nous avons choisi de poursuivre les études thermiques à l’aide d’une méthode FFT (les

avantages de cette méthode étant présentés dans l'introduction de la section 1.4.3), il est donc nécessaire de déterminer les épaisseurs des objets qui permettent de s'affranchir de l'artefact détecté. La figure 2.30 présente l'étude thermique par FFT réalisée cette fois sur la figure 2.28a mais à présent dilatée avec un élément structurant de type disque de rayon 1 pixel.



(a) Figure 2.28a dilatée avec un disque de rayon de 1 pixel

(b) Carte normalisée de flux 2D de la figure 2.30a ($\bar{\sigma} = 0,692 W/m^2$)

FIGURE 2.30. – Étude préliminaire FFT sur un objet d'épaisseur 1 pixel (figure 2.28a) puis dilaté à l'aide d'un disque de 1 pixel de rayon

Les conditions du calcul FFT sont identiques à celles retenues précédemment dans l'étude présentée sur la figure 2.28. La seule différence entre ces deux études réside dans l'épaisseur de l'objet étudié. La carte normalisée de flux montre clairement l'absence de flux (zones bleutées) au niveau des pixels constituant l'objet dilaté (figure 2.30a). La dilatation réalisée sur la figure 2.28a (figure 2.30a) a donc permis de rendre cet objet hermétique au flux et celui-ci constitue alors un réel obstacle au flux dans la simulation FFT.

Dans la suite, nous avons choisi de dilater toutes les coupes squelettisées à l'aide d'un disque de rayon 1 pixel afin d'assurer que tous les objets présents sur les coupes soient considérés comme des obstacles au flux lors des simulations FFT.

Notons aussi que les figures 2.28b et 2.30b présentent des oscillations numériques locales du flux thermique qui sont plus visibles au voisinage de l'objet étudié. Ces artefacts sont caractéristiques de l'utilisation d'une méthode spectrale et il est possible de s'affranchir de ces oscillations en utilisant une méthode de filtrage (section 1.4.3.1). La figure 2.31 présente la réponse thermique obtenue en utilisant une méthode de filtrage pour la simulation FFT réalisée sur la figure 2.30a.

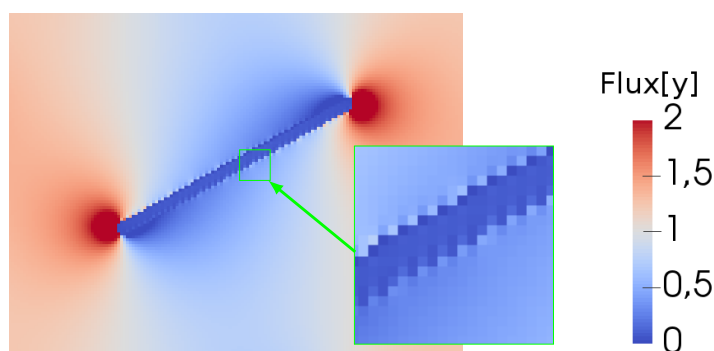


FIGURE 2.31. – Carte normalisée de flux 2D de la figure 2.30a avec un filtrage de Willot [Wil15] ($\bar{\sigma} = 0,691 \text{ W/m}^2$)

Sur la figure 2.31, ces oscillations ne sont pas présentes contrairement à la simulation FFT réalisée sans filtrage (figure 2.30b) et la carte de flux normalisée obtenue apparaît « lissée ». Il est donc possible de s’affranchir des oscillations en utilisant un filtre passe-bas lors de l’étude par FFT [Gas+18a] (ici la méthode de Willot [Wil15] a été utilisée).

Par la suite, les études FFT ont été réalisées sans filtrage car les études réalisées sont peu impactées par les oscillations numériques de la réponse thermique. Les calculs FFT 2D et 3D effectués lors de cette étude sur des images numériques et sur des microstructures générées sont présentés dans les chapitres 3, 4 et 5. Lorsque l’absence de filtrage peut impacter les résultats obtenus, ce point sera discuté plus en détail.

2.4. Conclusions du chapitre

Dans ce chapitre, nous avons :

- présenté les différents procédés de fabrication des céramiques UO_2 (section 2.1.1),
- présenté les échantillons UO_2 vierges fabriqués, couvrant une large gamme de fractions volumiques de porosité totale, ouverte et fermée représentatives de celles des réseaux poreux des céramiques UO_2 standard vierges et irradiées (section 2.1.2),
- caractérisé le domaine d’étude en termes de fractions volumiques à l’aide de mesures par immersion (section 2.1.3),
- optimisé les conditions d’acquisition des images obtenues par microscopie optique, tomographie X et MEB-FIB permettant d’avoir ainsi des représentations 2D et 3D à différentes échelles de la microstructure des céramiques UO_2 (section 2.2),
- présenté les méthodologies de traitement des images obtenues par microscopie optique, tomographie X et MEB-FIB afin d’en extraire le réseau de porosité des échantillons étudiés (section 2.2),
- caractérisé le comportement thermique des céramiques étudiées à 50°C à l’aide de mesures de diffusivité thermique par méthode Flash en face arrière pour un chargement thermique selon l’axe \mathbf{u}_y (section 2.3.1),
- déterminé l’impact κ_y de la porosité sur la conductivité thermique des céramiques associées aux mesures expérimentales par méthode Flash (équation 2.4),
- décrit les codes de calculs utilisés lors de cette étude pour générer des microstructures synthétiques et caractériser le comportement thermique de microstructures synthétiques

(section 2.3.3),

- démontré la présence d'un artefact associé à l'utilisation de la FFT sur des objets squelettisés et présenté la méthode employée pour s'en affranchir (section 2.3.3.2).

L'objectif du chapitre suivant est de modéliser le réseau poreux des céramiques UO_2 à l'aide d'une approche par homogénéisation double-échelle suite à l'étude des images 2D et 3D obtenues. Un premier modèle est proposé en représentant les pores à l'aide d'inclusions sphéroïdales.

Ce chapitre a permis de mettre en avant les perspectives suivantes :

- Pour améliorer la reproductibilité du protocole d'acquisition des coupes par microscopie optique (section 2.2.1.1), il serait intéressant pour la prochaine campagne d'acquisition de fixer la taille des images plutôt que leur rapport longueur/largeur comme ce qui a été réalisé dans cette étude.
- Pour avoir des images 3D de microstructures représentatives de l'ensemble du domaine d'étude, il est nécessaire de caractériser plus d'échantillons par tomographie X et MEB-FIB.
- Afin d'améliorer la qualité des images obtenues par tomographie X, il est envisagé pour une prochaine campagne d'acquisition par tomographie X d'utiliser un filtre de cuivre lors des acquisitions pour atténuer le durcissement de faisceau (section 2.2.2.2). Une perspective est de réaliser trois scans de tomographie X à différentes hauteurs de l'échantillon étudié et de les concaténer par la suite pour améliorer la qualité des images obtenues.
- Un artefact affectant l'ensemble du scan de tomographie X obtenu dans les conditions optimales d'acquisition a été observé (figure 2.20). Pour étudier l'ensemble des pores du volume obtenu lors de cette acquisition, nous envisageons de détecter les anneaux associés à cet artefact sur toutes les coupes normales à l'axe \mathbf{u}_z . L'idée est d'évaluer sur chaque coupe le centre de l'anneau observé et son rayon afin de l'éliminer par la suite sur l'image 3D binarisée.
- Afin d'améliorer la robustesse des seuillages réalisés sur les images MEB-FIB, une perspective est d'étudier d'autres techniques de seuillage comme le seuillage par maillage 3D en considérant des régions avec des caractéristiques géométriques identiques. Cette méthode est efficace lorsqu'un grand nombre d'échantillons de microstructures similaires est étudié.
- Nous avons envisagé d'étudier l'influence de la méthode d'analyse des thermogrammes utilisée (Cape et Lehman) sur les valeurs de diffusivité thermique obtenues.
- Une étude numérique complémentaire aux simulations FFT serait d'utiliser les éléments finis pour déterminer l'impact d'objets d'épaisseur 1 pixel ou 1 voxel sur la conductivité thermique d'une microstructure synthétique.
- L'étude de la porosité sur la conductivité thermique a été réalisée ici à température constante : 50°C . Il est intéressant de compléter cette étude en étudiant aussi l'impact de la température sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 .

3. Modélisation double-échelle de la porosité des combustibles UO_2 par des inclusions sphéroïdales

Dans ce chapitre, nous établissons la représentation double-échelle du réseau de pores des céramiques UO_2 et proposons un modèle où les pores sont modélisés à l'aide d'inclusions sphéroïdales.

La représentation double-échelle de la porosité des céramiques UO_2 est établie suite à l'étude d'images 3D et 2D de microstructures réelles dans la section 3.1. Les pores sont alors classés en deux familles : la porosité d'assemblage et la porosité occluse.

La caractérisation de la morphologie des pores occlus est réalisée sur les images 3D et l'impact de la porosité occluse sur la conductivité thermique est estimé par FFT 2D sur des coupes obtenues par tomographie X. L'impact de la porosité occluse sur la diffusivité thermique de céramiques présentant un réseau de pores majoritairement occlus a aussi été étudié. Suite à ces différentes études, un modèle donnant l'impact de la porosité occluse sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 a été proposé dans la section 3.2.

Dans ce chapitre, nous avons choisi de modéliser les pores d'assemblage à l'aide d'inclusions sphéroïdales orientées. Deux modèles donnant l'impact de ces inclusions pour deux cas extrêmes de distribution d'orientations de sphéroïdes sont proposés dans la section 3.3.1. Une méthodologie de détermination du facteur de forme des sphéroïdes à partir de coupes est développée (section 3.3.2). La représentativité des modèles proposés est évaluée en les comparant aux mesures expérimentales (section 3.3.3).

3.1. Représentation double-échelle de la porosité des céramiques UO_2

Les modèles classiques donnant l'influence du réseau poreux sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 dépendent d'un seul paramètre descripteur qui est la fraction volumique de porosité totale. Ces modèles ne sont cependant pas représentatifs du comportement des céramiques UO_2 étudiées. Ainsi, afin d'obtenir un modèle plus représentatif, la représentation du réseau de pores des céramiques UO_2 a été étoffée en classant les pores en deux familles.

Dans la section 2.2.1.1, deux familles de pores ayant des morphologies différentes ont été définies à partir des coupes obtenues par microscopie optique : la porosité occluse de forme compacte et la porosité d'assemblage de forme allongée formant un réseau interconnecté 2D observable sur les coupes étudiées. De plus, l'étude de plusieurs coupes parallèles entre elles (figure 2.10) a aussi montré que les pores d'assemblage semblent former un réseau interconnecté en 3D.

En se basant sur l'étude des coupes obtenues par microscopie optique, nous avons choisi de représenter le réseau poreux des céramiques UO_2 à l'aide des deux familles identifiées, c'est-à-dire la porosité d'assemblage et la porosité occluse. Afin de confirmer et compléter les observations réalisées par microscopie optique, des images binaires 3D ont été étudiées :

- Le réseau poreux de l'échantillon $E_{1,1}$ a été caractérisé à partir d'images binaires obtenues par tomographie X sur un volume de l'ordre de $0,9 \text{ mm}^3$ avec une résolution spatiale de l'ordre de $0,8 \mu\text{m}$ (section 2.2.2). Pour rappel, cet échantillon a été choisi pour cette

caractérisation car il correspond à un des échantillons où la probabilité d'observer le réseau des pores d'assemblage dans le volume étudié est maximisée du fait qu'il présente une des fractions volumiques de porosité totale les plus grandes de ce domaine (la 5^e sur 94 échantillons).

- Le réseau poreux de l'échantillon E_3 a été caractérisé à partir d'images binaires obtenues par MEB-FIB sur un volume de l'ordre de $4200 \mu m^3$ avec une résolution spatiale de l'ordre de $30 nm$ (section 2.2.3). Pour rappel, le choix de cet échantillon pour cette caractérisation est basé sur le fait que son rapport de fraction volumique de porosité ouverte sur celle de porosité totale est un des plus grands du domaine d'étude (le 9^e sur 94 échantillons). La céramique E_3 présente une des plus grandes probabilités d'observer le réseau des pores d'assemblage du domaine en supposant que le taux de porosité d'assemblage est proportionnel à celui de la porosité ouverte.

La figure 3.1 présente des zones caractéristiques des coupes, qui ont été obtenues par microscopie optique, des deux échantillons caractérisés par imagerie 3D.

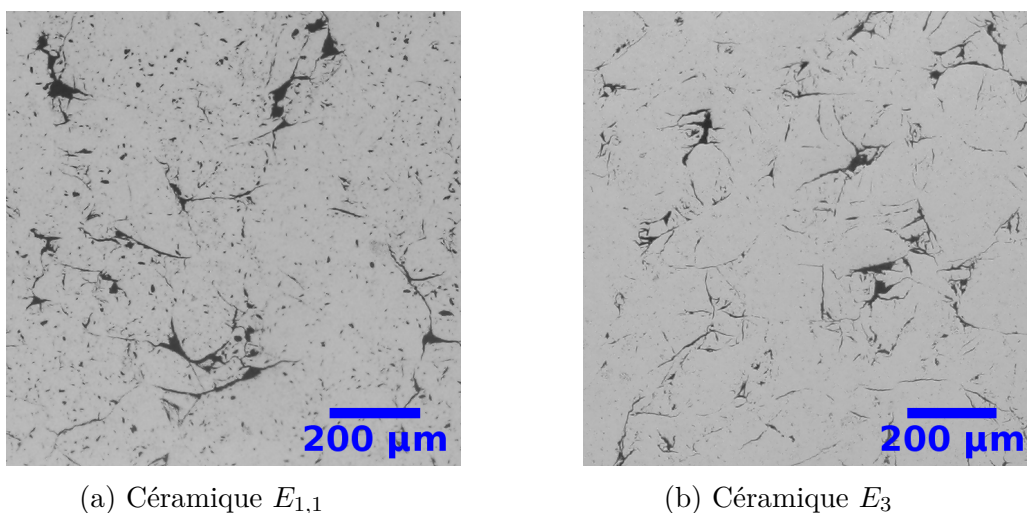


FIGURE 3.1. – Zones caractéristiques sur des coupes obtenues par microscopie optique associées aux échantillons caractérisés par imagerie 3D

Les caractéristiques de deux échantillons caractérisés par imagerie 3D sont présentées dans le tableau 3.1 en donnant aussi leur localisation dans le classement décroissant des caractéristiques des 94 échantillons du domaine d'étude.

Échantillon	$E_{1,1}$	E_3
Caractérisation 3D réalisée sur ces échantillons	Tomographie X	MEB-FIB
Lot de poudre UO_2	Identique	
Pression de précompactage $P_{préc}$	Identique	
Rapport des pressions de pressage et de précompactage $P_{press}/P_{préc}$ (%)	30	32
Ajout de porogène aux poudres lors de la fabrication	Oui	Non
Fraction volumique de porosité totale c_T (%)	6,2 (5 ^e /94)	5,0 (35 ^e /94)
Fraction volumique de porosité ouverte c_o (%)	3,1 (16 ^e /94)	3,5 (13 ^e /94)
Fraction volumique de porosité fermée c_f (%)	3,1 (26 ^e /94)	1,5 (83 ^e /94)
Diffusivité thermique α_y à 50 °C (mm^2/s)	2,611 (82 ^e /94)	2,678 (72 ^e /94)

TABLEAU 3.1. – Caractéristiques des échantillons caractérisés par imagerie 3D

Notons que les conditions de fabrication des deux échantillons caractérisés par imagerie 3D sont similaires à l'exception d'une faible différence du rapport de pressions $P_{press}/P_{préc}$ et de la présence de porogène pour la fabrication de l'échantillon $E_{1,1}$ contrairement à celle de l'échantillon E_3 . Du fait de l'utilisation de porogène dans la fabrication de la céramique $E_{1,1}$, il est attendu que les pores occlus de cet échantillon présentent des dimensions plus grandes que celles de l'échantillon E_3 .

Par rapport à l'ensemble du domaine d'étude (sections 2.1.3 et 2.3.1), ces deux échantillons présentent des fractions volumiques de porosité totale c_T et de porosité ouverte c_o importantes et des valeurs de diffusivité thermique α_y à 50 °C faibles. Cependant, sur le tableau 3.1, notons que le taux de porosité fermée c_f de l'échantillon $E_{1,1}$ est fort (26^e plus grande valeur de c_f sur les 94 échantillons du domaine d'étude) tandis que celle de l'échantillon E_3 est faible (83^e/94). Par la suite (sections 3.2.1 et 3.2.2), étant donné que ces deux échantillons présentent des taux c_f extrêmes par rapport au domaine d'étude, ils seront utilisés afin d'évaluer l'impact de la porosité occluse assimilée à la porosité fermée sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 .

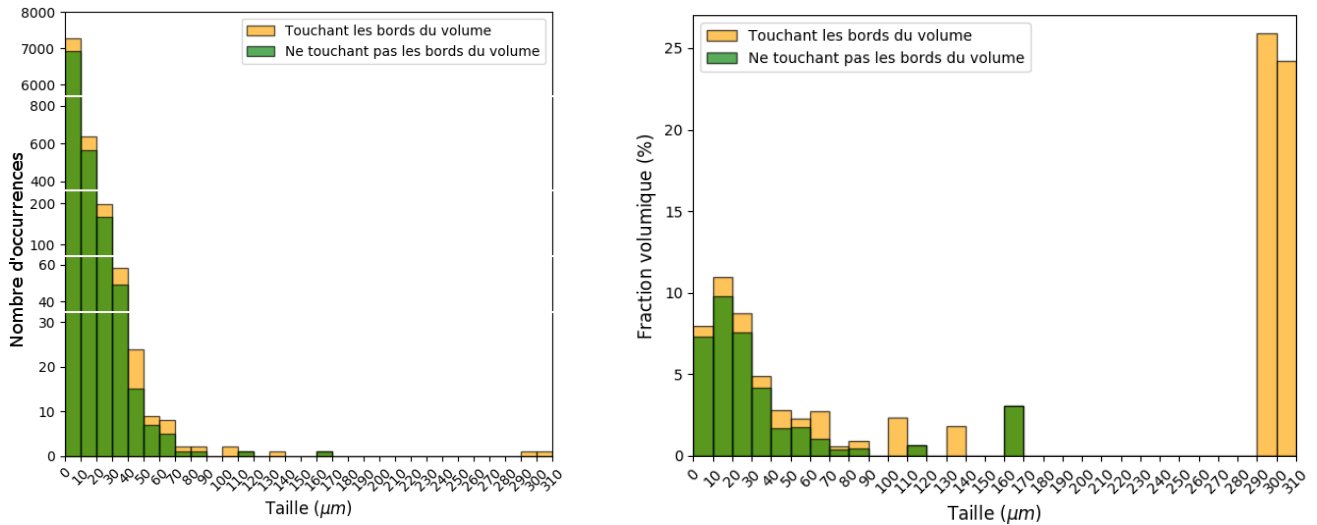
Le classement des pores observés sur les images 3D dans les deux familles identifiées a été réalisé à partir des images binaires 3D obtenues par tomographie X (étude dans la section 3.1.1) et par MEB-FIB (étude dans la section 3.1.2).

3.1.1. Classification des pores observés par tomographie X

Suite au traitement d'images présenté dans la section 2.2.2.3, un réseau d'objets associé à la porosité de l'échantillon $E_{1,1}$ a été extrait à partir des images obtenues par tomographie X. L'objectif est de classer les objets présents sur l'image 3D en les identifiant soit à la porosité d'assemblage soit à la porosité occluse. Comme il existe une différence significative de taille entre les deux familles de pores sur les coupes obtenues par microscopie optique (figure 2.10), nous avons choisi de classer l'ensemble du réseau poreux suivant leur taille.

Pour cela, les objets de l'image étudiée ont été représentés à l'aide d'ellipsoïdes et caractérisés à l'aide du plug-in *3D Ellipsoid* d'ImageJ [Oll+13] qui calcule la matrice des moments 3D

de chaque ellipsoïde afin d'évaluer leurs demi axes ainsi que leur orientation. Les tailles des demi grand-axes des ellipsoïdes représentant les objets présents sur l'image 3D étudiée sont compris dans l'intervalle $[0; 310] \mu m$. Une ambiguïté subsiste sur la taille des objets touchant le bord du volume étudié. Pour identifier ces objets, nous avons utilisé le plug-in *3D Objects Counter* [BC06] qui détermine les objets d'une image 3D comme les régions connexes 3D et détecte les objets touchant les bords du volume étudié. Avec un pas sur la taille du demi grand-axe de $10 \mu m$, la figure 3.2 présente le nombre d'occurrences de ces ellipsoïdes pour chaque intervalle de taille du demi grand-axe (figure 3.2a) et la fraction volumique associée à chacun de ces intervalles (figure 3.2b) suivant que ces objets touchent ou non les bords du volume étudié.



(a) Nombre d'occurrences en fonction du demi grand-axe des ellipsoïdes

(b) Fraction volumique en fonction du demi grand-axe des ellipsoïdes

FIGURE 3.2. – Étude des ellipsoïdes représentant les objets présents sur l'image 3D obtenue par tomographie X

À partir de la figure 3.2, nous observons trois groupes d'objets en les classant suivant la taille du demi-grand axe des ellipsoïdes représentant ces objets :

1. Le groupe d'objets de demi grand-axe supérieur à $290 \mu m$ est identifiable et il représente 50 % du volume total des objets seuillés (figure 3.2b). Ces longs objets sont cependant peu nombreux avec un nombre d'occurrences de 0,03 % et l'ensemble de ces objets touchent les bords du volume étudié (figure 3.2a). Ces entités possèdent des caractéristiques en adéquation avec les observations réalisées sur les coupes obtenues par microscopie optique ce qui permet de les associer soit à la famille des pores d'assemblage, soit à des pores occlus tronqués par le volume étudié.
2. Un total de 98,55 % du nombre d'objets présents sur l'image 3D présente un demi grand-axe inférieur ou égale à $30 \mu m$ avec 5,74 % de ces objets touchant les bords du volume étudié (figure 3.2a). Comme nous pouvons le constater sur la figure 3.2b, ces entités représentent 28 % du volume total du réseau poreux extrait de l'image 3D. Les nombreux objets de cette classe de petite taille non tronqués par les bords du volume d'étude sont

associés aux pores occlus. Pour les autres objets de cette classe, une ambiguïté subsiste sur la morphologie réelle de ces objets.

3. Les objets possédant des demi grand-axes compris entre $30\ \mu m$ et $290\ \mu m$ représentent, quant à eux, environ 22 % du volume total de ces objets (figure 3.2b) et 1,42 % de l'ensemble des objets présents sur l'image 3D où 24 % de ces objets touchent les bords du volume étudié (figure 3.2a). Ces entités possèdent des valeurs de demi grand-axe intermédiaires par rapport aux deux groupes d'objets déjà identifiés et il n'est pas possible de classer ces objets en se basant uniquement sur une étude des graphes de la figure 3.2.

Nous avons donc choisi de compléter cette étude en observant la morphologie de ces objets de demi grand-axe compris entre $30\ \mu m$ et $290\ \mu m$. La figure 3.3 présente un objet de morphologie caractéristique de ces objets ayant des demi grand-axes compris entre $30\ \mu m$ et $290\ \mu m$.

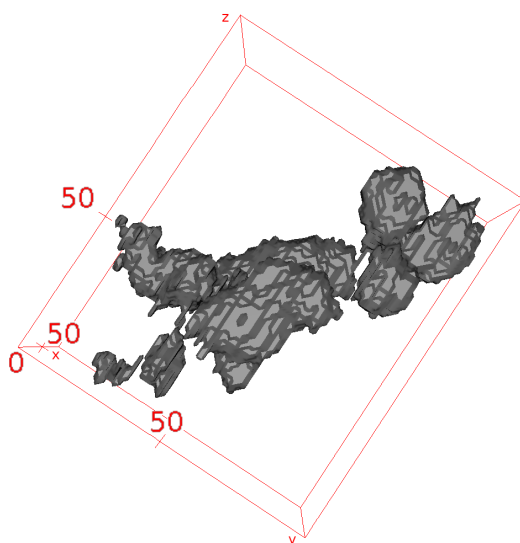


FIGURE 3.3. – Porosité de demi grand-axe de $41,2\ \mu m$

L'objet présenté sur la figure 3.3 semble être constitué de différents pores de petite taille et de forme quasi sphérique qui apparaissent « agglomérés ». De façon plus générale, ce phénomène a été observé sur la majorité des objets de demi grand-axes compris entre $30\ \mu m$ et $290\ \mu m$.

Deux hypothèses sur l'origine de ce type d'objets de demi grand-axes compris entre $30\ \mu m$ et $290\ \mu m$ ont été étudiées :

1. Ce type d'objets existe physiquement dans la microstructure des céramiques UO_2 . Dans le cas où le demi grand-axe des particules solides de porogène est supérieure à celle des pores fabriqués sans porogène, la formation de ce type d'entités pourrait alors s'expliquer par l'utilisation de porogène lors du procédé de fabrication des céramiques car cela induit la formation de pores de la taille des particules de porogène. Il est aussi raisonnable de penser que si des particules solides de porogène sont agglomérées dans la microstructure, elles pourraient engendrer des objets comme celui de la figure 3.3. Pour corroborer cette hypothèse, la figure 3.4 présente une coupe obtenue par microscopie optique d'un pore possédant une forme pouvant faire penser à celle des objets de demi grand-axes compris entre $30\ \mu m$ et $290\ \mu m$ observés en tomographie X.

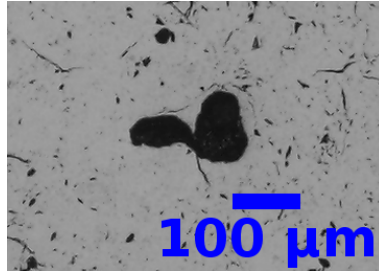


FIGURE 3.4. – Observation par microscopie optique sur l'échantillon $E_{1,1}$ d'une porosité de morphologie particulière et de diamètre de Feret de l'ordre de $150 \mu m$

Sur la figure 3.4, nous observons que cet objet semble être constitué de deux pores contigus qui se sont agglomérés. De plus, ces deux pores présentent une forme compacte comme les pores occlus et l'objet étudié (de demi grand-axe mesuré sur la figure 3.4 de l'ordre de $75 \mu m$) ne présente pas non plus une forme allongée comme les pores d'assemblage observés. Ce pore pourrait donc avoir été généré à partir de particules agglomérées de porogène.

Cependant, la très faible occurrence d'observation de pores agglomérés à l'aide d'autres techniques d'imagerie que la tomographie X montre qu'il existe peu de pores de ce type dans le matériau. Ces observations ne permettent donc pas d'expliquer le fait que 10% du volume total des objets présents sur l'image 3D sont des objets de demi grand-axes compris entre $30 \mu m$ et $290 \mu m$ (figure 3.2b). L'origine des objets agglomérés observés en tomographie X ne peut donc pas s'expliquer complètement par la présence dans le matériau de pores agglomérés induits par l'utilisation de porogène.

2. Ce type d'objets est induit par le procédé d'acquisition et de traitement d'images utilisé. La présence de ces objets sur l'image 3D binarisée peut aussi s'expliquer par le fait que des pores occlus soient mal résolus. En effet, lorsque la distance entre deux pores occlus est inférieure à la résolution spatiale utilisée lors de l'acquisition d'images (ici de l'ordre de $0,8 \mu m$), ces objets apparaissent connectés sur l'image obtenue. Il est alors dit qu'ils sont « mal résolus ». Cette hypothèse est la plus probable car elle permet d'expliquer l'abondance de ces objets sur l'image 3D de tomographie X.

Nous avons choisi de ne pas pousser plus loin la classification des objets de demi grand-axes compris entre 30 et $290 \mu m$ présents sur l'image de tomographie X car la nature de ces objets n'est pas avérée. Une nouvelle acquisition par tomographie X sur le même échantillon observé par tomographie X avec une résolution plus basse permettrait de confirmer l'hypothèse selon laquelle ces objets sont issus d'une mauvaise résolution des pores occlus. Sur cette acquisition, il est attendu que les pores soient mieux résolus.

La figure 3.5 illustre sur une coupe la séparation réalisée sur l'image binarisée 3D de tomographie X.

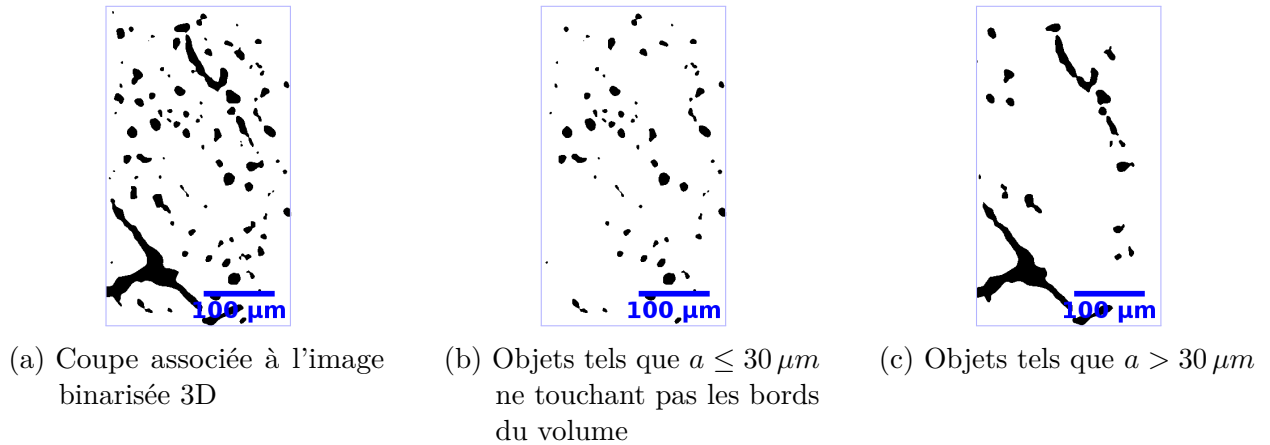


FIGURE 3.5. – Classification des objets sur l'image binarisée 3D de tomographie X présentée sur une coupe parallèle à l'axe u_y (à une abscisse y donnée)

Nous avons donc choisi de séparer le réseau de pores en prenant comme taille de demi grand-axe critique $a_{crit} = 30 \mu m$ où :

- les objets ne touchant pas les bords du volume et tels que $a \leq a_{crit}$ sont associés aux pores occlus (figure 3.5b),
- les objets tels que $a > a_{crit}$ sont des objets pour lesquels il n'est pas possible de déterminer avec précision leur morphologie du fait qu'ils touchent les bords du volume ou qu'ils présentent une morphologie de type aggloméré comme l'objet présenté sur la figure 3.3 (figure 3.5c).

Ce choix est cohérent avec les observations sur les coupes obtenues par microscopie optique où il n'est pas possible de suivre des pores de petite taille de type occlus sur plusieurs coupes espacées de $30 \mu m$. La classification qui a été proposée sur la figure 3.5 a permis d'extraire une image 3D contenant des pores occlus. Sur cette image, les pores occlus représentent d'environ 93 % en nombre d'occurrences et 25 % du volume total des objets présents sur l'image 3D (figure 3.5b). La caractérisation des pores occlus extraits est présentée dans les sections 3.2.2 et 3.2.1.

Il n'a pas été possible de définir la morphologie des pores d'assemblage avec cette technique d'imagerie.

Afin de compléter la classification des porosités dans les céramiques UO_2 , l'étude de l'image 3D de tomographie X de l'échantillon $E_{1,1}$ a été complétée par l'étude de l'image 3D de l'échantillon E_3 obtenue par MEB-FIB à partir de l'acquisition 1 avec une résolution spatiale de $30 nm$ (annexe D).

3.1.2. Classification des pores observés par MEB-FIB

Notons que le volume scanné lors de l'acquisition est de $17 \times 13,4 \times 18,6 \mu m^3$ ce qui signifie que l'objet le plus grand qui puisse être observé dans ce volume aurait un diamètre de $25 \mu m$ ($= \sqrt{17^2 + 18,6^2}$) qui est toujours strictement supérieur au demi grand-axe critique a_{crit} déterminé pour l'image de tomographie X (section 3.1.1). Aussi, il est impossible d'observer un pore d'assemblage en entier dans le volume observé par MEB-FIB. Tous les pores d'assemblage observables sur l'image 3D touchent les bords de l'image et sont donc confondus avec les pores

occlus qui sont aussi tronqués par les bords du volume. Nous avons donc choisi de ne pas extraire les pores d'assemblage avec cette technique de caractérisation.

La figure 3.6 présente la classification réalisée sur l'image binarisée 3D étudiée qui a été obtenue par MEB-FIB à l'aide du plug-in *3D Objects Counter* [BC06].

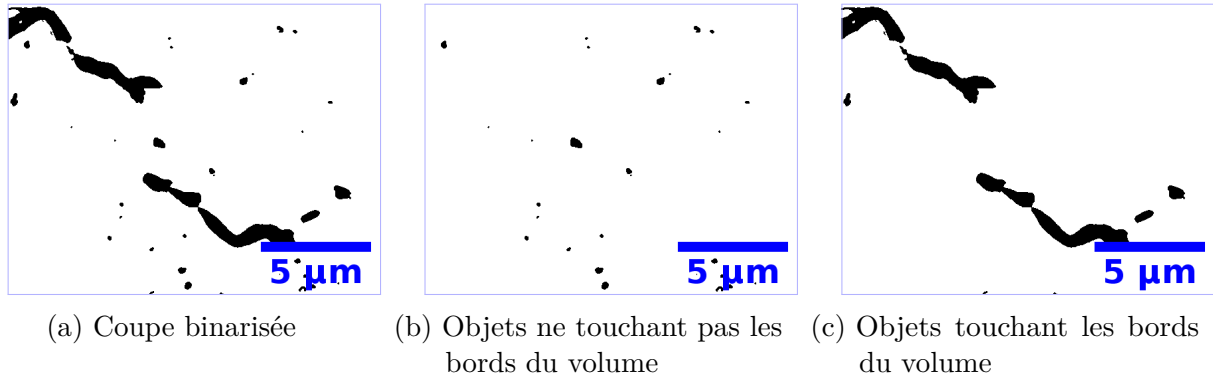
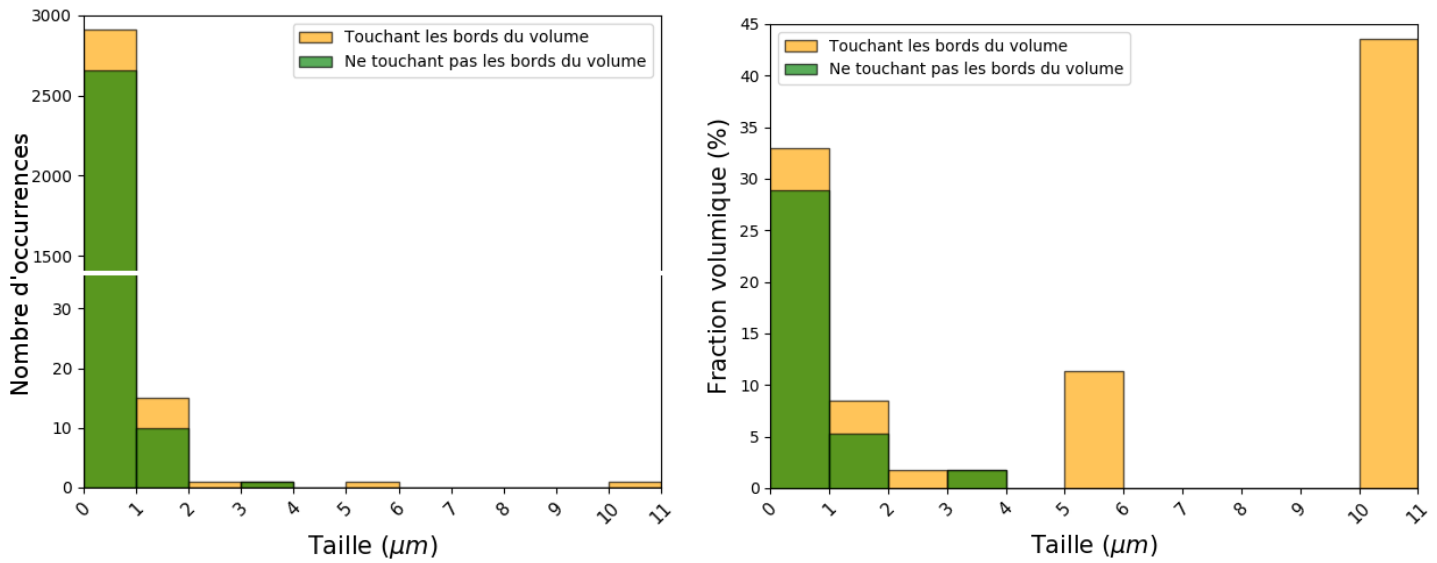


FIGURE 3.6. – Classification des objets sur l'image MEB-FIB binarisée illustrée sur une coupe à une abscisse z donnée

Il est ainsi possible de classer les objets présents sur l'image 3D obtenue par MEB-FIB en deux familles :

- les objets ne touchant pas les bords du volume qui sont associés aux pores occlus (figure 3.6b),
- les objets touchant les bords du volume qui sont des pores d'assemblage ou occlus tronqués par les bords du volume d'acquisition (figure 3.6c).

Afin d'évaluer la classification réalisée (figure 3.6), nous avons étudié, de façon similaire à ce qui a été réalisé dans la section 3.1.1, les graphes donnant l'occurrence des objets (figure 3.7a) et de leur fraction volumique associée (figure 3.7b) en fonction de la taille des demi grands-axes des objets présents sur l'image 3D étudiée avec un pas de taille de demi grand-axe de $1 \mu m$.



(a) Nombre d'occurrences en fonction du demi grand-axe des ellipsoïdes

(b) Fraction volumique en fonction du demi grand-axe des ellipsoïdes

FIGURE 3.7. – Étude des ellipsoïdes représentant les objets présents sur l'image MEB-FIB étudiée

Notons que les demi grands-axes des ellipsoïdes représentant les objets présents sur l'image 3D obtenues par MEB-FIB sont compris dans l'intervalle $[0; 11] \mu m$ (figure 3.7). À partir de la figure 3.7, nous observons que les deux groupes identifiés (figure 3.6) présentent les caractéristiques suivantes :

1. L'ensemble des objets ne touchant pas les bords du volume et identifiés aux pores occlus représente 91 % des objets présents sur l'image 3D (figure 3.7a) et 36 % du volume total de ces objets (figure 3.7b). Ces résultats montrent donc que ces objets sont petits et très nombreux ce qui est en cohérence avec les observations réalisées en microscopie optique et tomographie X.
2. L'ensemble des objets touchant les bords du volume représente, quant à lui, uniquement 9 % des objets présents sur l'image (figure 3.7a) et contribue à 64 % au volume total de ces objets (figure 3.7b). Du fait de la forte présence de ces objets et leur petite taille de demi grand-axe, nous avons choisi de les identifier à de la porosité occluse. Notons que les deux objets présentant les demi grands-axes les plus grands ($a > 5 \mu m$) font partie de cette classe d'objets. L'absence d'informations complémentaires sur ces objets ne permet pas de déterminer s'ils appartiennent à la porosité occluse ou d'assemblage.

La classification qui a été proposée sur la figure 3.6 a donc permis d'extraire une image 3D contenant des pores occlus. La caractérisation de ces pores occlus est présentée dans les sections 3.2.1 et 3.2.2.

Notons que le rapport entre le nombre de pores occlus (ne touchant pas les bords du volume étudié) ayant une taille de demi grand-axe inférieure ou égale à $10 \mu m$ déterminé à partir de l'image 3D de tomographie X (figure 3.7a) sur celui évalué à partir de l'image obtenue par MEB-FIB (figure 3.7a) est de 2,6. Or, le rapport entre les volumes étudiés avec ces deux techniques de

caractérisation est de l'ordre de $2 \cdot 10^5$. Les grandes différences entre ces deux rapports peuvent s'expliquer par plusieurs phénomènes :

1. Les deux échantillons évalués par les techniques de caractérisation 3D présentent des répartitions spatiales différentes des pores occlus de demi grand-axe inférieur ou égal à $10 \mu m$.
Les différences de fabrication des deux échantillons $E_{1,1}$ et E_3 (tableau 3.1) peuvent induire des différences dans la microstructure des céramiques étudiées. Remarquons notamment dans le tableau 3.1 l'utilisation de porogène lors de la fabrication de la céramique $E_{1,1}$ caractérisée par tomographie. Pour rappel, le porogène induit une augmentation de la fraction volumique de porosité fermée d'une céramique qui peut être assimilée à celle de la porosité occluse.
2. La taille du volume étudié au MEB-FIB n'est pas représentative de la répartition spatiale de la porosité occluse dans les céramiques étudiées.

Afin d'expliquer les différences observées entre les deux classifications réalisées à partir des images 3D de deux échantillons différents obtenues à l'aide de deux techniques d'imagerie différentes, une perspective est de caractériser des volumes plus grands afin d'observer en 3D des pores d'assemblage non tronqués. De plus, il est envisagé de caractériser différentes céramiques UO_2 en termes de fractions volumiques de porosité totale, ouverte et fermée afin d'être représentatif de l'ensemble du domaine étudié. Il est notamment souhaité de caractériser un même échantillon avec les deux techniques d'imagerie afin de mieux exploiter les résultats que ces deux techniques peuvent apporter à l'analyse.

À partir des classifications réalisées sur les images 3D de tomographie X et MEB-FIB, une modélisation double échelle de la microstructure des céramiques UO_2 étudiées a été développée.

3.1.3. Mise en place d'une modélisation double-échelle basée sur les observations réalisées

Le réseau poreux des céramiques UO_2 a été représenté comme étant constitué de deux familles de porosité (porosité d'assemblage et porosité occluse) incluses dans une matrice UO_2 100 % dense.

La classification des objets à partir de l'image obtenue par tomographie X a permis de déterminer que les pores occlus présentent des tailles de demi grands-axes inférieures ou égales à $30 \mu m$ (section 3.1.1). Les pores d'assemblage, quant à eux, présentent une épaisseur de l'ordre du μm et des longueurs caractéristiques de l'ordre de $150 \mu m$, qui ont pu être évaluées sur des images obtenues par microscopie optique (figure 3.1). Étant donné que la dimension caractéristique d'un volume représentatif des céramiques étudiées est de $c = 1 mm$ (section 2.2.1.1), le rapport entre la dimension caractéristique des hétérogénéités, qui correspond ici à la longueur caractéristique des pores d'assemblage, sur celle du VER vérifie la condition de séparation des échelles macro-micro (section 1.4.1) soit $\frac{150}{1000} \ll 1$. En supposant la microstructure des céramiques UO_2 comme statistiquement homogène, nous avons choisi de considérer les céramiques UO_2 comme macroscopiquement homogènes et d'évaluer leur comportement thermique à l'aide d'une approche par homogénéisation. De plus, sur la base des différences dimensionnelles entre les deux familles de pores, nous avons aussi choisi de considérer une séparation d'échelles entre

ces deux familles.

L'influence de la porosité sur la conductivité thermique équivalente κ des céramiques UO_2 s'exprime alors de la façon suivante :

$$\kappa = \kappa_{occ} \kappa_a \quad (3.1)$$

où κ_{occ} et κ_a sont les tenseurs d'ordre 2 donnant respectivement l'influence de la porosité occluse et de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique équivalente des céramiques UO_2 .

Pour la suite, notons respectivement les tenseurs de conductivité thermique de la matrice UO_2 100 % dense, de la porosité occluse et d'assemblage comme λ_{UO_2} , λ_{occ} et λ_a .

La figure 3.8 illustre l'approche par homogénéisation utilisée pour déterminer κ à l'aide de la représentation double-échelle choisie.

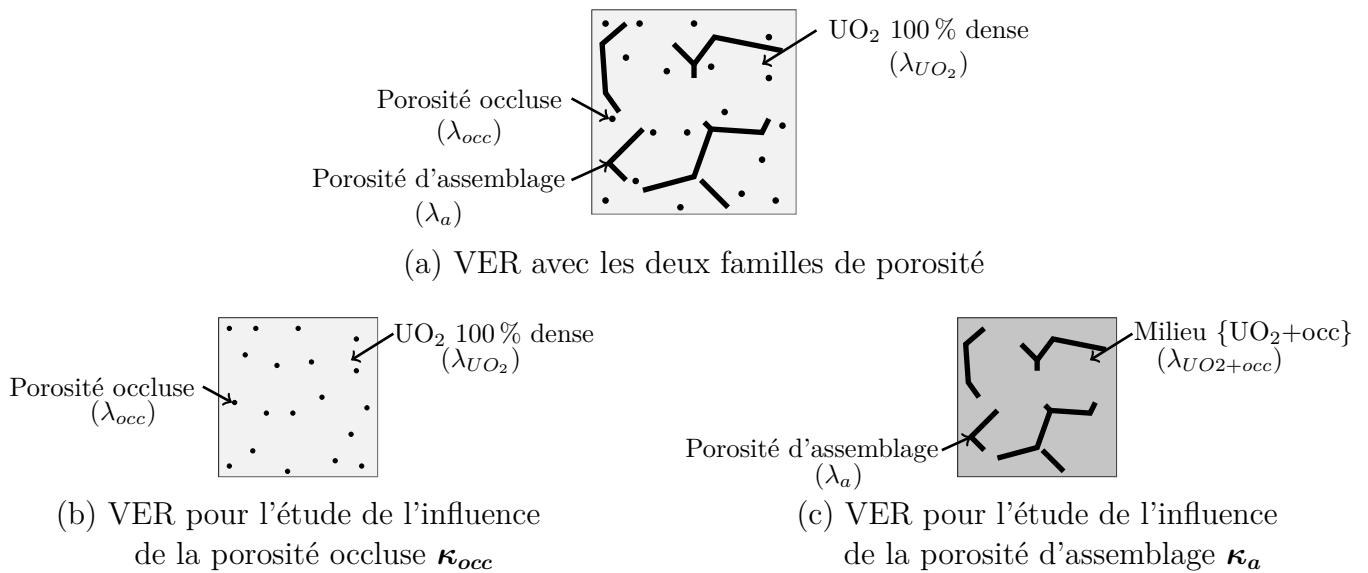


FIGURE 3.8. – Représentation double-échelle d'une céramique UO_2

Au lieu d'évaluer le comportement thermique du milieu constitué des deux familles de pores et la matrice UO_2 100 % dense (figure 3.8a), l'influence des deux familles de porosité peut donc être étudiée de façon découplée :

- L'influence de la porosité occluse sur la conductivité thermique κ_{occ} est évaluée sur un milieu constitué d'une famille de pores occlus dans une matrice UO_2 100% dense (figure 3.8b). Le milieu homogène équivalent obtenu suite à cette étape est noté $\{\text{UO}_2+occ\}$ et sa conductivité thermique équivalente est notée $\lambda_{eq,UO2+occ}$.
- L'influence de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique κ_a est évaluée sur une microstructure constituée de pores d'assemblage inclus dans la matrice homogène équivalente $\{\text{UO}_2+occ\}$ (figure 3.8c). La conductivité thermique du milieu homogène équivalent obtenu, noté λ_{eq} , est aussi celle du VER du milieu hétérogène initial (figure 3.8a).

Afin de déterminer l'impact κ de la porosité sur la conductivité thermique équivalente des céramiques UO_2 , un modèle donnant l'impact κ_{occ} de la porosité occluse a été établi dans la section 3.2. Un premier modèle donnant l'impact κ_a de la porosité d'assemblage est par la suite proposé dans la section 3.3.

3.2. Modélisation de l'effet de la porosité occluse sur la conductivité thermique effective des céramiques UO_2

Afin de développer un modèle donnant l'influence de la porosité occluse sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 , il est nécessaire de quantifier plus précisément la morphologie de ces pores.

Une caractérisation multi-échelle de la porosité occluse a été réalisée en étudiant cette famille de pores :

- à l'échelle nanométrique à l'aide de l'image 3D de l'échantillon E_3 observé au MEB-FIB (section 3.2.1),
- à l'échelle microscopique à partir de l'image 3D obtenue par tomographie X de l'échantillon $E_{1,1}$ (section 3.2.2),
- à partir d'une étude statistique de l'influence de la porosité occluse sur les mesures de diffusivité thermique réalisées (section 3.2.3). Les conditions d'acquisition des mesures effectuées lors de cette étude sont présentées dans la section 2.3.1.

Comme les pores occlus identifiés dans la section 3.1 ne touchent pas les bords des volumes d'étude, ces pores sont alors isolés dans la matrice UO_2 . Nous avons donc choisi dans cette section de les identifier à la porosité fermée des céramiques UO_2 .

Du fait que les taux de fractions volumiques de porosité fermée des céramiques sont faibles ($\leq 7\%$) et en supposant que ces pores sont distribués de façon aléatoire, l'objectif est de développer un modèle $\kappa_{occ,y}$ donnant l'impact de la porosité occluse sur la conductivité thermique selon \mathbf{u}_y de type « milieu dilué » où les pores occlus sont représentés à l'aide de sphéroïdes de facteur de forme ω répartis de façon aléatoire :

$$\kappa_{occ,y} = 1 - \beta_{occ}(\omega) c_{occ} \quad (3.2)$$

où c_{occ} est le taux de porosité occluse assimilé à celui de la porosité fermée et $\beta(\omega)$ est la pente donnant la dégradation de la conductivité thermique associée à la porosité occluse.

En identifiant $\beta_{occ}(\omega)$ dans l'équation 1.71, il est possible de noter que ce paramètre est proportionnel au tenseur de localisation \mathbf{A} qui fait intervenir le facteur de forme des ellipsoïdes au travers du tenseur de dépolarisation \mathbf{S}_E (plus de détails dans l'annexe A).

3.2.1. Étude à l'échelle nanométrique à partir de l'image MEB-FIB

L'identification des pores occlus à partir de l'image 3D obtenue par MEB-FIB sur l'échantillon E_3 est présentée dans la section 3.1.2. Les observations des pores occlus sur des coupes obtenues par tomographie X (figure 3.5b) et par MEB-FIB (figure 3.6b) laissent penser que la morphologie des pores occlus se rapproche de celle de pores sphériques. Pour confirmer cette observation,

nous avons choisi de définir la sphéricité d'un pore occlus de la façon suivante :

$$\text{Sphéricité} = \frac{V}{V_{sph}} \quad (3.3)$$

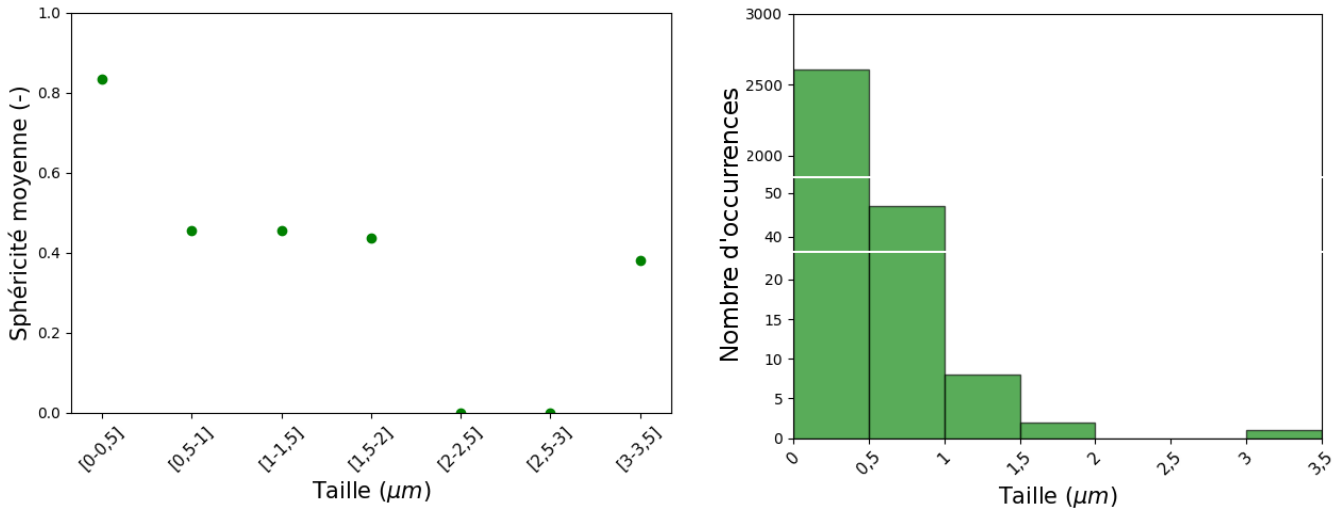
où V est le volume du pore occlus étudié et V_{sph} le volume de la sphère représentant cet objet.

En représentant les pores occlus à l'aide d'ellipsoïdes, notons respectivement a , b , c le demi grand-axe, l'axe intermédiaire et le demi petit-axe de l'ellipsoïde représentant ce pore. Les dimensions des demi axes pour chaque pore ont été évaluées à l'aide du plug-in *3D Ellipsoid*. En considérant que l'ellipsoïde représentant chaque pore est un sphéroïde tel que $b = c$, le volume de ce pore est ainsi évalué comme le volume du sphéroïde représentant cet objet, soit $V = \frac{4\pi}{3} a^2 b$. Nous avons choisi de définir la sphère représentant un pore comme une sphère ayant pour rayon le demi grand-axe du sphéroïde représentant le pore étudié. Le volume de cette sphère vaut alors $V_{sph} = \frac{4\pi}{3} a^3$. D'où, en posant le facteur de forme du sphéroïde $\omega = \frac{b}{a}$, la sphéricité d'un pore occlus vaut :

$$\text{Sphéricité} = \omega \quad (3.4)$$

Le facteur de sphéricité tend vers 1 pour des sphères idéales et s'écarte de cette valeur lorsque la morphologie de l'objet s'éloigne de celle d'une sphère. Ce paramètre permet de quantifier l'écart à la sphéricité d'un objet.

La figure 3.9 présente l'étude de la sphéricité moyenne des pores occlus identifiés sur l'image 3D obtenue par MEB-FIB pour des intervalles de taille de demi grand-axe de $0,5 \mu m$ (figure 3.9a) et le nombre d'occurrences associé à chaque intervalle (figure 3.9b).



(a) Sphéricité moyenne en fonction du demi grand-axe des sphéroïdes

(b) Nombre d'occurrences en fonction du demi grand-axe des sphéroïdes

FIGURE 3.9. – Étude de la morphologie des sphéroïdes représentant les pores occlus identifiés sur l'image obtenue par MEB-FIB

L'absence de valeurs de sphéricité moyenne nulle pour les classes de taille de pores comprise

dans l'intervalle $[2; 3] \mu m$ s'explique par le fait qu'il n'existe pas de pores occlus dans cette classe sur l'image étudiée (figure 3.7a).

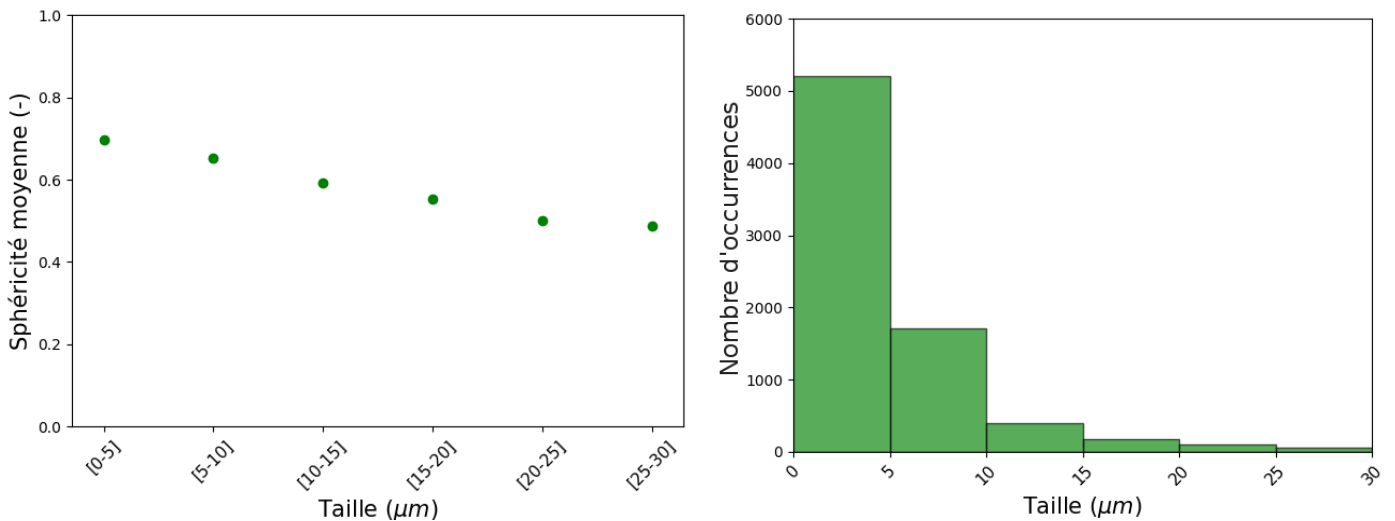
Notons de plus sur la figure 3.9b que 98 % des pores occlus présents sur l'image étudiée présentent un demi grand-axe de taille inférieure ou égale à $0,5 \mu m$ ce qui signifie qu'il n'y a donc pas suffisamment de pores occlus dans les classes supérieures à $0,5 \mu m$ pour avoir des données statistiques représentatives pour ces classes.

La moyenne de la sphéricité sur l'ensemble des classes de la figure 3.9a est de 0,82. Cette valeur est proche de 1, c'est-à-dire du cas de sphères idéales, ce qui tend à confirmer l'hypothèse réalisée en début de section comme quoi les pores occlus présentent une morphologie de type sphérique.

Pour compléter cette étude, une étude similaire a été réalisée sur les pores occlus identifiés sur l'image 3D obtenue par tomographie X.

3.2.2. Étude à l'échelle microscopique à partir de l'image de tomographie X

L'identification de pores occlus à partir de l'image 3D de tomographie X réalisée sur l'échantillon $E_{1,1}$ est présentée dans la section 3.1.1. Pour étudier l'écart à la sphéricité des pores occlus présents sur cette image, des conditions similaires à celles utilisées dans la section 3.2.1 précédente ont été fixées. La figure 3.10 présente l'étude de la sphéricité moyenne des pores occlus identifiés sur l'image de tomographie X pour des intervalles de taille de demi grand-axe de $5 \mu m$ (figure 3.10a) et le nombre d'occurrences associé à chaque intervalle (figure 3.10b).



(a) Sphéricité moyenne en fonction du demi grand-axe des sphéroïdes

(b) Nombre d'occurrences en fonction du demi grand-axe des sphéroïdes

FIGURE 3.10. – Étude de la morphologie des sphéroïdes représentant les pores occlus identifiés sur l'image obtenue par tomographie X

Notons sur la figure 3.10b que 90 % des pores occlus identifiés sur l'image de tomographie X présentent une taille de demi grand-axe inférieure ou égale à $10 \mu m$. Aussi, l'évolution de la sphéricité moyenne observée sur la figure 3.10a n'est pas représentative de la morphologie des

pores occlus étudiés. La moyenne de la sphéricité sur l'ensemble des classes est de 0,58. Les pores occlus observés sur l'image de tomographie X sont donc nettement moins sphériques que ceux observés par MEB-FIB (section 3.2.1). La sphéricité moyenne des pores occlus sur l'image de tomographie X de demi grand-axe compris entre $[0; 5] \mu m$ est de 0,70 (figure 3.10a) contre 0,82 pour les pores occlus sur l'image obtenue par MEB-FIB (figure 3.9a). Les pores occlus observés sur l'image de tomographie correspondent dans la majorité aux pores observés sur l'image obtenue par MEB-FIB (section 3.2.1). Afin d'évaluer si les écarts entre les valeurs de sphéricité évaluées sur les différentes images sont significatifs, une étude 2D de la morphologie des pores occlus et de leur impact sur la conductivité thermique a aussi été réalisée.

L'étude 2D a été réalisée sur les coupes associées à l'image obtenue par tomographie X car :

- les pores occlus observés sur cette image présentent l'écart à la sphéricité le plus important en comparaison avec ceux présents sur l'image obtenue par MEB-FIB ($0,58 < 0,82$),
- les surfaces des coupes de tomographie X sont plus grandes que celles du MEB-FIB car le volume d'étude associé à l'acquisition par tomographie X est plus grand que celui associé au MEB-FIB (section 3.1). Plus de pores sont donc présents sur les coupes de tomographie X et cela permet donc de s'assurer de travailler sur un volume représentatif pour cette famille de pores.

La figure 3.11 présente une des coupes présentant le réseau de porosité occluse de l'échantillon $E_{1,1}$ obtenu à partir de l'image de tomographie X selon les trois directions de l'espace.

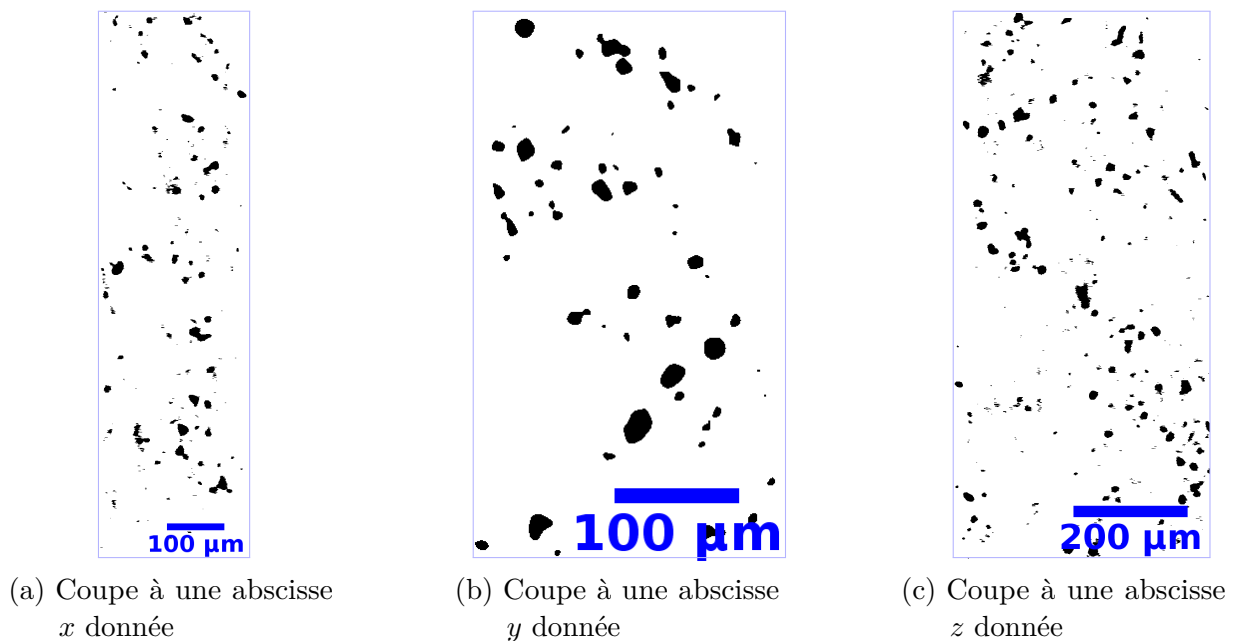


FIGURE 3.11. – Exemples de coupes selon les trois directions de l'espace obtenues sur l'échantillon $E_{1,1}$ par tomographie X présentant le réseau de porosité occluse

Notons que, suivant la direction à laquelle les plans de coupe sont normaux, la surface des coupes obtenues est différente (figure 3.11). Cela résulte de l'observation par tomographie X d'un échantillon de forme parallélépipédique et du traitement d'images réalisé pour extraire le réseau poreux de cette image (section 2.2.2).

L'intersection d'un plan de coupe avec une sphère (aussi appelée la « trace » d'une sphère) est un cercle. Pour étudier la morphologie des pores occlus en 2D, nous avons choisi de définir la circularité de la trace d'un pore occlus comme :

$$\text{Circularité} = \frac{S}{S_{sph}} \quad (3.5)$$

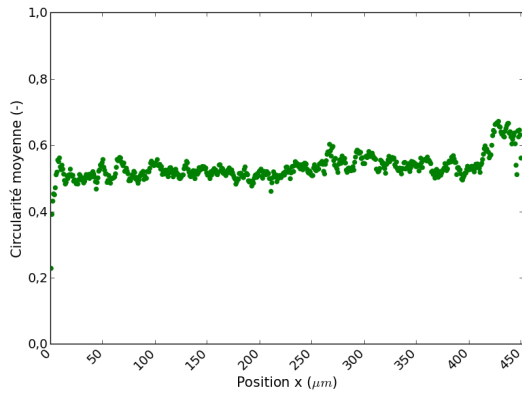
où S est la surface de la trace d'un pore occlus et S_{sph} celle du cercle représentant cet objet.

En représentant la trace des pores occlus par des ellipses, notons respectivement a_{2D} et b_{2D} le demi grand-axe et le demi petit-axe de l'ellipse représentant la trace d'un pore occlus. Les dimensions des demi axes de chaque trace de pores occlus ont été évaluées à l'aide du plug-in *Fit Ellipse* qui détermine l'orientation et la taille des demi axes de l'ellipse représentant la trace d'un pore occlus. Cette ellipse conserve la même orientation, le même centroïde et la même surface que celle du pore qu'elle représente. La surface de la trace du pore occlus est évaluée à partir de celle de l'ellipse la représentant, soit $S = \pi a_{2D} b_{2D}$. Nous avons choisi de définir le rayon du cercle représentant la trace d'un pore occlus comme étant égal au demi grand-axe de l'ellipse représentant la trace étudiée. La surface de ce cercle vaut alors $S_{sph} = \pi a_{2D}^2$. D'où, en posant le facteur de forme de l'ellipse $\omega_{2D} = \frac{b_{2D}}{a_{2D}}$, la circularité de la trace d'un pore occlus s'exprime de la façon suivante :

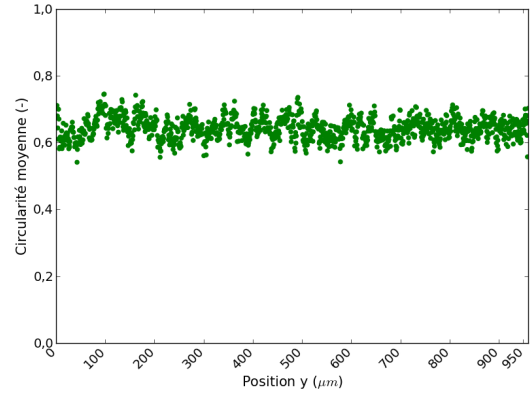
$$\text{Circularité} = \omega_{2D} \quad (3.6)$$

La circularité est un paramètre 2D équivalent au paramètre sphéricité en 3D. Il permet de quantifier l'écart de la forme d'un objet par rapport à celle d'un cercle. Plus l'objet étudié présente une morphologie circulaire et plus sa circularité est proche de 1.

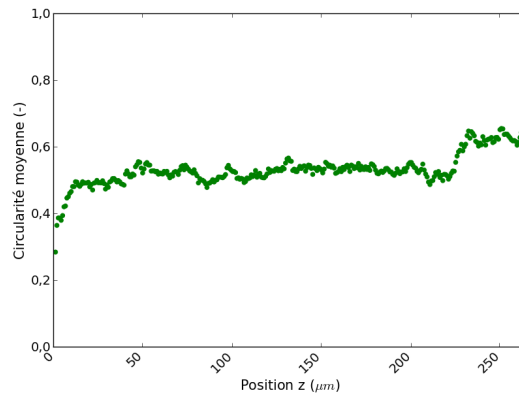
La figure 3.12 présente la circularité moyenne des pores occlus présents dans l'échantillon $E_{1,1}$ par tomographie X suivant l'axe de la base cartésienne auquel les coupes étudiées sont parallèles.



(a) Selon l'axe \mathbf{u}_x



(b) Selon l'axe \mathbf{u}_y



(c) Selon l'axe \mathbf{u}_z

FIGURE 3.12. – Étude de la circularité moyenne des pores occlus de l'échantillon $E_{1,1}$ par tomographie X selon l'axe auquel sont parallèles les coupes étudiées

Notons sur les figures 3.12a et 3.12c de fortes variations de la circularité moyenne sur les bords du domaine étudié ce qui est induit par la non représentativité de la circularité de ces coupes du fait de la présence de très peu de pores occlus sur ces coupes (effet de bord).

La circularité moyenne des traces des pores occlus vaut :

- 0,53 pour les coupes normales à l'axe \mathbf{u}_x (figure 3.12a),
- 0,64 pour les coupes normales à l'axe \mathbf{u}_y (figure 3.12b),
- 0,53 pour les coupes normales à l'axe \mathbf{u}_z (figure 3.12c).

Cette étude 2D est en cohérence avec l'étude de la sphéricité réalisée sur l'image 3D obtenue par tomographie X où la sphéricité moyenne de l'ensemble des pores occlus observés est de 0,58 (figure 3.10). Remarquons de plus que les traces des pores occlus sur les coupes normales à l'axe \mathbf{u}_y présentent une morphologie plus circulaire que les traces observées sur des coupes normales à \mathbf{u}_y et \mathbf{u}_z (figure 3.12). De plus, les traces des pores occlus observés sur les coupes normales à l'axe \mathbf{u}_z présentent une dispersion des résultats plus importante que celle observée dans les deux autres directions (figure 3.12).

L'étude morphologique des traces des pores occlus a été complétée à l'aide d'une étude par FFT 2D de l'impact de ces traces sur la conductivité thermique des coupes étudiées afin d'évaluer la représentativité d'une modélisation de ces traces à l'aide d'objets cylindriques de

section circulaire. Nous avons choisi de calculer par FFT 2D la réponse thermique associée aux traces des pores occlus présents sur les coupes normales à l'axe \mathbf{u}_z qui présentent la circularité moyenne la plus basse et la plus grande dispersion des résultats (figure 3.12).

Afin d'évaluer l'écart entre le comportement thermique de ces traces et celui de cercles répartis de façon aléatoire dans le milieu, nous avons choisi de considérer le modèle « milieu dilué » 2D pour des inclusions cylindriques de section elliptique dont les axes de symétrie de révolution sont parallèles à l'axe \mathbf{u}_z . En notant $\mathbf{u}_1(\theta)$ et $\mathbf{u}_2(\theta)$ les vecteurs caractéristiques de l'orientation des demi-axes de la section elliptique des cylindres dans le plan $(\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_y)$, le tenseur de localisation 2D dans le plan associé à une ellipse s'exprime comme [Par16] :

$$\mathbf{A}_{2D}(\theta) = \frac{1 + \omega_{2D}}{1 + \tau \omega_{2D}} \mathbf{u}_1(\theta) \otimes \mathbf{u}_1(\theta) + \frac{1 + \omega_{2D}}{\tau + \omega_{2D}} \mathbf{u}_2(\theta) \otimes \mathbf{u}_2(\theta) \quad (3.7)$$

où $\tau = \lambda_{occ}/\lambda_{UO_2,100\%}$ est le rapport des conductivités thermiques des pores occlus sur celui de la matrice UO_2 100% dense. ω_{2D} est le facteur de forme de la section elliptique des cylindres et vaut $\omega_{2D} = \frac{b_{2D}}{a_{2D}}$ avec b_{2D} et a_{2D} qui sont respectivement le demi petit-axe et le demi grand-axe des ellipses. Les vecteurs associés aux ellipses représentant la section des cylindres sont définis dans le plan $(\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_y)$ comme : $\mathbf{u}_1(\theta) = \sin \theta \mathbf{u}_x + \cos \theta \mathbf{u}_y$ et $\mathbf{u}_2(\theta) = \cos \theta \mathbf{u}_x - \sin \theta \mathbf{u}_y$.

En notant $W_{2D}(\theta)$ la distribution angulaire d'ellipses dans le plan $(\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_y)$, le tenseur de localisation 3D donné dans la relation 1.73 est donné en 2D par :

$$\mathbf{A}_{i,2D} = \int_0^\pi \mathbf{A}_{2D}(\theta) W_{2D}(\theta) d\theta \quad (3.8)$$

En considérant les tenseurs de conductivité thermique comme sphériques, le comportement effectif est donné par (équivalent 2D de la relation 3D 1.75) :

$$\lambda_{eq,2D} = \lambda_m \mathbf{I}_{2D} + (\tau - 1) \lambda_m c_{i,2D} \mathbf{A}_{i,2D} \quad (3.9)$$

où c_s est la fraction surfacique d'inclusions elliptiques présentes sur le plan $(\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_y)$ étudié.

Dans le cas d'une distribution angulaire aléatoire des fissures ($W_{2D}(\theta) = \frac{1}{\pi}$), l'impact de ces objets sur la conductivité thermique dans le plan $(\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_y)$ est notée $(\boldsymbol{\kappa}_{occ})_{2D,sph}$ ($= \frac{\lambda_{eq,2D}}{\lambda_m}$) s'exprime alors comme :

$$(\boldsymbol{\kappa}_{occ})_{2D,sph} = \left(1 + (\tau - 1) \frac{1 + \omega_{2D}}{2} \left[\frac{1}{1 + \tau \omega_{2D}} + \frac{1}{\tau + \omega_{2D}} \right] \right) \mathbf{I}_{2D} \quad (3.10)$$

Pour des inclusions cylindriques de section circulaire ($\omega_{2D} = 1$) distribuées de façon aléatoire, l'impact $(\boldsymbol{\kappa}_{occ})_{2D,sph}$ de ces objets sur la conductivité thermique dans le plan $(\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_y)$ s'exprime de la façon suivante :

$$(\boldsymbol{\kappa}_{occ})_{2D,sph} = \left(1 + (\tau - 1) \frac{2}{1 + \tau} c_s \right) \mathbf{I}_{2D} \quad (3.11)$$

Comme nous avons identifié la porosité occluse à la porosité fermée (début de la section 3.2), le gaz contenu dans les pores occlus est du gaz hydrogène H_2 qui est l'atmosphère sous laquelle les échantillons ont été frittés (section 2.1.1). La conductivité thermique de l'hydrogène contenu dans ces pores λ_{occ} (en $W/(m K)$) a été évaluée à partir de l'équation suivante valable entre

15 K et 1500 K [Le 98] :

$$\lambda_{occ} = 1,02672 + 0,74409 T - (4,5470 E^{-4}) T^2 - (3,70833 E^{-9}) T^3 + (2,67329 E^{-10}) T^4 - (1,06021 E^{-14}) T^5 \quad (3.12)$$

où T est la température en Kelvin.

La conductivité thermique λ_{occ} est de $0,196 W/(m K)$ à $50^\circ C$ tandis que celle de l' UO_2 100 % dense est de $9,030 W/(m K)$ (section 2.3.3.2). Cela correspond à un rapport des coefficients des conductivités thermiques des pores occlus et de la matrice égal à $\tau = 0,022$. Le modèle développé selon y dans l'équation 3.16 se simplifie de la façon suivante :

$$(\kappa_{occ})_{2D,sph} \approx (1 - 1,91 c_s) \mathbf{I}_{2D} \quad (3.13)$$

Le modèle développé se rapproche de celui dans le cas où il n'y a pas de transfert thermique dans les inclusions sphériques ($\tau = 0$), soit $(\kappa_{occ})_{2D,sph} = (1 - 2 c_s) \mathbf{I}_{2D}$, car il existe un écart important entre les conductivités thermiques du gaz contenu dans les porosités occluses et de la matrice UO_2 .

Afin d'évaluer le choix de modéliser les traces des pores occlus à l'aide de cylindres de section circulaire, nous avons choisi de comparer ce modèle à un autre où les inclusions cylindriques présentent une section elliptique ayant pour facteur de forme ω_{2D} le facteur moyen évalué sur les coupes normales à l'axe \mathbf{u}_y (soit 0,53 voir figure 3.12c). Dans le cas d'une distribution angulaire aléatoire, le modèle $(\kappa_{occ})_{2D,\omega}$ s'exprime pour $\tau = 0,022$ comme :

$$(\kappa_{occ})_{2D,\omega} \approx (1 - 2,09 c_s) \mathbf{I}_{2D} \quad (3.14)$$

Pour évaluer l'écart entre le comportement thermique des traces des pores occlus sur les coupes normales à \mathbf{u}_z et le modèle « milieu dilué » pour des inclusions cylindriques de section circulaire ($\omega_{2D} = 1$) dont les axes de symétrie de révolution sont parallèles à l'axe \mathbf{u}_z , nous avons choisi d'évaluer l'écart relatif FFT/modèle défini pour un chargement thermique selon \mathbf{u}_k (où $k \in \{x, y\}$) comme :

$$|\text{Ecart relatif}| = \left| 1 - \frac{\kappa_{occ,k}}{(\kappa_{occ})_{2D,sph,k}} \right| \quad (3.15)$$

où $\kappa_{occ,k}$ et $(\kappa_{occ})_{2D,sph,k}$ sont respectivement l'impact des traces de la porosité occluse sur la conductivité thermique selon \mathbf{u}_k évalué par FFT 2D sur la coupe étudiée et évalué à partir du modèle « milieu dilué » étudié (équation 3.13). Pour évaluer l'écart entre les deux modèles pour lesquels $\omega_{2D} = 1$ et $\omega_{2D} = 0,53$, nous avons choisi d'utiliser la formule présentée dans l'équation 3.15 en remplaçant $\kappa_{occ,k}$ par $(\kappa_{occ})_{2D,\omega,k}$ qui correspond à l'impact des traces sur la conductivité thermique effective selon l'axe $k \in \{x, y\}$ (équation 3.14).

Cet écart relatif tend vers 0 lorsque l'impact des traces des pores occlus sur la conductivité thermique évaluée sur les coupes normales à \mathbf{u}_z tend vers celui de cercles répartis de façon aléatoire sur une coupe présentant une faible fraction surfacique c_s .

Les conditions de FFT utilisées sont présentées dans la section 2.3.3.2 en utilisant la conduc-

tivité thermique des pores occlus à 50 °C pour les inclusions, soit 0,196 W/(m K). La figure 3.13 présente la comparaison entre les simulations FFT réalisées sur les coupes normales à l'axe \mathbf{u}_z obtenues par tomographie X et le modèle « milieu dilué » 2D pour des inclusions cylindriques de section sphérique (équation 3.13) pour un chargement thermique selon \mathbf{u}_x et \mathbf{u}_y .

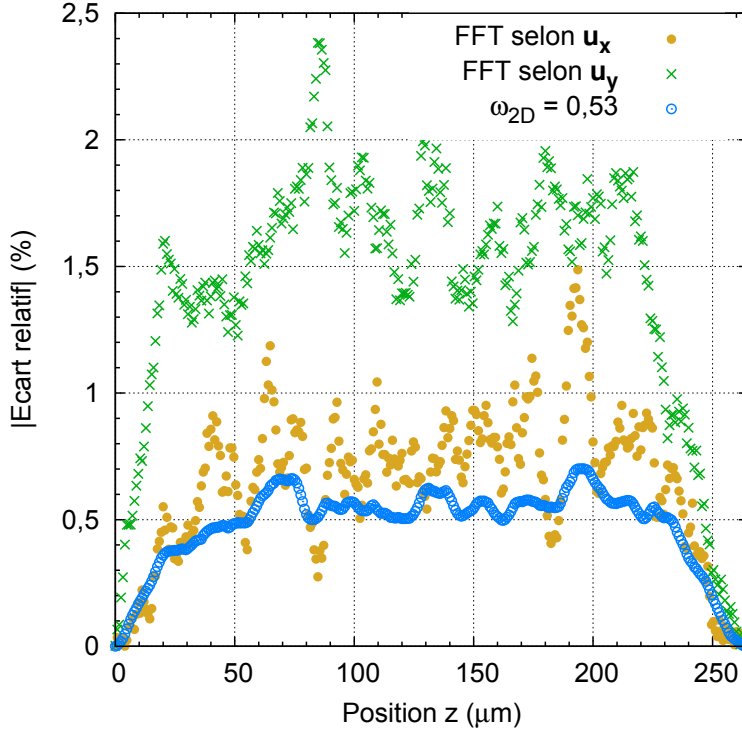


FIGURE 3.13. – Écart par rapport au modèle 2D proposé (équation 3.13) et les simulations FFT 2D réalisées sur les coupes normales à l'axe \mathbf{u}_z obtenues sur l'échantillon $E_{1,1}$ par tomographie X et le modèle avec $\omega_{2D} = 0,53$ (équation 3.14)

L'écart relatif entre les simulations et le modèle 2D proposé pour des inclusions cylindriques de section circulaire (équation 3.13) est strictement inférieur à 2,5 %. Cet écart est suffisamment petit pour considérer que ce modèle 2D permet de modéliser le comportement des traces des pores occlus observées sur les coupes de la céramique UO_2 étudiée.

De plus, notons que les écarts entre les deux modèles pour $\omega_{2D} = 1$ ou $\omega_{2D} = 0,53$ sont inférieurs à 0,7 % sur la figure 3.13 ce qui signifie que la morphologie des traces présentes sur les coupes impacte peu la modélisation de leur impact sur la conductivité thermique effective. Les fluctuations observées sur la figure 3.13 sont induites par le fait que l'indicateur utilisé d'écart relatif (équation 3.15) est proportionnel à la fraction surfacique c_s des coupes étudiées. Comme les fractions surfaciques c_s des traces sur les coupes sont inférieures à 4 %, c'est donc ce paramètre qui pilote l'impact des traces des pores occlus sur la conductivité thermique à l'ordre 1 contrairement à la morphologie des pores.

L'écart en absolu entre les courbes FFT 2D et celui du modèle avec un facteur de forme $\omega_{2D} = 0,53$ est de 0,7 % pour un chargement selon \mathbf{u}_x et de 1,9 % pour un chargement selon \mathbf{u}_y (figure 3.13). Ces écarts sont du même ordre de grandeur que ceux comparant les simulations au modèle avec $\omega_{2D} = 1$. Il apparaît donc que les deux modèles ($\omega_{2D} = 1$ et $\omega_{2D} = 0,53$) peuvent représenter correctement le réseau de traces des pores occlus observé sur les coupes.

Nous avons choisi de modéliser les traces des pores occlus à l'aide d'inclusions cylindriques de section circulaire (équation 3.16).

Les coupes étudiées par FFT 2D sont normales à l'axe \mathbf{u}_z . Or, comme les coupes normales à \mathbf{u}_y et à \mathbf{u}_x présentent des circularités moyennes identiques ou supérieures à celles des coupes étudiées et que la répartition spatiale des traces semble identique quels que soient les plans de coupe étudiés, nous avons supposé que l'écart relatif simulation/modèle aurait été aussi inférieur à 2,5 % pour ces coupes. Aussi, en supposant que la répartition de ces pores est aléatoire, nous avons choisi de prédire le comportement thermique 3D de la porosité occluse à l'aide d'un modèle de type « milieu dilué » pour des inclusions sphériques avec $\tau = 0,022$ (équivalent 2D du modèle « milieu dilué » 2D présenté dans l'équation 3.13) défini comme [Tor02] :

$$\kappa_{occ} \approx \left(1 - 1,48 c_{occ}\right) \mathbf{I} \quad (3.16)$$

où c_{occ} est la fraction volumique de porosité occluse. La fraction volumique de porosité occluse c_{occ} a été assimilée à celle de la porosité fermée qui a été mesurée par immersion (section 2.1.3).

Notons que la pente $\beta_{occ}(\omega)$ donnant l'impact de sphéroïdes de facteur de forme $\omega = 0,58$, qui est la valeur moyenne du facteur de forme des ellipsoïdes observés sur l'image de tomographie X (début de la section 3.2.2) répartis de façon aléatoire sur la conductivité thermique selon \mathbf{u}_y (équation 3.2) est de 2,99 contre 1,48 pour des sphères ($\omega = 1$).

Le raisonnement conduisant au modèle 3D proposé (équation 3.16) est basé sur l'étude réalisée à partir de deux images 3D obtenues. Or, ces deux microstructures ne sont pas représentatives de l'ensemble du domaine d'étude (tableau 3.1). Pour améliorer la représentativité du modèle proposé, nous avons choisi d'étudier l'impact de la porosité occluse sur les mesures de diffusivité thermique réalisées à 50 °C sur les céramiques UO₂ fabriquées (section 2.3.1).

3.2.3. Impact sur les mesures de diffusivité thermique réalisées

En s'inspirant des méthodologies utilisées dans la littérature présentées dans la section 3.14 pour déterminer la conductivité thermique $\lambda_{100\%}$ et la pente β associée à l'impact de la fraction volumique de porosité totale c_T sur la conductivité thermique des céramiques UO₂ standard (équation 1), nous avons choisi de proposer un modèle donnant l'impact $\kappa_{occ,y}$ de la porosité occluse selon \mathbf{u}_y (équation 3.2) à partir de l'étude des mesures de diffusivité thermique réalisées sur les céramiques UO₂ du domaine d'étude à 50 °C (section 2.3.1).

Comme expliqué au début de la section 3.2, nous avons choisi d'assimiler la porosité occluse à la porosité fermée. Pour étudier uniquement l'impact de la porosité occluse sur les mesures de diffusivité thermique, nous avons choisi de nous intéresser seulement aux céramiques UO₂ ayant une fraction volumique de porosité ouverte vérifiant $c_o \leq 1\%$ et $c_o/c_T \leq 0,2$ afin d'assurer que les pores présents dans les céramiques étudiées sont majoritairement des pores occlus. De cette façon, la fraction volumique de porosité totale peut être approximée à celle de la porosité occluse qui est identifiée à celle de la porosité fermée, soit $c_T \approx c_{occ}$.

Sur la base de ces critères, 29 céramiques ont été sélectionnées sur les 94 constituant le domaine d'étude (section 2.1.3). Nous considérons par la suite que l'influence de la porosité d'assemblage pour ces échantillons est négligeable sur l'impact κ_y de la porosité évalué à partir des mesures de diffusivité thermique, d'où $\kappa_y \approx \kappa_{occ,y}$.

D'après l'expression donnant l'impact κ_y de la porosité sur la conductivité thermique à partir

des mesures expérimentales de diffusivité thermique (équation 2.4) et l'équation 3.2, il est possible d'identifier la pente β_{occ} à l'aide de la courbe suivante :

$$\alpha_y = \alpha_{100\%} \left(1 - [\beta_{occ} - 1] c_{occ} \right) \quad (3.17)$$

La figure 3.14 présente l'influence de la porosité occluse sur la diffusivité thermique des céramiques UO_2 à $50^\circ C$.

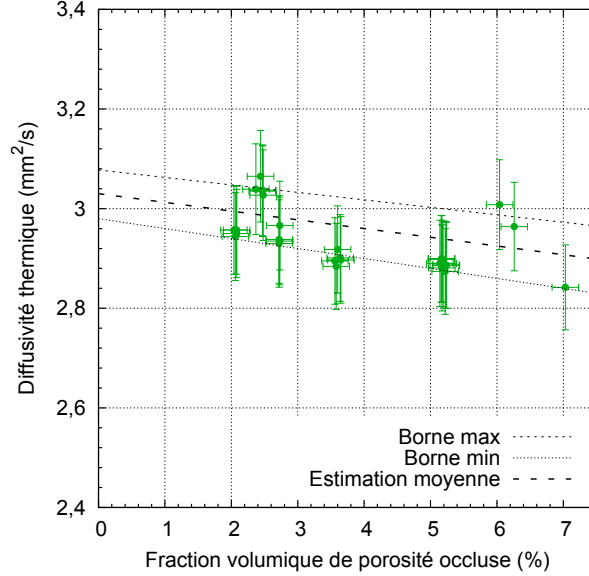


FIGURE 3.14. – Impact de la porosité occluse sur la diffusivité thermique des céramiques telles que $c_o \leq 1\%$ et $c_o/c_T \leq 0,2$

Notons un écart maximal entre les résultats obtenus sur la figure 3.14 de 4% sachant que l'incertitude associée aux mesures de diffusivité thermique vaut 3% pour un intervalle de confiance de 95%. Étant donné la dispersion des résultats obtenus sur la figure 3.14, il a été choisi de représenter les mesures à l'aide de deux bornes. Les bornes ont été déterminées de façon à ce que l'erreur relative entre les points expérimentaux et chaque borne soit inférieure en absolu à 1,5%. Les valeurs de $\alpha_{100\%}$ et β_{occ} et les écarts-types associés évalués pour les deux bornes présentées sur la figure 3.14 sont :

- Borne maximale : $\alpha_{100\%} = (3,08 \pm 0,02) mm^2/s$ et $\beta_{occ} = (2,5 \pm 0,4)$.
- Borne minimale : $\alpha_{100\%} = (2,98 \pm 0,01) mm^2/s$ et $\beta_{occ} = (3,0 \pm 0,3)$.

Les valeurs de β_{occ} obtenues sont en cohérence avec celles données dans la littérature pour la pente donnant l'impact de la fraction volumique de la porosité totale sur la conductivité thermique de céramiques standard [IAE66].

L'échantillon $E_{1,1}$ dont les pores occlus ont été observés par tomographie X ne fait pas partie des échantillons utilisés pour évaluer les bornes présentées ci-dessus car il présente un taux de porosité ouverte trop important pour l'étude présentée sur la figure 3.14. Le modèle avec $\beta_{occ} = 1,48$ (équation 3.16) proposé à partir de l'étude de cet échantillon n'est valable que pour cet échantillon. Comme aucun échantillon utilisé pour la génération des bornes n'a été observé par imagerie avec une résolution suffisante pour observer les pores occlus, il n'est pas possible de confirmer ou d'infirmer que les pores occlus de ces échantillons présentent une

morphologie identique à ceux de l'échantillon $E_{1,1}$. Cependant, notons que la pente β_{occ} évaluée à partir de la sphéricité moyenne de ces pores est de 2,99 et est dans l'intervalle de β_{occ} obtenu à l'aide des deux bornes définies. Cela tend à supposer que les pores occlus observés sur l'image de tomographie X (section 3.2.2) présentent la même morphologie que ceux des échantillons utilisés sur la figure 3.14 mais que le modèle avec $\beta_{occ} = 1,48$ (équation 3.16) n'est pas valable pour l'ensemble de ces échantillons. Pour confirmer cette hypothèse, il est nécessaire de caractériser par imagerie 3D et/ou 2D avec une résolution inférieure ou égale à $0,5 \mu m/pix$ la morphologie des pores occlus des échantillons présentés sur la figure 3.14.

Sur la figure 3.14, il est possible d'observer 7 lots d'échantillons possédant chacun des fractions volumiques de porosité occluse et de diffusivité thermique identiques sur les 29 échantillons étudiés. Pour avoir une estimation de l'impact de la porosité occluse plus représentative sur la conductivité thermique, une perspective est de fabriquer et d'évaluer la diffusivité thermique de nouveaux échantillons tels que $c_o \leq 1\%$ et $c_o/c_T \leq 0,2$.

La description la plus représentative de l'impact de la porosité occluse sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 est donnée avec l'étude de l'impact de cette famille de pores sur les mesures de diffusivité thermique (section 3.2.3) car le comportement thermique de 29 échantillons a été évalué pour cette étude contre 2 pour le modèle proposé à partir des images 3D (équation 3.16). C'est ce modèle qui a été choisi pour décrire par la suite l'influence $\kappa_{occ,y}$ de la porosité occluse sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 . Étant donné la dispersion des résultats observés sur la figure 3.14, nous avons choisi d'utiliser comme référence pour $\kappa_{occ,y}$ une estimation moyenne entre les bornes évaluées sur cette figure. En notant $(\alpha_{100\%})_{max}$ et $(\alpha_{100\%})_{min}$ les valeurs de la diffusivité thermique 100 % dense estimées respectivement avec la borne maximale et minimale ainsi que $\Delta(\alpha_{100\%})_{max}$ et $\Delta(\alpha_{100\%})_{min}$ les écarts-types associés à ces valeurs, la diffusivité thermique pour l' UO_2 100 % dense et l'écart-type obtenus avec l'estimation moyenne valent alors :

$$\alpha_{100\%} = \frac{(\alpha_{100\%})_{max} + (\alpha_{100\%})_{min}}{2} \quad \text{et} \quad \Delta\alpha_{100\%} = \frac{\Delta(\alpha_{100\%})_{max} + \Delta(\alpha_{100\%})_{min}}{2} \quad (3.18)$$

Un raisonnement similaire a été mené pour la pente β_{occ} de l'estimation moyenne. Les paramètres associés à cette estimation moyenne et les écarts-types associés valent alors : $\alpha_{100\%} = (3,03 \pm 0,02) mm^2/s$ et $\beta_{occ} = (2,8 \pm 0,4)$.

Pour la suite, nous utiliserons comme modèle pour l'impact $\kappa_{occ,y}$ de la porosité occluse le modèle (dont la forme est présentée dans l'équation 3.2) obtenu à partir de l'estimation moyenne de l'impact de la porosité occluse sur les mesures de diffusivité thermique (figure 3.14).

3.3. Modélisation de l'effet de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique effective des céramiques UO_2

Il a été montré dans la section 3.1.2 que les volumes étudiés en MEB-FIB sont trop petits pour permettre d'observer les pores d'assemblage. De plus, sur les acquisitions de tomographie X, il n'est pas possible de classer finement les pores occlus et d'assemblage du fait de la présence de pores agglomérés (section 3.1.1). Nous avons estimé sur des images obtenues par microscopie optique que la longueur caractéristique des pores d'assemblage (section 2.2.1.1) est de $150 \mu m$ tandis que la hauteur de l'acquisition obtenue par tomographie X est de l'ordre de $1 mm$. Aussi,

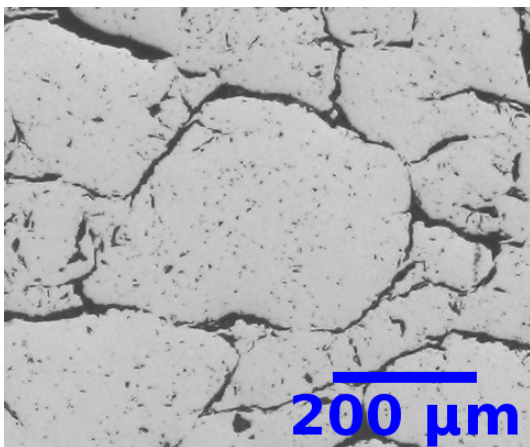
même sans la présence de ces pores agglomérés, le volume étudié en tomographie X n'est pas suffisamment grand pour donner une représentation statistique de la porosité d'assemblage. Pour cela, il serait donc nécessaire de caractériser un volume 3D nettement supérieur à celui étudié en tomographie X (de l'ordre de $0,2 \text{ mm}^3$) ou de caractériser plusieurs volumes de même taille afin de réaliser une étude statistique pour pouvoir étudier les pores d'assemblage.

Dans cette étude, les techniques de caractérisation 3D utilisées n'ont donc pas permis de caractériser la porosité d'assemblage étant donné que les volumes des acquisitions obtenues sont trop petits vis-à-vis de la longueur de ces pores. Nous avons donc choisi de caractériser les microstructures des céramiques UO_2 à partir de l'étude de coupes obtenues par microscopie optique ce qui permet l'acquisition de larges surfaces de l'ordre de 20 mm^2 . Les conditions d'acquisition utilisées ont été présentées dans la section 2.2.1.1. Un modèle donnant l'impact de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 a été proposé suite à l'étude de ces coupes qui est présentée dans la section 3.3.1.

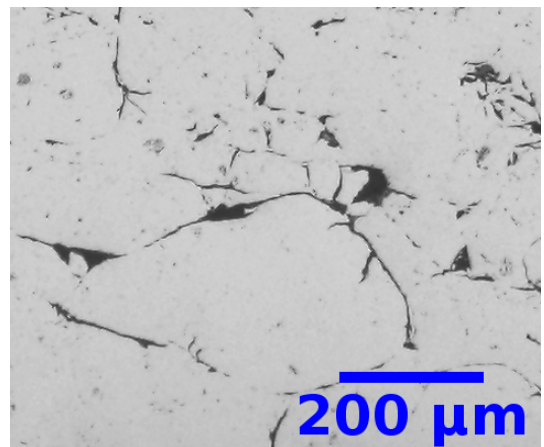
3.3.1. Développement de modèles analytiques pour la porosité d'assemblage

Comme la porosité occluse a été assimilée à la porosité fermée, nous avons choisi pour ce modèle d'assimiler la porosité d'assemblage à la porosité ouverte par complémentarité. La fraction volumique c_a des pores d'assemblage est alors identifiée à celle de la porosité ouverte c_o , soit $c_a = c_o$.

Sur les coupes obtenues par microscopie optique (voir figure 2.10), les pores d'assemblage apparaissent comme des objets très allongés et interconnectés. C'est pourquoi il a été choisi de représenter chaque pore d'assemblage à l'aide d'une inclusion sphéroïdale de facteur de forme $\omega_a = \frac{b}{a}$ (où a et b sont respectivement le demi grand-axe et le demi petit-axe associés à cette inclusion). La figure 3.15 montre des exemples de pores d'assemblage sur des échantillons présentant des taux de porosité ouverte c_o différents et un taux de porosité fermée c_f similaire (à l'incertitude près) afin d'évaluer des caractéristiques de cette famille de porosité.



(a) Échantillon E_2 avec $c_o = (4,7 \pm 0,1)\%$ et $c_f = (0,9 \pm 0,2)\%$



(b) Échantillon E_{11} avec $c_o = (2,5 \pm 0,1)\%$ et $c_f = (1,0 \pm 0,2)\%$

FIGURE 3.15. – Observation par microscopie optique de pores d'assemblage caractéristiques sur différents échantillons UO_2

Notons sur la figure 3.15a la présence de petits « points » sur l'ensemble de l'image contrairement à la figure 3.15b. Il a été observé au cours de l'étude que ces points sont induits par les conditions de préparation en métallographie des coupes des échantillons étudiés (section 2.2.1.1). Le traitement réalisé sur ces images afin d'étudier la porosité d'assemblage (section 2.2.1.2) permet de s'affranchir de ces artefacts.

Sur la figure 3.15, il est possible d'observer que les pores d'assemblage sont répartis de façon spécifique autour de formes quasi hexagonales et de grand diamètre de l'ordre de $300\ \mu m$. Les objets autour desquels sont répartis les pores d'assemblage sont plus visibles sur les échantillons présentant une porosité ouverte importante (figure 3.15a). Étant donné que le procédé de fabrication utilisé pour la fabrication des céramiques UO_2 laisse une empreinte des granulats sur les microstructures obtenues (section 2.1.1) et qu'une sélection granulométrique de la taille des granulats avant pressage (de l'ordre de $300\ \mu m$) est réalisée, nous en avons conclu que les pores d'assemblage sont répartis autour de ces granulats.

Lors de l'étape de pressage et de frittage que subissent les granulats UO_2 lors du procédé de fabrication (section 2.1.1), le massif se densifie ce qui induit une fermeture des espaces interstitiels entre les granulats UO_2 . Plus la pression de pressage utilisée est importante et plus le matériau est dense, plus la porosité ouverte (et donc la porosité d'assemblage) diminue. La répartition spécifique des pores d'assemblage autour des granulats UO_2 est alors moins visible sur les coupes obtenues par microscopie optique.

La figure 3.15 montre que les pores d'assemblage forment un réseau interconnecté dans le plan de coupe observé normal à l'axe \mathbf{u}_y (section 2.2.1.1) et que plus la porosité d'assemblage diminue, moins les pores sont interconnectés. Nous avons aussi observé une interconnexion 3D de ces pores en observant des coupes obtenues par microscopie optique parallèles, espacées de $30\ \mu m$ (figure 2.10).

De plus, comme l'étape de pressage lors de la fabrication des céramiques UO_2 est réalisée de façon uniaxiale selon l'axe \mathbf{u}_y , il est raisonnable de supposer qu'il existe une distribution d'orientations non aléatoire des traces de la porosité d'assemblage dans les plans de coupe normaux à cet axe.

Pour les modèles proposés dans cette section, nous avons choisi de considérer que l'orientation des pores d'assemblage a un impact plus important que la répartition spatiale de ces pores autour de granulats UO_2 et leur interconnexion. C'est pourquoi nous avons supposé pour ce modèle que la répartition spatiale des sphéroïdes de facteur de forme ω_a inférieur ou égal à 1 modélisant la porosité d'assemblage est aléatoire. Nous avons choisi de considérer que la conductivité thermique du gaz contenu dans les inclusions sphéroïdales est négligeable par rapport à celle de la matrice solide UO_2 .

Afin d'estimer l'impact de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 , deux modèles de type « milieu dilué » donnant l'impact $\boldsymbol{\kappa}_a$ d'inclusions sphéroïdales orientées sur la conductivité thermique ont été considérés ici. Ces modèles sont associés aux deux cas d'orientation extrêmes des porosités d'assemblage [Tor02] et ils se présentent sous la forme suivante ($\boldsymbol{\kappa}_a = \mathbf{I} - c_a \boldsymbol{\beta}_a$) où c_a est le taux de porosité d'assemblage et $\boldsymbol{\beta}_a$ le tenseur associé à la dégradation thermique induite par la porosité d'assemblage. Les expressions du tenseur $\boldsymbol{\beta}_a$ pour ces deux modèles sont les suivantes :

— Alignement suivant l'axe \mathbf{u}_y de tous les vecteurs normaux aux axes de symétrie de révo-

lution des inclusions sphéroïdales représentant les pores d'assemblage

$$\beta_a = \frac{1}{1-Q} (\mathbf{u}_x \otimes \mathbf{u}_x + \mathbf{u}_z \otimes \mathbf{u}_z) + \frac{1}{2Q} \mathbf{u}_y \otimes \mathbf{u}_y \quad (3.19)$$

— Distribution d'orientations aléatoire des sphéroïdes

$$\beta_a = \frac{1}{3} \left\{ \frac{2}{1-Q} + \frac{1}{2Q} \right\} \mathbf{I} \quad (3.20)$$

Le développement analytique permettant d'obtenir l'expression des modèles proposés (équations 3.19 et 3.20) est présenté dans la section 1.4.2.2 (relations 1.78 et 1.83 respectivement). Le paramètre Q dépend du facteur de forme ω_a des sphéroïdes (définition dans l'annexe A).

Comme les céramiques UO_2 présentent une distribution d'orientations des pores d'assemblage intermédiaire entre l'alignement total des pores dans une direction et l'absence d'orientation préférentielle, les deux modèles présentés ci-dessus bornent l'impact de la distribution d'orientations de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique de ces matériaux.

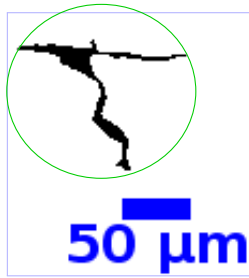
Les paramètres descripteurs des modèles proposés (équations 3.19 et 3.20) sont :

- la fraction volumique de porosité d'assemblage c_a qui, comme expliqué au début de la section 3.3.1, est assimilée à celle de la porosité ouverte.
- le facteur de forme ω_a des inclusions sphéroïdales représentant les pores d'assemblage. Ce paramètre est associé à la morphologie de la porosité d'assemblage et sa caractérisation à partir des images obtenues par microscopie optique est présentée dans la section 3.3.2.

3.3.2. Détermination du facteur de forme des inclusions représentant les pores d'assemblage

L'objectif de cette section 3.3.2 est de caractériser le facteur de forme ω_a des inclusions sphéroïdales représentant les porosités d'assemblage à partir d'images binarisées de coupes obtenues par microscopie optique. Le traitement des coupes obtenues par microscopie optique afin d'observer la porosité d'assemblage est présenté dans la section 2.2.1.2.

Pour déterminer le facteur de forme ω_a , il est nécessaire de définir ce que signifie « représenter un pore d'assemblage à l'aide d'inclusions sphéroïdales ». La figure 3.16 illustre deux représentations 2D à partir de la même image binarisée d'une trace d'un pore d'assemblage.



(a) Objet représentatif : trace d'un pore d'assemblage



(b) Objet représentatif : branche d'une trace d'un pore d'assemblage

FIGURE 3.16. – Exemples de représentation d'une trace d'un pore d'assemblage à l'aide d'inclusions elliptiques (en vert)

Sur la figure 3.16a, il a été choisi de représenter chaque trace d'un pore d'assemblage à l'aide d'une seule ellipse. Cependant, dans ce cas, cette inclusion va venir surestimer très largement la surface associée à la porosité d'assemblage.

Une autre façon de considérer cet objet est de le représenter à l'aide de plusieurs ellipses afin de représenter de façon plus fine la morphologie de la trace du pore d'assemblage étudié. Dans la représentation montrée sur la figure 3.16b, en identifiant à partir du squelette le groupe de pixels qui caractérisent l'interconnexion du pore d'assemblage (plus de détails dans la section 4.2.2), nous avons choisi de représenter chaque branche des traces des pore d'assemblage (qui est définie comme la plus petite longueur entre un pixel extrémal de la trace et un pixel caractérisant l'interconnexion du pore) à l'aide d'une ellipse. De cette façon, l'interconnexion des branches est vue comme l'agglomération et/ou l'entrelacement de plusieurs inclusions. Ce type de représentation permet de représenter plus finement la surface associée au pore étudié. Il existe d'autres façons de représenter un objet à partir de plusieurs inclusions elliptiques (en considérant par exemple que chaque segment de droite observé sur une coupe appartient à une inclusion ou en considérant que toutes les branches des traces des pores d'assemblage ayant la même orientation appartiennent à la même inclusion, etc.). Une représentation du même genre peut aussi être considérée en 3D pour la représentation d'un pore d'assemblage à l'aide d'inclusions sphéroïdales.

Nous avons choisi de considérer uniquement la représentation des traces des pores d'assemblage présentée sur la figure 3.16a ce qui correspond à une représentation extrême où une trace est modélisée par un sphéroïde. Toute autre représentation que celle présentée sur la figure 3.16a permet de modéliser les traces des pores d'assemblage à l'aide de sphéroïdes avec des facteurs de forme plus fins et plus proche de la forme réelle des traces étudiées. Le choix de représentation utilisée est rediscuté dans la section 3.3.3.

Étudions d'abord à l'aide de la figure 3.17 un exemple de distribution d'orientations d'inclusions intersectées par un plan de coupe quelconque.

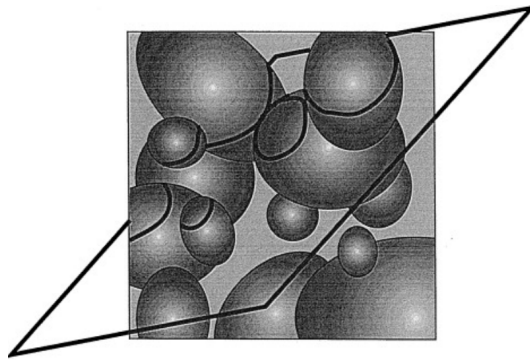


FIGURE 3.17. – Intersection d'un plan de coupe quelconque avec une distribution de particules de forme quelconque (extrait de [SP98])

Suivant des principes stéréologiques [Und73], un plan de coupe quelconque n'intersecte pas forcément une particule en passant par son centre (figure 3.17). Aussi, la distribution de la taille des traces des particules ne peut être pas corrélée directement avec celle des particules présentes dans le matériau d'étude.

Afin d'évaluer le facteur de forme ω_a des pores d'assemblage à partir de coupes obtenues par microscopie optique à l'aide d'analyses stéréologiques classiques [Sch34 ; Sal58 ; DeH62], il a été supposé que les pores d'assemblage présents dans le matériau sont représentés à l'aide de sphéroïdes qui ont tous la même forme. En notant a_T et b_T les demi grand-axe et petit-axe de la trace d'un sphéroïde, ces demi axes vérifient quel que soit le plan de coupe étudié : $a_T \leq a$ et $b_T \leq b$ où a et b sont les demi axes du sphéroïde étudié. Sur chaque coupe étudiée, il existe au moins un sphéroïde dont l'axe de révolution est contenu dans le plan de coupe étudié. Le facteur de forme de la trace de ce sphéroïde sur la coupe étudiée est donc égal à ω_a . Notons que la surface de ce sphéroïde ($\pi a_T b_T$) est la plus grande présente sur cette image ce qui permet d'identifier simplement la trace associée à ce sphéroïde [DeH62].

Le facteur de forme ω_a des sphéroïdes est évalué par ImageJ en déterminant la trace des pores d'assemblage sur la coupe étudiée présentant la surface maximale et en la modélisant à l'aide d'une ellipse de même orientation et aire que la trace à l'aide du plug-in *Fit Ellipse*. La figure 3.18 présente la fluctuation du facteur de forme ω_a obtenu sur deux échantillons du même lot de fabrication en fonction de la position z de la coupe étudiée qui est normale à l'axe \mathbf{u}_z .

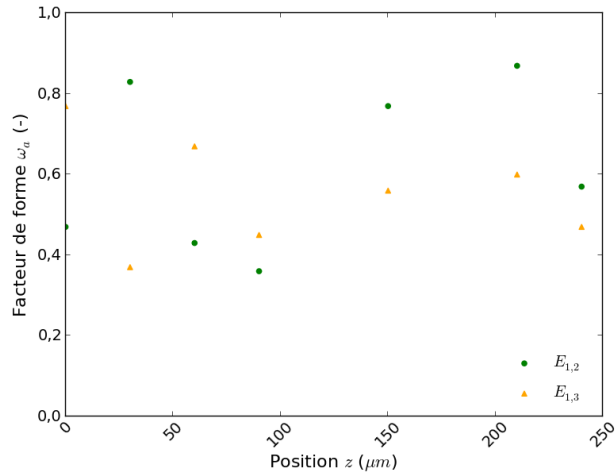


FIGURE 3.18. – Évolution du facteur de forme ω_a en fonction de la coupe étudiée selon z sur les échantillons $E_{1,2}$ et $E_{1,3}$

La moyenne et l'écart-type des facteurs de forme ω_a obtenus sur plusieurs coupes de deux échantillons d'un même lot sont respectivement de 0,6 et de 0,2 sur la figure 3.18. Ce fort écart-type indique que le facteur de forme ω_a varie beaucoup suivant l'échantillon et la position z de la coupe étudiée. Ces fortes variations sont induites par la présence d'arrachements sur les coupes étudiées qui ont été obtenues par microscopie optique (figure 2.6). Comme expliqué dans la section 2.2.1.1, ces arrachements induisent un agrandissement des traces des pores d'assemblage étudiés ce qui conduit à une augmentation de la surface de ces traces. Or, la méthodologie utilisée est basée sur la détermination du facteur de forme ω_a sur la trace présentant la surface la plus importante de l'image. Cette surface et donc l'estimation de ω_a sont donc très sensibles aux arrachements ce qui explique les fortes fluctuations observées sur la figure 3.18.

Nous avons choisi d'estimer le facteur de forme ω_a à partir d'une coupe sur un échantillon représentatif du lot auquel il appartient avec la méthodologie présentée dans cette section 3.3.2. À partir de l'étude réalisée sur la figure 4.12, nous avons choisi d'estimer que l'écart-type associé à une valeur de facteur de forme ω_a vaut 30 % de la valeur évaluée (figure 3.18).

Ce paramètre étant déterminé, il est maintenant possible de l'injecter dans les modèles développés (équations 3.19 et 3.20) et d'évaluer la validité des modèles développés par comparaison à des données expérimentales.

3.3.3. Critique de la représentativité des modèles proposés pour la porosité d'assemblage

Afin d'évaluer la représentativité des modèles développés (équation 3.19 et 3.20), l'influence $\kappa_{a,y}$ de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique suivant l'axe \mathbf{u}_y a été déterminée à partir des mesures expérimentales de diffusivité thermique évaluées par méthode Flash et de fraction volumique de porosité totale évaluées par immersion (équation 2.4).

Comme nous ne disposons pas d'échantillons UO_2 ne présentant pas de porosité occluse car il n'a pas été possible de fabriquer ce type de microstructure, l'effet de la porosité d'assemblage a été découplé de celui de la porosité occluse à partir des mesures de diffusivité thermique

α_y réalisées, des mesures des fractions volumiques de porosité totale et de l'équation 3.1. Le paramètre $\kappa_{a,y}$ s'exprime alors de la façon suivante :

$$\kappa_{a,y} = \frac{1 - c_T}{\kappa_{occ,y}} \frac{\alpha_y}{\alpha_{100\%}} \quad (3.21)$$

où $\kappa_{occ,y}$ est l'influence de la porosité occluse sur la conductivité thermique suivant l'axe \mathbf{u}_y déterminée dans la section 3.2.3 et $\alpha_{100\%}$ la diffusivité thermique des céramiques UO₂ 100 % dense déterminée dans la section 3.2.3.

L'incertitude maximale¹ $\Delta\kappa_{a,y}$ associée à l'impact $\kappa_{a,y}$ s'exprime alors :

$$\frac{\Delta\kappa_{a,y}}{\kappa_{a,y}} = \frac{\Delta\alpha_y}{\alpha_y} + \frac{\Delta\alpha_{100\%}}{\alpha_{100\%}} + \frac{\Delta c_T}{1 - c_T} + \frac{1}{\kappa_{occ,y}} (c_{occ} \Delta\beta_{occ} + \beta_{occ} \Delta c_{occ}) \quad (3.22)$$

où $\Delta\alpha_y$, $\Delta\alpha_{100\%}$, Δc_T , $\Delta\beta_{occ}$ et Δc_{occ} sont respectivement les écarts-types associés aux mesures de diffusivité thermique α_y réalisées à 50 °C (section 2.3.1), à l'estimation de la diffusivité thermique $\alpha_{100\%}$ de l'UO₂ 100 % dense à 50 °C (section 3.2.3), aux mesures de fractions volumiques de porosité totale c_T (section 2.1.3) et à l'estimation de la pente β_{occ} associée à la dégradation de la conductivité thermique par la porosité occluse (section 3.2.3).

Notons que le terme $(c_{occ} \Delta\beta_{occ} + \beta_{occ} \Delta c_{occ})$ correspond à l'écart-type associé à l'influence $\kappa_{occ,y}$ de la porosité occluse sur la conductivité thermique.

Les modèles proposés (équations 3.19 et 3.20) dépendent de deux paramètres : la fraction de porosité d'assemblage mesurée par imbibition (section 2.1.3) et le facteur de forme ω_a des sphéroïdes évalué avec la méthodologie présentée dans la section 3.3.2. Les incertitudes relatives $\Delta\kappa_{a,y}/\kappa_{a,y}$ associées à ces deux modèles ont été évaluées sur la réponse thermique $\kappa_{a,y}$ de la céramique $E_{1,1}$ selon l'axe \mathbf{u}_y en faisant varier le taux de porosité totale (section 2.1.3) et le facteur de forme $\Delta\omega_a$ (section 3.3.2) sur des intervalles correspondant aux incertitudes de ces deux paramètres. Pour un intervalle de confiance de 95 %, elles valent 3 % pour le modèle où les sphéroïdes sont alignés selon \mathbf{u}_y (équation 3.19) et 2 % pour le modèle où les sphéroïdes sont distribués aléatoirement (équation 3.20). Nous avons considéré que les incertitudes relatives sont identiques pour tous les échantillons étudiés.

La figure 3.19 présente la comparaison des modèles $\kappa_{a,y}$ proposés (équations 3.19 et 3.20) avec le modèle associé aux mesures expérimentales (équation 2.4).

1. Pour une fonction f dépendant de X_1, X_2, \dots, X_n paramètres dont les corrélations ne sont pas connues, l'incertitude-type Δf de cette fonction correspond à $\Delta f = \left| \frac{\partial f}{\partial X_1} \right| \Delta X_1 + \left| \frac{\partial f}{\partial X_2} \right| \Delta X_2 + \dots + \left| \frac{\partial f}{\partial X_n} \right| \Delta X_n$ (où $\Delta X_1, \Delta X_2, \dots$ et ΔX_n sont respectivement les écarts-types des paramètres X_1, X_2, \dots, X_n). Avec cette définition, si deux paramètres sont corrélés, les erreurs ne peuvent pas se compenser. Aussi, ce type d'incertitude est aussi appelé « incertitude maximale ».

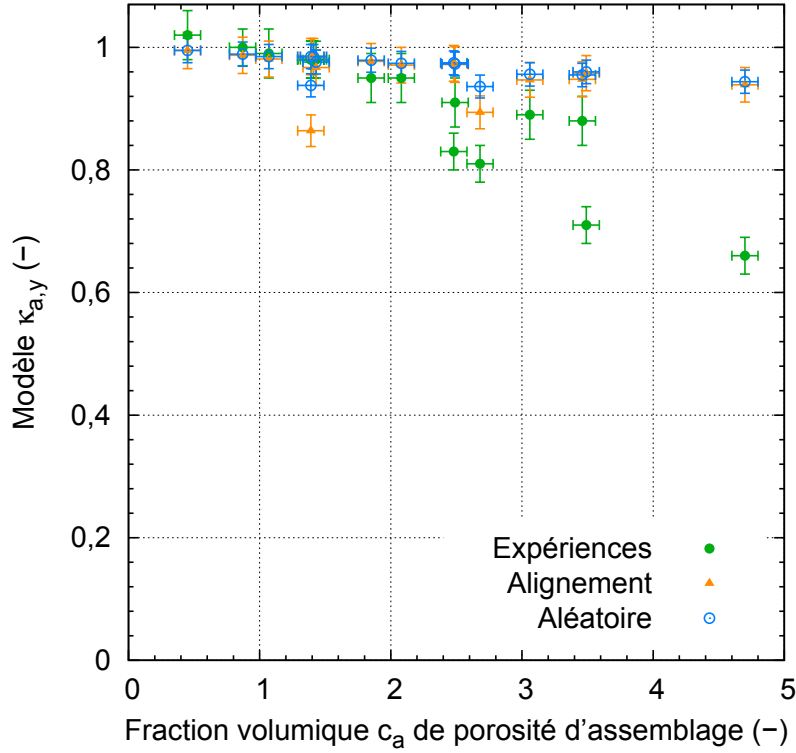


FIGURE 3.19. – Validation des modèles proposés (équations 3.19 et 3.20) par comparaison au modèle associé aux mesures de diffusivité thermique (équation 3.21)

En supposant que les modèles $\kappa_{a,y}$ présentés sur la figure 3.19 présentent des lois d'occurrence uniforme, nous avons choisi de présenter des incertitudes pour un intervalle de confiance de 95 % sur la figure 3.19, soit pour chaque modèle, une incertitude de 95 % de l'incertitude maximale présentée en début de section 3.3.3.

Notons que, pour les deux valeurs $c_a = 2,4$ % et $c_a = 3,5$ %, il existe des points associés aux mesures expérimentales notés « Expériences » sur la figure 3.19 qui présentent des valeurs de $\kappa_{a,y}$ différentes pour la même fraction volumique c_a de porosité d'assemblage. Le paramètre descripteur c_a ne permet pas de discriminer les microstructures des céramiques UO_2 .

Lorsque le réseau poreux est constitué uniquement de pores occlus, l'influence de la porosité d'assemblage sur la conductivité est nulle soit $\kappa_{a,y}(0) = 1$. Plus le réseau d'assemblage augmente et plus la conductivité thermique est dégradée par ce réseau ce qui induit une diminution du modèle $\kappa_{a,y}$ qui quantifie l'impact de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique, d'où $\kappa_{a,y} \leq 1$. Or, la figure 3.19 montre que les échantillons avec une valeur de c_a inférieure à 1,1 % présentent une valeur de $\kappa_{a,y}$ associée aux mesures expérimentales supérieure à 1. Cela est induit par une mauvaise estimation du modèle $\kappa_{occ,y}$ utilisé pour la porosité occluse afin de découpler l'impact des deux familles. Comme le modèle $\kappa_{a,y}$ est inversement proportionnel à celui de la porosité occluse $\kappa_{occ,y}$ (équation 3.21), un petit biais sur $\kappa_{occ,y}$ induit un biais plus important sur $\kappa_{a,y}$. Dans la section 4.3.3, une amélioration du modèle $\kappa_{occ,y}$ associé à la porosité occluse est présentée.

Notons sur la figure 3.19 un écart relatif allant jusqu'à 42% entre les points associés aux mesures expérimentales et les deux modèles où 1) les sphéroïdes sont alignés selon \mathbf{u}_y notés « Alignement » et où 2) les sphéroïdes sont distribués de façon aléatoire et sont désignés sur la figure 3.19 sous le nom « Aléatoire ». Nous observons aussi sur la figure 3.19 que les points associés aux deux modèles sont proches les uns des autres ce qui indique que la distribution d'orientations des sphéroïdes impacte peu la dégradation thermique. Cela s'explique par le fait que les facteurs de forme obtenus pour tous les échantillons étudiés sont de l'ordre de 0,5 (section 3.3.2) ce qui signifie que les sphéroïdes représentant les pores d'assemblage sont quasi-sphériques. Du fait que la morphologie de ces pores est presque la même dans toutes les directions, la distribution d'orientations de ces sphéroïdes impacte peu la conductivité thermique (figure 3.19).

Le fait que la forme de ces sphéroïdes soit quasi-sphérique est directement liée à la représentation extrême choisie dans la section 3.3.2 où une trace d'un pore d'assemblage est représentée à l'aide d'une inclusion sphéroïdale ce qui induit une représentation des pores avec des inclusions beaucoup plus sphériques que ce qui est observé. Une perspective serait de représenter chaque pore d'assemblage à l'aide de plusieurs sphéroïdes (comme sur la figure 3.16).

Cependant, remarquons que la méthodologie employée dans la section 3.3.2 repose sur la détection du facteur de forme des sphéroïdes à partir de coupes observées par microscopie optique et de la trace ayant la surface la plus grande sur la coupe étudiée. Or, il a été observé que la présence d'arrachements sur les coupes obtenues par microscopie optique (section 2.2.1.1) introduit des biais dans les facteurs de forme estimés et des fluctuations importantes de ce paramètre suivant la coupe étudiée (figure 3.18). Cette méthodologie est donc peu robuste pour la détermination de l'impact de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 en étudiant une seule coupe obtenue par microscopie optique.

Nous avons donc choisi de ne pas aller plus loin dans l'étude de la représentation des pores d'assemblage avec des sphéroïdes et de rechercher une nouvelle description de ces pores qui permet de s'affranchir du biais associé aux arrachements. Dans la section 2.2.1.1, nous avons montré que les traces des pores observées par microscopie optique sont agrandies par les arrachements et présentent des formes quasi-sphériques. Afin de s'affranchir des biais induits par les arrachements, nous avons choisi de représenter les pores d'assemblage à l'aide d'inclusions de type fissures dans le chapitre 4 et de proposer un modèle pour des fissures orientées.

3.4. Conclusions du chapitre

Dans ce chapitre, nous avons :

- proposé une modélisation double-échelle de la porosité présente dans les céramiques UO_2 suite à l'étude des images obtenues par microscopie optique (section 3.1.3),
- extrait une image 3D associée à la porosité occluse à partir des images 3D binarisées obtenues par tomographie X et MEB-FIB (sections 3.1.1 et 3.1.2), étudié la morphologie de ces pores par traitement d'images (sections 3.2.1 et 3.2.2) ainsi que l'impact de ces pores sur la conductivité thermique par FFT 2D (section 3.2.2),
- constaté que les pores occlus observés sur les deux échantillons étudiés par imagerie 3D peuvent être représentés par des ellipsoïdes et présentent une taille de demi grand-axe comprise majoritairement entre $[0; 5] \mu\text{m}$ (sections 3.2.1 et 3.2.2). Or, un échantillon a été fabriqué avec du porogène et l'autre non et nous nous attendions à observer des différences

- dans la morphologie des pores occlus de ces deux échantillons ce qui n'a pas été le cas.
- développé un modèle donnant l'impact de la porosité occlus sur la conductivité thermique à partir de l'étude de l'impact de cette famille sur les mesures de diffusivité thermique réalisées (section 3.2.3),
 - estimé la diffusivité thermique $\alpha_{100\%}$ des céramiques UO_2 100 % denses à 50 °C (section 3.2.3),
 - proposé un modèle prenant en compte la distribution d'orientations des pores d'assemblage représentés à l'aide de sphéroïdes (section 3.3.1),
 - déterminé le facteur de forme des inclusions sphéroïdales à partir des images obtenues par microscopie optique afin d'alimenter le modèle proposé (section 3.3.2),
 - montré que la représentation des pores d'assemblage proposée à partir d'inclusions sphéroïdales orientées ne permet pas d'estimer le comportement thermique des céramiques UO_2 du fait du biais induit par les arrachements sur les images obtenues par microscopie optique (section 3.3.3).

L'objectif du chapitre suivant est de proposer un modèle donnant l'impact de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique en modifiant la représentation des pores. Les pores d'assemblage sont alors représentés à l'aide de fissures orientées (disques de rayon donné) dans le but de s'affranchir des artefacts liés à l'épaisseur des pores associés aux arrachements observés sur les images obtenues par microscopie optique. De plus, il est question d'optimiser dans le chapitre suivant le modèle donnant l'influence de la porosité occlus sur la conductivité thermique.

Plusieurs perspectives ont été envisagées dans ce chapitre :

- Des objets de type « agglomérés » de taille de demi grand-axe compris dans l'intervalle $[30; 290] \mu\text{m}$ ont été observés sur l'image 3D binarisée de tomographie X associée à l'échantillon $E_{1,1}$ (section 3.1.1). L'étude réalisée n'a pas permis de déterminer si ces objets existent réellement dans la microstructure de la céramique étudiée ou s'ils sont induits par un artefact de résolution. Pour répondre à cela, il serait intéressant de caractériser en 3D la microstructure de l'échantillon $E_{1,1}$ avec une résolution spatiale plus fine que celle utilisée lors de l'acquisition de tomographie X, soit inférieure à $0,8 \mu\text{m}$.
- Les volumes 3D étudiés ici n'ont pas permis d'observer des pores d'assemblage car ils sont trop petits (sections 3.1.1 et 3.1.2). Afin d'améliorer la représentativité des pores d'assemblage observés par imagerie 3D, il serait nécessaire de caractériser des volumes de l'ordre de 2mm^2 , voire plus.
- Seulement deux échantillons ont été caractérisés par imagerie 3D (sections 3.2.2 et 3.2.1). Afin d'améliorer la représentativité du modèle développé donnant l'impact des pores occlus sur la conductivité thermique à partir des images 3D, il est envisagé d'augmenter le nombre d'échantillons dont la microstructure a été caractérisée en 3D.
- Pour augmenter la représentativité du modèle proposé à partir de l'étude de l'impact des pores occlus sur la diffusivité thermique (section 3.2.3), nous souhaitons aussi fabriquer avec ou sans porogène de nouveaux échantillons sans porosité d'assemblage et évaluer leur comportement thermique. De plus, il est envisagé de caractériser aussi par imageries 2D et 3D leurs microstructures afin d'évaluer la morphologie des pores occlus des céramiques UO_2 utilisées pour réaliser la corrélation utilisée (section 3.2.3). En effet, du fait que les échantillons étudiés ici par imagerie 3D (seules caractérisations utilisées permettant d'observer la porosité occlus) présentent des réseaux d'assemblage importants, ils n'ont

pas fait partie de l'ensemble des échantillons utilisés pour évaluer l'impact de la porosité occluse sur la conductivité thermique dans la section 3.2.3. Il est donc nécessaire de vérifier que les pores occlus observés par imagerie 3D (sections 3.2.1 et 3.2.2) sont identiques à ceux présents dans les céramiques utilisées dans la section 3.2.3.

4. Modélisation de la porosité d'assemblage à l'aide de fissures orientées

Dans ce chapitre, nous présentons la modélisation de la porosité d'assemblage à l'aide de fissures orientées.

Un modèle de type « milieu dilué » donnant l'impact de fissures orientées sur la conductivité thermique est proposé dans la section 4.1. Ce modèle dépend de la densité de fissures et de leur distribution d'orientations.

Dans la section 4.2, une méthodologie de traitement d'images est développée afin de déterminer les paramètres microstructuraux de ce modèle à partir de coupes des échantillons UO_2 obtenues par microscopie optique (section 4.2.3).

Dans la section 4.3, le modèle proposé est comparé aux mesures expérimentales. Pour cela, l'effet de la distribution angulaire sur la réponse thermique est tout d'abord étudié. Le modèle associé à la porosité occluse développé dans le chapitre 3 précédent est réévalué, le paramètre descripteur de densité de fissures s'avérant nettement plus pertinent que la fraction volumique de porosité occluse pour identifier les échantillons d'intérêt pour cette étude. Le modèle donnant l'impact de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique est ensuite comparé aux mesures expérimentales (section 4.3.3). Afin de comprendre les écarts modèle/expérience, une étude FFT 2D est réalisée dans la section 4.3.4.2.

- Pour rappel, la base cartésienne de l'espace est notée $(\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_y, \mathbf{u}_z)$ et l'axe \mathbf{u}_y est parallèle :
- au flux thermique imposé lors des mesures Flash (section 2.3.1),
 - à l'axe de symétrie de révolution des céramiques UO_2 associé à l'étape de pressage uniaxial lors de leur fabrication (section 2.1.1),
 - à l'axe vertical des images obtenues par microscopie optique (section 2.2.1.1).

4.1. Développement d'un modèle de type fissures pour la porosité d'assemblage

4.1.1. Rappels sur la densité de fissures

Une inclusion sphéroïdale i est définie comme un ellipsoïde de révolution caractérisé par son demi grand-axe a_i et son demi petit-axe b_i . Le facteur de forme ω de cette inclusion s'écrit alors : $\omega = b_i/a_i$.

Lorsque ω tend vers 0, le volume $V_i (= \frac{4\pi}{3} b_i a_i^2)$ de l'inclusion sphéroïdale tend vers 0 et la morphologie de cette inclusion tend vers celle d'un disque de rayon a_i . Notons que l'axe normal au plan de la fissure est aussi un axe de symétrie de révolution de la fissure. Une fissure en forme de disque peut donc être définie comme le cas limite d'une inclusion sphéroïdale dont le facteur de forme ω tend vers 0.

En considérant N inclusions sphéroïdales de facteur de forme ω , soulignons que le rapport V_i/ω est constant lorsque ω tend vers 0 et vaut $\frac{4}{3} \pi a_i^3$. Or, comme la fraction volumique c_a des

N inclusions sphéroïdales est égale à $c_a = \frac{1}{V_{tot}} \sum_{i=0}^N V_i$, nous obtenons :

$$\frac{c_a}{\omega} \xrightarrow{\omega \rightarrow 0} \frac{4\pi}{3} \rho_{3D} \quad (4.1)$$

où ρ_{3D} est le scalaire de densité de fissures défini comme [SK00] :

$$\rho_{3D} = \frac{1}{V_{tot}} \sum_{i=0}^N a_i^3 \quad (4.2)$$

La densité de fissures est le paramètre descripteur des inclusions de type fissures qui permet de quantifier la concentration des fissures dans le milieu étudié. En ce sens, ce paramètre est l'équivalent pour les fissures de la fraction volumique de porosité c_a pour les inclusions sphéroïdales de volumes non nuls ($\omega \neq 0$).

Nous nous sommes aussi intéressés à un milieu dans lequel sont présents M cylindres de hauteur h infinie et de section elliptique définie à l'aide du facteur de forme $\omega = b_i/a_i$ (où b_i et a_i sont respectivement les demi-petit-axe et grand-axe de la section elliptique du cylindre i). Tous les axes de révolution des cylindres de section elliptique sont parallèles entre eux.

Lorsque le facteur de forme ω tend vers 0, la surface associée à chaque section tend vers 0 et la morphologie des cylindres de section elliptique tend vers celle de fissures-rubans. Le volume d'un cylindre i vaut $V_i = \pi a_i b_i h$. En exprimant le volume d'étude comme $V_{tot} = S_{tot} h$ (où S_{tot} est la surface associée à une section perpendiculaire à l'axe de symétrie de révolution des cylindres), nous obtenons :

$$\frac{c_a}{\omega} \xrightarrow{\omega \rightarrow 0} \pi \rho_{2D} \quad (4.3)$$

où ρ_{2D} est le scalaire de densité de fissures 2D défini comme :

$$\rho_{2D} = \frac{1}{S_{tot}} \sum_{i=0}^M a_i^2 \quad (4.4)$$

Soit un objet 3D noté C observé sur une coupe 2D et une base du plan notée $(\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_z)$, il a été choisi de noter dans cette section « trace de C » l'intersection de l'objet 3D noté C par ce plan de coupe.

Notons que, dans les plans transverses à l'axe de symétrie de révolution des cylindres, les traces des fissures-rubans correspondent à un milieu 2D fissuré.

4.1.2. Évaluation du choix de modélisation des pores d'assemblage à l'aide d'objets de type fissure

Afin d'évaluer la représentativité d'une modélisation des pores d'assemblage à l'aide de fissures, deux réseaux de pores d'assemblage caractéristiques de ceux observés sur les céramiques UO_2 étudiées sont observés (figure 4.1).

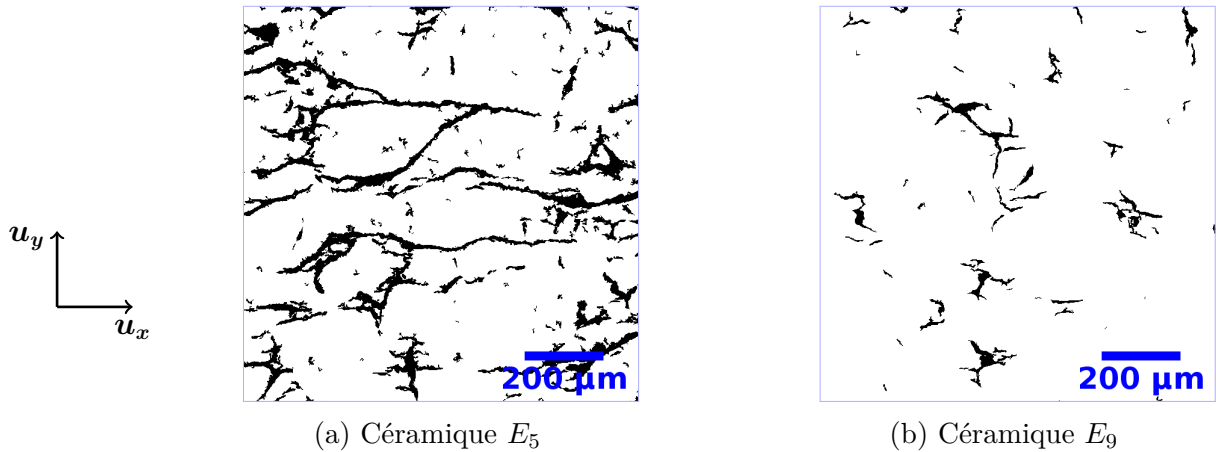


FIGURE 4.1. – Morphologie caractéristique des pores d’assemblage observés sur des zooms des coupes de céramiques UO_2 obtenues par microscopie optique et seuillées

Les pores d’assemblage présents dans les céramiques UO_2 étudiées forment un réseau interconnecté d’objets allongés et filiformes. Les réseaux de porosité d’assemblage font d’ailleurs penser à ceux observés dans des milieux fissurés.

De plus, la section 3.3.2 a montré que les facteurs de forme relatifs aux pores d’assemblage des céramiques UO_2 vérifient $\omega \ll 1$ donc les inclusions sphéroïdales utilisées pour représenter la porosité d’assemblage ont une morphologie tendant vers celles de fissures ($\omega = 0$).

Enfin, les pores d’assemblage observés sur la figure 4.1 semblent présenter une orientation préférentielle (associée à l’axe horizontal) plus marquée sur la céramique E_5 que sur la céramique E_9 . Cette orientation préférentielle peut s’expliquer par l’étape de pressage uniaxial dans la direction \mathbf{u}_y exercé sur les céramiques lors de leur fabrication (section 2.1.1).

Sur la base de ces observations, nous avons choisi de modéliser par la suite les pores d’assemblage par des fissures orientées et réparties de façon aléatoire.

4.1.3. Détermination du comportement thermique d’un ensemble dilué de fissures orientées

L’impact thermique d’une fissure dans un milieu infini a d’abord été étudié. Puis, nous avons étudié le comportement thermique d’un ensemble de fissures réparties de façon aléatoire dans une matrice et dont l’orientation des fissures est caractérisée à l’aide d’une fonction de distribution angulaire donnée et en supposant que les interactions entre fissures sont négligeables.

4.1.3.1. Fissure dans un milieu infini

Étudions le cas où le matériau étudié est constitué d’une fissure dans un milieu infini de volume V_{tot} et de conductivité thermique λ_m . En notant ω le facteur de forme du sphéroïde représentant cette fissure et $\mathbf{u}_3(\theta, \phi)$ le vecteur normal au plan de la fissure, le tenseur de localisation associé à cette fissure s’approxime (avec $\omega \ll 1$) par [Par16] :

$$\mathbf{A} = \mathbf{I} + \left(\frac{2}{\pi\omega} + \frac{1}{2} - 1 \right) \mathbf{u}_3(\theta, \phi) \otimes \mathbf{u}_3(\theta, \phi) \quad (4.5)$$

En reprenant la notation angulaire présentée sur la figure 1.16 et comme l'axe \mathbf{u}_3 est un axe de symétrie de révolution de la fissure, les propriétés de la fissure sont donc invariantes par rotation d'angle φ autour de cet axe. L'orientation du vecteur \mathbf{u}_3 normal au plan de la fissure ne dépend pas de l'angle d'Euler φ . Nous rappelons ici l'expression de ce vecteur normal (pour plus de détail voir la section 1.4.1.1) :

$$\mathbf{u}_3(\theta, \phi) = \sin \theta \sin \phi \mathbf{u}_x + \cos \theta \mathbf{u}_y - \sin \theta \cos \phi \mathbf{u}_z \quad (4.6)$$

4.1.3.2. Étude d'un ensemble de fissures orientées et réparties de façon aléatoire

Considérons un VER 3D de volume V constitué d'une matrice de conductivité thermique $\lambda_m = \lambda_m \mathbf{I}$ dans laquelle sont incluses N fissures réparties de façon aléatoire dont chaque fissure $k \in [1, N]$ est caractérisée par un facteur de forme ω_k et par le vecteur $\mathbf{u}_3(\theta_k, \phi_k)$ normal au plan de cette fissure de conductivité thermique nulle dans la base attachée à la fissure $(\mathbf{u}_1, \mathbf{u}_2, \mathbf{u}_3)$.

En considérant les interactions entre fissures comme négligeables, nous avons utilisé la même méthodologie que celle développée pour le modèle « milieu dilué » dans le cas d'inclusions sphéroïdales. Cette méthodologie est présentée dans la section 1.4.2.2. En notant respectivement a_k et b_k les demi grand-axe et demi petit-axe d'une fissure, notons que le facteur du volume d'une fissure $(\frac{4\pi}{3} (a_k)^2 b_k)$ sur le facteur de forme $\omega_k = \frac{b_k}{a_k}$ est constant et vaut $\frac{4}{3} \pi (a_k)^3$. Aussi, pour toute fissure k , lorsque la fraction volumique c_k et le facteur de forme ω_k tendent vers 0, on a :

$$c_k \mathbf{A}_k \approx \frac{8 (a_k)^3}{3V} \mathbf{u}_3(\theta_k, \phi_k) \otimes \mathbf{u}_3(\theta_k, \phi_k) \quad (4.7)$$

D'où, nous obtenons en partant de l'équation 1.75 :

$$\lambda_{eq}^{DIL} = \lambda_m \left(\mathbf{I} - \frac{8}{3} \frac{1}{V} \sum_{k=1}^N (a_k)^3 \mathbf{u}_3^k(\theta_k, \phi_k) \otimes \mathbf{u}_3^k(\theta_k, \phi_k) \right) \quad (4.8)$$

Notons $D(\mathbf{u}_3, a)$ la densité de probabilité décrivant la distribution angulaire des vecteurs normaux aux plans des fissures \mathbf{u}_3 et la distribution en taille du rayon a de ces fissures.

L'expression continue de la somme apparaissant dans l'équation précédente s'écrit alors :

$$\lambda_{eq} = \lambda_m \left(\mathbf{I} - \frac{8}{3} \frac{N}{V} \int_0^\infty \int_\Omega a^3 D(\theta, \phi, a) \mathbf{u}_3(\theta, \phi) \otimes \mathbf{u}_3(\theta, \phi) d\Omega da \right) \quad (4.9)$$

où Ω est l'angle solide définissant le domaine d'intégration et vaut $\Omega = 4\pi$ en 3D.

Soulignons que le terme $D(\theta, \phi, a) d\Omega da$ décrit le taux de fissures telles que leur rayon est dans l'intervalle $[a, a + da]$ (où da est un incrément infinitésimal du rayon a des fissures) et que l'orientation du vecteur normal $\mathbf{u}_3(\theta, \phi)$ au plan de ces fissures est compris dans l'angle solide élémentaire $d\Omega$.

Introduisons les fonctions :

— $W(\theta, \phi)$ la fonction de densité de probabilité associée à la distribution angulaire des

vecteurs normaux $\mathbf{u}_3(\theta, \phi)$ aux plans des fissures qui est définie, pour rappel, telle que :

$$\int_0^{2\pi} \int_0^\pi W(\phi, \theta) d\phi \sin \theta d\theta = 1 \quad (4.10)$$

avec $\theta \in [0; \pi]$ et $\phi \in [0, 2\pi]$,

— $F(a)$ la fonction de densité de probabilité associée au rayon a des fissures qui est définie telle que $\int_0^\infty F(a) da = 1$.

On suppose que la microstructure et les propriétés du matériau étudié obéissent à une symétrie isotrope transverse ayant pour axe de symétrie de révolution \mathbf{u}_y . Dans ce cas, les fonctions D et W ne dépendent pas de l'angle ϕ mais uniquement de l'angle θ (figure 1.16).

En supposant que les deux paramètres $\mathbf{u}_3(\theta, \phi)$ et a sont statistiquement indépendants, la fonction $D(\theta, a)$ peut s'exprimer comme $D(\theta, a) = W(\theta) F(a)$, nous obtenons¹ :

$$\boldsymbol{\lambda}_{eq}^{DIL} = \lambda_m \left(\mathbf{I} - \frac{16\pi}{3} \frac{N}{V} \int_0^\infty a^3 F(a) da \int_0^\pi W(\theta) \left[\frac{\sin^2 \theta}{2} (\mathbf{u}_x \otimes \mathbf{u}_x + \mathbf{u}_z \otimes \mathbf{u}_z) + \cos^2 \theta \mathbf{u}_y \otimes \mathbf{u}_y \right] \sin \theta d\theta \right) \quad (4.11)$$

En reconnaissant que $\rho_{3D} = \frac{N}{V} \int_0^\infty a^3 F(a) da$ est la forme intégrale de la densité de fissures (équation 4.2)², le tenseur effectif de conductivité thermique s'exprime :

$$\boldsymbol{\lambda}_{eq}^{DIL} = \lambda_m \left(\mathbf{I} - \frac{16\pi}{3} \rho_{3D} \int_0^\pi W(\theta) \left[\frac{\sin^2 \theta}{2} (\mathbf{u}_x \otimes \mathbf{u}_x + \mathbf{u}_z \otimes \mathbf{u}_z) + \cos^2 \theta \mathbf{u}_y \otimes \mathbf{u}_y \right] \sin \theta d\theta \right) \quad (4.12)$$

Notons $\boldsymbol{\kappa}_a$ ($= \frac{1}{\lambda_m} \boldsymbol{\lambda}_{eq}^{DIL}$) l'impact des pores d'assemblage sur la conductivité thermique à l'aide du modèle de type « milieu dilué » développé (équation 4.12). À partir de l'équation 4.12, nous obtenons alors :

$$\boxed{\boldsymbol{\kappa}_a = \mathbf{I} - \frac{8}{3} \pi \rho_{3D} \mathbf{B}_{3D}} \quad (4.13)$$

où le tenseur \mathbf{B}_{3D} est associé à la distribution angulaire des fissures et est défini comme :

$$\mathbf{B}_{3D} = 2 \int_0^\pi W(\theta) \left[\frac{\sin^2 \theta}{2} (\mathbf{u}_x \otimes \mathbf{u}_x + \mathbf{u}_z \otimes \mathbf{u}_z) + \cos^2 \theta \mathbf{u}_y \otimes \mathbf{u}_y \right] \sin \theta d\theta \quad (4.14)$$

Il est possible d'expliciter le modèle général proposé (équation 4.13) pour différents cas caractéristiques de distributions angulaires des fissures [SK00 ; Dua+06] déjà étudiés dans la section 1.4.2.2 :

— Alignement de toutes les normales aux plans des fissures selon \mathbf{u}_y ($\mathbf{B}_{3D} = \frac{1}{\pi} \mathbf{u}_y \otimes \mathbf{u}_y$ et

1. Pour rappel, N fissures de rayon a_k ($k \in [1, N]$) et de vecteur normal $\mathbf{u}_3(\theta_k, \phi)$ dans un volume V . Introduisons $\mathbf{F} = 4\pi \frac{N}{V} \int_0^\infty a^3 F(a) da \int_0^\pi W(\theta) \mathbf{u}_3(\theta, \phi) \otimes \mathbf{u}_3(\theta, \phi) \sin \theta d\theta$ le tenseur de structure \mathbf{F} (ou *fabric tensor* en anglais) d'ordre 2. Le tenseur de structure est un paramètre défini par Oda [Oda82 ; Oda84 ; ON88 ; ONM82] utilisé en géologie pour caractériser la géométrie des fissures dans un géomatériau.

2. Notons que le scalaire F associé au tenseur de structure défini par Oda vaut $F = 4\pi \rho_{3D}$.

$$W(\theta) = \frac{\delta(\theta)}{2\pi \sin \theta}$$

$$\boldsymbol{\kappa}_a = \mathbf{I} - \frac{8}{3} \rho_{3D} \mathbf{u}_y \otimes \mathbf{u}_y \quad (4.15)$$

La dégradation de conductivité thermique obtenue avec un chargement thermique parallèle à l'axe \mathbf{u}_y est maximale avec le modèle présenté dans l'équation 4.13. Aussi, l'impact des fissures sur la conductivité thermique dans la direction \mathbf{u}_y correspond à la borne minimale du modèle $\boldsymbol{\kappa}_a$ (équation 4.13). Pour tout chargement thermique normal à l'axe \mathbf{u}_y , la réponse thermique du milieu est la même que celle de la matrice ce qui signifie que le flux n'est pas perturbé par les fissures et agit comme s'il ne les « voyait » pas. Cette réponse thermique correspond à la borne maximale du modèle $\kappa_a = 1$ (équation 4.13).

— Distribution angulaire aléatoire des fissures ($\mathbf{B}_{3D} = \frac{1}{3\pi} \mathbf{I}$ et $W(\theta) = \frac{1}{4\pi}$)

$$\boldsymbol{\kappa}_a = \left(1 - \frac{8}{9} \rho_{3D}\right) \mathbf{I} \quad (4.16)$$

Dans ce cas, les fissures impactent de façon isotrope la conductivité thermique du matériau étudié.

Notons que les équations 4.15 et 4.16 peuvent aussi être obtenues respectivement à partir des équations 3.19 et 3.20 obtenues pour des inclusions sphéroïdales en effectuant un passage à la limite quand la fraction volumique de porosité d'assemblage c_a et le facteur de forme de ces inclusions ω_a tendent vers 0.

Nous avons choisi par la suite de modéliser la porosité d'assemblage par des fissures orientées et réparties de façon aléatoire et d'estimer le comportement thermique de ces pores à l'aide du modèle proposé (équation 4.13).

Afin d'alimenter ce modèle, le tenseur \mathbf{B}_{3D} associé à la distribution angulaire des fissures et la densité de fissures ρ_{3D} ont été caractérisés à partir de l'étude de coupes de céramiques UO_2 obtenues par microscopie optique. La méthodologie de caractérisation des paramètres descripteurs est présentée dans la section 4.2 suivante.

4.2. Caractérisation 2D des paramètres microstructuraux du modèle développé

Le modèle proposé (équation 4.13) dépend de deux paramètres descripteurs qui sont le tenseur \mathbf{B}_{3D} associé à la distribution angulaire des fissures et la densité de fissures ρ_{3D} . Nous avons choisi de caractériser ces paramètres 3D à partir de coupes des céramiques UO_2 obtenues par microscopie optique.

Pour rappel, l'intersection d'un objet 3D noté C par un plan de coupe caractérisé par une base $(\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_y)$ est appelé trace de C (sur le plan $(\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_y)$).

4.2.1. Étude analytique de la caractérisation 2D de ces paramètres

4.2.1.1. Densité de fissures

Budiansky et O'Connell donnent une définition géométrique de la densité de fissures [BO76] :

$$\rho_{3D} = \frac{2}{\pi} \frac{N}{V_{tot}} \left\langle \frac{A^2}{P} \right\rangle \quad (4.17)$$

où N est le nombre de fissures dans le volume d'étude et $\left\langle \frac{A^2}{P} \right\rangle$ la moyenne de l'aire au carré sur le périmètre des fissures présentes dans le matériau étudié.

De plus, ces auteurs proposent aussi de déterminer analytiquement la densité de fissures pour un matériau constitué d'un ensemble de fissures de même forme convexe et dont la répartition spatiale et la distribution angulaire sont aléatoires. Étant donné que les fissures sont de même forme, elles possèdent donc toutes la même aire A et le même périmètre P . Nous nous proposons par la suite d'explicitier le raisonnement suivi par les auteurs [BO76] afin d'aboutir à la caractérisation 2D qu'ils proposent.

Considérons l'espace \mathbb{R}^3 dont un point O quelconque est pris comme centre de l'espace. Tout plan de l'espace peut être repéré par les coordonnées sphériques (r, θ, β) (figure 4.2) :

- r est la distance du plus petit vecteur normal au plan étudié passant par O noté OK ,
- θ est l'angle entre l'axe \mathbf{u}_y et le vecteur OK de longueur r ,
- β est l'angle entre l'axe \mathbf{u}_x et le vecteur OH de longueur $\tilde{\rho}$. Le vecteur OH est le plus petit vecteur passant par O et perpendiculaire à la trace du plan étudié dans le plan $(O, \mathbf{u}_x, \mathbf{u}_z)$.

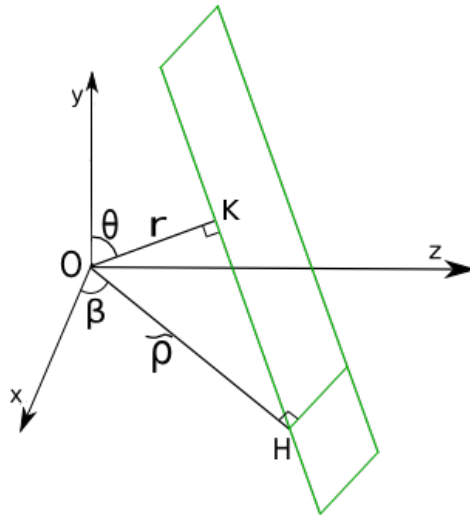


FIGURE 4.2. – Caractérisation d'un plan dans \mathbb{R}^3 à l'aide du système de coordonnées sphériques (r, θ, β)

Le couple (θ, β) permet donc de caractériser l'orientation d'un plan dans l'espace tandis que le paramètre r permet de quantifier la distance de ce plan par rapport à l'origine O de l'espace.

Dans ce système de coordonnées et en constatant que $r = \tilde{\rho} \sin \theta$, les vecteurs normaux au plan étudié \mathbf{OH} et \mathbf{OK} s'expriment de la façon suivante :

$$\begin{aligned}\mathbf{OH} &= \tilde{\rho}(\cos \beta \mathbf{u}_x + \sin \beta \mathbf{u}_z) \\ \mathbf{OK} &= \tilde{\rho}(\cos \beta \sin \theta \mathbf{u}_x + \frac{1}{2} \sin(2\theta) \mathbf{u}_y + \sin \beta \sin \theta \mathbf{u}_z)\end{aligned}\quad (4.18)$$

La figure 4.3 présente l'intersection d'une fissure de forme convexe notée C contenue dans le plan $(O, \mathbf{u}_x, \mathbf{u}_z)$ à l'aide d'un plan de l'espace.

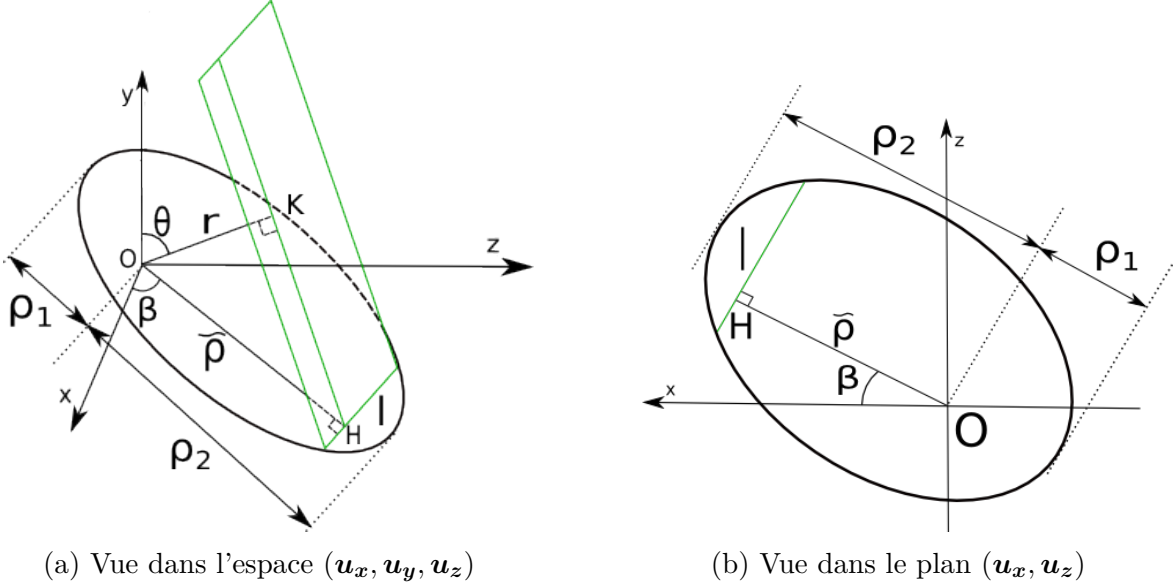


FIGURE 4.3. – Intersection de la fissure C contenue dans $(O, \mathbf{u}_x, \mathbf{u}_z)$ avec un plan (en vert)

Pour chaque ensemble de plans dont l'orientation (θ, β) est fixe, il existe deux positions r extrêmes pour lesquelles la trace de C dans ces plans se réduit à un point (et au-delà de ces positions, la trace de C est l'ensemble vide). Les distances de O à chacun de ces deux points sont notées ρ_1 et ρ_2 . En notant \mathbf{u}_{OH} le vecteur unitaire associé à \mathbf{OH} , la trace de C dans un plan peut être :

- vide si $(\tilde{\rho} > \rho_2$ et $\mathbf{OH} \cdot \mathbf{u}_{OH} > 0)$ ou $(\tilde{\rho} > \rho_1$ et $\mathbf{OH} \cdot \mathbf{u}_{OH} < 0)$,
- un point si $\mathbf{OH} = \rho_2 \mathbf{u}_{OH}$ ou $\mathbf{OH} = -\rho_1 \mathbf{u}_{OH}$,
- une corde de longueur notée l si $\mathbf{OH} \in]\rho_2, -\rho_1[\mathbf{u}_{OH}$.

Le nombre \mathcal{N} de plans pour lesquels la trace de C dans ces plans n'est pas l'ensemble vide est donc un nombre fini et peut s'exprimer de la façon suivante :

$$\begin{aligned}\mathcal{N} &= \int_0^{2\pi} d\beta \int_0^{\frac{\pi}{2}} \left(\int_{-\rho_1 \sin \theta}^{\rho_2 \sin \theta} dr \right) \sin \theta d\theta \\ &= \int_0^{2\pi} (\rho_1 + \rho_2) d\beta \int_0^{\frac{\pi}{2}} \sin^2 \theta d\theta\end{aligned}\quad (4.19)$$

En faisant intervenir le périmètre P de la fissure C [KM63], le nombre \mathcal{N} vaut :

$$\mathcal{N} = \frac{\pi}{2} P \quad (4.20)$$

À une distance r donnée, l' « épaisseur » moyenne \bar{t} de la fissure C observée sur un plan est alors de :

$$\bar{t} = \frac{1}{2\pi} \mathcal{N} = \frac{P}{4} \quad (4.21)$$

Considérons maintenant un échantillon possédant N fissures de même forme convexe et de même taille qui sont distribuées de façon aléatoire dans le milieu. Du fait de cette distribution spécifique des fissures, le nombre de traces d'objets par unité de surface sur une coupe quelconque $\frac{M}{S_{tot}}$ (défini ici comme le rapport du nombre de traces d'objets M sur la surface totale de l'image de la coupe étudiée S_{tot}) vaut :

$$\frac{M}{S_{tot}} = \frac{N}{V_{tot}} \bar{t} = \frac{NP}{4V_{tot}} \quad (4.22)$$

Dans un second temps, étudions la longueur moyenne \bar{l} de la trace de C observée sur les plans de coupe qui est définie comme [KM63] :

$$\bar{l} = \frac{1}{\mathcal{N}} \int_{\beta=0}^{2\pi} \int_{\theta=0}^{\frac{\pi}{2}} \int_{r=-\rho_1 \sin \theta}^{\rho_2 \sin \theta} l(r, \theta, \beta) dr \sin \theta d\theta d\beta \quad (4.23)$$

où $l(r, \theta, \beta)$ est la longueur de la trace de C dans un plan de coupe quelconque de coordonnées (r, θ, β) .

Nous avons choisi de balayer l'espace avec des plans tels que leur orientation définie par le couple (θ, β) soit fixe. En réalisant le changement de variable $r = \tilde{\rho} \sin \theta$ et en exprimant \mathcal{N} à l'aide de l'équation 4.20, on obtient alors :

$$\bar{l} = \frac{4}{P} \int_0^{\frac{\pi}{2}} \sin^2 \theta d\theta \int_{-\rho_1}^{\rho_2} l(\tilde{\rho}, \theta, \beta) d\tilde{\rho} \quad (4.24)$$

Enfin, en reconnaissant l'élément d'aire associé à la fissure C ($dA = l(\tilde{\rho}, \theta, \beta) d\tilde{\rho}$) dans l'équation précédente, on obtient alors en intégrant entre les deux positions extrêmes de $\tilde{\rho}$ [BO76 ; KM63] :

$$\bar{l} = \frac{\pi A}{P} \quad (4.25)$$

En ré-injectant les formules 4.22 et 4.25 dans l'expression de la densité de fissures ρ_{3D} (équation 4.17), Budiansky et O'Connell proposent alors d'évaluer la densité de fissures à partir de coupes à l'aide de la formule suivante [BO76] :

$$\rho_{3D} = \frac{8}{\pi^3 S_{tot}} M \bar{l}^2 \quad (4.26)$$

où \bar{l}^2 est le carré de la moyenne des longueurs l des traces des objets présents sur l'image.

En exprimant la longueur moyenne \bar{l} comme $\bar{l} = l_{tot}/M$ (où l_{tot} est la longueur totale des traces des objets présents sur la coupe étudiée), la densité de fissures s'exprime alors de la façon

suivante :

$$\boxed{\rho_{3D} = \frac{8}{\pi^3} \frac{l_{tot}^2}{S_{tot} M}} \quad (4.27)$$

En supposant que les pores d'assemblage sont répartis et distribués de façon aléatoire dans le matériau et qu'ils présentent tous la même forme convexe, nous avons choisi de déterminer la densité de fissures associées à cette famille de pores sur les coupes des microstructures UO_2 obtenues par microscopie optique à l'aide de l'équation 4.27.

L'écart à la distribution aléatoire des pores d'assemblage peut être quantifié à l'aide du tenseur \mathbf{B}_{3D} .

4.2.1.2. Tenseur associé à la distribution angulaire 3D des fissures

Oda et Nakayama [ON88] proposent une méthodologie de caractérisation du tenseur \mathbf{B}_{3D} (équation 4.14) associé à la distribution angulaire des fissures pour des matériaux isotropes transverses. Nous nous proposons ici d'explicitier le raisonnement suivi pour aboutir à la caractérisation 2D qu'ils proposent.

Considérons un matériau possédant des propriétés isotropes transverses avec \mathbf{u}_y pour axe de symétrie de révolution. Le tenseur $\mathbf{B}'_{3D} (= \frac{1}{\pi} \mathbf{B}_{3D})$ s'écrit alors dans la base orthonormée $(\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_y, \mathbf{u}_z)$:

$$\mathbf{B}'_{3D} = \begin{pmatrix} B'_{3D\perp} & 0 & 0 \\ 0 & B'_{3D//} & 0 \\ 0 & 0 & B'_{3D\perp} \end{pmatrix} \quad (4.28)$$

où $B'_{3D\perp}$ et $B'_{3D//}$ sont les valeurs propres de \mathbf{B}'_{3D} associées respectivement au plan d'isotropie (normal à l'axe \mathbf{u}_y) et à la direction associée à \mathbf{u}_y .

De plus, par définition de \mathbf{B}'_{3D} (équation 4.14), la trace du tenseur \mathbf{B}'_{3D} vaut 1. D'où, :

$$tr[\mathbf{B}'_{3D}] = 2 B'_{3D\perp} + B'_{3D//} = 1 \quad (4.29)$$

Étudions maintenant un plan $(\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_y)$ de ce matériau isotrope transverse. La figure 4.4 présente la description de l'orientation de la trace d'une fissure sur le plan $(\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_y)$.

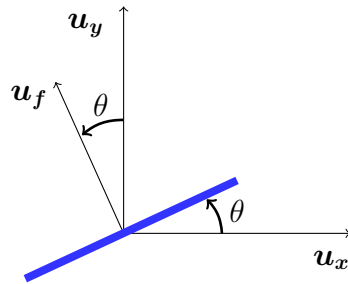


FIGURE 4.4. – Description de la trace d'une fissure (en bleu) de vecteur normal \mathbf{u}_f dans le plan défini par la base $(\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_y)$

Le vecteur normal \mathbf{u}_f au plan de la trace de la fissure présentée sur la figure 4.4 est défini comme : $\mathbf{u}_f = -\sin \theta \mathbf{u}_x + \cos \theta \mathbf{u}_y$.

Posons le tenseur \mathbf{B}_{2D} associé à la distribution angulaire des traces des fissures dans le plan $(\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_y)$ qui est défini comme :

$$\mathbf{B}_{2D} = \int_0^\pi \mathbf{u}_f \otimes \mathbf{u}_f W'(\mathbf{u}_f) \sin \theta d\theta \quad (4.30)$$

où $W'(\mathbf{e}_f)$ est la fonction 2D de densité de probabilité associée à la distribution angulaire des normales aux plans des fissures présentes dans le matériau étudié.

Le tenseur \mathbf{B}_{2D} est l'équivalent 2D du tenseur 3D \mathbf{B}_{3D} associé à la distribution angulaire des fissures (équation 4.14).

Étant donné que le plan $(\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_y)$ contient l'axe de symétrie de révolution \mathbf{u}_y de la micro-structure, il peut être supposé que [ON88] :

$$\frac{B'_{3D//}}{B'_{3D\perp}} = \frac{B_{2D//}}{B_{2D\perp}} \quad (4.31)$$

où $B_{2D\perp}$ et $B_{2D//}$ sont les composantes du tenseur \mathbf{B}_{2D} associées respectivement à la direction \mathbf{u}_x et à la direction \mathbf{u}_y .

Notons le tenseur symétrique $\mathbf{B}_{2D} = \begin{pmatrix} (B_{2D})_{xx} & (B_{2D})_{xy} \\ (B_{2D})_{xy} & (B_{2D})_{yy} \end{pmatrix}$ dans la base $(\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_y)$.

En utilisant l'expression de \mathbf{B}_{2D} de l'équation 4.30, le terme $(B_{2D})_{mn}$ avec $\{m, n\} \in \{x, y\}^2$ s'exprime comme :

$$(B_{2D})_{mn} = \frac{1}{M} \sum_{k=0}^M (\mathbf{u}_f \cdot \mathbf{u}_m) (\mathbf{u}_f \cdot \mathbf{u}_n) \quad (4.32)$$

Avec la description angulaire de la trace d'une fissure présentée sur la figure 4.4, nous obtenons :

$$\begin{cases} (B_{2D})_{xx} &= \frac{1}{M} \sum_{k=0}^M \sin^2(\theta_k) \\ (B_{2D})_{xy} &= -\frac{1}{M} \sum_{k=0}^M \cos(\theta_k) \sin(\theta_k) \\ (B_{2D})_{yy} &= \frac{1}{M} \sum_{k=0}^M \cos^2(\theta_k) \end{cases} \quad (4.33)$$

Soit X une valeur propre de \mathbf{B}_{2D} , celle-ci vérifie l'équation suivante :

$$\left((B_{2D})_{xx} - X \right) \left((B_{2D})_{yy} - X \right) - [(B_{2D})_{xy}]^2 = 0 \quad (4.34)$$

Il existe deux solutions réelles à cette équation, les valeurs propres s'expriment de la façon

suivante (en supposant que $B_{2D_{\perp}} < B_{2D_{//}}$) :

$$\begin{cases} B_{2D_{\perp}} = \frac{(B_{2D})_{xx} + (B_{2D})_{yy}}{2} - \sqrt{\frac{\left((B_{2D})_{xx} - (B_{2D})_{yy}\right)^2}{4} - [(B_{2D})_{xy}]^2} \\ B_{2D_{//}} = \frac{(B_{2D})_{xx} + (B_{2D})_{yy}}{2} + \sqrt{\frac{\left((B_{2D})_{xx} - (B_{2D})_{yy}\right)^2}{4} - [(B_{2D})_{xy}]^2} \end{cases} \quad (4.35)$$

En explicitant les termes du problème ci-dessus (équation 4.33) et à l'aide de formules classiques de trigonométrie (soit $x \in \mathbb{R}$, $\begin{cases} \cos^2(x) + \sin^2(x) = 1 \\ \sin(2x) = 2 \cos(x) \sin(x) \\ \cos(2x) = \cos^2(x) - \sin^2(x) \end{cases}$), l'expression des valeurs propres du tenseur \mathbf{B}_{2D} peut être simplifiée :

$$\begin{cases} B_{2D_{\perp}} = \frac{1}{2}(1 - \Delta) \\ B_{2D_{//}} = \frac{1}{2}(1 + \Delta) \end{cases} \quad (4.36)$$

où le paramètre Δ vaut :

$$\Delta = \sqrt{\frac{1}{M} \sum_{k=0}^M \cos(4\theta_k)} \quad (4.37)$$

On obtient le rapport des valeurs propres du tenseur \mathbf{B}'_{3D} à l'aide de l'expression des valeurs propres du tenseur \mathbf{B}_{2D} (équation 4.36) et du passage 2D/3D présenté dans l'équation 4.31 :

$$\frac{B'_{3D_{//}}}{B'_{3D_{\perp}}} = \frac{1 + \Delta}{1 - \Delta} \quad (4.38)$$

À partir de ce rapport et de l'expression de la trace du tenseur \mathbf{B}'_{3D} (équation 4.29), il est alors possible d'exprimer les valeurs propres $B'_{3D_{\perp}}$ et $B'_{3D_{//}}$ comme :

$$\boxed{\begin{cases} B'_{3D_{\perp}} = \frac{1 - \Delta}{3 - \Delta} \\ B'_{3D_{//}} = \frac{1 + \Delta}{3 - \Delta} \end{cases}} \quad (4.39)$$

L'équation 4.39 montre donc que le tenseur \mathbf{B}'_{3D} associé à la distribution angulaire des fissures d'un matériau possédant des propriétés isotropes transverses peut être caractérisé à l'aide de l'étude des traces des fissures sur des plans contenant l'axe de symétrie de révolution de la microstructure.

De plus, les relations de l'équation 4.39 permettent de spécifier deux cas extrêmes de distributions angulaires de fissures :

- Lorsque toutes les fissures présentent une distribution angulaire aléatoire, le matériau étudié possède des propriétés isotropes (équation 4.16). Les valeurs propres du tenseur \mathbf{B}'_{3D} (équation 4.29) sont toutes identiques et valent $\frac{1}{3}$ ce qui induit donc un paramètre $\Delta = 0$.
- Lorsque tous les vecteurs normaux aux plans des fissures sont alignés selon l'axe \mathbf{u}_y , un flux thermique imposé selon \mathbf{u}_y ne « voit » pas les fissures selon \mathbf{u}_x et \mathbf{u}_z (équation 4.15) ce qui signifie que $B'_{3D\perp} = 0$. Le paramètre Δ vaut alors 1.

Cette étude sur les deux cas extrêmes de distributions angulaires montre donc que le paramètre Δ appartient à l'intervalle $[0, 1]$ pour toute microstructure étudiée.

Étant donné que les céramiques UO_2 obéissent à une symétrie isotrope transverse ayant pour axe de symétrie de révolution \mathbf{u}_y et que les coupes obtenues par microscopie optique sont des plans contenant cet axe, nous avons choisi de caractériser le tenseur \mathbf{B}'_{3D} à partir des coupes obtenues par microscopie optique avec l'équation 4.39.

En conclusion, afin d'évaluer à partir de coupes la densité de fissures et le tenseur de distribution angulaire des fissures \mathbf{B}'_{3D} associées à la porosité d'assemblage, il est donc nécessaire de caractériser les paramètres descripteurs 2D suivants sur les coupes des céramiques UO_2 :

- le nombre M de traces d'objets présentes sur les coupes ou traces de fissures (car les objets dans le cas étudié sont des fissures de type disque),
- la longueur totale l_{tot} des traces de fissures,
- l'orientation θ de ces traces de fissures.

4.2.2. Développement d'une méthodologie de traitement d'images pour la caractérisation des paramètres descripteurs 2D

Sur les coupes des céramiques UO_2 obtenues par microscopie optique, les traces des pores d'assemblage extraites par traitement d'images (figure 2.11c) sont des objets volumiques. Afin de représenter ces traces par des fissures (objets surfaciques), il a été choisi d'étudier les squelettes des traces des pores d'assemblage sur les coupes (que l'on appellera par la suite pour plus de simplicité uniquement « les squelettes des traces »). Les étapes du traitement d'images utilisé pour obtenir les squelettes des traces sont présentées dans la section 2.2.1.2. Un exemple d'image squelettisée est présenté sur la figure 2.12b.

Une fois les squelettes des traces obtenus, les paramètres descripteurs 2D présentés dans la section précédente sont évalués à l'aide d'un plug-in de traitement d'images nommé Crackcut développé lors de cette étude sous Fiji [Sch+12]. La figure 4.5 présente le principe de fonctionnement de Crackcut.

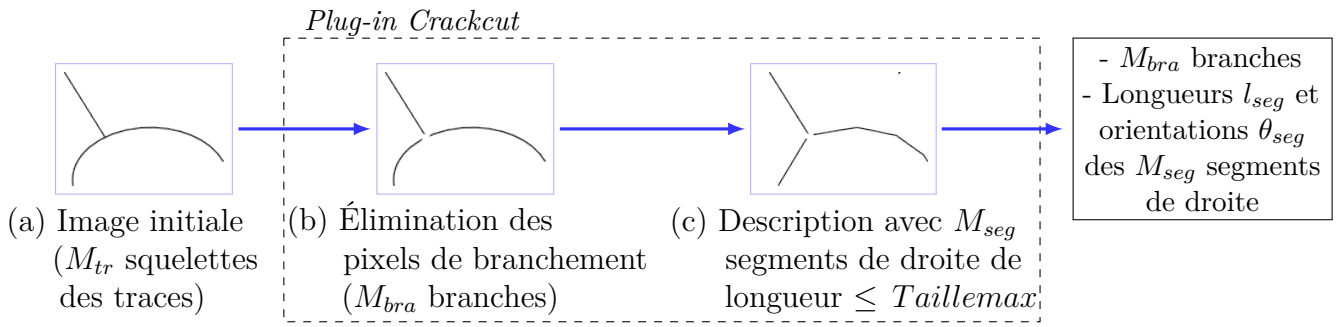


FIGURE 4.5. – Principe de fonctionnement du plug-in Crackcut

Sur les coupes (comme la figure 4.5a), les squelettes des traces sont courbés et forment un réseau interconnecté. Nous avons choisi de définir :

- les pixels de branchement comme les pixels qui possèdent au moins trois voisins. Ces pixels caractérisent l’interconnexion de chaque squelette de trace.
- les branches comme étant un ensemble de pixels connexes possédant moins de trois voisins.

Les opérations réalisées par le plug-in Crackcut sont les suivantes :

1. Les pixels de branchement sont éliminés à l’aide du plug-in *Analyze Skeleton* [Arg+10] de Fiji (figure 4.5b). Cette étape permet d’isoler toutes les branches constituant les squelettes des traces.
2. La longueur et l’orientation des branches sont évaluées en décrivant ces branches à l’aide de segments de droite (figure 4.5c) de longueur l_{seg} telle que :

$$l_{seg} \leq Taillemax \quad (4.40)$$

où $Taillemax$ est une consigne d’entrée du plug-in Crackcut.

Une branche des pores d’assemblage est alors décrite à l’aide d’un ou plusieurs segments de droite caractérisés chacun par une longueur l_{seg} et une orientation θ_{seg} . La figure 4.6 présente la description d’une branche à l’aide de trois segments de droite.

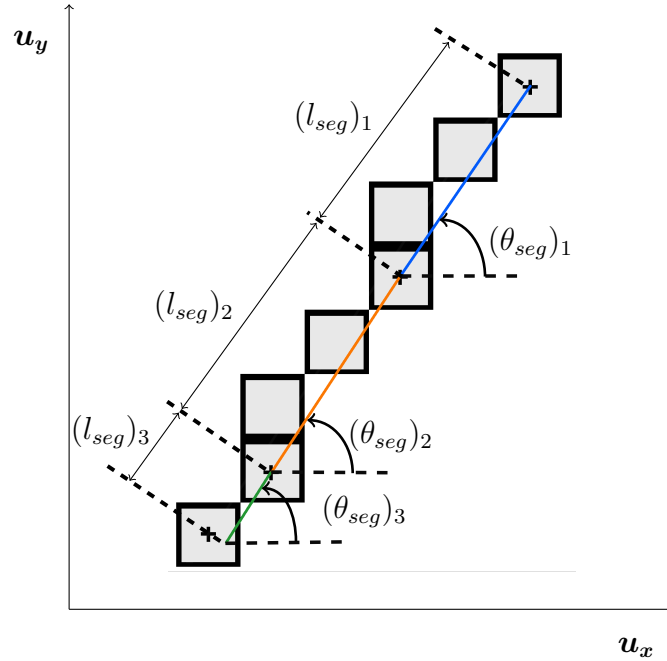


FIGURE 4.6. – Description d’une branche (visualisation numérique où les pixels la constituant sont en gris) à l’aide de trois segments de droite

Le plug-in décrit une branche à l’aide de segments de droite en partant d’un pixel à l’extrémité d’une branche (qui correspond aussi au premier pixel identifié comme étant une extrémité d’un segment de droite, aussi appelé pixel initial). Sur la figure 4.6, ce pixel initial correspond à l’extrémité en haut à droite de la branche considérée. En partant de ce pixel initial, le plug-in évalue la longueur entre ce pixel et le pixel connexe voisin i afin d’évaluer si la distance d entre ces deux pixels vérifie $d \leq Taillemax$. Tant que cette condition est vérifiée, le plug-in évalue alors la longueur du pixel initial au pixel voisin $i+1$ (qui n’a pas encore été évaluée jusqu’alors). Lorsque cette condition n’est plus vérifiée, un segment est généré entre le pixel initial et le dernier pixel qui a vérifié la condition (soit le pixel $i-1$). Le pixel $i-1$ devient alors le pixel initial du segment de droite suivant et la description de la branche continue jusqu’à ce que toute la branche étudiée soit décomposée en segments de droite. La longueur $(l_{seg})_k$ d’un segment k est évaluée à l’aide de la norme euclidienne comme la distance entre les centres des deux pixels extrémaux. L’orientation $(\theta_{seg})_k$ d’un segment est évaluée comme l’angle entre l’axe horizontal et le segment étudié. Cet angle est compris entre $-\frac{\pi}{2} \leq \theta_{seg} \leq \frac{\pi}{2}$.

Dans le cas où le dernier segment de droite décrivant la branche est constitué de deux pixels (comme celui en vert sur la figure 4.6), nous avons choisi de considérer que l’orientation de ce segment est identique à celle de l’avant-dernier segment afin de diminuer les biais numériques sur l’orientation de ce segment qui sont liés à la discrétisation des images numériques, soit $(\theta_{seg})_3 = (\theta_{seg})_2$ sur la figure 4.6. En notant u l’unité de longueur sur l’image étudiée, la longueur de ce segment est définie comme $(l_{seg})_3 = \frac{u}{(\theta_{seg})_3}$.

Notons que pour que des segments de droite puissent être générés par le plug-in Crackcut, il est nécessaire que la consigne $Taillemax$ soit supérieure ou égale à la longueur maximale séparant

deux pixels voisins. Le cas le plus extrême correspond à celui où les pixels voisins se touchent par un sommet. La longueur entre ces deux pixels est alors de $\sqrt{2}pix$. Pour une résolution spatiale Res donnée (en unité de longueur par pixel), la consigne $Taillemax$ doit donc vérifier : $Taillemax \geq Res \sqrt{2}$.

La vérification de ce plug-in est présentée dans l'annexe E.

Pour un objet courbe et interconnecté (comme celui représenté sur la figure 4.5a), dans la mesure où il n'existe pas de définitions standard de longueur et d'orientation, il a été choisi de définir ces paramètres tels que :

- En négligeant les longueurs associées aux pixels de branchement, la longueur $(l_{tr})_l$ d'un squelette d'une trace (où $l \in [1, M_{tr}]$ avec M_{tr} l'ensemble des squelettes de traces présents sur l'image) est égale à la somme des longueurs des $M_{bra,l}$ branches le constituant :

$$(l_{tr})_l = \sum_{k=1}^{M_{bra,l}} (l_{bra})_{l,k} \quad (4.41)$$

où $(l_{bra})_{l,k}$ est la longueur de la branche k ($\in [1, M_{bra,l}]$) constituant le squelette d'une trace l .

Or, la longueur $(l_{bra})_{l,k}$ d'une branche k du squelette de trace l est décrite à l'aide de $M_{seg,l,k}$ segments de droite, soit : $(l_{bra})_{l,k} = \sum_{h=1}^{M_{seg,l,k}} (l_{seg})_{l,k,h}$ où $(l_{seg})_{l,k,h}$ est la longueur du segment de droite h décrivant la branche k du squelette de trace l (avec $h \in [1, M_{seg,l,k}]$). D'où, :

$$(l_{tr})_l = \sum_{k=1}^{M_{bra,l}} \sum_{h=1}^{M_{seg,l,k}} (l_{seg})_{l,k,h} \quad (4.42)$$

La longueur totale l_{tot} des M_{tr} squelettes des traces présents sur une coupe vaut alors :

$$l_{tot} = \sum_{l=1}^{M_{tr}} (l_{tr})_l = \sum_{l=1}^{M_{tr}} \sum_{k=1}^{M_{bra,l}} \sum_{h=1}^{M_{seg,l,k}} (l_{seg})_{l,k,h} \quad (4.43)$$

Définissons M_{seg} l'ensemble des segments de droite décrivant les squelettes des traces sur une coupe, celui-ci vaut : $M_{seg} = \sum_{l=1}^{M_{tr}} \sum_{k=1}^{M_{bra,l}} M_{seg,l,k}$. En notant $(l_{seg})_r$ la longueur du segment de droite $r \in [1, M_{seg}]$ décrivant les traces de squelette de droite présents sur l'image (cette notation ne permet pas de relier spécifiquement quels objets décrivent ces segments de droite), la longueur totale l_{tot} des squelettes des traces de la coupe étudiée s'exprime comme :

$$l_{tot} = \sum_{r=1}^{M_{seg}} (l_{seg})_r \quad (4.44)$$

- la distribution angulaire associée aux squelettes des traces d'une coupe est évaluée à l'aide de la fonction de distribution angulaire W_{2D} associée aux segments de droite décrivant l'image qui est définie pour un intervalle $Int = \left[-\frac{\pi}{2}, \frac{\pi}{2} \right]$ telle que :

$$W_{2D}(Int) = \frac{1}{l_{tot}} \sum_{k=1}^{M_{seg}} \delta_{Int}[(\theta_{seg})_k] (l_{seg})_k \quad (4.45)$$

où $\delta_{Int}[(\theta_{seg})_k] = 1$ si $(\theta_{seg})_k \in Int$ et vaut 0 sinon.

Afin d'évaluer l'impact de la consigne *Taillemax* sur la description des branches courbes, il a été choisi d'étudier une image-test d'un arc de cercle (figure 4.7).

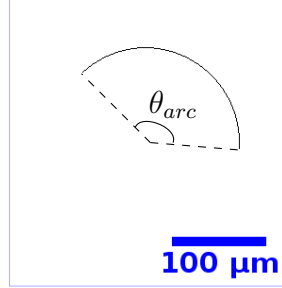
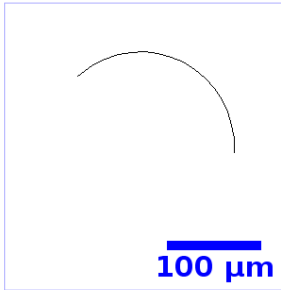


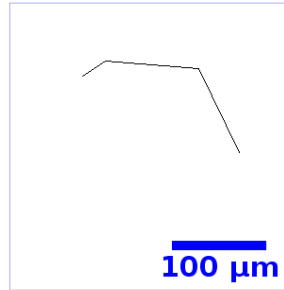
FIGURE 4.7. – Cas-test étudié avec une résolution spatiale de $1 \mu m/pix$ ($l_{tot,th} = 237,37 \mu m$)

La figure 4.7 a été obtenue en traçant un arc de cercle de rayon $r = 100 \mu m$ avec un secteur angulaire³ $\theta_{arc} = 136^\circ$. La longueur théorique totale $l_{tot,th}$ de la branche présente sur la figure 4.7 vaut : $l_{tot} = 2\pi r \frac{\theta_{arc}}{360} = 237,37 \mu m$.

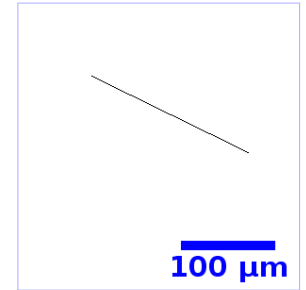
Nous avons choisi d'évaluer l'impact de *Taillemax* sur la longueur totale l_{tot} estimée avec le plug-in Crackcut en étudiant le cas-test présenté sur la figure 4.7. Les figures 4.8 et 4.9 présentent les résultats obtenus pour trois valeurs de *Taillemax*.



(a) *Taillemax* = $10 \mu m$



(b) *Taillemax* = $100 \mu m$



(c) *Taillemax* = $200 \mu m$

FIGURE 4.8. – Évolution de la représentation en segments de droite de l'arc de cercle présenté sur la figure 4.7 en fonction de la consigne *Taillemax* (taille maximale du segment de droite élémentaire)

3. En notant C le centre du rayon caractérisant l'arc de cercle présenté sur la figure 4.7 et E_i avec $i \in \{1, 2\}$ les deux extrémités de cet arc, le secteur angulaire θ_{arc} caractérise l'angle entre les segments CE_1 et CE_2 .

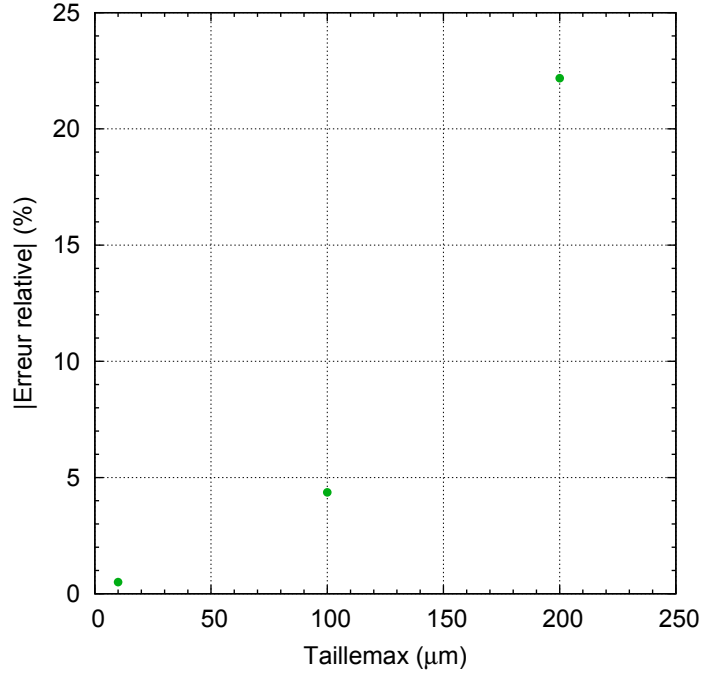


FIGURE 4.9. – Impact de *Taillemax* sur l’estimation de la longueur de l’arc de cercle

L’erreur relative entre la longueur théorique $l_{tot,th}$ de l’arc de cercle présenté sur la figure 4.7 et la longueur $l_{tot}(Taillemax)$ évaluée pour une décomposition en segments de droite avec une consigne *Taillemax* donnée est calculée de la façon suivante :

$$|Erreur\ relative| = \frac{|l_{tot}(Taillemax) - l_{tot,th}|}{l_{tot,th}} \quad (4.46)$$

et vaut 0 lorsque la longueur l_{tot} évaluée par le plug-in Crackcut est égale à la longueur théorique $l_{tot,th}$ de l’arc de cercle étudié.

Nous avons choisi dans cette étude de considérer des consignes *Taillemax* supérieures ou égales à 10 pix (soit ici $10\ \mu\text{m}$) afin de s’assurer de ne pas biaiser l’évaluation de l_{tot} du fait de la discrétisation de l’image numérique en pixels.

La consigne *Taillemax* est donc directement reliée à l’échelle d’analyse (niveau de description utilisée pour décrire les objets) à laquelle les objets sont décrits. En effet, la figure 4.8 montre que plus la taille maximale *Taillemax* du segment de droite élémentaire diminue et plus la description donnée par le plug-in Crackcut se rapproche de celle de l’image étudiée (figure 4.7) : l’échelle d’analyse est donc fine. Lorsque la consigne *Taillemax* se rapproche de la taille réelle de l’objet, les segments de droite donnent une description globale de l’objet (figure 4.8c) : l’objet étudié est représenté par un seul segment de droite dont les extrémités sont celles de l’objet étudié et l’échelle d’analyse est plus grossière.

Ainsi, plus l’échelle d’analyse est petite et plus la longueur évaluée par le plug-in Crackcut tend vers la longueur théorique $l_{tot,th}$ (figure 4.9).

Le développement du plug-in de traitement d’images Crackcut et la compréhension de la signification de sa consigne *Taillemax* permet par la suite de caractériser les paramètres descripteurs

2D nécessaires (section 4.2.2) afin d'alimenter le modèle développé (équation 4.13).

4.2.3. Caractérisation des paramètres descripteurs associés au modèle développé

Pour rappel, le modèle développé (équation 4.13) dépend de deux paramètres descripteurs qui sont :

- la densité de fissures ρ_{3D} ,
- le tenseur \mathbf{B}_{3D} associé à la distribution angulaire des fissures.

L'estimation de ces paramètres à partir de coupes obtenues par microscopie optique à l'aide du plug-in Crackcut est présentée dans cette section.

4.2.3.1. Évaluation de la densité de fissures

L'estimation de la densité de fissures ρ_{3D} à partir de coupes (équation 4.27) dépend de la surface totale S_{tot} des coupes étudiées, du nombre M et de la longueur totale l_{tot} des fissures.

La surface totale S_{tot} est ici la surface des images obtenues par microscopie optique (tableau 2.1).

Pour pouvoir approximer la longueur totale l_{tot} des squelettes des traces présents sur les coupes étudiées avec le plug-in Crackcut (section 4.2.2), il est nécessaire de représenter finement ces objets ce qui signifie qu'il faut utiliser une petite consigne $Taillemax$ (représentant la taille maximale du segment de droite élémentaire).

Afin d'éviter des problématiques liées à la discrétisation numérique des images et en utilisant la même logique utilisée dans la section 4.2.2, la consigne la plus petite utilisable pour les coupes des céramiques UO_2 obtenues par microscopie optique est de $15 \mu m$ (soit 10 pix pour une résolution de $1,52 \mu m/\text{pix}$).

La figure 4.10 présente la comparaison d'une image squelettisée caractéristique de la porosité d'assemblage et la description à l'aide de segments de droite qui en est faite par le plug-in Crackcut pour une consigne $Taillemax = 15 \mu m$.



(a) Image squelettisée caractéristique

(b) Description avec $Taillemax = 15 \mu m$

FIGURE 4.10. – Étude du choix de $Taillemax = 15 \mu m$ pour la description d'une image squelettisée caractéristique de la porosité d'assemblage

La figure 4.10 montre que l'utilisation de Crackcut avec $Taillemax = 15 \mu m$ permet d'obtenir une description satisfaisante des squelettes des traces présents sur la figure 4.10a conservant la distribution spatiale des objets observés. Pour toutes les autres coupes obtenues par microscopie optique, la qualité de la représentation des squelettes des traces avec $Taillemax = 15 \mu m$ est similaire à celle observée sur la figure 4.10.

Nous avons donc choisi, pour la suite de l'étude, de décrire les coupes étudiées à l'aide de segments de droite de longueur inférieure ou égale à $Taillemax = 15 \mu m$.

Afin d'évaluer la densité de fissures à partir de l'équation 4.27, il reste à définir le nombre M de traces de fissures présentes sur la coupe étudiée. Pour cela, de la même façon que dans la section 3.3.2, il est nécessaire de définir ce que signifie « représenter les squelettes des traces avec des traces de fissures ». Il existe différentes façons de représenter les squelettes des traces des pores d'assemblage à l'aide de traces de fissures et le nombre de traces présentes sur la coupe diffère suivant la représentation choisie. Les représentations choisies sont explicitées à partir de la figure 4.11 présentant un exemple caractéristique d'un squelette de trace de porosité d'assemblage.

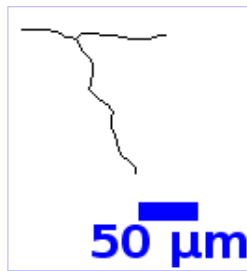


FIGURE 4.11. – Exemple caractéristique du squelette d'un pore d'assemblage

Ainsi, deux représentations des traces de fissures ont été étudiées :

- une première où chaque squelette de trace est représenté à l'aide d'une seule trace de fissure. Dans ce cas sur la figure 4.11, le nombre M de traces de fissures observées sur cette coupe vaut 1. Cette représentation sera appelée plus simplement par la suite représentation « trace ».
- une deuxième où chaque branche des squelettes de traces est représentée à l'aide d'une trace de fissure. Dans ce cas sur la figure 4.11, le nombre M de traces de fissures observées vaut 3. La visualisation de squelettes de traces interconnectés (comme sur la figure 4.11) correspond alors au croisement de plusieurs de ces traces de fissures. Cette représentation sera appelée par la suite représentation « branche ».

Pour une même longueur totale de fissures, ces deux représentations conduisent donc à une estimation différente du nombre de traces de fissures M (un facteur 3 dans l'exemple de la figure 4.11). La densité de fissures estimée à l'aide de la relation 4.27 sera donc sensiblement différente selon la représentation choisie.

Cependant, la représentation où chaque squelette de trace est représenté à l'aide d'une seule trace de fissures induit la modélisation de traces de fissures beaucoup plus longues que les objets observés sur les coupes. Les longueurs des barrières thermiques associées à cette représentation ne sont alors pas en adéquation avec celles associées aux squelettes de traces observés sur les

coupes des céramiques UO_2 . C'est pourquoi nous avons choisi par la suite d'étudier uniquement la représentation où chaque branche de squelettes de trace est représentée à l'aide d'une trace de fissure : cette représentation est notée par la suite « représentation branche ».

Étudions maintenant avec la figure 4.12 les fluctuations des densités de fissures ρ_{3D} évaluées sur deux échantillons d'un même lot de fabrication et en fonction de la position z d'une coupe normale à l'axe \mathbf{u}_z (pour plus de détails sur l'obtention de ces coupes, voir la section 2.2.1.1).

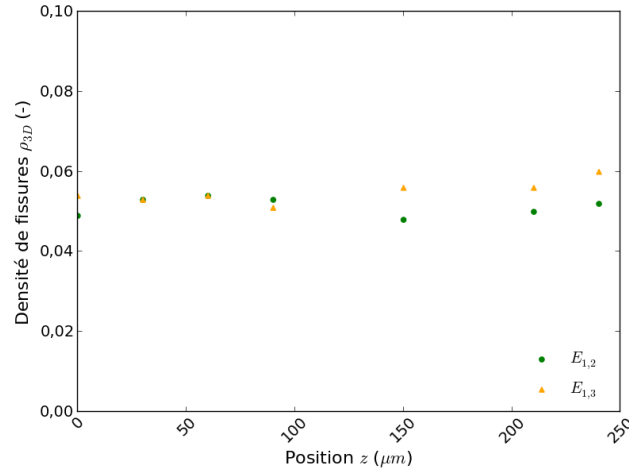


FIGURE 4.12. – Évolution de la densité de fissures ρ_{3D} avec la représentation « branche » en fonction de la coupe étudiée selon z sur les échantillons $E_{1,2}$ et $E_{1,3}$ d'un même lot de fabrication

On observe une faible fluctuation des densités de fissures évaluées autour d'une valeur moyenne qui ne dépend par ailleurs pas de la coupe étudiée. Pour l'ensemble des échantillons d'un même lot de fabrication, nous avons donc choisi d'évaluer les densités de fissures à partir d'une coupe unique sur un échantillon représentatif du lot auquel il appartient.

La moyenne $\bar{\rho}_{3D}$ et l'écart-type de la densité de fissures ρ_{3D} associé à la figure 4.12 valent respectivement 0,051 et 0,002. En supposant que la distribution d'occurrence associée à ρ_{3D} est uniforme sur la zone où sont extraites les coupes (coupes obtenues loin des bords de l'échantillon), l'incertitude $\Delta\rho_{3D}$ associée au lot 1 et à la position z de la coupe étudiée pour la représentation « branche » correspond à l'écart-type déterminé. Nous avons choisi de considérer que, pour toutes les céramiques, l'incertitude relative $\Delta\rho_{3D}/\rho_{3D}$ est identique et à partir de l'étude réalisée (figure 4.12), elle vaut 4% pour un intervalle de confiance de 95%.

4.2.3.2. Évaluation du tenseur associé à la distribution angulaire des fissures à l'aide de Crackcut

L'estimation des valeurs propres du tenseur \mathbf{B}'_{3D} associé à la distribution angulaire des fissures à partir des coupes obtenues par microscopie optique (équation 4.39) dépend du paramètre Δ (équation 4.37). Étant donné que l'orientation θ_{seg} des segments de droite décrivant la coupe étudiée est évaluée par Crackcut et afin de vérifier $\Delta \in [0, 1]$, nous avons choisi de caractériser

Δ comme :

$$\Delta = \sqrt{\frac{1}{M_{seg}} \sum_{k=0}^{M_{seg}} \cos(4(\theta_{seg})_k)} \quad (4.47)$$

où M_{seg} est le nombre de segments de droite permettant de décrire les squelettes des traces présents sur la coupe étudiée et $(\theta_{seg})_k$ l'angle associé au segment de droite k (défini sur la figure 4.6).

Le tableau 4.1 présente l'évaluation des valeurs propres du tenseur associé à la distribution angulaire des fissures pour différentes céramiques UO_2 couvrant le domaine d'étude en termes de densité de fissures $\rho_{3D} \in [0,009 ; 0,109]$.

Échantillon		E_2	E_{11}	E_4
ρ_{3D} (-)	Représentation « branche »	0,109	0,053	0,022
Paramètre Δ (-)		0,11	0,17	0,18
$B'_{3D\perp}$ (-)		0,308	0,293	0,291
$B'_{3D//}$ (-)		0,38	0,41	0,42

TABLEAU 4.1. – Évaluation des valeurs propres du tenseur \mathbf{B}'_{3D} pour des céramiques UO_2

Les valeurs propres du tenseur \mathbf{B}_{3D} associé à la distribution angulaire des fissures varient peu pour des céramiques UO_2 représentatives du domaine d'étude. C'est pourquoi nous avons choisi de les considérer par la suite comme constantes au premier ordre pour l'ensemble des céramiques du domaine d'étude.

À partir du tableau 4.1 et en considérant l'incertitude des valeurs propres du tenseur \mathbf{B}_{3D} comme correspondant à l'écart-type associé aux valeurs reportées dans ce tableau 4.1, nous obtenons :

- $B'_{3D\perp} = (0,297 \pm 0,009)$,
- $B'_{3D//} = (0,41 \pm 0,02)$.

Les paramètres Δ évalués pour les céramiques du tableau 4.1 sont proches de 0. Or, la section 4.2.1.2 a montré que $\Delta = 0$ correspond au cas où l'orientation des fissures est aléatoire dans le matériau. En notant $B'_{3D,iso}$ la valeur du tenseur \mathbf{B}'_{3D} lorsque les fissures sont orientées aléatoirement et comme $B'_{3D,iso} = \frac{1}{3}$, les écarts relatifs en absolu de $B'_{3D,iso}$ aux valeurs propres moyennes évaluées sur les céramiques UO_2 valent 11 % pour $B'_{3D\perp}$ et 22 % pour $B'_{3D//}$. Cela signifie donc que les microstructures obtenues possèdent une distribution angulaire de squelettes des traces globalement isotrope avec un léger alignement des normales aux plans des fissures selon l'axe \mathbf{u}_y . Nous avons donc montré que l'étape de pressage uniaxial exercé sur les céramiques UO_2 lors de la fabrication (section 2.1.1) induit seulement une faible anisotropie de la distribution angulaire associée aux pores d'assemblage.

Les paramètres descripteurs du modèle proposé (équation 4.13) ont été caractérisés. Il reste à évaluer la représentativité de ce modèle.

4.3. Étude de validité et proposition d'une amélioration du modèle

4.3.1. Effet de la distribution angulaire des fissures sur la conductivité thermique effective

Le modèle proposé (équation 4.13) a été utilisé afin de prédire l'impact de la porosité d'assemblage sur la conductivité des céramiques UO_2 en supposant négligeables les interactions entre les fissures. Les paramètres descripteurs de ce modèle (densité de fissures ρ_{3D} et tenseur \mathbf{B}_{3D} associé à la distribution angulaire des fissures) ont été caractérisés dans la section 4.2. L'incertitude maximale $\Delta\kappa_{a,y}$, associée à la dégradation thermique $\kappa_{a,y}$ liée à la porosité d'assemblage selon l'axe \mathbf{u}_y et qui est estimée à l'aide du modèle proposé (équation 4.13), s'exprime de la façon suivante :

$$\Delta\kappa_{a,y} = \frac{8}{3} (B'_{3D//} \Delta\rho_{3D} + \rho_{3D} \Delta B'_{3D//}) \quad (4.48)$$

où $\Delta\rho_{3D}$ et $\Delta B'_{3D//}$ sont respectivement les écarts-types associés à la densité de fissures ρ_{3D} (section 4.2.3.1) et à la valeur propre $B'_{3D//}$ du tenseur associé à la distribution angulaire 3D des fissures (section 4.2.3.2).

Le modèle proposé (équation 4.13) est comparé sur la figure 4.13 au cas où toutes les normales aux plans des fissures sont alignées selon \mathbf{u}_y (équation 4.15) et au cas où la distribution angulaire des fissures est aléatoire (équation 4.16).

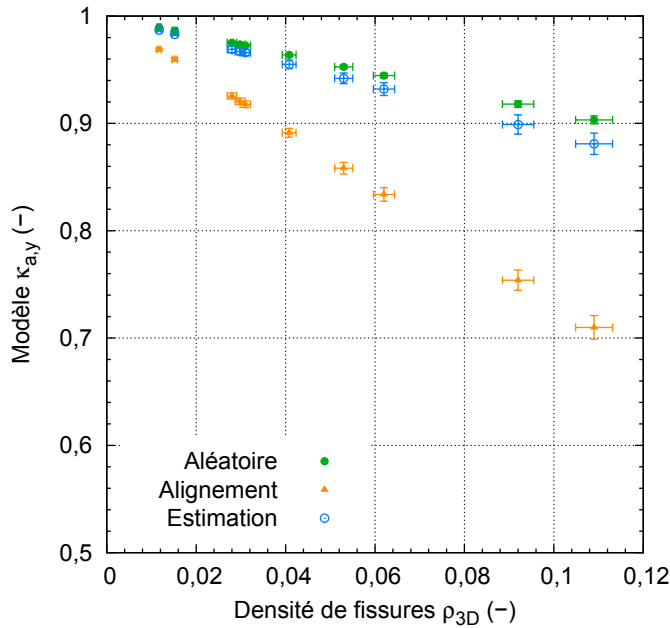


FIGURE 4.13. – Impact de l'orientation des fissures sur le modèle proposé (équation 4.13) selon \mathbf{u}_y

Les incertitudes maximales de ces deux modèles (équations 4.15 et 4.16) valent respectivement $\frac{8}{3} \Delta\rho_{3D}$ et $\frac{8}{9} \Delta\rho_{3D}$. Les incertitudes présentées sur la figure 4.13 correspondent à un intervalle de confiance de 95%.

Sur la figure 4.13, notons que l'impact de la porosité d'assemblage du modèle proposé (« Estimation ») est plus proche du cas d'une distribution angulaire aléatoire avec un écart relatif

allant jusqu'à 2,5 % (« Aléatoire ») que du cas où toutes les normales aux plans des fissures sont alignées selon \mathbf{u}_y (« Alignement ») avec un écart relatif allant jusqu'à 20 %. Ce résultat est en cohérence avec les résultats de la section 4.2.3.2 où nous avons observé une faible orientation des pores d'assemblage sur les coupes étudiées.

4.3.2. Retour sur le modèle donnant l'impact de la porosité occluse sur la conductivité thermique

Les mesures de diffusivité thermique α_y qui ont été réalisées par méthode Flash à 50 °C avec un chargement thermique selon l'axe \mathbf{u}_y sur les échantillons du domaine d'étude (section 2.3.1) sont utilisées comme points de validation pour le modèle proposé. L'impact $\kappa_{a,y}$ de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique associé aux mesures de diffusivité thermique est découplé de celui de la porosité occluse à l'aide de l'équation 3.21.

Dans la section 3.2.3, nous avons proposé un modèle pour l'impact $\kappa_{occ,y}$ de la porosité occluse sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 en considérant des échantillons présentant des fractions volumiques de porosité d'assemblage (identifiée à la porosité ouverte) faibles. Cependant, dans ce chapitre 4, nous avons choisi de représenter les pores d'assemblage à l'aide de fissures et le paramètre associé à la quantité de ces objets surfaciques dans le matériau n'est pas la fraction volumique mais la densité de fissures.

Pour rester en cohérence avec ce choix de représentation, nous proposons de compléter ci-dessous la méthodologie présentée dans la section 3.2.3 en utilisant cette fois la densité de fissures des échantillons comme facteur permettant de discriminer les céramiques présentant peu de porosité d'assemblage.

Afin de s'assurer que la majorité des pores dans les céramiques étudiées sont des pores occlus, nous avons choisi de nous intéresser uniquement aux céramiques UO_2 ayant une densité de fissures telle que $\rho_{3D} \leq 0,02$. Comme aucune céramique UO_2 ayant une fraction de porosité ouverte nulle n'a été évaluée par imagerie en vue de déterminer sa densité de fissures, nous avons fait l'hypothèse que ces échantillons présentent une densité de fissures nulle.

Ainsi, 33 échantillons sur les 94 du domaine d'étude ont été sélectionnés contre 29 dans la section 3.2.3. Parmi ces échantillons, 24 échantillons utilisés dans la section 3.2.3 ont été considérés ce qui signifie que :

- 5 ont été rejetés du fait qu'ils présentent des densités de fissures supérieures à 0,02.
- 9 échantillons initialement rejetés dans la section 3.2.3 ont été retenus ici. En effet, bien qu'ayant une fraction de porosité ouverte supérieure à 1 %, leur densité de fissures (qui est le nouveau paramètre retenu ici) est inférieure à 0,02.

La figure 4.14 présente l'influence de la porosité occluse sur la diffusivité thermique à 50 °C des céramiques UO_2 retenues.

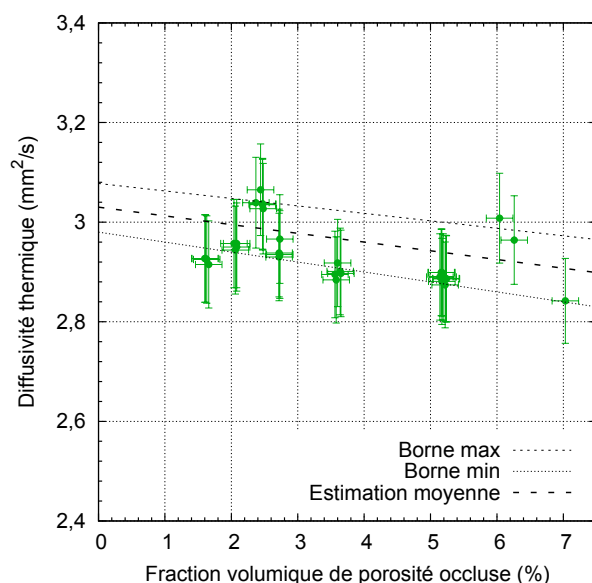


FIGURE 4.14. – Impact de la porosité occluse sur la diffusivité thermique des céramiques telles que $\rho_{3D} \leq 0,02$

Nous avons choisi de borner les résultats obtenus sur la figure 4.14 et les bornes ont été déterminées de façon à ce que l'erreur relative entre les points expérimentaux et chaque borne soit inférieure à 0,9 %. La borne maximale obtenue lors de l'étude présentée dans la section 3.2.3 reste inchangée. Les paramètres de la borne minimale (équation 3.17) et les écarts-types associés valent pour la diffusivité thermique des céramiques 100 % denses $\alpha_{100\%} = (2,98 \pm 0,01) \text{ mm}^2/\text{s}$ à 50 °C et la pente associée à la dégradation de la conductivité thermique par la porosité occluse $\beta_{occ} = (2,6 \pm 0,2)$. En utilisant l'équation 3.18, une estimation moyenne par rapport aux deux bornes a été évaluée et ces paramètres valent $\alpha_{100\%} = (3,03 \pm 0,02) \text{ mm}^2/\text{s}$ à 50 °C et $\beta_{occ} = (2,6 \pm 0,3)$. La pente de ce nouveau modèle est plus faible que celle du modèle présenté dans la section 3.2.3. Pour le reste de l'étude, nous utiliserons comme modèle pour l'impact $\kappa_{occ,y}$ de la porosité occluse le modèle dont la forme est présentée dans l'équation 3.2 avec les paramètres obtenus à partir de l'estimation moyenne présentée sur la figure 4.14.

4.3.3. Étude de la représentativité du modèle proposé associé à la porosité d'assemblage

Les incertitudes maximales de l'impact $\kappa_{a,y}$ de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique associées aux mesures de diffusivité thermique sont réévaluées à partir de l'équation 3.22 et des nouvelles valeurs de $\alpha_{100\%}$ et β_{occ} et des écarts-types associés (section 4.3.2).

Afin d'évaluer la représentativité du modèle proposé (équation 4.13), la figure 4.15 présente la comparaison de ce modèle estimant l'impact $\kappa_{a,y}$ de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 au modèle associé aux mesures par méthode Flash (équation 3.21).

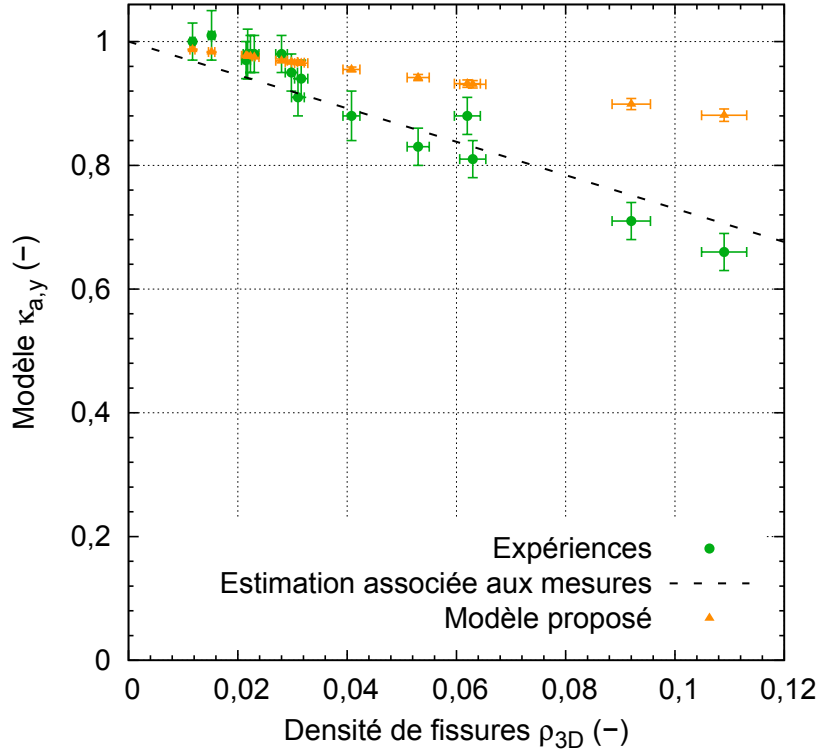


FIGURE 4.15. – Validation du modèle proposé (équation 4.13) en le comparant au modèle associé aux mesures de diffusivité thermique (équation 3.21)

Nous avons choisi de présenter des incertitudes sur la figure 4.15 pour un intervalle de confiance de 95 %.

Notons que les points associés aux mesures expérimentales s'alignent lorsqu'ils sont classés par ordre croissant de densité de fissures ρ_{3D} (figure 4.15) à l'exception de deux échantillons à $\rho_{3D} = 0,062$. L'échantillon à $\rho_{3D} = 0,062$ et $\kappa_{a,y} = 0,84$ correspond à la céramique E_3 et plusieurs coupes ont été réalisées sur cet échantillon mais elles présentent toutes de larges pores d'assemblage qui paraissent induits par des arrachements. Il semble donc que la valeur de sa densité de fissures est biaisée par les arrachements et devrait être plus petite. Une étude par imagerie 3D permettrait de confirmer que les larges pores observés sur l'échantillon E_3 sont bien induits par des arrachements.

Sachant qu'en théorie $\kappa_{a,y}(\rho_{3D} = 0) = 1$, une régression linéaire à l'aide d'une méthode des moindres carrés sur les points de la figure 4.15 associés aux mesures expérimentales a été réalisée. Le modèle obtenu est de la forme :

$$\kappa_{a,y} = 1 - (2,7 \pm \Delta m) \rho_{3D} \quad \text{avec} \quad r^2 = 0,84 \quad (4.49)$$

où Δm est l'écart-type associé à la pente de l'équation 4.49 et vaut $\Delta m = 0,2$.

Soulignons de plus qu'aucune corrélation aussi nette n'avait pu être établie lorsque les points expérimentaux étaient rangés en fonction de la fraction volumique de porosité ouverte (figure 3.19). L'apparition d'un classement par densité de fissures ρ_{3D} des microstructures sur la figure 4.15 permet de discriminer les microstructures des céramiques UO_2 contrairement à une représentation à l'aide d'inclusions sphéroïdales. La densité de fissures impacte donc bien

à l'ordre 1 la conductivité thermique des céramiques UO_2 .

De la même façon que dans la section 3.3.3, des échantillons présentent des valeurs de $\kappa_{a,y}$ supérieures à 1 bien que cela ne soit pas possible en théorie et même si la modification du modèle de porosité occluse (section 4.3.2) a permis d'améliorer très légèrement les résultats obtenus. Comme expliqué précédemment dans la section 3.3.3, il est nécessaire à ce stade d'étudier plus en détail la porosité occluse afin d'obtenir un modèle plus représentatif. Pour cela, en plus des perspectives présentées dans le chapitre 3, nous envisageons :

- de caractériser par microscopie optique la microstructure des céramiques ne présentant que de la porosité fermée. Comme la densité de fissures joue un rôle clé sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 , il serait intéressant de caractériser la densité de fissures des microstructures qui ne présentent pas de porosité ouverte.
- fabriquer de nouveaux échantillons en visant des valeurs de densité de fissures ρ_{3D} faibles pour pouvoir améliorer la représentativité du modèle qui sera proposé et le rendre ainsi plus robuste.

Enfin, notons un écart relatif modèle/expérience allant jusqu'à 33 % sur l'ensemble du domaine d'étude (figure 4.15). Le modèle associé aux fissures orientées (équation 4.13) permet donc d'avoir une meilleure prédiction de l'impact de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique que les modèles associés aux inclusions sphéroïdales (équations 3.20 et 3.19) où l'écart modèle/expérience va jusqu'à 42 % (figure 3.19). Néanmoins, l'écart modèle/expérience reste encore trop élevé pour considérer que le modèle proposé (équation 4.13) soit représentatif du comportement des céramiques UO_2 .

Afin de diminuer l'écart relatif modèle/expérience (figure 4.15), nous avons choisi d'étudier si la répartition spatiale des fissures a un impact plus important que leur distribution angulaire sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 (section 4.3.4).

4.3.4. Estimation de l'impact de la répartition spatiale des pores d'assemblage à l'aide d'une étude FFT 2D

L'objectif de cette section est d'estimer par FFT 2D l'effet de la répartition spatiale des fissures sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 .

Pour cela, nous étudions la réponse thermique associée à des microstructures réelles et la comparons à celle de microstructures synthétiques représentatives de fissures réparties de façon aléatoire dans l'espace. Nous considérons comme précédemment deux cas de distribution angulaire des fissures : une distribution aléatoire et un alignement de toutes les normales aux plans des fissures selon \mathbf{u}_y .

Comme nous ne disposons que de coupes sur des céramiques UO_2 représentatives du réseau de la porosité d'assemblage, cette étude a été menée en 2D en assimilant les squelettes des traces observés comme des fissures-rubans 2D. La réponse thermique de ces microstructures est calculée par FFT.

4.3.4.1. Microstructures synthétiques 2D représentatives des fissures orientées

La figure 4.16 présente une fissure-ruban orientée sur une coupe.

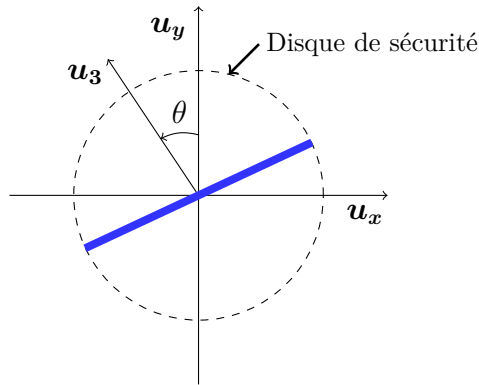


FIGURE 4.16. – Schéma explicatif de l'orientation d'une fissure-ruban (en bleu) dans un plan $(\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_y)$

L'angle θ présenté sur la figure 4.16 correspond à l'angle entre la normale au plan de la fissure-ruban 2D \mathbf{u}_3 et l'axe \mathbf{u}_y et représente l'orientation de la fissure-ruban 2D dans le plan $(\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_y)$. En notant l_{obj} la longueur de la fissure-ruban 2D, le disque de sécurité associé à cette fissure-ruban 2D (figure 4.16) correspond au disque ayant pour centre le point médian de la fissure-ruban 2D et de rayon $(l_{obj}/2)$.

Il a été choisi de générer des microstructures synthétiques telles que :

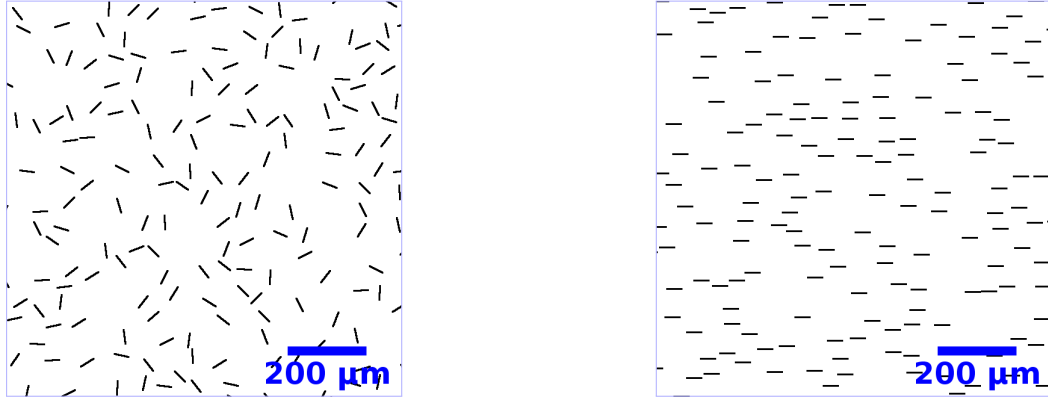
- l'épaisseur des fissures-rubans 2D soit de 1 pixel afin de s'assurer d'avoir les objets les plus fins possibles et ainsi se rapprocher d'une représentation fissures.
- la surface de l'image et la résolution spatiale soient identiques aux propriétés des coupes des céramiques UO_2 .
- le nombre M des fissures-rubans 2D soit identique à celui évalué sur la coupe de la céramique UO_2 à laquelle la microstructure synthétique sera par la suite comparée.
- la longueur l_{obj} de chaque fissure-ruban 2D des coupes générées soit égale à la longueur moyenne des squelettes des traces estimée à partir des coupes de la microstructure réelle ($l_{obj} = l_{tot}/M$).

De cette façon, les microstructures synthétiques générées présentent la même densité de fissures que les microstructures réelles.

Enfin, les réseaux de fissures-rubans orientées et réparties de façon aléatoire ont été générés suivant le protocole suivant :

- Les centres des disques de sécurité sont tout d'abord générés aléatoirement à l'aide d'un schéma RSA (section 1.4.3.2). Une distance correspondant à la distance entre deux centres de sphères de sécurité (notée r_{rep}) a été prise en compte. Aucun disque de sécurité ne peut être à une distance bord-à-bord d'un autre disque de sécurité inférieure à r_{rep} ce qui assure la non-interaction des fissures-rubans 2D soit $r_{rep} > 0$.
- L'angle θ associé à l'orientation des fissures-rubans 2D a été tiré de façon aléatoire dans le cas de la distribution aléatoire des fissures (figure 4.17a). Dans le cas de l'alignement de toutes les normales aux fissures-rubans 2D selon l'axe \mathbf{u}_y , l'angle θ de ces squelettes vaut 0 (figure 4.17b).

La figure 4.17 présente deux exemples de microstructures synthétiques générées pour une densité de fissures $\rho_{3D} \approx 0,053$ (afin de les comparer par la suite à la céramique E_{11} ayant aussi une densité de fissures de 0,053).



(a) Distribution aléatoire 2D ($\rho_{3D} = 0,053$)

(b) Alignement 2D des fissures ($\rho_{3D} = 0,054$)

FIGURE 4.17. – Zooms sur les squelettes dilatés à l’aide d’un disque de rayon de 1 pixel des microstructures synthétique générées

Les conditions de génération des deux microstructures de la figure 4.17 et les densités de fissures évaluées sur ces microstructures sont présentées dans le tableau 4.2.

Microstructure synthétique		Figure 4.17a	Figure 4.17b
Génération	Surface S_{tot} de l’image (mm^2)		22,4
	Résolution de l’image ($\mu m/pix$)		1,52
	Distance de répulsion r_{rep} (μm)		1,45
	Nombre M de fissures-rubans 2D (–)		3497
	Longueur totale l_{tot} des fissures-rubans 2D (mm)		127,06
	Distribution angulaire des fissures-rubans 2D	Aléatoire	$\theta = 0^\circ$ (figure 4.16)
Densité de fissures 2D ρ_{2D} (–)		0,051	0,052

TABLEAU 4.2. – Conditions de génération et évaluation des densités de fissures associées aux microstructures de la figure 4.17

Soulignons que la distance de répulsion r_{rep} est légèrement inférieure à la résolution de l’image. Pour plus de visibilité, les images de la figure 4.17 ont été dilatées à l’aide d’un élément structurant de type disque ayant un rayon de 1 pixel (soit $1,52 \mu m$). La fusion de certaines fissures-rubans sur la figure 4.17b est donc uniquement induite par le choix de visualisation réalisé sur la figure 4.17.

Le tableau 4.2 montre que seule la distribution angulaire des fissures-rubans 2D diffère sur les deux microstructures synthétiques générées. Les densités de fissures 2D ρ_{2D} ont été évaluées avec l’équation 4.4 en prenant comme rayon de la section d’une fissure-ruban : $a_i = \frac{l_{tot}}{2M}$. La légère différence de densité de fissures ρ_{2D} est induite par les approximations réalisées lors du

positionnement des fissures-rubans 2D sur l'image qui est discrétisée en pixels. Ces approximations induisent de légères variations sur les longueurs l_{tot} évaluées sur ces images par rapport à la consigne l_{tot} d'entrée ce qui impacte la densité de fissures estimée.

Afin d'évaluer si le procédé de génération des microstructures synthétiques permet d'obtenir les réseaux de fissures-rubans 2D souhaités, les fonctions W_{2D} de distribution angulaire 2D (équation 4.45) associées à ces microstructures (figure 4.17) ont été évaluées à l'aide du plug-in Crackcut et sont présentées sur la figure 4.18.

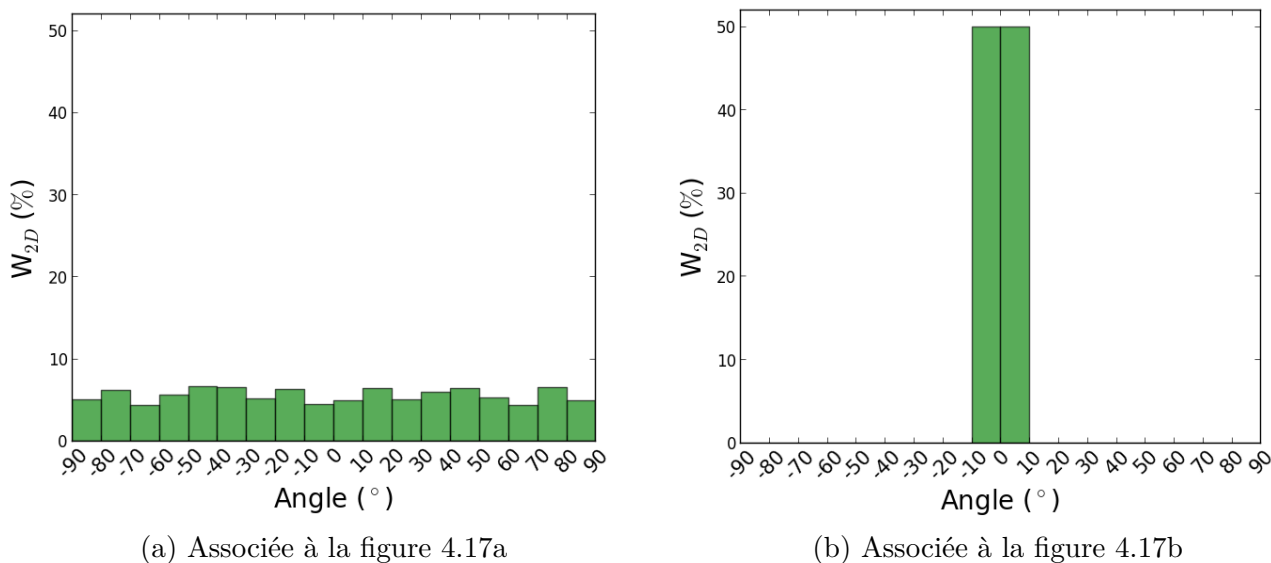


FIGURE 4.18. – Fonctions de distribution d'orientation 2D associées aux microstructures synthétiques 2D présentées sur la figure 4.17

La figure 4.18b montre que 100 % des longueurs présentes sur l'image possèdent une orientation comprise entre $[-10, 10]^\circ$ ce qui est cohérent avec notre souhait de générer sur la figure 4.17b un milieu dans lequel des normales aux plans des fissures-rubans sont toutes alignées et orientées à 0° . La figure 4.16 montre que $\theta = 0^\circ$ correspond à un alignement avec l'axe \mathbf{u}_y .

La figure 4.18a montre que toutes les classes d'angle présentent une intensité presque constante ce qui confirme que la figure 4.17a correspond bien à un milieu dans lequel des fissures-rubans possèdent une distribution angulaire aléatoire. La figure 4.19 permet de quantifier l'écart de la microstructure 2D générée par rapport à celle présentant une distribution aléatoire idéale.

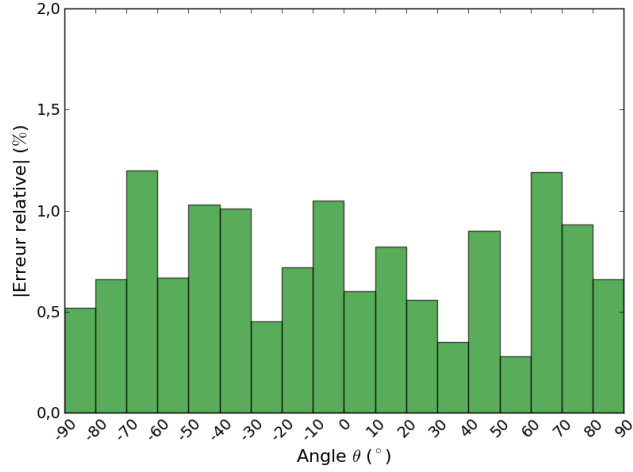


FIGURE 4.19. – Erreur absolue de l’histogramme de la microstructure générée (figure 4.18b) par rapport à celui de la microstructure idéale où les pores sont distribués de façon aléatoire

En effet, dans le cas d’une distribution angulaire aléatoire idéale pour une discrétisation en pas de 10° du domaine angulaire $\theta \in [-90, 90]^\circ$, chaque classe d’angle Int est telle que $W_{2D}(Int) = \frac{100}{18}$. D’où, l’erreur absolue pour une classe Int est évaluée comme :

$$|Erreur\ absolue|(Int) = \left| W_{2D}(Int) - \frac{100}{18} \right| \quad (4.50)$$

Lorsque l’erreur absolue tend vers 0 pour toutes les classes d’angles alors la microstructure tend vers celle d’une distribution aléatoire idéale de fissure.

La figure 4.19 montre qu’il y a un écart absolu de 1% entre la distribution angulaire 2D de la figure 4.17a et celle de la microstructure idéale où les fissures-rubans 2D sont distribuées aléatoirement. Cet écart négligeable permet d’affirmer que la distribution angulaire des fissures-rubans 2D de la figure 4.17a est aléatoire.

Les microstructures synthétiques (figures 4.17a et 4.17b) possèdent des distributions angulaires de fissures-rubans 2D qui peuvent donc être assimilées à celles des microstructures idéales souhaitées (distribution aléatoire et alignement de toutes les fissures-rubans 2D suivant une direction).

Afin d’évaluer si les interactions entre les fissures-rubans 2D peuvent être négligées, nous avons choisi de simuler le comportement thermique des microstructures synthétiques générées (figures 4.17a et 4.17b) afin d’étudier si les réponses thermiques de ces microstructures peuvent être prédites à l’aide de l’un des modèles 2D de type « milieu dilué » suivants.

En notant $\mathbf{u}_1(\theta)$ le vecteur 2D normal à l’ellipse représentant une fissure, le tenseur de localisation d’une fissure-ruban dans le plan $(\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_y)$ s’obtient à partir de la relation 3.7 pour un rapport des coefficients de conductivité thermique τ égal à 0 et lorsque le facteur de forme

de l'ellipse représentant la fissure tend vers 0 [Par16] :

$$\mathbf{A}_{2D}(\theta) = \mathbf{I}_{2D} + \frac{1}{\omega_{2D}} \mathbf{u}_1(\theta) \otimes \mathbf{u}_1(\theta) \quad (4.51)$$

où, pour rappel, le vecteur $\mathbf{u}_{2D}(\theta)$ s'exprime comme : $\mathbf{u}_1(\theta) = \sin \theta \mathbf{u}_x + \cos \theta \mathbf{u}_y$.

En exprimant le tenseur de conductivité thermique effectif avec la relation 3.9 dans l'approximation $\tau = 0$, on obtient : $\boldsymbol{\lambda}_{eq} = \lambda_m (\mathbf{I}_{2D} - c_s \mathbf{A}_{2D}(\theta))$. De plus, en faisant tendre la fraction surfacique c_s des ellipses représentant les fissures et leur facteur de forme ω_{2D} vers 0, on fait apparaître la densité de fissures 2D ρ_{2D} (avec la relation 4.4) dans l'équation précédente qui devient :

$$\boldsymbol{\lambda}_{eq} = \lambda_m \left(\mathbf{I}_{2D} - \pi \rho_{2D} \int_0^\pi \mathbf{u}_1(\theta) \otimes \mathbf{u}_1(\theta) W_{2D}(\theta) d\theta \right) \quad (4.52)$$

Dans le cas des distributions angulaires extrêmes suivantes, on obtient :

— Distribution angulaire aléatoire des fissures-rubans 2D ($W_{2D}(\theta) = \frac{1}{\pi}$)

$$(\boldsymbol{\kappa}_a)_{2D} = \left(1 - \frac{\pi}{2} \rho_{2D} \right) \mathbf{I} \quad (4.53)$$

— Alignement de toutes les normales aux plans des fissures-rubans 2D dans la direction \mathbf{u}_y ($W_{2D}(\theta) = \delta(\theta)$)

$$(\boldsymbol{\kappa}_a)_{2D} = \mathbf{I} - \pi \rho_{2D} \mathbf{u}_y \otimes \mathbf{u}_y \quad (4.54)$$

La réponse thermique des microstructures synthétiques (représentées sur les figures 4.17a et 4.17b) a été évaluée par FFT. Les conditions de calcul sont présentées dans la section 2.3.3.2 et nous avons choisi de considérer la conductivité thermique des fissures-rubans 2D comme celle de l'air qui est le gaz contenu dans les pores d'assemblage à 50 °C (température d'étude), d'où $\lambda_a = 0,02777 W/(m K)$ [SL85].

Le tableau 4.3 présente les estimations de la conductivité thermique effective pour un chargement thermique selon \mathbf{u}_x et \mathbf{u}_y avec les modèles 2D (équations 4.53 et 4.15) et avec des simulations FFT réalisées sur les microstructures synthétiques dans les deux cas de distributions angulaires envisagées : distribution aléatoire (figure 4.17a) et alignement de toutes les normales aux plans des fissures-rubans 2D selon \mathbf{u}_y (figure 4.17b).

Microstructure synthétique		Figure 4.17a	Figure 4.17b
Densité de fissures ρ_{2D} (-)		0,051	0,052
Modèle théorique $(\boldsymbol{\kappa}_a)_{2D}$ (-)	Selon \mathbf{u}_x	0,92	1
	Selon \mathbf{u}_y		0,84
$(\boldsymbol{\kappa}_a)_{2D}$ évalué par FFT (-)	Selon \mathbf{u}_x	0,85	0,97
	Selon \mathbf{u}_y	0,85	0,77
Écart relatif modèle/FFT (%)	Selon \mathbf{u}_x	-8	-3
	Selon \mathbf{u}_y	-8	-9

TABLEAU 4.3. – Comparaison modèle/simulation sur les microstructures synthétiques 2D générées

Tout d'abord, notons que les réponses thermiques dans les directions \mathbf{u}_x et \mathbf{u}_y de la micro-

structure générée avec une distribution angulaire aléatoire de fissures-rubans 2D (figure 4.17a) sont comme attendues identiques.

Dans le cas des deux distributions angulaires étudiées dans le tableau 4.3 (distribution aléatoire et alignement de toutes les normales aux plans des fissures-rubans 2D selon \mathbf{u}_y), un écart relatif modèle/FFT allant en absolu jusqu'à 17% a été observé. Cet écart peut s'expliquer par le fait que les fissures-rubans 2D présentes dans cette microstructure possèdent une épaisseur non nulle afin d'éviter les problématiques de biais FFT associées à la discrétisation en pixels des images numériques (section 2.28). De ce fait, les objets présents sur la figure 4.17b ne sont pas strictement des fissures-rubans 2D ce qui induit une dégradation plus importante de la conductivité thermique contrairement à ce que prédisent les modèles « milieu dilué » 2D.

En conclusion, le protocole de génération des microstructures synthétiques présenté dans la section 4.2.3.1 a donc permis de modéliser deux réseaux de fissures-rubans 2D ayant la même densité de fissures 3D et dont la distribution angulaire est soit aléatoire (figure 4.17a) soit telle que toutes les normales aux plans des fissures-rubans 2D sont alignées selon l'axe \mathbf{u}_y (figure 4.17b).

La comparaison de ces microstructures synthétiques avec les images des coupes des céramiques d'étude doit permettre par la suite d'identifier le paramètre descripteur impactant au premier ordre la conductivité thermique.

4.3.4.2. Comparaison des microstructures synthétiques avec une céramique d'étude

Afin de s'assurer que la distribution angulaire des fissures est ou non le paramètre descripteur adéquat pour décrire la dégradation thermique évaluée sur les microstructures UO_2 , nous avons choisi de comparer le comportement thermique des microstructures synthétiques 2D associées à des fissures-rubans 2D réparties de façon aléatoire et orientées (figures 4.17a et 4.17b) avec celle de la coupe associée à la céramique E_{11} (observable sur la figure 4.17).

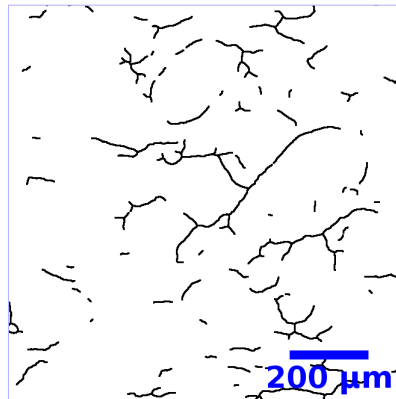


FIGURE 4.20. – Zoom sur le squelette dilaté à l'aide d'un disque d'un rayon de 1 pixel associé à la céramique E_{11} ($\rho_{3D} = 0,053$, $S_{tot} = 22,4 \text{ mm}^2$, $M = 3497$ et $l_{tot} = 127,06 \text{ mm}$)

Comme expliqué précédemment, les microstructures synthétiques associées aux fissures-rubans 2D distribuées de façon aléatoires ou toutes alignées (figures 4.17a et 4.17b) ont été générées de telle façon qu'elles présentent la même surface S_{tot} , le même nombre de fissures-rubans 2D M et

la même longueur totale de fissures-rubans 2D l_{tot} que la coupe de la céramique E_{11} (figure 4.20), ce qui conduit aux mêmes densités de fissures ρ_{3D} et ρ_{2D} pour ces trois microstructures.

Afin d'évaluer le comportement thermique associé à la coupe de la céramique E_{11} (figure 4.20), nous avons choisi de considérer que le squelette dilaté observé sur cette coupe est infini dans la direction perpendiculaire au plan de coupe.

Les conditions des calculs FFT réalisés sont identiques à celles utilisées lors des simulations présentées dans le tableau 4.3. Nous avons choisi d'évaluer la réponse thermique des microstructures étudiées avec un chargement thermique selon \mathbf{u}_y afin de reproduire la direction du flux thermique imposé sur les céramiques UO_2 lors des mesures de diffusivité thermique par méthode Flash (section 2.3.1).

Les cartes de flux normalisées de la microstructure de la céramique E_{11} (figure 4.20) et des microstructures synthétiques (figure 4.17) sont présentées sur la figure 4.21.

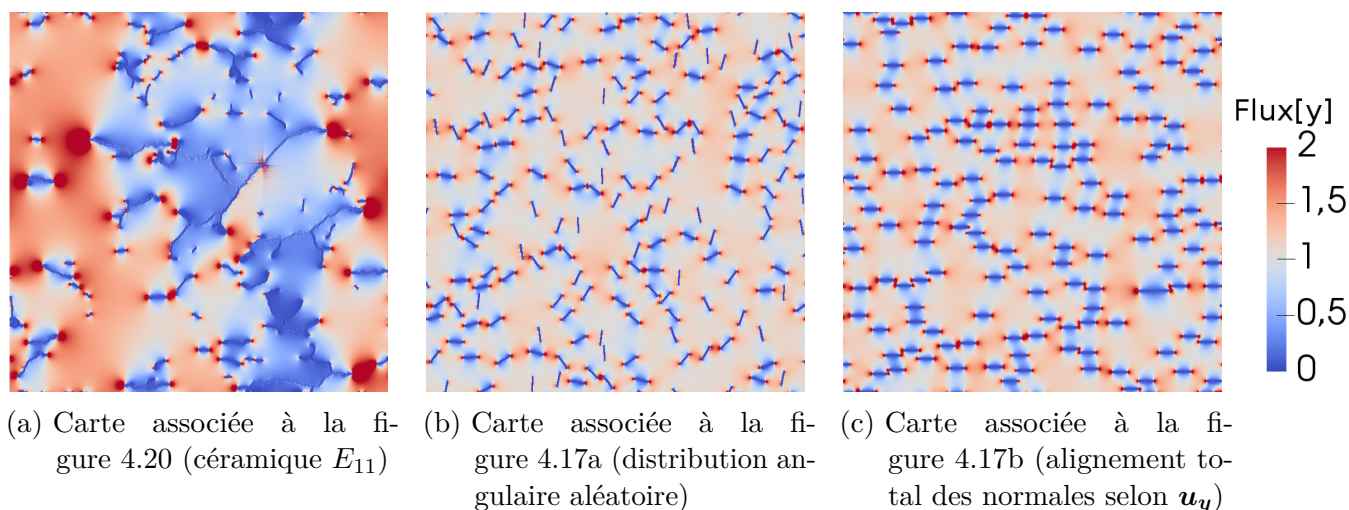


FIGURE 4.21. – Cartes de flux thermique normalisées par le flux moyen $\bar{\sigma}$ pour un chargement selon l'axe \mathbf{u}_y et associées aux microstructures présentées sur la figure 4.17

Les cartes de flux présentées sur la figure 4.21 ont été normalisées par le flux moyen $\bar{\sigma}$ de chaque carte et ces valeurs sont présentées dans le tableau 4.4.

Image associée	Figure 4.21a	Figure 4.21b	Figure 4.21c
Densité de fissures 3D ρ_{3D} (-)	0,053	0,053	0,054
Conductivité thermique effective selon l'axe \mathbf{u}_y ($W/(m K)$)	5,65	7,66	6,96

TABLEAU 4.4. – Caractéristiques associées aux cartes normalisées de flux thermique pour un chargement selon l'axe \mathbf{u}_y présentées sur la figure 4.21

Notons tout d'abord que la conductivité thermique effective selon \mathbf{u}_y associée à la coupe E_{11} est plus faible que celle obtenue avec la microstructure présentant des fissures-rubans 2D dont toutes les normales sont alignées selon \mathbf{u}_y qui correspond à la direction suivant laquelle est

imposé le chargement thermique (figure 4.21c). Or, l'alignement total des fissures-rubans 2D correspond à la distribution angulaire la plus pénalisante pour le flux thermique (section 4.1.3.2). Cela signifie que la description du milieu comme des fissures-rubans orientées ne peut pas prédire en 2D l'impact du squelette des traces des porosités d'assemblage sur la conductivité thermique. Étant donné que les études 2D sont plus pénalisantes que celles réalisées en 3D, les conclusions de cette étude 2D peuvent être extrapolées en 3D. Il n'est donc pas possible d'estimer l'effet de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 à l'aide d'une description des pores par des fissures orientées.

De plus, si l'on observe la carte normalisée de flux thermique associée à la céramique E_{11} (figure 4.21a), il est intéressant de noter la présence de larges régions bleutées caractéristiques de zones où le flux thermique passe peu ou pas, aussi appelées zones mortes (de flux). En observant simultanément la microstructure de la céramique E_{11} (figure 4.20) et sa carte associée (figure 4.21), il apparaît que ces zones mortes sont induites par la présence de squelettes de traces interconnectés de pores d'assemblage. Le réseau interconnecté des squelettes des traces des pores d'assemblage ainsi formé constitue un obstacle continu pour le flux induisant l'apparition de zones mortes directement derrière ces obstacles.

Sur les cartes normalisées de flux thermique associées aux microstructures synthétiques (figures 4.21b et 4.21c), des petites zones mortes sont observées autour des fissures qui sont orientées de façon défavorable par rapport au chargement thermique. Nous remarquons même des zones de percolation entre quelques unes de ces zones mortes. Cependant, ce phénomène est nettement moins marqué sur ces microstructures synthétiques que sur la carte associée à la céramique E_{11} .

La prise en compte de la distribution angulaire des squelettes des traces des pores d'assemblage ne permet donc pas d'estimer l'impact de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique et de modéliser les zones mortes observées. Bien que la distribution angulaire ait un impact sur la conductivité thermique effective d'un matériau, cet effet ne suffit pas à décrire l'influence de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 .

Cette comparaison montre plutôt que c'est le caractère interconnecté des pores qui induit la présence de zones mortes de flux. De plus, du fait de la répartition spatiale des pores d'assemblage autour des granulats UO_2 , il est fort probable que la taille des zones mortes soit corrélée à l'agencement spécifique des pores d'assemblage qui sont répartis autour des granulats UO_2 . Or, les microstructures synthétiques 2D générées prennent en compte la distribution angulaire des fissures-rubans (figures 4.21b et 4.21c) mais ne tiennent pas compte de cet agencement car les fissures-rubans sont réparties spatialement de façon aléatoire.

Nous avons donc choisi d'étudier par la suite l'influence de la répartition spatiale spécifique des pores d'assemblage sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 .

4.4. Conclusions du chapitre

Dans ce chapitre, nous avons :

- proposé un modèle analytique de type « milieu dilué » (équation 4.13) afin de modéliser l'impact de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique dans lequel les pores

d'assemblage sont modélisés à l'aide de fissures réparties de façon aléatoire dans une matrice et présentant une distribution angulaire donnée.

- développé une méthodologie de traitement d'images afin de caractériser les paramètres microstructuraux du modèle proposé à partir de l'analyse d'images de coupes de céramiques UO_2 obtenues par microscopie optique (section 4.2).
- montré que la densité de fissures est un paramètre impactant à l'ordre 1 la conductivité thermique des céramiques UO_2 (section 4.3.3).
- montré, à partir de l'étude de validité du modèle proposé (équation 4.13) et des simulations FFT 2D (section 4.3.4.2), que la prise en compte de la distribution angulaire associée aux squelettes des traces des pores d'assemblage ne suffit pas à décrire l'influence de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 .
- mis en évidence à l'aide d'une étude FFT 2D que la répartition spatiale des pores d'assemblage autour de granulats UO_2 impacte vraisemblablement la conductivité thermique des céramiques UO_2 .

Une perspective mise en avant dans ce chapitre est de fabriquer de nouveaux échantillons présentant des réseaux de pores majoritairement occlus, de les caractériser par microscopie afin d'évaluer leur densité de fissures et les utiliser afin d'améliorer la représentativité du modèle donnant l'influence de la porosité occluse si leur densité de fissures est telle que $\rho < 0,02$ (section 4.3.2).

Dans le chapitre suivant, l'objectif est de modéliser numériquement en 3D l'agencement des fissures autour de granulats afin d'évaluer si cette répartition particulière conduit en 3D à une interconnexion des fissures expliquant la forte dégradation spatiale de la conductivité thermique des céramiques UO_2 lorsque la densité de fissures associée à la porosité d'assemblage augmente.

5. Simulation de la répartition spatiale des pores d'assemblage modélisés par des fissures

Dans ce chapitre, nous présentons l'étude de l'influence de la répartition spatiale des pores d'assemblage autour de granulats UO_2 sur la conductivité thermique à l'aide de microstructures synthétiques représentatives des coupes des céramiques UO_2 obtenues par microscopie optique.

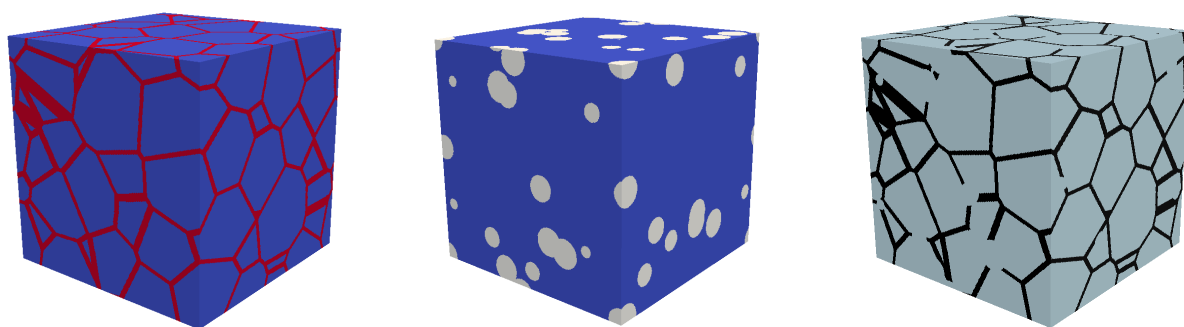
Le protocole de génération des microstructures synthétiques où des fissures sont réparties autour de granulats est présenté ainsi que les études de sensibilité aux différents paramètres d'entrée de ce protocole (sections 5.1 et 5.2). Ces études de sensibilité permettent de choisir des valeurs optimisées des différents paramètres d'entrée pour obtenir des microstructures 3D synthétiques représentatives de celles des céramiques UO_2 observées par microscopie optique. Le comportement thermique des microstructures synthétiques a été évalué par FFT et différents modèles donnant l'influence de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique de ces microstructures ont été proposés (section 5.3.1).

Les modèles ont été validés en les comparant à des calculs FFT 2D sur les coupes des céramiques UO_2 obtenues par microscopie optique ainsi qu'aux mesures obtenues par méthode Flash (section 5.3.2). Enfin, le modèle double-échelle donnant l'effet de la porosité totale sur la conductivité thermique proposé suite à cette étude est présenté et validé dans la section 5.3.3 par comparaison aux mesures par méthode Flash.

- Pour rappel, la base cartésienne de l'espace est notée $(\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_y, \mathbf{u}_z)$ et l'axe \mathbf{u}_y est parallèle :
- au flux thermique imposé lors des mesures Flash (section 2.3.1),
 - à l'axe de symétrie de révolution des céramiques UO_2 associé à l'étape de pressage uniaxial lors de leur fabrication (section 2.1.1),
 - à l'axe vertical des images 2D obtenues par microscopie optique (section 2.2.1.1).

Nous avons montré que la densité de fissures est un paramètre impactant à l'ordre 1 la conductivité thermique des céramiques UO_2 (section 4.3.3). De plus, l'effet de la répartition spatiale des pores d'assemblage autour des granulats UO_2 sur la conductivité thermique des céramiques a été démontré en 2D dans la section 4.3.4.

Afin de quantifier l'impact de la répartition spatiale, des microstructures synthétiques 3D présentant des fissures d'orientations aléatoires et réparties autour de cellules modélisant des granulats ont été générées à l'aide de l'application VER (section 2.3.3.1). La figure 5.1 illustre la méthodologie développée pour générer ce type de microstructures synthétiques 3D.



(a) Génération des joints de cellules (en rouge) et des cellules (en bleu) (b) Génération de sphères (en blanc) dans une matrice (en bleu) (c) Réseau de fissures (en noir) et matrice (en gris)

FIGURE 5.1. – Principe de génération des microstructures synthétiques 3D

Le procédé de génération du réseau de fissures réparties autour de cellules est constitué de deux étapes :

1. Le réseau de joints de cellules est généré dans un volume V_{tot} de résolution spatiale Res à l'aide d'une tessellation de Voronoï (figure 5.1a).

Les germes de Voronoï sont distribués suivant un schéma RSA (section 1.4.3.2) et N_V cellules de Voronoï de rayon r_V identique sont générées. Les joints des cellules de Voronoï (appelés par la suite « joints de cellules ») sont obtenus par érosion de chaque côté des arêtes des cellules de Voronoï. La microstructure obtenue est alors constituée de N_V cellules de rayon $(r_V - e_p)$ et d'un réseau interconnecté de joints de cellules d'épaisseur e_p . Plus de détails sur cette étape sont donnés dans la section 5.1.

2. Un ensemble de N_S sphères de même rayon r_S est réparti de façon aléatoire dans le volume V_{tot} de résolution spatiale Res (figure 5.1b). Le réseau interconnecté de fissures est généré par intersection du réseau de joints de cellules et de l'ensemble de sphères générées (figure 5.1c).

Le réseau de fissures obtenu dépend de la définition de l'intersection de ces deux ensembles (suivant si elle correspond à l'ensemble des obstacles au flux thermique ou à celui des ponts thermiques). Sur l'exemple présenté sur la figure 5.1c, cette intersection est définie comme l'ensemble des ponts thermiques. Étant donné que les sphères générées permettent de délimiter les zones associées aux obstacles ou aux ponts thermiques, elles seront appelées par la suite « sphères délimitantes ». Plus de détails sur cette étape sont donnés dans la section 5.2.

La figure 5.1c illustre la répartition spatiale des fissures autour des cellules de Voronoï et le fait qu'elles forment un réseau 3D interconnecté. Même pour des fissures parfaitement isolantes, le flux de chaleur pourra néanmoins passer entre deux cellules grâce aux ponts inter-cellules visibles sur cette même figure 5.1c.

Contrairement au chapitre 4, notons que les fissures générées ne présentent pas de forme de type « penny-shape ».

Afin d'obtenir des réseaux de fissures réparties autour de cellules qui soient représentatifs des réseaux de pores d'assemblage localisés autour de granulats UO_2 , des études de sensibilité aux

paramètres du procédé de génération des microstructures synthétiques ont été réalisées pour fixer ces paramètres. Ces études sont présentées dans la suite de ce document.

5.1. Génération du réseau de joints de cellules à l'aide d'une tessellation de Voronoï érodée

Nous avons choisi de générer des microstructures synthétiques 3D de résolution spatiale de $1,52 \mu\text{m}/\text{vox}$ identique à celles des coupes obtenues par microscopie optique des céramiques UO_2 . La comparaison des simulations FFT 2D sur des coupes des microstructures synthétiques et réelles sera alors directement exploitable.

Afin de modéliser un volume représentatif de celui des microstructures réelles dont la dimension caractéristique est de 1 mm (section 2.2.1.1), un volume V_{tot} cubique de côté $c \geq 1 \text{ mm}$ est considéré. Les granulats UO_2 sont modélisés par les cellules autour desquelles sont distribués les joints de cellules.

Étant donné que les granulats UO_2 observés sur les coupes obtenues par microscopie optique sont de forme polygonale (figures 3.15 et 4.1a), nous avons choisi de générer des cellules polyédriques à l'aide d'une tessellation de Voronoï. Toutes les cellules de Voronoï présentent un même rayon r_V . Comme seulement 38,118 % du volume total V_{tot} peut être pavé à l'aide des N_V sphères distribuées avec le schéma RSA [TUS06] (section 1.4.3.2) et comme cette fraction volumique peut s'écrire alors $\frac{4\pi}{3} \frac{N_V r_V^3}{V_{tot}}$, le côté c du volume d'étude s'exprime de la façon suivante :

$$\begin{aligned} c &= \sqrt[3]{V_{tot}} = r_V \sqrt[3]{\frac{4\pi}{3(0,38118)} N_V} \\ &\approx 2,22 r_V \sqrt[3]{N_V} \end{aligned} \quad (5.1)$$

Comme attendu, le côté c est directement lié au rayon r_V et au nombre N_V de cellules. Cette relation sera utilisée par la suite.

Afin de générer des joints de cellules d'épaisseur e_p , l'ensemble des voxels à une distance inférieure ou égale à $(e_p/2)$ des arêtes de Voronoï est attribué aux joints de cellules (en rouge sur la figure 5.1a) et les autres aux cellules (en bleu sur la figure 5.1a).

Lors de cette étape, les microstructures synthétiques sont constituées de cellules modélisant les granulats UO_2 et d'un réseau de joints de cellules dans le cas où l'intégralité de la surface externe des granulats est recouverte de pores d'assemblage (figure 5.1a).

Notons que la microstructure ainsi obtenue est un cas extrême au sens physique car elle correspondrait à un milieu granulaire d' UO_2 sans forces cohésives pour assurer l'intégrité du volume.

L'étude de sensibilité aux différents paramètres de la génération du réseau de joints de cellules (V_{tot} , N_V , r_V et e_p) est présentée par la suite.

5.1.1. Estimation de la représentativité de la taille de volume d'étude

Nous avons choisi pour les études de sensibilité de considérer un volume V_{tot} généré à partir du même nuage de points modélisant les germes de Voronoï. Nous pourrions aussi évaluer l'im-

part de chacun des paramètres utilisés pour la génération du réseau de fissures réparties autour des cellules modélisant des granulates.

Deux microstructures synthétiques ont été générées pour évaluer l'influence de la taille du volume d'étude V_{tot} sur la conductivité thermique effective (sachant que nous avons choisi $c \geq 1 \text{ mm}$ au début de la section 5.1). Nous vérifions ainsi que les résultats obtenus par FFT ne dépendent pas de la taille du VER retenu pour représenter ces microstructures. Les conditions des simulations FFT sont présentées dans la section 2.3.3.2 où la matrice est associée aux cellules de Voronoï et la phase inclusionnaire aux joints de cellules. Comme dans le chapitre 4, nous avons choisi d'utiliser pour la conductivité thermique de joints des cellules celle de l'air présent dans les pores d'assemblage à 50°C ($0,02777 \text{ W}/(\text{m K})$ [SL85]). Nous utiliserons ces conditions de calcul pour l'ensemble des simulations FFT réalisées dans ce chapitre.

Les caractéristiques des microstructures générées et les résultats des simulations FFT 3D réalisées sur ces microstructures sont présentés dans le tableau 5.1.

Numéro de la microstructure synthétique générée		1	2	
Génération	Résolution spatiale Res ($\mu\text{m}/\text{vox}$)		1,52	
	Volume d'étude V_{tot}	(mm^3)	1	3,4
		(10^9 vox^3)	0,28	0,96
	Côté c du volume d'étude	(mm)	1	1,5
		(vox)	658	987
	Rayon r_V des cellules de Voronoï (μm)		75	
	Nombre N_V de germes de Voronoï (—)		216	728
Épaisseur e_p des joints de cellules (μm)		6,08		
FFT 3D	Conductivité thermique effective λ_e ($\text{W}/(\text{m K})$)	Selon \mathbf{u}_x	0,885	0,887
		Selon \mathbf{u}_y	0,876	0,882
		Selon \mathbf{u}_z	0,892	0,885
	Temps de calcul (h)		8	30

TABLEAU 5.1. – Impact du volume V_{tot} sur la réponse thermique des microstructures synthétiques générées

Les rayons r_V des cellules de Voronoï des deux microstructures synthétiques du tableau 5.1 sont identiques tandis que le volume d'étude V_{tot} diffère (ce qui induit donc une modification du nombre N_V de cellules de Voronoï comme le montre la relation présentée dans l'équation 5.1).

Les cellules de Voronoï sont réparties de façon aléatoire dans le volume d'étude V_{tot} . De plus, les joints de cellules sont distribués de façon isotrope sur toutes les arêtes des cellules de Voronoï. Comme les microstructures synthétiques générées doivent présenter une répartition et une distribution angulaire aléatoires, il est attendu que la conductivité thermique effective de ces milieux soit isotrope lorsqu'elle est évaluée sur un volume suffisamment grand pour le considérer représentatif des microstructures synthétiques générées.

Le tableau 5.1 montre que les réponses thermiques des deux microstructures générées sont du même ordre de grandeur et semblent tendre vers un comportement isotrope quand le volume V_{tot} augmente. Une évaluation précise du tenseur de conductivité thermique effectif isotrope a été

réalisée sur le volume le plus grand (microstructure 2 du tableau 5.1) et vaut $\lambda_{e,iso} = 0,885 I$.

Notons que cette conductivité thermique effective $\lambda_{e,iso}$ est non nulle. Or, ces microstructures correspondent au cas où 100 % du réseau des joints de cellules fait obstacle au flux thermique ce qui conduit à la dégradation thermique la plus importante pouvant être induite par le procédé de génération des microstructures proposé. Cependant, comme la conductivité thermique des joints de cellules est non nulle et vaut $0,02777 W/(m K)$, le transfert thermique est non nul dans les joints de cellules ce qui induit que $\lambda_{e,iso} \neq 0$.

Le volume $V_{tot} = 3,4 mm^3$ (microstructure 2 du tableau 5.1) possède un écart à l'isotropie de $0,2\%¹$ et le volume $V_{tot} = 1 mm^3$ (microstructure 1 du tableau 5.1) de $0,6\%$. Lorsque le volume d'étude V_{tot} augmente, l'écart à l'isotropie du tenseur de conductivité thermique diminue c'est-à-dire que le tenseur effectif obtenu se rapproche du tenseur effectif isotrope $\lambda_{e,iso}$. Cependant, cet écart à l'isotropie reste inférieur à 1% même pour le volume le plus petit. Par ailleurs, les conductivités thermiques effectives estimées avec ces deux volumes sont très proches (écart inférieur à 1% dans la direction \mathbf{u}_y). Cependant le temps de calcul pour obtenir une microstructure avec $V_{tot} = 3,4 mm^3$ est quant à lui multiplié par 4 par rapport à un volume V_{tot} de $1 mm^3$.

Compte tenu de ces faibles écarts et pour des questions de temps de calcul, nous avons choisi de travailler sur des volumes $V_{tot} = 1 mm^3$. De plus, comme le comportement thermique de ces microstructures synthétiques est quasiment isotrope, seule la conductivité thermique des microstructures synthétiques pour un chargement thermique selon un seul axe sera évaluée. Par cohérence avec les mesures par méthode Flash où le chargement thermique est imposé selon \mathbf{u}_y (section 2.3.1), nous avons choisi d'évaluer le comportement thermique des microstructures synthétiques selon l'axe \mathbf{u}_y .

5.1.2. Étude de la génération des cellules de Voronoï

L'équation 5.1 montre que le côté c du volume d'étude V_{tot} est lié au nombre de germes de Voronoï N_V (où le nombre de cellules) et au rayon des cellules de Voronoï r_V . Nous avons choisi d'étudier l'influence du couple (r_V, N_V) sur la conductivité thermique des céramiques étudiées en faisant varier r_V tout en ajustant N_V pour conserver le côté c du volume étudié constant ($c = 1 mm$) en utilisant la relation 5.1. Le tableau 5.2 montre l'impact des paramètres (N_V, r_V) sur la conductivité thermique évaluée selon l'axe \mathbf{u}_y des microstructures synthétiques générées.

1. L'écart à l'isotropie est évalué comme $\frac{1}{3 \lambda_{e,iso}} \sum_{k \in \{x,y,z\}} |\lambda_{e,k} - \lambda_{e,iso}|$ avec $\lambda_{e,iso} = 0,885$.

Numéro de la microstructure synthétique		1	2	3
Génération	Rayon r_V des cellules de Voronoï (μm)	38	75	150
	Nombre N_V de germes de Voronoï (-)	1660	216	27
	Volume d'étude V_{tot} (mm^3)	1		
	Résolution spatiale Res ($\mu m/vox$)	1,52		
	Épaisseur e_p des joints de cellules (μm)	6,08		
Propriété	Fraction volumique de joints de cellules (%)	19	10	5
FFT 3D	Conductivité thermique effective $(\lambda_e)_{yy}$ selon \mathbf{u}_y ($W/(m K)$)	0,458	0,876	1,612

TABLEAU 5.2. – Impact de (N_V, r_V) sur la conductivité thermique des microstructures générées

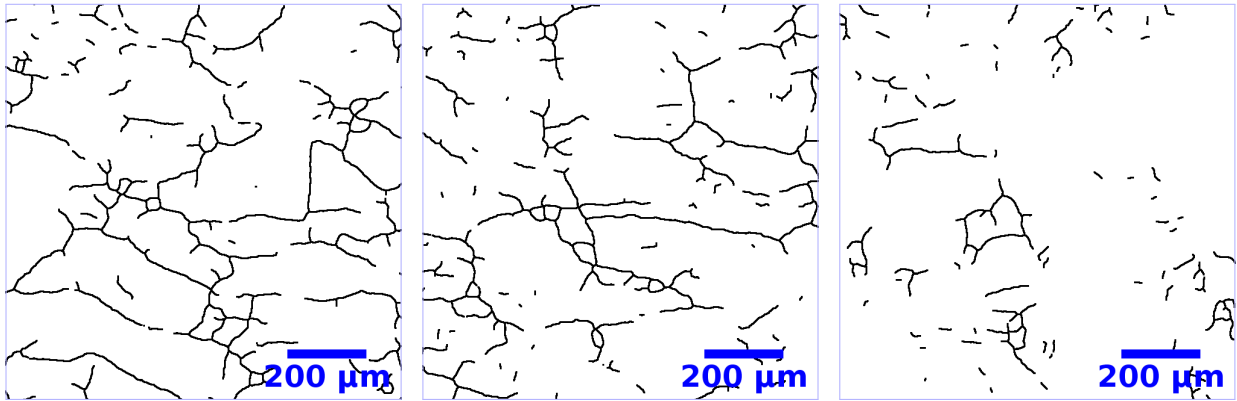
Comme attendu, l'augmentation du rayon r_V des cellules de Voronoï dans un volume V_{tot} donné induit une diminution du nombre N_V de cellules de Voronoï dans ce volume (tableau 5.2). Nous avons vu dans la section précédente 5.1.1 que pour $N_V = 216$ germes (microstructure 2 du tableau 5.2), la taille retenue pour le VER est suffisante. Pour $N_V = 27$ germes (microstructure 3 du tableau 5.2), le rayon des cellules est deux fois plus élevé de sorte que la taille du VER est peut être insuffisante. Une étude similaire à celle réalisée dans la section précédente 5.1.1 devrait être réalisée pour $N_V = 27$ afin d'estimer la représentativité de ce VER.

Pour un volume V_{tot} donné, plus le rayon r_V des cellules de Voronoï diminue et plus il est nécessaire d'ajouter des cellules de Voronoï pour paver l'espace. Or, comme le nombre N_V de cellules de Voronoï augmente, la surface couverte par les joints de cellules (qui sont des obstacles au flux thermique) augmente aussi. Comme ces joints possèdent une épaisseur dans les simulations, nous constatons dans le tableau 5.2 que la fraction volumique de joints de cellules augmente lorsque le rayon r_V des cellules augmente. De plus, comme dans les simulations réalisées, ces joints de cellules sont des obstacles au flux thermique, on observe une dégradation de la conductivité thermique du milieu étudié lorsque r_V diminue (tableau 5.2). La réponse thermique des microstructures synthétiques générées dépend donc fortement du rayon et du nombre des cellules étudiées.

Nous avons choisi de fixer le couple (r_V, N_V) associé aux cellules de Voronoï en étudiant la taille des granulats UO_2 constituant les céramiques étudiées.

La taille des granulats UO_2 a été évaluée par sélection granulométrique par tamisage avant mise en forme des échantillons (figure 2.1). Ils présentent une forme sphéroïdale et leur rayon moyen est de l'ordre de $150 \mu m$. La mise en forme des échantillons passe par un pressage uniaxial des granulats (figure 2.1) ce qui peut induire une déformation et des subdivisions potentielles de ces agrégats. Suite à l'étape de pressage, les granulats sont compactés et forment un massif cohésif sur lequel il n'est pas possible de caractériser par granulométrie la taille des agrégats (section 2.1.1). Cependant, il est attendu que le rayon des granulats dans les céramiques UO_2 soit inférieur à la valeur mesurée par granulométrie avant mise en forme des échantillons ($150 \mu m$).

Des coupes squelettisées obtenues par microscopie optique de microstructures ont été étudiées (figure 5.2) afin d'évaluer la taille des granulats dans les céramiques UO_2 .



(a) Céramique E_2 de densité de fissures $\rho_{3D} = 0,109$ (b) Céramique E_5 de densité de fissures $\rho_{3D} = 0,092$ (c) Céramique $E_{12,1}$ de densité de fissures $\rho_{3D} = 0,0309$

FIGURE 5.2. – Observation de coupes de céramiques UO_2 squelettisées dilatées avec un disque de rayon 1 pixel

Les conditions de traitement des images des coupes des céramiques UO_2 obtenues par microscopie optique afin de générer les images squelettisées comme celles de la figure 5.2 sont présentées dans la section 2.2.1.2. Les densités de fissures ont quant à elles été évaluées à l'aide du plug-in Crackcut sur les coupes squelettisées des céramiques étudiées (section 4.2.3.1).

Il ressort que les traces des contours des granulats UO_2 sont plus visibles lorsque la densité de fissures associée aux pores d'assemblage est grande (figure 5.2). Nous avons estimé les dimensions des traces des granulats identifiables sur ces coupes et réalisé une étude similaire sur les autres échantillons du domaine d'étude. Une vingtaine de traces de granulats ont été identifiées au total. Cette étude nous a conduit à choisir un rayon r_V des cellules de Voronoï égal à $75 \mu\text{m}$.

La figure 5.3 illustre un exemple de coupe d'une microstructure synthétique dont le réseau de cellules est tel que $r_V = 75 \mu\text{m}$.

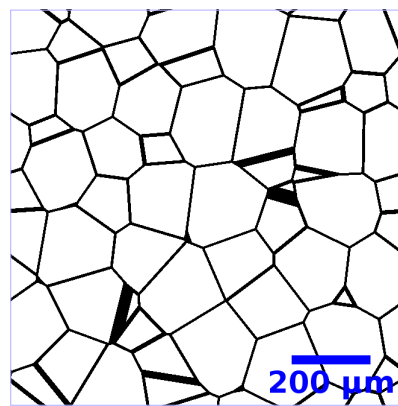


FIGURE 5.3. – Coupe en $z = 329 \text{ vox}$ (soit $500 \mu\text{m}$) de la microstructure synthétique 2 du tableau 5.2 pour laquelle $r_V = 75 \mu\text{m}$

La coupe de la microstructure synthétique (figure 5.3) présente la même surface et la même résolution que les coupes des céramiques UO_2 de la figure 5.2. Nous comparerons les microstruc-

tures synthétiques et réelles plus loin à même valeur de densité de fissures.

En conclusion, les paramètres pour générer les cellules de Voronoï ont été fixés à $r_V = 75 \mu m$ et $N_V = 216$ afin d'obtenir un volume d'étude V_{tot} de $1 mm^3$.

5.1.3. Impact de l'épaisseur des joints de cellules

Afin de générer des microstructures synthétiques représentatives des réseaux de pores d'assemblage des céramiques UO_2 , l'épaisseur e_p des joints de cellules est par construction l'épaisseur des fissures modélisant la porosité d'assemblage.

La section 2.3.3.2 a montré que les objets d'épaisseur 1 pixel (sur les coupes) et 1 voxel (sur les images 3D) ne se comportent pas comme des barrières pour le flux thermique lors des simulations FFT.

Étant donné que nous avons étudié les réponses thermiques des microstructures 3D synthétiques et aussi celles de coupes 2D extraites de ces microstructures 3D pour un chargement thermique imposé selon \mathbf{u}_y (plus de détails dans la section 5.3.1), il est nécessaire de s'affranchir de l'effet synthétique associé à l'épaisseur e_p des joints de cellules sur les microstructures 2D et 3D étudiées. Pour cela, la méthodologie suivante a été utilisée :

- Vingt-et-une coupes normales à l'axe \mathbf{u}_z ont été extraites de la microstructure synthétique étudiée avec une épaisseur e_p de joints de cellules donnée (ce qui correspond à un pas entre chaque coupe de 33 voxels soit $50,16 \mu m$).
- L'épaisseur des joints de cellules a été évaluée en réalisant une érosion morphologique des coupes obtenues avec un élément structurant de type disque et de rayon 1 pixel soit $1,52 \mu m$. Si l'ensemble du réseau de joints de cellules est toujours visible après érosion alors l'épaisseur des joints de cellules sur la coupe est supérieure ou égale à 3 pixels ce qui induit que la coupe étudiée vérifie la condition d'épaisseur suffisante pour s'affranchir de l'effet synthétique associé à e_p .
- Si l'ensemble des 21 coupes extraites de la microstructure 3D vérifie la condition d'épaisseur suffisante alors il est supposé que la microstructure 3D la vérifie elle aussi.

En augmentant par pas de un voxel l'épaisseur e_p des joints de cellules en commençant à 1 voxel, nous avons ainsi déterminé l'épaisseur critique à partir de laquelle il est possible de s'affranchir de l'effet synthétique associé à e_p sur les microstructures synthétiques 3D générées et les coupes extraites de ces microstructures et cette épaisseur vaut 4 voxels soit $6,08 \mu m$.

Le tableau 5.3 montre l'impact de l'épaisseur e_p des joints de cellules sur la conductivité thermique des microstructures synthétiques générées 3D (en partant de l'épaisseur critique de 4 voxels).

Numéro de la microstructure synthétique		1	2	3	
Génération	Épaisseur e_p des joints de cellules	(μm)	6,08	7,60	9,12
		(vox)	4	5	6
	Rayon r_V des cellules de Voronoï (μm)	75			
	Nombre N_V de germes de Voronoï (-)	216			
	Volume d'étude V_{tot} (mm^3)	1			
	Résolution spatiale ($\mu m/vox$)	1,52			
Propriété	Fraction volumique des joints de cellules (%)	10	12	14	
FFT 3D	Conductivité thermique $(\lambda_e)_{yy}$ selon \mathbf{u}_y ($W/(m K)$)	0,876	0,680	0,559	

TABLEAU 5.3. – Impact de l'épaisseur e_p des joints de cellules sur le comportement thermique des microstructures synthétiques générées

Une diminution de l'épaisseur e_p des joints de cellules induit une diminution de la fraction volumique de joints de cellules qui sont moins conducteurs que la matrice ($0,027 W/(m K) < 9,03 W/(m K)$). La conductivité thermique effective augmente alors quand l'épaisseur e_p diminue.

Bien qu'il soit possible d'estimer avec les images 3D obtenues par tomographie X et MEB-FIB une épaisseur des pores d'assemblage de l'ordre de $10 \mu m$, ces images ne sont pas représentatives de l'ensemble de la porosité d'assemblage. Il n'est donc pas possible en traitant ces images d'obtenir une estimation représentative des épaisseurs des pores d'assemblage.

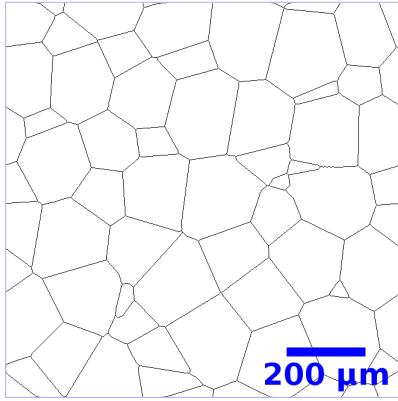
Dans les microstructures synthétiques, comme les pores d'assemblage sont modélisés à l'aide de fissures, nous avons généré des joints de cellules les plus fins possibles pour se rapprocher d'une morphologie de type fissure. À l'aide de l'étude présentée dans le tableau 5.3, nous avons choisi de considérer une épaisseur constante des joints de cellules telle que $e_p = 6,08 \mu m$ soit 4 voxels.

En conclusion, les paramètres optimisés de génération du réseau de joints de cellules pour modéliser des granulats UO_2 totalement recouverts de pores d'assemblage sont les suivants :

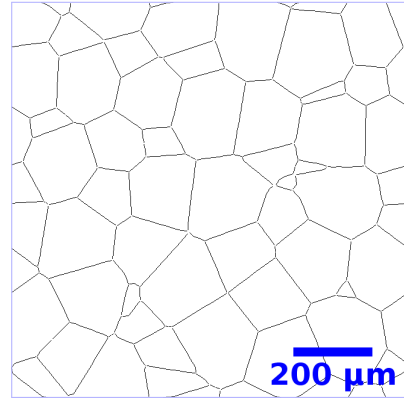
- Volume d'étude $V_{tot} = 1 mm^3$ soit $V_{tot} = 0,28 \times 10^9 vox^3$
- Nombre de germes de Voronoï $N_V = 216$
- Rayon des cellules de Voronoï $r_V = 75 \mu m$
- Épaisseur des joints de cellules $e_p = 6,08 \mu m$

5.2. Génération du réseau de fissures à l'aide de sphères délimitantes

Comme un des paramètres descripteurs des pores d'assemblage est la densité de fissures ρ_{3D} , nous avons choisi d'évaluer la densité de fissures des microstructures synthétiques 3D à l'aide du plug-in Crackcut sur les coupes 2D squelettisées extraites des microstructures synthétiques 3D étudiées (section 4.2.2). La résolution des microstructures synthétiques étant la même que celles des coupes obtenues par microscopie optique, la plus petite consigne de Crackcut utilisable vaut $Taillemax = 15 \mu m$ (section 4.2.3.1). La figure 5.4 illustre la description en segments de droite de la microstructure synthétique réalisée par le plug-in Crackcut avec $Taillemax = 15 \mu m$.



(a) Coupe en $z = 329 \text{ vox}$, soit ici $z = 500 \mu\text{m}$ (figure 5.3) squelettisée



(b) Description avec $Taillemax = 15 \mu\text{m}$

FIGURE 5.4. – Étude du choix de $Taillemax = 15 \mu\text{m}$ pour la description d’une coupe squelettisée caractéristique de la microstructure optimisée de joints de cellules (microstructure 1 du tableau 5.3)

La description de la figure 5.4a donnée par Crackcut avec $Taillemax = 15 \mu\text{m}$ (figure 5.4b) est strictement identique aux pixels isolés près aux traces des squelettes des fissures présentes sur la coupe de la microstructure synthétique étudiée. D’autres coupes de la microstructure optimisée de joints de cellules ont été évaluées et les résultats obtenus sont similaires à ceux de la figure 5.4b.

Nous avons donc choisi de décrire les coupes étudiées des microstructures synthétiques à l’aide de segments de droite de longueur inférieure ou égale à $Taillemax = 15 \mu\text{m}$ pour l’évaluation de la densité de fissures ρ_{3D} avec Crackcut.

Une étude a été réalisée afin d’estimer la sensibilité de la densité de fissures à la position z de la coupe normale à l’axe \mathbf{u}_z sur laquelle elle est déterminée. Ici, la microstructure synthétique retenue correspond au cas où l’intégralité du réseau de joints de cellules est recouvert de fissures (microstructure 1 du tableau 5.3). La figure 5.5 présente les résultats obtenus.

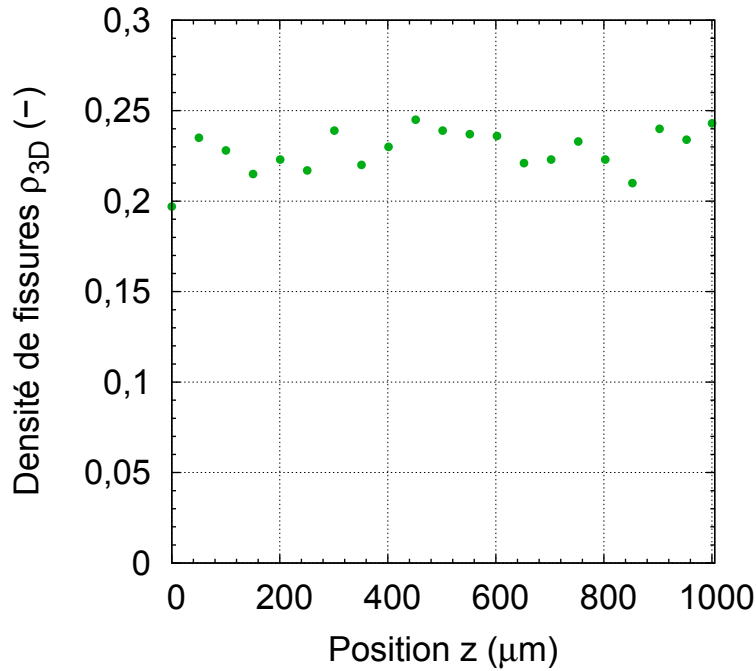


FIGURE 5.5. – Estimation de la densité de fissures ρ_{3D} sur la microstructure 1 du tableau 5.3 en fonction de la position z de la coupe normale à l’axe \mathbf{u}_z

La figure 5.5 montre que la moyenne des valeurs de densité de fissures évaluées est de 0,23 et l’écart-type est de 0,01. Nous supposons que ces variations de la densité de fissures sont non significatives et nous avons choisi d’évaluer la densité de fissures d’une microstructure synthétique à partir d’une coupe unique. La valeur de ρ_{3D} évaluée sur la coupe $z = 329 \text{ vox}$ (soit $z = 500 \mu\text{m}$) de la microstructure 1 du tableau 5.3 (section 5.1) est de 0,24 et est proche de la valeur moyenne de ρ_{3D} (0,23). Nous avons choisi d’évaluer la densité de fissures d’une microstructure synthétique sur cette coupe ($z = 329 \text{ vox}$). En supposant que la loi d’occurrence de ce paramètre est uniforme, l’incertitude relative associée à ρ_{3D} obtenue à partir de microstructures synthétiques est de 4% pour un intervalle de confiance de 95%.

La densité de fissures associée à cette microstructure extrême correspond à la valeur de ρ_{3D} maximale accessible avec une microstructure synthétique avec le réseau de joints de cellules généré (section 5.1) et est notée par la suite $(\rho_{3D})_{max} (= 0,24)$. Comme la borne maximale de densités de fissures « réelle » évaluées sur les coupes réelles est de 0,109 et est donc inférieure à $(\rho_{3D})_{max}$ (section 4.3.3), il est donc possible de générer des microstructures synthétiques possédant des densités de fissures similaires à celles évaluées sur les céramiques UO_2 à l’aide du réseau de joints de cellules généré (section 5.1).

Pour rappel, la deuxième étape du protocole de génération d’un réseau synthétique de fissures dépend des quatre paramètres suivants :

- le schéma utilisé pour la génération des sphères délimitantes réparties de façon aléatoire,
- le nombre N_S de sphères délimitantes générées,
- le rayon r_S des sphères délimitantes,
- la définition de l’ensemble correspondant à l’intersection du réseau de joints de cellules et des sphères délimitantes noté par la suite « $\cap \{JdC + Sph\}$ ».

Une étude de sensibilité de ces différents paramètres a été réalisée pour générer des réseaux de fissures représentatifs des réseaux de pores d'assemblage des céramiques UO_2 . Nous avons choisi de considérer qu'une microstructure synthétique est représentative de celle d'une céramique UO_2 lorsque les densités de fissures évaluées sur ces deux microstructures réelle et synthétique sont identiques.

5.2.1. Étude du schéma utilisé pour la génération des sphères délimitantes

Deux schémas de génération de sphères délimitantes réparties de façon aléatoire (section 1.4.3.2) ont été envisagés :

1. le schéma RSA

Dans le schéma RSA, les sphères ne peuvent pas s'intersecter et la fraction volumique de saturation de remplissage d'un volume 3D avec des sphères délimitantes distribuées selon ce schéma est de 38,118%. Comme il existe une fraction volumique de sphères délimitantes de saturation, les densités de fissures accessibles par ce schéma sont bornées. Afin d'évaluer l'intervalle de densité de fissures non balayé par le schéma RSA, des microstructures synthétiques 3D ont été générées en modifiant la définition de l'ensemble $\cap \{JdC + Sph\}$ et leur comportement thermique a été étudié par FFT (tableau 5.4).

Génération	Ensemble $\cap \{JdC + Sph\}$	Obstacle	Pont	
	Rayon r_S des sphères délimitantes (μm)	30		
	Nombre N_S de sphères délimitantes (-)	3100		
	Rayon r_V des cellules de Voronoï (μm)	75		
	Nombre N_V de germes de Voronoï (-)	216		
	Épaisseur e_p des joints de cellules e_p (μm)	6,08		
	Volume d'étude V_{tot} (mm^3)	1		
	Résolution spatiale Res ($\mu m/vox$)	1,52		
Propriété	Densité de fissures ρ_{3D} (-)	0,03	0,10	

TABLEAU 5.4. – Estimation des bornes minimale et maximale de l'intervalle de densité de fissures non balayé avec le schéma RSA en définissant $\cap \{JdC + Sph\}$ comme des obstacles ou des ponts thermiques

Notons que lorsque les sphères délimitantes ont un rayon r_S de $30 \mu m$, le nombre maximal N_S de sphères délimitantes pouvant paver un cube de volume $V_{tot} = 1 mm^3$ avec un schéma RSA est de 3370 (en utilisant l'équation 5.1 pour les sphères délimitantes). Or, les microstructures générées présentées dans le tableau 5.4 présentent un nombre de sphères délimitantes $N_S = 3100$ ($\neq 3370$). Cela s'explique par le fait que le tirage RSA utilisé dans lequel l'agencement des sphères n'est pas optimisé n'a pas permis de générer les microstructures critiques telles que $N_S = 3370$ et $r_S = 30 \mu m$. Nous avons donc modélisé des microstructures synthétiques se rapprochant de ces cas critiques (tableau 5.4), d'où $N_S = 3100$. Les microstructures générées permettent d'estimer l'intervalle de densité de fissures ρ_{3D} non balayé par le schéma RSA.

Le tableau 5.4 montre qu'en définissant l'ensemble $\cap \{JdC + Sph\}$ comme les obstacles au flux thermique, il est donc possible d'obtenir des microstructures présentant des den-

sités de fissures allant de 0 (pas de sphères) à 0,03. De plus, en définissant l'ensemble $\cap \{JdC + Sph\}$ comme les ponts thermiques, les microstructures générées peuvent présenter des densités de fissures comprises entre 0,10 à la densité maximale $(\rho_{3D})_{max}$ ($= 0,24$) de la microstructure (cas où $N_S = 0$). Cela signifie que l'ensemble des densités de fissures telles que $\rho_{3D} \in [0,03 ; 0,10]$ ne sont pas accessibles avec le schéma RSA à partir du réseau de joints de cellules défini dans la section 5.1.

2. le schéma booléen (section 1.4.3.2)

Avec ce schéma, il est possible de paver l'ensemble du volume d'étude avec des sphères délimitantes sans restriction en volume car les sphères peuvent s'intersecter contrairement au schéma RSA.

Quelle que soit la définition de l'ensemble $\cap \{JdC + Sph\}$, le schéma booléen permet donc de générer des microstructures synthétiques de densité de fissures allant de 0 (pas de porosité) à la densité de fissures maximale $(\rho_{3D})_{max}$ obtenue lorsque le réseau de porosité correspond à l'intégralité du réseau de joints de cellules.

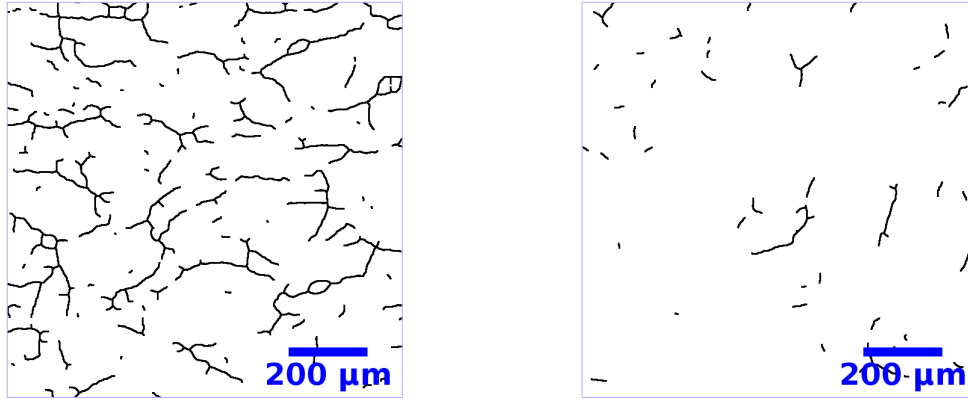
Pour rappel, le domaine de densité de fissures associé aux pores d'assemblage des céramiques UO_2 est tel que $\rho_{3D} \in [0,009 ; 0,109]$ (section 4.3.3).

Comme les microstructures synthétiques ayant des densités de fissures comprises dans l'intervalle $[0,03 ; 0,10]$ ne sont pas accessibles à l'aide du schéma RSA, seules 50 % des microstructures des céramiques UO_2 observées par microscopie optique peuvent être modélisées à l'aide des microstructures synthétiques utilisant ce schéma. Inversement, les microstructures atteintes avec le schéma booléen peuvent atteindre des densités de fissures comprises dans l'intervalle $[0 ; 0,24]$ (dans lequel est inclus entièrement le domaine associé aux pores d'assemblage des céramiques UO_2). Nous avons donc choisi par la suite d'utiliser le schéma booléen pour générer les sphères délimitantes.

Pour compléter l'étude de la génération numérique de réseaux de fissures réparties autour de cellules, l'impact sur la réponse thermique des microstructures synthétiques de la définition de l'ensemble $\cap \{JdC + Sph\}$, du nombre N_S et du rayon r_S des sphères délimitantes est évalué.

5.2.2. Étude de la définition de l'ensemble $\cap \{JdC + Sph\}$, du nombre et du rayon des sphères délimitantes

Afin de choisir les caractéristiques des sphères délimitantes pour modéliser des réseaux de fissures représentatifs des réseaux de porosité d'assemblage des céramiques UO_2 , des microstructures de céramiques UO_2 ont été observées par microscopie optique. La figure 5.6 présente deux coupes de céramiques présentant des densités de fissures élevées et faibles (pour rappel dans la section 4.2.3.1, les densités de fissures évaluées sur des céramiques UO_2 sont telles que $\rho_{3D} \in [0,009 ; 0,109]$).



(a) E_5 à forte densité de fissures
($\rho_{3D} = 0,092$)

(b) $E_{12,4}$ à faible densité de fissures
($\rho_{3D} = 0,023$)

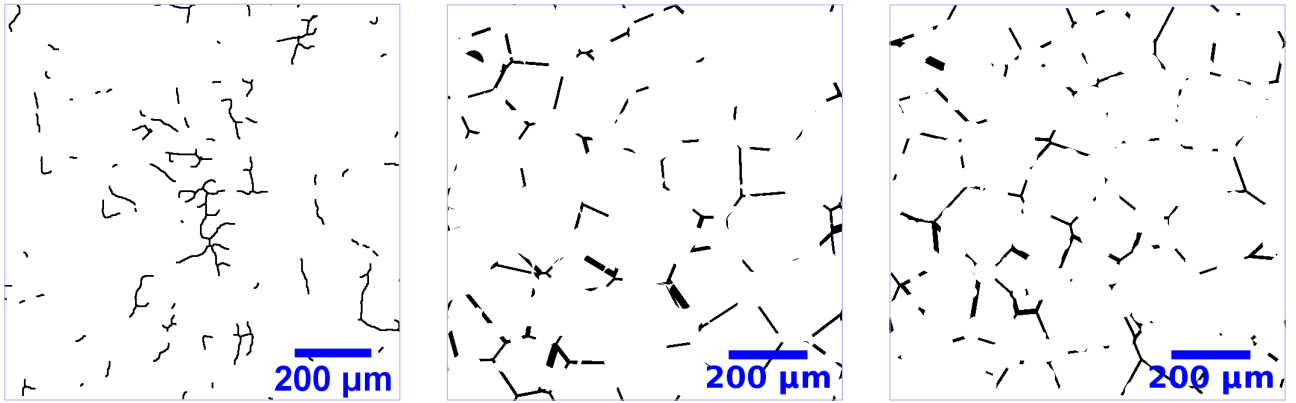
FIGURE 5.6. – Observation du réseau des squelettes des traces associées aux porosités d’assemblage sur des coupes squelettisées puis dilatées avec un disque de rayon 1 pixel

À forte densité de fissures (figure 5.6a), le réseau de squelettes des traces des pores d’assemblage est très marqué ce qui permet d’observer le réseau de traces de granulats constituant la phase UO_2 tandis qu’à faible densité de fissures (figure 5.6b), les squelettes des traces sont moins interconnectés et moins longs.

Pour représenter cette évolution de la microstructure en fonction de la densité de fissures, nous avons choisi d’utiliser des sphères délimitantes de rayon fixe r_S et une définition de l’ensemble $\cap \{JdC + Sph\}$ donnée tout en faisant varier le nombre N_S de sphères générées dans le milieu pour obtenir la densité de fissures visée. De cette façon, dans le cas où $\cap \{JdC + Sph\}$ correspond à l’ensemble des obstacles thermiques, plus le nombre N_S de sphères générées est important et plus le réseau de fissures obtenu est important ce qui induit une augmentation de la densité de fissures. Or, plus le nombre N_S augmente et plus la probabilité que les sphères délimitantes s’intersectent est grande ce qui conduit à une évolution croissante de l’interconnexion du réseau de fissures généré lorsque la densité de fissures augmente. Un raisonnement similaire peut être réalisé dans le cas où $\cap \{JdC + Sph\}$ correspond à l’ensemble des ponts thermiques.

Comme nous fixons le nombre N_V dans nos simulations, le schéma utilisé n’est donc pas booléen. Cependant, l’annexe F montre que les résultats obtenus avec le schéma utilisé sont quasiment identiques à ceux d’un schéma booléen.

Pour fixer la définition de l’ensemble $\cap \{JdC + Sph\}$, nous avons choisi de générer des microstructures synthétiques à densité de fissures ρ_{3D} et à rayon de sphères délimitantes r_S donnés en faisant varier la définition de l’ensemble $\cap \{JdC + Sph\}$. Des coupes de ces microstructures sont par la suite comparées à celles des céramiques UO_2 . Un exemple est présenté sur la figure 5.7. La céramique E_8 de densité $\rho_{3D} = 0,031$ sert de point de comparaison pour les microstructures synthétiques générées en identifiant l’ensemble $\cap \{JdC + Sph\}$ à des obstacles ou des ponts thermiques.



(a) Zoom sur la coupe squelettisée et dilatée avec un disque de rayon $r = 1 \text{ pix}$ de l'échantillon E_8 ($\rho_{3D} = 0,031$) (b) Coupe à $z = 329 \text{ vox}$ pour $\cap\{JdC + Sph\} = \text{Obstacles}$ ($\rho_{3D} = 0,03$) (c) Coupe à $z = 329 \text{ vox}$ pour $\cap\{JdC + Sph\} = \text{Ponts}$ ($\rho_{3D} = 0,03$)

FIGURE 5.7. – Exemples de microstructures étudiées pour le choix de la définition de l'ensemble $\cap\{JdC + Sph\}$ pour $r_S = 30 \mu m$

Les caractéristiques des microstructures synthétiques de la figure 5.7 sont présentées dans le tableau 5.5.

Génération	Ensemble $\cap\{JdC + Sph\}$		Obstacle	Pont
	Rayon r_S des sphères délimitantes (μm)	30		
	Nombre N_S de sphères délimitantes (-)	3200	9000	
	Rayon r_V des cellules de Voronoï (μm)	75		
	Nombre N_V de germes de Voronoï (-)	216		
	Épaisseur e_p des joints de cellules e_p (μm)	6,08		
	Volume d'étude V_{tot} (mm^3)	1		
	Résolution spatiale Res ($\mu m/vox$)	1,52		
Propriété	Densité de fissures ρ_{3D} (-)	0,03	0,03	

TABEAU 5.5. – Caractéristiques des microstructures synthétiques de la figure 5.7

La coupe associée à la céramique E_8 (figure 5.7a) présente des branches longues et interconnectées de traces de squelettes associées aux pores d'assemblage ainsi que des petites branches isolées des réseaux interconnectés. La présence de ces deux familles de branches a été observée sur l'ensemble des coupes des céramiques UO_2 obtenues par microscopie optique.

Les deux microstructures synthétiques (figures 5.7b et 5.7c) présentent bien la même densité de fissures ρ_{3D} que la microstructure de référence. Contrairement au tirage des obstacles au flux thermique (figure 5.7b), la méthode de tirage des ponts thermiques (figure 5.7c) consiste à rendre discontinu le réseau de joints de cellules ce qui induit la présence de petites branches dans les traces des fissures générées. Pour rendre compte de la présence des deux familles de branches observées sur les coupes des céramiques UO_2 obtenues par microscopie optique, nous avons choisi de définir $\cap\{JdC + Sph\}$ comme l'ensemble des ponts thermiques. Comme ce choix n'est pas évident au vu de la figure 5.7, une perspective est d'évaluer la distribution en

longueur des branches présentes sur les différentes coupes de la figure 5.7.

Afin d'évaluer la valeur du rayon r_S des sphères délimitantes, la longueur moyenne des branches (longueur totale des branches sur le nombre de branches sur la coupe) a été évaluée sur des coupes squelettisées de microstructures synthétiques et réelles ayant une densité de fissures ρ_{3D} .

Le tableau 5.6 présente l'impact de r_S sur la longueur moyenne des branches sur la coupe $z = 329\text{ vox}$ pour des microstructures synthétiques de densité de fissures $\rho_{3D} = 0,03$ (comparable à la céramique E_8).

Génération	Rayon r_S des sphères délimitantes (μm)	20	30	40
	Ensemble $\cap \{JdC + Sph\}$	Pont		
	Nombre N_S de sphères délimitantes (-)	30000	9000	4500
	Rayon r_V des cellules de Voronoï (μm)	75		
	Nombre N_V de germes de Voronoï (-)	216		
	Épaisseur e_p des joints de cellules e_p (μm)	6,08		
	Volume d'étude V_{tot} (mm^3)	1		
	Résolution spatiale Res ($\mu m/vox$)	1,52		
Propriétés	Densité de fissures ρ_{3D} (-)	0,03	0,03	0,03
	Longueur moyenne des branches (μm)	26	29	33

TABLEAU 5.6. – Impact du rayon r_S des sphères délimitantes sur la longueur moyenne des branches des microstructures synthétiques générées

La longueur moyenne associée à la coupe de la céramique E_8 qui présente une densité de fissures $\rho_{3D} = 0,031$ (figure 5.7a) vaut $30\ \mu m$. Le tableau 5.6 montre que la longueur des branches de la microstructure générée est relativement peu sensible au rayon des sphères délimitantes. Le choix $r_S = 30\ \mu m$ conduit à la longueur moyenne la plus proche de celle de la microstructure réelle. Cette valeur conduit respectivement à des longueurs de branches moyennes simulées légèrement supérieures ($30\ \mu m$ par rapport à $24\ \mu m$) ou inférieures ($30\ \mu m$ par rapport à $45\ \mu m$) à celles des microstructures réelles correspondant aux densités de fissures extrêmes 0,009 et 0,109. Nous avons donc choisi de générer par la suite les microstructures numériques avec un rayon de sphères délimitantes r_S de $30\ \mu m$.

En conclusion, les conditions optimisées de génération des réseaux de fissures réparties autour de cellules afin de modéliser les réseaux des pores d'assemblage des céramiques UO_2 sont résumées dans le tableau 5.7.

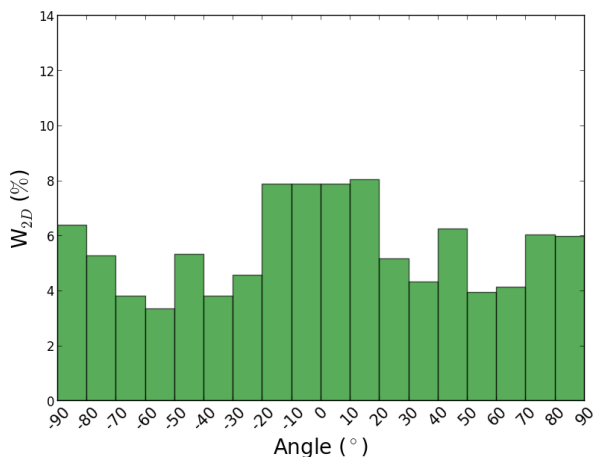
Résolution spatiale Res ($\mu m/vox$)		1,52
Volume d'étude V_{tot}	(mm^3)	1
	(vox^3)	$0,28 \cdot 10^9 vox^3$
Nombre N_V de germes de Voronoï (-)		216
Rayon r_V des cellules de Voronoï (μm)		75
Épaisseur e_p des joints de cellules e_p (μm)		6,08
Ensemble $\cap\{JdC + Sph\}$		Ponts thermiques
Rayon r_S des sphères délimitantes (μm)		30
Nombre N_S de sphères délimitantes (-)		Choisi en fonction de ρ_{3D} visée

TABLEAU 5.7. – Conditions optimisées de génération des microstructures synthétiques

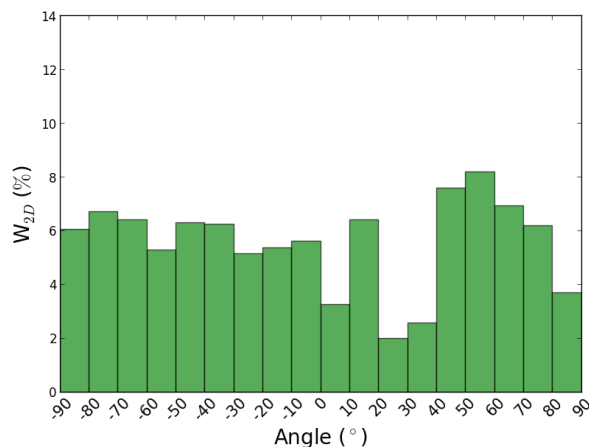
Les microstructures synthétiques modélisant la répartition spatiale de fissures distribuées aléatoirement autour de cellules et générées avec les conditions présentées dans le tableau 5.7 présentent :

- une taille de cellules comparable à la taille des traces des granulats UO_2 observés sur les coupes obtenues par microscopie optique,
- une répartition spatiale des fissures similaire à celle des squelettes des traces des pores d'assemblage observés,
- des densités de fissures identiques à celles caractérisées sur les coupes des céramiques UO_2 obtenues par microscopie optique,
- une longueur moyenne de branches sur la coupe $z = 329 vox$ des microstructures synthétiques comparable à celle évaluée sur les squelettes des traces des pores d'assemblage.

Nous avons choisi par la suite de caractériser la distribution d'orientation des fissures dans les microstructures synthétiques. La figure 5.8 illustre les fonctions de distribution d'orientation 2D (équation 4.45) des traces des fissures sur une coupe en $z = 329 vox$ dans le cas des deux microstructures étudiées : réelle (figure 5.7a) et synthétique (figure 5.7c).



(a) Associée à la céramique E_8 (figure 5.7a)



(b) Associée à la coupe de microstructure synthétique présentée sur la figure 5.7c

FIGURE 5.8. – Fonctions de distribution d’orientation 2D des normales aux plans des traces des fissures

Comme expliqué dans le chapitre 4, les pores d’assemblage de la microstructure réelle assimilés à des fissures orientées présentent une distribution angulaire des fissures isotrope avec une légère orientation préférentielle des normales aux plans des fissures à 0° ce qui correspond à l’axe \mathbf{u}_y (figure 5.8a), orientation spécifique induite par l’étape de pressage qu’ont subi les microstructures UO_2 . Pour une discrétisation en pas de 10° du domaine angulaire $\theta \in [-90; 90]^\circ$, chaque classe possède une valeur de $W'(Int) = \frac{100}{18}$ dans le cas d’une distribution d’orientation aléatoire. Un écart absolu d’au maximum 3,2 % est observé entre chaque classe de la distribution angulaire aléatoire idéale et celle associée à la microstructure synthétique étudiée (figure 5.8b). La microstructure numérique étudiée (figure 5.7c) présente donc une distribution d’orientation globalement isotrope avec un léger alignement des normales aux plans des traces de fissures à 55° .

Pour rappel, comme expliqué dans le chapitre 4, les traces des pores d’assemblage des céramiques présentent une distribution angulaire globalement isotrope avec un léger alignement des normales aux plans des traces des fissures à 0° (voir figure 5.8a pour la céramique E_8). En considérant les écarts à la distribution angulaire aléatoire comme négligeables pour les deux microstructures étudiées, la distribution d’orientation de la microstructure numérique (figure 5.7c) est considérée similaire à celle de la coupe de l’échantillon E_8 (figure 5.7a). Des résultats similaires à ceux de la figure 5.8 ont été obtenus pour l’ensemble des microstructures synthétiques obtenues. Nous avons donc considéré que les distributions d’orientation des traces des fissures des microstructures synthétiques sont représentatives de la distribution angulaire des traces des pores d’assemblage des céramiques UO_2 .

5.3. Étude du comportement thermique des microstructures synthétiques générées

L’impact $\kappa_{a,y}$ de la répartition spatiale des pores d’assemblage pour un chargement thermique selon \mathbf{u}_y , axe parallèle à la direction du flux thermique lors des mesures de diffusivité thermique

(section 2.3.1), est évalué en étudiant la réponse thermique des microstructures synthétiques obtenues.

5.3.1. Modélisation numérique de l'impact de la répartition de fissures autour de cellules

L'objectif est d'évaluer l'impact de la répartition des pores d'assemblage en étudiant la réponse thermique des microstructures générées :

- en 3D, afin de comparer le modèle obtenu $\kappa_{a,y}$ avec les mesures de diffusivité thermique obtenues par méthode Flash (équation 3.21),
- sur des coupes 2D normales à l'axe \mathbf{u}_y , afin d'évaluer les cartes de flux thermiques dans les microstructures synthétiques et de les comparer à celles des calculs FFT 2D réalisés sur les coupes des céramiques UO_2 .

Des calculs FFT 3D et 2D ont été réalisés respectivement sur les microstructures 3D générées et sur des coupes en $z = 329 \text{ vox}$ de ces microstructures synthétiques générées.

Nous avons profité de ces simulations 2D et 3D sur les microstructures synthétiques pour évaluer l'effet 2D/3D associé aux calculs FFT (figure 5.9).

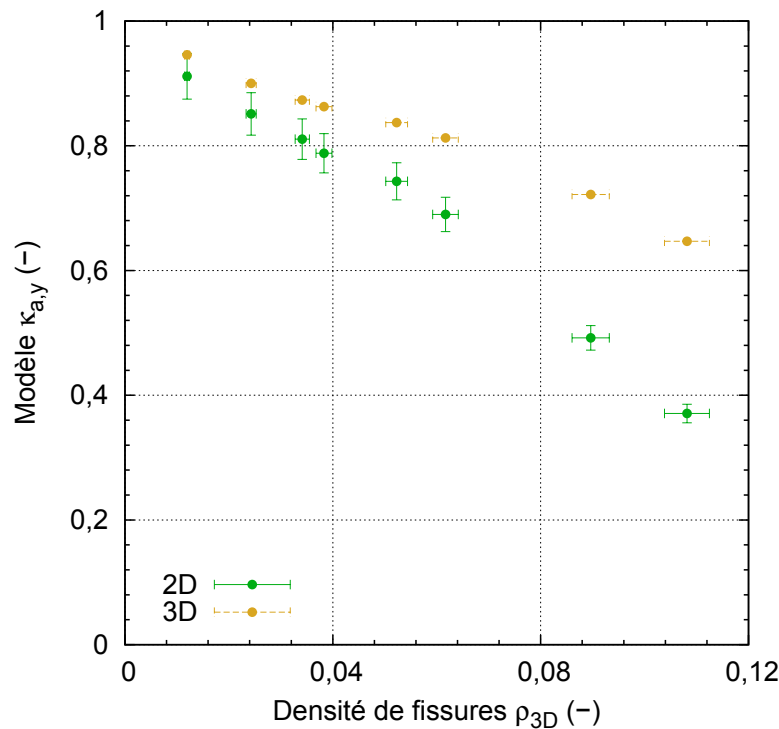


FIGURE 5.9. – Effet 2D /3D sur l'impact $\kappa_{a,y}$ de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique des microstructures synthétiques évalué sur un échantillon par lot observé par microscopie optique avec une résolution de $1,52 \mu\text{m}/\text{pix}$

Notons $(\kappa_{a,y})_{2D}$ l'impact de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique d'une microstructure synthétique évalué par FFT 2D sur la coupe en $z = 329 \text{ vox}$ de cette microstructure. Des calculs FFT 2D ont été réalisés sur les 21 coupes présentées au début de la section 5.1.3. À partir de ces simulations, l'incertitude relative associée aux valeurs de $(\kappa_{a,y})_{2D}$ a été évaluée et vaut 4 % pour un intervalle de confiance de 95 % (en supposant une loi d'occurrence uniforme

pour $(\kappa_{a,y})_{2D}$). Il n'y a pas d'incertitude associée à l'impact 3D $(\kappa_{a,y})_{3D}$ de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique des microstructures synthétiques car tous les paramètres de génération sont fixés ce qui induit l'absence de degré de liberté sur les valeurs de $(\kappa_{a,y})_{3D}$. Pour compléter l'étude (et mieux estimer les incertitudes de $(\kappa_{a,y})_{3D}$), il serait intéressant d'évaluer l'impact du nuage des germes de Voronoï choisi sur les réponses thermiques obtenues. Il est attendu que le choix du nuage des germes de Voronoï induise une modification des paramètres optimaux sélectionnés pour modéliser le comportement thermique des céramiques UO_2 . Pour confirmer cette hypothèse, il serait donc nécessaire de reprendre la méthodologie d'optimisation des paramètres de simulation qui est présentée dans les sections 5.1 et 5.2.

Il ressort de la figure 5.9 que lorsqu'il n'y a pas de pores d'assemblage dans le matériau, la densité de fissures associée à cette famille est nulle ($\rho_{3D} = 0$). L'impact de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique est donc nul ce qui signifie que la conductivité thermique de la matrice λ_m n'est pas dégradée. L'ordonnée à l'origine des courbes donnant l'impact de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique vaut donc 1.

Comme dans le chapitre 4, nous avons réalisé une régression linéaire sur les nuages de points de la figure 5.9 à l'aide d'une méthode des moindres carrés et comme l'ordonnée à l'origine des graphes vaut 1, les modèles obtenus sont de la forme $\kappa_{a,y} = 1 - (m \pm \Delta m) \rho_{3D}$ où m est la pente de la courbe et Δm l'écart-type associé à m et valent :

— Modèle proposé à partir des simulations FFT 2D sur les coupes des microstructures générées :

$$(\kappa_{a,y})_{2D} = 1 - (5,5 \pm 0,2) \rho_{3D} \quad (5.2)$$

— Modèle proposé à partir des simulations FFT 3D sur les microstructures 3D générées :

$$(\kappa_{a,y})_{3D} = 1 - (3,2 \pm 0,1) \rho_{3D} \quad (5.3)$$

Un écart relatif pouvant aller jusqu'à 28 % est observé entre les modèles 2D et 3D, le modèle 2D étant systématiquement plus pénalisant que celui en 3D. En effet, le flux de chaleur 2D a moins de possibilités de contourner un obstacle (contrairement à un flux 3D). La présence d'un obstacle modifie donc de façon plus significative le flux et cela induit une dégradation plus importante de la conductivité thermique en 2D.

Ces régressions linéaires sont présentées ici à titre illustratif de la dégradation thermique évaluée par les simulations FFT sur les microstructures synthétiques. Elles ne seront pas utilisées par la suite.

Étant donné que les modèles proposés (équations 5.2 et 5.3) sont des droites et que l'ordonnée à l'origine de ces graphes vaut 1, il est donc en théorie possible d'évaluer un modèle donnant l'influence de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique en connaissant un autre point de la courbe.

Pour cela, nous avons choisi d'étudier le comportement thermique 3D de la microstructure synthétique extrême pour laquelle le réseau de fissures correspond à la totalité du réseau de joints de cellules (section 5.1). Pour rappel, dans cette microstructure, les cellules modélisant les granulats UO_2 sont complètement entourées de fissures formant une lame d'air entre chaque granulats. Nous avons choisi de modéliser ce milieu comme étant constitué de sphères d' UO_2 100 % dense modélisant les granulats inclus dans une matrice constituée d'air de fraction volu-

mique c_a . Les conductivités thermiques des inclusions sphériques et de la matrice gazeuse sont notées respectivement $\lambda_{100\%}$ et λ_a .

En supposant que les sphères UO_2 n'ont pas d'interaction entre elles, l'impact $(\kappa_{a,y})_{3D}$ de la microstructure sur la conductivité thermique est estimé avec la borne inférieure de Hashin-Shtrikman (ou de Maxwell) pour un chargement selon \mathbf{u}_y ² :

$$(\kappa_{a,y})_{3D} = \frac{2 + \tau^{-1} + 2(1 - c_a)(\tau^{-1} - 1)}{2 + \tau^{-1} + (1 - c_a)(1 - \tau^{-1})} \tau \quad (5.4)$$

où τ est le rapport des coefficients de la conductivité thermique de la porosité d'assemblage sur celle des granulats UO_2 100 % denses soit $\tau = \frac{\lambda_a}{\lambda_{100\%}}$.

La fraction volumique c_a de la porosité d'assemblage est évaluée comme celle du réseau de fissures présent dans la microstructure étudiée. Le tableau 5.8 présente l'estimation du modèle de Maxwell (équation 5.4) pour la microstructure synthétique où le réseau de fissures recouvre l'intégralité du réseau de joints de cellules (section 5.1) et qui présente une densité de fissures $(\rho_{3D})_{max}$.

FFT 3D	Conductivité thermique $(\lambda_e)_{yy}$ selon \mathbf{u}_y ($W/(m K)$)	0,876
	Impact $(\kappa_{a,y})_{3D}$ (-)	0,097
Propriété	Fraction volumique c_a de porosité d'assemblage (%)	9,8
Maxwell	Impact $(\kappa_{a,y})_{3D}$ (-)	0,081

TABLEAU 5.8. – Estimation de la conductivité thermique effective selon \mathbf{u}_y pour le réseau de pores constitué de 100 % du réseau de joints de cellules

Un écart relatif de 16 % est observé entre les valeurs de $(\kappa_{a,y})_{3D}$ évaluées par FFT 3D et la borne inférieure de Hashin-Shtrikman. Afin d'améliorer l'estimation de la conductivité thermique, une perspective est d'utiliser le modèle auto-cohérent trois phases [CL79 ; Her02] décrivant l'impact de sphères composites concentriques dans un milieu homogène équivalent.

Comme $(\kappa_{a,y})_{3D}(\rho_{3D} = 0) = 1$ et que la valeur $(\kappa_{a,y})_{3D}((\rho_{3D})_{max})$ a été évaluée avec la borne inférieure de Hashin-Shtrikman (tableau 5.8), un deuxième modèle pour $(\kappa_{a,y})_{3D}$ s'exprime alors comme :

$$(\kappa_{a,y})_{3D} = 1 - 3,83 \rho_{3D} \quad (5.5)$$

En conclusion, des simulations 2D et 3D ont été réalisées et un modèle 3D (équation 5.5) a été proposé. La représentativité des simulations et du modèle est évaluée par la suite.

2. Ce modèle conduit à une conductivité thermique sphérique (identique dans les trois directions de l'espace). Dans notre cas, comme seul l'impact de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique $(\kappa_{a,y})_{3D}$ pour un chargement thermique selon \mathbf{u}_y nous intéresse, nous avons fait le choix de ne présenter que cette composante du tenseur de conductivité thermique.

5.3.2. Étude de la représentativité des modèles proposés associés à la porosité d'assemblage

Afin de valider les simulations réalisées et le modèle 3D proposé (équation 5.5), nous avons choisi de les comparer aux estimations $\kappa_{a,y}$ associées aux mesures de diffusivité thermique réalisées à 50 °C pour un chargement thermique selon \mathbf{u}_y (équation 3.21). Les incertitudes maximales associées aux mesures expérimentales ont été calculées de façon identique à celles présentées dans la section 4.3.3.

Les densités de fissures associées aux mesures expérimentales ont été évaluées à l'aide de Crackcut sur des coupes des céramiques UO_2 (section 4.2.3.1) tandis que celles associées aux modèles numériques ont été évaluées avec Crackcut sur une coupe à $z = 329 \text{ vox}$ de cette microstructure (section 5.2).

L'incertitude maximale $\Delta\kappa_{a,y}$ pour le modèle proposé (équation 5.5) s'exprime de la façon suivante :

$$\kappa_{a,y} = m \Delta\rho_{3D} \quad (5.6)$$

où m est la pente du modèle proposé qui est présenté dans l'équation 5.5 ($m = 3,83$) et $\Delta\rho_{3D}$ l'écart-type associé à la densité de fissures évaluée à partir des microstructures synthétiques (section 5.2).

La figure 5.10 présente la comparaison des simulations 3D et du modèle proposé (équation 5.5) avec les estimations de $\kappa_{a,y}$ associées aux mesures de diffusivité thermique par méthode Flash (section 2.3.2).

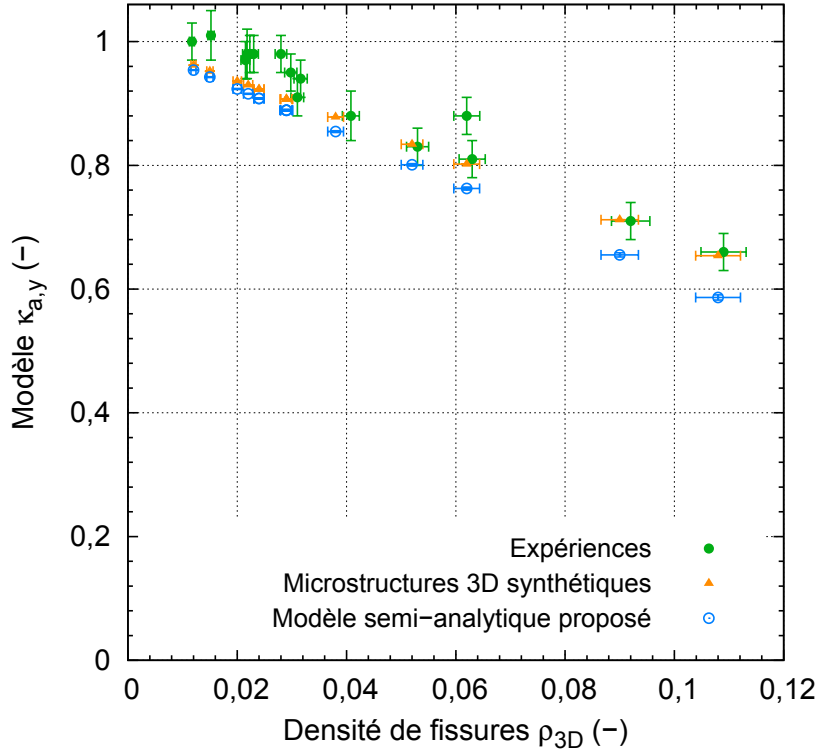


FIGURE 5.10. – Comparaison des simulations 3D réalisées sur les microstructures synthétiques et du modèle semi-analytique 3D proposé (équation 5.5) aux estimations associées aux mesures expérimentales

Nous avons supposé que les modèles présentés sur la figure 5.10 possèdent des lois d'occurrence uniformes. Les incertitudes de la figure 5.10 sont données pour un intervalle de confiance de 95 %.

La discussion sur les points associés aux mesures expérimentales (équation 3.21) qui sont définis sous l'appellation « Expériences » sur la figure 5.10 est présentée dans la section 4.3.3. Pour rappel, à faibles densités de fissures, le modèle associé à la porosité occluse proposé sous-estime l'impact de cette famille de pores ce qui conduit à des valeurs de $\kappa_{a,y}$ non physiques ($\kappa_{a,y} > 1$). De plus, l'échantillon à $\rho_{3D} = 0,062$ et $\kappa_{a,y} = 0,84$ présente de forts arrachements ce qui induit une augmentation artificielle de ρ_{3D} . Les perspectives associées à ces deux points sont présentées dans la section 4.3.3.

Un écart relatif allant jusqu'à 7 % est observé sur la figure 5.10 entre le comportement thermique prédit par le modèle obtenu par des simulations numériques 3D et l'impact $\kappa_{a,y}$ associé aux mesures de diffusivité thermique. Il apparaît de plus un écart relatif maximal de 13 % entre le modèle $\kappa_{a,y}$ associé aux mesures expérimentales et le modèle proposé à partir de la borne inférieure du comportement thermique de la microstructure synthétique où les fissures représentent l'intégralité du réseau de joints de cellules (équation 5.5). La modélisation de $(\kappa_{a,y})_{3D}$ est donc améliorée par rapport au modèle précédent (section 4.3.3) où l'écart relatif maximal observé est de 14 %. Cela signifie donc que la répartition spatiale des pores d'assemblage autour des granulats UO_2 joue un rôle important dans l'impact de ces pores sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 . Ces résultats montrent donc que la densité de fissures et la répartition

spatiale des pores d'assemblage autour de granulats UO_2 impactent au premier ordre la conductivité thermique des céramiques UO_2 .

De la même façon que dans la section 4.3.4, nous avons choisi d'évaluer la représentativité des flux thermiques modélisés lors d'un calcul FFT 2D sur une coupe numérique à $z = 329 \text{ vox}$ en les comparant à des simulations FFT 2D réalisées sur des coupes de céramiques UO_2 obtenues par microscopie optique présentant une densité de fissures identique à celle de la microstructure synthétique. Pour comparer les simulations FFT 2D, nous avons choisi d'évaluer le comportement thermique des coupes des céramiques UO_2 sur une surface identique aux coupes numériques soit $1 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$ sachant que la dimension caractéristique des échantillons est de 1 mm (section 2.2.1.1). Les coupes étudiées ont été sélectionnées de telle façon que leur densité de fissures soit identique à celle évaluée sur la surface totale.

Les densités de fissures associées aux simulations FFT 2D réalisées sur les coupes des céramiques UO_2 ont été évaluées à l'aide de Crackcut (section 4.2.3.1) tandis que celles associées aux calculs FFT 2D ont été évaluées avec Crackcut sur la coupe à $z = 329 \text{ vox}$ de cette microstructure (section 5.2) pour un chargement thermique selon l'axe \mathbf{u}_y .

L'incertitude de $(\kappa_{a,y})_{2D}$ associée aux microstructures réelles a été évaluée sur les coupes de deux échantillons UO_2 à différentes positions z des coupes normales à l'axe \mathbf{u}_z . Les coupes étudiées sont les mêmes que celles utilisées sur la figure 4.12. En supposant une loi d'occurrence uniforme pour ce paramètre, l'incertitude relative de $(\kappa_{a,y})_{2D}$ vaut 6 % pour un intervalle de confiance de 95 %. L'incertitude relative de $(\kappa_{a,y})_{2D}$ associée aux coupes $z = 329 \text{ vox}$ des microstructures synthétiques est présentée au début de la section 5.3.1.

La figure 5.11 présente la comparaison des simulations FFT 2D sur les coupes des céramiques UO_2 et les simulations 2D réalisées.

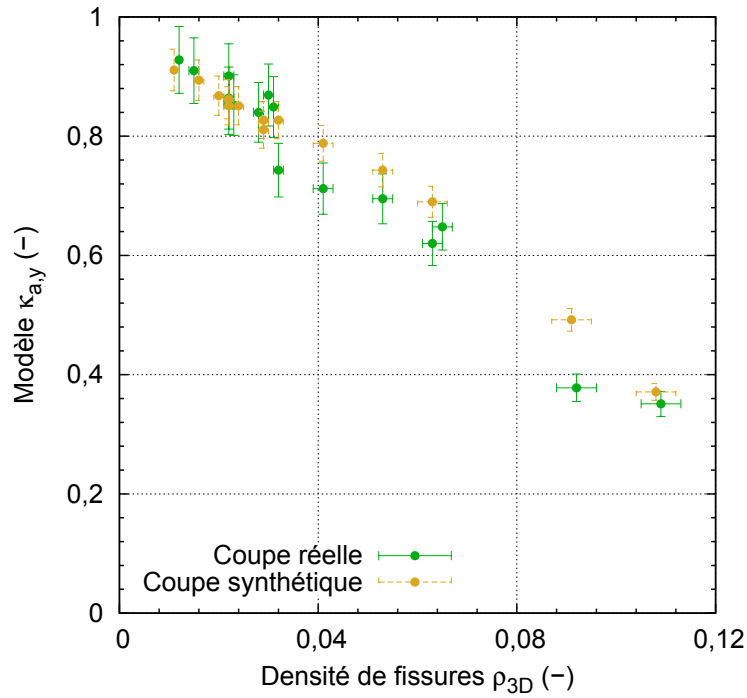
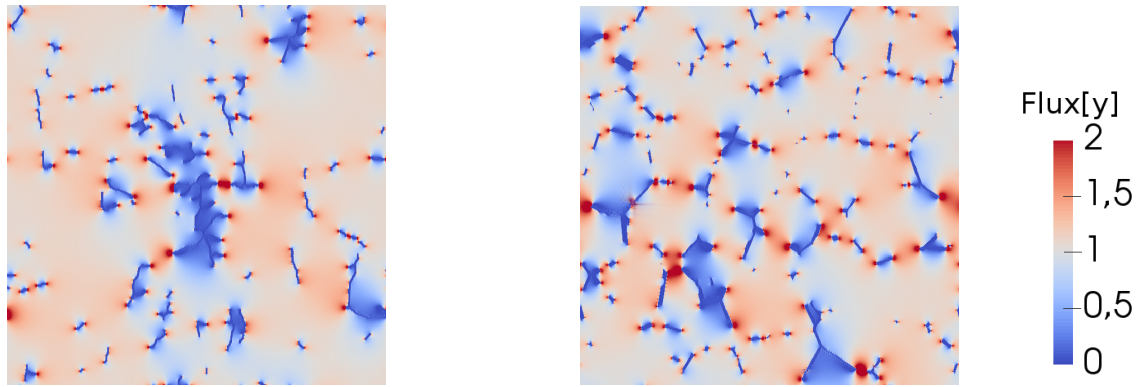


FIGURE 5.11. – Étude de la représentativité des simulations 2D réalisées sur des coupes en $z = 329 \text{ pix}$ des microstructures synthétiques par comparaison à celles réalisées sur des coupes réelles

Un écart relatif allant jusqu'à 30 % est observé entre le comportement thermique prédit sur les coupes des microstructures synthétiques et celui associé aux coupes des céramiques UO_2 obtenues par microscopie optique. Cet écart est plus important que les écarts observés en 3D (figure 5.10). Pour expliquer ces écarts, une perspective est de réaliser une étude de l'impact de la zone où est extraite la coupe de $1 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$ sur les résultats FFT 2D obtenus.

Afin d'évaluer l'origine des écarts observés entre les modèles et les points de comparaison utilisés, nous avons étudié la répartition locale du flux thermique lors d'un chargement thermique selon \mathbf{u}_y sur des coupes des céramiques UO_2 et des coupes en $z = 329 \text{ vox}$ des microstructures synthétiques.

La figure 5.12 illustre la comparaison des cartes normalisées de flux associées à une coupe d'une microstructure réelle et à une coupe d'une microstructure synthétique pour un chargement thermique selon \mathbf{u}_y .



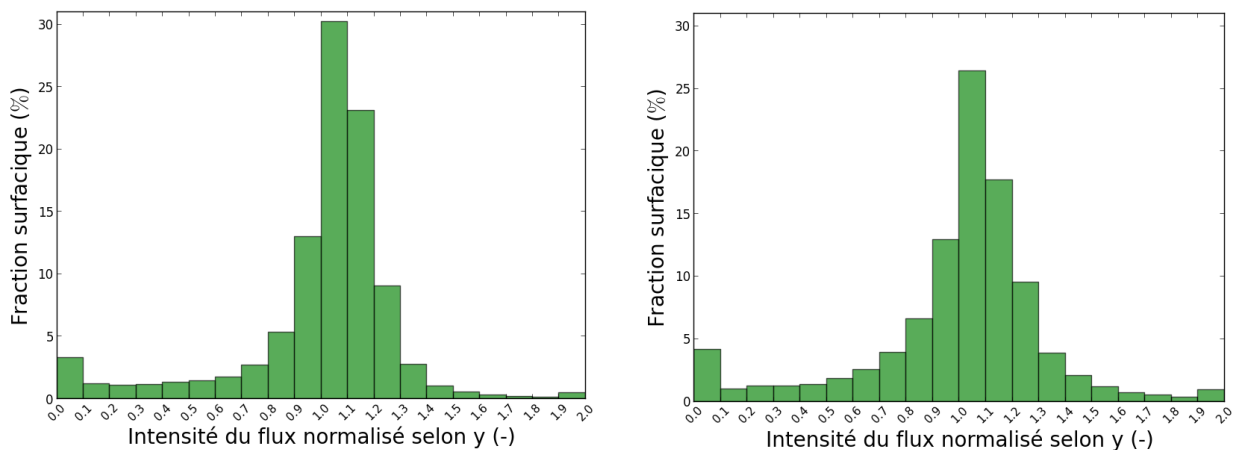
(a) Microstructure réelle (figure 5.7a)
($\bar{\sigma} = 0,784 W/m^2$)

(b) Microstructure synthétique
(figure 5.7c)
($\bar{\sigma} = 0,747 W/m^2$)

FIGURE 5.12. – Cartes de flux normalisées par le flux thermique moyen $\bar{\sigma}$ obtenues par FFT 2D avec un chargement thermique selon \mathbf{u}_y sur des coupes de microstructures réelle et synthétique

La carte normalisée de flux associée à la microstructure synthétique (figure 5.12b) présente des zones mortes par rapport au flux thermique comme celle de la céramique E_8 (figure 5.12a). Comme expliqué dans la section 4.3.4, la prise en compte de la répartition spatiale des fissures distribuées de façon aléatoire autour de cellules dans la modélisation proposée (sections 5.1 et 5.2) permet donc modéliser des zones mortes contrairement au modèle où les fissures sont réparties de façon aléatoire.

Pour quantifier la répartition du flux thermique des microstructures de la figure 5.12, les histogrammes associés aux cartes normalisées de flux ont été évalués (figure 5.13).



(a) Microstructure réelle (figure 5.12a)

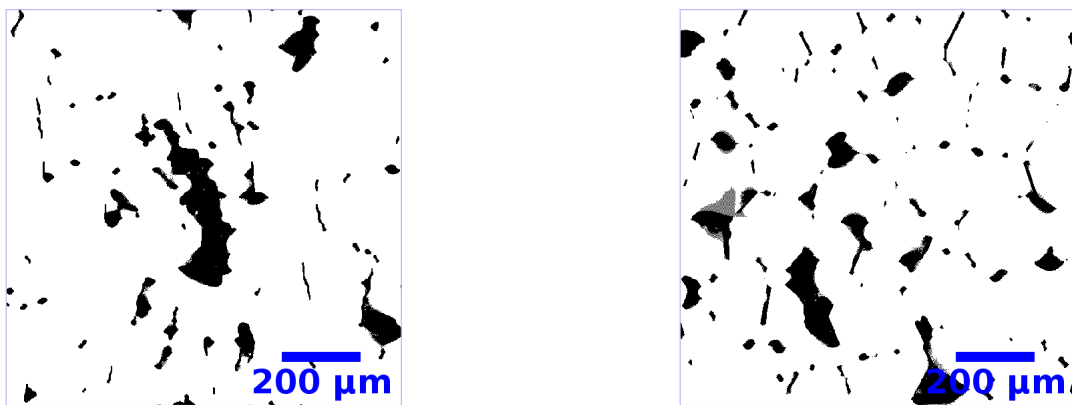
(b) Microstructure synthétique (figure 5.12b)

FIGURE 5.13. – Histogrammes de flux associés aux cartes normalisées de flux de la figure 5.12 obtenues par FFT 2D avec un chargement thermique imposé selon \mathbf{u}_y

Les histogrammes associés aux deux microstructures possèdent une allure similaire. La ma-

majorité des pixels présente des valeurs de flux normalisé proches de 1, c'est-à-dire un flux proche du flux moyen. On retrouve l'étalement de l'histogramme pour les faibles valeurs de flux (zones mortes) pour les deux microstructures (réelle et synthétique).

Au vu des cartes normalisées de flux de la figure 5.12, nous avons choisi de considérer les microstructures étudiées non plus comme étant constituées d'un réseau de fissures réparties autour de granulats UO_2 inclus dans une matrice mais comme un ensemble d'inclusions représentant les zones mortes incluses dans une matrice. Pour obtenir cette représentation, nous avons seuillé les zones mortes sur les cartes normalisées de flux (figure 5.12) avec une valeur de flux normalisé faible. La valeur seuil de flux retenue est de $Flux[y] = 0,5$. La figure 5.14 présente la représentation des cartes de flux de la figure 5.12 avec ce seuil.



(a) Microstructure associée à la figure 5.12a

(b) Microstructure associée à la figure 5.12b

FIGURE 5.14. – Seuillage avec $Flux[y] = 0,5$ des cartes normalisées de flux de la figure 5.12

Le seuillage avec $Flux[y] = 0,5$ fait apparaître de nouvelles « microstructures » sur la figure 5.14 où les pixels noirs sont associées aux zones mortes vis-à-vis du flux thermique et les pixels blancs aux zones où le flux circule.

Sur la figure 5.14, la fraction surfacique associée aux zones mortes pour la microstructure synthétique est de 8,01 % contre 8,97 % pour la microstructure réelle soit un écart relatif de 12 %. La quantité de zones mortes présentes dans la microstructure synthétique est donc bien similaire à celles des microstructures réelles. Pour compléter l'étude des cartes normalisées de flux, il serait nécessaire d'étudier la morphologie, la distribution angulaire et la répartition spatiale de ces zones mortes.

Notons cependant la présence de zones grises observées sur la figure 5.14 qui sont induites par les oscillations numériques du flux thermique étant donné que les études FFT n'ont pas été réalisées avec filtrage (section 2.3.3.2). Il faut donc garder en mémoire que les fractions surfaciques c_a évaluées par seuillage des cartes de flux sont biaisées par les oscillations de la réponse thermique. Pour quantifier le biais lié aux oscillations numériques et poursuivre l'étude des cartes normalisées de flux, une perspective est de réaliser les calculs FFT en utilisant un filtre (section 2.3.3.2).

5.3.3. Évaluation du modèle développé donnant l'influence de la porosité totale

Pour rappel, l'influence κ_y de l'ensemble du réseau poreux présent dans les céramiques, constitué de la porosité occluse et de la porosité d'assemblage, est évaluée à l'aide d'un modèle double échelle (équation 3.1) dans lequel :

- Un modèle $\kappa_{occ,y}$ donnant l'influence de la porosité occluse sur la conductivité thermique a été développé (section 4.3.3) et dépend d'un seul paramètre descripteur qui est la fraction volumique de porosité occluse. Ce paramètre est identifié à la fraction volumique de porosité fermée qui est mesurée par imbibition dans du bromobenzène (section 2.1.3).
- Le modèle $\kappa_{a,y}$ optimal donnant l'influence de la porosité d'assemblage a été développé à partir de simulations 3D sur des microstructures synthétiques et fait intervenir la densité de fissures évaluée par le plug-in Crackcut ainsi que la répartition spatiale de ces pores autour de granulats.

L'incertitude maximale $\Delta\kappa_y$ associée à ce modèle s'exprime de la façon suivante :

$$\Delta\kappa_y = \kappa_{a,y} \Delta\kappa_{occ,y} + \kappa_{occ,y} \Delta\kappa_{a,y} \quad (5.7)$$

où $\Delta\kappa_{occ,y}$ et $\Delta\kappa_{a,y}$ sont respectivement les écarts-types associés à l'impact de la porosité occluse (expression présentée dans la section 3.3.3) et de la porosité d'assemblage sur la conductivité thermique. Nous avons choisi de considérer que le modèle développé présente une loi d'occurrence uniforme, l'incertitude pour un intervalle à 95 % de confiance est pris comme 95 % de l'incertitude maximale estimée (équation 5.7).

Nous avons choisi de comparer ce modèle proposé à l'influence de l'ensemble du réseau poreux sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 obtenue à partir de mesures de diffusivité thermique α_y à 50 °C (équation 2.4). Les paramètres du modèle associé aux mesures expérimentales sont la fraction volumique de porosité totale c_T qui est évaluée par mesure par imbibition (section 2.1.3) et la diffusivité thermique des céramiques 100 % denses dont l'estimation optimale est présentée dans la section 4.3.3. L'incertitude maximale $\Delta\kappa_y$ associée aux mesures expérimentales s'exprime comme :

$$\frac{\Delta\kappa_y}{\kappa_y} = \frac{\Delta\alpha_y}{\alpha_y} + \frac{\Delta\alpha_{100\%}}{\alpha_{100\%}} + \frac{\Delta c_T}{1 - c_T} \quad (5.8)$$

où $\Delta\alpha_y$, $\Delta\alpha_{100\%}$ et Δc_T sont respectivement les écarts-types associées à la diffusivité thermique des céramiques étudiées (section 2.3.1), la diffusivité thermique des céramiques UO_2 100 % denses (section 4.3.3) et la fraction volumique de porosité totale (section 2.1.3). En supposant que la loi d'occurrence de ce modèle est uniforme, l'incertitude pour un intervalle de confiance à 95 % vaut 95 % de l'incertitude maximale estimée pour ce modèle (équation 5.8).

Enfin, pour apprécier l'amélioration du modèle κ_y proposé (début de la section 5.3.3), nous avons choisi de le comparer aux modèles classiques. À titre illustratif de ces modèles qui dépendent tous de la fraction volumique c_T de porosité totale, nous explicitons ici l'expression d'un modèle classique [IAE66] :

$$\kappa_y = 1 - 2,5 c_T \quad (5.9)$$

L'incertitude maximale associée à ce modèle classique vaut $\Delta\kappa_y = 2,5 \Delta c_T$. Comme ce modèle dépend uniquement de la fraction volumique de porosité totale dont la loi d'occurrence est gaussienne, nous avons considéré que c'est aussi le cas pour ce modèle et que l'incertitude pour

un intervalle de confiance à 95 % vaut deux fois l'incertitude maximale évaluée.

Le tableau ci-dessous présente deux échantillons présentant la même fraction volumique c_T et des valeurs de diffusivité thermique différentes avec des intervalles de confiance sur les valeurs obtenues de 95 %.

Nom de l'échantillon		E_8	E_7
Fraction volumique c_T de porosité totale (%)		$4,1 \pm 0,1$	$4,1 \pm 0,1$
Diffusivité thermique à 50 °C (mm^2/s)		$2,76 \pm 0,08$	$2,46 \pm 0,07$
κ_y (-)	Mesures expérimentales	$0,87 \pm 0,02$	$0,78 \pm 0,02$
	Modèle développé	$0,86 \pm 0,01$	$0,77 \pm 0,02$
	Modèle classique (équation 5.9)	$0,9 \pm 0,3$	$0,9 \pm 0,3$

TABLEAU 5.9. – Estimation de l'amélioration du modèle κ_y des céramiques UO_2 à l'aide du modèle développé dans cette étude (début de section 5.3.3) par rapport au modèle classique

Dans le tableau 5.9, le modèle classique présenté (équation 5.9) prédit une dégradation thermique identique pour les deux céramiques étudiées. En fait, comme tous les modèles classiques dépendent uniquement de c_T , ils estiment tous un comportement identique pour ces deux échantillons. Cependant, les valeurs de diffusivité thermique associées aux céramiques présentées sur le tableau 5.9 sont différentes. Le modèle développé lors de cette étude (début de section 5.3.3) permet, quant à lui, d'avoir une meilleure estimation de l'influence du réseau de porosité sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 . Contrairement aux modèles classiques, le modèle proposé (présenté au début de la section 5.3.3) prend en compte les deux familles de pores présents dans les céramiques UO_2 au travers de différents paramètres qui les décrivent : la fraction volumique de la porosité occluse, la densité de fissures associée aux pores d'assemblage ainsi que la répartition spatiale de cette famille de pores autour de granulats. Le modèle proposé permet donc de rendre compte des différences de comportement thermique entre les deux microstructures du tableau 5.9. Le modèle proposé dans cette étude est donc plus représentatif du comportement thermique des céramiques UO_2 que les modèles classiques.

Sur le tableau 5.9, pour les échantillons E_8 et E_7 , l'écart relatif aux mesures expérimentales est de 1 % pour les deux échantillons avec le modèle proposé contre respectivement 3 % et 15 % avec le modèle classique (équation 5.9). De façon plus générale, les comportements thermiques de 15 échantillons UO_2 ont été évalués à l'aide du modèle proposé donnant l'impact de la porosité sur la conductivité thermique. Un écart relatif aux mesures expérimentales allant jusqu'à 7 % a été évalué avec le modèle proposé contre 33 % au maximum avec le modèle classique présenté (équation 5.9) et celui associé aux expériences.

5.4. Conclusions du chapitre

Dans ce chapitre, nous avons :

- mis en place un protocole de génération de microstructures synthétiques constituées de cellules autour desquelles sont réparties des fissures distribuées de façon aléatoire,
- montré que la réponse thermique des microstructures synthétiques est fortement impactée par la taille des cellules autour desquelles sont réparties les fissures,

- optimisé les valeurs des paramètres d'entrée de ce protocole afin de modéliser les réseaux de pores d'assemblage répartis autour de granulats UO_2 qui ont été observés sur les coupes obtenues par microscopie optique,
- réalisé des simulations donnant la réponse thermique 3D et 2D des microstructures synthétiques optimisées 3D obtenues ainsi que celle de coupes associées. Ces modèles dépendent de la densité de fissures et de leur répartition spatiale.
- proposé un modèle analytique basé sur la borne inférieure de Hashin-Shtrikman (équation 5.5),
- analysé les cartes de flux normalisées 2D des microstructures réelles et synthétiques afin d'évaluer si le flux thermique 2D des microstructures synthétiques est représentatif de celui des microstructures réelles (section 5.3.2).
- proposé un modèle donnant l'impact de l'ensemble du réseau poreux des céramiques UO_2 sur la conductivité thermique de ces matériaux qui est nettement plus proche de l'expérience que les modèles standard existants.

Plusieurs perspectives d'amélioration sont envisagées suite à ce chapitre :

- Afin de compléter l'étude du protocole de génération des microstructures synthétiques proposé, il serait intéressant d'étudier l'impact du choix de ces germes sur l'ensemble des paramètres de génération choisis et des réponses thermiques associées. Pour cela, il est envisagé de considérer un autre nuage de germes et d'appliquer à nouveau la méthodologie de sélection de ces paramètres présentée dans les sections 5.1 et 5.2.
- Comme les simulations dépendent fortement de la taille des granulats, une perspective est d'étudier par imagerie 2D et 3D la taille des granulats sur plusieurs échantillons pour mieux estimer la taille des cellules des microstructures synthétiques.
- L'estimation de l'épaisseur critique des joints de cellules (section 5.1.3) pourrait être optimisée en modifiant la méthodologie qui a permis de déterminer cette valeur critique d'épaisseur en développant par exemple une routine afin d'estimer exactement l'épaisseur e_p pour laquelle les traces des fissures sont d'épaisseur supérieure ou égale à 2 pixels sur les coupes.
- Afin d'avoir un modèle analytique plus représentatif du comportement thermique des simulations, une idée serait de représenter la microstructure extrême où 100 % de la surface externe des cellules est recouverte de fissures à l'aide d'un autre modèle que celui de Maxwell comme le modèle auto-cohérent trois phases [CL79 ; Her02] décrivant l'impact de sphères composites concentriques dans un milieu homogène équivalent.
- Une perspective serait de développer un modèle donnant l'impact des zones mortes sur la conductivité thermique à partir d'une analyse des cartes de flux normalisées (comme la figure 5.14). Pour étudier ces cartes, il est nécessaire d'abord de relancer les calculs FFT en utilisant un filtrage pour éviter les biais liés aux oscillations numériques de la réponse thermique (section 2.3.3.2).

Conclusions

Dans cette étude, nous nous sommes intéressés à la caractérisation de la dégradation de la conductivité thermique engendrée par le réseau de porosité présent dans les céramiques UO_2 à 50 °C.

Des céramiques UO_2 vierges ont été fabriquées afin de modéliser la microstructure des combustibles nucléaires, à l'état vierge et irradié. Ces céramiques présentent des réseaux poreux très différents en termes de fractions volumiques de porosité. Les modèles classiques, dépendant seulement de la fraction volumique de porosité totale, ne permettent pas de décrire le comportement thermique des céramiques UO_2 fabriquées et étudiées ici.

Le réseau de porosité affectant les céramiques UO_2 a été caractérisé par imagerie à plusieurs échelles (microscopie optique, microscopie électronique, micro-tomographie). Cette caractérisation nous a conduit à représenter le réseau de pores des céramiques à l'aide de deux familles de porosité :

- la porosité occluse dont les pores peuvent être représentés à l'aide de sphéroïdes quasi-sphériques de demi grand-axe inférieur à 30 μm . La répartition spatiale de ces pores a été supposée aléatoire.
- la porosité d'assemblage est composée de pores très allongés et répartis autour de granulats UO_2 . La longueur caractéristique de ces pores a été estimée à 0,1 mm et leur épaisseur est de l'ordre de 1 μm . Cette famille de pores présente de plus une distribution angulaire quasi-isotrope avec un léger alignement de la normale de ces pores avec l'axe selon lequel la céramique est pressée lors de sa fabrication.

Un modèle double-échelle a été développé par homogénéisation pour prendre en compte l'impact de ces deux familles de pores sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 .

À noter que les pores constituant la porosité d'assemblage s'apparentent à des sphéroïdes de type « disque ». Nous avons montré que représenter ces objets volumiques par des objets plans (des fissures « penny-shape ») présente l'avantage d'éviter d'avoir à caractériser l'épaisseur de ces objets (longueur du petit axe dans la représentation sphéroïde), grandeur difficile à caractériser précisément. La représentation simplifiée de la porosité d'assemblage par des fissures réduit donc les erreurs de caractérisation tout en préservant leur principal effet sur le comportement thermique de la céramique : la porosité d'assemblage constitue des obstacles surfaciques au flux de chaleur.

Une méthodologie de traitement d'images a été développée lors de cette étude afin de caractériser la densité de fissures associée à la porosité d'assemblage d'une céramique UO_2 à partir d'une coupe de ce matériau obtenue par microscopie optique. Nous avons montré que les propriétés thermiques des céramiques étudiées sont bien une fonction décroissante de la densité de fissures. De ce point de vue, la densité de fissures est un paramètre descripteur nettement plus pertinent que la fraction volumique de porosité ouverte.

Le modèle proposé suite à cette étude donne l'impact de la porosité sur la conductivité thermique. Comme les modèles classiques, ce modèle se présente comme un coefficient pondérateur de la conductivité de la céramique dense. En revanche, ce coefficient pondérateur est à présent

le produit de deux modèles, donnant chacun l'impact d'une famille de pores, où :

- l'impact de la porosité occluse sur la conductivité thermique a été évalué à partir de mesures de diffusivité thermique réalisées à 50 °C par méthode Flash sur des céramiques présentant des densités de fissures faibles ($\rho_{3D} \leq 0,02$). Ce modèle dépend de la fraction volumique de porosité occluse identifiée à celle de la porosité fermée qui a été mesurée par imbibition. Le modèle a été développé à partir de l'étude d'une trentaine d'échantillons constituant en réalité uniquement 8 lots de céramiques.
- l'impact de la porosité d'assemblage a été évalué à l'aide de simulations FFT sur des modélisations numériques de réseaux de fissures réparties autour de cellules pour des densités de fissures comprises entre 0,009 et 0,109. La taille des cellules a été prise similaire à celle des granulats UO_2 autour desquels sont répartis les pores d'assemblage. Les ingrédients de ce modèle ont été optimisés afin que les densités de fissures évaluées par traitement d'images sur des coupes de la céramique UO_2 et sur les coupes de la microstructure synthétique soient identiques. Ce modèle montre l'impact de la densité des fissures représentatives de la porosité d'assemblage mais également le rôle décisif de la répartition spatiale de ces fissures autour des granulats.

De nombreux calculs par FFT en 2D ou en 3D ont été effectués lors de cette étude. A l'instar d'études antérieures à ce sujet, nous avons montré que pour que les fissures représentatives de la porosité d'assemblage puissent être considérées comme des barrières thermiques par la FFT, elles doivent avoir une épaisseur supérieure à 1 pixel en 2D et à 1 voxel en 3D.

Finalement, un écart relatif s'élevant au maximum à 7% est observé entre le modèle proposé dans cette étude et les mesures expérimentales de diffusivité thermique réalisées sur les céramiques fabriquées contre 33% avec un modèle classique. La modélisation de l'impact de la porosité sur la conductivité thermique des céramiques UO_2 a donc été nettement améliorée dans cette étude. Cette nette amélioration découle d'une meilleure compréhension des paramètres microstructuraux impactant la conductivité thermique dans ce type de matériaux.

À l'issue de ce travail, plusieurs perspectives sont proposées afin d'améliorer le modèle développé.

Il serait tout d'abord nécessaire de poursuivre la caractérisation par imagerie 2D et 3D de la morphologie des pores occlus en concentrant les caractérisations sur des échantillons présentant une faible fraction volumique de porosité ouverte. On aimerait ainsi confirmer que la morphologie des pores occlus est bien identique à celle des pores observés par imagerie 3D sur deux échantillons de deux lots de fabrication différents dans notre étude. Pour cela, il faudrait observer ces pores avec une résolution spatiale inférieure à 30 nm. Il faudrait également multiplier le nombre d'échantillons étudiés afin d'avoir une vision plus représentative de l'ensemble des céramiques. Il faudrait enfin s'assurer que, même à fraction volumique de porosité ouverte quasi-nulle, on ne trouve pas des traces de la porosité d'assemblage aux joints de granulats, notre étude ayant démontré que ces défauts, même en faible quantité au sens de la densité de fissures, jouent un rôle important sur la conductivité thermique de l'oxyde. La fabrication de nouveaux échantillons présentant un réseau de pores essentiellement occlus sera sans doute nécessaire pour mettre en cohérence les mesures de propriétés thermiques et les caractérisations évoquées ci-dessus.

Concernant la porosité d'assemblage à présent, nous proposons de poursuivre la caractérisation de sa morphologie à l'aide d'images 3D obtenues par tomographie X sur des volumes de l'ordre de 2 mm^3 , voire plus, avec une résolution inférieure à $0,8 \mu\text{m}$. Nous pourrions ainsi déterminer sur un volume plus large et avec plus de précisions la localisation et les inter-connexions de cette porosité d'assemblage. Il est par ailleurs nécessaire d'avoir une résolution plus fine que celle utilisée dans cette étude (qui était de $0,8 \mu\text{m}$) car un doute subsiste suite à cette étude sur le fait que la résolution spatiale utilisée permette ou non d'observer les pores de façon bien résolue. En effet, une quantité significative de pores ayant une morphologie de type « agglomérée » a été extraite des images 3D caractérisées. Or, nous n'avons pas observé une quantité similaire de ce type de pores sur les coupes 2D réalisées sur le même échantillon.

En cohérence avec la méthodologie développée lors de ce travail, des simulations 2D ou 3D par FFT devront systématiquement être réalisées sur les nouvelles images obtenues à l'échelle de la porosité occluse ou de la porosité d'assemblage. Dès lors qu'on étudiera des fissures, il faudra réaliser les futurs calculs FFT avec filtrage afin de s'affranchir des oscillations observées lors de cette étude sur les cartes de flux et pouvoir ainsi mieux exploiter les cartes de flux normalisées. La comparaison de ces cartes de flux entre coupes 2D sur microstructures synthétique et microstructures réelles pourrait permettre de valider systématiquement les microstructures synthétiques modélisées. En complément, il est envisagé de réaliser des simulations par éléments finis afin de compléter l'étude numérique réalisée sur les pores d'assemblage. Cela permettrait de s'affranchir de l'artefact identifié en FFT (épaisseur des fissures) et de confirmer que les résultats obtenus en FFT ne sont pas trop impactés par la méthodologie mise en place dans cette étude afin de s'affranchir de cet artefact.

Toujours du point de vue de la simulation, la modélisation proposée prédit naturellement un effet de taille sur les propriétés thermiques de la céramique à travers la taille des cellules représentatives des granulats. Il serait intéressant de compléter plus systématiquement l'étude de ces effets de taille puis de confirmer en lien avec l'élaboration que, à densité de fissures donnée, diminuer la taille des granulats conduit bien à une amélioration des propriétés thermiques de la céramique. Pour être plus représentatif des microstructures réelles, il faudrait aussi étudier l'éventuel effet d'une distribution de taille des granulats sur nos résultats. Enfin, nous aimerions étudier l'effet de l'anisotropie induite par l'étape de pressage lors de la fabrication des céramiques UO_2 sur leur comportement thermique. Pour représenter un amincissement des granulats dans la direction de pressage, on pourrait jouer par exemple sur la distribution des germes lors de la génération des cellules.

Côté modélisation à présent, le modèle « milieu dilué » associé à la porosité occluse devra être consolidé au regard des caractérisations et expérimentations évoquées ci-dessus. Concernant la porosité d'assemblage, le modèle semi-analytique proposé dans le chapitre 5 et s'appuyant sur la borne inférieure de Hashin-Shtrikman appliquée à des granulats entièrement entourés par le réseau de fissures pourrait être amélioré en utilisant le modèle auto-cohérent trois-phases. Il faudrait en complément consolider l'estimation analytique de type surface spécifique pour estimer la fraction volumique des joints des granulats. Une autre voie de développement d'un modèle analytique consisterait à utiliser les cartes de flux obtenues par simulation numérique pour mieux caractériser les zones mortes identifiées (fraction volumique et répartition spatiale)

en fonction de la densité de fissures. En assimilant les zones mortes à des pores isolants, on pourrait ainsi développer des estimations analytiques (Hashin et Shtrikman) du comportement thermique de l'oxyde.

Enfin, pour nous rapprocher du comportement en service de ces céramiques utilisées comme combustibles nucléaires, une première étape consisterait à évaluer comment la température impacte les propriétés thermiques de ces matériaux. Pour cela, il est envisagé de réaliser une étude similaire à celle réalisée ici mais à des températures plus élevées afin d'étendre le domaine de validité du modèle proposé.

Une deuxième étape consisterait à caractériser la conductivité thermique de combustibles irradiés en lien avec l'observation de leur microstructure. En l'absence de dispositifs de mesure de la conductivité thermique sur matériau irradié, on pourrait tout aussi bien mesurer les propriétés élastiques de ces combustibles (mesures acoustiques par exemple), la méthodologie de modélisation - simulation développée dans ce travail pour prédire les propriétés thermiques étant entièrement transposable aux calculs des propriétés élastiques.

Bibliographie

- [AWJ15] B. ABDALLAH, F. WILLOT et D. JEULIN. « Stokes flow through a Boolean model of spheres : Representative volume element ». In : *Transport in porous media* 109.3 (2015), p. 711-726 (cf. p. 73).
- [Ant91] M. ANTONINI. « Transformée en ondelettes et compression numérique des images ». Thèse de doct. Nice, 1991 (cf. p. 41).
- [Arg08] I. ARGANDA-CARRERAS. « Skeletonize (2D/3D) ». 2008. URL : <https://imagej.net/Skeletonize3D> (cf. p. 89).
- [Arg+10] I. ARGANDA-CARRERAS, R. FERNANDEZ-GONZALEZ, A. MUNOZ-BARRUTIA et al. « 3D reconstruction of histological sections : Application to mammary gland tissue ». In : *Microscopy Research and Technique* 73.11 (2010), p. 1019-1029 (cf. p. 162).
- [Arg+17] I. ARGANDA-CARRERAS, V. KAYNIG, C. RUEDEN et al. « Trainable Weka Segmentation : a machine learning tool for microscopy pixel classification ». In : *Bioinformatics* 33.15 (2017), p. 2424-2426 (cf. p. 105).
- [AWY97] R. AZENCOTT, J. P. WANG et L. YOUNES. « Texture classification using windowed Fourier filters ». In : *IEEE Transactions on Pattern Analysis & Machine Intelligence* 2 (1997), p. 148-153 (cf. p. 40).
- [BMP96] H. BAILLY, D. MENESSIER et C. PRUNIER. « Le combustible nucléaire des réacteurs à eau sous pression et des réacteurs à neutrons rapides ». In : sous la dir. de George N. FRANTZISKONIS. 1996. Chap. I and II and III (cf. p. 17, 29, 31, 76-78, 80).
- [Bar09] J. F. BARTHÉLÉMY. « Effective permeability of media with a dense network of long and micro fractures ». In : *Transport in Porous Media* 76.1 (2009), p. 153-178 (cf. p. 232).
- [Ber+10] M. J. BERGER, J. H. HUBBELL, S. M. SELTZER et al. « XCOM : Photon Cross Section Database (version 1.5) ». 2010. URL : <http://physics.nist.gov/xcom> (cf. p. 91, 96).
- [Blo12] I. BLOCH. « Morphologie mathématique et traitement d'images ». In : *Techniques de l'ingénieur Applications des mathématiques* (2012) (cf. p. 43).
- [BO02] J. BLUMM et J. OPFERMANN. « Improvement of the mathematical modeling of flash measurements ». In : *High Temperatures - High Pressures* 34 (2002), p. 515-521 (cf. p. 107).
- [BC06] S. BOLTE et F. P. CORDELIÈRES. « A guided tour into subcellular colocalization analysis in light microscopy ». In : *Journal of Microscopy* 224.3 (2006), p. 213-232 (cf. p. 99, 118, 122).
- [BBG01] M. BORNERT, T. BRETHERAU et P. GILORMINI. *Homogénéisation en mécanique des matériaux 1 - Matériaux aléatoires élastiques et milieux périodiques*. Traité MIM - Mécanique et Ingénierie des Matériaux. Paris : Hermès Science Publications, 2001 (cf. p. 52, 61, 64-66).

- [Bro+16] L. D. BROWN, R. ABDULAZIZ, B. TJADEN et al. « Investigating microstructural evolution during the electroreduction of UO_2 to U in LiCl-KCl eutectic using focused ion beam tomography ». In : *Journal of Nuclear Materials* 480 (2016), p. 355-361 (cf. p. 37).
- [BO76] B. BUDIANSKY et R.J. O'CONNELL. « Elastic moduli of a cracked solid ». In : *International Journal of Solids and Structures* 12 (1976), p. 81-97 (cf. p. 155, 157).
- [BB08] W. BURGER et M. J. BURGE. *Digital Image Processing : An Algorithmic Introduction Using Java*. 1^{re} éd. Texts in Computer Science. London : Springer-Verlag, 2008 (cf. p. 41).
- [Cai+95] L. CAILLOT, P. P. MALGOUYRES, F. SOUCHON et al. « Thermal and in-pile densification of MOX fuels : Some recent results ». In : *IAEA TCM on Recycling of Plutonium and Uranium in Water Reactor Fuel, Newby Bridge, Windermere, UK* (1995), p. 3-7 (cf. p. 81).
- [CP15] C. CALVO-JURADO et W. J. PARNELL. « Hashin-Shtrikman bounds on the effective thermal conductivity of a transversely isotropic two-phase composite material ». In : *Journal of Mathematical Chemistry* 53.3 (2015), p. 828-843 (cf. p. 57, 64).
- [CL63] J. A. CAPE et G. W. LEHMAN. « Temperature and finite pulse time effects in the Flash method for measuring thermal diffusivity ». In : *Journal of Applied Physics* 34 (1963), p. 1909-1913 (cf. p. 29).
- [Car+01] J. J. CARBAJO, G. L. YODER, S. G. POPOV et al. « A review of the thermophysical properties of MOX and UO_2 fuels ». In : *Journal of Nuclear Materials* 299.3 (2001), p. 181-198 (cf. p. 22).
- [CHP09] E. CASTELIER, T. HELFER et J. PACULL. *Spécifications d'un code de thermomécanique avec résolution par transformées de Fourier rapides*. Rapp. tech. SESC/LSC NT 09-045 - Indice 0. CEA, 2009 (cf. p. 39, 109).
- [Cha+18] C. CHATEAU, T. T. NGUYEN, M. BORNERT et al. « DVC-based image subtraction to detect microcracking in lightweight concrete ». In : *Strain* 54.5 (2018), e12276 (cf. p. 43).
- [Che17] Y. CHEN. « Damage mechanisms in SiC/SiC composite tubes : three-dimensional analysis coupling tomography imaging and numerical simulation ». In : (2017) (cf. p. 111).
- [Che+15] Y. CHEN, M. WANG, S. ZHOU et al. « An effective thermal conductivity model for unsaturated compacted bentonites with consideration of bimodal shape of pore size distribution ». In : *Science China Technological Sciences* 58.2 (2015), p. 369-380 (cf. p. 66).
- [CL79] R. M. CHRISTENSEN et K. H. LO. « Solutions for effective shear properties in three phase sphere and cylinder models ». In : *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 27.4 (1979), p. 315-330 (cf. p. 205, 214).
- [Coc+13] A. P. COCCO, G. J. NELSON, W. M. HARRIS et al. « Three-dimensional microstructural imaging methods for energy materials ». In : *Physical Chemistry Chemical Physics* 15.39 (2013), p. 16377-16407 (cf. p. 36).

- [Wil] « Continuum Models and Discrete Systems ». In : D. Jeulin et S. Forest (eds), 2008. Chap. Fast fourier transform computations and build-up of plastic deformation in 2d, elastic-perfectly plastic, pixelwise disordered porous media (cf. p. 72).
- [Coo88] D. W. COOPER. « Random-sequential-packing simulations in three dimensions for spheres ». In : *Physical Review A* 38.1 (1988), p. 522 (cf. p. 74).
- [CC89] M. COSTER et J. L. CHERMANT. *Précis d'analyse d'images*. 22^e éd. CNRS plus. Paris : Presses du CNRS, 1989 (cf. p. 43, 45).
- [Cru97] L. M. CRUZ-ORIVE. « Stereology of single objects ». In : *Journal of microscopy* 186.2 (1997), p. 93-107 (cf. p. 46).
- [De 02] F. DE LARRARD. *Construire en béton : l'essentiel sur les matériaux*. Collection du Laboratoire Central des Ponts et Chaussées. Presses de l'École Nationale des Ponts et Chaussées, 2002 (cf. p. 33).
- [DK02] F. DE PONTE et S. KLARSFELD. « Conductivité thermique des isolants ». In : *Techniques de l'ingénieur Mesure des grandeurs thermophysiques* (2002) (cf. p. 23-25).
- [Deg94] A. DEGIOVANNI. « Conductivité et diffusivité thermique des solides ». In : *Techniques de l'ingénieur - Mesure des grandeurs thermophysiques* (1994) (cf. p. 23, 25-27).
- [DeH62] R. T. DEHOFF. « The determination of the size distribution of ellipsoidal particles from measurements made on random plane sections ». In : *Trans. Metall. Soc. AIME* 224.3 (1962), p. 474-477 (cf. p. 46, 142).
- [DL78] J. DELAFOSSE et G. LESTIBOUDOIS. « Choix effectué par le CEA pour la fabrication des oxydes d'uranium et ses conséquences sur les performances du combustible ». In : *Colloque international sur la fabrication des éléments combustibles pour réacteurs à eau et plus spécialement son incidence sur la performance*. 1978 (cf. p. 76).
- [Den+13] B. DENG, A. CHERNATYNSKIY, P. SHUKLA et al. « Effects of edge dislocations on thermal transport in UO_2 ». In : *Journal of Nuclear Materials* 434.1 (2013). Special Section on Spent Nuclear Fuel, p. 203 -209 (cf. p. 30).
- [Des+10] L. DESGRANGES, H. PALANCHER, M. GAMALERI et al. « Influence of the U_3O_7 domain structure on cracking during the oxidation of UO_2 ». In : *Journal of Nuclear Materials* 402.2-3 (2010), p. 167-172 (cf. p. 35).
- [Dow19] R. DOWEK. « Method for characterizing the pressure in a micrometric bubble in an irradiated nuclear fuel ». *Euromat*. 2019 (cf. p. 104).
- [DDG15] M. DRAJEWICZ, K. DYCHTON et M. GORAL. « Thermal Properties of YSZ Powders for Plasma Spraying ». In : 227 (2015), p. 413-416 (cf. p. 29).
- [Dua+06] H. L. DUAN, B. L. KARIHALOO, J. WANG et al. « Effective conductivities of heterogeneous media containing multiple inclusions with various spatial distributions ». In : *Physical Review B* 73.17 (2006), 174203(13) (cf. p. 50, 59, 67, 153, 233).
- [Dub+05] R. DUBOURG, H. FAURE-GEORS, G. NICAISE et al. « Fission product release in the first two PHEBUS tests FPT0 and FPT1 ». In : *Nuclear Engineering and Design* 235.20 (2005), p. 2183 -2208 (cf. p. 32).

- [Eng69] T. K. ENGEL. « The heat capacities of Al_2O_3 , UO_2 and PuO_2 from 300 to 1100 K ». In : *Journal of Nuclear Materials* 31.2 (1969), p. 211-214 (cf. p. 22).
- [Esh57] J. D. ESHELBY. « The determination of the elastic field of an ellipsoidal inclusion, and related problems ». In : *Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences* 241.1226 (1957), p. 376-396 (cf. p. 232).
- [Fal95] E. H. B. FALL. « Extension de la méthode Flash à de hautes températures ». Thèse de doct. Université du Québec à Chicoutimi, 1995 (cf. p. 27, 106).
- [FDK84] L. A. FELDKAMP, L. C. DAVIS et J. W. KRESS. « Practical cone-beam algorithm ». In : *Journal of the optical society of America A* 1.6 (1984), p. 612-619 (cf. p. 90).
- [Fin00] J. K. FINK. « Thermophysical properties of uranium dioxide ». In : *Journal of nuclear materials* 279.1 (2000), p. 1-18 (cf. p. 22).
- [For92] M. FORTHOFFER. « Détection de contours par transformée en ondelettes et réseaux de neurones ». Thèse de doct. Université Henri Poincaré-Nancy 1, 1992 (cf. p. 41).
- [FB09] W. FOURATI et M. S. BOUHLEL. « Techniques de Débruitage d'Images ». In : *5th Int. Conf. Sciences of Electronic, Technologies of Information and Telecommunications*. 2009, p. 22-26 (cf. p. 41).
- [Fou22] J. FOURIER. *Théorie analytique de la chaleur*. Paris : Chez Firmin Didot, père et fils, 1822 (cf. p. 21).
- [Fra+98] A. F. FRANGI, W. J. NIESSEN, K. L. VINCKEN et al. « Multiscale vessel enhancement filtering ». In : *International conference on medical image computing and computer-assisted intervention*. Springer. 1998, p. 130-137 (cf. p. 43).
- [FG68] B. FRANÇOIS et R. GREMERET. « Perfectionnements apportés aux procédés pour la préparation de céramiques de matériaux tels, notamment, que des matériaux fissiles ». Brev. FR1535470 (A). 1968. URL : https://worldwide.espacenet.com/publicationDetails/biblio?locale=fr_EP&date=19680809&CC=FR&NR=1535470A&ND=5&KC=A&rnd=1511266549883&FT=D&DB=fr.worldwide.espacenet.com# (cf. p. 76, 78).
- [Gas+18a] J. B. GASNIER, F. WILLOT, H. TRUMEL et al. « Thermoelastic properties of microcracked polycrystals. Part I : Adequacy of Fourier-based methods for cracked elastic bodies ». In : *International Journal of Solids and Structures* 155 (2018), p. 248-256 (cf. p. 111, 113).
- [Gas+18b] J. B. GASNIER, F. WILLOT, H. TRUMEL et al. « Thermoelastic properties of microcracked polycrystals. Part II : The case of jointed polycrystalline TATB ». In : *International Journal of Solids and Structures* 155 (2018), p. 257-274 (cf. p. 111).
- [Ger+18] T. J. GERCZAK, C. M. PARISH, P. D. EDMONDSON et al. « Restructuring in high burnup UO_2 studied using modern electron microscopy ». In : *Journal of Nuclear Materials* 509 (2018), p. 245-259 (cf. p. 37).
- [GS99] L. A. GIANNUZZI et F. A. STEVIE. « A review of focused ion beam milling techniques for TEM specimen preparation ». In : *Micron* 30.3 (1999), p. 197-204 (cf. p. 102).

- [Gro+04] F. GRONDIN, H. DUMONTET, A. B. HAMIDA et al. « The numerical homogenization of the concrete behavior ». In : *XXI International Congress of Theoretical and Applied Mechanics*. 2004, p. 15-21 (cf. p. 70).
- [Gru+07] C. GRUESCU, A. GIRAUD, F. HOMAND et al. « Effective thermal conductivity of partially saturated porous rocks ». In : *International Journal of Solids and Structures* 44.3-4 (2007), p. 811-833 (cf. p. 66, 67).
- [GH17] Y. GUÉRIN et J. HENCKES. « Conception et fabrication de combustibles à base d'uranium ». In : *Techniques de l'ingénieur Cycle du combustible nucléaire : de la mine à la fabrication du combustible* (2017) (cf. p. 78).
- [HR79] D. L. HAGRMAN et G. A. REYMANN. *MATPRO-Version 11 : A handbook of materials properties for use in the analysis of light water reactor fuel rod behavior*. Prepared for the U.S. nuclear regulatory commission and the U.S. department of energy Idaho operations office. 1979 (cf. p. 18).
- [HS63] Z. HASHIN et S. SHTRIKMAN. « A variational approach to the theory of the elastic behaviour of multiphase materials ». In : *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 11.2 (1963), p. 127-140 (cf. p. 57, 64).
- [HHP09] S. HASSAN, F. HETROY et O. PALOMBI. « Segmentation de maillage guidée par une ontologie ». In : 2009 (cf. p. 106).
- [HFB17] B. HAY, J. R. FILTZ et J.C. BATSALE. « Mesure de la diffusivité thermique par la méthode Flash ». In : *Techniques de l'ingénieur - CND : méthodes surfaciques base documentaire : TIB586DUO.r2955* (2017) (cf. p. 28).
- [Hay+05] B. HAY, J. R. FILTZ, J. HAMEURY et al. « Uncertainty of Thermal Diffusivity Measurements by Laser Flash Method ». In : *International Journal of Thermophysics* 26.6 (2005), p. 1883-1898 (cf. p. 28, 106).
- [Hay73] J. M. HAYNES. « Stereological analysis of pore structure ». In : *Matériaux et Construction* 6.33 (1973), p. 175-179 (cf. p. 34).
- [HE14] H. HERMANN et A. ELSNER. « Geometric models for isotropic random porous media : a review ». In : *Advances in Materials Science and Engineering 2014* (2014) (cf. p. 73).
- [Her02] E. HERVÉ. « Thermal and thermoelastic behaviour of multiply coated inclusion-reinforced composites ». In : *International Journal of Solids and Structures* 39.4 (2002), p. 1041-1058 (cf. p. 205, 214).
- [Hil65] R. HILL. « A self-consistent mechanics of composite materials ». In : *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 13.4 (1965), p. 213-222 (cf. p. 65, 232).
- [HFJ86] E. L. HINRICHSEN, J. FEDER et T. JØSSANG. « Geometry of random sequential adsorption ». In : *Journal of statistical physics* 44.5-6 (1986), p. 793-827 (cf. p. 74).
- [HM85] H. HIROSHI et T. MINORU. « Effective thermal conductivity of a misoriented short fiber composite ». In : *Journal of Applied Physics* 58.7 (1985), p. 2478-2486 (cf. p. 232).

- [HM86] H. HIROSHI et T. MINORU. « Equivalent inclusion method for steady state heat conduction in composites ». In : *International Journal of Engineering Science* 24.7 (1986), p. 1159-1172 (cf. p. 232).
- [Hos17] J. HOSDEZ. « Fissuration par fatigue de fontes à graphite sphéroïdal et vermiculaire : caractérisation des effets de la plasticité et d'un vieillissement thermique ». Thèse de doct. Centrale Lille, 2017 (cf. p. 35).
- [Hua+05] J. F. HUANG, X.-R. ZENG, H.-J. LI et al. « ZrO₂-SiO₂ gradient multilayer oxidation protective coating for SiC coated carbon/carbon composites ». In : *Surface and Coatings Technology* 190.2 (2005), p. 255 -259 (cf. p. 47).
- [IAE66] *Thermal conductivity of uranium dioxide : Report of the panel on thermal conductivity of uranium dioxide (International Atomic Energy Agency)*. Rapp. tech. 59. Vienna, Austria, 1966 (cf. p. 18, 29, 30, 136, 212).
- [Ibr16] M. IBRAHIM. *Notice d'utilisation et d'utilisation de l'application VER v1.3*. Rapp. tech. SESC/LSC NT 16-023 - Indice 0. CEA, 2016 (cf. p. 109).
- [Imb79] J. F. IMBERT. *Analyse des structures par éléments finis*. 1979 (cf. p. 70).
- [IP99] M. R. ISLAM et A. PRAMILA. « Thermal conductivity of fiber reinforced composites by the FEM ». In : *Journal of Composite Materials* 33.18 (1999), p. 1699-1715 (cf. p. 70).
- [KU91] S. KASHIBE et K. UNE. « Effects of Temperature Cycling and Heating Rate on Fission Gas Release of BWR Fuels ». In : *Journal of Nuclear Science and Technology* 28.12 (1991), p. 1090 -1099 (cf. p. 32).
- [KUN93] S. KASHIBE, K. UNE et K. NOGITA. « Formation and growth of intragranular fission gas bubbles in UO₂ fuels with burnup of 6–83 GWd/t ». In : *Journal of Nuclear Materials* 206.1 (1993), p. 22 -34 (cf. p. 32).
- [KM63] M. KENDALL et P. MORAN. *Geometrical Probability*. London : Charles Griffin And Company Limited, 1963 (cf. p. 156, 157).
- [Kle58] P. G. KLEMENS. « Thermal Conductivity and Lattice Vibrational Modes ». In : *Solid State Physics* 7 (1958), p. 1-98 (cf. p. 30).
- [LZ08] C. LAUTENSACK et S. ZUYEV. « Random Laguerre tessellations ». In : *Advances in applied probability* 40.3 (2008), p. 630-650 (cf. p. 72).
- [Le 98] B. LE NEINDRE. « Mesure de la conductivité thermique des liquides et des gaz ». In : *Techniques de l'ingénieur - Mesure des grandeurs thermophysiques* (1998) (cf. p. 23, 25, 133).
- [Lec+04] J. LEHELLE, P. BLEUET, P. MARTIN et al. « μ -XANES and X-ray μ -tomography study of oxidation state, morphology, and chemistry evolution during nuclear fuel sintering ». In : *IEEE Transactions on Nuclear Science* 51.4 (2004), p. 1657-1661 (cf. p. 35).
- [LY94] D. T. L. LEE et A. YAMAMOTO. « Wavelet analysis : theory and applications ». In : *Hewlett Packard journal* 45 (1994), p. 44-52 (cf. p. 40).

- [LAA16] D. LEGLAND, I. ARGANDA-CARRERAS et P. ANDREY. « MorphoLibJ : integrated library and plugins for mathematical morphology with ImageJ ». In : *Bioinformatics* 32.22 (2016), p. 3532-3534 (cf. p. 89).
- [Lem97] F. LEMOINE. « High burnup fuel behavior related to fission gas effects under reactivity initiated accidents (RIA) conditions ». In : *Journal of Nuclear Materials* 248.Supplement C (1997), p. 238 -248 (cf. p. 32).
- [Loe54] A. L. LOEB. « Thermal conductivity : VIII, a theory of thermal conductivity of porous materials ». In : *Journal of the American Ceramic Society* 37.2 (1954), p. 96-99 (cf. p. 17).
- [LPSan] M. LONGAIR, S. PREIBISCH et J. SCHINDELIN. « "Tubeness" : plugin for ImageJ ». NaN. URL : <https://www.longair.net/edinburgh/imagej/tubeness/> (cf. p. 98).
- [Lou10] K. LOUKHAOUKHA. « Tatouage numérique des images dans le domaine des ondelettes basé sur la décomposition en valeurs singulières et l'optimisation multi-objective ». In : (2010) (cf. p. 41).
- [Lö00] P. LÖSÖNEN. « On the behaviour of intragranular fission gas in UO₂ fuel ». In : *Journal of Nuclear Materials* 280.1 (2000), p. 56 -72 (cf. p. 32).
- [LD60] C. F. LUCKS et H. W. DEEM. « Thermal Conductivity and electrical conductivity of UO₂ ». In : *Progress Relating to Civilian Applications during June, 1960*. Battelle Memorial Inst., Columbus, Ohio, 1960, p. 7-9 (cf. p. 18).
- [MSN67] J. B. MACEWAN, R. L. STOUTE et M. J. F. NOTLEY. « Effect of porosity on the thermal conductivity of UO₂ ». In : *Journal of Nuclear Materials* 24 (1967), p. 109-112 (cf. p. 18).
- [MMB00] D. MAILLET, C. MOYNE et Rémy B. « Effect of a thin layer on the measurement of the thermal diffusivity of a material by a flash method ». In : *International Journal of Heat and Mass Transfer* 43.21 (2000), p. 4057-4060 (cf. p. 106).
- [Man01] A. MANOURY. « Tatouage d'images numériques par paquets d'ondelettes ». Thèse de doct. 2001 (cf. p. 41).
- [Mar71] G. P. MARINO. « The porosity correction factor for the thermal conductivity of ceramic fuels ». In : *Journal of Nuclear Materials* 38.2 (1971), p. 178-190 (cf. p. 18).
- [MBS00] A.-M. MATACHE, I. BABUŠKA et C. SCHWAB. « Generalized p-FEM in homogenization ». In : *Numerische Mathematik* 86.2 (2000), p. 319-375 (cf. p. 70).
- [Mat67] G. MATHERON. *Éléments pour une théorie des milieux poreux*. Paris : Masson et cie., 1967 (cf. p. 43).
- [Mat75] G. MATHERON. « Random sets and integral geometry ». In : (1975) (cf. p. 73).
- [Max73] J. C. MAXWELL. *Treatise on Electricity and Magnetism*. Oxford : Clarendon Press, 1873 (cf. p. 60, 65, 70, 233).
- [Mey19] J. MEYNARD. *Mise en place d'un protocole d'essai au laboratoire Navier pour caractériser le réseau de porosité d'un combustible UO₂ par tomographie par absorption de rayons X*. Rapp. tech. SESC/LSC NT 19-001 - Indice 0. CEA, 2019 (cf. p. 243).

- [Mic+13] B. MICHEL, C. NONON, J. SERCOMBE et al. « Simulation of pellet-cladding interaction with the pleiades fuel performance software environment ». In : *Nuclear Technology* 182.2 (2013), p. 124-137 (cf. p. 109).
- [Min89] H. MINKOWSKI. « Volumen und oberfläche ». In : *Ausgewählte Arbeiten zur Zahlentheorie und zur Geometrie*. Springer, 1989, p. 146-192 (cf. p. 44).
- [Mø192] J. MØLLER. « Random Johnson-Mehl tessellations ». In : *Advances in applied probability* 24.4 (1992), p. 814-844 (cf. p. 72).
- [MK47] G. E. MOORE et K. K. KELLEY. « High-Temperature Heat Contents of Uranium, Uranium Dioxide and Uranium Trioxide ». In : *Journal of the American Chemical Society* 69.9 (1947), p. 2105-2107 (cf. p. 22).
- [MM71] J. P. MOORE et D. L. MCELROY. « Thermal conductivity of nearly stoichiometric single-crystal and polycrystalline UO_2 ». In : *Journal of the American Ceramic Society* 54.1 (1971), p. 40-46 (cf. p. 18).
- [MS98] H. MOULINEC et P. SUQUET. « A numerical method for computing the overall response of nonlinear composites with complex microstructure ». In : *Computer methods in applied mechanics and engineering* 157.1-2 (1998), p. 69-94 (cf. p. 70, 72).
- [Mou+06] G. MOUNAJED, F. GRONDIN, H. DUMONTET et al. « Digital concrete : A multi-scale approach for the concrete behavior ». In : *Journal of Computational Methods in Sciences and Engineering* 6.5, 6 (2006), p. 325-337 (cf. p. 70).
- [Mun09] P. R. MUNROE. « The application of focused ion beam microscopy in the material sciences ». In : *Materials characterization* 60.1 (2009), p. 2-13 (cf. p. 39, 40, 102, 104).
- [NHM01] S. NEUMANN, K. P. HERRMANN et W. H. MÜLLER. « Fourier transforms—An alternative to finite elements for elastic-plastic stress-strain analyses of heterogeneous materials ». In : *Acta mechanica* 149.1-4 (2001), p. 149-160 (cf. p. 72).
- [Ngu10] T. K. NGUYEN. « Numerical homogenization of periodic structures by Fourier transform : composite materials and porous media ». Thèse de doct. Université Paris-Est, 2010 (cf. p. 70).
- [Noi09] J. NOIROT. « Nuclear Fuels ». In : DEN Monographs. Paris : CEA Saclay et Groupe Moniteur (Editions du Moniteur), 2009. Chap. In-reactor behavior of UO_2 and MOX fuels, p. 17-20 (cf. p. 32, 79).
- [NDL08] J. NOIROT, L. DESGRANGES et J. LAMONTAGNE. « Detailed characterisations of high burn-up structures in oxide fuels ». In : *Journal of Nuclear Materials* 372.2-3 (2008), p. 318-339 (cf. p. 79).
- [NZB18] J. NOIROT, I. ZACHARIE-AUBRUN et T. BLAY. « Focused ion beam-scanning electron microscope examination of high burn-up UO_2 in the center of a pellet ». In : *Nuclear Engineering and Technology* 50.2 (2018), p. 259-267 (cf. p. 37, 79).
- [Oda82] M. ODA. « Fabric tensor for discontinuous geological materials ». In : *Soils and Foundations* 22.4 (1982), p. 96-108 (cf. p. 153).

- [Oda84] M. ODA. « Similarity rule of crack geometry in statistically homogeneous rock masses ». In : *Mechanics of Materials* 3.2 (1984), p. 119-129 (cf. p. 153).
- [ON88] M. ODA et H. NAKAYAMA. « Introduction of inherent anisotropy of soils in the yield function ». In : *Studies in Applied Mechanics*. T. 20. Elsevier, 1988, p. 81-90 (cf. p. 153, 158, 159).
- [ONM82] M. ODA, S. NEMAT-NASSER et M. M. MEHRABADI. « A statistical study of fabric in a random assembly of spherical granules ». In : *International Journal for Numerical and analytical methods in Geomechanics* 6.1 (1982), p. 77-94 (cf. p. 153).
- [Ogu82] M. OGUMA. « Microstructure Effects on Fracture Strength of UO₂ Fuel Pellets ». In : *Journal of Nuclear Science and Technology* 19.12 (1982). (cf. p. 49, 50, 120, 141), p. 1005-1014 (cf. p. 30).
- [Oll+13] J. OLLION, J. COCHENNEC, F. LOLL et al. « TANGO : a generic tool for high-throughput 3D image analysis for studying nuclear organization ». In : *Bioinformatics* 29.14 (2013), p. 1840-1841 (cf. p. 117).
- [Pak+14] J. PAKARINEN, M. KHAFIZOV, L. HE et al. « Microstructure changes and thermal conductivity reduction in UO₂ following 3.9 MeV He²⁺ ion irradiation ». In : *Journal of Nuclear Materials* 454.1-3 (2014), p. 283-289 (cf. p. 80).
- [Pap+07] J. PAPIN, B. CAZALIS, J.M. FRIZONNET et al. « Summary and Interpretation of the CABRI REP-Na Program ». In : *Nuclear Technology* 157.3 (2007), p. 230-250 (cf. p. 32).
- [Par+61] W. J. PARKER, R. J. JENKINS, C. P. BUTLER et al. « Flash method of determining thermal diffusivity, heat capacity and thermal conductivity ». In : *Journal of Applied Physics* 32.9 (1961), p. 1679-1684 (cf. p. 27, 28).
- [Par16] W. J. PARNELL. « The Eshelby, Hill, moment and concentration tensors for ellipsoidal inhomogeneities in the Newtonian potential problem and linear elastostatics ». In : *Journal of Elasticity* 125.2 (2016), p. 231-294 (cf. p. 132, 151, 180, 232).
- [PJ06] E. PARRA-DENIS et D. JEULIN. « Modélisation morphologique 3D des particules intermétalliques dans les alliages d'aluminium ». In : *Matériaux 2006* (2006) (cf. p. 252).
- [Pin15] J. PINOT. « Détermination de la porosité de roches calcaires : méthode et incertitude de mesure ». In : *Revue française de métrologie* 37.1 (2015), p. 37-53 (cf. p. 33).
- [Pok+17] R. POKHAREL, D. W. BROWN, B. CLAUSEN et al. « Non-Destructive Characterization of UO_{2+x} Nuclear Fuels ». In : *Microscopy Today* 25.6 (2017), p. 42-47 (cf. p. 35).
- [PW95] P. PONTE CASTAÑEDA et J. R. WILLIS. « The effect of spatial distribution on the effective behavior of composite materials and cracked media ». In : *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 43.12 (1995), p. 1919-1951 (cf. p. 65-69).
- [Pou04] A. POUPON. « Voronoi and Voronoi-related tessellations in studies of protein structure and interaction ». In : *Current opinion in structural biology* 14.2 (2004), p. 233-241 (cf. p. 73).

- [QW87] M. QUINTARD et S. WHITAKER. « Écoulement monophasique en milieu poreux : effets des hétérogénéités locales ». In : *Journal de Mécanique théorique et appliquée (Journal of theoretical and applied mechanics)* 6.5 (1987), p. 691-726 (cf. p. 48).
- [Ran+03] R. RANTA, V. LOUIS-DORR, C. HEINRICH et al. « Débruitage par ondelettes et segmentation de signaux non-stationnaires : réinterprétation d'un algorithme itératif et application à la phonoentérographie ». In : *Traitement du signal* 20.2 (2003), p. 119-135 (cf. p. 41).
- [RTM91] I. L. F. RAY, H. THIELE et H. MATZKE. « Fundamental Aspects of Inert Gases in Solids ». In : sous la dir. d'Evans J.H. DONNELLY S.E. T. 279. NATO ASI Series (Series B : Physics). Springer, Boston, MA, 1991. Chap. Fission Gas Behaviour during Power Transients in High Burn-Up LWR Nuclear Fuels Studied by Electron Microscopy (cf. p. 32).
- [Rei+13] P. REISCHIG, A. KING, L. NERVO et al. « Advances in X-ray diffraction contrast tomography : flexibility in the setup geometry and application to multiphase materials ». In : *Journal of Applied Crystallography* 46.2 (2013), p. 297-311 (cf. p. 35).
- [Rén63] A. RÉNYI. « Car parking problem ». In : *Sel. Trans. Math. Stat. Prob* 4 (1963), p. 205 (cf. p. 74).
- [Reu29] A. REUSS. « Berechnung der Fließgrenze von Mischkristallen auf Grund der Plastizitätsbedingung für Einkristalle. » In : *ZAMM - Journal of Applied Mathematics and Mechanics / Zeitschrift für Angewandte Mathematik und Mechanik* 9.1 (1929), p. 49-58 (cf. p. 56).
- [Rhe75] S. K. RHEE. « Porosity—Thermal conductivity correlations for ceramic materials ». In : *Materials Science and Engineering* 20, Supplément C.3 (1975), p. 89-93 (cf. p. 30).
- [Ric+14] A. RICHARD, E. CASTELIER, H. PALANCHER et al. « Multi-scale X-ray diffraction study of strains induced by He implantation in UO₂ polycrystals ». In : *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms* 326 (2014), p. 251-255 (cf. p. 35).
- [Rio93] O. RIOUL. « Ondelettes régulières : application à la compression d'images fixes ». Thèse de doct. Télécom ParisTech, 1993 (cf. p. 41).
- [RU72] J. T. A. ROBERTS et Y. UEDA. « Influence of Porosity on Deformation and Fracture of UO₂ ». In : *Journal of the American Ceramic Society* 55.3 (1972), p. 117-124 (cf. p. 30).
- [Rob98] G. ROBLIN. « Microscopie optique ». In : *Techniques de l'ingénieur Métrologie optique et photonique* (1998) (cf. p. 34).
- [Ros60] A. M. ROSS. *The dependence of the thermal conductivity of uranium dioxide on density, microstructure, stoichiometry and thermal-neutron irradiation*. Rapp. tech. Atomic Energy of Canada Ltd., Chalk River, Ontario (Canada), 1960 (cf. p. 18).
- [SP98] D. L. SAHAGIAN et A. A. PROUSSEVITCH. « 3D particle size distributions from 2D observations : stereology for natural applications ». In : *Journal of Volcanology and Geothermal Research* 84.3-4 (1998), p. 173-196 (cf. p. 142).

- [Sal58] S. A. SALTYKOV. « Stereometric Metallography. 2nd ». In : *Ed., Metallurgizdat, Moscow* 1958 (1958) (cf. p. 142).
- [Sch+12] J. SCHINDELIN, I. ARGANDA-CARRERAS, E. FRISE et al. « Fiji : an open-source platform for biological-image analysis ». In : *Nature Methods* 9.7 (2012), p. 676-682 (cf. p. 88, 97, 104, 161).
- [SMK17] M. SCHNEIDER, D. MERKERT et M. KABEL. « FFT-based homogenization for microstructures discretized by linear hexahedral elements ». In : *International Journal for Numerical Methods in Engineering* 109.10 (2017), p. 1461-1489 (cf. p. 70).
- [SOK16] M. SCHNEIDER, F. OSPALD et M. KABEL. « Computational homogenization of elasticity on a staggered grid ». In : *International Journal for Numerical Methods in Engineering* 105.9 (2016), p. 693-720 (cf. p. 72).
- [Sch34] H. A. SCHWARTZ. « The metallographic determination of the size distribution of temper carbon nodules ». In : *Metals Alloys* 5 (1934), p. 139 (cf. p. 142).
- [SK00] B. SHAFIRO et M. KACHANOV. « Anisotropic effective conductivity of materials with nonrandomly oriented inclusions of diverse ellipsoidal shapes ». In : *Journal of Applied Physics* 87.12 (2000), p. 8561-8569 (cf. p. 150, 153).
- [Sor+06] E. SORLIER, C. COLIN, H. SELAMI et al. « Elaboration de gradients de composition continue dans des taillants PDC ». In : *Matériaux 2006*. Dijon, France, 2006 (cf. p. 47).
- [Sou14] J. SOULACROIX. « Approche micromécanique du comportement du combustible dioxyde d'uranium ». Thèse de doct. Paris, ENSAM, 2014 (cf. p. 73).
- [ST67] G. S. SPRINGER et S. W. TSAI. « Thermal conductivities of unidirectional materials ». In : *Journal of Composite Materials* 1.2 (1967), p. 166-173 (cf. p. 56).
- [SL85] K. STEPHAN et A. LAESECKE. « The thermal conductivity of fluid air ». In : *Journal of physical and chemical reference data* 14.1 (1985), p. 227-234 (cf. p. 110, 180, 188).
- [Str41] J. A. STRATTON. *Electromagnetic Theory*. New York : McGraw-Hill, 1941 (cf. p. 232).
- [TST91] J. TALBOT, P. SCHAAF et G. TARJUS. « Random sequential addition of hard spheres ». In : *Molecular Physics* 72.6 (1991), p. 1397-1406 (cf. p. 74).
- [TOO83] M. TANEMURA, T. OGAWA et N. OGITA. « A new algorithm for three-dimensional Voronoi tessellation ». In : *Journal of Computational Physics* 51.2 (1983), p. 191-207 (cf. p. 73).
- [Tan+09] O. TANKYEVYCH, H. TALBOT, P. DOKLÁDAL et al. « Direction-adaptive grey-level morphology. Application to 3D vascular brain imaging ». In : *2009 16th IEEE International Conference on Image Processing (ICIP)*. IEEE. 2009, p. 2261-2264 (cf. p. 43).
- [Tor02] S. TORQUATO. *Random Heterogeneous Materials : Microstructure and Macroscopic Properties*. 1^{re} éd. T. 16. Interdisciplinary Applied Mathematics. Springer-Verlag New York, 2002 (cf. p. 73, 135, 139, 232, 233).

- [TUS06] S. TORQUATO, O. U. UCHE et F. H. STILLINGER. « Random sequential addition of hard spheres in high Euclidean dimensions ». In : *Physical Review E* 74.6 (2006), p. 061308 (cf. p. 73, 74, 187).
- [Und73] E. E. UNDERWOOD. « Microstructural Analysis ». In : sous la dir. de J.L. MCCALL et W.M. MUELLER. Springer, Boston, MA, 1973. Chap. Quantitative Stereology for Microstructural Analysis, p. 35-66 (cf. p. 142).
- [VS70] J. C. VAN CRAEYNEST et J. P. STORA. « Effet de la porosité sur la variation de conductibilité thermique du bioxyde d'uranium en fonction de la température : Application à l'oxyde mixte (UPu) 02, 00 à 20% PuO₂ ». In : *Journal of Nuclear Materials* 37.2 (1970), p. 153-158 (cf. p. 18).
- [Van92] C. VAN LOAN. *Computational frameworks for the fast Fourier transform*. T. 10. Society for Industrial et Applied Mathematics, 1992 (cf. p. 70).
- [VO16] G. L. VIGNOLES et A. ORTONA. « Numerical study of effective heat conductivities of foams by coupled conduction and radiation ». In : *International Journal of Thermal Sciences* 109 (2016), p. 270-278 (cf. p. 35).
- [VMS09] P. G. VINCENT, Y. MONERIE et P. SUQUET. « Porous materials with two populations of voids under internal pressure : I. Instantaneous constitutive relations ». In : *International Journal of Solids and Structures* 46.3 (2009), p. 480 -506 (cf. p. 32).
- [Voi89] W. VOIGT. « Ueber die Beziehung zwischen den beiden Elasticitätsconstanten isotroper Körper ». In : *Annalen der Physik* 274.12 (1889), p. 573-587 (cf. p. 56).
- [Vor08] G. VORONOI. « Nouvelles applications des paramètres continus à la théorie des formes quadratiques. Deuxième mémoire. Recherches sur les paralléloèdres primitifs. » In : *Journal für die reine und angewandte Mathematik* 134 (1908), p. 198-287 (cf. p. 73).
- [Wal01] J. WALTER. « ImageJ Bandpass Filter ». 2001. URL : <https://biii.eu/imagej-bandpass-filter> (cf. p. 98).
- [Whi69] S. WHITAKER. « Advances in the Theory of Fluid Motion in Porous Media ». In : *Industrial & Engineering Chemistry* 12 (1969), p. 14-28 (cf. p. 48).
- [Wie12] O. WIENER. « Die Theorie des Mischkörpers für das Feld des stationären Stromung ». In : *Abhandlungen der mathematisch-physikalischen Klasse der königlichen sächsischen Gesellschaft der Wissenschaften* 32 (1912), p. 209-604 (cf. p. 55, 58, 65, 66).
- [Wil15] F. WILLOT. « Fourier-based schemes for computing the mechanical response of composites with accurate local fields ». In : *Comptes Rendus Mécanique* 343.3 (2015), p. 232-245 (cf. p. 72, 113).
- [YI03] H. YOKOTA et M. IBUKIYAMA. « Effect of lattice impurities on the thermal conductivity of β -Si₃N₄ ». In : *Journal of the European Ceramic Society* 23.1 (2003), p. 55-60 (cf. p. 30).
- [Zac+98] I. ZACHARIE, S. LANSIART, P. COMBETTE et al. « Thermal treatment of uranium oxide irradiated in pressurized water reactor : Swelling and release of fission gases ». In : *Journal of Nuclear Materials* 255.2 (1998), p. 85 -91 (cf. p. 81).

- [Zan09] L. ZANINETTI. « Poissonian and non-Poissonian Voronoi diagrams with application to the aggregation of molecules ». In : *Physics Letters A* 373.36 (2009), p. 3223-3229 (cf. p. 73).
- [Zeg05] A. ZEGHADI. « Effet de la morphologie tri-dimensionnelle et de la taille de grain sur le comportement mécanique d'agrégats polycristallins ». Thèse de doct. 2005 (cf. p. 73).
- [ZT13] G. ZHANG et S. TORQUATO. « Precise algorithm to generate random sequential addition of hard hyperspheres at saturation ». In : *Physical Review E* 88.5 (2013), p. 053312 (cf. p. 73, 74).
- [ZFS01] F. ZHOU, J. F. FENG et Q. Y. SHI. « Texture feature based on local Fourier transform ». In : *Proceedings 2001 International Conference on Image Processing (Cat. No. 01CH37205)*. T. 2. IEEE. 2001, p. 610-613 (cf. p. 40).
- [Zou+02] J. ZOU, D. KOTCHETKOV, A. A. BALANDIN et al. « Thermal conductivity of GaN films : Effects of impurities and dislocations ». In : *Journal of Applied Physics* 92.5 (2002), p. 2534-2539 (cf. p. 30).

Annexes

A. Modèle analytique de type « milieu dilué » : cas d'une inclusion sphéroïdale dans un milieu infini

Considérons une inclusion ellipsoïdale notée α de conductivité thermique λ_α immergée dans une matrice infinie de conductivité thermique λ_m . Un gradient de température e^0 homogène est imposé à l'infini. Les sources de chaleur dans ce milieu sont négligées.

La loi de Fourier (équation 1.54) est vérifiée en tout point \mathbf{x} du volume V . Le gradient de température dans l'inclusion e_α est lié à celui imposé selon la relation $e_\alpha = \mathbf{A}_\alpha e^0$ (voir équation 1.47) avec \mathbf{A}_α le tenseur de localisation associé à l'inclusion ellipsoïdale α tel que [Par16; Bar09] :

$$\mathbf{A}_\alpha = \left[\mathbf{I} + \mathbf{P}_E^m (\lambda_\alpha - \lambda_m) \right]^{-1} = \left[\mathbf{I} + \mathbf{S}_E (\lambda_m)^{-1} (\lambda_\alpha - \lambda_m) \right]^{-1} \quad (\text{A.1})$$

avec \mathbf{P}_E^m est le tenseur de polarisation (appelé tenseur de Hill [Hil65] en mécanique) défini par $\mathbf{P}_E^m = \mathbf{S}_E \lambda_m^{-1}$ et \mathbf{S}_E le tenseur de dé-polarisation (équivalent du tenseur d'Eshelby [Esh57] en mécanique).

Le tenseur \mathbf{P}_E^m dépend donc de la morphologie de l'inclusion et du comportement thermique de la matrice et le tenseur \mathbf{S}_E uniquement de la morphologie de l'inclusion. Les expressions du tenseur de dé-polarisation pour une inclusion sphérique ou ellipsoïdale en thermique ont été développées dans [Str41; HM85; HM86]. Les résultats présentés ci-dessous sont détaillés dans [Tor02]. L'idée est de rappeler dans un premier temps la solution générale (inclusion ellipsoïdale), solution dont découlent les expressions du tenseur \mathbf{S}_E dans plusieurs cas.

Soit $(\mathbf{u}_1, \mathbf{u}_2, \mathbf{u}_3)$ le repère unitaire orthonormé de telle façon que les trois vecteurs soient alignés avec les demi-axes de l'inclusion α . Dans ce repère, le tenseur \mathbf{S}_E est diagonal et présente les propriétés suivantes :

$$\begin{aligned} \text{tr } \mathbf{S}_E &= 1 = \sum_{i=1}^3 (S_E)_{ii} \\ \forall i \in [1, 3] \quad (S_E)_{ii} &\geq 0 \end{aligned} \quad (\text{A.2})$$

avec $(S_E)_{ii}$ les termes diagonaux de la matrice \mathbf{S}_E dans le repère $(\mathbf{u}_1, \mathbf{u}_2, \mathbf{u}_3)$ définis comme :

$$(S_E)_{ii} = \left(\prod_{k=1}^3 \frac{a_k}{2} \right) \int_0^\infty \frac{dt}{(t + a_i^2) \sqrt{\prod_{k=1}^3 (t + a_k^2)}}, \quad i = 1, 2, 3 \quad (\text{A.3})$$

où le paramètre a_k est le demi-axe de l'ellipsoïde suivant la direction \mathbf{u}_k .

Une inclusion sphéroïdale peut être considérée comme un ellipsoïde possédant un axe de symétrie de révolution. On considère que cet axe est aligné avec l'axe \mathbf{u}_3 . La caractérisation géométrique d'une inclusion sphéroïdale α est totalement déterminée par la connaissance de deux demi-axes du fait de la symétrie de révolution. On pose alors $a = a_1 = a_2$ et $b = a_3$ les demi-axes de l'inclusion et $\omega_\alpha = \frac{b}{a}$ son facteur de forme. Le tenseur de dé-polarisation s'exprime

alors de la façon suivante :

$$\mathbf{S}_E = Q_\alpha (\mathbf{u}_1 \otimes \mathbf{u}_1 + \mathbf{u}_2 \otimes \mathbf{u}_2) + (1 - 2Q_\alpha) \mathbf{u}_3 \otimes \mathbf{u}_3 \quad (\text{A.4})$$

avec le scalaire Q_α dépendant du facteur de forme ω_α de l'inclusion sphéroïdale [Tor02] et obtenu en calculant l'intégrale de l'équation A.3 et en identifiant Q_α dans l'expression obtenue :

$$Q_\alpha = \begin{cases} \frac{1}{2} \left\{ 1 + \frac{1}{\omega_\alpha^2 - 1} \left[1 - \frac{1}{2\chi_b} \ln\left(\frac{1+\chi_b}{1-\chi_b}\right) \right] \right\} & \text{avec } \chi_b^2 = 1 - \left(\frac{1}{\omega_\alpha}\right)^2 & \text{si } \omega_\alpha \geq 1 \\ \frac{1}{2} \left\{ 1 + \frac{1}{\omega_\alpha^2 - 1} \left[1 - \frac{1}{\chi_a} \arctan(\chi_a) \right] \right\} & \text{avec } \chi_a^2 = \left(\frac{1}{\omega_\alpha}\right)^2 - 1 & \text{si } \omega_\alpha \leq 1 \end{cases} \quad (\text{A.5})$$

D'après l'équation A.4, l'information liée à la morphologie de l'inclusion (dans le cas d'une inclusion sphéroïdale) est contenue dans l'expression de Q qui dépend uniquement du facteur de forme ω_α de l'inclusion étudiée. Les expressions du scalaire Q_α seront données par la suite pour les différents cas d'intérêt pour cette étude :

- Inclusion de type « penny-shape » ($\omega_\alpha \ll 1$) : Le paramètre géométrique Q pour une inclusion sphéroïdale de type « penny-shape », c'est-à-dire une ellipse oblate dont le facteur de forme est tel que $\omega_\alpha \ll 1$, vaut [Dua+06] : $Q_\alpha = \frac{\pi\omega_\alpha}{4}$.

D'où,

$$\mathbf{S}_E = \frac{\pi\omega_\alpha}{4} (\mathbf{u}_1 \otimes \mathbf{u}_1 + \mathbf{u}_2 \otimes \mathbf{u}_2) + \left(1 - \frac{\pi\omega_\alpha}{2}\right) \mathbf{u}_3 \otimes \mathbf{u}_3 \quad (\text{A.6})$$

- Inclusion sphérique [Max73] ($\omega_\alpha = 1$) : C'est un cas particulier de l'ellipsoïde. Les demi-axes dans les trois directions de l'espace sont égaux ($a_1 = a_2 = a_3$) ce qui induit $Q_\alpha = \frac{1}{3}$. D'où, le tenseur de dé-polarisation vaut : $\mathbf{S}_E = \frac{1}{3} \mathbf{I}$ (car $\text{tr}(\mathbf{S}_E) = 1$).

Dans le cas où les tenseurs de conductivité thermiques des phases $k \in [m, \alpha]$ sont isotropes alors : $\boldsymbol{\lambda}_k = \lambda_k \mathbf{I}$. En posant le rapport du coefficient de la conductivité thermique de l'inclusion α et de celle de la matrice comme $\tau = \frac{\lambda_\alpha}{\lambda_m}$, l'expression du tenseur de localisation \mathbf{A}_α (équation A.1) devient :

$$\mathbf{A}_\alpha = \left[\mathbf{I} + (\tau - 1) \mathbf{S}_E \right]^{-1} \quad (\text{A.7})$$

Comme le tenseur de dé-polarisation est diagonal (équation A.4) dans la base $(\mathbf{u}_1, \mathbf{u}_2, \mathbf{u}_3)$, il vient alors que :

$$\mathbf{A}_\alpha = \frac{1}{1 + (\tau - 1) Q_\alpha} (\mathbf{u}_1 \otimes \mathbf{u}_1 + \mathbf{u}_2 \otimes \mathbf{u}_2) + \frac{1}{1 + (\tau - 1) (1 - 2Q_\alpha)} \mathbf{u}_3 \otimes \mathbf{u}_3 \quad (\text{A.8})$$

Nous avons choisi d'exprimer ce tenseur comme :

$$\mathbf{A}_\alpha = A_I(\omega_i, \tau) \mathbf{I} + A_3(\omega_i, \tau) \mathbf{u}_3 \otimes \mathbf{u}_3 \quad (\text{A.9})$$

avec $A_I(\omega_i, \tau) = \frac{1}{1 + (\tau - 1) Q_\alpha}$ et $A_3(\omega_i, \tau) = \frac{(\tau - 1) (1 - 3Q_\alpha)}{[1 + (\tau - 1) Q_\alpha] [1 + (\tau - 1) (1 - 2Q_\alpha)]}$.

B. Caractéristiques des céramiques UO_2 observées par microscopie optique

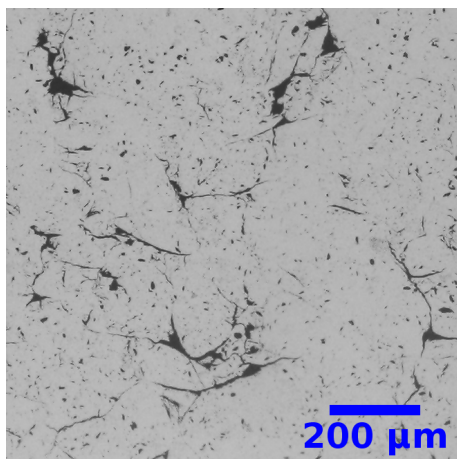
Pour rappel, les fractions volumiques de porosité totale, de porosité ouverte et de porosité fermée sont notées respectivement c_T , c_o et c_f .

Les caractéristiques microstructurales (fractions volumiques de pores et densités de fissures) et les valeurs de diffusivité thermique des céramiques UO_2 observées par microscopie optique sont présentées dans le tableau B.1.

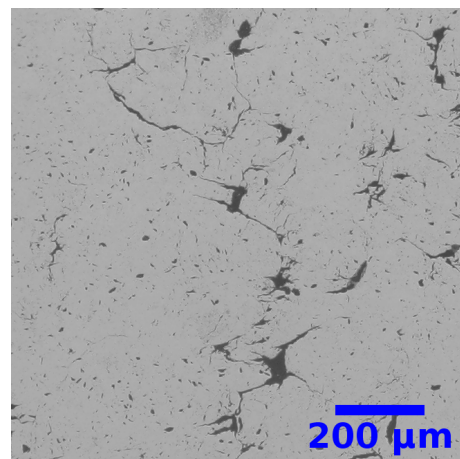
Échantillon	Fractions volumiques (%)			Diffusivité thermique α_y selon u_y à 50 °C (mm^2/s)	Densité de fissures ρ_{3D} (-)
	c_T	c_o	c_f		
$E_{1,1}$	6,2	3,1	3,1	2,611	0,041
$E_{1,2}$	6,2	3,0	3,2	2,623	0,049
$E_{1,3}$	6,1	3,0	3,1	2,625	0,054
E_2	5,6	4,7	0,9	2,078	0,109
E_3	5,0	3,5	1,5	2,678	0,062
E_4	4,6	1,1	3,5	2,842	0,022
E_5	4,5	3,5	1,0	2,197	0,092
E_6	4,5	2,1	2,4	2,796	0,032
E_7	4,1	2,7	1,4	2,461	0,063
E_8	4,1	2,5	1,6	2,759	0,031
E_9	4,1	0,5	3,6	2,901	0,015
$E_{10,1}$	3,6	1,9	1,9	2,850	0,036
$E_{10,2}$	3,6	1,8	1,8	2,845	0,030
E_{11}	3,5	2,5	1,0	2,526	0,053
$E_{12,1}$	3,1	1,4	1,7	2,915	0,021
$E_{12,2}$	3,0	1,4	1,6	2,925	0,022
$E_{12,3}$	3,0	1,4	1,6	2,927	0,028
$E_{12,4}$	3,0	1,4	1,6	2,927	0,023
E_{13}	2,9	0,9	2,0	2,957	0,012
E_{14}	2,6	0,1	2,5	3,065	0,009

TABLEAU B.1. – Fractions de porosités volumiques, diffusivité thermique à 50 °C et densités de fissures ρ_{3D} des céramiques UO_2 sélectionnées pour une caractérisation de leurs microstructures par microscopie optique

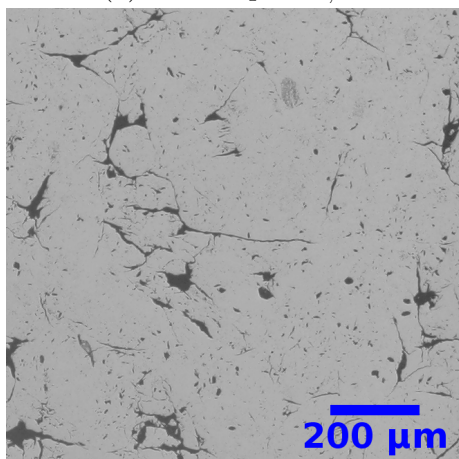
Les figures B.1, B.2, B.3 et B.4 présentent un zoom sur une coupe obtenue dans la partie centrale de chaque céramique UO_2 caractérisée par microscopie optique.



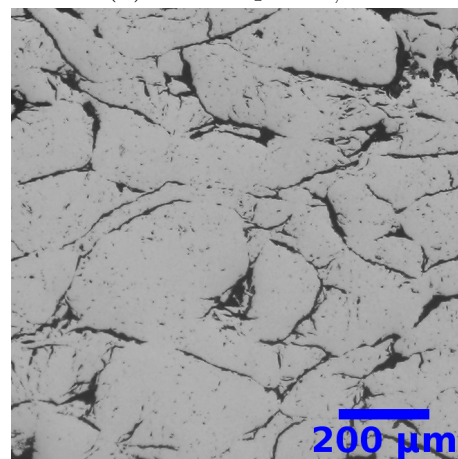
(a) Céramique $E_{1,1}$



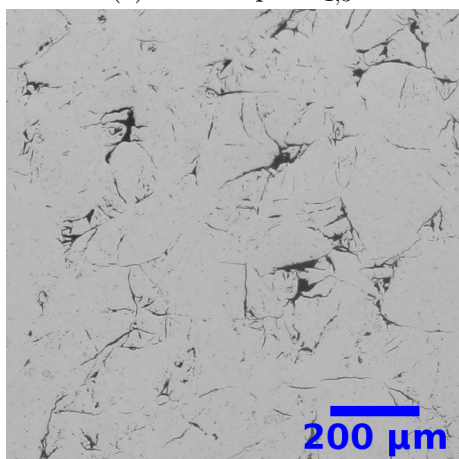
(b) Céramique $E_{1,2}$



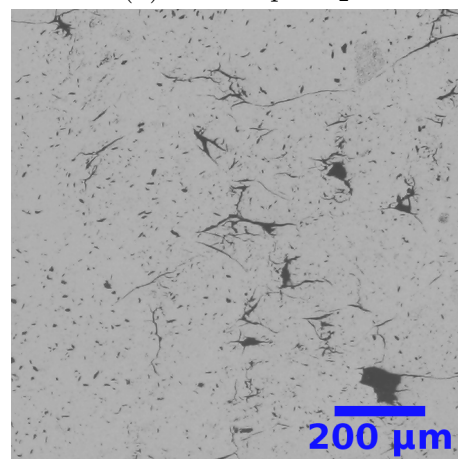
(c) Céramique $E_{1,3}$



(d) Céramique E_2

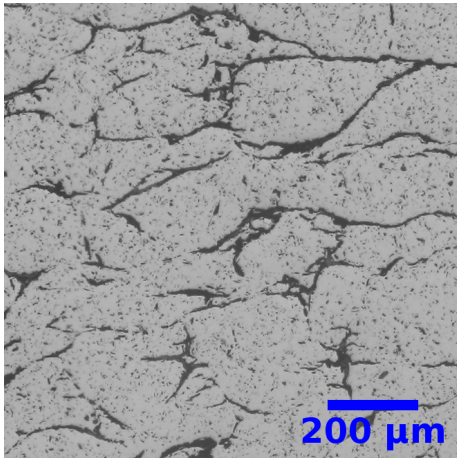


(e) Céramique E_3

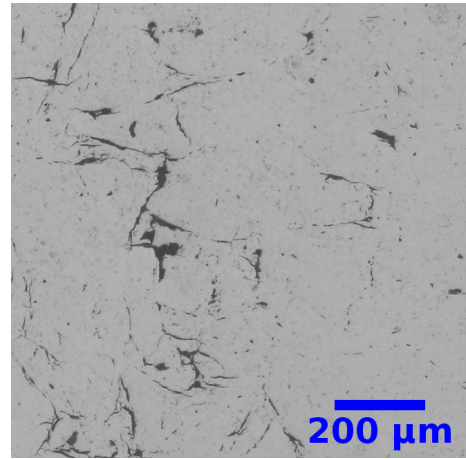


(f) Céramique E_4

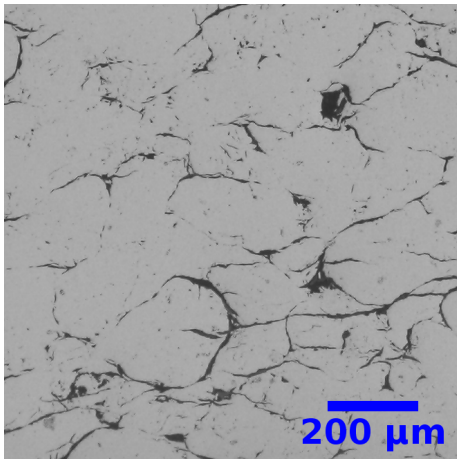
FIGURE B.1. – Zoom sur une image en niveaux de gris obtenue par microscopie pour les échantillons $E_{1,1}$, $E_{1,2}$, $E_{1,3}$, E_2 , E_3 et E_4



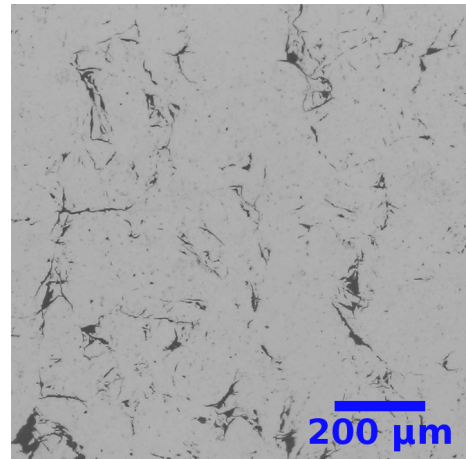
(a) Céramique E_5



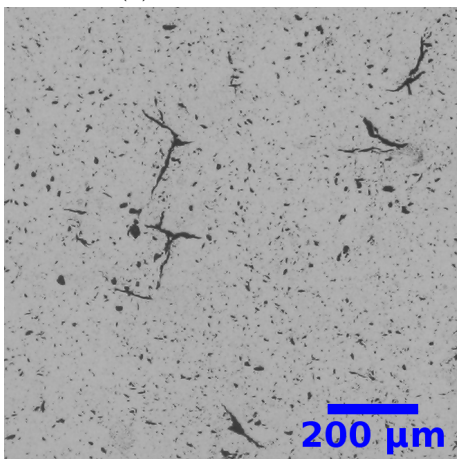
(b) Céramique E_6



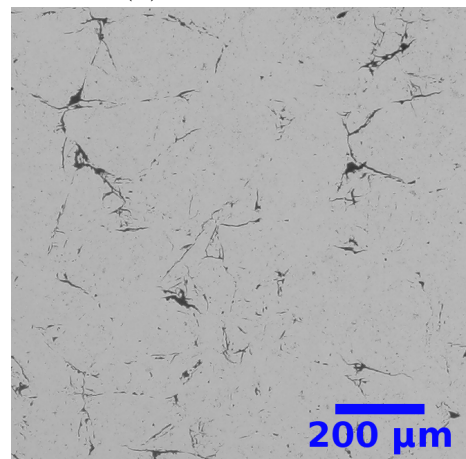
(c) Céramique E_7



(d) Céramique E_8

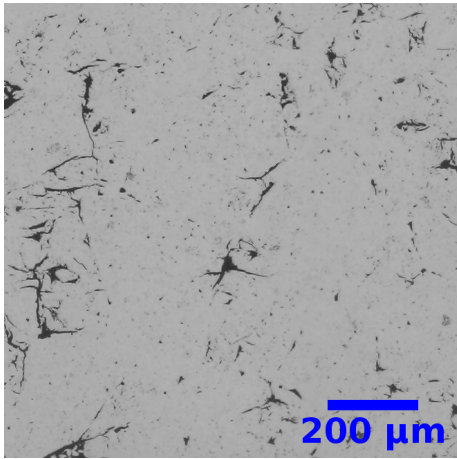


(e) Céramique E_9

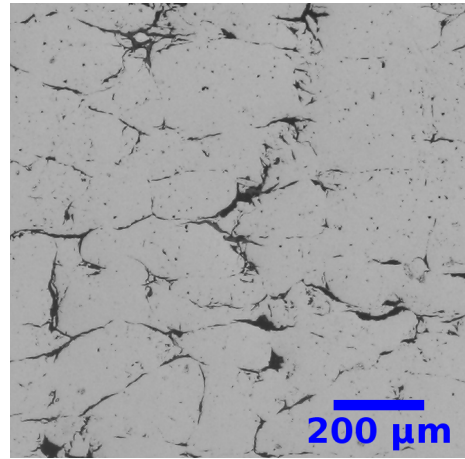


(f) Céramique $E_{10,1}$

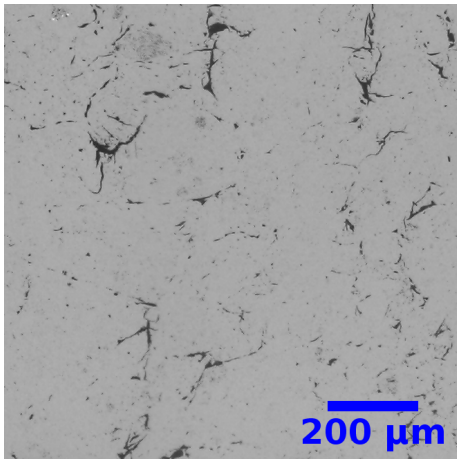
FIGURE B.2. – Zoom sur une image en niveaux de gris obtenue par microscopie pour les échantillons E_5 , E_6 , E_7 , E_8 , E_9 et $E_{10,1}$



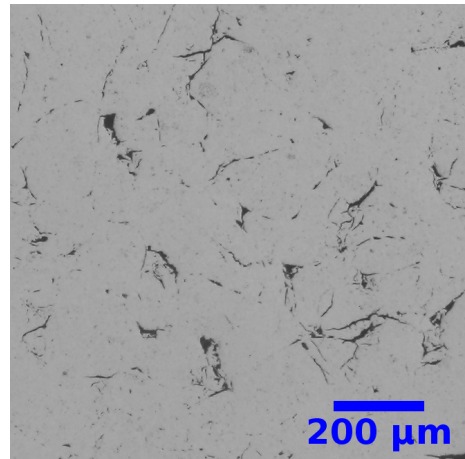
(a) Céramique $E_{10,2}$



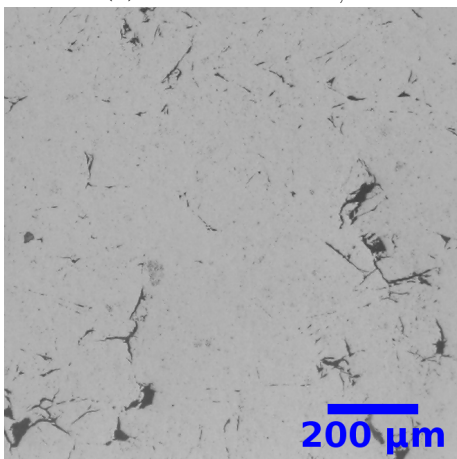
(b) Céramique E_{11}



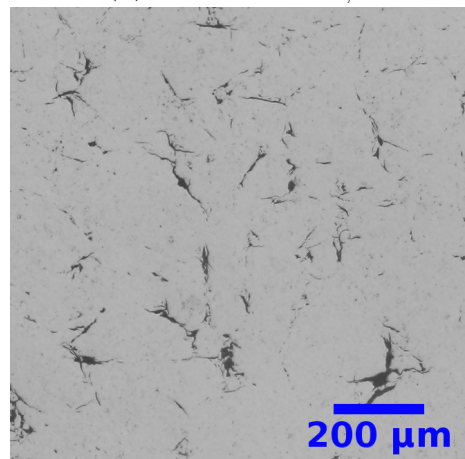
(c) Céramique $E_{12,1}$



(d) Céramique $E_{12,2}$

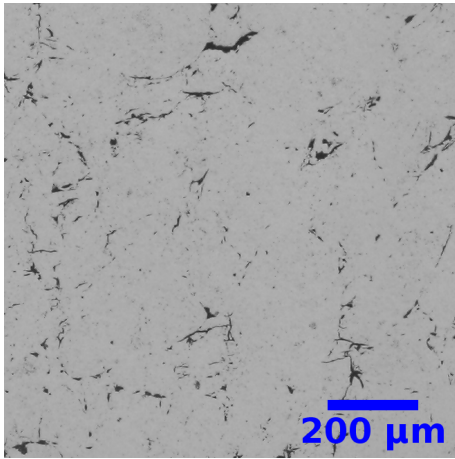


(e) Céramique $E_{12,3}$

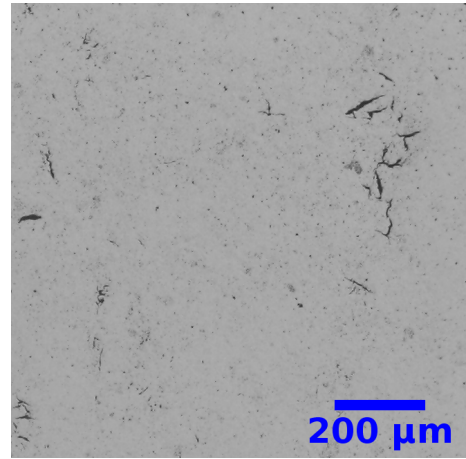


(f) Céramique $E_{12,4}$

FIGURE B.3. – Zoom sur une image en niveaux de gris obtenue par microscopie pour les échantillons $E_{10,2}$, E_{11} , $E_{12,1}$, $E_{12,2}$, $E_{12,3}$ et $E_{12,4}$



(a) Céramique E_{13}



(b) Céramique E_{14}

FIGURE B.4. – Zoom sur une image en niveaux de gris obtenue par microscopie pour les échantillons E_{13} et E_{14}

C. Conditions d'acquisition des scans de tomographie X et coupes tirées des images 3D brutes obtenues

La présentation des conditions d'acquisition évaluées a été réalisée dans la section 2.2.2.2.

L'objectif de cette annexe est de présenter l'ensemble des conditions expérimentales testées lors des campagnes de tomographie X et de présenter des coupes associées à ces scans ainsi qu'une estimation de leur rapport signal sur bruit.

Deux campagnes de tomographie ont été réalisées. Les tableaux C.1, C.2 et C.3 présentent les conditions d'acquisition des deux campagnes de tomographie réalisées.

	Conditions d'essai	1	2	3	5***	6	7
Générateur	Type de source	160 kV	160 kV	160 kV	230 kV	160 kV	160 kV
	Filament	Tungstène	Tungstène	Tungstène	Tungstène	LaB6	LaB6
	Mode de prise d'images	Scan simple	Scan simple	Scan simple	Scan simple	Scan simple	Scan simple
	Mode de focalisation	Small	Middle	Middle	4,2 W	Middle	Middle
	Tension (kV)	140	140	140	210	100	100
	Courant (µA)	50	60	60	20	50	50
	Courant de calibration (µA)	50	30	16	20	10 et 50	10 et 50
	Filtre de cuivre	/	/	/	3 mm	/	/
	Décalage "anti-anneaux"	/	/	Oui	/	/	Oui
Décteur	Mode de l'imageur (px)	1840 x 1456	940 x 748 (bin*)	1840 x 1456	960 x 768 (zoom**)	1840 x 1456	1840 x 1456
	Nombre d'images/s (Hz)	0,5	6	1,6	0,6	1	0,9
	Nombre d'images moyennées par direction de projection	1	12	32	10	16	32
Reconstruction numérique	Taille du voxel (µm)	0,8	1,6	0,8	4	0,8	0,8
	Nombre de voxels reconstruits (X x Y x Z)	882 x 1250 x 925	450 x 625 x 482	907 x 1250 x 860	186 x 574 x 211	908 x 1250 x 979	837 x 1250 x 912
	Volume reconstruit (µm ³)	705 x 1000 x 740	720 x 1000 x 771	725 x 1000 x 688	743 x 2295 x 844	726 x 1000 x 783	669 x 1000 x 729
	Durée du scan	2h24min	1h03min	12h	8h	7h14min	13h30min

TABLEAU C.1. – Conditions d'essai de la première campagne de tomographie sur un échantillon UO₂ n'appartenant pas au domaine d'étude (orientation portrait du détecteur)

* Le binning consiste à regrouper les pixels du détecteur deux à deux afin d'augmenter la qualité des images en augmentant la statistique de comptage des phonons et en diminuant le

bruit mais au prix d'une résolution réduite de moitié.

** Ce mode de l'imageur consiste à considérer la zone centrale de l'image.

*** Suite à une erreur de numérotation, il n'y a pas d'expérience 4.

	Conditions d'essai	1	2	3	4	5
	Echantillon	A	A	A	A	A
Générateur	Type de générateur	160 kV	160 kV	160 kV	160 kV	160 kV
	Filament	Tungstène	Tungstène	Tungstène	Tungstène	Tungstène
	Mode de prise d'images	Scan simple	Scan simple	Scan simple	Scan simple	Scan simple
	Mode de focalisation	Small	Middle	Small	Small	Small
	Tension (kV)	140	140	140	140	140
	Courant (µA)	48	60	20	20	19
	Courants de calibration (µA)	48 et 16	30	17 et 5	17 et 5	17 et 5
	Filtre de cuivre (devant l'imageur)	/	/	/	/	/
	Anti-ring shift	Oui	Oui	Non	Oui	Oui
	Générateur posé	Non	Non	Non	Oui	Oui
Détecteur	Définition (pix) et mode de l'imageur	1920 x 1536 Haute sensibilité	960x768 Binning 2x2 Haute sensibilité	1920 x 1536 Haute sensibilité	1920 x 1536 Haute sensibilité	1920 x 1536 Haute sensibilité
	Orientation de l'imageur	portrait	paysage	portrait	portrait	portrait
	Nbre d'images/s (Hz)	0,5	6	0,5	0,5	0,5
	Nbre d'images moyennées par projection	2	12	3	2	20
Reconstruction numérique	Taille du voxel (µm)	0,8	1,6	0,8	0,8	0,8
	Nombre de voxels reconstruits (X x Y x Z)	-	-	747 x 1634 x 720	-	750 x 1200 x 750
	Volume reconstruit (µm³)	-	-	594 x 1299 x 572	-	600 x 960 x 600
	Durée du scan	1h14	27min	1h45	2h20	10h41
.....						

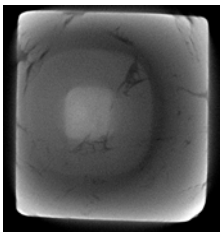
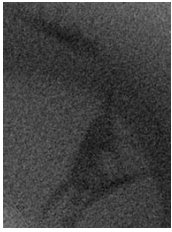
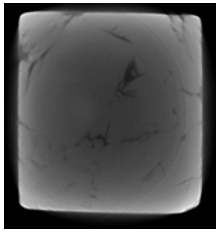
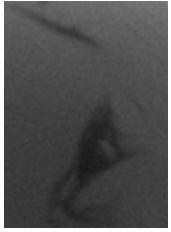
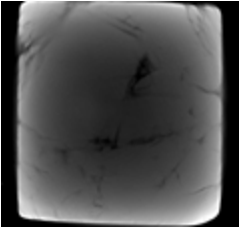
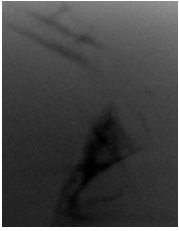
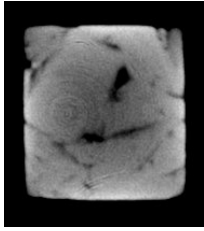

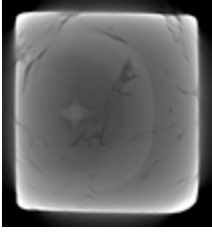
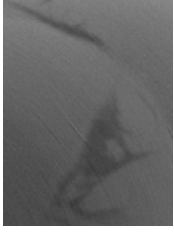
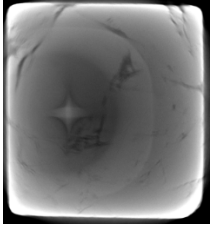
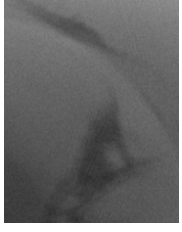
TABLEAU C.2. – Conditions d'essai de la deuxième campagne de tomographie (partie 1) sur un échantillon fils nommé « A » de la céramique $E_{1,1}$

.....						
	Conditions d'essai	6	7	8	9	10
	Echantillon	A	B	B	C	B
Générateur	Type de générateur	160 kV	160 kV	160 kV	160 kV	160 kV
	Filament	Tungstène	Tungstène	Tungstène	Tungstène	Tungstène
	Mode de prise d'images	Scan simple	Stack	Scan simple	Scan simple	Scan simple
	Mode de focalisation	Small	Small	Small	Small	Small
	Tension (kV)	150	140	140	140	140
	Courant (μA)	20	18	18	18	16
	Courant de calibration (μA)	17 et 5	16 et 6	16 et 6	16 et 6	16 et 5
	Filtre de cuivre (devant l'imageur)	0,35 mm	0,35 mm	0,35 mm	0,35 mm	0,35 mm
	Anti-ring shift	Non	Oui	Oui	Oui	Oui
	Générateur posé	Oui	Oui	Non	Oui	Oui
Détecteur	Définition (pix) et mode de l'imageur	1920 x 1536 Haute sensibilité	1920 x 1536 Haute sensibilité	1920 x 1536 Haute sensibilité	1920 x 1536 Haute sensibilité	1920 x 1536 Haute sensibilité
	Orientation de l'imageur	portrait	portrait	portrait	portrait	portrait
	Nbre d'images/s (Hz)	0,25	0,25	0,25	0,25	0,25
	Nbre d'images moyennées par projection	1	14	2	14	15
Reconstruction numérique	Taille du voxel (μm)	0,8	0,8	0,8	0,8	0,8
	Nombre de voxels reconstruits (X x Y x Z)	750 x 1625 x 750	780 x 1079 x 1060	788 x 2266 x 762	Bas : 1412 x 1637 x 1412 Haut : 750 x 1250 x 850	-
	Volume reconstruit (μm ³)	600 x 1300 x 600	622 x 861 x 846	628 x 1808 x 608	Bas : 1129 x 1310 x 1129 Haut : 600 x 1000 x 680	-
	Durée du scan	1h14	39h49	2h20	2 x 19h54	24h

TABLEAU C.3. – Conditions d'essai de la deuxième campagne de tomographie (partie 2) sur trois échantillons fils nommés « A, B et C » de la céramique $E_{1,1}$

L'image 3D obtenue avec les conditions d'essai 10 (tableau C.3) n'a pas été reconstruite.

Les figures C.1 et C.2 présentent une coupe pour chaque image 3D obtenue par tomographie X.

Conditions d'essai 1		Conditions d'essai 2	
Coupe 2D	Zoom sur un détail	Coupe 2D	Zoom sur un détail
			
Conditions d'essai 3		Conditions d'essai 5	
			
Conditions d'essai 6		Conditions d'essai 7	
			

Conditions d'essai	1	2	3	5	6	7
Rapport signal/bruit	1	1,1	3,3	3	2,1	0,8

FIGURE C.1. – Exemples de coupes et leurs rapports signal sur bruit pour différentes conditions d'essai de la campagne 1 (tableau C.1). La taille des coupes est de l'ordre de $0,60 \mu m \times 0,60 \mu m$.

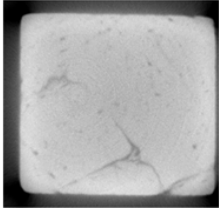
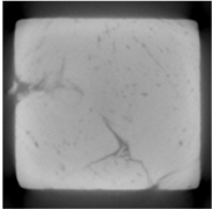
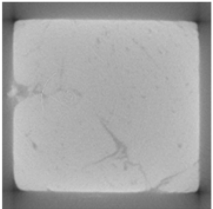
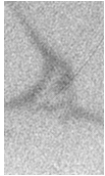
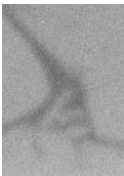
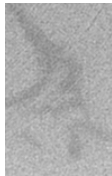
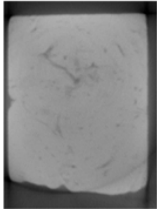
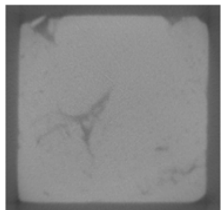
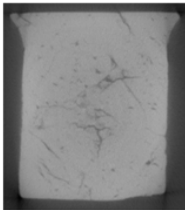
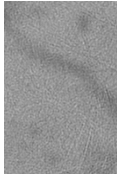
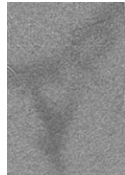
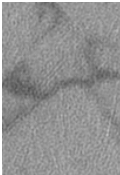
Essai	3	4	5	6
Echantillon	A	A	A	A
Rapport signal / bruit	3		17	4,1
Coupe		<p>Images non reconstruites suite à un aléa expérimental.</p> <p>La reconstruction serait possible mais il a été considéré qu'elle n'apporterait pas d'éléments nouveaux quant à l'optimisation des paramètres de tomographie.</p>		
Zoom sur un détail				
Essai	7	8	9	
Echantillon	B (partie haute)	B (partie centrale)	C	
Rapport signal / bruit	3	2,6	2	
Coupe				
Zoom sur un détail				

FIGURE C.2. – Exemples de coupes et leurs rapports signal sur bruit pour différentes conditions d'essai de la campagne 2 (tableaux C.2 et C.3). La taille des coupes est de l'ordre de $0,55 \mu m \times 0,53 \mu m$ pour l'échantillon A, de $0,56 \mu m \times 0,53 \mu m$ pour l'échantillon B et de $0,55 \mu m \times 0,64 \mu m$ pour l'échantillon C.

Plus de détails sur les campagnes de tomographie réalisées sont disponibles dans la note technique SESC/LSC NT 19-001 du CEA [Mey19].

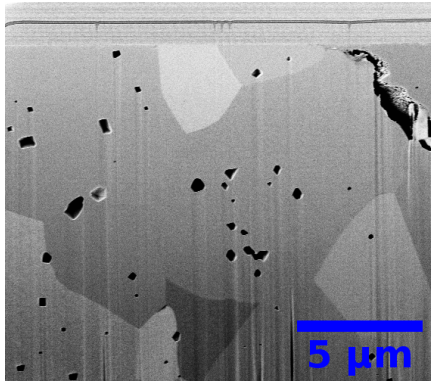
D. Acquisitions réalisées par MEB-FIB et présentation de différentes coupes tirées des images brutes obtenues avec le détecteur SESI

Le tableau D.1 présente les conditions d'acquisition des images 3D obtenues par MEB-FIB sur l'échantillon E_3 .

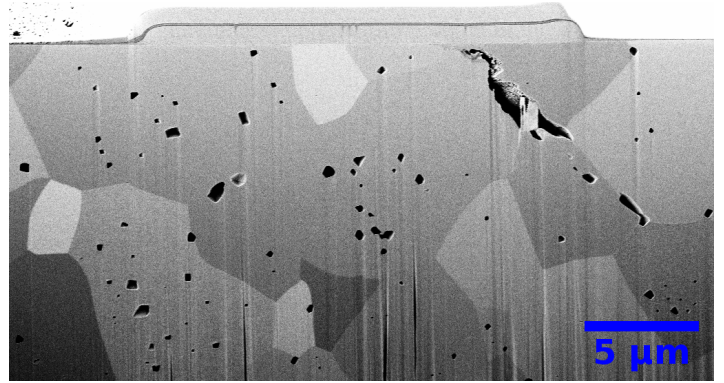
Acquisition	1		2		3	
Résolution spatiale (nm)	30	300	30	300	10	
Détecteurs utilisés	SESI et BSE		SESI		SESI et Inlens	
Champ des coupes	(μm^2)	$17,0 \times 13,4$	$30,7 \times 13,4$	$17,0 \times 13,6$	$30,0 \times 13,8$	$10,2 \times 9,0$
	(pix^2)	1024×1024	1024×1024	1024×1024	1024×1024	1024×1024
Nombre d'images	621	62	504	50	508	
Profondeur de champ (μm)	18,63	18,60	15,12	15,00	5,08	

TABLEAU D.1. – Conditions d'acquisition des images 3D obtenues par MEB-FIB sur l'échantillon E_3

Lors des acquisitions 1 et 2, deux champs d'observation ont été considérés : l'un avec une petite surface et un pas de $30nm$ et l'autre de surface plus grande et un pas de $300nm$. Chaque acquisition a été réalisée dans une zone de l'échantillon E_3 différente. La comparaison des différents détecteurs utilisés lors des acquisitions est discutée dans la section 2.2.3. Les figures D.1, D.2 et D.3 présentent une coupe brute pour chaque image 3D obtenue par MEB-FIB avec le détecteur SESI.

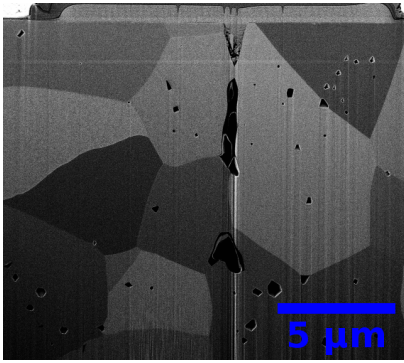


(a) Champ de la coupe : $17,0 \mu m \times 13,4 \mu m$

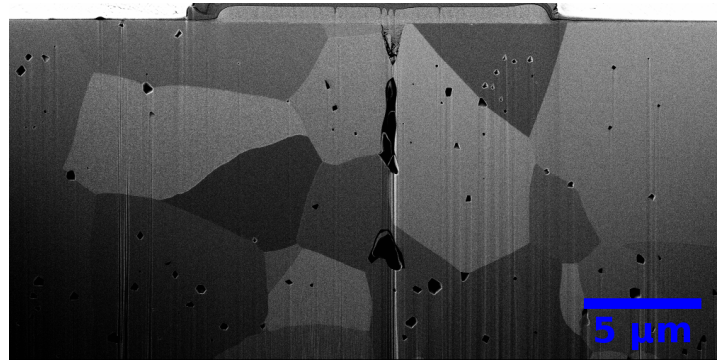


(b) Champ de la coupe : $30,7 \mu m \times 13,4 \mu m$

FIGURE D.1. – Coupes associées à l'image 3D obtenue par MEB-FIB avec le détecteur SESI et les conditions d'acquisition 1



(a) Champ de la coupe : $17,0 \mu m \times 13,6 \mu m$



(b) Champ de la coupe : $30,0 \mu m \times 13,8 \mu m$

FIGURE D.2. – Coupes associées à l'image 3D obtenue par MEB-FIB avec le détecteur SESI et les conditions d'acquisition 2

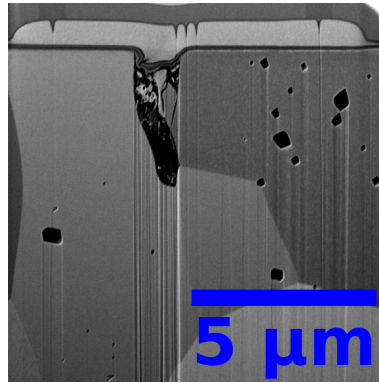


FIGURE D.3. – Coupe associée à l'image 3D obtenue par MEB-FIB avec le détecteur SESI et les conditions d'acquisition 3 (champ de la coupe : $10,2 \mu m \times 9,0 \mu m$)

E. Vérification informatique du plug-in de traitement d'images nommé Crackcut

Un plug-in de traitement d'images nommé Crackcut a été développé lors de cette étude afin de caractériser la longueur et l'orientation des objets présents sur une image 2D. Pour cela, le plug-in décrit l'image à l'aide de segments de droite de longueur inférieure ou égale à une consigne $Taillemax$ (plus de détails dans la section 4.2.2). Les paramètres de sortie de Crackcut sont notamment utilisés pour évaluer la densité de fissures ρ_{3D} d'une microstructure à l'aide de la relation 4.27.

L'objectif de cette annexe est de présenter la vérification informatique du plug-in Crackcut sur des cas-tests de type segment de droite.

Dans l'ensemble de cette annexe, la résolution Res des images étudiées est de $1\text{ mm}/pix$ et leur surface S_{tot} est de $300\text{ pix} \times 300\text{ pix}$.

Afin d'évaluer la description de l'image à l'aide de segments de droite et la caractérisation de ces segments, des objets dont la distance centre à centre entre deux pixels voisins est constante ont été étudiés. De ce fait, les biais liés à la numérisation de l'image étudiée sont nuls. La figure E.1 présente les cas-tests sélectionnés où un seul objet est présenté ($M = 1$).

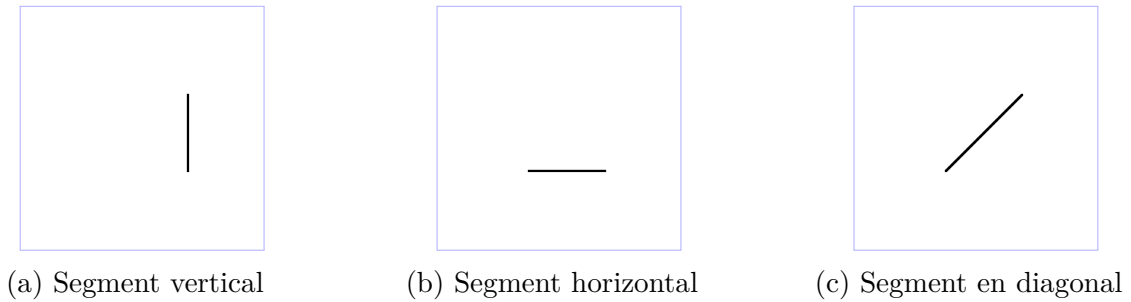


FIGURE E.1. – Présentation de trois cas-tests avec un objet de type segment de droite par image, où la distance centre à centre entre deux pixels voisins est constante. Les images sont dilatées avec un élément structurant disque de rayon 1 pix pour plus de visibilité.

La longueur théorique totale $l_{tot,th}$ d'un objet est calculé comme la distance euclidienne entre les deux centres des deux pixels extrémaux. L'orientation théorique θ_{th} d'un objet de type segment de droite (comme ceux de la figure E.1) est évaluée à l'aide de fonctions trigonométriques. Pour chacun des cas-tests présentés sur la figure E.1, ces paramètres valent :

- $l_{tot,th} = 100\text{ mm}$ et $\theta_{th} = -90^\circ$ pour le segment vertical (figure E.1a),
- $l_{tot,th} = 100\text{ mm}$ et $\theta_{th} = 0^\circ$ pour le segment horizontal (figure E.1b),
- $l_{tot,th} = 141,4\text{ mm}$ et $\theta_{th} = 45^\circ$ pour le segment en diagonal (figure E.1c).

Les résultats de Crackcut associés aux cas-tests de la figure E.1 sont présentés sur la figure E.2 et dans le tableau E.1.

	l_{tot} (mm)	Intervalle angulaire θ_{seg}	Densité de fissures ρ_{3D} (-)
Segment horizontal	100	$\{-90\}^\circ$	0,029
Segment vertical	100	$\{0\}^\circ$	0,029
Diagonale	141,4	$\{45\}^\circ$	0,057

TABLEAU E.1. – Résultats associés aux cas-tests de la figure E.1 pour toute consigne $Taillemax$ supérieure ou égale à $\sqrt{2} mm$

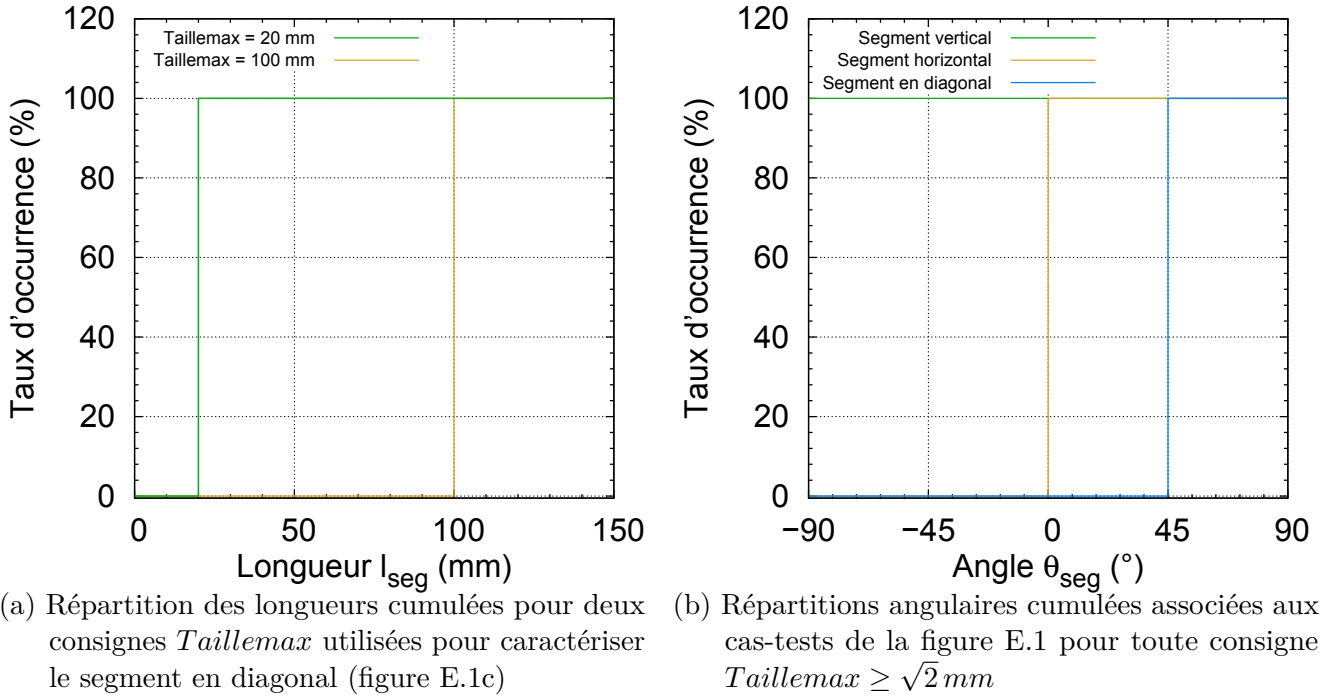


FIGURE E.2. – Résultats du plug-in Crackcut sur les longueurs l_{seg} et orientations θ_{seg} des segments de droite décrivant les cas-tests de la figure E.1

Pour chaque consigne étudiée sur la figure E.2a, tous les segments de droite possèdent une longueur inférieure ou égale à la consigne $Taillemax$. De plus, la grande majorité de ces segments présente une taille identique au paramètre $Taillemax$ choisi. Des résultats identiques sont obtenus pour les répartitions de longueur des segments de droite décrivant les figures E.1b et E.1a. Ces résultats sont cohérents avec la consigne de génération des segments dans le plug-in Crackcut selon laquelle les segments de droite doivent avoir une longueur inférieure ou égale à la consigne choisie (plus de détails dans la section 4.2.2).

La figure E.2b montre pour les trois cas-tests que l'ensemble des segments de droite générés pour toute consigne $Taillemax \geq \sqrt{2} mm$ présente une orientation θ identique à celle calculée (θ_{th}) de l'image étudiée. Pour toute consigne $Taillemax \geq \sqrt{2} mm$, notons que les résultats de ces trois cas-tests (tableau E.1 et figure E.2b) ne présentent pas de biais par rapport aux solutions analytiques. Cela permet donc de valider le procédé de description des images à l'aide de segments de droite utilisé par le plug-in Crackcut.

Notons aussi que les figures E.1b et E.1a présentent la même quantité d'objets de même

longueur totale l_{tot} ce qui conduit à une densité de fissures identique pour ces deux images.

Nous avons choisi de pousser plus loin la vérification du plug-in Crackcut en étudiant des objets de type segment de droite où la distance centre à centre entre deux pixels n'est pas constante. La figure E.3 présente le cas-test sélectionné sur lequel est présent un seul objet de type segment de droite ($M = 1$).

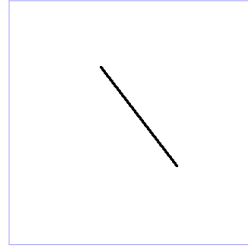


FIGURE E.3. – Segment oblique ($l_{tot,th} = 164,01 \text{ mm}$ et $\theta_{th} = -52,4^\circ$). L'image est dilatée avec un élément structurant disque de rayon 1 pix pour plus de visibilité.

Le tableau E.2 présente l'influence de $Taillemax$ sur les résultats obtenus à partir de la figure E.3.

$Taillemax$ (mm)	l_{tot} (mm)	M_{seg} (-)	$\frac{l_{tot}-l_{tot,th}}{l_{tot,th}}$ (%)	Intervalle angulaire θ_{seg}	Densité de fissures ρ_{3D} (-)
3	166,08	65	1,262	$\{-63,4 ; -45\}^\circ$	0,07907
5	164,13	34	0,073	$\{-53,1 ; -45\}^\circ$	0,07723
164,01	164,01	1	0	$\{-52,4\}^\circ$	0,07711
200	164,01	1	0	$\{-52,4\}^\circ$	0,07711
300	164,01	1	0	$\{-52,4\}^\circ$	0,07711

TABLEAU E.2. – Influence de $Taillemax$ sur les résultats de Crackcut obtenus à partir de la figure E.3 (où M_{seg} est le nombre de segments de droite décrivant l'image)

Le tableau E.2 montre que toute consigne $Taillemax$ supérieure ou égale à la longueur théorique totale de l'objet étudié sur la figure E.3, celui-ci est décrit à l'aide d'un seul segment de droite.

Pour tout objet, il existe donc une consigne $Taillemax_h$ pour laquelle chaque objet présent sur l'image ne sera décrit que par un segment. Au-delà de cette valeur $Taillemax_h$, les résultats en termes de longueur et d'orientation sont les mêmes (ici, $Taillemax_h = 164,01 \text{ mm}$).

Pour un objet de type segment de droite (comme celui sur la figure E.3), le chemin le plus court pour aller d'un bout à l'autre d'un objet (soit la longueur totale la plus petite) est obtenue lorsque les objets sont décrits à l'aide d'un seul segment. Aussi, le biais sur la longueur l_{tot} est nul pour $Taillemax \geq Taillemax_h$.

Plus la consigne $Taillemax$ est petite et plus l'estimation de la longueur totale l_{tot} s'éloigne de la solution analytique (ce qui conduit à une augmentation de la densité de fissures évaluée).

Cela s'explique par le fait que, étant donné que l'image numérique est discrétisée sur une grille régulière, un segment de droite de taille finie ne peut scanner qu'un nombre fini d'orientations. Le tableau E.3 présente le nombre d'angles possiblement évalués en fonction de la consigne $Taillemax$ choisie.

$\frac{Taillemax}{Res}$ (pix)	Angles θ_{seg} évalués entre $[0, 90]^\circ$
3	5 options $\{ 0 ; 18,4 ; 26,6 ; 45 ; 63,4 ; 90 \}^\circ \rightarrow \Delta\theta_{seg} \approx 20^\circ$
4	9 options $\rightarrow \Delta\theta_{seg} \approx 11,5^\circ$
5	13 options $\rightarrow \Delta\theta_{seg} \approx 7,5^\circ$
10	57 options $\rightarrow \Delta\theta_{seg} \approx 1,6^\circ$
25	361 options $\rightarrow \Delta\theta_{seg} \approx 0,2^\circ$

TABLEAU E.3. – Influence de $\frac{Taillemax}{Res}$ sur les possibles orientations θ_{seg} des segments de droite décrivant l'image étudiée

Plus le segment est petit, plus le nombre d'orientations possiblement « accessibles » avec ce segment est petit (tableau E.3). La description d'un objet avec des petites consignes de $Taillemax$ peut conduire à une mauvaise estimation de leur orientation du fait de la discrétisation des segments. C'est le cas pour la description du segment oblique de la figure E.3 avec une consigne $Taillemax = 3\text{ mm}$ (tableau E.3).

La propagation de cette erreur sur l'orientation des segments de droite génère un « chemin » à parcourir plus grand et donc un plus grand biais sur la longueur l_{tot} pour des consignes $Taillemax$ petites.

Pour compléter l'étude des cas-tests associés à des objets de type segment de droite, nous nous sommes intéressés au segment de droite présent sur la figure E.4, d'où $M = 1$.

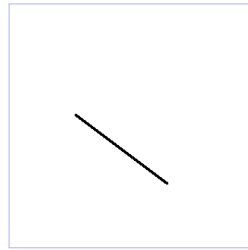


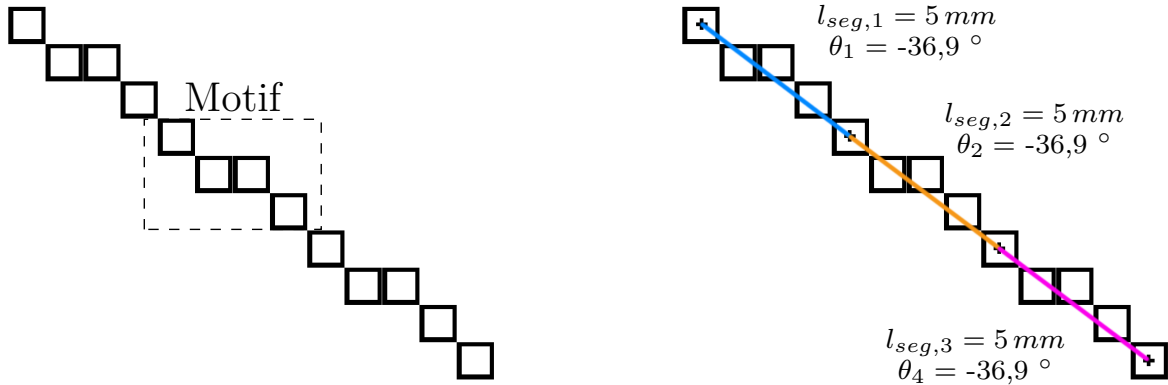
FIGURE E.4. – Autre cas de segment oblique ($l_{th} = 150\text{ mm}$ et $\theta_{th} = -36,9^\circ$). L'image est dilatée avec un élément structurant disque de rayon 1 pix pour plus de visibilité.

Les résultats associés à la figure E.4 sont présentés dans le tableau E.4.

$\frac{Taillemax}{Res}$ (<i>pix</i>)	l_{tot} (<i>mm</i>)	$\frac{l_{tot}-l_{th}}{l_{th}}$ (%)	Intervalle angulaire θ_{seg}	Densité de fissures ρ_{3D} (-)
4	150,59	0,393	$\{-45 ; -33,7\}^\circ$	0,06501
5	150	0	$\{-36,9\}^\circ$	0,06450
6	150	0	$\{-36,9\}^\circ$	0,06450
7	150,24	0,160	$\{-38,7 ; -31,0\}^\circ$	0,06471
8	150,21	0,140	$\{-39,8 ; -33,7\}^\circ$	0,06468
9	150,09	0,060	$\{-39,8 ; -35,5\}^\circ$	0,06458
10	150	0	$\{-36,9,6\}^\circ$	0,06450
11	150	0	$\{-36,9\}^\circ$	0,06450
12	150,07	0,047	$\{-37,9 ; -33,7\}^\circ$	0,06456
24	150,01	0,007	$\{-37,8 ; -36,8 ; -36,4\}^\circ$	0,06451
$Taillemax_h = 150$ <i>mm</i>	150	0	$\{-36,9\}^\circ$	0,06450

TABLEAU E.4. – Influence de $\frac{Taillemax}{Res}$ sur l'évaluation de la longueur totale et de l'orientation des objets présents sur l'image E.4

Le tableau E.4 montre que, dans les cas où les rapports $\frac{Taillemax}{Res}$ peuvent s'écrire comme $(n5)pix$ ou $(n5+1)pix$ (avec $n \in \mathbb{N}$), la longueur totale et l'orientation des segments de droite décrivant l'image sont identiques aux valeurs $l_{tot,th}$ et θ_{th} théoriques. Lorsque ce rapport ne s'écrit pas de cette façon, on retrouve l'évolution monotone de l_{tot} évaluée par Crackcut en fonction de la consigne $Taillemax$ observée suite à l'étude de la figure E.3. La figure E.5 permet d'expliquer ce phénomène.



(a) Présence d'un motif dans l'agencement des pixels (b) Schéma explicatif de la description (avec le plugin Crackcut) de la figure E.4 pour une consigne $Taillemax = 5$ *mm* et $Taillemax = 6$ *mm*

FIGURE E.5. – Étude de l'agencement des pixels du segment de droite de la figure E.4

La non-monotonie de l'évolution de la longueur totale des segments de droite l_{tot} en fonction de $Taillemax$ s'explique par le fait que l'organisation des pixels de la figure E.4 présente un motif de période 4 pixels (figure E.5a).

En considérant le pixel extrémal (initial) de l'objet correspondant aussi à une extrémité du segment $l_{seg,1}$ sur la figure E.5b, la longueur du segment de droite $l_{seg,1}$ vaut 5 *mm* et le pixel

final est à 4 pixels du pixel initial. La longueur entre le pixel initial et celui à 5 pixels de celui-ci est de 6,3 mm. Comme cette longueur est supérieure à 6 mm, les descriptions pour $Taillemax = 5\text{ mm}$ et $Taillemax = 6\text{ mm}$ sont identiques (figure E.5b).

Dans le cas étudié (figure E.4, le biais lié à l'estimation de l_{tot} est nul lorsque les rapports $\frac{Taillemax}{Res}$, tels que $(n5)\text{ pix}$ ou $(n5 + 1)\text{ pix}$ avec $n \in \mathbb{N}$, induits des segments de droite tombant exactement sur le motif périodique observé dans l'agencement des pixels de l'objet (figures E.5b).

Notons d'ailleurs que les cas-tests de la figure E.1 présentent aussi un motif périodique de 2 pixels ce qui induit que, pour toute consigne $Taillemax (\geq 2\text{ mm}$ ici), le biais associé à l_{tot} est nul.

En dehors des objets présentés sur la figure E.1, les autres cas particuliers correspondent à l'hypoténuse d'un triangle rectangle dont les longueurs (en pixels) de ces côtés sont des nombres entiers. La figure E.4 correspond à l'hypoténuse associé au triplet pythagoréen entier (3,4,5), soit son orientation peut s'écrire comme :

$$\theta_{seg} = \arctan\left(\frac{-3}{4}\right) = -36,9^\circ \quad (\text{E.1})$$

Il existe une quantité finie d'orientations caractérisant l'hypoténuse d'un triangle rectangle dont les longueurs (en pixels) de ces côtés sont des nombres entiers. Pour des nombres pythagoréens entiers plus petits que 100, 32 orientations θ_{seg} différentes pour des objets de type segment de droite.

Cependant, sur les coupes des céramiques UO_2 , la probabilité que la consigne $Taillemax$ choisie puisse profiter de la périodicité d'un objet de type segment de droite présent sur une image numérique est nulle au vu de la forme courbe et de la diversité des orientations des objets observés. Nous avons donc choisi de considérer le biais induit par ces cas particuliers comme négligeable.

Les longueurs et orientations des segments de droite décrivant les images des cas-tests présentées dans cette annexe sont en cohérence avec les valeurs théoriques. Le plug-in Crackcut est vérifié informatiquement sur la base de ces résultats.

De plus, ces cas-tests ont permis d'évaluer l'influence de $Taillemax$ sur les résultats obtenus avec le plug-in Crackcut dans le cas de l'étude d'un objet de type segment de droite.

F. Autour du tirage des sphères délimitantes pour les microstructures numériques générées

Dans le chapitre 5, un réseau de fissures est généré numériquement dans un volume d'étude V_{tot} en intersectant un réseau de joints de cellules et des sphères délimitantes. Selon la définition de l'intersection des joints de cellules et des sphères délimitantes ($\cap \{JdC + Sph\}$) comme des obstacles ou des ponts thermiques, le réseau de fissures obtenu diffère.

F.1. Notions de bases sur les ensembles aléatoires

Pour lire cette annexe, quelques notions élémentaires sur les ensembles aléatoires sont présentées.

Un ensemble aléatoire A est caractérisé par la fonction caractéristique ν_A aussi appelée variable indicatrice (équation 1.33). L'espérance mathématique de la variable aléatoire indicatrice ν_A correspond à la probabilité qu'un point \mathbf{x} du volume d'étude V_{tot} appartenant à l'ensemble A :

$$\forall \mathbf{x} \in V_{tot}, \quad E[\nu_A(\mathbf{x})] = P(\mathbf{x} \in A) \quad (\text{F.1})$$

En imagerie ou pour réaliser des calculs sur des VER, on s'intéresse à des ensembles aléatoires qui sont :

- stationnaires, c'est-à-dire que leurs propriétés statistiques sont invariantes spatialement. C'est le cas notamment l'espérance de l'indicatrice ν_A . Par la suite, nous appellerons $E[A]$ l'espérance de l'indicatrice ν_A .
- ergodiques, c'est-à-dire que les espérances mathématiques associées peuvent être calculées par des moyennes spatiales. Pour un volume d'étude est « suffisamment » grand, l'espérance mathématique de l'indicatrice ν_A peut être approchée par la fraction volumique d'une réalisation (tirage aléatoire) de l'ensemble A .

Le schéma booléen est un ensemble aléatoire [PJ06]. Nous supposons aussi que le schéma RSA en est un bien que nous n'ayons pas trouvé la preuve dans la littérature ouverte.

F.2. Qualité de l'approximation du tirage booléen des sphères délimitantes avec le schéma utilisé dans cette étude

Dans cette étude, N_S sphères de rayon r_S fixe sont réparties de façon aléatoire suivant un schéma booléen. L'espérance $E[SB]$ de l'indicatrice ν_{SV} associée aux sphères délimitantes générées à l'aide d'un schéma booléen vaut :

$$E[SB] = 1 - \exp\left(-\Lambda_P V_S\right) \quad (\text{F.2})$$

où Λ_P est la densité de centres de sphères délimitantes et V_S le volume d'une sphère délimitante soit $V_S = \frac{4\pi}{3} r_S^3$.

Dans ce cas, étant donné que les réseaux des joints de cellules et des sphères délimitantes ont été générés de façon indépendante, l'espérance $E[F]$ de l'indicatrice ν_F associée aux fissures

peut s'exprimer de la façon suivante :

$$E[F] = \begin{cases} E[J] E[SB] & \text{si } \cap \{JdC + Sph\} = \text{Obstacles thermiques} \\ E[J] E[SB]_B^C & \text{si } \cap \{JdC + Sph\} = \text{Ponts thermiques} \end{cases} \quad (\text{F.3})$$

où $E[J]$ est l'espérance de l'indicatrice ν_J associée aux joints de cellules et $E[SB]^C$ l'espérance de l'indicatrice ν_{SB}^C associée à l'ensemble complémentaire à celui des sphères délimitantes générées par un schéma booléen ($E[SB]^C = 1 - E[SB]$).

D'où,

$$E[F] = \begin{cases} E[J] \left(1 - \exp(-\Lambda_P V_S)\right) & \text{si } \cap \{JdC + Sph\} = \text{Obstacles thermiques} \\ E[J] \exp(-\Lambda_P V_S) & \text{si } \cap \{JdC + Sph\} = \text{Ponts thermiques} \end{cases} \quad (\text{F.4})$$

Cependant, dans le schéma utilisé pour générer les sphères délimitantes, nous avons fixé N_S ce qui induit que le tirage des centres des sphères délimitantes ne suit pas alors une loi de Poisson. Le schéma utilisé n'est donc pas booléen.

L'objectif de cette annexe est d'évaluer la qualité de l'approximation du tirage booléen par le schéma utilisé. De plus, nous nous proposons d'estimer les valeurs de densités de fissures des microstructures générées à partir des paramètres d'entrée du protocole de génération des microstructures.

Le tableau F.1 présente la comparaison de la fraction volumique c_{sph} de sphères délimitantes sur une microstructure générée et l'espérance $E[SB]$ pour un schéma booléen (évaluée avec l'équation F.2) en supposant $\Lambda_P V_{tot} \approx N_S$.

Génération	Rayon r_S des sphères délimitantes (μm)	30
	Nombre N_S de sphères délimitantes (-)	3200
	Volume d'étude V_{tot} (mm^3)	1
	Résolution spatiale Res ($\mu m/vox$)	1,52
Propriétés	Fraction volumique c_{sph} de sphères délimitantes (%)	36,18
	Espérance $E[SB]$ (%)	36,14

TABLEAU F.1. – Évaluation de l'approximation du schéma booléen par le tirage réalisé avec $N_S = 3200$, $r_S = 30 \mu m$ et $V_{tot} = 1 mm^3$

Le tableau F.1 montre que la fraction volumique c_{sph} des sphères délimitantes présentes dans la microstructure numérique générée peut être approchée par l'espérance $E[SB]$ de la microstructure évaluée pour un schéma booléen présentant les mêmes propriétés que la microstructure étudiée. Des résultats similaires sont obtenus sur des microstructures numériques générées avec des couples (r_S, N_S) différents. Cela signifie que le nombre N_S de sphères délimitantes générées est suffisamment grand pour considérer que la loi des grands nombres s'applique, ce qui induit que :

- la fraction volumique c_{sph} peut être approchée par l'espérance $E[S]$ de l'indicatrice ν_S associé aux sphères délimitantes générées par le schéma utilisé dans cette étude (en fixant

N_S).

— l'espérance $E[S]$ peut être approchée par l'espérance $E[SB]$ associée au schéma booléen. D'où,

$$c_{sph} \approx E[S] \approx E[SB] \quad (\text{F.5})$$

Le tirage utilisé pour la génération des sphères délimitantes est donc une bonne approximation du schéma booléen.

F.3. Relation entre la densité de fissures et les paramètres d'entrée de la génération des microstructures numériques

Les équations F.2 et F.5 montrent que la fraction volumique c_{sph} des sphères délimitantes est directement reliée au terme $N_S r_S^3$.

Les joints de cellules sont générés ici par érosion d'un schéma de Voronoï dont les centres sont construits en RSA. En supposant qu'il existe un schéma aléatoire rigoureux associé au RSA et en utilisant la même méthodologie que précédemment, on considère alors le schéma utilisé pour générer les joints de cellules comme stationnaire. La fraction volumique c_{JdC} des joints de cellules générés par érosion de cellules obtenues avec le schéma RSA peut alors être approchée par son espérance du fait que le tirage suit une loi des grands nombres, soit $c_{JdC} \approx E[J]$. L'espérance de la fraction volumique associée aux fissures (équation F.4) s'exprime alors comme :

$$E[F] = \begin{cases} c_{JdC} \left[1 - \exp\left(-\frac{4\pi}{3V_{tot}} N_S r_S^3\right) \right] & \text{si } \cap\{JdC + Sph\} = \text{Obstacles thermiques} \\ c_{JdC} \exp\left(-\frac{4\pi}{3V_{tot}} N_S r_S^3\right) & \text{si } \cap\{JdC + Sph\} = \text{Ponts thermiques} \end{cases} \quad (\text{F.6})$$

L'équation F.6 montre que la relation entre la fraction volumique de fissures c_a , les paramètres $N_S r_S^3$ et l'ensemble $\cap\{JdC + Sph\}$. La figure F.1 compare l'impact de l'ensemble ($\cap\{JdC + Sph\}$) et du rapport $N_S r_S^3$ (avec $r_S = 30 \mu m$) sur la fraction volumique c_a de fissures générées dans les microstructures numériques avec le réseau de joints de cellules généré dans la section 5.1 et les modèles présentés dans l'équation F.6.

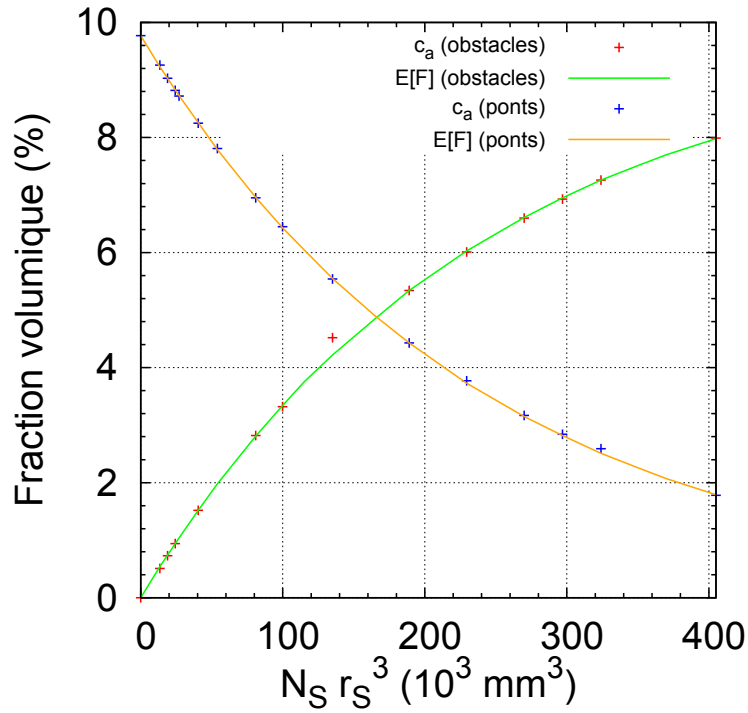


FIGURE F.1. – Évolution de c_a et $E[F]$ en fonction de $N_S r_S^3$ et de l'ensemble $\cap\{JdC + Sph\}$ pour des microstructures avec le réseau de joints de cellules optimisé généré dans la section 5.1 et des sphères délimitantes de rayon $r_S = 30 \mu m$

Pour chaque définition de l'ensemble $\cap\{JdC + Sph\}$, un écart d'au maximum 2% est observé entre les estimations de la fraction volumique de fissures c_a sur les microstructures numériques générées et celle associée à l'espérance $E[F]$. La fraction volumique c_a associée aux fissures est donc approximée par l'espérance $E[F]$ (équation F.6).

Étant donné que le paramètre descripteur des microstructures numériques que nous avons choisi est la densité de fissures ρ_{3D} (équation 4.27), évaluons le domaine de densité de fissures balayé par les microstructures générées. La figure F.2 illustre la relation entre le paramètre ρ_{3D} et la porosité d'assemblage c_a pour différentes microstructures générées avec le réseau de joints de cellules généré (section 5.1) et un ensemble de sphères délimitantes de rayon $r_S = 30 \mu m$.

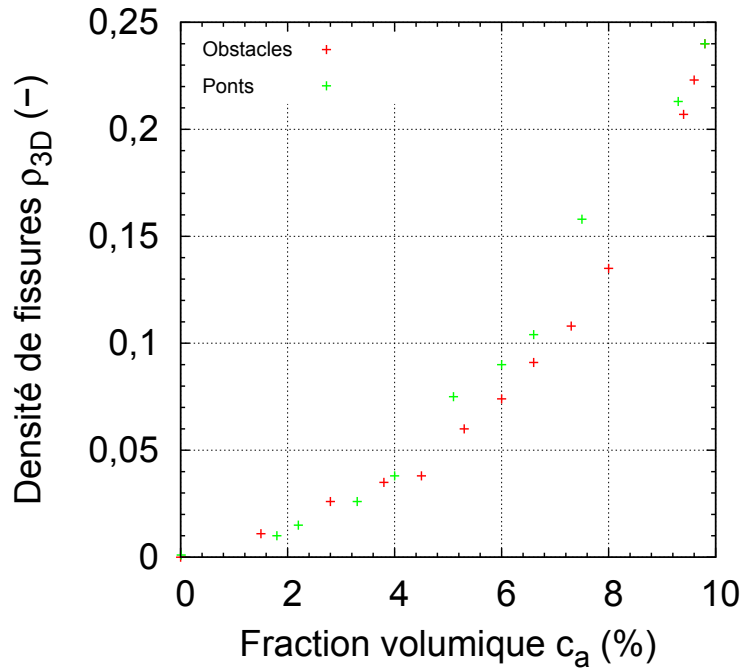


FIGURE F.2. – Relation entre la fraction volumique de fissures c_a et la densité de fissures ρ_{3D} pour des microstructures avec le réseau de joints de cellules généré dans la section 5.1 et un réseau de sphères tel que $r_S = 30 \mu m$

Ce graphe montre qu'il existe une relation entre la densité de fissures ρ_{3D} et la fraction volumique de fissures c_a pour chaque définition de l'ensemble $\{JdC + Sph\}$.

Ainsi, l'équation F.6 et la figure F.2 montrent la dépendance de la densité de fissures ρ_{3D} à la définition de l'ensemble $\{JdC + Sph\}$ et au nombre N_S de sphères délimitantes de rayon $r_S = 30 \mu m$. Il est donc possible de choisir le nombre de sphères délimitantes N_S à générer en fonction de la densité de fissures ρ_{3D} visée.