NNT/NL : 2020AIXM0001/001ED000

THÈSE DE DOCTORAT

Soutenue à l'Ecole Centrale de Marseille
le 17 octobre 2022 par

Matthieu REYMOND

Chauffage laser pour l'étude des mécanismes impliqués dans le combustible nucléaire en situation accidentelle hypothétique

Discipline :
Physique et sciences de la matière

Spécialité :
Energie, rayonnement et plasma

École doctorale :
ED 352 PHYSIQUE ET SCIENCES DE LA MATIÈRE

Laboratoires/Partenaires de recherche :
Institut Fresnel
CEA/DES/IRESNE/DEC/SA3E/LAMIR

Composition du jury

Laurent VIDEAU Directeur de recherche, CEA/DAM	Rapporteur
Rudy KONINGS Directeur de recherche - Commission Européenne, JRC	Rapporteur
Suzanne GIORGIO Professeure - CINaM, Aix-Marseille Université	Examinatrice
Guillaume KERMOUCHE Professeur - Laboratoire Georges Friedel, École des Mines de Saint-Étienne	Examinateur
Rodrigue LARGENTON Ingénieur-Docteur - EdF	Invité
Laurent GALLAIS Professeur - Institut Fresnel, Centrale Marseille	Directeur de thèse
Yves PONTILLON Directeur de recherche - CEA/DES	Co-Directeur de thèse

Affidavit

Je soussigné, Matthieu Reymond, déclare par la présente que le travail présenté dans ce manuscrit est mon propre travail, réalisé sous la direction scientifique de Laurent Gallais et d'Yves Pontillon, dans le respect des principes d'honnêteté, d'intégrité et de responsabilité inhérents à la mission de recherche. Les travaux de recherche et la rédaction de ce manuscrit ont été réalisés dans le respect à la fois de la charte nationale de déontologie des métiers de la recherche et de la charte d'Aix-Marseille Université relative à la lutte contre le plagiat.

Ce travail n'a pas été précédemment soumis en France ou à l'étranger dans une version identique ou similaire à un organisme examinateur.

Fait à Marseille le 15 Juillet 2022

Cette œuvre est mise à disposition selon les termes de la Licence Creative Commons Attribution - Pas d'Utilisation Commerciale - Pas de Modification 4.0 International.

Liste de publications et participation aux conférences

Liste des publications réalisées dans le cadre du projet de thèse :

1. Matthieu Reymond, Jerome Sercombe, Thomas Doualle, Yves Potillon et Laurent Gallais,. Thermo-mechanical simulations of laser heating experiments on UO2. Journal of Nuclear Materials, 2021, vol. 557, p. 153220.
2. Matthieu Reymond, Thomas Doualle, Laurent Gallais, Sercombe Jérôme, Yves Pontillon. Modeling of fuel behaviour during RIA transients : new insights gained thanks to laser heating experiments. Proceedings of Top Fuel, 2021, Santander, Spain.

En cours de rédaction :

— Matthieu Reymond, Thomas Doualle, Yves Pontillon et Laurent Gallais. On the complex refractive index of depleted UO_2

— Matthieu Reymond, Thomas Doualle, Jerome Sercombe, Yves Pontillon et Laurent Gallais. Thermo-mechanical simulations of quasi-prototypical Reactivity Iniated Accident transient induced by laser heating on UO2.

Participation aux conférences et écoles d'été au cours de la période de thèse :

1. Matthieu Reymond, Jerome Sercombe, Thomas Doualle, Laurent Gallais, Helene Capdevilla, Yves Pontillon. Chauffage laser pour l'étude du combustible en situation accidentelle hypothéthique. Présentation partenaires EdF-Framatome.
2. Matthieu Reymond, Thomas Doualle, Laurent Gallais, Jerome Sercombe, Yves Pontillon. Modeling of fuel behaviour during RIA transients : new insights gained thanks to laser heating experiments. Top Fuel, october 2021, Santander, Spain.
3. Thomas Doualle, Matthieu Reymond et al. Utilisation du laser pour le combustible : Etude du combustible en situation accidentelle par chauffage laser, mesure de propriétés et usinage laser. Rendez-vous scientifique et techniques du Département d'Etude du Combustible, Juin 2021, Cadarache, France.
4. Matthieu Reymond, Thomas Doualle, Laurent Gallais, Jerome Sercombe, Yves Pontillon. Mise à profit du chauffage laser pour l'étude des situations accidentelles. Rendez-vous scientifiques et techniques du Département d'Etude du Combustible, Juin 2022, Cadarache, France.
5. Matthieu Reymond, Thomas Doualle, Laurent Gallais, Jerome Sercombe, Yves Pontillon. Chauffage laser pour l'étude du combustible nucléaire en situation accidentelle de type RIA. Journée des thèses du GGP-CC, juillet 2022, Pertuis, France.

Résumé

Dans un Réacteur à Eau Pressurisé (REP), la modélisation du comportement du combustible en situation accidentelle comme l'Accident par Insertion de Reactivite (Reactivity Iniated Accident - RIA) ou l'Accident par Perte de Réfrigérant Primaire (APRP) est nécessaire pour prédire le comportement du combustible. Dans le cas du RIA, la validation des codes de simulation repose sur les données expérimentales obtenues lors d'essais intégraux en réacteur de recherches comme Cabri en France ou le NSRR au Japon. Certains mécanismes comme la fragmentation du combustible et le relâchement des gaz de fission pendant le transitoire restent néanmoins difficiles à totalement reproduire et nécessitent des données supplémentaires. Le relâchement des gaz de fission et sa cinétique peut potentiellement conduire à la rupture de la gaine par ballonnement et à une dispersion d'une partie de l'inventaire du crayon combustible dans la cuve du réacteur. Bien que les données obtenues avec les essais intégraux sont cruciales et permettent de valider les codes de simulation, ces essais ne peuvent pas être multipliés ou paramétrés à l'envie et ne permettent donc pas de conduire des études paramétriques poussées sur des phénomènes bien précis. Pour ces raisons, ces travaux de thèse aborderont le développement et l'utilisation d'une technique de chauffage laser originale capable d'induire des transitoires thermiques d'intérêts sur des échantillons de céramique nucléaire (UO_2 appauvri) pour l'étude du combustible nucléaire en conditions accidentelles de type RIA. Nous proposons d'abord la préparation innovante d'échantillons dits « lames minces » permettant de réaliser des mesures de transmittance et de réflectance afin de remonter aux propriétés optiques de la céramique et de mieux décrire le chargement laser responsable de l'élévation de température dans l'échantillon. Associé à ces développements expérimentaux, nous avons développé au cours de ces travaux la modélisation thermo-mécanique des chauffes laser sur UO_2 en prenant en compte la spécificité de l'interaction laser-UO_2 et le chargement thermique en résultant et le comportement mécanique de l'échantillon. Nous avons développé pour ce faire un modèle numérique basé sur la méthode des éléments finis utilisant le solveur thermo-mécanique Cast3m du CEA. Nous verrons que nous pouvons exprimer le terme source de chaleur résultant du chargement laser soit par une description analytique soit de manière statistique par une étape préalable de simulation Monte-Carlo. De plus, nous verrons que la prise en compte des aberrations du système de mesure infrarouge utilisé pour caractériser les transitoires est nécessaire avant toute comparaison calcul-mesure. Le comportement mécanique de l'UO_2 est ensuite décrit par une loi de comportement mécanique que nous avons développé pour rendre compte du comportement de la céramique à hautes-vitesses de sollicitations, caractéristiques de ces chauffes laser. Cette loi d'endommagement décrit la perte de rigidité du matériau en fonction du mode de chargement (à dominante de traction ou de compression) et de la température. Son application sur des chauffes laser dites annulaires mène à une assez bonne estimation de l'instant et de la localisation de la fracturation. Enfin nous présenterons des chauffes laser visant à reproduire l'intégralité de la phase de montée en température d'un transitoire RIA et discuterons des perspectives de ce travail.

Mots clés : Chauffage laser, combustible nucléaire, Accident par insertion de réactivité, simulation thermo-mécanique, interaction laser-matière

Abstract

In a Pressurised Water Reactor (PWR), modeling of fuel behaviour in accident situations such as Reactivity Iniated Accident (RIA) or Loss of Coolant Accident (LOCA) is of crucial importance to predict the response of the fuel under such extremes solicitations. In the case of the RIA, the validation of the simulation codes is based on experimental data obtained during integral experiments conducted in research reactors such as Cabri in France or NSRR in Japan. Some mechanisms such as fuel fragmentation and fission gas release during the transient remain difficult to tackle and require more research activites. The release of fission gases and its kinetics can potentially lead to cladding failure by ballooning and dispersion of part of the fuel rod inventory in the reactor vessel. Although the data obtained with the integral tests are crucial and allow the validation of the simulation codes, these tests cannot be multiplied to conduct extensive parametric studies on one specific phenomenon. For these reasons this thesis work will address the development and use of an original laser heating technique capable of inducing thermal transients of interest on nuclear ceramic samples (depleted UO_2) for the study of nuclear fuel under accidental RIA conditions. We first propose the innovative preparation of so-called "thin plate" samples allowing one to perform transmittance and reflectance measurements in order to trace the optical properties of the ceramic and better describe the laser loading responsible for the temperature rise in the sample. Associated with these experimental developments we have developed during this work the thermo-mechanical modelling of laser heating on UO_2 by taking into account the specificity of the laser-UO_2 interaction and the resulting thermal loading and mechanical behaviour of the sample. For this purpose, we have developed a numerical model based on the finite element method using the CEA's thermo-mechanical solver: Cast3m. We will see that we can express the heat source term resulting from the laser loading either by an analytical description or statistically by a preliminary Monte-Carlo simulation step. Furthermore, we will see that it is necessary to take into account the aberrations of the infrared measurement system used to characterise the transients before any comparison between the experimental and simulated temperature profiles. The mechanical behaviour of UO_2 is then described by a mechanical behaviour law that we have developed to account for the behaviour of the ceramic at high stress rates, which are characteristic of these laser heating experiments. This damage law describes the loss of material stiffness as a function of the loading mode (predominantly tensile or compressive) and temperature. Its application to so-called annular laser heating experiments experiments leads to a fairly good estimate of the time and location of fracturing. Finally, we will present laser heaters aiming to reproduce the entire temperature rise phase of a RIA transient and discuss the perspectives of this work.

Keywords: Laser heating, nuclear fuel, Reactivity iniated Accident, thermo-mechanical simulation, Laser-matter interactionn

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier mes directeurs de thèse Laurent Gallais et Yves Pontillon pour leur confiance, leur disponibilité, leur bienveillance et les nombreuses discussions que nous avons put avoir. Merci Laurent d'avoir pensé à moi et de m'avoir proposé ce projet de thèse. Merci Yves pour ton optimisme à toute épreuve qui m'a permis de traverser sans encombres les moments un peu "délicats" de ces trois années. On s'est bien amusé pendant ces trois années, mission accomplie ! :)

Je tiens ensuite à remercier Thomas Doualle pour son aide, ses conseils, son soutien et son énergie qui semble quasi-illimitée. Je garde un excellent souvenir de nos journées de manips full galère à se taper la tête contre les murs, de nos plans sur la comète pour les setups expérimentaux, de notre acharnement sur la ligne de gaz Ar, de nos discussions entrecoupées de tes remarques toujours pertinentes, de nos go-fast de matos entre le CEA et Fresnel (qui a mit DURANCE en entier dans son sac ? C'était pas lourd franchement) ou sur la recherche d'el famoso facteur 2 !! Merci pour tout et amuses-toi bien avec le LAMIR et vos nouveaux jouets !! Et surtout n'oublie pas la seule manière de maniper qui tienne vraiment la route : "On lase et on avise après" (devise qui reste valide même au LECA-STAR, évidement). Note pour plus tard : 25 V c'est trop de tension pour la plupart des caméras je crois.

Un énorme merci à Jerome Sercombe pour son accompagnement côté simulation thermo-mécanique qui a au final pris une place importante dans ma thèse ainsi que pour le partage de ses connaissances sur le comportement mécanique de l'oxyde. Mes travaux n'auraient pas eu la même dimension sans toi et je ne pense pas que j'aurais réussi à dompter Cast3m tout seul. J'ai presque pris goût à la simulation grâce à toi et ce n'est pas fini ! Au plaisir de travailler ensemble pendant les deux prochaines années. :).

Enfin je remercie Anabella Da Silva pour son introduction aux problématiques de diffusion de la lumière dans un milieu et à MCmatlab.

Je remercie également l'ensemble des membres du jury d'avoir accepté de juger le travail fourni tout au long de ces 3 ans. Je suis en particulier reconnaissant envers Laurent Videau et Rudy J.M. Konings pour avoir été rapporteurs de cette thèse.

Je tiens ensuite à remercier l'ensemble du LAMIR pour tous les moments conviviaux passés ensemble, leur disponibilité et pour avoir toujours répondu présent lorsque j'avais besoin d'eux. Je pense en particulier à Patrice et Fred, à Christian (ho le beau PE !!) et à toute l'équipe du 316 pour la ligne de gaz. Je pense aussi à Isabelle qui m'a laisser librement gambader entre le CEA et Fresnel dans les périodes parfois un peu tendues niveau déplacements et qui a toujours été d'une efficacité redoutable. Meilleure cheffe de labo pour le meilleur labo !

J'ai aussi une pensée particulière pour Aubin, mon co-bureau et partenaire de galères spéciales CEA qui a réussi à me supporter dans un calme olympien pendant trois années. Très fier et content d'avoir pu t'aider à réaliser des manips lasers à Fresnel dans le cadre de ta thèse :). Seul mec sur terre qui met 1 an à percer une pastille, record battu.

Enfin côté CEA je remercie tous les membres du labo UO_2 qui m'ont accueilli, formé et fait confiance pour réaliser mes échantillons bizarres dans mon coin et pour avoir géré les différents transports de matière. Merci particulièrement à Doris pour m'avoir formé à la réalisation de lames minces et à la manipulation de l'UO_2 en général.

Last but not least, merci à Corine pour avoir géré les différentes missions, réservations de salles ou

autres avec une efficacité quasi-légendaire.

Côté Fresnel je remercie mes co-bureaux de quelques mois : Bruno (intermittent), Camille et Juan-Benito pour la bonne ambiance et une période de rédaction au final plus funky qu'envisagée. En particulier je remercie Camille d'avoir cramé un calo en plus de toutes les optiques déjà présentes sur le wall of fail. Je remercie enfin tous les thésards (ou non thésards) avec qui j'ai pu discuté, boire des canons voir développer une vraie amitié avec une pensée particulière pour Lilly, JB, Astrid (et ses rêves chelous qui font coller), Kevin, Adrien et Paul (et Camille). Signé : l'homme de très loin le plus sociable de Fresnel. Un de ces 4 je vous apprendrais à sociabiliser.

Merci à mes deux frères Eliott et Said pour leur amitié à toute épreuve. Merci pour tous les fous rires, le spam de messages vocaux qui n'ont aucun sens (HA OUAIIISSS POTOOOO?), le soutien dans les moments difficiles, vos encouragements et tous les moments partagés ensembles. Ha et les déclas à des heures pas possibles aussi. Je ne vais pas m'étendre ici sur la relation si particulière que nous partageons, je ne serais pas arrivé jusqu'ici sans vous. Merci.

Merci à Jordan d'être l'homme le plus drôle d'Europe voir du monde. On a bien progressé ensemble pendant ces trois années, on a chacun dû traverser quelques épreuves personnelles et je garde de nombreux souvenirs de cette période (notamment : vente de chaise pliable, rando nocturne à Allauch sur ton initiative, calage sur la Durance, les fous-rires quasi-non stop aux US... On ne parlera pas de Gandalf le gris ici par contre.).

Merci à GG d'être toujours dispo pour le café à Sebasto et toujours chaud (trop?) pour aller taper du pied. On se rappelle notamment d'un certain concert de French79, c'était ouf, merci. Les temps sont durs mais ça va le faire!!

Enfin pour terminer sur les marseillais : merci à Julie, à Thomas et Aud, à Cedric et Laurène, à Chloé et à tous ceux que j'oublie. Merci l'équipe c'est toujours un plaisir de vous avoir dans ma vie.

Merci à Laurène (Lorraine? Lauraine? Lorène?) pour son amitié durable et pour les bêtes de soirées qu'on fait ensemble qui sont systématiquement placées sous le signe de l'abus! Heureusement que j'habite pas à Lyon.

Merci à Théo aka Pwnda aka Pwnay aka "oups j'ai mit un smic en rename" pour toutes les sessions gaming qu'on partage depuis 10 ans maintenant et pour ses excellents goûts musicaux. Tu gères.

Je tiens enfin à remercier ma famille. A commencer par Lucie et Christophe pour leur voisinage, leur soutien logistique et moral, leur présence permanente à mes côtés et l'amour qu'ils m'ont témoigné pendant ces 3 ans.

Je tiens ensuite à remercier mes parents pour leur soutien et confiance dont ils ont fait preuve depuis toujours. On s'en sort pas si mal au final :).

Merci à toute l'équipe Herbert : Brigitte, Alain, Agnès, Jean, Camille, Olivier, Florence et Damien pour tous les moments partagés qui sont divisés en deux catégories principales : les bouffes d'anthologies et les randos plus ou moins abusées, elles aussi d'anthologies. Spéciale dédicace à la meilleure de toutes : Agnès <3. Hâte de te voir tout casser à Lyon!!!

Une pensée enfin pour ma grand-mère pour tout ce qu'elle a pu faire pour nous depuis ma naissance :).

Table des matières

Affidavit 2

Liste de publications et participation aux conférences 3

Résumé 4

Abstract 5

Remerciements 6

Table des matières 8

Liste des acronymes 11

Introduction 13

1. Contexte et positionnement de la thèse 15
1.1. Les réacteurs à eau pressurisée : principe de fonctionnement . . . 15
1.1.1. Les réactions de fission . . . 16
1.1.2. Le combustible nucléaire (UO_2)[3] . . . 17
1.2. Évolution du combustible en résidence . . . 18
1.2.1. Évolution de la microstructure du combustible . . . 19
1.2.2. Évolution de la gaine en résidence . . . 23
1.3. Reactivity Iniated Accident . . . 24
1.3.1. Méthodologie d'étude des RIA . . . 25
1.3.2. Phénoménologie d'un RIA . . . 26
1.4. Codes de simulation pour l'étude des RIA . . . 35
1.4.1. Loi de comportement mécanique pour l'UO_2 sous transitoire RIA . . . 37
1.4.2. La loi de comportement L3F . . . 39
1.4.3. Relâchement des gaz de fission (RGF) . . . 40
1.5. Bilan et axes d'études de la thèse . . . 43

2. Développement des expériences de chauffage laser RIA 45
2.1. Introduction . . . 45
2.2. Principe expérimental du transitoire thermique induit par laser pour la reproduction d'un RIA . . . 46
2.3. Dispositif expérimental pour l'étude des RIA par chauffage laser . . . 47
2.3.1. Chambre d'expérience . . . 47
2.3.2. Portes-échantillons . . . 48
2.3.3. Faisceaux lasers . . . 49
2.3.4. Dispositif de visualisation . . . 56
2.3.5. Pyrométrie et mesures infrarouges . . . 57
2.3.6. Configuration d'expérimentation finale . . . 63
2.4. Conclusion . . . 64

3. Étude de l'interaction laser-UO_2 66
3.1. Introduction . . . 66
3.2. Constantes optiques du dioxyde d'uranium . . . 67
3.3. Méthode de détermination des propriétés optiques . . . 71
3.3.1. Spectro-ellipsométrie . . . 71

3.3.2. Spectro-photométrie . . . 71
3.4. Échantillon et caractérisations optiques . . . 74
3.4.1. Préparation des lames minces . . . 74
3.4.2. Caractérisation de l'état de surface . . . 76
3.4.3. Mesures de réflectance et de transmittance . . . 76
3.5. Propagation de la lumière dans les échantillons de type "lame mince" . . . 78
3.5.1. Quelques éléments de théorie . . . 78
3.5.2. Modèle analytique . . . 80
3.5.3. Résultats . . . 82
3.6. Conclusion . . . 84

4. Modèle numérique pour la simulation thermo-mécanique de chauffes laser réalisées sur UO_2 86
4.1. Propriétés thermophysiques de l'UO_2 . . . 86
4.1.1. Température de fusion . . . 87
4.1.2. Masse molaire . . . 87
4.1.3. Masse volumique . . . 87
4.1.4. Capacité thermique . . . 88
4.1.5. Conductivité thermique . . . 88
4.1.6. Dilatation thermique . . . 88
4.1.7. Module de Young . . . 89
4.1.8. Coefficient de Poisson . . . 90
4.2. Loi de comportement pour l'UO_2 soumis à un chauffage laser . . . 91
4.3. Simulation du chargement laser . . . 95
4.3.1. Terme source de chaleur en négligeant la diffusion du rayonnement laser . . . 95
4.3.2. Terme source de chaleur en prenant en compte la diffusion du rayonnement laser 96
4.3.3. Simulation Monte-Carlo pour la diffusion de la lumière dans l'UO_2 . . . 98
4.4. Maillage et conditions limites . . . 100
4.5. Conclusion . . . 101

5. Résultats 103
5.1. Disques d'UO_2 pour la réalisation de chauffes laser . . . 104
5.1.1. État de surface et réflectance des échantillons . . . 104
5.2. Chauffes laser et comparaison calcul-mesure . . . 104
5.2.1. Configuration expérimentale . . . 105
5.2.2. Chauffes laser annulaire . . . 105
5.2.3. Chauffes laser homogènes . . . 122
5.2.4. Bilan de la simulation de la thermique des chauffes laser . . . 128
5.3. Étude du comportement thermo-mécanique d'échantillons soumis à des chauffes laser annulaires . . . 129
5.3.1. Configuration expérimentale . . . 129
5.3.2. Première validation de la loi de comportement mécanique . . . 130
5.3.3. Deuxième série de chauffes laser annulaires "mécaniques" . . . 138
5.3.4. Bilan de l'analyse thermo-mécanique des chauffes laser annulaires . . . 146
5.4. Chauffes combinées : vers la reproduction de la totalité du transitoire RIA . . . 147
5.5. Bilan des chauffes laser . . . 152

Conclusion 153

ANNEXES 156
A. Equations du faisceau annulaire gaussien. . . . 156
B. Estimation de la PSF de la caméra infrarouge depuis une mesure de l'ESF . . . 157
C. Equations pour le modèle analytique de propagation de la lumière . . . 161
C.1. R vers n : . . . 161
C.2. R_2 depuis la mesure de réflexion en face arrière . . . 162

Bibliographie 163

Table des figures 171

Liste des tableaux 178

Liste des acronymes

APRP
Accident par Perte de Refrigérant Primaire. 40

BU
Burn-Up. 22, 169

DNB
Departure from Nucleate Boiling. 32

DOE
Diffractive Optical Element. 51

ESF
Edge Spread Function. 60, 110

FTM
Fonction de Transfert de Modulation. 61

FWHM
Full Width Half Maximum. 50

HBS
High Burn-Up Structure. 21, 22, 169

ICPE
Installation Classée pour la Protection de l'Environnement. 74, 103

IPG
Interaction Pastille-Gaine. 28

LSF
Line Spread Function. 60, 110

MC
Monte-Carlo. 117

MOX
Mixed Oxyde Fuel. 17

PFG
Produits de Fission Gazeux. 21, 22

PSF
Point Spread Function. 60, 110

REP
Réacteur à Eau Pressurisée. 15, 17, 20–22, 169

RGF
Relâchement des Gaz de Fission. 85

RIA
Reactivity Iniated Accident. 24

SEM
Microscope Electronique à Balayage. 22, 169

TEM
Microscope à Transmission Electronique. 20

Introduction

La filière électro-nucléaire en France représente une part importante de la production d'électricité. Si sa part est amenée à être de 50% de la production électrique d'ici 2050, les besoins en électricité sont amenés à augmenter, l'électrification étant une partie de la réponse à l'enjeu climatique auquel nous faisons face et est nécessaire pour tenir les engagements successifs. Pour rappel, en 2022, et pour tenir les engagements pris lors des accords de Paris en 2015 visant à maintenir le réchauffement global de la Terre en dessous de 2°C depuis l'époque pré-industrielle, une réduction de 5% par an de nos émissions de gaz à effet de serre est nécessaire. Depuis leur signature, seule l'année du COVID-19 et les mesures sanitaires mises en place pour freiner l'épidémie ainsi que le ralentissement de la production économique, a vu, au global, une réduction de 5% des émissions de gaz à effet de serre.

Néanmoins la filière nucléaire est loin de faire l'unanimité dans la population, son histoire étant marquée par des accidents comme celui de Tchernobyl ou plus récemment de Fukishima-Daichy et n'est pas forcément considérée comme une solution désirable par l'opinion publique qui peut la considérer comme étant plus dangereuse encore que le réchauffement climatique ou la dépendance aux énergies fossiles. Les potentiels accidents ou les problématiques de stockages des déchets ultimes de la filière sont au cœur du débat sur la désidérabilité du nucléaire civil.

De fait un impératif de sureté et de sécurité pour la filière est nécessaire sur tous les points de vue et une compréhension approfondie du comportement du combustible et du réacteur pendant une situation incidentelle ou accidentelle est primordiale. Parmi les situations accidentelles d'intérêt, on peut citer l'Accident par Insertion de Reactivité (Reactivity Initiated Accident - RIA) qui est caractérisé par une augmentation brutale de la température du combustible de l'ordre de la dizaine de milliers de °C par secondes pendant quelques millisecondes. Jusqu'à présent aucune technique expérimentale n'était capable de reproduire la cinétique d'élévation de température d'un RIA à l'échelle du laboratoire. Ces travaux de thèse vont s'appuyer sur une technique de chauffage laser originale permettant de reproduire des cinétiques d'élévations de température représentatives d'un RIA. L'objectif général de la thèse était de proposer un outil de simulation thermo-mécanique permettant de prédimensionner et d'interpréter les chauffes lasers.

Ce manuscrit est composé de cinq chapitres. Le premier chapitre propose un état de l'art détaillé de la phénoménologie d'un RIA. L'accent sera mis en fin de chapitre à la mise en évidence de certains phénomènes physiques qui gagneraient à être mieux compris, comme la sur-fragmentation du combustible par exemple. Nous mettrons en évidence l'intérêt scientifique à proposer de nouveaux moyens d'études à l'échelle du laboratoire et la simulation thermo-mécanique associée pour compléter notre compréhension de ces phénomènes.

Dans le Chapitre 2 nous présenterons les moyens expérimentaux développés pour réaliser la chauffe laser en tant que telle et les moyens de caractérisations à notre disposition.

Le Chapitre 3 s'intéressera ensuite à l'interaction laser-matière et proposera une première caractérisation de l'absorption du rayonnement laser dans l'épaisseur de la céramique nucléaire.

Le Chapitre 4 présentera les moyens de simulations développés dans le cadre de cette thèse et notamment le code de calcul thermo-mécanique basé sur la méthode par éléments finis et le solveur Cast3m du CEA. Nous présenterons aussi la loi de comportement mécanique que nous avons adoptée et paramétrée pour rendre compte du comportement mécanique des échantillons lorsque soumis à des chauffes laser.

Enfin dans le cinquième et dernier chapitre nous présenterons l'ensemble des chauffes laser réalisées et leur interprétation par la simulation thermo-mécanique. Une première partie sera dédiée à la thermique des chauffes laser et à la validation de la description du chargement laser adoptée dans la simulation. Nous nous intéresserons ensuite à l'interprétation thermo-mécaniques en elle-même et à la reproduction du comportement mécanique des échantillons observés expérimentalement.

Nous mettrons en évidence la pertinence du chauffage laser pour l'étude du combustible en situation de RIA au vu des états de contraintes et des vitesses de déformations obtenues.

1. Contexte et positionnement de la thèse

Sommaire

1.1. Les réacteurs à eau pressurisée : principe de fonctionnement . . . 15
1.1.1. Les réactions de fission . . . 16
1.1.2. Le combustible nucléaire (UO_2)[3] . . . 17
1.2. Évolution du combustible en résidence . . . 18
1.2.1. Évolution de la microstructure du combustible . . . 19
1.2.1.1. Ségrégation intergranulaire des produits de fission gazeux . . . 20
1.2.1.2. Différents types de microstructure . . . 20
1.2.1.3. Phénomènes de déformation mécanique . . . 22
1.2.2. Évolution de la gaine en résidence . . . 23
1.2.2.1. Corrosion de la gaine . . . 23
1.3. Reactivity Iniated Accident . . . 24
1.3.1. Méthodologie d'étude des RIA . . . 25
1.3.2. Phénoménologie d'un RIA . . . 26
1.3.2.1. Gonflement et interaction pastille-gaine . . . 28
1.3.2.2. Effets des gaz de fission pendant un transitoire RIA . . . 28
1.3.2.3. Survenance d'une crise d'ébullition . . . 32
1.3.2.4. Remouillage . . . 32
1.3.2.5. Conditions mécaniques dans le combustible . . . 33
1.3.2.6. Bilan des études en réacteurs expérimentaux . . . 34
1.4. Codes de simulation pour l'étude des RIA . . . 35
1.4.1. Loi de comportement mécanique pour l'UO_2 sous transitoire RIA . . . 37
1.4.2. La loi de comportement L3F . . . 39
1.4.3. Relâchement des gaz de fission (RGF) . . . 40
1.5. Bilan et axes d'études de la thèse . . . 43

1.1. Les réacteurs à eau pressurisée : principe de fonctionnement

En 2018 la production mondiale d'énergie électrique d'origine nucléaire était d'environ 2500 TWh, représentant 10 % de l'électricité mondiale produite soit 4,5 % de l'énergie primaire utilisée dans le monde avec 449 réacteurs en service. Une cinquantaine de réacteurs étaient en construction, 150 étaient planifiés et plus de 300 en discussion [1].

La France a, pour des raisons historiques, largement basé sa production électrique sur l'atome avec 56 réacteurs en opération représentants actuellement environ 74 % de sa production électrique.

La filière de réacteurs la plus répandue dans la monde est la filière des Réacteurs à Eau Pressurisée (Réacteur à Eau Pressurisée (REP)) et la France n'y fait pas exception, la totalité de ses réacteurs civils industriels étant des REPs.

Une centrale nucléaire est une importante "machine" thermique, l'énergie produite grâce aux réactions de fission de noyaux d'uranium et/ou de plutonium y est dissipée sous forme de chaleur dans le réacteur. Cette chaleur est évacuée par un fluide sous pression, à savoir de l'eau, pour ensuite générer de la vapeur qui met en mouvement une turbine reliée à un alternateur. Un REP est composé de trois circuits principaux indépendants(Figure 1.1) :

— La chaleur générée par la fission des éléments combustibles du réacteur est récupérée une première fois par l'eau du circuit primaire. Cette eau est maintenue liquide aux environs de 330 °C en étant sous pression (environ 155 bars) et circule entre les éléments combustibles. Elle est ensuite transportée jusqu'à un générateur de vapeur.
— L'eau du circuit secondaire récupère la chaleur du circuit primaire dans le générateur de vapeur et est vaporisée en conséquence. Cette vapeur est utilisée pour mettre en mouvement une turbine reliée à un alternateur pour produire de l'électricité. Cette vapeur passe ensuite par un condenseur où elle est refroidie par l'eau du circuit tertiaire, la source froide du cycle thermique.
— L'eau du circuit tertiaire provient d'un fleuve ou de la mer. Dans le cas des centrales en bord de fleuve avec un débit trop faible pour fonctionner en circuit ouvert, l'eau du circuit tertiaire est refroidie dans une tour aérofrigérante afin de limiter les prélèvements d'eau.

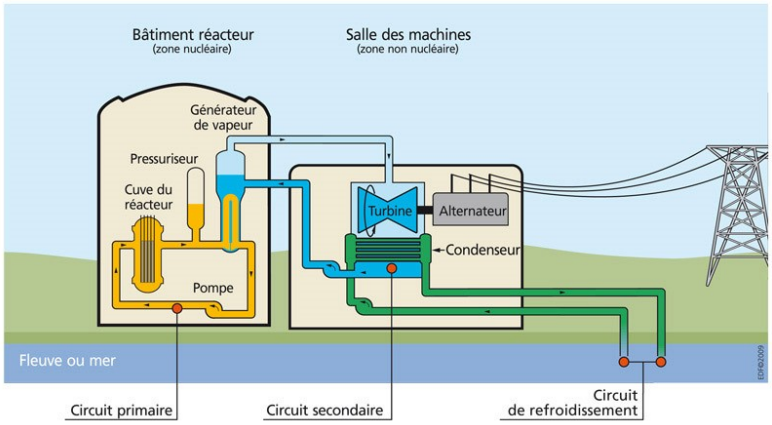


FIGURE 1.1. – Schéma d'un réacteur dans une centrale nucléaire

Les éléments radioactifs présents au sein du réacteur sont confinés à l'intérieur du réacteur. On distingue trois barrières de confinement successives :
— La gaine qui sera présentée plus en détails par la suite est une structure tubulaire en alliage de zirconium dans lequel est inséré le combustible nucléaire.
— La cuve et le circuit primaire qui est fermé prennent le relais en cas de rupture de gaines.
— Enfin, le bâtiment réacteur dans lequel se trouve la cuve du réacteur et le circuit primaire est une structure en béton armé qui joue le rôle de barrière de confinement ultime. Il assure aussi la protection du réacteur contre les possibles attaques externes.

1.1.1. Les réactions de fission

La production de chaleur se fait donc dans la cuve du réacteur, les réactions de fission (Figure 1.2) ayant lieu en son sein. Une réaction de fission est un phénomène par lequel un noyau atomique "lourd" se scinde en plusieurs nucléides plus légers. La réaction de fission induite est un cas particulier d'une interaction neutron-noyau atomique qui n'a lieu que pour quelques isotopes de certains éléments appelés isotopes fissiles. Le seul isotope fissile présent abondamment dans la nature est l'uranium 235. Le deuxième isotope fissile considéré dans un REP est le ^{239}Pu formé à partir de l'^{238}U. En France, le combustible nucléaire est composé d'uranium enrichi entre 3% et 5% en ^{235}U, le reste étant de l'^{238}U. Un autre type d'oxyde composé d'oxyde d'uranium appauvri et d'oxyde plutonium appelé MOX (Mixed Oxides fuels) est aussi mis en œuvre afin d'utiliser le plutonium produit en réacteur par capture neutronique de l'^{238}U et récupéré lors du traitement du combustible usé [2].

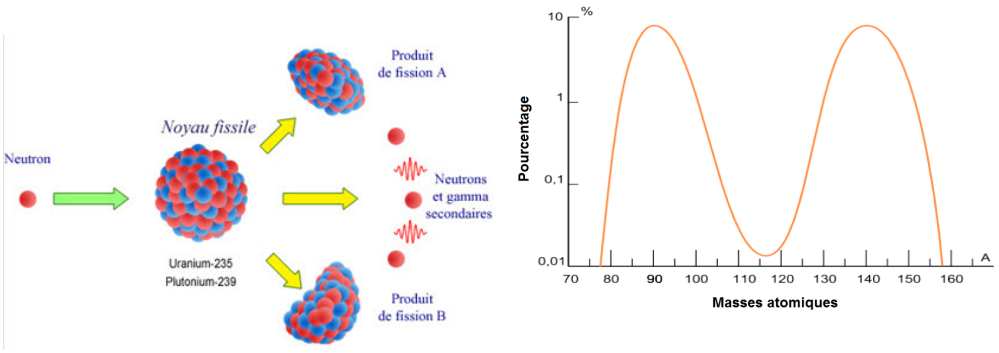


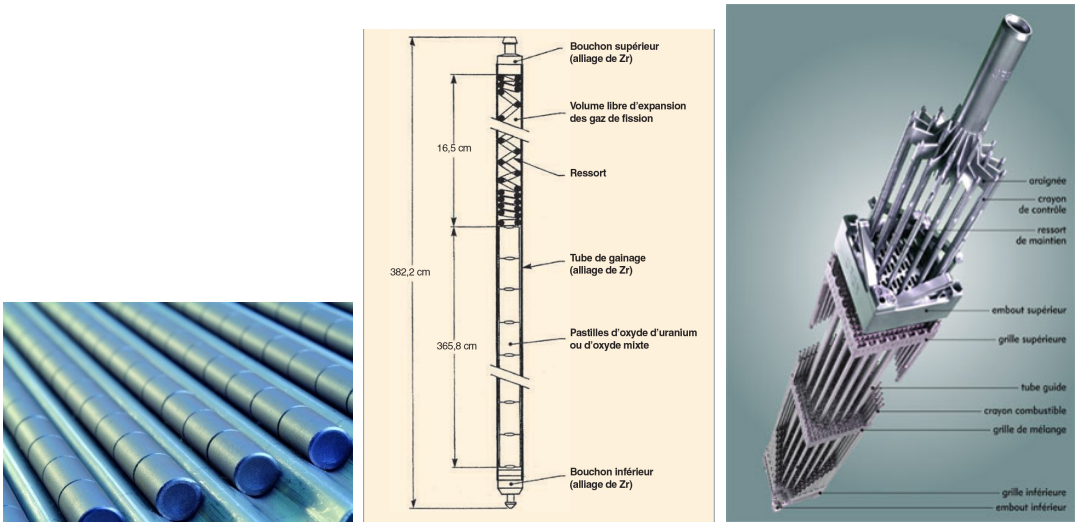
FIGURE 1.2. – A gauche : schéma d'une réaction de fission induite. A droite : probabilité de formation des produits de fission à partir de l'uranium 235 en fonction de leur masse

La réaction de fission est accompagnée par une émission de neutrons et un dégagement important d'énergie cinétique des neutrons et des produits de fission (Figure 1.2), qui est à terme transformée en énergie thermique. Les neutrons émis, généralement 2 ou 3, peuvent être à nouveau absorbés par d'autres noyaux fissiles et engendrer de nouvelles réactions de fission, c'est le principe de la réaction en chaîne. Ces réactions en chaîne sont favorisées en ralentissant les neutrons émis par les réaction de fission jusqu'à une vitesse cinétique inférieure à 1 eV. En effet, les neutrons dits ralentis ou thermalisés ont une probabilité d'être absorbés par l'uranium 235 beaucoup plus élevée que les neutrons dits rapides. Ce ralentissement est fait par le modérateur, qui doit être une matière comportant des éléments de faible masse atomique. Dans un REP, le caloporteur joue aussi le rôle de modérateur grâce aux atomes d'hydrogène de l'eau.

Dans un réacteur nucléaire en condition nominale, le taux de fission est maîtrisé afin de le maintenir constant et éviter un emballement du réacteur. Ce régime critique est maintenu grâce à des matériaux neutrophages. Ils sont utilisés soit dilués dans l'eau du circuit primaire –cas de l'acide borique- ou sous forme de grappes de commandes –cas de l'Argent-Indium-Cadmium ou du carbure de Bore- insérées plus ou moins profondément dans le cœur du réacteur. Ces moyens de contrôle permettent de commander à tout moment la puissance fournie par le réacteur et d'arrêter complètement les réactions de fission si cela s'avère nécessaire.

1.1.2. Le combustible nucléaire (UO_2)[3]

Le combustible nucléaire qu'il soit UO_2 ou de type Mixed Oxyde Fuel (MOX), se présente sous forme de pastilles (Figure 1.3a) fabriquées par compression et frittage de poudres. Ces pastilles ont des dimensions de l'ordre de 8,2 mm de diamètre pour 13,5 mm de hauteur. Elles présentent de plus des évidements à leurs extrémités pour accommoder le gonflement de la pastille qui survient lors de son séjour en réacteur. La densité initiale des pastilles d'UO_2 est égale à 95 % de la densité théorique qui est de 10,96 g.cm^{-3}. Ces pastilles sont ensuite empilées dans des gaines métalliques d'alliages en zirconium formant ainsi ce qu'on appelle un crayon combustible (Figure 1.3b). La gaine sert à assurer le maintien mécanique des pastilles, à confiner les produits de fission et à évacuer la chaleur produite par le combustible vers le fluide caloporteur. Un interstice pastille-gaine de quelques dizaines de μm est présent lors de la fabrication des crayons. Un crayon d'un réacteur REP contient environ 272 pastilles pour une longueur de 3,85 m. Ils sont pressurisés à l'hélium et leur partie supérieure appelée plénum permet d'accommoder le relâchement des gaz de fission formés pendant la résidence du combustible en réacteur. Ces crayons sont ensuite regroupés en assemblages (Figure 1.3c) avec les barres de commandes qui peuvent être insérées plus ou moins profondément. Les assemblages comprennent un embout supérieur et inférieur et des tubes guides sur lesquels sont fixées des grilles de maintien des crayons combustibles et des barres de commandes qui sont repartis en son sein.



(a) (b) (c)

FIGURE 1.3. – A gauche : pastilles de combustibles nucléaire. Au centre : schéma d'un crayon combustible. A droite : schéma d'un assemblage.

1.2. Évolution du combustible en résidence

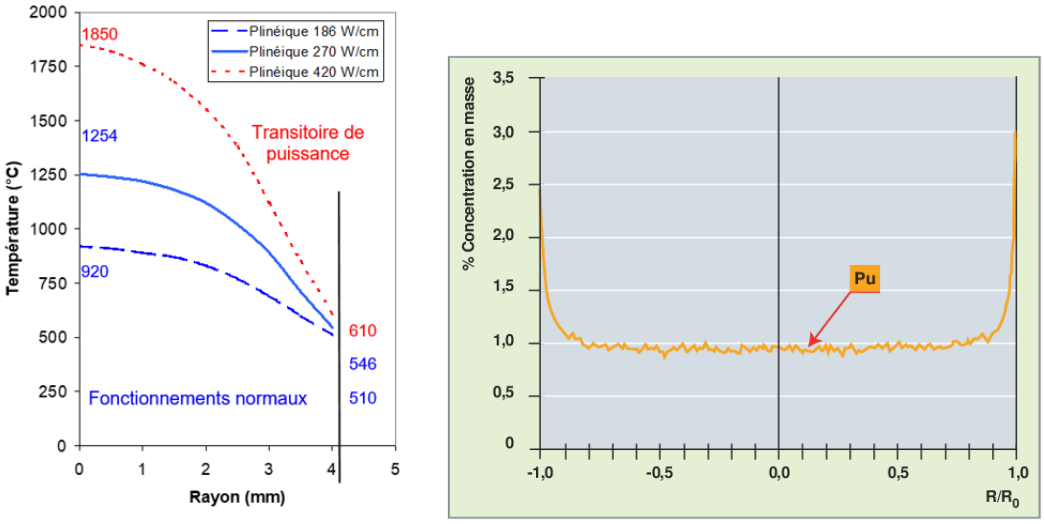
Le combustible évolue constamment durant son séjour en réacteur. Cette section vise à présenter les aspects les plus remarquables de cette modification.

La faible conductivité thermique de l'UO_2 (≈ 3 W/m.K) [4, 5] entraîne un gradient de température entre le cœur de la pastille et la périphérie proche de la gaine. En conditions nominales, la température du cœur de la pastille fluctue entre 900 et 1300 °C et entre 500 et 600 °C en périphérie de pastille proche de la gaine refroidie par le caloporteur du circuit primaire maintenu à environ 350 °C (Figure 1.4a). Ce gradient thermique va mener à des modifications d'ordre mécanique et physico-chimique du combustible comme nous le verrons par la suite.

La section efficace d'absorption des neutrons épithermiques, dont l'énergie cinétique est comprise entre 1 eV et 10 keV, présente d'importants pics de résonance dans ce domaine. Les neutrons dont l'énergie correspond à ces pics de résonance ont donc une forte probabilité d'être absorbés à peine ont-ils commencé à pénétrer le combustible. Du fait de cette probabilité de capture élevée pour ces niveaux d'énergies, on observe un gradient de concentration en Pu piqué en périphérie de pastille [1]. Cette teneur en Pu est de l'ordre de 2 à 3 % en périphérie de pastille pour environ 1 % en cœur après 4 cycles d'irradiation (Figure 1.4b).

La composition isotopique et chimique du combustible change constamment sous l'effet des réactions de fission et de la radioactivité des produits de fissions (PF). Le taux de combustion du combustible mesure la fraction du combustible nucléaire consommé pour produire de la chaleur. Il est exprimé en % d'atomes qui ont subi une fission nucléaire ou par l'énergie fournie exprimée en GigaWatt-jour par tonne (GWj/t). Ce taux de combustion (Burn-up ou BU) n'est pas le même sur l'ensemble du crayon ou de la pastille. Cela est dû d'une part à un profil de puissance le long du crayon qui peut varier (Voir Figure 1.5 pour exemple) et d'autre part à la capture préférentielle des neutrons épithermiques en périphérie de pastille. Ainsi un crayon présentant un taux de combustion moyen de 60 GWj/t pourra contenir des pastilles présentant des taux de combustion locaux de 80 GWj/t et un profil piqué en périphérie avec un BU de l'ordre de 130 GWj/t.

1. La capture neutronique par l'^{238}U donne du ^{239}Pu après deux désintégrations β^- successives



(a) Gradient de température au sein d'une demie-pastille pour une puissance linéique donnée [6]

(b) Gradient de concentration radial en Pu d'une pastille après 4 cycles d'irradiation [2]

FIGURE 1.4.

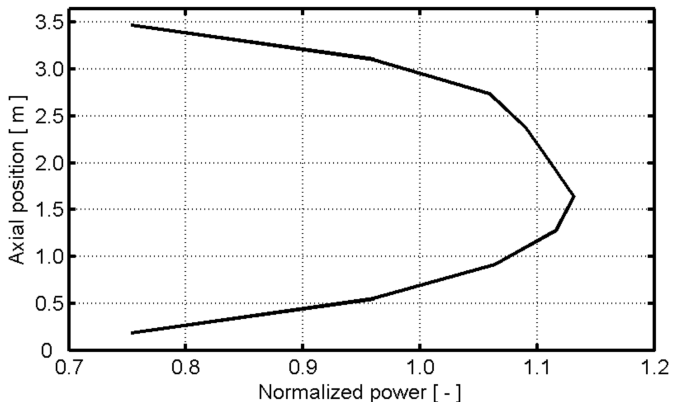


FIGURE 1.5. – Profil axial typique de puissance normalisée le long d'un crayon. D'après [7].

Tous ces facteurs environnementaux altèrent la composition chimique, les propriétés thermophysiques (sous l'effet de phénomènes de fracturation par exemple dus au gradient thermique) et la microstructure (déplacements atomiques, phénomènes d'irradiation, formation de produits de fission) du combustible. Le combustible est donc en constante évolution, processus qui continue même en condition de stockage. Ces changements et évolutions ne sont pas, comme les paramètres qui les sous-tendent, uniformément répartis dans le combustible.

1.2.1. Évolution de la microstructure du combustible

Les changements de microstructure entraînent un changement de la majeure partie des propriétés du combustible ; la compréhension et la prévision de ces changements est alors cruciale pour avoir un modèle prédictif du comportement du combustible en réacteur. Présentons ci-après quelques-unes des modifications de microstructure les plus importantes.

1.2.1.1. Ségrégation intergranulaire des produits de fission gazeux

Les gaz rares Krypton et Xenon, dont la quantité produite est relativement importante (jusqu'à environ 30 % en masse), sont des produits de fission hautement insolubles, ils ont donc tendance à diffuser et à se combiner avec des lacunes cristallographiques et/ou précipités métalliques pour former de petits agrégats extrêmement denses. Des bulles de gaz de dimensions nanométriques fortement pressurisées (GPa) ont étés observées par Microscope à Transmission Electronique (TEM) (Voir Figure 1.6 pour un exemple) [8-10] pour du combustible avec des taux de combustion entre 6 à 83 GWj/t. Leurs tailles et concentrations ne semblent dépendre que marginalement du taux de combustion et de la température, bien qu'un grossissement de celles-ci -jusqu'à 100 nm- ait été observé pour des températures supérieures à 1173 K [11] à mesure que le taux de combustion augmente.

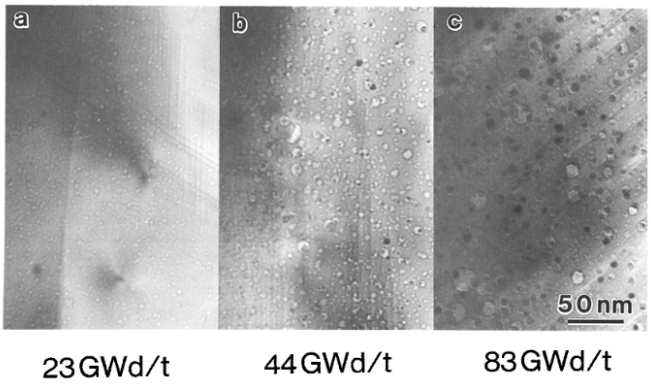


FIGURE 1.6. – Images MET de bulles intragranulaires pour plusieurs taux de combustions. (a) et (b) : Combustible de Réacteur à Eau Bouillante (REB) irradié en réacteur commercial, enrichi à 1,5 % (c) : Combustible REP irradié en réacteur de test, enrichi à 7.0 % [9]

Le comportement et l'évolution de ces bulles de gaz est un phénomène complexe qui comprend par exemple [12-16] :

— La nucléation des bulles
— Le grossissement par diffusion des atomes gazeux
— L'interaction avec les dislocations ou les joints de grains

1.2.1.2. Différents types de microstructure

On distingue 3 types de microstructure pour des taux de combustion élevés à partir d'environ 55 GWj/t :

— Une zone centrale marquée par la précipation des bulles de gaz intragranulaires
— Une zone intermédiaire présentant une faible porosité
— Une zone périphérique fortement restructurée appelée High Burn Up Structure (HBS)

Ces différences en microstructure et en porosité sont illustrées par les figures 1.7 et 1.8.

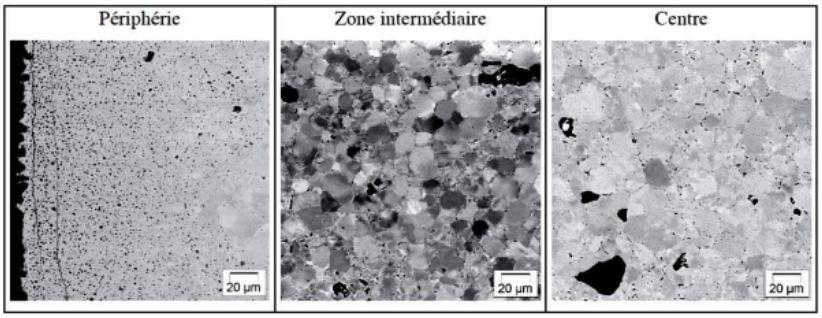


FIGURE 1.7. – Visualisation des zones de microstructure distinctes pour un taux de combustion moyen de 72 GWj/t. Combustible REP [17].

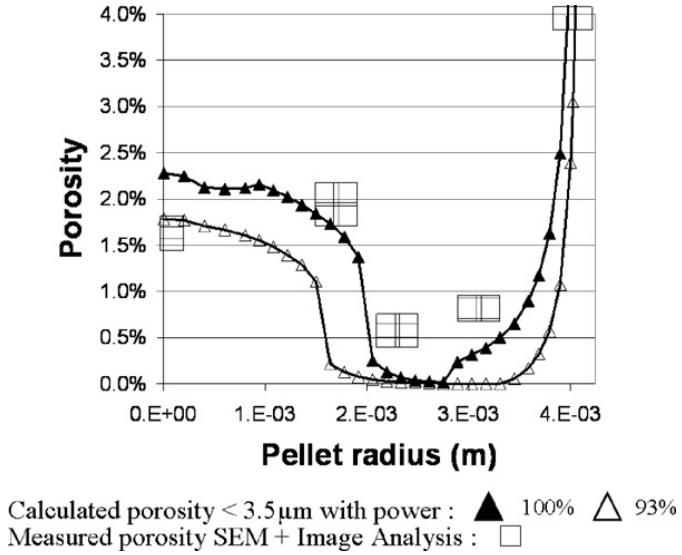


FIGURE 1.8. – Porosité radiale calculée (code MARGARET) et mesurée pour un échantillon combustible présentant un taux de combustion de 61 GWj/t [18].

Cette zone dite High Burn-Up Structure (HBS) est observée en périphérie de pastille à partir de taux de combustion moyen de 60 GWj/t et à des températures inférieures à 1073 K [19]. Elle est caractérisée par une réduction de la taille des grains -allant jusqu'à quelques centaines de nanomètres- et par une forte augmentation de la porosité, typiquement entre 10 et 22 %. Cette dernière croit avec le taux de combustion et l'augmentation en concentration des produits de fission gazeux (PFG) [20, p.93] (Figure 1.9). Cette restructuration est accompagnée par un repositionnement des gaz de fission depuis les bulles intraganulaires de dimension nanométrique et vers des pores intergranulaires de dimensions micrométriques [21].

Ce changement caractéristique de microstructure (Figure 1.10) est accompagné d'une réduction de la conduction thermique [22] et d'une modification des propriétés mécaniques du combustible [23]. En fonctionnement et à température nominale, généralement inférieure à 800 K, cette zone restructurée fortement poreuse est mécaniquement stable. Sa contribution au relâchement de l'inventaire gazeux dans le volume libre est faible [19, 24], la majorité des Produits de Fission Gazeux (PFG) restant dans les bulles pressurisées de la HBS. Néanmoins, sa cohésion mécanique peut-être compromise par une augmentation brutale de la température sous l'effet des mécanismes de fracturation ou d'expansion des gaz de fissions en résultant [25, p.41].

L'épaisseur radiale de cette zone augmente avec le taux de combustion et l'accumulation de produits de fission et atteint typiquement plus de la centaine de micromètres en REP pour des taux de combustion autour de 80 GWj/t [17, 26].

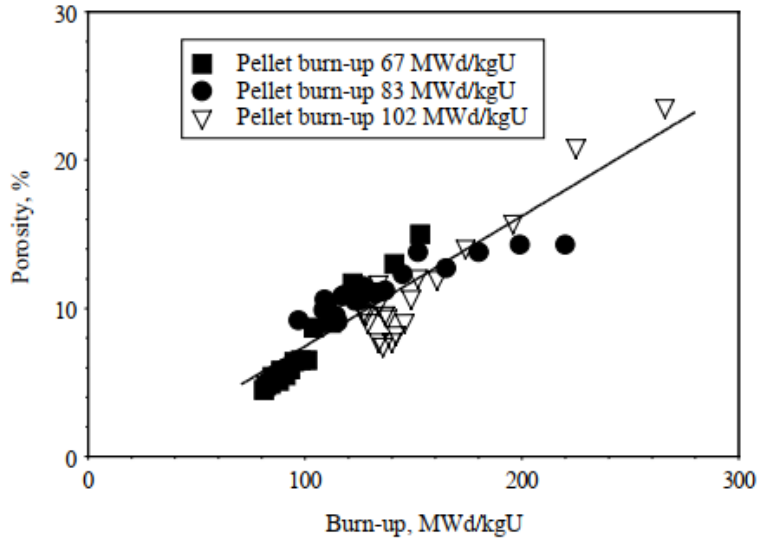


FIGURE 1.9. – Evolution de la porosité de la HBS en fonction du Burn-Up (BU) local de la zone périphérique de la pastille [20]

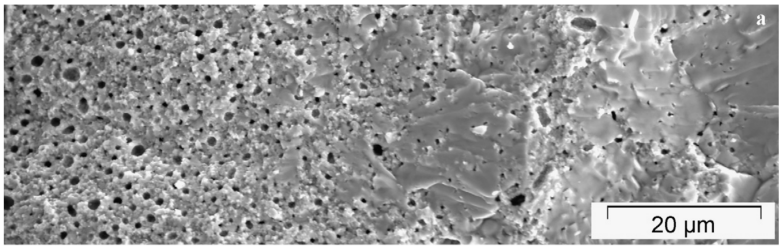


FIGURE 1.10. – Image Microscope Electronique à Balayage (SEM) de la HBS , combustible irradié en REP, BU moyen de la pastille 73 GWj/t, taux d'enrichhissement : 4,5 % d'^{235}U [19]

1.2.1.3. Phénomènes de déformation mécanique

La réponse mécanique du combustible à l'environnement thermique dans lequel il évolue dépend d'une part de la microstructure -hétérogène- dans la pastille, dont un aperçu vient d'être donné précédemment, et d'autre part des gradients thermiques et de son historique de contraintes. Les mécanismes de déformation sont multiples : gonflement, fracturation, interaction pastille-gaine (IPG), fluage.

Le gonflement de la pastille combustible est majoritairement dû à la fission des atomes du combustible (^{238}U et ^{239}Pu) en produits de fission. Si la contribution des produits de fission solides est faible, la création des PFG et leur précipitation en bulles entraîne un gonflement de la pastille qui augmente avec le taux de combustion [27, p.380].

La fracturation est un phénomène important à considérer puisqu'il modifie la conductivité thermique du combustible et son intégrité globale. De plus, les réseaux de fracturation sont des surfaces libres par lesquels les gaz de fission sont susceptibles d'être relâchés dans le volume libre du crayon. Un réseau de fracturation apparaît dès la première montée en température du combustible à cause du gradient thermique qui s'y installe et qui entraîne une mise en traction circonférentielle et axiale du combustible. Cette mise en tension donne naissance à des fracturations transverses et radiales [28-30] comme montré en figure 1.11.a.

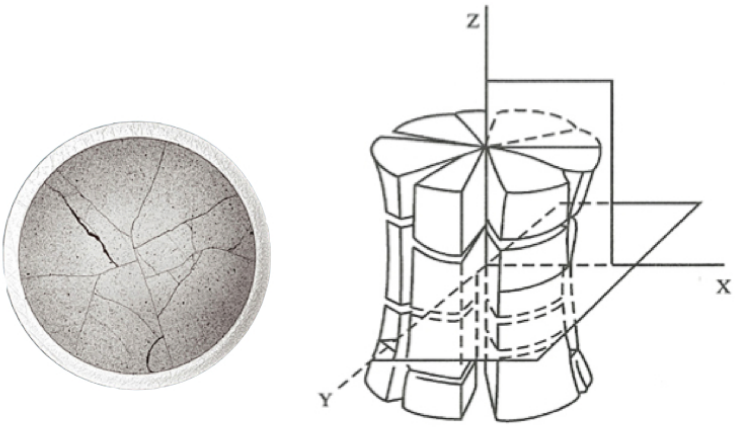


FIGURE 1.11. – Coupe montrant le réseau de fracturation et schéma de la forme en diabolo prise par la pastille [3]

De manière générale, le combustible nucléaire est une céramique et présente donc un comportement fragile pour des températures inférieures à 900 °C, sa mise en tension à cause d'un gradient thermique aura tendance à engendrer de la fracturation si les contraintes engendrées (> 100-140 Mpa) sont suffisamment importantes.

1.2.2. Évolution de la gaine en résidence

Tout comme le combustible, la gaine faite en zircaloy (alliage à base de Zirconium) va subir des modifications chimiques ou mécaniques. Ces changements viennent principalement de la corrosion induite par le caloporteur et de l'endommagement par irradiation.

1.2.2.1. Corrosion de la gaine

La formation d'une couche de zircone (ZrO_2) sur l'extérieur de la gaine modifie directement les propriétés thermiques et mécaniques de celle-ci. De plus, la réaction chimique eau-métal libère de l'oxygène et de l'hydrogène susceptibles de se diffuser dans le métal entraînant une fragilisation progressive de la gaine.

La zircone ayant une conduction thermique faible (2 W/m.K) [5], la formation de cette couche de corrosion va faire augmenter la température du combustible et de la gaine. La couche de zircone est aussi une couche fragile, les fracturations formées dans celle-ci sont susceptibles d'être des sites à partir desquels les fissurations vont se propager dans le métal. Les gaines en zircaloy présentant un fort taux de corrosion sont donc susceptibles d'avoir un comportement macroscopique de type fragile [31, 32]. En cas de fortes sollicitations mécaniques le risque de fracturation d'une telle gaine est fortement augmenté [33]. De plus de la désquamation peut survenir sur ces couches d'oxydes, ce qui entraîne des différences de températures sur la gaine entre les régions où l'alliage de gaine est à nu et celles où la couche d'oxyde est toujours présente. Ces points froids sont alors des zones préférentielles où la formation de plaquettes d'hydride peut survenir. L'hydrogène formé par la réaction eau-métal peut rentrer dans le métal et se diffuser vers les points froids de la gaine. Quand la concentration en hydrogène atteint la limite de solubilité solide, il va se précipiter et former des hydrides de zirconium. Ces hydrides sont fragiles et fragilisent la gaine à mesure qu'ils précipitent en son sein [31, 34, 35].

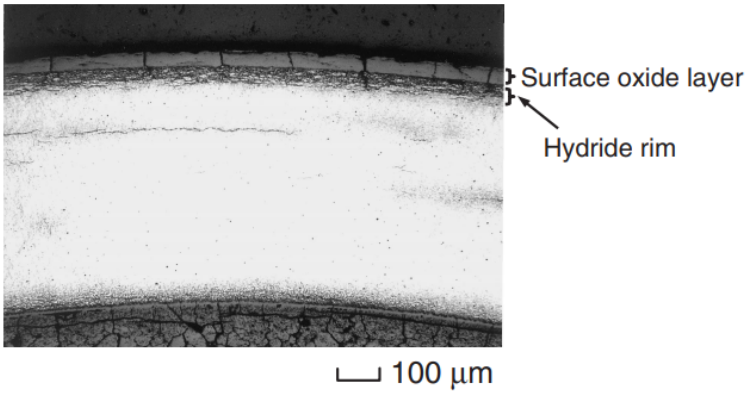


FIGURE 1.12. – Image MEB montrant la couche externe de zircone et les plaquettes d'hydride d'une gaine [36]

Pour conclure, cette partie visait à présenter plusieurs des modifications importantes des matériaux combustibles et gaine durant leur séjour en réacteur. Ces modifications sont multiples et de plusieurs ordres et la liste qui en a été faite est loin d'être exhaustive. Les explications présentées des processus régissant ces modifications sont aussi partielles ; les processus régissant ces modifications peuvent être particulièrement complexes et sont pour certains encore mal compris. Ces évolutions peuvent être détrimentaires et conduire à la défaillance des crayons combustibles en cas d'une augmentation brutale de la température pendant une situation accidentelle.

1.3. Reactivity Iniated Accident

Pour classer les situations accidentelles, on utilise l'échelle internationale des événements nucléaires dite échelle INES (pour International Nuclear Event Scale) . Elle classe les anomalies, incidents ou accidents nucléaires de 1 à 7 selon leurs gravité et leur impact sur les personnes ou l'environnement. Un accident nucléaire est un événement classé de 4 à 7 sur cette échelle. On parle d'accident pour un événement classé 4 ou 5, d'accident grave pour un événement classé 6 et d'accident majeur pour un événement classé 7.

Dans un réacteur, une situation accidentelle est un événement où la puissance générée par le cœur n'est plus compensée par la quantité d'énergie pouvant être évacuée par le caloporteur. Ces événements amènent à une augmentation de la température du combustible jusqu'à atteindre, dans le pire des cas, une fusion partielle ou totale du cœur. Une situation accidentelle peut alors être considérée comme un accident majeur (niveau 7 sur l'échelle INES) si les conséquences radiologiques sont importantes sur la santé du public et l'environnement. Ce relargage important de radio-isotopes dans l'environnement est souvent entraîné par une fusion préalable du cœur. Les deux accidents nucléaires majeurs sont l'accident de Tchernobyl en 1986 et l'accident de Fukushima en 2011. Historiquement et bien que classé de niveau 5, le premier accident nucléaire en réacteur commercial est celui de Three Miles Island en 1979, menant à une fusion partielle (environ 45 %) du coeur et à un faible rejet de radioactivité dans l'environnement.

Ces situations accidentelles (niveau 4 et 5 sur l'échelle INES) sont principalement regroupées en deux groupes : l'Accident par Perte de Réfrigérant Primaire (APRP) et l'accident par excursion de réactivité (Reactivity Initiated Accident – RIA). Ces deux types d'accidents sont considérés comme des accidents de dimensionnements (fréquence inférieure à 10^{-4} par tranche et par an) et il ne doit pas y avoir de conséquences radiologiques pour le public dans de tels scénarios.

Le scénario de Reactivity Iniated Accident (RIA) généralement postulé est l'éjection d'une barre de commande (Rod Ejection Accident, REA) suite à la défaillance mécanique de son système d'entraînement [25]. Du fait de la neutralisation de cet élément neutrophile, les crayons alentours subissent une augmentation brutale et soudaine de leur réactivité. La cinétique d'un tel accident peut-être extrêmement rapide, l'éjection de la grappe et l'excursion de réactivité en résultant pouvant survenir en moins

de 100 ms. L'excursion de réactivité reste limitée dans le temps (dizaines de millisecondes) du fait de l'effet doppler neutronique [2]. L'augmentation brutale de température du fait de l'augmentation de puissance du cœur peut mener à la rupture partielle ou totale de gaines et au relargage d'une partie ou de l'entièreté de l'inventaire d'un crayon dans la cuve du réacteur. L'introduction du combustible chaud dans la cuve peut générer de la vapeur et des pics de pression et les ondes de chocs en résultant peuvent à leur tour endommager les assemblages ou composants à proximités, voire la cuve en elle-même. Des critères de sureté doivent donc être établis pour limiter la quantité de puissance susceptible d'être injectée à tout instant, en interdisant l'insertion trop profonde d'une barre de commande par exemple.

Les méthodes d'études des RIA et les principales informations en découlant sont présentées dans les paragraphes suivants.

1.3.1. Méthodologie d'étude des RIA

L'étude du comportement des crayons combustibles en situation RIA se fait par des études en réacteurs expérimentaux, des expériences à effets séparés et par l'utilisation de codes de simulation. La reproduction d'un RIA dans un réacteur commercial étant impossible, des essais représentatifs, conduits en réacteurs expérimentaux, consistent à reproduire un RIA à l'échelle d'un crayon refabriqué dans des réacteurs de recherche capables de générer des dépôts de puissance représentatifs. Le crayon test est instrumenté afin de recueillir un maximum de données expérimentales. La caractérisation post-mortem des crayons tests couplés à des codes de simulation capables de reproduire le comportement thermo-mécanique du combustible pendant le transitoire permet d'interpréter ces essais en réacteur expérimentaux. On peut citer les réacteurs expérimentaux suivants :

- SPERT-CDC (Special Power Excursion Reactor - Capsule Drive Core, Idaho, USA) [37] entre 1969 et 1970,
- PBF (Power Burst Facility, Idaho, USA)[37] entre 1978 et 1980,
- NSRR (Nuclear Safety Research Reactor, Tokai, Japon)[36, 38-40] depuis 1980,
- CABRI (Cadarache, France) [41] depuis 1993.
- Transient Reactor Test Facility (TREAT, Idaho, USA) [42] entre 1959 et 1994 et depuis 2017.

Historiquement les études menées sur SPERT, PBF et NSRR sur du combustible irradié jusqu'à 32 GWj/t ont permis de définir un critère de sûreté garantissant un dégagement de chaleur contrôlé assurant le refroidissement du cœur. Un incrément limite d'enthalpie de 200 cal/g a été défini [37]. Les critères de sûreté ont depuis évolué avec l'augmentation du taux de combustion, l'utilisation du MOX et l'utilisation de nouveaux alliages de zirconium pour la gaine, des essais plus récents sur Cabri ou le NSRR dans les années 90 ayant montré la non validité de ces anciens critères de sûreté. En France, les critères de sûreté relatifs au RIA ont étés mis à jour en 2017 [43]. Ils imposent des limites sur l'enthalpie maximale, sur la variation d'enthalpie, sur la largeur du pulse et sur la température de la gaine en cas de transitoire en fonction du taux de combustion et du type de combustible (UO_2, MOX, alliage de gaines).

Les codes de simulation (Fuel Perfomance Code) développés en parallèles de ces essais intégraux en réacteurs peuvent être multi-échelles et multi-physiques. On peut citer parmi les plus connus FALCON [44], FRAPTRAN [45], RANNS [46], SCANAIR [47], BISON [48] ou ALCYONE [49]. Ces codes permettent de connaître l'état du crayon à tout instant du transitoire. La plupart des codes en utilisation modélisent le crayon test en 1D ou quasi-2D (découpage axial du crayon), on peut citer ALCYONE, BISON et FALCON comme codes qui utilisent des géométries plus poussées (2D ou 3D). Afin de décrire le comportement mécanique du combustible ces codes intègrent des lois de comportement mécaniques (crayon ou pastille) différentes plus ou moins avancées. Ces lois de comportement sont définies sur la base d'essais conduits en laboratoire dans des conditions représentatives d'un transitoire RIA (température, vitesse de déformation).

En France, on peut citer le programme PROMETRA [50-52] pour le comportement mécanique des gaines de différents alliages de zirconium irradiées ou non, le programme PATRICIA [53] pour l'étude du flux de chaleur gaine-caloporteur ou bien les essais de compression de M. Salvo [54, 55] à hautes-vitesse de déformation sur des pastilles d'UO_2 vierge pour le comportement mécanique de la pastille.

2. La section efficace d'absorption de l'^{238}U est caractérisée par des pics de résonance dans le domaine épithermique (1 eV à 10 keV) qui s'élargissent avec la température, augmentant ainsi le nombre de captures de neutrons stériles.

1.3.2. Phénoménologie d'un RIA

L'insertion de réactivité engendrée par l'éjection d'une barre de contrôle est caractérisée par l'amplitude, la durée et la forme de l'impulsion de puissance concomitante à l'insertion de réactivité. Ces caractéristiques vont dépendre des conditions de départs lors de l'éjection.

Les conditions initiales les plus sévères lors d'un RIA sont celles des conditions Hot Zero Power (HZP) [56], c'est-à-dire que le caloporteur est à pression et température nominales mais la puissance du réacteur est quasi-nulle. Dans ces conditions, l'impulsion de puissance est la plus courte temporellement et l'incrément d'enthalpie du combustible est maximal. D'après les études de la cinétique d'un cœur pendant un RIA en conditions HZP pour un combustible en fin de cycle, la largeur des impulsions varie entre la centaine et la dizaine de millisecondes en fonction de la quantité de réactivité insérée par l'éjection de la barre de contrôle. La forme de l'impulsion de puissance calculée est proche d'une gaussienne avec la présence d'une queue persistante (Figure 1.13) du fait de la génération de neutrons par les produits de fission créés par l'insertion de réactivité.

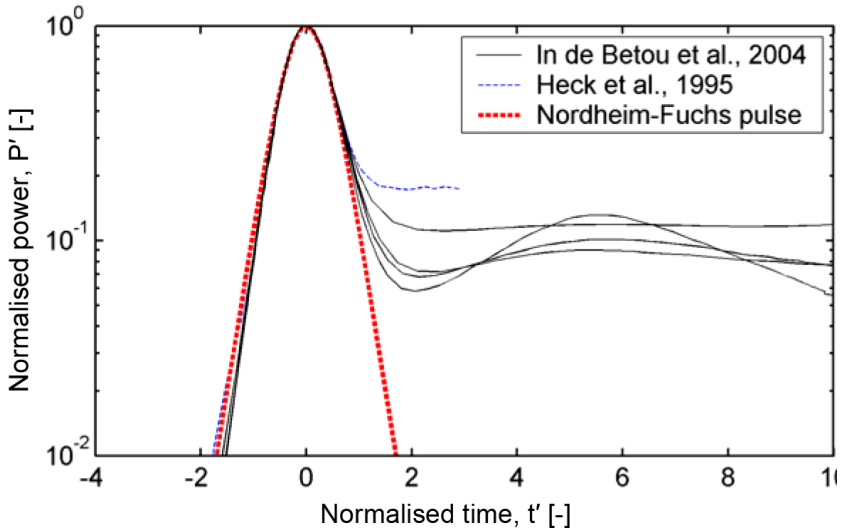


FIGURE 1.13. – Forme de l'impulsion calculée selon le modèle de Nordheim-Fuchs [57, p.194-170] et d'après [25]. La puissance et le temps sont normalisés.

L'amplitude de l'impulsion va déterminer l'augmentation de puissance des éléments combustibles touchés. Ce paramètre est local puisqu'il dépend de la proximité des éléments combustibles par rapport à la barre éjectée et de leur taux de combustion. L'augmentation d'enthalpie est communément utilisée pour quantifier la quantité d'énergie insérée dans les éléments combustibles suite à un RIA. On peut alors considérer l'incrément d'enthalpie maximal, c'est-à-dire l'augmentation maximale d'enthalpie moyenne radiale vue par n'importe laquelle des pastilles en fonction de la quantité de réactivité insérée.

L'excursion de réactivité entraîne une augmentation brutale de la température du combustible. Cette augmentation de température n'est pas homogène, le profil de température radial étant plus ou moins piqué en périphérie en fonction du taux de combustion (utilisation de l'^{238}U et accumulation du ^{239}Pu en périphérie à mesure que le taux de combustion augmente). Ceci étant, les neutrons modérés interagissent en priorité avec les atomes fissiles en périphérie de pastille et le gradient reste piqué en périphérie même pour du combustible vierge. Deux gradients radiaux de température typiquement obtenus en réacteur de recherche (essais REP-Na 11 et RH-1) sont montrés Figure 1.14. On peut y voir un incrément de température constant sur la quasi-totalité du rayon avec un pic en périphérie. Les essais REP-Na 11 et RH-1 avaient une largeur à mi-hauteur de pulse de 30,8 et 4,4 ms respectivement. Le caloporteur était du sodium en écoulement pour l'essai REP-Na et de l'eau stagnante pour l'essai RH. Ces différences de cinétique de dépôt de puissance et d'échange de chaleur gaine-caloporteur expliquent en grande partie la différence de gradients obtenus entre ces deux essais. Le détail des paramètres de ces deux essais est disponible en [49].

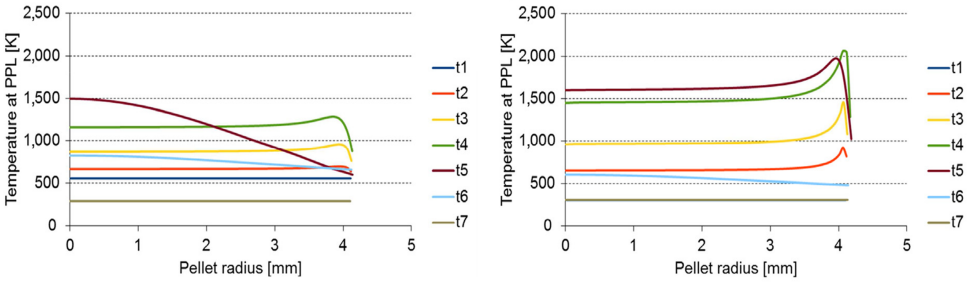


FIGURE 1.14. – Température calculée avec le code ALCYONE pour l'essai REP-Na 11 (à gauche) et pour l'essai RH-1 (à droite) pour différents instants. (t1) avant le début du pulse, (t2) pendant la montée en puissance, (t3) au pic de puissance, (t4) pendant la descente en puissance, (t5) à la fin de la descente en puissance, (t6) après le pulse, (t7) dernier pas de calcul. D'après [49]

.

Cet échauffement du combustible entraîne de nombreux effets physiques qui s'influent mutuellement. Au final la phénoménologie d'un RIA est un ensemble très complexe qui dépend de l'état initial du combustible comme l'illustre la Figure 1.15. Nous allons donc dans ce qui va suivre, détailler cette phénoménologie dans l'ordre chronologique d'un transitoire de type RIA.

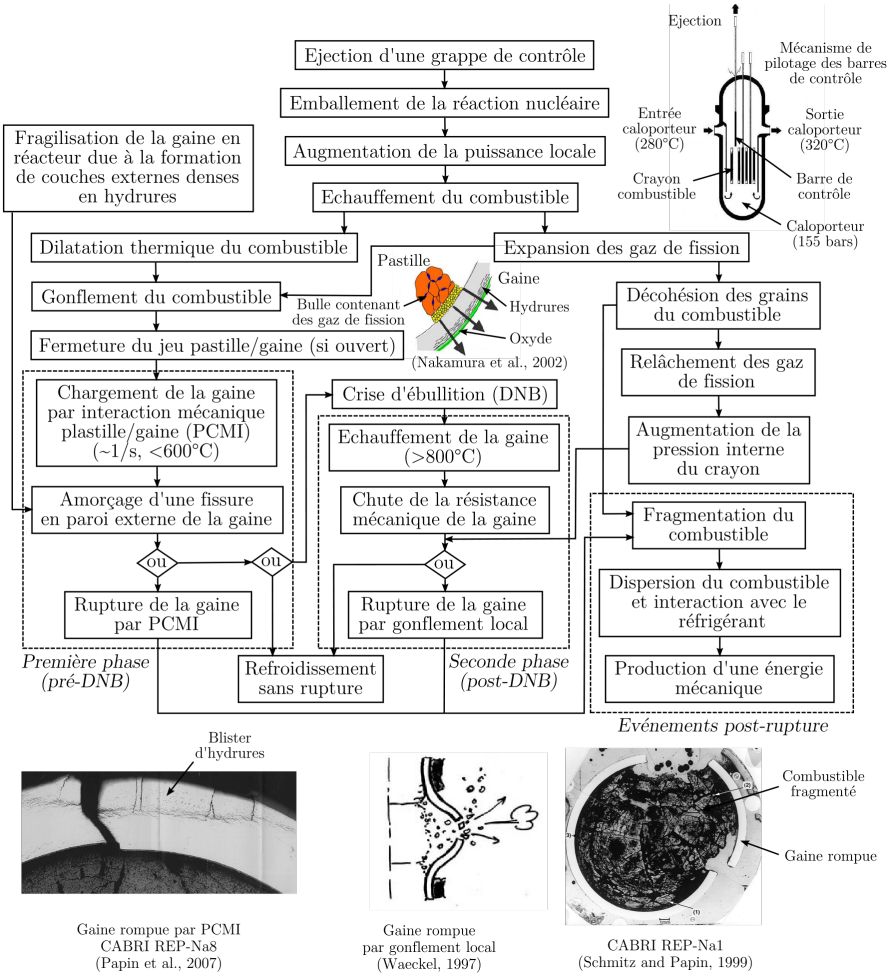


FIGURE 1.15. – Phénoménologie d'un RIA, d'après [58].

1.3.2.1. Gonflement et interaction pastille-gaine

L'augmentation brutale de température entraîne une expansion thermique à la fois du combustible mais aussi des gaz présents. Sous l'effet de l'expansion thermique, un chargement mécanique de la gaine est engendré. Pour des dépôts d'énergie faisant augmenter la température du combustible au-dessus de 1800 °C, les gaz de fission intragranulaires sont les principaux contributeurs de ce gonflement gazeux par pressurisation des bulles. L'amplitude de ce gonflement va dépendre de l'état de l'interstice pastille-gaine avant le pulse, le chargement étant plus important si le jeu était déjà fermé au préalable.

Au cours de cette phase, la température de la gaine ne dépasse pas les 600 °C. La gaine est alors susceptible de rompre sous l'effet du chargement mécanique engendré par le gonflement du combustible et des gaz de fission, on parle alors de rupture par Interaction Pastille-Gaine (IPG). Ce mode de défaillance des gaines à basse température serait initié lors de la mise en chargement de la gaine par la nucléation de fissurations dans les parties externes et riches en hydrures. Les ruptures ainsi obtenues présentent un faciès typique de ruptures fragile. Ces fissurations vont ensuite se propager jusqu'au matériau de gaine non fragilisé. Ces pointes de fissuration sont des points de concentration des contraintes mécaniques où une fracturation ductile est susceptible de s'initier et de se propager dans toute l'épaisseur de la gaine (Figure 1.16). La propension d'une gaine à se fracturer sous IPG pour un taux de combustion donné est donc principalement fonction de son degré d'hydruration et de l'orientation de ces hydrures. La transition fragile-ductile est favorisée par de faibles températures, une forte concentration en hydrogène et par la présence d'hydrure en pointe de fissures fragiles. Cette transition semble être dépendante en premier ordre du gradient de concentration en hydrogène.

Si la gaine résiste à la phase de chargement mécanique, la déformation résiduelle engendrée par cette phase peut-être importante comme illustré par la figure 1.17. Pour ce cas précis, la déformation de la gaine est en moyenne de 10 % et de 25 % au maximum. Il est à noter que ce mode de défaillance par IPG est favorisé pour des pulses courts (FWHM [3] <10 ms), le décalage entre le chargement mécanique et l'augmentation en température de la gaine dépendant de la largeur de pulse. Les pulses courts engendrent un chargement mécanique important avant que la gaine n'ait augmenté en température (Figure 1.18). Pendant des pulses plus longs, la température de la gaine augmente en même temps que le chargement mécanique et présentera un comportement plus ductile (effet de la température principalement) susceptible d'accommoder le chargement par IPG.

1.3.2.2. Effets des gaz de fission pendant un transitoire RIA

Le gradient de température au sein de la pastille engendre des contraintes de compression et de tension importantes sur une partie ou l'ensemble de son volume. Ces contraintes mécaniques entraînent une fracturation radiale et axiale en périphérie de pastille et de la fragmentation par décohésion des joints de grains peut aussi survenir comme montré par la figure 1.19 [38, 40]. Ce phénomène de décohésion des joints de grains est attribué à la pressurisation des pores et joints de grains riches en gaz de fission pour un taux de combustion suffisamment élevé (ie., ce phénomène est spécifique aux combustibles fortement irradiés). La pression exercée par les gaz de fission peut atteindre des valeurs suffisamment élevées pour mettre les joints de grains en tension et conduire à leur décohésion bien que la pastille soit macroscopiquement en compression [61]. Toutefois ce phénomène de fragmentation par décohésion des joints de grains a aussi été observé durant des essais mécaniques sur UO_2 vierge [55, 62, 63], la surpression des bulles de gaz n'est alors pas le seul paramètre pouvant mener à cette fragmentation.

Cette fragmentation du combustible entraîne la mise à disposition de l'inventaire gazeux qui peut faire gonfler le combustible. Le gonflement dit gazeux est donc un phénomène différent du gonflement thermique.

Cette fracturation et fragmentation produit des fragments de tailles allant entre 500 et moins de 50 μm.

3. "Full Width Half Maximum", largeur à mi hauteur du pulse

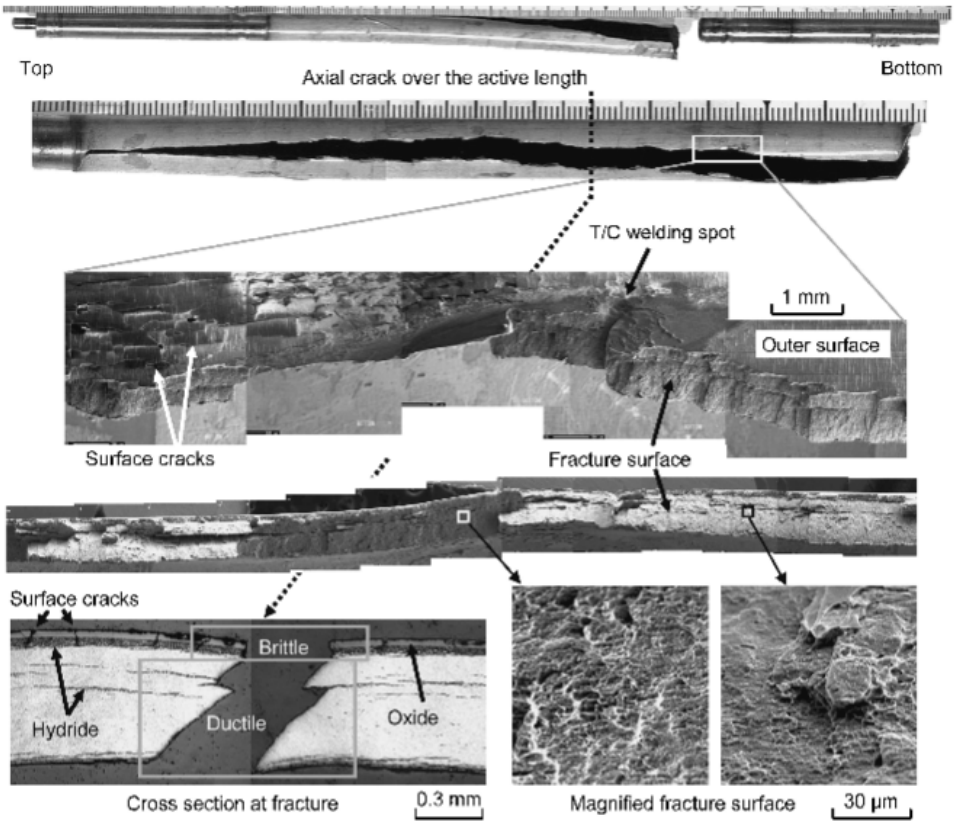


FIGURE 1.16. – Observation de la fracture par IPG de l'essai OI-11, réacteur NSRR (5-8 GWj/t, 28 µm d'épaisseur d'oxyde, alliage de gaine ZIRLO, enthalpie maximale atteinte 157 cal/g UO_2) [36]

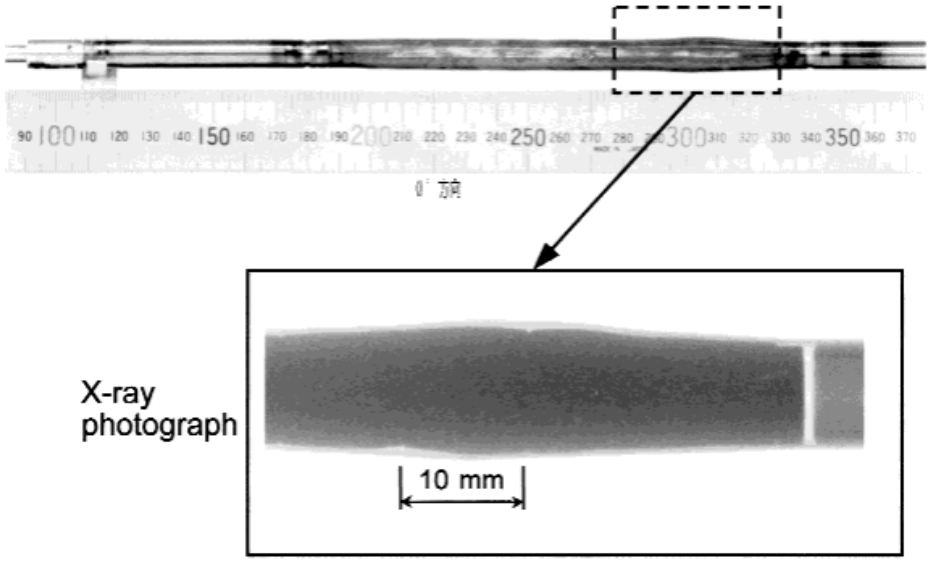


FIGURE 1.17. – Essai TK-1, réacteur NSRR, 38 GWj/t, enthalpie maximale atteinte 125 cal/g UO_2, 7 µm d'épaisseur d'oxyde [59]

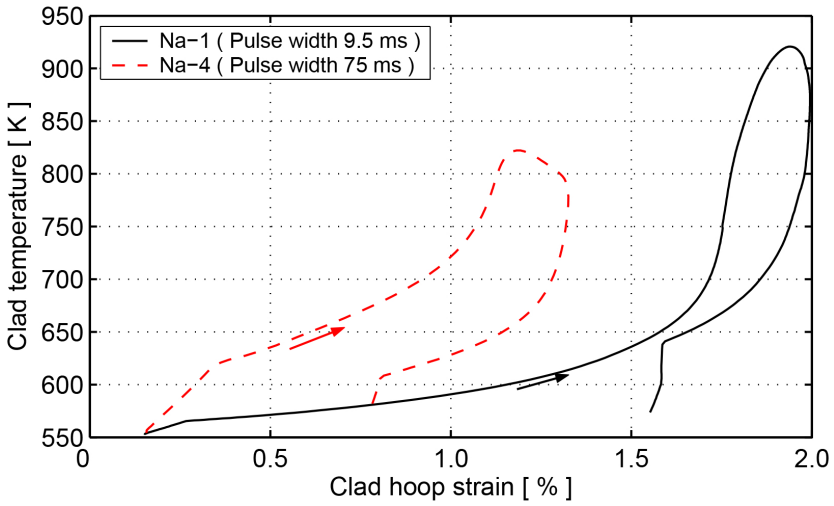


FIGURE 1.18. – Evolution de la déformation de la gaine en fonction de la température calculée pour deux essais Cabri dans le plan de puissance maximale. [60]

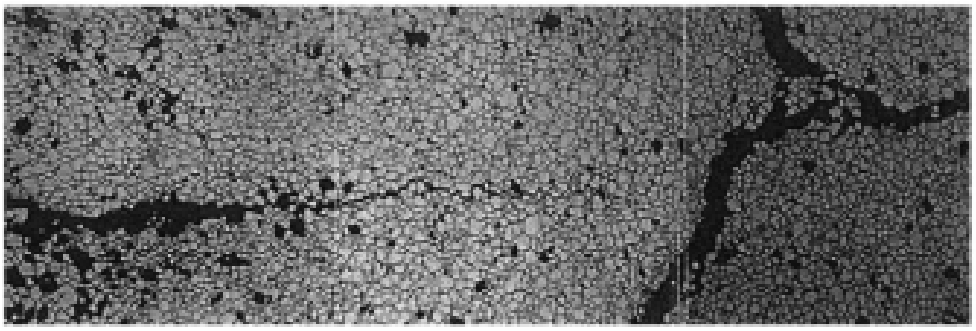


FIGURE 1.19. – Exemple de décohésion des joints de grains observée après essai [64]

Dans le cas d'une pastille mise en compression macroscopique par IPG et sous l'effet de son expansion thermique, l'ouverture des joints de grains va être limitée. Ces gaz portés à hautes températures ne pouvant s'expandre vont engendrer une pressurisation du combustible, augmentant ainsi le chargement mécanique appliqué sur la gaine. Ce phénomène est susceptible de mener à la défaillance de la gaine, notamment si celle-ci est fragilisée comme expliqué précédemment [61].

Dans un deuxième temps, si le crayon est porté à des températures rendant la gaine ductile de telle sorte que sa rigidité et la pression exercée par le caloporteur ne contrebalancent plus la pression exercée par les gaz, l'expansion des gaz de fission et le gonflement gazeux concomitant du combustible vont déformer la gaine. Un réseau de porosité est alors susceptible de se constituer et une grande quantité des gaz présents dans les joints de grains peut être relâchée. La pression interne de la gaine va être augmentée par cette accumulation de gaz libre. L'ensemble de ces mécanismes est schématisé figure 1.20.

Le pourcentage de l'inventaire gazeux relâché sous l'effet d'un RIA pour les combustibles à haut taux de combustion est estimé entre 5 et 25 %. Cette fraction relâchée est fonction de l'enthalpie maximale, du taux de combustion et de l'inventaire gazeux disponible et de sa localisation (inter-granulaire, bulles et pores intra-granulaires, bulles de la zone restructurée), de la déformation de la gaine et de la constitution d'un réseau de porosité rendant une quantité important des gaz des joints de grains disponibles. Il est à noter qu'aucune corrélation stricte entre la fraction relâchée et un paramètre combustible/type de pulse spécifique (taux de combustion, enthalpie maximale, ratio enthalpie maximale/largeur de l'impulsion) qui serait dominant n'est observée (Figure 1.21, [65]).

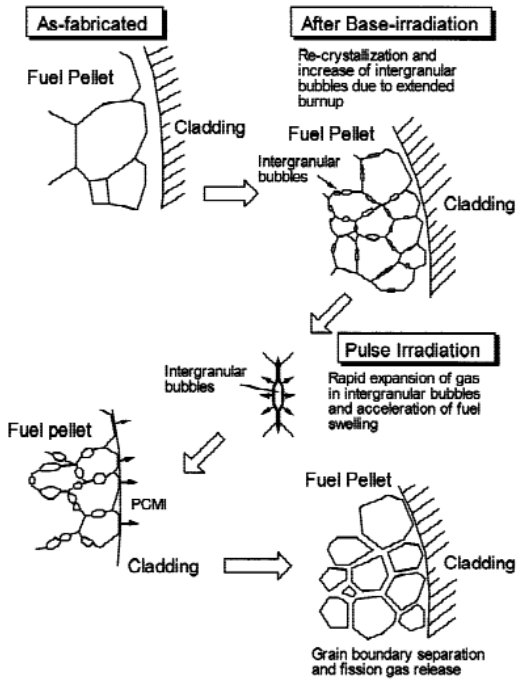


FIGURE 1.20. – Mécanismes de décohésion des joints de grains, de gonflement gazeux et de relâchement des gaz de fission sous transitoire, d'après [59].

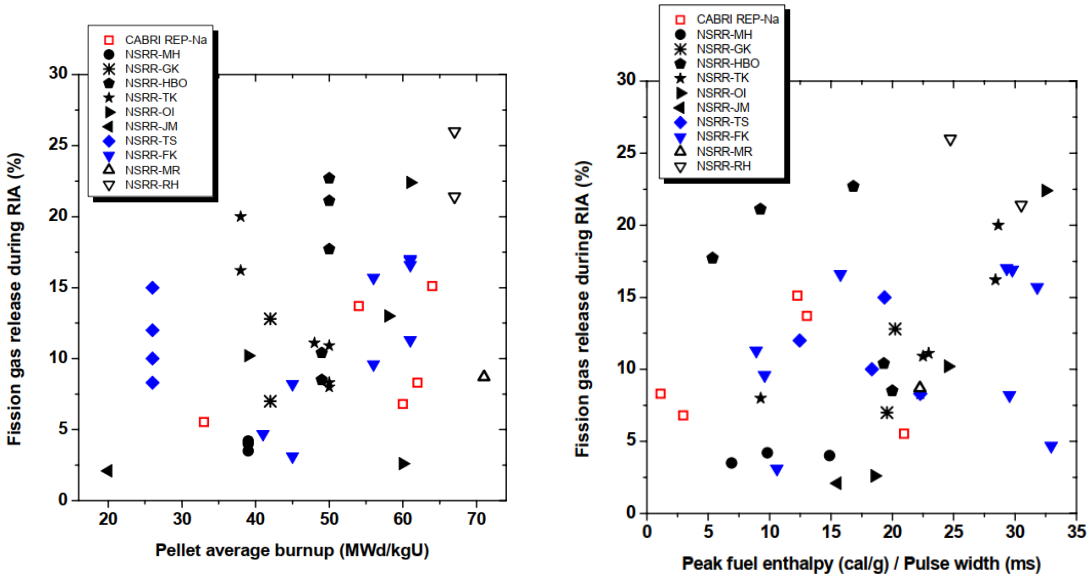


FIGURE 1.21. – Fraction de l'inventaire en gaz de fission relâchée durant un RIA en fonction du taux de combustion moyen et de l'enthalpie maximale du combustible divisée par la largeur de l'impulsion pour différents essais NSRR et CABRI REP-Na [65]

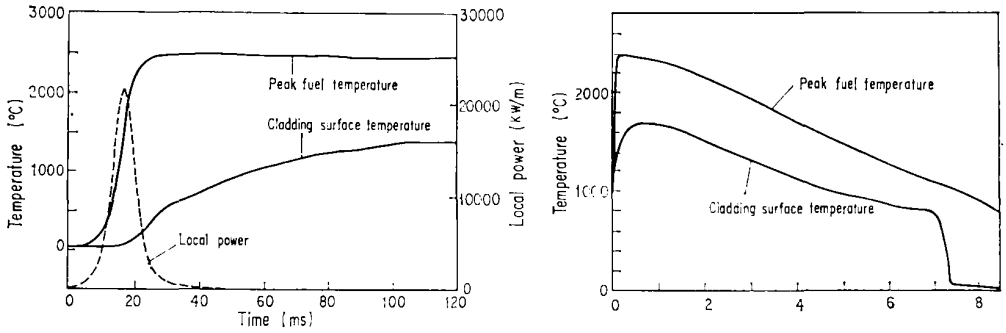
Si le mécanisme principal identifié menant au relâchement d'une fraction de l'inventaire gazeux est la décohésion des joints de grains, la fraction relâchée pendant le pulse étant proche de l'inventaire inter granulaire, la contribution des différentes parties des pastilles (zone centrale et HBS) à la fraction

de gaz relâchée tant d'un point de vue cinétique qu'en volume relâché est un sujet d'étude encore ouvert [17] ; l'impact des différents paramètres sur les mécanismes sous tendant ce phénomène n'étant pas exactement compris. Une manière possible d'étudier ces points est la conduite de traitements thermiques en cellule de haute activité permettant d'analyser le volume relâché et la cinétique du relâchement couplé à une caractérisation pré et post-recuit.

A cet égard le programme GASPARD mené au CEA Cadarache a donné des éléments de réponse sur le relâchement des gaz de fission en termes de cinétique et de localisation pour des transitoires de types APRP [66]. Aucune étude de ce type n'a, à notre connaissance, été menée pour des transitoires représentatifs d'un RIA.

1.3.2.3. Survenance d'une crise d'ébullition

Tout au long de la séquence accidentelle, la chaleur du combustible va être évacuée par la gaine vers le caloporteur (la Figure 1.22 montre l'évolution de la température externe de la gaine en fonction du temps pendant un transitoire). Cet échange thermique entre le combustible et la gaine est cinétiquement pilotée par l'état de l'interstice pastille-gaine en condition initiale, les échanges de chaleur entre les deux se faisant principalement par conduction thermique. Pour un combustible vierge, la gaine va commencer à s'échauffer vers la fin du dépôt de puissance et sa température maximale est atteinte après 1 *s*.



(a) 120 ms time scale (b) 8 s time scale

FIGURE 1.22. – Evolution de la température maximale du combustible et de l'extérieur de la gaine pendant un essai NSRR [67]

Si la quantité de chaleur est suffisamment importante, une vaporisation locale du caloporteur aux alentours de la gaine est possible. Ce phénomène est appelé crise d'ébullition ; on parle aussi de Departure from Nucleate Boiling (Departure from Nucleate Boiling (DNB)). La crise d'ébullition dure typiquement entre 10 et 15 s et la gaine est portée à des températures au-dessus de 1000-1200 K, l'échange thermique entre la gaine et le caloporteur étant fortement diminué, avant qu'un remouillage n'ait lieu. Pendant cette crise d'ébullition, une oxydation de la gaine est possible sous l'effet des très hautes températures et de l'atmosphère gazeuse. Dans le même temps, une fois la phase d'IPG passée, la pression interne du crayon augmente en raison de l'expansion des gaz de fission relâchés. Le différentiel de pression entre l'intérieur et l'extérieur du crayon associé aux hautes températures de la gaine la rendant ductile peut entraîner un gonflement local amenant à une rupture de gaine.

1.3.2.4. Remouillage

Le remouillage de la gaine lors de la fin de la crise d'ébullition peut conduire à une rupture fragile de la gaine sous l'effet du choc thermique engendré par la trempe de la gaine à haute température. Cette rupture fragile est favorisée par l'oxydation importante subie par la gaine pendant la crise d'ébullition sous l'effet conjoint des hautes températures et de l'atmosphère gazeuse [38].

1.3.2.5. Conditions mécaniques dans le combustible

Nous venons de voir le déroulement d'un RIA dans l'ordre chronologique et avons présenté les différents modes de défaillance de la gaine.

On peut aussi citer les études de Suzuki et al en 2008 [46] et de Guenot-Delahaie et al en 2018 [49] qui présentent, entre autres, l'état thermo-mécanique du combustible lors de transitoires RIA en réacteurs de recherche (NSRR ou Cabri). Il est mis en évidence (Figure 1.23) dans les deux études un pic de contrainte en périphérie fortement localisé dès les premiers instants du transitoire. La périphérie de la pastille est donc fortement comprimée durant ces instants du fait du pic de température localisé et de l'interaction avec la gaine tandis que l'intérieur subit des contraintes de traction d'ordre moins importantes. Par la suite le pic de compression se déplace vers l'intérieur de la pastille. La Figure 1.23, en montrant les contraintes axiales et circonfenrentielle met aussi en évidence le caractère biaxial du chargement mécanique avec des pics de compression allant jusqu'à plus de 350 MPa dans les deux directions dans le cas de l'essai RH-1.

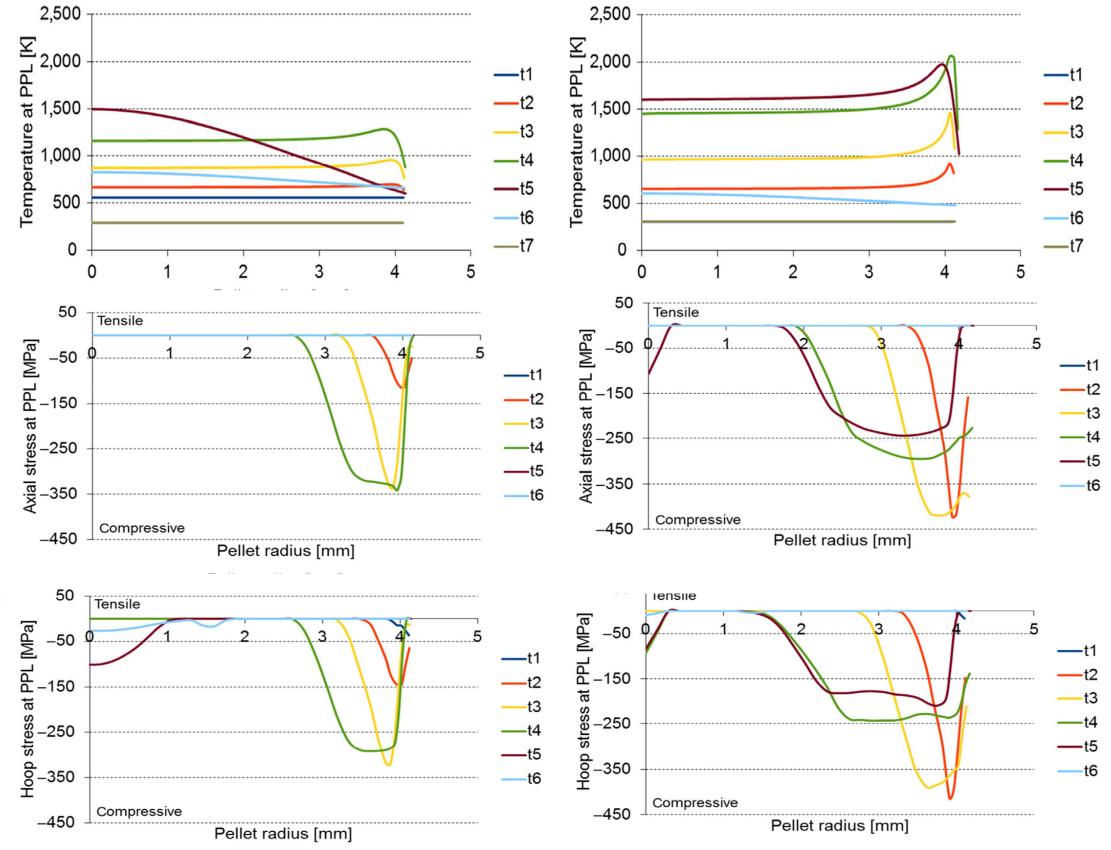


FIGURE 1.23. – Profil radiaux de température et de contraintes axiales et circonfenrentielle pour l'essai REP-Na11 (gauche) et RH-1 (droite). D'après [49]

Une fois la phase de refroidissement et le profil parabolique de température atteint, les contraintes se relâchent et un état de traction faible est calculé sur pratiquement tout le rayon avec parfois une compression au centre de la pastille. Dans l'étude de Suzuki et al, une contrainte de traction importante est obtenue en périphérie de la pastille une fois le profil de température parabolique établi (Figure 1.24) puisque le code utilisé dans cette étude (RANSS) ne relâche pas les contraintes en considérant la fracturation comme le fait ALCYONE utilisé pour l'étude de Guenot-Delahaie et al.

Pour ce qui est des vitesses de déformation, on peut voir sur la Figure 1.25 le tracé de la vitesse de déformation circonférentielle en fonction de la température à la périphérie de la pastille en considérant

un matériau élastique parfait. Les valeurs atteintes vont jusqu'à 1 /s et dépassent largement 0,1 /s sur une large gamme de température. On comprend donc qu'un RIA induit des vitesses de sollicitations élevées qui sont très spécifiques et rarement étudiées comme nous le verrons par la suite.

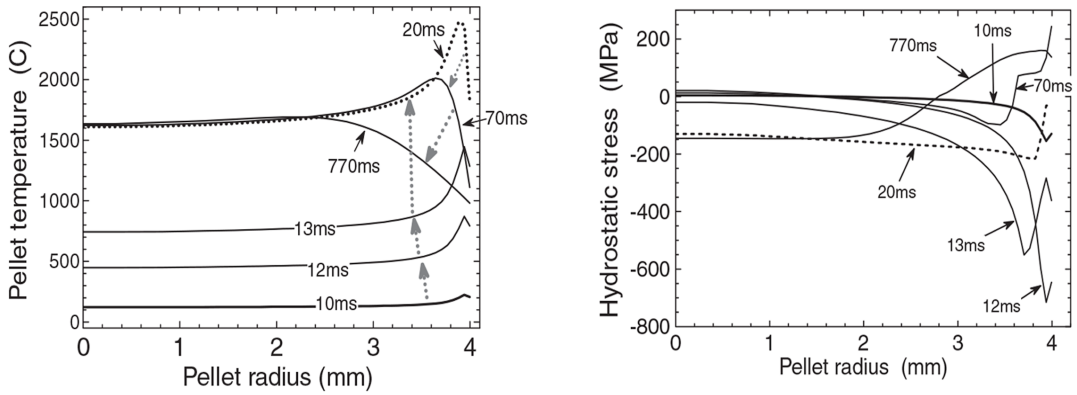


FIGURE 1.24. – Profil de température (à gauche) et de contrainte hydrostatique (à droite) dans le combustible lors de l'essai OI-12. D'après [46]

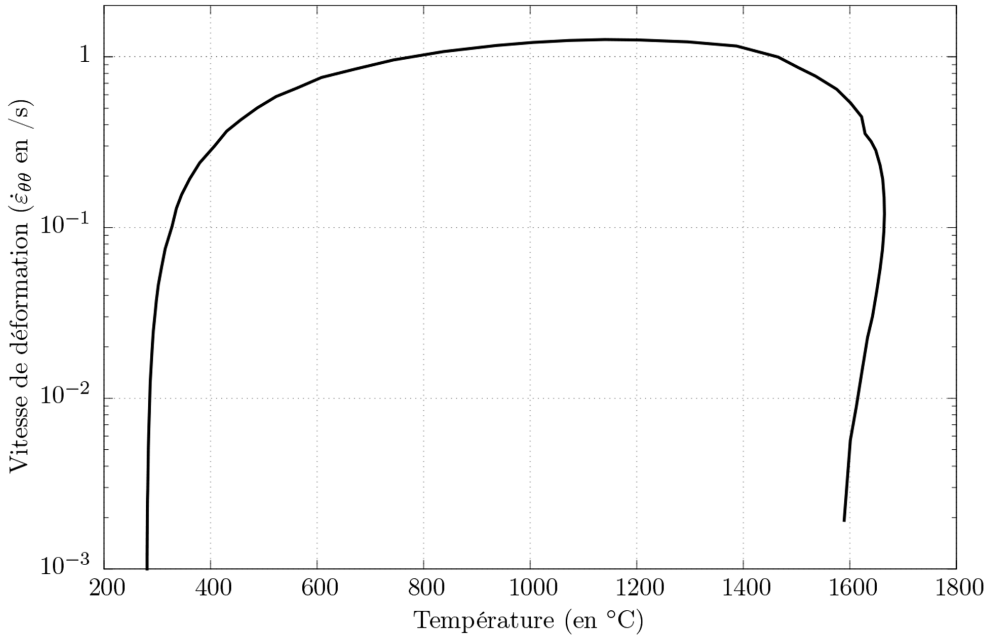


FIGURE 1.25. – Vitesse de déformation $\dot{\epsilon}_{\theta\theta}$ calculée en périphérie de pastille en fonction de sa température pendant une simulation de l'essai REP-Na 5. [68]

1.3.2.6. Bilan des études en réacteurs expérimentaux

L'augmentation brutale d'enthalpie du combustible sollicite fortement le crayon de plusieurs façons et une rupture partielle ou totale des gaines est envisageable. Une dispersion partielle ou totale de l'inventaire combustible dans le caloporteur entraînerait alors la génération d'ondes de pression suite à la vaporisation de celui-ci. Ces ondes sont susceptibles d'endommager la géométrie du cœur et une perte de géométrie pourrait entraîner une impossibilité à refroidir certains éléments, menant à une fusion de ces éléments non refroidis.

On distingue 4 modes de défaillances [25], (Figure 1.15) des crayons combustibles dont seuls les trois premiers sont d'intérêts :

1. Une défaillance résultante du chargement mécanique de la gaine engendré par l'expansion thermique du combustible et des gaz en présence.
2. Une défaillance pendant la crise d'ébullition à haute température. Un ballonnement de la gaine suivi de sa rupture sous l'effet de sa pression interne est possible. La pression interne peut être augmentée de manière significative si une quantité importante de produits de fissions gazeux jusqu'à alors piégés dans le combustible est libérée.
3. Une défaillance survenant lors de la trempe de la gaine à la fin de la crise d'ébullition peut générer un stress thermique important menant à sa rupture, particulièrement si la gaine s'est fortement oxydée et donc fragilisée pendant la crise d'ébullition.
4. Une défaillance par fusion de la gaine et des éléments combustibles.

Pour les taux d'enrichissement usuels en REP, l'augmentation d'enthalpie ne sera généralement pas suffisante pour mener à la fusion des éléments du crayon combustible. Néanmoins ce phénomène a pu être observé pendant des essais sur des combustibles vierges avec des taux d'enrichissement allant jusqu'à 20 %.

Ces modes de défaillance sont fonction des paramètres accidentels -quantité et cinétique du dépôt d'énergie- et de l'état du combustible et des gaines impactées dont un aperçu des états possibles a été décrit en première partie.

En conclusion de cette présentation des études en réacteurs expérimentaux qui visait à présenter le déroulement d'un RIA et sa phénoménologie, on peut retenir les points suivants :

— Un RIA est en partie caractérisé par la quantité d'énergie déposée dans le combustible, que l'on mesure usuellement par son incrément d'enthalpie.
— Quatre modes de défaillance dont trois sont d'intérêts pour les REP ont étés identifiés. Ils sont plus ou moins limitant en fonction du taux de combustion et surviennent pendant des phases différentes du transitoire.
— Le combustible neuf est limité par la capacité de la gaine à résister à la crise d'ébullition puis au choc thermique engendré par le remouillage post DNB.
— Le combustible irradié ou fortement irradié est plutôt limité par la capacité de la gaine à résister à la phase d'IPG pendant la phase d'expansion du combustible. La résistance de la gaine à la phase d'IPG est fortement dépendante de son état d'hydruration au premier ordre, les fractures s'amorçant toujours dans les couches externes denses en hydrures.
— Un relâchement important des gaz de fissions survient pendant le transitoire, principalement par décohésion des joints de grains.

1.4. Codes de simulation pour l'étude des RIA

Comme présenté précédemment, de nombreux codes de calcul visant à modéliser le comportement du combustible sous transitoire RIA tels que ceux réalisés en réacteurs expérimentaux sont utilisés. On peut citer parmi eux ALCYONE [28, 49, 69], SCANAIR [47, 70], FRAPTRAN [45], RANNS [46, 71], FALCON [44] ou encore BISON [48]. Ces codes peuvent parfois modéliser le comportement du combustible à plusieurs échelles qui peuvent aller du crayon à des portions de pastilles. Ils sont utilisés pour interpréter les résultats des essais expérimentaux en permettant l'accès à des paramètres ou des pas de temps qu'on ne peut atteindre expérimentalement. La confrontation calcul-mesure permet de vérifier la bonne compréhension du comportement combustible tel qu'intégré dans ces codes.

L'irradiation de base d'un crayon test est simulée en amont à partir des données disponibles du crayon père. Le transitoire RIA est ensuite modélisé avec un enchaînement multi-physique couplant différents phénomènes en fonction des codes et de leur version. Un schéma de cette modélisation multi-physique pour le code ALCYONE est donné figure 1.26. On peut citer parmi ces phénomènes les évolutions en température des différents éléments, la neutronique (distribution de puissance), la corrosion, le gonflement, la densification du combustible, la production et le relâchement des gaz de

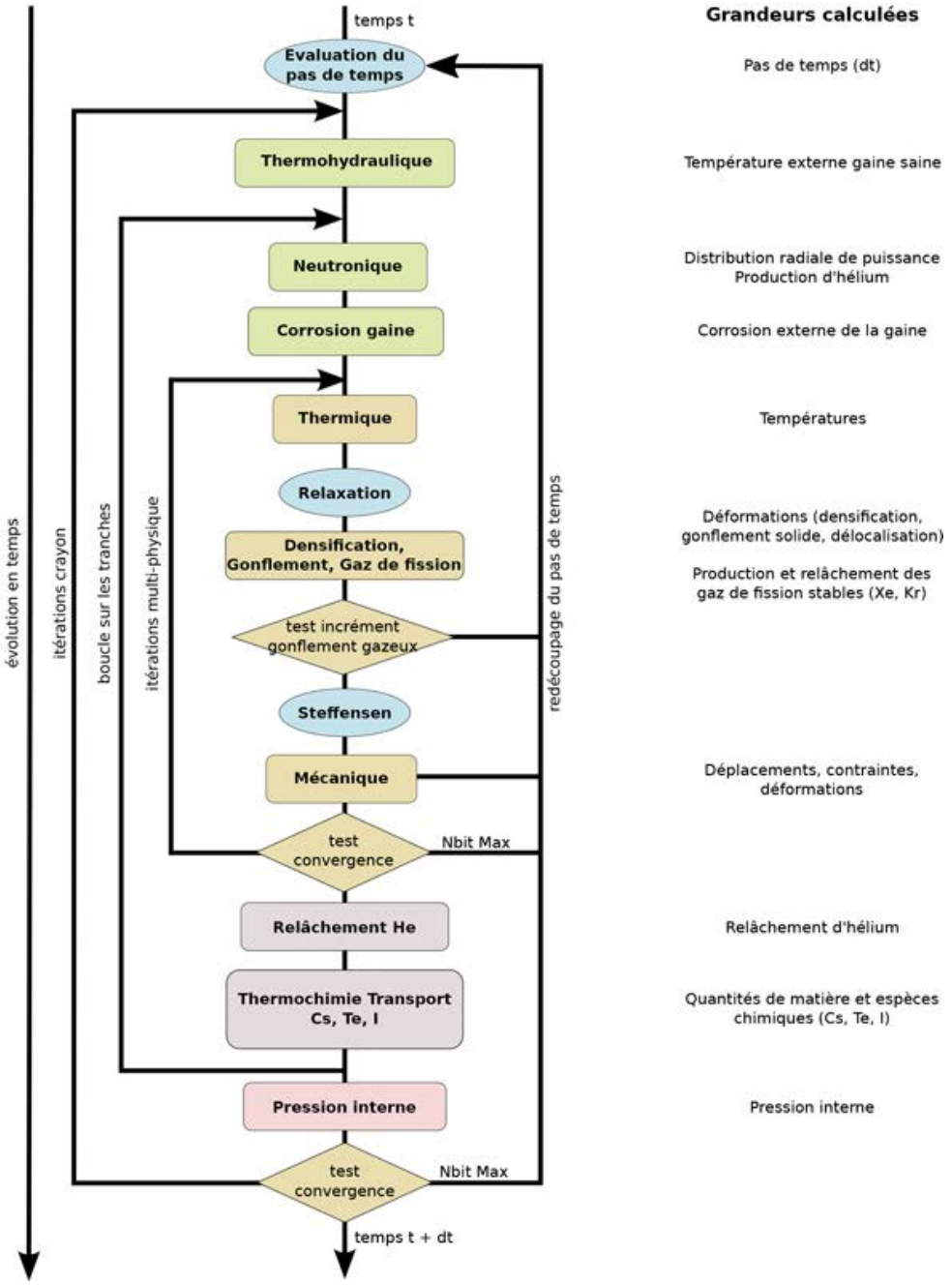


FIGURE 1.26. – Schéma de la modélisation multi-physique avec ALCYONE. D'après [72].

fission, les effets mécaniques (contraintes, déformations, jeu pastille-gaine), l'évolution de la pression interne etc.

Ces différents programmes reposent sur des approches différentes et utilisent des propriétés thermo-mécaniques, des modèles neutroniques, des lois de comportement, des modèles de comportement des gaz etc différents et leurs résultats pour des entrées identiques ne sont de fait pas toujours les mêmes [73, 74]. Nous avons pu le voir dans la section précédente avec une différence de contraintes calculées entre le code RANSS et ALCYONE, ce dernier relâchant les contraintes en considérant la fracturation du combustible.

De plus le problème multi-physique est fortement couplé (ie., les phénomènes physiques considérés s'influent mutuellement) et non linéaire. Une présentation sommaire de ces codes est faite dans la première partie d'un benchmark publié en 2013 [73].

ALCYONE est le code de simulation du comportement combustible développé par le CEA, EDF et Framatome intégré à la plateforme de simulation PLEIADES. Initialement développé pour la simulation de l'irradiation de base, il a depuis été enrichi afin de permettre la simulation de situations accidentelles. Quatre schémas de calculs sont possibles allant du crayon combustible (1D axi-symmétrique) à un fragment de pastille combustible+gaine (2D ou 3D). Le problème thermo-mécanique et l'évolution du jeu pastille-gaine est résolu par le logiciel de simulation par éléments finis Cast3m du CEA [75]. Une présentation de simulations de RIA effectuées avec ALCYONE V1.4 est disponible en [49] et nous avons déjà montré certains résultats de cette étude.

ALCYONE est capable de simuler le comportement combustible sous transitoire grâce à [49, 69] :

- La résolution du bilan de chaleur pour le système pastille-jeu-gaine.
- La résolution du bilan de matière et de chaleur pour un caloporteur sodium (essais REP-Na).
- La résolution du bilan de matière et de chaleur pour un caloporteur eau, stagnante ou non (essais NSRR ou Cabri CIP)
- Une loi de comportement décrivant le comportement mécanique non linéaire d'alliages de gaines irradiées sous transitoire RIA [76, 77].
- La modélisation du fluage et de la fracturation de la pastille ainsi que de la décohésion des joints de grains.
- La prise en compte du caractère spécifique de la zone restructurée au regard du relâchement des gaz de fissions.

1.4.1. Loi de comportement mécanique pour l'UO_2 sous transitoire RIA

Il existe peu d'études sur le comportement mécanique de la pastille en conditions RIA (hautes températures et hautes vitesses de déformations). De fait la plupart des codes considèrent un matériau élastique ou élasto-plastique parfait. Nous présentons ainsi un aperçu de la littérature sur le comportement mécanique de l'oxyde.

Le combustible est une céramique et présente donc comme beaucoup de matériaux de ce type un comportement fragile à températures basses et modérés. La contrainte à la rupture est en revanche très dissymétrique et peut atteindre 1000 MPa à l'ambiante pour 100 MPa en flexion-traction.

A des températures plus hautes, le comportement devient ductile, des niveaux de déformations significatifs atteints sans endommagement visible du matériau peuvent alors être atteints comme montré Figure 1.27. Cette transition fragile-ductile est caractérisée par un seuil en température dépendant de la vitesse de déformation. De manière générale, plus la vitesse de sollicitation est élevée, plus la température de transition du domaine fragile vers le domaine ductile sera aussi élevée. Dans le cas d'un RIA où les vitesses de déformations peuvent aller jusqu'à l'ordre de 1 /s, un comportement fragile peut-être attendue même à des températures où le comportement serait ductile dans des conditions de sollicitations moins extrêmes. La dissymétrie du comportement tend à disparaître avec l'augmentation de la température et les niveaux de contraintes atteints se rapprochent. Par exemple Byron en 1968 a réalisé des essais en compression simple avec une vitesse de déformation de 10^{-3} /s à des températures entre 600 et 2000 °C [62]. Les échantillons d'UO_2 étaient stoechiométriques (ratio métal oxygène de 2) avec une densité égale à 97 % de la densité théorique et une taille de grains de 19 μm. Il a mis en évidence que la contrainte maximale décroît lorsque la température augmente.

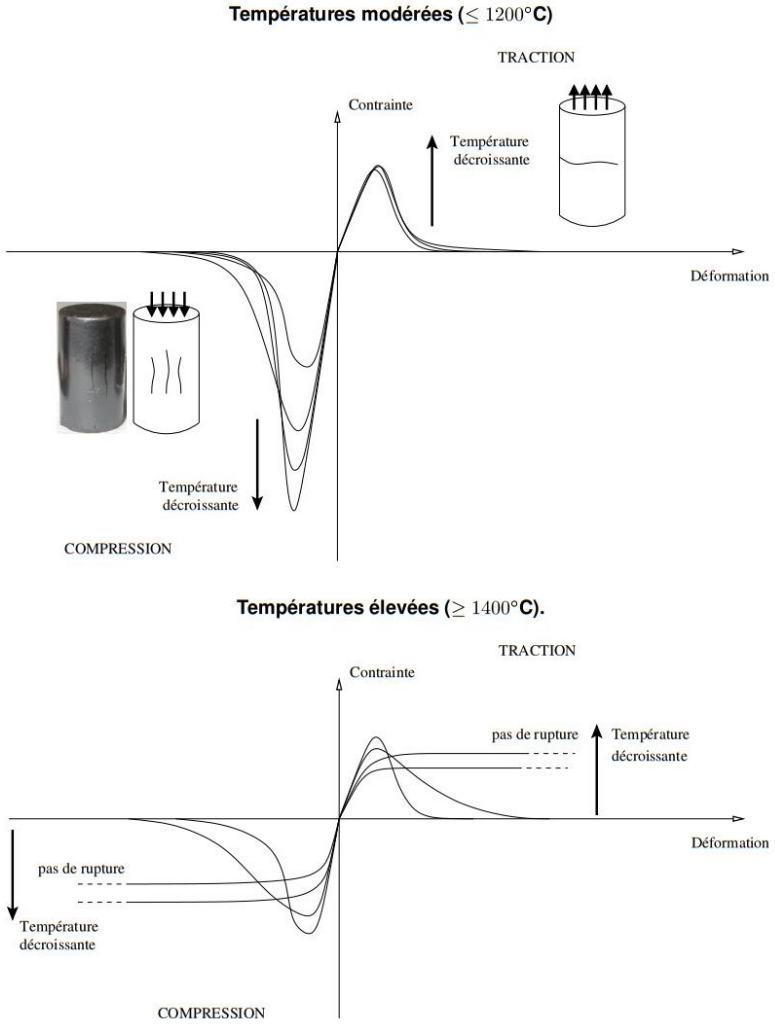


FIGURE 1.27. – Comportement de l'UO_2 en traction et compression. D'après [72].

Toujours en compression Guérin a mené des essais à vitesse de déformation imposé (10^{-5} /s à 10^{-3} /s) entre 600 et 1700 °C sur de l'UO_2 stoechiométrique polycristallin, d'une densité de 95 % de la densité théorique et une taille de grain de 5 μm [78]. Une température de transition fragile-ductile autour 1000 °C a été identifiée. Une augmentation de la limite d'élasticité et de la contrainte ont étés observés avec l'augmentation de la vitesse de déformation ou la diminution de la température.

Plus récemment Salvo et al ont rapporté lors d'essais de compression uniaxial à haute vitesse de déformation (jusqu'à 10^{-1} /s une température de transition fragile-ductile entre 1100 et 1300 °C [54]. L'étude a été menée sur deux lots de densités égales à 96,4 et 98 % de la densité théorique. L'UO_2 était polycristallin avec une taille de grains autour de 10-15 μm et un ratio Oxyde-Metal (OM) de 2. A la vitesse de déformation de 10^{-1} /s, un comportement ductile à partir de 1550 °C a été observé avec un endommagement diffus du matériau caractérisé par une microfissuration importante le long des joint de grains. On aussi peut citer le travail antérieur de Dherbey et al [79] qui observa le même phénomène lors d'essais de fluage en compression sur de l'UO_2 polycristallin dense (98% de la densité théorique) avec des tailles de grains entre 9 et 36 μm. Une loi en sinus hyperbolique avait été proposée pour modéliser ces essais de fluages. Cette fragmentation de la céramique serait le résultat de contraintes de tractions qui se développent à l'échelle microscopique le long des joints de grains alors que le

matériaux est macroscopiquement mis en compression. Cela a notamment était mis en évidence par différents travaux de simulations micro-mécanique à l'échelle d'un agrégat polycristallin représentatif [80]. Toujours dans l'étude de Salvo et al, un comportement fragile a été observé à 1100 °C avec une rupture brutale et une fragmentation importante de l'échantillon. Ces travaux font partis des quelques travaux présents dans la littérature étudiant le comportement mécanique de l'UO_2 à des vitesses de déformation aussi élevées, s'approchant ainsi des conditions de sollicitations représentatives d'un RIA.

Une évolution similaire du domaine de comportement fragile et ductile de la céramique a été mis en évidence en traction. Par exemple Evans et al ont identifié une température de transition fragile-ductile autour de 1200 °C lors d'essais de flexion trois points [81]. De même, Canon et al ont identifié une température de transition similaire autour de 1200 °C lors d'essais de flexion quatre points avec une contrainte à la rupture de 120 MPa pour une vitesse de déformation de 2.10^{-3} /s [63]. Dans cette étude, la température de transition (prise comme la température la plus basse où la courbe contrainte-déformation n'est plus linéaire) passe de 1450 à 1750 °C lorsque la vitesse de déformation passe de $2{,}5.10^{-5}$ /s à $2{,}5.10^{-3}$ /s comme on peut le voir sur la Figure 1.28.

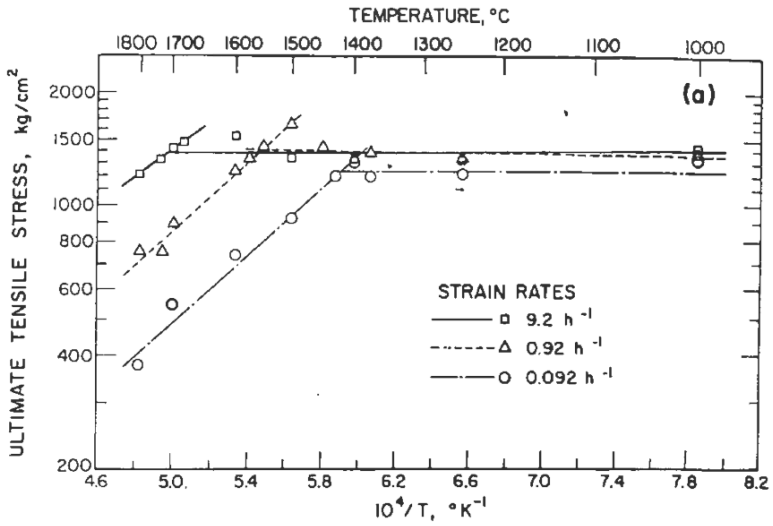


FIGURE 1.28. – Evolution de la contrainte maximale (Ultimate Tensile Stress) sur des essais de flexion 4 points sur UO_2 à différentes températures et vitesses de chargement. D'après Canon [63].

1.4.2. La loi de comportement L3F

La L3F (pour Loi Fissuration-Fluage-Fracturation) est la loi de comportement mécanique utilisée dans ALCYONE pour décrire le comportement mécanique du combustible. Elle est basée sur le modèle proposé par Salvo et al [54, 55] décrivant le comportement du combustible à hautes températures (1100-1700 °C) et à hautes vitesse de sollicitations (entre 10^{-4} et 10^{-1} /s) en compression. Elle décrit :

— le fluage thermique et le fluage d'irradiation
— la fragmentation des joints de grains
— la fissuration macroscopique en traction

Le fluage thermique est décrit par une fonction en sinus hyperbolique avec une dépendance à la porosité basée sur les travaux de Dherbey et al [79]. La fragmentation est modélisée par un tenseur de déformation plastique associé à un critère de plasticité (ie., l'écoulement plastique vaut 0 si le critère de plasticité en contrainte n'est pas atteint) et à un seuil en température. L'augmentation de la porosité liée à la fragmentation est aussi prise en compte. La fissuration macroscopique en traction

est basée sur la loi de comportement DDIF2 [15] : dans le cas d'une traction uniaxiale, la réponse du matériau pilotée par cette loi est élastique jusqu'à atteindre la contrainte à la rupture puis est adoucissante linéaire jusqu'à la rupture complète du matériau. La réponse de cette loi à un chargement bi-axial a été déterminée sur un cube élémentaire unique entre 1000 et 3000 °C et pour des vitesses de déformation entre 10^{-1} /s et 10 /s. Les surfaces de charge (réponse en contraintes à une déformation biaxiale imposée) pour des vitesses de déformation équivalente ($\dot{\epsilon}_{eq} = \sqrt{\dot{\epsilon}_{xx}^2 + \dot{\epsilon}_{yy}^2}$) de 1 /s et 10 /s sont données en figure 1.29. Les lignes en pointillées représentent le modèle de fluage en sinus hyperbolique seul, les lignes pleines la prise en compte de la fragmentation/fracturation. Les couleurs indiquent le mode de déformation dominant. La contrainte en traction est ici seulement bornée à σ=136 MPa pour mieux visualiser les résultats. On peut observer qu'à 1 /s les deux mécanismes de déformation interviennent avec une dominante pour la fragmentation des joints de grains entre 1600 et 2400 °C. A 10 /s, les contraintes sont majoritairement dues à la fragmentation tant en traction à partir de 1200 °C qu'en compression à partir de 1400 °C. La dépendance du domaine de température dans lequel la fragmentation survient à la vitesse de déformation dans cette loi de comportement est ici clairement mise en évidence.

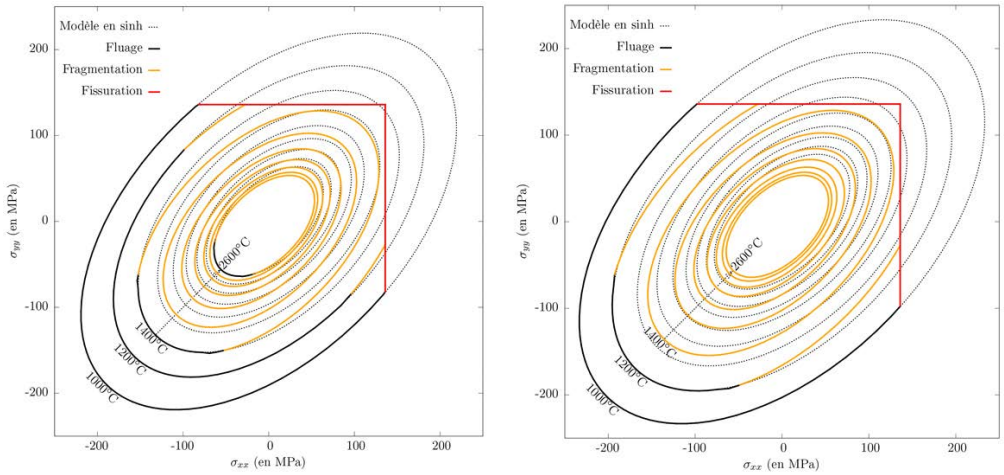


FIGURE 1.29. – Surface de charge (σ_{xx}, σ_{yy}) donnée par la loi L3F pour une vitesse de déformation équivalente de 1 /s (à gauche) et de 10 /s (à droite). D'après [82]

.

1.4.3. Relâchement des gaz de fission (RGF)

Le relâchement des gaz de fission sous transitoire RIA est un phénomène complexe et les approches retenues pour le modéliser dans les codes sont nombreuses. De fait une assez grande dispersion du RGF durant le calcul d'un transitoire a été mis en exergue par la dernière phase du benchmark de l'OCDE qui s'est terminée en 2019 [83]. On peut voir cette dispersion sur la Figure 1.30.

Dans ALCYONE, le relâchement du gaz présent aux joints de grains est piloté par la L3F : quand un seuil de porosité plastique (représentant la fragmentation du combustible) est dépassé, le joint de grains est considéré comme ouvert. Si le joint de grains est ouvert, tout l'inventaire gazeux intergranulaire concerné calculé par le modèle de comportement des gaz de fission CARACAS [84] est relâché. Les joints de grains des zones restructurées (HBS), en plus de ce critère de porosité plastique, sont supposés ouverts dès que la température dépasse un seuil de température. Ce seuil correspond aux premiers relâchements de gaz observés sur l'installation MERARG lors de traitements thermiques visant à étudier les mécanismes de relâchement des gaz de fission en conditions Accident par Perte de Refrigérant Primaire (APRP) [72].

Si ce couplage donne d'assez bon résultats tant d'un point de vue de la quantité de gaz relâchée (Figure 1.31) et de l'extension radiale de la zone fragmentée [49], il néglige certains effets en ne considérant que la fragmentation pilotée par les contraintes de compression dans le combustible pendant le transitoire.

D'autres phénomènes comme la fissuration due à la traction parfois observée à la périphérie du combustible ou la surpression des bulles de gaz seraient à prendre en compte.

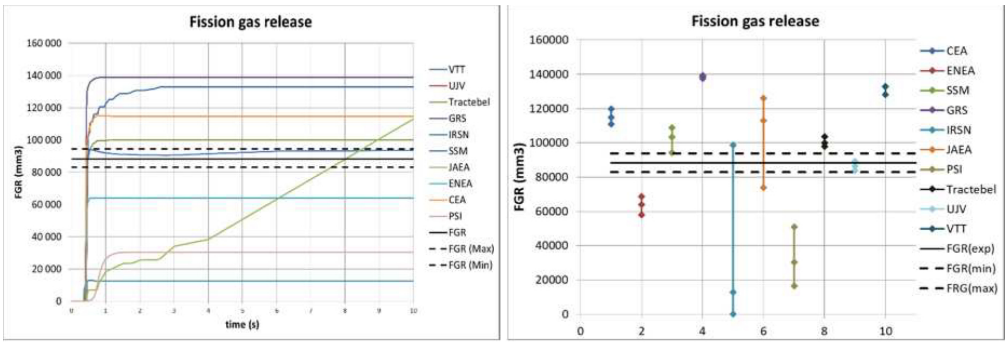


FIGURE 1.30. – RGF calculé pour l'essai CIP0-1 pour différents codes de calcul. La mesure du RGF est en ligne noire. D'après [83].

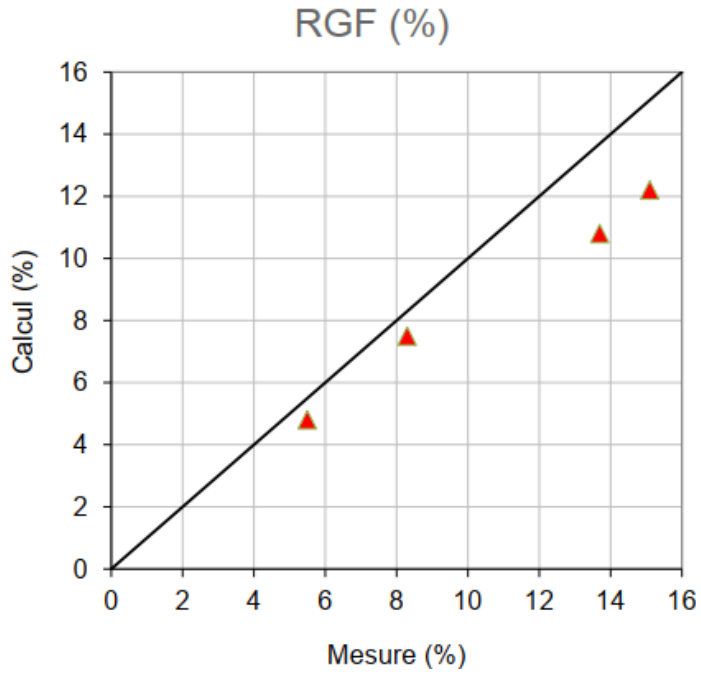


FIGURE 1.31. – Comparaison du relâchement des gaz de fission calculé avec ALCYONE et mesuré. De gauche à droite REP-Na 2, 4, 3 et 5. D'après [68].

Si la quantité de gaz relâchée dans le volume libre est un paramètre d'intérêt, la cinétique de ce relâchement et l'augmentation de pression interne du crayon qu'il entraîne sont aussi des phénomènes d'intérêts majeurs à modéliser avec précision. En effet si une crise d'ébullition survient pendant le transitoire, la cinétique du RGF va jouer au premier ordre sur la déformation de la gaine et sa potentielle rupture par ballonnement. Récemment, Guenot Delahaie et al ont étudié 10 essais NSRR avec le code ALCYONE [85]. Globalement les auteurs présentent un bon agrément entre les grandeurs calculées et mesurées (température externe de la gaine, durée de la crise d'ébullition, quantité de gaz relâchée...). Ils ont aussi montré qu'il était possible de reproduire les déformations de gaine mesurées post-mortem après essais en décalant temporellement la survenance du RGF durant le calcul. Pour l'essai TK-1 où la déformation maximale mesurée est de 25 % (illustrée précédemment en Figure 1.17), La déformation de la gaine calculée passe de 5 % initialement calculée à 18 % dans le cas où le RGF est décalée de 0,44 s du-

rant le calcul. Cette approche a été généralisée aux 10 essais considérés dans cette étude et un meilleur agrément calcul-mesure sur la déformation résiduelle de la gaine a ainsi été obtenu. On peut ainsi voir Figure 1.32 les écarts calculs-mesures sur la déformation résiduelle de la gaine avant le recalage temporel du RGF. La même comparaison après recalage temporel du RGF est montrée en Figure 1.33. Les auteurs concluent que 1) un RGF progressif est à prendre en compte au lieu du relâchage instantané dès qu'un seuil de fragmentation est dépassé comme actuellement considéré et 2) la modélisation du RGF associée à la fragmentation du combustible induite par les contraintes de tractions en périphérie de pastille sont nécessaires pour mieux rendre compte du comportement du combustible. Une telle modélisation nécessite des résultats expérimentaux permettant de mieux modéliser la fragmentation/fissuration du combustible ainsi que la relation entre la fragmentation/fissuration et le RGF, la cinétique de ce dernier étant un paramètre important.

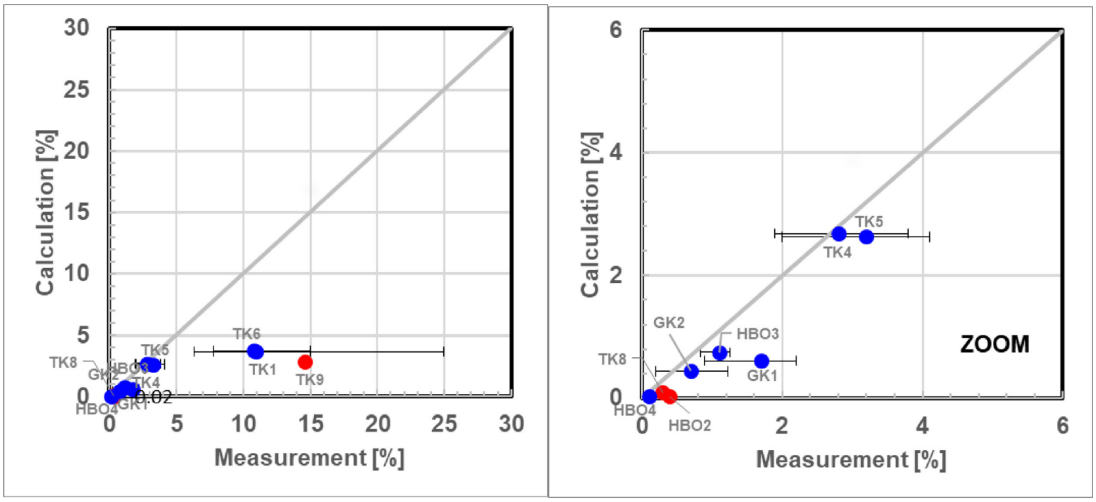


FIGURE 1.32. – Déformation circonférentielle résiduelle de la gaine calculée vs mesurée (moyenne des mesures) sans recalage temporel du RGF, calculs ALCYONE [85]

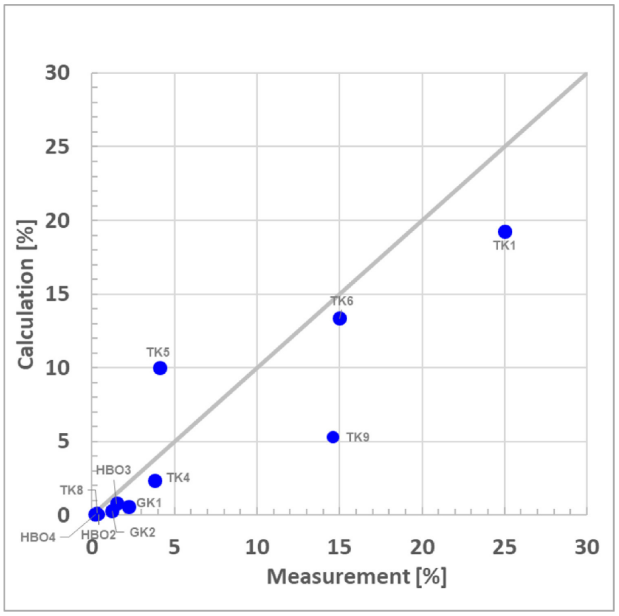


FIGURE 1.33. – Déformation circonférentielle résiduelle de la gaine calculée vs mesurée (maximum des mesures) après recalage temporel du RGF, calculs ALCYONE [85]

Il ressort que la modélisation du RGF est importante si l'on veut modéliser le plus fidèlement possible la température externe de la gaine et sa déformation pendant le transitoire. Ces deux grandeurs sont des paramètres importants qui pilotent une éventuelle défaillance ou non de la gaine en deuxième partie de transitoire comme nous l'avons vu précédemment. Il est donc important de proposer de nouvelles données expérimentales, les études portant sur le comportement mécanique de la pastille dans les conditions de sollicitations et de température d'un RIA étant peu nombreuses.

1.5. Bilan et axes d'études de la thèse

Dans ce chapitre bibliographique nous avons tout d'abord présenté le combustible nucléaire et les évolutions majeures qu'il subit durant son séjour en réacteur. Nous avons pu voir que le combustible voit sa composition évoluer et présente après un certain taux de combustion une microstructure très hétérogène.

L'accident par insertion de réactivité ou RIA a ensuite été présenté. Ces situations sont étudiées avec des essais en réacteur de recherche capable de reproduire une insertion de puissance représentative. D'un point de vue phénoménologique, les observations post-essais montrent une fissuration et une fragmentation importante des pastilles combustibles. Deux mécanismes possibles de défaillance de la gaine ont étés identifiés à savoir la rupture par interaction pastille-gaine (IPG) et la rupture par ballonnement après une importante déformation de la gaine.

Ces essais intégraux sont interprétés avec des codes de calcul (Fuel Perfomance Code) qui modélisent de façon plus ou moins poussée la thermo-mécanique du crayon test. Nous avons notamment présenté l'approche retenue dans le code de calcul ALCYONE-RIA pour modéliser le comportement mécanique de la pastille et le RGF en utilisant une loi de comportement décrivant la fragmentation du combustible par une déformation plastique équivalente. La L3F a été mise au point sur la base d'essais en compression uniaxiaux dans des conditions de température et de vitesse de déformation proches d'un RIA. Le RGF est piloté par un seuil sur la déformation plastique équivalente calculée et par un seuil en température déterminé empiriquement pour la zone restructurée. Si cette approche donne de très bons résultats certains phénomènes ne sont néanmoins pas modélisés. Premièrement la loi de comportement a été définie dans des conditions de chargement uni-axial et sur combustible vierge. Une étude de la survenance de la fragmentation du combustible sous chargement bi-axial et sur irradié afin de déterminer l'impact des bulles de gaz ou des dommages d'irradiation serait nécessaire en toute rigueur. Deuxièmement la cinétique de ce relâchement des gaz est mal connue bien que celle-ci ait un impact au premier ordre sur le résultat des simulations, notamment sur la température et la déformation résiduelle de la gaine. Ces deux grandeurs pilotent au premier ordre une éventuelle rupture par ballonnement de la gaine. Une mesure du RGF en ligne pendant la fragmentation/fracturation du combustible sous un chargement mécanique représentatif pourrait donc apporter des éléments de compréhension de ce phénomène.

Pour ce faire, nous allons présenter en chapitre 2 une plateforme et méthode expérimentale de chauffage laser capable de reproduire des transitoires représentatif d'un RIA en terme de température et de vitesse de déformation sur un échantillon d'UO_2. Le chapitre 3 sera dédié à l'étude de l'interaction laser-UO_2 qui est un paramètre matériau à connaître si l'on veut proposer un outil numérique de simulation thermo-mécanique de chauffes laser sur combustible vierge. Le chapitre 4 aborde ce sujet en présentant le code de calcul thermo-mécanique et la loi de comportement mécanique développée pour rendre compte du comportement mécanique de l'UO_2 sous chauffe laser. Enfin le dernier chapitre présentera les résultats expérimentaux de chauffes laser effectuées sur UO_2. Ces chauffes visaient à la fois à reproduire la totalité de la phase d'augmentation de température d'un transitoire RIA ainsi qu'à induire des phénomènes d'intérêts pour l'étude du RGF comme de la fragmentation ou de la fissuration.

Une visualisation de l'articulation des différents chapitres de cette thèse est visible Figure 1.34.

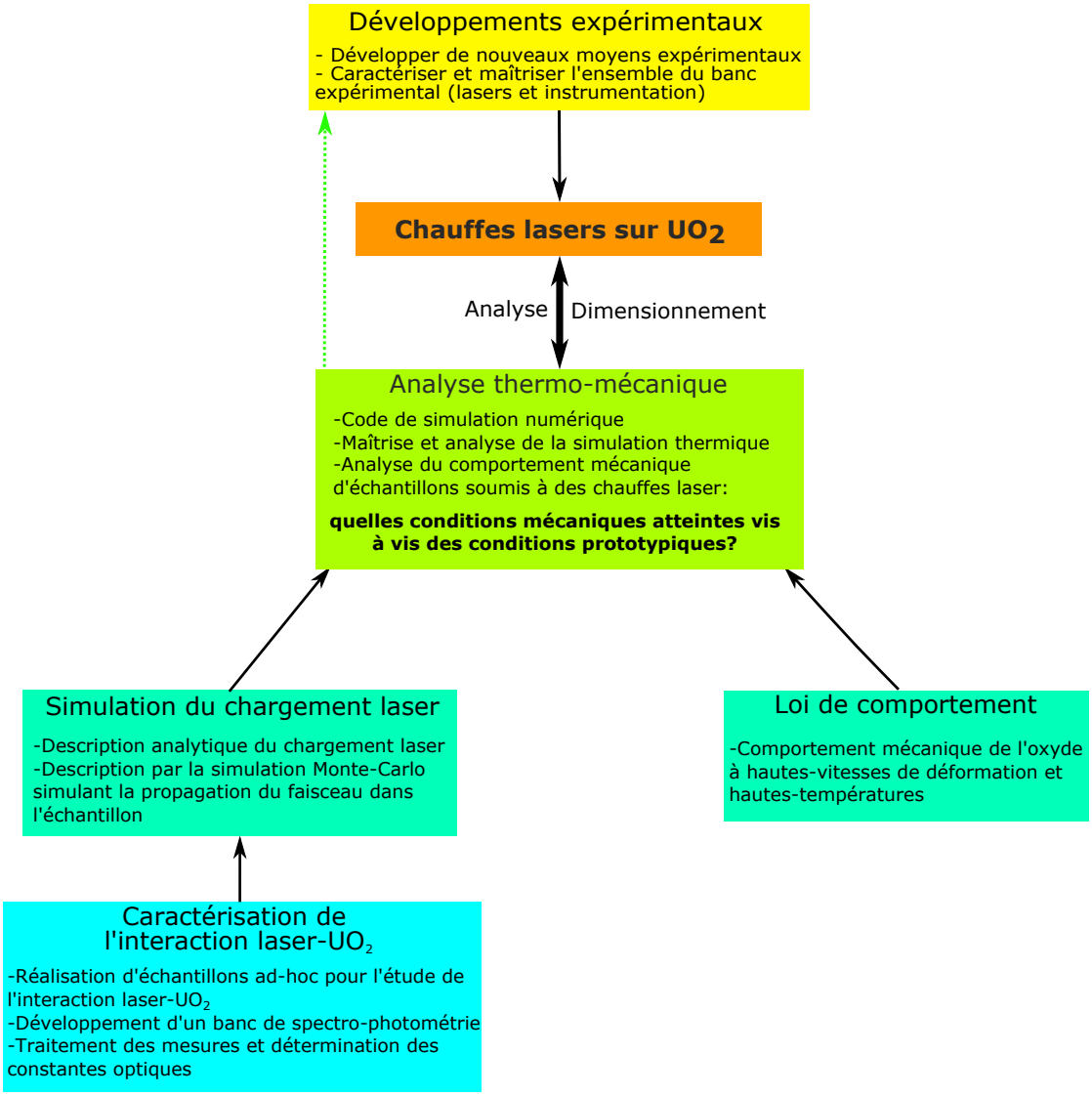


FIGURE 1.34. – Articulation des différents chapitres au vu des objectifs et de la problématique de recherche posée au cours de ce chapitre.

2. Développement des expériences de chauffage laser RIA

Sommaire

2.1. Introduction . . . 45
2.2. Principe expérimental du transitoire thermique induit par laser pour la reproduction d'un RIA . . . 46
2.3. Dispositif expérimental pour l'étude des RIA par chauffage laser . . . 47
2.3.1. Chambre d'expérience . . . 47
2.3.2. Portes-échantillons . . . 48
2.3.3. Faisceaux lasers . . . 49
2.3.3.1. Instruments de caractérisation . . . 50
2.3.3.2. Faisceau annulaire . . . 51
2.3.3.3. Faisceau homogène . . . 53
2.3.3.4. Vitesse de montée et calibration de puissance . . . 54
2.3.4. Dispositif de visualisation . . . 56
2.3.5. Pyrométrie et mesures infrarouges . . . 57
2.3.5.1. Emissivité de l'UO_2 . . . 57
2.3.5.2. Pyromètres . . . 58
2.3.5.3. Caméra thermique . . . 58
2.3.6. Configuration d'expérimentation finale . . . 63
2.4. Conclusion . . . 64

2.1. Introduction

Comme nous venons de le voir dans le chapitre bibliographique, une meilleure compréhension de certains phénomènes pouvant survenir durant un RIA est souhaitable. L'approche historique des tests en réacteurs expérimentaux ne permet pas de réaliser un nombre d'essais importants ou l'observation in-situ de l'évolution de l'état mécanique de la pastille pendant l'essai. Il serait donc intéressant de pouvoir soumettre des échantillons combustibles à des conditions thermiques et mécaniques représentatives du transitoire dans des conditions permettant une multiplication et paramétrisation des essais ainsi qu'une observation en temps réel de l'échantillon. Dans le cas de l'Accident par Perte de Réfrigérant Primaire, caractérisé par un transitoire d'une durée de l'ordre de la minute et une température gaine maximale atteinte de l'ordre de 1000 °C [86], des boucles expérimentales existent pour reproduire à l'échelle du laboratoire des conditions thermiques représentatives. On peut citer la boucle MERARG développé par le CEA [87] pour l'étude de la cinétique de relâchement des gaz de fission ou le four utilisé dans le cadre du projet international SCIP (Studsvik Cladding Integrity Project) portée par la société Studsvik en Suède [88]. Ces plateformes permettent de conduire un grand nombre d'essais parémétrisables (atmosphère, caractéristiques du transitoire, caractéristiques de l'échantillon) sans avoir recours à un réacteur expérimental. Les essais sont conduits sur des échantillons préalablement irradiés en réacteurs commerciaux dans des laboratoires de haute activité. Ces laboratoires sont dotés de cellules blindées qui protègent les expérimentateurs des rayonnements émis par les échantillons étudiés. Les manipulations se font au moyen de bras robotiques commandés à distance par un opérateur.

Les techniques de chauffage communément utilisées (four résistif ou HF) dans ces boucles expérimentales ne permettent pas de reproduire un transitoire RIA qui est notamment caractérisé par un profil radial de température piqué en périphérie et une cinétique rapide (dizaine de milliers de °C/s pendant quelques ms). Il est donc nécessaire de développer de nouvelles techniques expérimentales si l'on veut reproduire un transitoire RIA sur un échantillon combustible et être capable d'interpréter les résultats obtenus.

Le chauffage laser est un procédé communément utilisé pour souder, découper, graver, vaporiser des matériaux divers ou pour l'étude des matériaux à haute températures en utilisant l'échauffement causé par l'absorption d'une onde électro-magnétique. Ce procédé regroupe plusieurs avantages :

— Il est sans contact, permettant ainsi une observation de l'échantillon avec d'autres moyens d'études (pyrométrie, thermographie infrarouge, imagerie visible),
— La mise en forme du ou des faisceaux laser permet de maîtriser avec précision la zone sur laquelle est déposée la puissance laser,
— Les lasers de fortes puissances permettent de déposer des puissances importantes de manière quasi-instantanée (montée à la puissance maximale en moins d'une milliseconde).

Les lasers sont assez peu souvent utilisés sur des céramiques nucléaires. Lorsqu'ils le sont, c'est le plus souvent afin de chauffer et d'étudier les propriétés d'un matériau à hautes-températures. C'est le cas par exemple des travaux menés à l'Institut des Transuraniens à Karlsruhe en Allemagne avec l'utilisation d'une plateforme de chauffage laser intégrée dans un laboratoire de haute activité pour la détermination de changements de phase ou pour la mesure des propriétés thermo-physiques de céramiques nucléaires. Dans le premier cas le matériau étudié est chauffé par laser et l'analyse d'éventuels plateaux de température lors du refroidissement permet de déterminer les changements de phase. Dans le deuxième cas, le matériau est chauffé par laser par une de ses faces jusqu'à une certaine température et une deuxième impulsion laser envoyée sur la face arrière. La mesure du thermogramme (evolution de la température en fonction de la température) en face avant permet ensuite de remonter à des propriétés comme la diffusivité ou conduction thermique, à la capacité thermique ou encore à l'émissivité du matériau. Ainsi les points de fusions de différents matériaux nucléaires comme l'UO_{2+x} [89] , l'U_3O_8 [90], le PuO_2 [91], l'$U_{1-x}Am_x$ [92], le NpO_2 [93], de mélanges PuO_2 + ThO_2 [94], des nanocristaux d'UO_2 [95] ou même du carbure de tantale-hafnium (TaHfC) ont put être déterminés.[96]. Des caractérisations de certaines propriétés thermophysiques (conduction, diffusivité ou capacité thermique, émissivité etc) ont étés effectués pour le ThO_2 [97] ou pour l'UO_2 [98, 99].

2.2. Principe expérimental du transitoire thermique induit par laser pour la reproduction d'un RIA

Dans le cadre de ses travaux de thèse (2017-2020) à l'Institut Fresnel et au CEA, Thibault Vidal a démontré la pertinence du chauffage laser pour la reproduction de la thermique d'un transitoire RIA et a élaboré dans le même temps une plateforme expérimentale pour ce faire [100, 101]. La plateforme CHAUCOLASE (CHAUffage COntrolé par LASEr) est basée à l'Institut Fresnel et a été conçue, en collaboration avec le CEA, pour soumettre des échantillons à des températures extrêmes en se basant sur des lasers à fortes puissances (kW) et a fait l'objet d'une publication dédiée à sa présentation [102]. Le principe expérimental retenu illustré en Figure 2.1 consiste à chauffer un disque d'UO_2 -sur une ou deux faces- d'épaisseur sub-millimétrique et découpé à partir d'une pastille. Cette approche peut éventuellement permettre de chauffer un disque et la gaine, la chauffe se faisant par les faces planes de l'échantillon. Dans le cadre de sa thèse, T. Vidal a reproduit l'incrément de température en périphérie de pastille en utilisant un faisceau laser annulaire gaussien afin de ne chauffer que la périphérie de l'échantillon.

Le scénario de chauffe était alors le suivant :

— Le disque d'UO_2 est porté et maintenu dans son porte échantillon à une température initiale au moyen d'un premier faisceau laser gaussien ou homogène,
— La périphérie de l'échantillon est chauffée par le faisceau annulaire de dimensions préalablement sélectionnées (rayon, épaisseur) sur une ou deux de ses faces.

L'un des objectifs en début de ma thèse, en plus de l'interprétation mécanique de telles chauffes, était d'atteindre une meilleure représentativité du transitoire RIA en chauffant aussi le cœur de l'échantillon afin de reproduire la totalité de l'évolution radiale de température d'un RIA. Nous nous sommes aussi intéressés à proposer de nouveaux diagnostiques, comme par exemple un dispositif de visualisation en temps réel pour observer l'éventuelle fragmentation ou fracturation de l'échantillon. Les développements réalisés pour complexifier les transitoires possibles ou pour proposer de nouveaux moyens de caractérisations seront présentés plus loin dans ce chapitre.

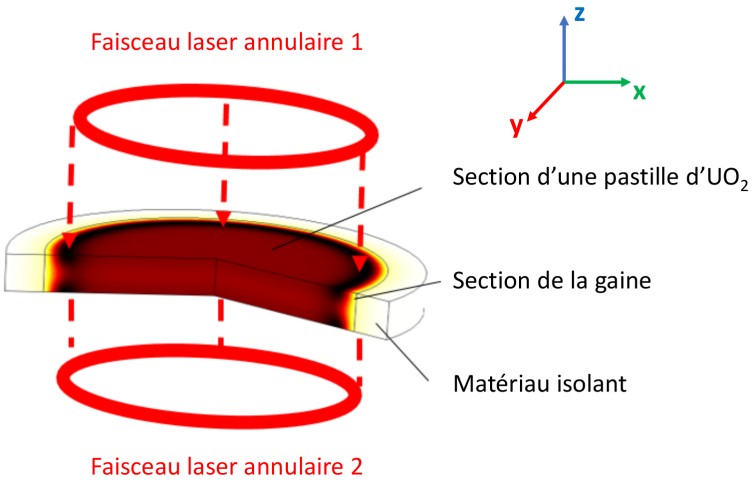


FIGURE 2.1. – Principe de chauffe par laser annulaire imaginé pour une section de crayon (pastille et gaine) et d'un matériau isolant, d'après T. Vidal [100]

2.3. Dispositif expérimental pour l'étude des RIA par chauffage laser

Nous allons maintenant présenter l'ensemble des techniques expérimentales utilisées et développées pour cette thèse. La plateforme CHAUCOLASE, basée à l'Institut Fresnel et sur laquelle se sont déroulées les expériences, regroupe différents éléments que nous allons détailler :

- La chambre d'expérience,
- Les différents portes-échantillons utilisés qui maintiennent l'échantillon pendant la chauffe,
- Les dispositifs de mesures (thermographie infrarouge, pyrométrie), de régulation de température et de calibration (corps noir haute température),
- Le dispositif d'observation en temps réel de l'échantillon,
- Les lasers et les systèmes de mise en forme des faisceaux laser utilisés pour la chauffe.

2.3.1. Chambre d'expérience

La chambre d'expérience utilisée est une enceinte double parois circulaire de rayon interne 15 cm en acier inoxydable (304L, peut être utilisé jusqu'à 500 °C) dotée de plusieurs accès optiques (hublots interchangeables) refroidie à l'eau par un circuit interne. Son dessin technique est visible sur la Figure 2.2. Les hublots sont de dimensions standards 1,5 pouces (3,81 cm) montées sur des brides KF40 que l'on peut monter et démonter à l'envie. Ces hublots sont au nombre de 8 sur la circonférence de la chambre plus un hublot supérieur. Quatre types de hublots sont utilisés : des hublots en silice fondue avec un traitement antireflet dans les bandes 350-700, 650-1050 ou 1050-1700 nm et des hublots en fluore de Baryum (BaF_2), Germanium (Ge) ou Séléniure de Zinc (ZnSe), ces derniers étant adaptés pour le domaine infrarouge. La chambre est aussi dotée de plusieurs passages à vide (fibre optique, câble électrique et thermocouple, circuit d'eau etc). Cette enceinte permet de travailler sous vide

jusqu'à 10^{-3} mbar en vide primaire et jusqu'à 10^{-7} mbar en vide secondaire. Il est aussi possible de se placer sous atmosphère contrôlée (Argon par exemple). Nous avons travaillé uniquement avec le vide primaire au cours de cette thèse. La chambre tient aussi le rôle de dissipateur de la chaleur rayonnée par l'échantillon et a été dimensionnée avec ce rôle en tête. En cas d'une erreur expérimentateur ou d'une défaillance logicielle ou matérielle, la chambre sert aussi à contenir la puissance laser. Le plancher de la chambre est un plateau taraudé amovible sur lequel on peut visser le matériel souhaité (porte-échantillon, miroirs...).

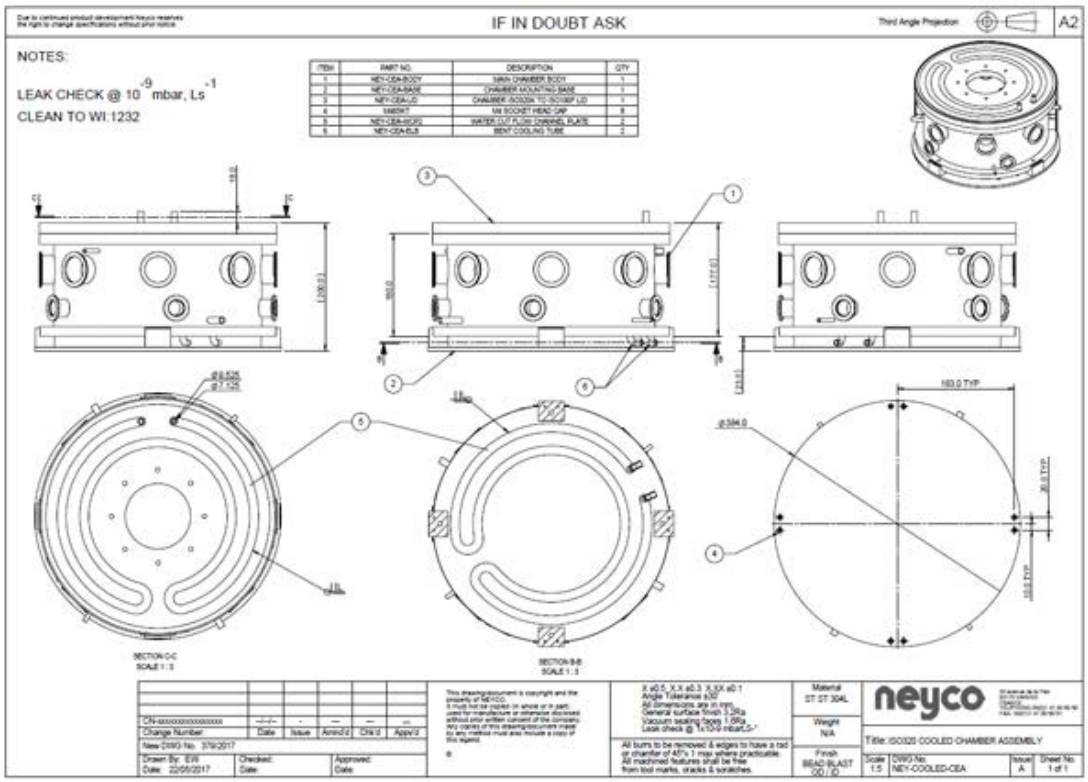


FIGURE 2.2. – Photo et dessin technique de la chambre d'expérience

2.3.2. Portes-échantillons

Deux portes-échantillons ont étés utilisés pour cette thèse. Ils servent à maintenir l'échantillon pendant la chauffe tout en permettant un accès optique et à contenir d'éventuels fragments. Ils

sont tous les deux principalement constitués d'oxyde de zirconium (ZrO_2) stabilisée à l'yttria qui est une céramique présentant une très bonne tenue aux hautes-températures et une faible conductivité thermique [103].

Le premier porte échantillon (Figure 2.3) consiste en un corps de zircone dans lequel est placé le disque maintenu entre deux fenêtres en saphir. Le saphir présente en effet de bonnes propriétés optiques, thermiques et mécaniques pour notre utilisation. Le saphir possède une large bande de transmission optique entre le visible et jusqu'à 5 μm permettant ainsi un accès optique à l'échantillon dans cette bande. Il possède aussi une bonne tenue à la température avec une température de fusion autour de 2000 °C. Un système de cale permet de positionner et d'auto-centrer des échantillons de différentes tailles dans ce porte-échantillon. Ce porte échantillon maintient donc l'échantillon par ses faces en le plaquant plus ou moins fortement entre deux fenêtres en saphir. Il est fixé sur un jeu de double platines micrométriques permettant de déplacer avec précision l'échantillon.

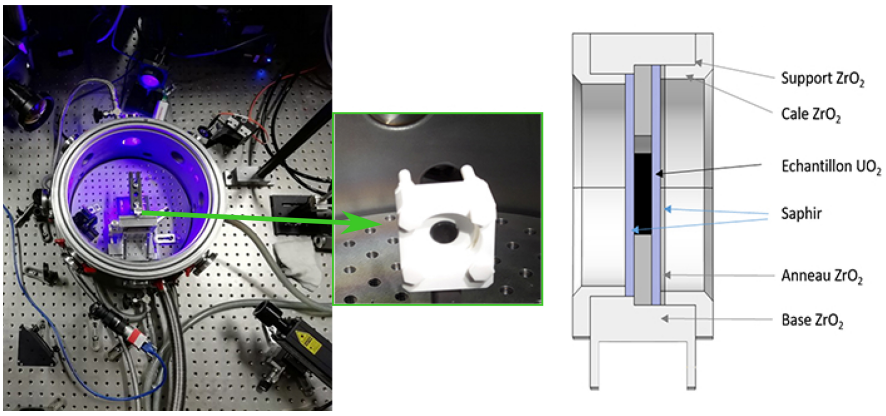


FIGURE 2.3. – A gauche : Vue de dessus de la chambre avec les platines de déplacement. La flèche et l'insert montrent la position et une photo du porte-échantillon 1. A droite : schéma détaillé du porte-échantillon 1

Le deuxième porte-échantillon, développé au cours de la thèse pour palier aux limitations du premier, maintient l'échantillon par la tranche avec deux mâchoires en zircone. Deux fenêtres en saphir sont toujours présentes mais un espace entre l'échantillon et celles-ci est assuré. Les éventuels fragments sont toujours contenus grâce à un système de "cendrier" placé sur sa base. La mâchoire supérieure exerce une pression grâce à un système de piston et de ressort. L'échantillon est auto-centré pour différentes épaisseurs. Ce deuxième porte-échantillon permet d'assurer qu'il n'y a pas d'échange thermique entre le saphir et l'échantillon. Le saphir étant un très bon conducteur de chaleur, un pont thermique était une éventualité que nous souhaitions éviter. La contre-partie de cette approche est que la pression exercée par la mâchoire supérieure peut modifier le comportement mécanique de l'échantillon. Ce porte-échantillon est conçu pour être fixé sur une platine de déplacement micrométrique 5 axes (Newport 9082-M Wide) comme montré sur la Figure 2.4.

2.3.3. Faisceaux lasers

Les sources laser utilisées pour la génération du transitoire sont des lasers de puissances à fibre ytterbium (λ=1070 nm) non polarisées. Deux sources de 1500 et 2000 W respectivement ont étés utilisées pendant la thèse pour la génération des transitoires thermiques. Une diode laser de quelques dizaines de watt (λ=808 nm) a été utilisée pour préchauffer l'échantillon jusqu'à une température définie avant la génération du transitoire. Le laser 1500 W délivre une faisceau monomode gaussien avec un facteur M2 [1] annoncé de $1,1 \pm 0,1$. C'est le faisceau laser utilisé pour la génération des faisceaux annulaires. Le laser 2000 W est un faisceau multi-mode qui est utilisé pour la génération d'un faisceau homogène.

1. Décrit la qualité du faisceau. Un facteur M2 de 1 correspond à un faisceau gaussien parfait limité par la diffraction de la lumière.

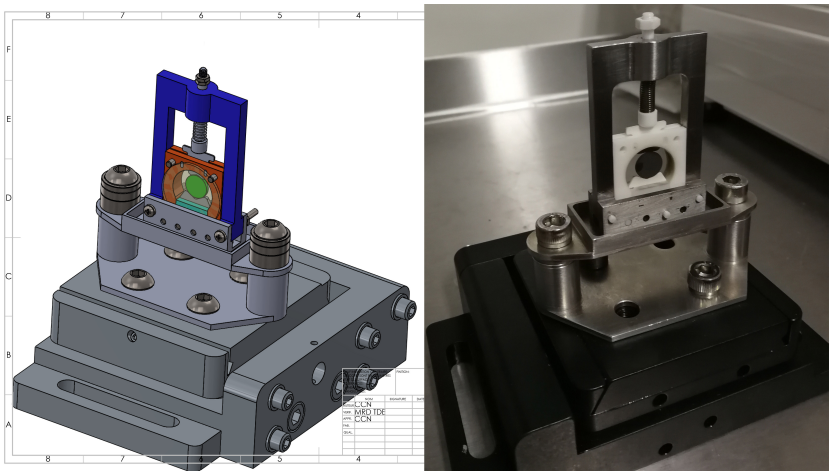


FIGURE 2.4. – A gauche : Vision CAO du porte-échantillon 2. A droite : Photo du porte-échantillon monté sur la platine de déplacement avec un disque d'UO_2

	Laser 1500 W	Laser 2000 W	Diode de préchauffe
Fabricant	SPI Laser	SPI Laser	LIMO
Modèle	Qube 1500 (non polarisé)	Qube 2000 (non polarisé)	F200-DL808 (non polarisé)
Longueur d'onde Largeur spectrale (FWHM)	1070 nm 10 nm	1070 nm 10 nm	808 nm 4 nm
Puissance Min/Max (W)	150/1500	200/2000	non mesurée/40
Faisceau	Monomode tranverse (faisceau gaussien) M2<1,1	Multimode	Gaussien
Diamètre en sortie de collimateur (en mm à $1/e^2$)	13,5	10	8,5
Vitesse de montée constructeur	5 μs	5 μs	non renseignée

TABLEAU 2.1. – Caractéristiques principales des faisceaux laser utilisés

2.3.3.1. Instruments de caractérisation

Pour caractériser les faisceaux lasers, plusieurs instruments ont étés utilisés tout au long de la thèse.

Pour la caractérisation du profil d'intensité des faisceaux, nous avons utilisé l'imageur Beamage 4M de la société Gentec-EO (Figure 2.5, à droite). Cet imageur est équipé d'un capteur CMOS fonctionnant entre 355 et 1150 nm, sa résolution est de 4,2 millions de pixels (2048x2048) pour une taille de pixels de 5,5 μm.

La mesure de puissance est faite grâce à un calorimètre (Gentec-EO UP55C-2.5KW-HD-D0) pouvant mesurer jusqu'à 2500 W (Figure 2.5, à gauche). Les mesures de puissance permettent de comparer les écarts de puissance entre la puissance demandée et celle déposée sur l'échantillon. Les mesures de puissances sont effectuées dans le plan de l'échantillon afin de prendre en compte les pertes suscitées par les différents éléments optiques.

FIGURE 2.5. – A gauche : calorimètre utilisé pour la mesure de puissance. A droite : imageur utilisé pour la caractérisation du profil d'intensité des lasers

2.3.3.2. Faisceau annulaire

Les deux grandes solutions techniques pour mettre en forme un faisceau annulaire sont l'utilisation d'un axicon [2] (ou axicon + lentille) ou d'une optique diffractive [3] qui reproduit la fonction optique d'un axicon ou d'un axicon + lentille. Un faisceau annulaire gaussien est caractérisé par son rayon noté R_{an} et son waist -rayon à $1/e^2$, noté ω_{an}-; l'épaisseur de l'anneau vaut alors deux fois son waist. Un schéma explicatif est donné Figure 2.6. Le profil d'intensité radial théorique d'un tel faisceau est le suivant [100] :

$$I(r, R_{an}, \omega_{an}) = I_{max} e^{\frac{-2(r-R_{an})^2}{\omega_{an}^2}} \tag{2.1}$$

Avec I l'intensité en $W.m^{-2}$ et r la position radiale. I_{max} est l'intensité radiale maximale pour $r = R_{an}$ et vaut :

$$I_{max} = \frac{P}{\pi\left(\frac{\omega_{an}}{2}.e^{\frac{-2R_{an}^2}{\omega_{an}^2}}\right) + R_{an}.\frac{\omega_{an}^2.\sqrt{\pi}}{\sqrt{2}}.erfc\left(-\frac{\sqrt{2}.R_{an}}{\omega_{an}}\right)} \tag{2.2}$$

P étant la puissance laser en W et erfc la fonction erreur complémentaire :

$$erfc(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}}\int_x^{\infty} e^{-x^2}\,dx \tag{2.3}$$

Le détail de l'obtention de l'équation de I_{max} est donnée en Annexe A.

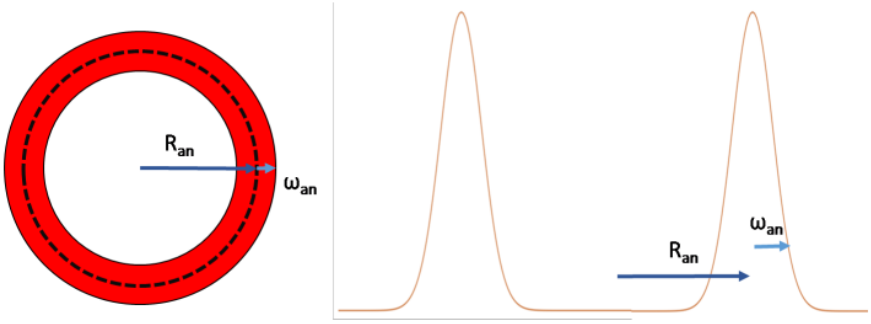


FIGURE 2.6. – Représentation d'un faisceau annulaire gaussien et de ses caractéristiques. D'après [100].

Pour ce travail de thèse, les faisceaux annulaires gaussiens sont obtenus grâce à une optique diffractive (Diffractive Optical Element (DOE)) fournie par la société Silios Technologies qui contient la fonction optique d'un axicon + lentille convergente (f = 50 cm). Dans le plan focal, l'anneau gaussien obtenu a un rayon de 3,9 mm et une épaisseur à $1/e^2$ de 0,2 mm comme montré Figure 2.8. Cette

2. Dans le cas présent, un axicon est une lentille conique
3. Element qui modifie le front d'onde du faisceau incident

optique ne peut accepter que des faisceaux ayant un diamètre compris entre 4 et 10 mm. Le faisceau laser 1500 W mesure environ 13,5 mm de diamètre en sortie de collimateur, ce qui est trop grand pour l'optique diffractive ; aussi nous réduisons les dimensions du faisceau au moyen d'un système afocal. Ce système afocal est composé de deux lentilles : la première est convergente avec une focale de 300 mm et la deuxième est divergente avec une focale de -150 mm. Le rapport des focales vaut 0,5 et l'on réduit ainsi d'un tel facteur les dimensions du faisceau. Un schéma et une photo du montage complet sont visibles Figure 2.7.

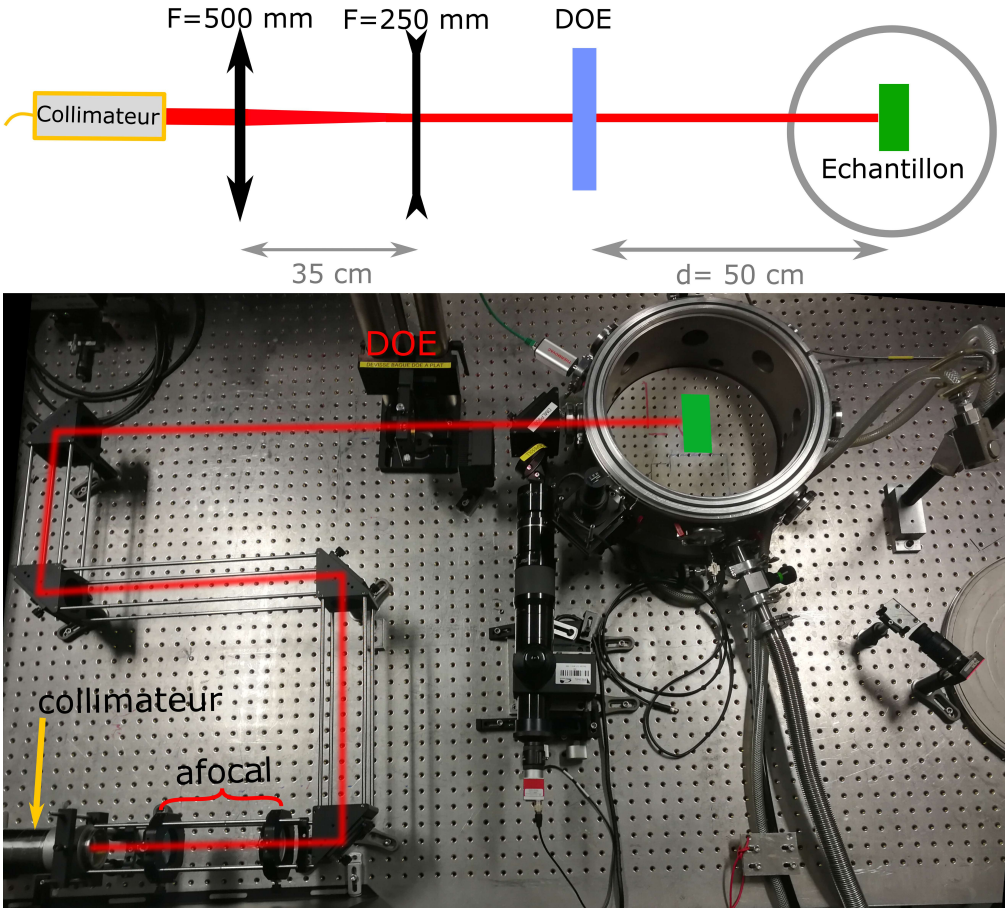


FIGURE 2.7. – En haut : schéma du montage optique utilisé pour obtenir un faisceau annulaire . En bas : photo et description du montage.

On observe sur la Figure 2.8 le faisceau annulaire imagé dans le plan focal du DOE et les profils théoriques et expérimentaux obtenus. On peut observer un résidu de puissance au centre de l'anneau correspondant à l'ordre 0 du système diffractif. D'après la documentation constructeur, la puissance contenue dans ce résidu d'ordre 0 est inférieure à <1 % dans le plan focal du DOE. On peut aussi voir que la puissance n'est pas totalement homogène le long de sa circonférence du fait de l'alignement qui n'est pas parfait. A titre d'exemple, si l'on effectue 25 mesures d'épaisseur et d'amplitude réparties sur la circonférence de cet anneau, l'épaisseur moyenne de l'anneau est de 201 µm avec un écart type de 7 µm et l'écart type sur l'amplitude est de 4%. Le faisceau obtenu reste donc globalement homogène et d'une très bonne qualité malgré de petites disparités en épaisseur ou en amplitude et correspond assez bien à l'équation théorique de la distribution d'intensité.

On peut en défocalisant le faisceau (ie., en augmentant ou en diminuant la distance DOE - capteur/échantillon) jouer sur les dimensions du faisceau annulaire comme montré sur le graphe donné en Figure 2.9. Néanmoins plus on défocalise le faisceau plus on observe un résidu de puissance important au centre de l'anneau aussi l'on ne peut s'écarter de la distance nominale du DOE (50 cm) que d'une dizaine de cm dans l'une ou l'autre direction. Ce comportement permettra comme nous

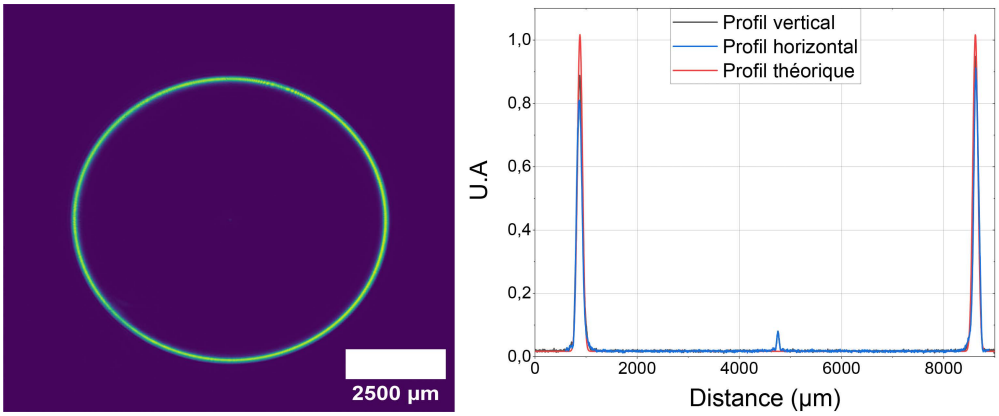


FIGURE 2.8. – A gauche : image normalisée du faisceau annulaire dans le plan focal du DOE. A droite : profil d'intensité théorique pour un rayon de 3,9 mm et un waist (demie-épaisseur) de 0,1 mm comparé aux profils mesurés

le verrons d'ajuster de manière simple le dépôt de puissance sur l'échantillon en élargissant plus ou moins l'anneau laser.

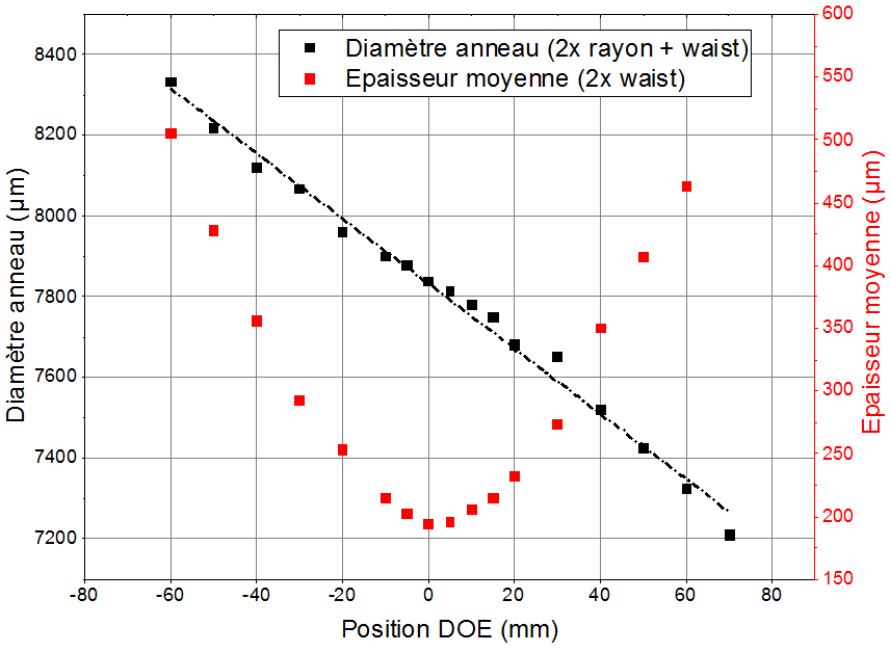


FIGURE 2.9. – Evolution des dimensions du faisceau annulaire en fonction de la distance depuis le plan focal

2.3.3.3. Faisceau homogène

Un faisceau homogène de grande qualité peut notamment être obtenu avec une optique diffractive. Pour des raisons de coût et de temps, nous avons opté pour une solution intermédiaire peu coûteuse qui permet d'obtenir un faisceau relativement homogène. Ce faisceau est obtenu en focalisant le faisceau multi-mode (laser 2000 W) dans un premier temps. Lorsque focalisé, c'est à dire en configuration dite en "champ lointain", le faisceau multi-mode présente un profil d'intensité de type top-hat comme illustré en Figure 2.10-(b). On peut voir sur cette figure que le faisceau focalisé est relativement homogène

avec un diamètre de l'ordre du mm. En réimageant sur l'échantillon ce faisceau homogène à l'aide d'un doublet de lentilles, on obtient un faisceau homogène fortement divergeant comme montré sur la Figure 2.10 en haut. En jouant sur les caractéristiques des optiques (lentille convergente et doublet de lentilles) et sur la position du système lentille-doublet par rapport à l'échantillon, on obtient au niveau de l'échantillon un faisceau relativement homogène dont les dimensions sont proches de celles de l'échantillon. Pour notre montage, la lentille de focalisation utilisée a une focale de 500 mm et le doublet a une focale de 100 mm. Un jeu de miroirs placé à l'intérieur de la chambre permet de rediriger le faisceau sur la face souhaitée de l'échantillon. Le profil d'intensité obtenu dans le plan échantillon est montré Figure 2.10-(c). On peut voir que l'on retrouve un profil similaire à celui obtenu dans le plan focal de la lentille mais cette fois-ci son diamètre fait environ 9 mm.

2.3.3.4. Vitesse de montée et calibration de puissance

La vitesse de montée de la puissance laser est un paramètre à caractériser pour avoir une vision précise de la cinétique du dépôt de puissance à la surface de l'échantillon. La calibration de puissance permet quant à elle de prendre en compte les pertes sur les différentes optiques traversées par le faisceau et le fait que le laser peut ne pas délivrer exactement la puissance théoriquement demandée et a été effectuée au moyen du puissancemètre présenté précédemment.

La vitesse de montée de la puissance a été mesurée au moyen d'une photodiode (Thorlabs DET10A2, temps de réponse 1 ns) mesurant la fuite (<1 %) derrière un miroir utilisé pour transporter le faisceau laser. Un diffuseur est préalablement placé devant le capteur de la photodiode. Seul le laser 1500 W a été caractérisé sur ce point. Plusieurs impulsions de 20 ms pour différentes consignes de puissances entre 10 et 50 % du maximum (150 et 750 W théoriques) ont étés générées. Le signal transmis par la photodiode est visible Figure 2.11. Hors considération sur la vitesse de montée en tant que telle, on peut voir que le laser semble perdre en stabilité à mesure que la puissance demandée augmente avec des oscillations importantes enregistrées pour 40, 45 et 50 %. Si l'on regarde la montée en puissance, on peut voir que le maximum est atteint entre 1 et 2 ms dans tous les cas à l'exception du cas le plus puissant. Pour le tir à 40 %, 90 % du signal maximal est atteint à 1 ms. Ces valeurs sont à mettre en perspectives de la vitesse annoncée par le constructeur (dizaine de µs).

La calibration en puissance du laser 1500 W a été effectuée sans le DOE. Les pertes sur celui-ci ont étés estimées séparément et sont négligeables (<1%). On peut voir sur la Figure 2.12 que pour ce laser, la puissance reçue est systématiquement inférieure à la puissance théorique. Ce comportement est dû à un vieillisement du système laser qui n'arrive pas à délivrer la puissance de consigne ; cela est d'ailleurs exacerbé à plus haute-puissance, le graphe montré ici s'arrêtant à 50% de la puissance théorique maximale. Néanmoins pour notre utilisation comme nous le verrons par la suite nous n'allons jamais avoir besoin de plus de 500 W, le paramétrage de la puissance laser se fera donc toujours sur la base d'une calibration comme celle montrée ici. Des calibrations ont régulièrement été effectuées pour suivre l'évolution de la puissance réellement délivrée par ce laser durant la thèse.

Dans le cas du 2000 W les mesures ont été effectuées avec le faisceau homogène pour prendre en compte les pertes sur toutes les optiques. On peut voir que la droite de puissance expérimentale suit bien la droite théorique jusqu'à 60% où un léger décrochage est observable. Un meilleur comportement du laser 2000 W, plus récent et ayant été moins sollicité, est donc observé avec un léger décrochage par rapport à la courbe théorique à haute puissance (>1400 W).

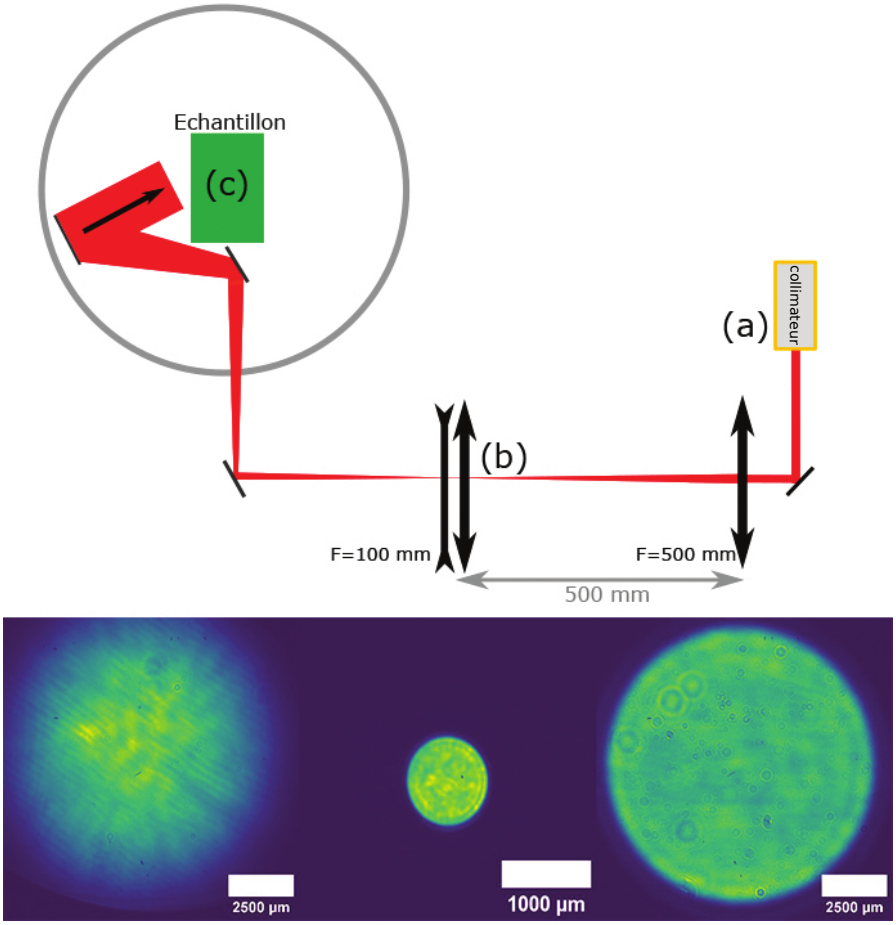


FIGURE 2.10. – En haut : Schéma du montage utilisé pour obtenir un faisceau homogène de dimension 9 mm de diamètre dans le plan échantillon. Le trajet optique du faisceau est représenté en rouge. En bas : image du faisceau en (a) sortie de tête laser, (b) au plan focal de la première lentille, (c) au plan échantillon.

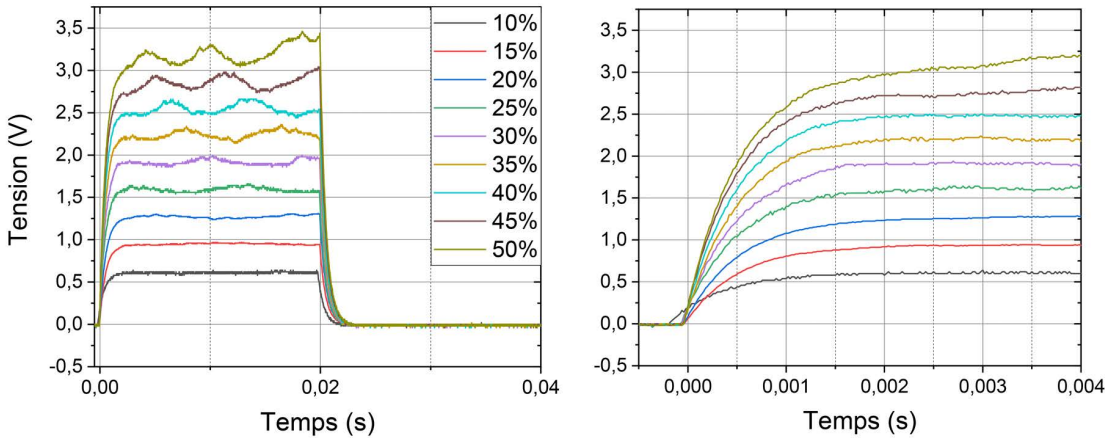


FIGURE 2.11. – A gauche : Signal mesuré par la photodiode pour différentes impulsions de 20 ms et et de puissance différente. A droite : zoom entre 0 et 4ms. Laser 1500 W.

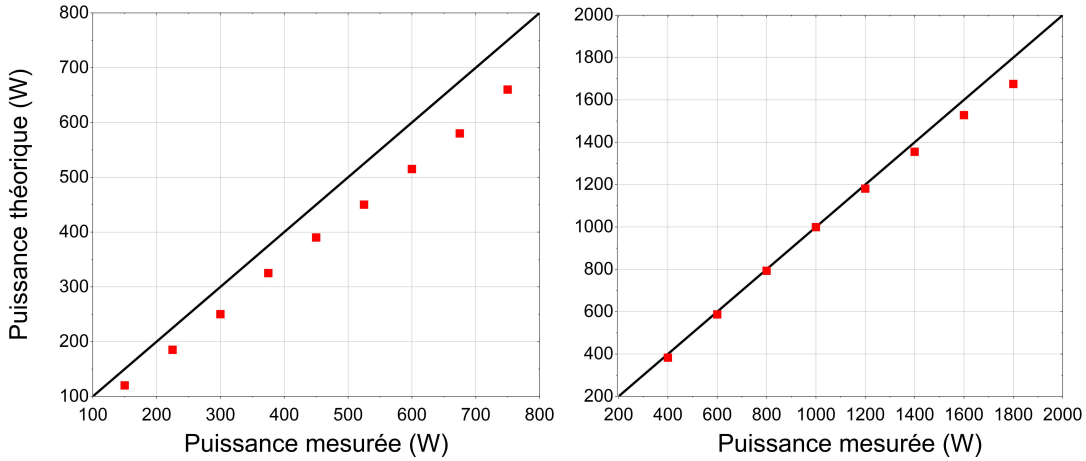


FIGURE 2.12. – A gauche : Puissance théorique versus la puissance mesurée avec le laser 1500 W. A droite : Puissance théorique versus la puissance mesurée avec le laser 2000 W.

2.3.4. Dispositif de visualisation

Pour visualiser en temps réel la réponse mécanique de l'échantillon à l'impulsion laser, nous avons installé un microscope autour de la chambre. Nous utilisons le microscope longue distance de travail K2 DistaMax doté d'un objectif CF-1 (Infinity). Le grossissement du dispositif à l'infini est 0,65. Une caméra rapide (AOS PROMON U1000) est fixée sur le dispositif afin de pouvoir réaliser des acquisitions vidéo. L'échantillon est éclairé à 45° avec une LED bleue fonctionnant à 450 nm et d'une puissance maximale de 900 mW (Thorlabs M455L3 avec le collimateur SM2F32-A). Un schéma de ce système est montré sur la Figure 2.13. Ce dispositif est une adaptation du système de visualisation de spectrométrie développé pour le four MERARG installé au LECA-STAR du CEA Cadarache présenté en [104]. On peut voir que le microscope est placé orthogonalement à l'échantillon grâce à un miroir dichroïque (Thorlabs DMLP900L) réfléchissant à 450 nm et transparent à 1070 nm ; cela permet de regarder par le même hublot utilisé pour chauffer l'échantillon avec le laser. Si cela est nécessaire, un deuxième dichroïque (Thorlabs DMSO650L) transmettant sous 650 nm et réfléchissant au dessus est placé entre le microscope et le premier dichroïque afin de filtrer le faisceau de la diode de préchauffage utilisée en face arrière de l'échantillon. La puissance de ce faisceau de quelques dizaines de W peut potentiellement endommager la caméra en cas de rupture de l'échantillon. Le deuxième dichroïque sert donc à protéger la caméra dans cette éventualité. L'éclairage à 45° permet de ne pas visualiser la réflexion spéculaire (voir Fig. 2.13), en particulier celle de la fenêtre en saphir. En ne regardant que la réflexion diffuse, l'on s'assure de n'imager que la surface de l'échantillon. Enfin, un filtre passe bande de 8 nm centré sur 450 nm (Thorlbabs FB450-40) est placé avant la caméra afin de filtrer au maximum le rayonnement thermique de l'échantillon en plus du filtrage effectué par les deux miroirs dichroïques placés devant le microscope. Ce système permet de réaliser des acquisitions d'une portion d'échantillon à 500 img/s (1 image toutes les 2 ms).

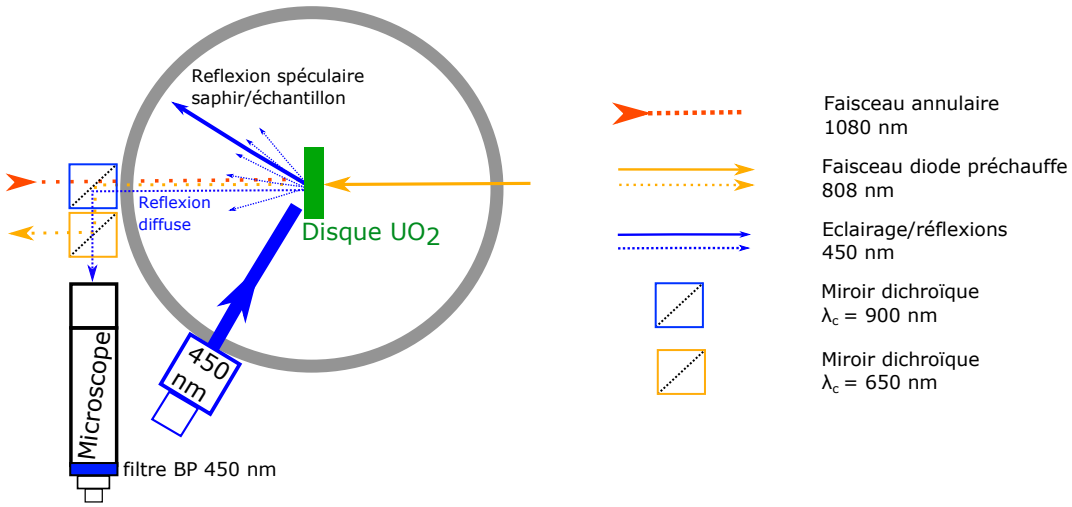


FIGURE 2.13. – Schéma du dispositif de visualisation. Le trait rouge représente le trajet du faisceau laser annulaire, le bleu représente le trajet de la lumière issue de la source d'éclairage et l'orange le trajet du faisceau issu de la diode de préchauffage parfois placée orthogonalement à l'échantillon en face arrière. Ce système est visible en Figure 2.7.

2.3.5. Pyrométrie et mesures infrarouges

Les instruments de mesure de température par infrarouge utilisés (pyromètres ou caméra infrarouge) utilisent une mesure du flux thermique émis par un objet pour déterminer sa température.

La loi de Planck permet de relier la température à la luminance spectrale d'un corps noir :

$$L^0(\lambda, T) = \frac{2hc^2}{\lambda^5} \frac{1}{e^{\frac{hc}{\lambda k_B T}} - 1} \tag{2.4}$$

Avec h la constante de Planck, c la vitesse de la lumière (dans l'air d'indice $n = 1$, $c = c_0$ la vitesse de la lumière dans le vide), k_B la constante de Boltzmann, T la température en K et λ la longueur d'onde en m.

En prenant en compte un facteur τ décrivant la transmission du milieu entre l'appareil de mesure et l'objet mesuré et en définissant l'émissivité ε comme le rapport de la luminance d'un corps réel par la luminance du corps noir L^0 à la même température, on peut écrire :

$$\tau.\varepsilon.L^0(\lambda, T_0) = L^0(\lambda, T_{CN}) \tag{2.5}$$

Avec T_0 la température réelle de l'échantillon observé est T_{CN} la température du corps noir de luminance identique.

Pour connaître la température d'un échantillon, l'émissivité de celui-ci et la transmission du milieu à travers lequel se fait l'observation doivent être connus.

2.3.5.1. Emissivité de l'UO_2

La valeur recommandée de l'émissivité hémisphérique totale pour l'UO_2 entre 1000 et 3120 K est [5] :

$$\varepsilon = 0,85 \pm 0,05 \tag{2.6}$$

Cependant les valeurs reportées dans la littérature autour de cette valeur de référence présentent une assez grande dispersion. T. Vidal a donc mené une étude sur l'émissivité de l'UO_2 dans l'infra-rouge avec une phase de calibration des instruments de mesures de température par rayonnement [100]. La valeur d'émissivité obtenue après cette phase de calibration vaut 0,85 pour la plage spectrale utilisée

par les appareils de mesures infrarouges à notre disposition (bande 2-5 μm) et est en totale adéquation avec la valeur recommandée par la littérature. C'est cette valeur que nous utiliserons par la suite.

2.3.5.2. Pyromètres

Plusieurs pyromètres de la société SensorTherm (Figure 2.14) étaient à notre disposition. Ces pyromètres permettent des mesures dans des gammes de températures différentes et ont des caractéristiques différentes (temps de réponse, taille de zone de mesure, etc). L'étendue totale de mesure couverte est la gamme 50-3650 °C. On distingue les pyromètres monochromatiques (un seul canal de mesure) aux pyromètres bi-chromatiques (deux canaux de mesures). Les pyromètres monochromatiques dont nous disposons fonctionnent à 1,27 μm et dans la bande 2-2,6 μm respectivement. Ces pyromètres ne fonctionnant qu'avec un seul canal de mesure, il faut connaître l'émissivité du matériau étudié et son évolution avec la température aux longueurs d'ondes auxquelles l'instrument travaille. Leur zone de mesure a des dimension de l'ordre de la centaine de micromètres.

FIGURE 2.14. – Photo d'un pyromètre

Nous disposons aussi de pyromètres bichromatiques qui offrent une possibilité de mesurer la température en se basant sur le rapport d'intensité entre les deux canaux de mesure. Cette approche permet de ne pas avoir besoin de l'émissivité du matériau mais du rapport des émissivités entre les deux canaux. Si cette approche permet de ne pas considérer la variation de l'émissivité avec la température si les deux bandes de mesure sont suffisamment proches, l'émissivité ne variant pas brusquement dans l'infrarouge, cette technique est en revanche sensible aux variations de ce rapport.

La plus petite zone de mesure est un spot de diamètre de 300 μm. Cela reste supérieur aux dimensions de l'anneau laser et donc de la zone qui sera chauffée par celui-ci ; les pyromètres ne seront donc pas des instruments qui permettront de caractériser localement l'évolution de température des échantillons. Ils ont étés durant ce travail de thèse principalement utilisés comme instrument de mesure de température en face arrière.

2.3.5.3. Caméra thermique

Le diagnostique principal utilisé pendant cette thèse pour caractériser la thermique des chauffes laser est une caméra themographique (FLIR x6901sc, objectif f = 100 mm, Figure 2.15). Cette caméra est une caméra scientifique haute-performance fonctionnant dans l'infrarouge moyen entre 3 et 5 μm. Ses caractéristiques constructeurs sont indiquées dans le tableau 2.2. Elle est utilisée avec un angle d'incidence à 45° pour visualiser l'échantillon. La fréquence d'acquisition peut-être augmentée jusqu'à 3000 Hz en réduisant le nombre de pixels utilisés (mode fenêtrage). La caméra est dotée d'une roue

à filtre permettant de placer un filtre à densité neutre (Neutral Density - ND) devant le capteur ; cela permet d'élargir la gamme de température que l'on peut mesurer avec la caméra. Néanmoins si la caméra peut mesurer entre 0 et 3000 °C, l'utilisation du filtre ND3 (densité optique égale à 3) ne permet par exemple de ne mesurer que dans la gamme 500-3000 °C.

Modèle	x6901sc-MWIR
Gamme de température totale (°C)	-20-3000
Gamme sans filtre à densité neutre	-20-350
Gamme avec le ND2	250-1500
Gamme avec le ND3	500-3000
Fréquence full frame	180 Hz
Fréquence Maximale (mode fenêtrage)	3000 Hz
Définition	640*512 pixels
Taille des pixels	478 μm
Plage spectrale de fonctionnement	3,0-5,0 µm
Type de détecteur	Antimoniure d'indium (InSb)
Incertitude	1 °C ou 1%

TABLEAU 2.2. – Caractéristiques constructeur de la caméra thermique utilisée.

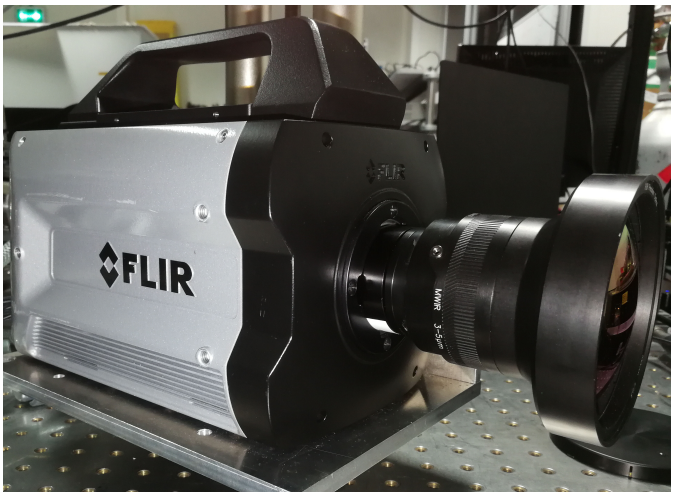


FIGURE 2.15. – Caméra FLIR avec la bague allonge 0,75 pouce et l'objectif de focale 100 mm

L'utilisation d'une bague allonge placée entre l'objectif et le capteur permet d'augmenter le grandissement du système d'imagerie. Nous utilisons dans ce travail une bague allonge de 0,75 pouces (0,254 cm). La résolution spatiale est alors de 85 μm par pixels pour un champ de vue de 54x43 mm. La contrepartie est un effet de vignettage (assombrissement) qui fausse la mesure lorsque que l'on s'éloigne du centre du capteur. Cette taille de bague allonge est un compromis entre la recherche d'une meilleure résolution d'une part et la nécessite de limiter l'effet de vignettage afin de conserver la justesse de la mesure d'autre part. Le constructeur indique qu'avec la bague de 0,75 pouce, une erreur de mesure est présente au delà de 30 pixels du centre du capteur pour atteindre 5% d'erreur à une distance de 75 pixels du centre du capteur. Dans notre cas les disques d'UO_2 font 8,2 mm de diamètre pour une taille de pixels de 85 μm aussi l'effet de vignettage n'est pas présent dans notre configuration si l'on centre l'échantillon sur le capteur.

Un hublot en fluorure de baryum (BaF_2) est utilisé pour l'imagerie infrarouge. Le BaF_2 possède d'excellentes caractéristiques optiques dans la bande spectrale de la caméra avec une transmission

autour de 90 % entre 0,3 et 10 μm. La transmission du hublot utilisé a été caractérisée en mesurant la température d'un corps noir (Newport 67033) sans et avec hublot en considérant une émissivité de 0,99. Le facteur de transmission a ensuite été ajusté manuellement dans le logiciel de la caméra thermique afin que la température mesurée avec hublot corresponde à la température mesurée sans hublot. Un facteur de transmission de 0,92 a ainsi été obtenu, ce qui correspond à la valeur attendue.

Caractérisation des performances optiques de la caméra infrarouge

Une caractérisation des performances optiques du système de mesure infrarouge (i.e, objectif + capteur de la caméra) a été effectuée. En effet un système réel n'est jamais parfait et si l'on image, par exemple, un point source de dimension infinitésimale, l'on va observer un "étalement" du point image. Cet "étalement" est complètement caractérisé par la fonction d'étalement du point (Point Spread Function (PSF) - Point Spread Function) que l'on peut assimiler à la réponse impulsionnelle du système optique. On peut considérer qu'un objet source est constitué d'une multitude de points sources de très petites dimensions, l'objet image correspond alors au produit de convolution de l'objet source et de la PSF comme illustré sur la Figure 2.16.

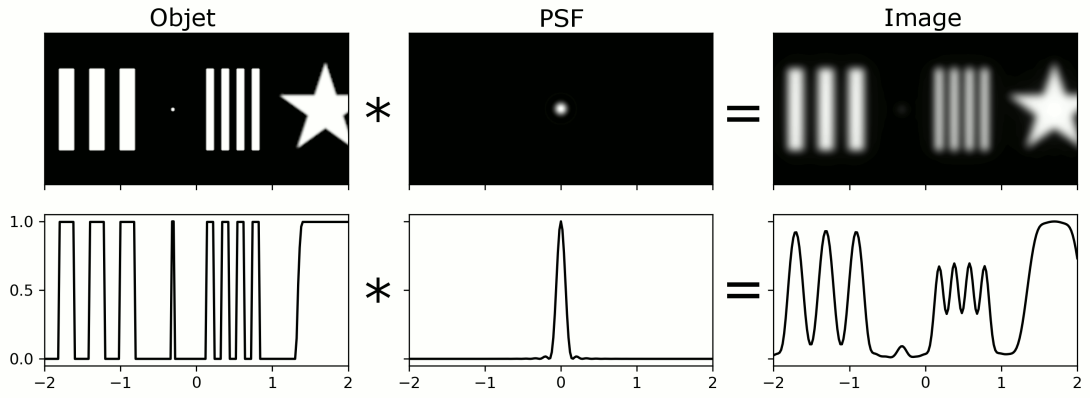


FIGURE 2.16. – Points de l'objet (à gauche) et PSF d'un système optique (centre). L'on voit que dans le plan image du système, l'objet subit un étalement (à droite).

On définit aussi la fonction d'étalement de la ligne (Line Spread Function (LSF) - Line Spread Function) comme la réponse du système optique à une ligne d'épaisseur infinitésimale assimilable à un dirac 1D. La réponse d'un système optique à un bord très contrasté est quant à elle appelée fonction d'étalement du bord (Edge Spread Function (ESF) - Edge Spread Function).

La LSF est la dérivée de l'ESF et si l'on considère le système optique comme étant rotationellement invariant, la PSF est la transformée d'Abel inverse de la LSF [105]. La transformée d'Abel est la projection 2D d'un objet 3D présentant une symétrie cylindrique ; ce qui correspond bien à la relation entre la LSF et la PSF.

Avec la transformée d'Abel :

$$F(y) = 2\int_y^\infty \frac{f(r)r}{\sqrt{r^2-y^2}}dr \tag{2.7}$$

Et son inverse :

$$f(r) = -\frac{1}{\pi}\int_r^\infty \frac{dF}{dy}\frac{dy}{\sqrt{y^2-r^2}} \tag{2.8}$$

On comprend bien que lorsqu'on image un objet, par exemple avec une caméra thermique durant une chauffe laser, l'image du rayonnement restituée par la caméra thermique à partir de laquelle on construit une image en température ne correspond pas strictement au rayonnement émis par l'objet tant spatialement qu'en amplitude mais correspond au rayonnement émis par l'objet convolué par la PSF. Il est donc important pour la suite de la thèse de connaître les performances du principal outil de mesure thermique utilisé. A noter que la transformée de Fourier de la PSF est la Fonction de Transfert

de Modulation du système (Fonction de Transfert de Modulation (FTM)). La FTM décrit la capacité d'un système optique à restituer le contraste à une fréquence spatiale donnée de l'objet vers l'image et est une mesure largement utilisée pour caractériser les performances d'un système optique.

Si idéalement on voulait mesurer directement la PSF, il est dans les faits difficile de créer un point source de dimensions inférieures à celles d'un pixel tout en ayant suffisamment d'intensité pour être au delà de la limite de détection de l'appareil. C'est pourquoi nous avons mesuré dans un premier temps l'ESF au travers du hublot en BaF_2 comme montré sur la Figure 2.17. Le bord contrasté est obtenu en plaçant une lame de cutter devant le corps noir. Les distances caméra-hublot et hublot-lame de rasoir correspondent aux distances utilisées lors de l'utilisation de la caméra sur échantillon d'UO_2. Cette technique de mesure de l'ESF est fréquemment utilisée pour ensuite déterminer la FTM d'un système optique [106-108]. L'image de température obtenue est ensuite normalisée entre 0 et 1, elle est montrée sur la Figure 2.18. Pour obtenir cette mesure, le corps noir avait une température de consigne de 50 °C et la caméra opérait dans la gamme 10-90 °C.

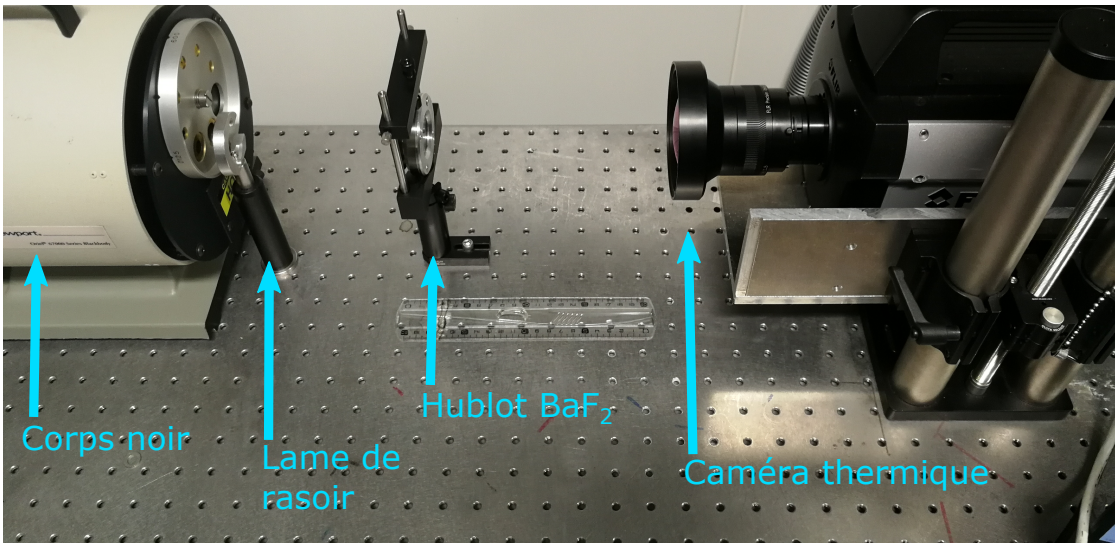


FIGURE 2.17. – Configuration expérimentale pour la mesure de l'ESF de la caméra infrarouge

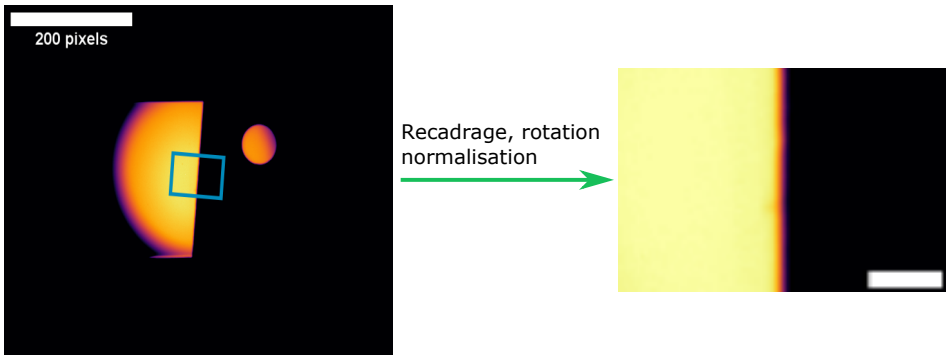


FIGURE 2.18. – A gauche : image de température obtenue en imageant la lame de cutter. A droite : image de l'ESF une fois normalisée. La barre d'échelle fait 20 pixels

Dans un premier temps on peut tracer l'ESF et sa dérivée qui est donc la LSF. On peut voir sur la Figure 2.19 l'ESF et la LSF mesurées pour chaque ligne de pixels et les deux fonctions moyennes obtenues. On

peut voir que l'étalement a une largeur d'environ 10 pixels avec une queue persistante dans le domaine du niveau de signal bas. On attribue cette queue persistante au bruit de mesure ou bien au fait que la lame de cutter ne soit pas totalement à une température homogène. Ce phénomène ne semble pas observable du côté du corps noir. En revanche on voit bien que la transition entre le niveau haut et le niveau bas se fait sur une dizaine de pixels, ce qui montre bien un effet d'étalement important.

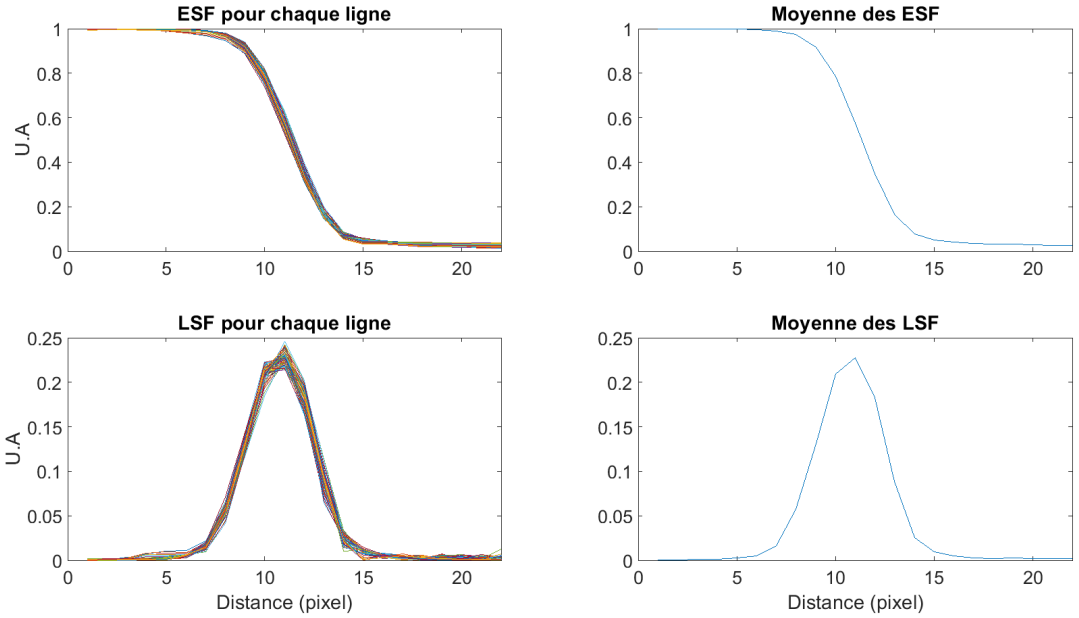


FIGURE 2.19. – ESF et LSF obtenues à partir de l'image de température donnée par la caméra

Une approche intéressante pour estimer la PSF depuis l'ESF est de considérer l'ESF comme une combinaison linéaire de fonctions connues, comme des fonctions erreur ou arc tangente [109-111]. La LSF étant la dérivée de l'ESF, on peut facilement exprimer la LSF comme la dérivée de ces fonctions. De même, si la transformée d'Abel inverse de ces fonctions est connue il est aisé d'exprimer la PSF comme une combinaison linéaire de fonctions connues. La procédure permettant de passer de l'ESF à la PSF est détaillée en Annexe B. La PSF ainsi estimée est exprimée avec une fonction gaussienne simple et est visible Figure 2.20. Sa largeur à $1/e^2$ est de 7 pixels.

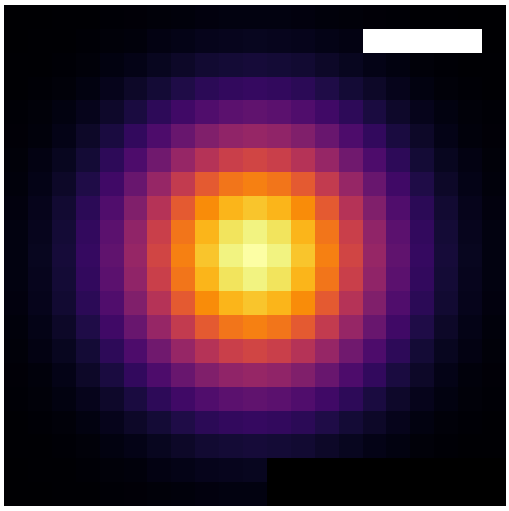


FIGURE 2.20. – Estimation de la PSF calculée. La barre d'échelle a une largeur de 5 pixels.

En théorie il est possible, à partir de la PSF, de déconvoluer l'image objet obtenue afin de la débruiter jusqu'à potentiellement restaurer le signal d'origine avant qu'il n'ait été dégradé par le système optique utilisé pour l'observation. Nous allons donc essayer de restaurer l'image du bord contrasté que nous avons utilisé jusqu'ici. Cette déconvolution se fait grâce à des algorithmes plus ou moins avancés, une introduction à certains de ces algorithme est donnée en [112]. L'algorithme utilisé pour la déconvolution est l'algorithme de Richardson-Lucy (RL) qui calcule de manière itérative, avec comme donnée d'entrée une image bruitée et une estimation de la PSF [113, 114], une image débruitée. Le nombre d'itérations de l'algorithme est un paramètre choisi par l'utilisateur. Les algorithmes de déconvolution font souvent apparaître du signal parasite dans l'image débruitée avec l'apparition d'artefacts plus ou moins prononcés. Un des effets facilement reconnaissable est l'apparition de "ringing artifacts" induits par l'utilisation de la transformée de Fourier discrète aux endroits de l'image qui présentent un saut en intensité (ie., sur l'edge et les bords de l'image).

Le résultat de l'utilisation de RL pour 1,2 5 ou 10 itérations sur l'image de l'ESF est visible Figure 2.21. On peut voir que l'ESF semble être de mieux en mieux reconstituée à mesure que l'on augmente le nombre d'itérations (i.e., la transition entre l'état haut et l'état bas est de plus en plus resseré spatialement) mais il est en de même pour les artefacts induits par l'algorithme. En conclusion il semblerait que la PSF que nous venons d'estimer permet bien d'améliorer la netteté d'une image simple comme celle d'un bord mais induit forcément des artefacts lorsqu'elle est utilisée avec un algorithme de déconvolution classiquement utilisé. Ce sujet sera à nouveau abordé dans ce manuscrit lors de l'analyse des résultats obtenus avec la caméra infrarouge lors des chauffes laser car comme nous venons de le voir, le système de mesure infrarouge que nous utilisons induit une certaine aberration qu'il est important de prendre en compte.

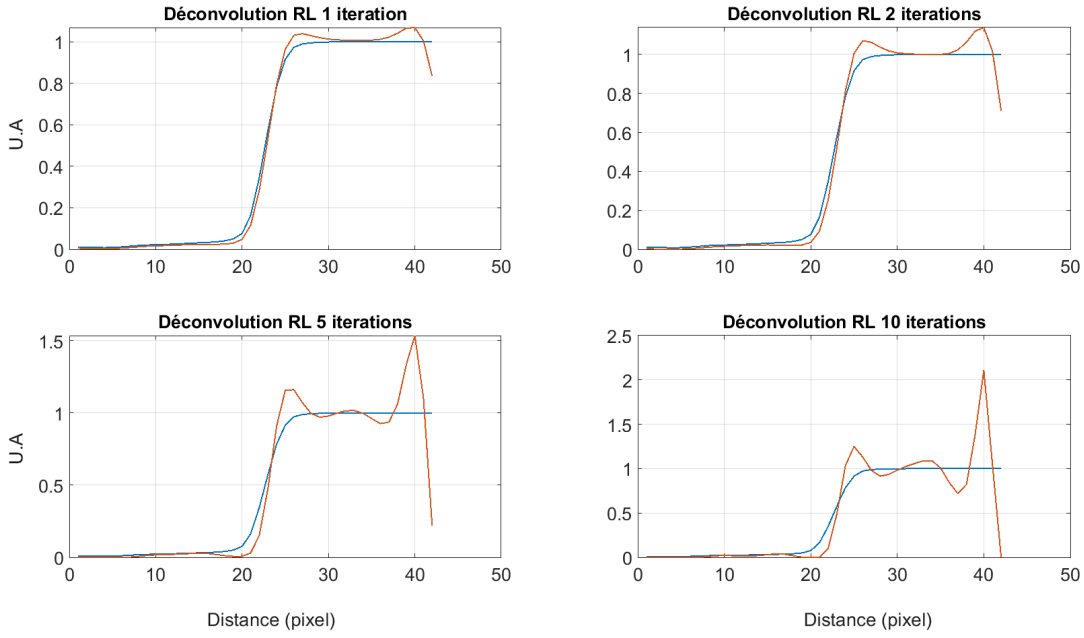


FIGURE 2.21. – ESF deconvoluée après 1, 2, 5 et 10 itérations avec l'algorithme de Richardson-Lucy et la PSF estimée précédemment.

2.3.6. Configuration d'expérimentation finale

Dans cette section nous montrons brièvement le banc d'expérimentation en configuration finale, c'est à dire avec tous les dispositifs de visualisation et les trajets des faisceaux. Cette configuration est visible sur la Figure 2.22. Elle permet de chauffer une face de l'échantillon avec le faisceau annulaire et le faisceau homogène en même temps. La réponse mécanique et thermique de l'échantillon est caractérisée en temps réel avec le dispositif de visualisation visible et la caméra infrarouge. L'échantillon

peut-être porté jusqu'à une température initiale choisie par la diode laser qui chauffe par la face arrière de l'échantillon. La température en face arrière peut éventuellement être déterminée par un pyromètre. La quasi-totalité des hublots de la chambre sont utilisés de cette façon.

Le hublot utilisé pour la caméra thermique est en BaF_2 comme expliqué auparavant, hublot qui a une transmission de 0,92 dans la gamme d'utilisation de la caméra. Le hublot utilisé pour l'éclairage bleu est en verre avec traitement anti-reflet (AR) dans la gamme 350-700 nm. D'après le constructeur sa réflexion à 450 nm est de l'ordre de 0,25 %. Le hublot utilisé pour la diode de préchauffe est en verre avec traitement AR dans la gamme 650 - 1050 nm. Son coefficient de réflexion à 808 nm est aussi de l'ordre de 0,25 %. Le hublot utilisé pour la face avant de l'échantillon "travaille" à 2 longueurs d'onde : la longueur d'onde du laser de puissance (1070 nm) et la longueur d'onde d'éclairage visible (450 nm). Le traitement AR utilisé pour ce hublot est là encore le traitement dans la gamme 650 - 1050 nm. Son coefficient de réflexion à 1070 nm reste sous les 0,5 % mais celui à 450 nm est plus élevé et a été mesuré sur le banc de spectro-photométrie développé pour cette thèse et qui sera présenté dans le chapitre 3 ; sa valeur est de 15 %. Un hublot similaire est utilisé pour le hublot à travers lequel passe le faisceau homogène qui a aussi une longueur d'onde de 1070 nm.

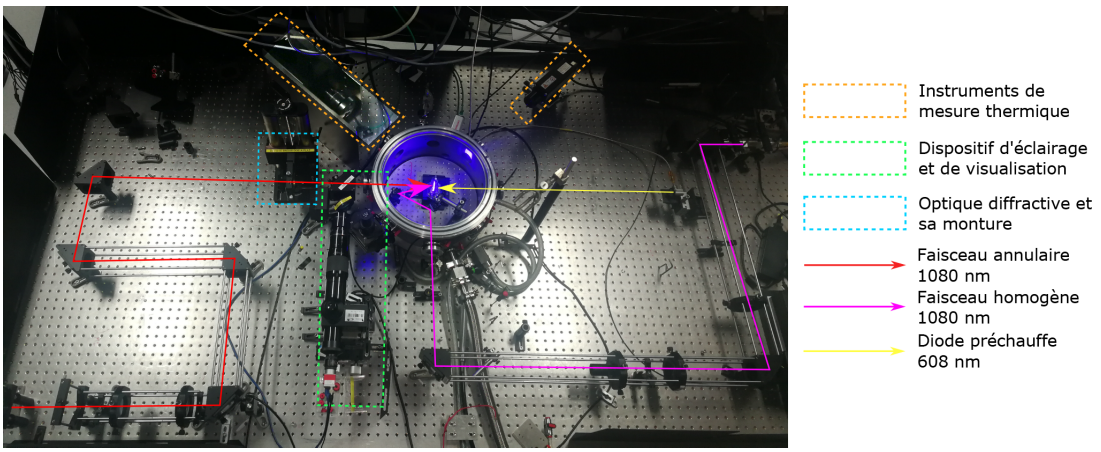


FIGURE 2.22. – Photo du montage expérimental en configuration double faisceaux.

Enfin, l'impulsion laser et le déclenchement des instruments de mesure (caméra infrarouge et caméra visible) sont synchronisés au moyen d'un générateur de délais (Berkeley Nucleonics - Model 577). En mesurant le signal d'une photodiode capable de détecter l'impulsion laser et les différents signaux du générateur de délais à l'oscilloscope, on peut s'assurer que le pulse est bien synchronisé aux signaux de déclenchement des caméras.

2.4. Conclusion

Nous avons dans ce chapitre présenté la configuration expérimentale retenue avec ses différents éléments : chambre expérimentale, instrumentation, portes échantillons, lasers. Le concept de la chauffe retenu consiste à chauffer directement une face de l'échantillon avec des lasers aux profils d'intensités particuliers (annulaire ou homogène). Les montages ou éléments optiques utilisés pour obtenir ces profils ainsi que la caractérisation de ceux-ci a été présenté.

La réponse thermique et mécanique de l'échantillon aux impulsions laser que nous allons générer est caractérisée majoritairement grâce à deux instruments : une caméra infrarouge haute-performance et un macroscope. Le système d'éclairage de ce dernier en lumière bleue à 450 nm couplé à un filtre basse-bande a été pensé pour filtrer au maximum les réflexions parasites (sur le saphir du porte-échantillon par exemple) ainsi que le rayonnement thermique de l'échantillon.

Nous avons particulièrement attiré l'attention sur les performances et la résolution de la caméra infrarouge et avons mis en exergue en quoi une connaissance des limites de ce système est essentiel quand on s'intéresse à caractériser des effets thermiques sur de petites zones de l'image.

Enfin nous avons présenté le banc optique dans sa configuration d'expérimentation finale avec tous les différents éléments abordés pendant le chapitre. Ce banc doit permettre de reproduire un transitoire thermique proche de celui d'un RIA tout en caractérisant en temps réel la réponse thermique et mécanique de l'échantillon.

3. Étude de l'interaction laser-UO_2

Sommaire

3.1. Introduction . . . 66
3.2. Constantes optiques du dioxyde d'uranium . . . 67
3.3. Méthode de détermination des propriétés optiques . . . 71
3.3.1. Spectro-ellipsométrie . . . 71
3.3.2. Spectro-photométrie . . . 71
3.4. Échantillon et caractérisations optiques . . . 74
3.4.1. Préparation des lames minces . . . 74
3.4.2. Caractérisation de l'état de surface . . . 76
3.4.3. Mesures de réflectance et de transmittance . . . 76
3.5. Propagation de la lumière dans les échantillons de type "lame mince" . . . 78
3.5.1. Quelques éléments de théorie . . . 78
3.5.2. Modèle analytique . . . 80
3.5.3. Résultats . . . 82
3.6. Conclusion . . . 84

3.1. Introduction

Nous venons de décrire la plateforme CHAUCOLASE dédiée au chauffage laser que nous allons mettre à profit pour induire des transitoires thermiques représentatifs d'un RIA sur des disques d'UO_2. Cette technique de chauffage laser repose donc sur l'absorption de la lumière qui entraîne une augmentation de la température du matériau. Il est donc important dans le cadre de ce travail de caractériser l'absorption du faisceau laser par notre matériau.

Soit l'équation de Helmholtz pour le champ électrique (ou magnétique) d'une onde sinusoïdale, elle-même dérivée des équations de Maxwell. Le champ électrique **E** est solution de cette équation :

$$\Delta E(r,\omega) + \epsilon_r(\omega)\mu_r(\omega)\frac{\omega^2}{c^2}E(r,\omega) = 0 \tag{3.1}$$

Avec r la position (x,y,z), $E(r,\omega)$ le champ électrique d'une onde électromagnétique,ω la pulsation en rad.s^{-1}, μ_r la perméabilité (relative) magnétique en et ϵ_r la permittivité diélectrique (relative) du matériau. Dans notre cas le matériau est non magnétique et donc $\mu_r = 1$. La permittivité diélectrique d'un matériau est la grandeur physique qui décrit la réponse d'un matériau lorsque soumis à un champ électrique. On peut aussi considérer la grandeur $\chi_e(\omega) = \epsilon_r(\omega) - 1$ qui est la susceptibilité électrique du matériau. La susceptibilité relie la polarisation **P** [1] au champ **E**.

De manière générale, on peut relier l'indice de réfraction d'un matériau à sa permittivité et perméabilité par la relation suivante :

$$n^2 = \epsilon_r\mu_r \tag{3.2}$$

n est communément utilisé en otique (loi de Snell-Descartes par exemple) quand ϵ_r et μ_r interviennent dans les équations de Maxwell.
La permittivité relative est une valeur complexe que l'on écrira :

$$\underline{\epsilon_r} = \epsilon_r^{'} - i\epsilon_r^{''} \tag{3.3}$$

1. Déplacements ou vibrations des charges électriques liées sous l'effet d'un champ électrique

De manière logique l'indice de réfraction est alors lui aussi complexe, que l'on note alors :

$$\underline{n} = n' - in'' = n - ik \tag{3.4}$$

avec k la partie imaginaire de cet indice de réfraction complexe aussi appelé coefficient d'extinction. Si le matériau est non-magnétique et $\mu_r = 1$, on a alors la relation entre $\underline{n}$ et ϵ_r :

$$(n - ik)^2 = \epsilon_r' - i\epsilon_r'' \tag{3.5}$$

Si on considère maintenant l'équation de la propagation d'une onde plane dans un matériau absorbant -solution simple des équations de Maxwell à laquelle on peut assimiler le rayonnement laser-, il est facile de faire apparaître le terme de déphasage d'une part et le terme d'atténuation d'autre part.

$$E(\tau, l) = E_0 e^{-i\omega\tau} e^{i\zeta l} = E_0 . e^{-i\omega\tau} . e^{i\frac{2\pi}{\lambda}n'l} . e^{-\frac{2\pi}{\lambda}n''l} \tag{3.6}$$

Avec $\zeta = \frac{2\pi}{\lambda}\underline{n}$ le nombre d'onde, E le champ électrique, E_0 l'amplitude initiale de ce champ et l la distance de propagation. L'intensité étant lié au carré de l'amplitude du champ **E**, on peut voir que celle-ci décroit proportionnellement à $\left(e^{-\frac{2\pi n'' l}{\lambda}}\right)^2$. On voit ici clairement apparaître le coefficient d'absorption α en m^{-1} qui vaut $\frac{4\pi n''}{\lambda}$. Tout comme le coefficient d'extinction, ce coefficient est dépendant de la longueur d'onde. La profondeur de pénétration δ_p est alors égale à $\frac{1}{\alpha}$ et correspond à la profondeur à laquelle le flux incident ne vaut plus que $\frac{1}{e}$ fois sa valeur initiale.

Les valeurs de n' et n" d'un matériau ne sont pas mesurables directement et doivent-être déterminées à partir de mesures d'autres quantités qui dépendent de n' et n" : réflectance, transmittance, amplitude et déphasage de mesures ellipsométriques par exemple.

3.2. Constantes optiques du dioxyde d'uranium

Nous allons dans cette section donner une vue d'ensemble des valeurs des constantes optiques (n ou k) de l'UO_2 que l'on peut trouver dans la littérature. Ces valeurs sont récapitulées danss le tableau 3.1 et en Figure 3.5 en fin de section.

La première caractérisation optique de l'UO_2 a été réalisée entre 200 et 800 nm par Ackerman et al en 1959 [115] sur des films minces de 123 à 280 nm d'épaisseurs déposés par évaporation sur un substrat en silice et recuits à 960 °C. Le coefficient d'extinction k a été obtenu par méthode inverse à partir de mesures de transmission de ces films minces. L'utilisation des relations de Kramers-Kronig [2] sur ces coefficients d'extinctions a permis d'obtenir l'indice de réfraction n. Les courbes pour n et k obtenues sont reproduites Figure 3.1. Le coefficient d'extinction obtenu varie d'environ 0,0055 à 650 nm (1,9 eV) jusqu'à un pic à 0,3589 à 320 nm. Une valeur inférieure à 0,002 est estimée à 800 nm (1,5 eV). L'indice de réfraction varie peu, entre 2,29 et 2,53.

Le spectre d'absorption de l'UO_2 mono (ratio Oxyde-Métal entre 1,96 et 2,001) et polycristallin (97,5 % de la densité théorique, ratio OM de 2,001) a été mesuré par J. L Bates en 1963 [116] entre 0,6 et 15 μm (soit de 2 à 0,08 eV). Ce spectre est typique d'un semi-conducteur avec une opacité dans le visible et une transparence dans une large bande de l'IR. Les échantillons ont été obtenus à partir de wafers polis à la main jusqu'à obtenir des épaisseurs comprises entre 30 et 300 μm. Les épaisseurs ont étés mesurées avec une précision de l'ordre du micromètre. La surface finale a été obtenue avec du papier abrasif pour métallographie de grains P600 (taille moyenne des grains 25,8 μm). Les coefficients d'absorption entre 1,5 et 15 μm ont étés obtenus à partir de mesures différentielles de densité optique et de l'épaisseur des deux échantillons considérés. Le spectre du coefficient d'absorption α est reproduit Figure 3.2. L'auteur a observé le début d'une bande d'absorption importante à 2 eV qui est assimilé au bandgap de l'UO_2. Le coefficient d'absorption du mono cristal varie entre un minimum de 6 et un maximum de 57 cm^{-1} à 2,75 et 1,7 µm respectivement. Le coefficient d'absorption n'a pas été déterminé pour le polycristal

2. n et k sont liés par les relations de Kramers-Kronig qui relient les parties imaginaires et réelles de certaines fonctions complexes.

mais l'auteur estime que celui-ci est 10 fois plus élevé dans le cas du polycristal, ce qu'il attribue à la diffusion aux joints de grains.

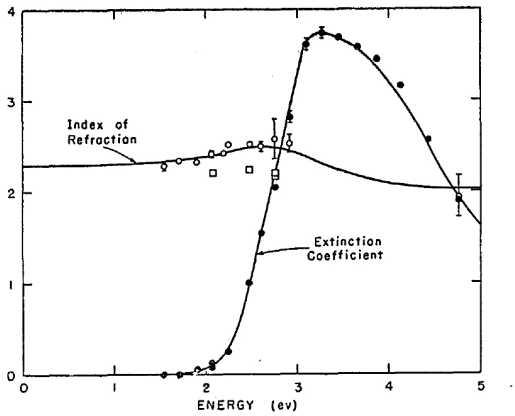


FIGURE 3.1. – Indice de réfraction et coefficient d'extinction obtenus à partir de films minces $d'UO_2$, d'après Ackerman [115]

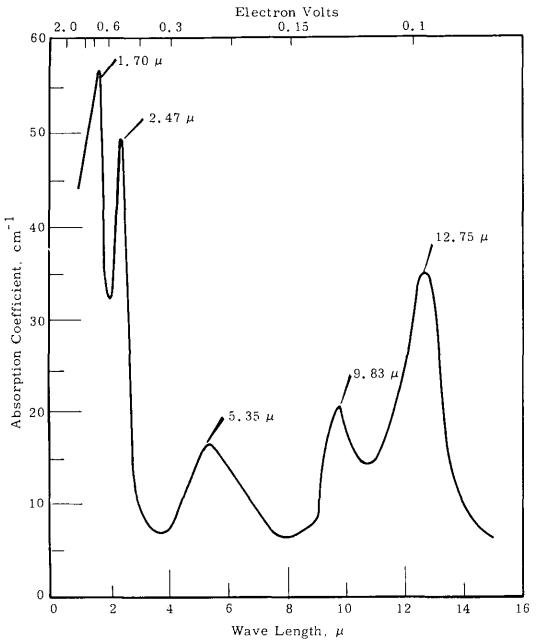


FIGURE 3.2. – Coefficient d'absorption pour de l'UO_2 mono-cristallin. D'après J.L Bates [116]

En 1978, Schoenes [117] a mesuré la réflexion en incidence quasi normale de l'UO_2 monocristallin entre 0,03 et 13 eV. De ces mesures il en a déduit la fonction diélectrique grâce aux relations de Kramers-Kronig et propose une structure électronique correspondante. De plus un échantillon a été poli jusqu'à 75 μm d'épaisseur afin de déterminer le coefficient d'absorption entre 0,1 et 2,1 eV (ie., avant le bandgap). Lors de ces mesures, la réflexion augmente de pratiquement 0 à environ 15 % autour d'1 eV. Le premier maximum est atteint à 2,6 eV suivi de pics consécutifs à 5,5, 8 et 11,7 eV. Au dessus de ce dernier pic, la valeur de réflexion s'abaisse jusqu'à 13 eV, limite de l'étude. Schoenes a ensuite extrapolé sa mesure du coefficient de réflexions jusqu'à 42 eV. Il a ensuite calculé la partie réelle et imaginaire de la fonction diélectrique (ou permittivité) depuis le spectre de réflectance. En dessous

de 2,1 eV, la partie imaginaire a été déduite de la mesure de transmission disponible effectuée sur l'échantillon de 75 μm d'épaisseur. Ce travail est complété en 1980 [118] par une analyse théorique d'un ensemble de mesures expérimentales (réflectance, effet faraday etc.) pour proposer une structure électronique du matériau plus poussée. Ces travaux mettent notamment en évidence une première zone d'absorption importante à partir de 2 eV et une deuxième à partir de 5 eV. A 2 eV, un coefficient d'absorption d'environ 500 cm^{-1} est lisible graphiquement, correspondant à une valeur de coefficient d'extinction de 0,002.
Des travaux similaires ont étés conduits par Naegele et al et sont partiellement reproduits dans le Gmelin Handbook [119].

Bober et al [120] ont déduit l'indice de réfraction complexe d'échantillons d'UO_2 monocristallin à 300 K et de 3100 à 5000 K (ie., au délà de la température de fusion) pour 4 longueurs d'ondes : 458, 514,5, 647 et 725,5 nm. Les valeurs de k sont autours de 0,7 pour les mesures effectuées à l'ambiante.

Griffiths et al [121] ont mesuré le spectre d'absorption optique de l'UO_2 monocristallin stochiométrique de 650 à 2400 nm entre 85 et 1035 K. Ils ont ainsi identifié et résolu la quasi-totalité des pics d'absorption dans le spectre d'étude afin de mieux définir la structure électronique du matériau. La comparaison de leurs résultats avec la littérature disponible à l'époque dont la majeure partie a été abordée précédemment a montré une bonne cohérence globale avec l'ensemble des résultats et des pics d'absorptions précédemment localisés. L'effet de la température sur la localisation de la bande d'absorption autour de 2 eV a aussi été quantifiée. On peut lire graphiquement qu'à 10 000 cm^{-1} (1000 nm), le coefficient d'absorption est d'environ 1000 cm^{-1}.

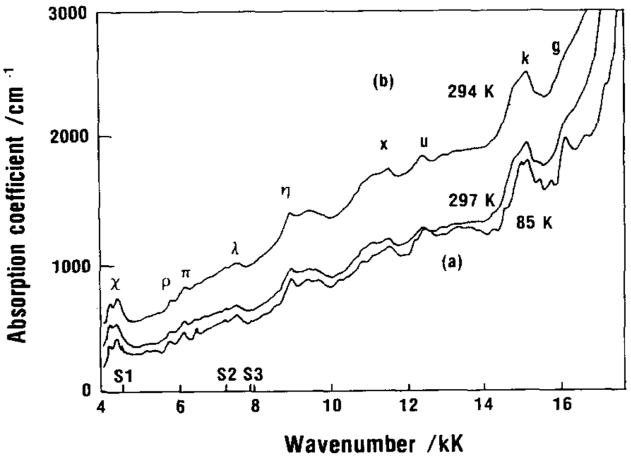


FIGURE 3.3. – Spectre d'absorption de l'UO_2 monocristallin pour différentes températures et conditions de recuit entre 2 500 et 588 nm. D'après Griffiths [121].

Ruello et al [122] ont aussi mesuré le spectre d'absorption optique de l'UO_2 monocristallin stochiométrique dans la région UV-VIS-NIR du spectre (540 - 2500 nm) en fonction de la température (300 - 1173 K) avec un contrôle précis de la pression partielle d'oxygène. Des valeurs du coefficient d'absorption allant de 500 cm^{-1} à 622 nm (2 eV) à 360 cm^{-1} à 1127 nm (1,1 eV) correspondant à des valeurs de k de $2,4.10^{-6}$ et 3.10^{-6} respectivement sont données.

Meek et al [123] ont mesuré le spectre d'absorption de plusieurs films minces d'UO_2 appauvri intrinsèques ou dopés afin d'en déterminer le band-gap. Les films non dopés ont étés déposés sur un substrat en saphir et leur épaisseurs allaient de 160 à 250 nm. Un recuit de ces films minces à 300 °C dans une atmosphère non contrôlée ou à 800 °C dans une atmosphère réductrices à été effectué. Ce dernier traitement semble faire décroître la valeur du band gap. Un band-gap de 2 à 2,5 eV a finalement été déterminé.

Comment nous venons de le voir, les mesures des propriétés optiques de l'UO_2, et notamment de ses constantes optiques, remontent aux années 60. La majorité des études disponibles dans la littérature s'intéressent à un mono-cristal, l'objectif étant bien souvent de déterminer ou d'affiner la connaissance

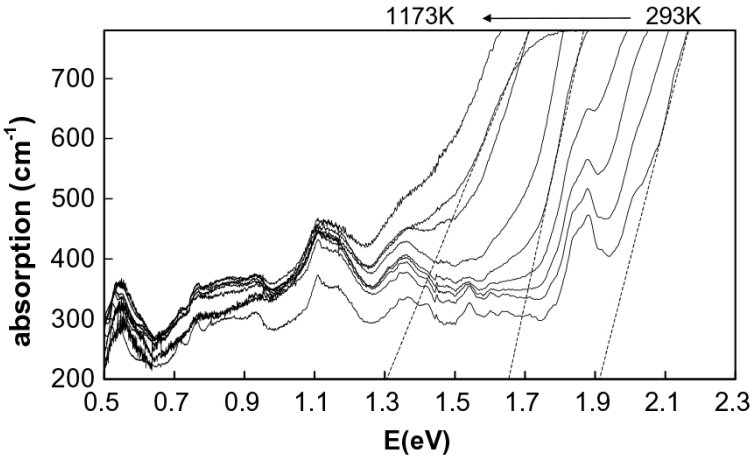


FIGURE 3.4. – Spectre d'absorption de l'UO_2 pour différentes températures entre 2 500 et 540 nm. D'après Ruello [122].

de la structure électronique du matériau. La seule étude portant sur un UO_2 polycristallin est celle de J.L Bates [116] et le coefficient d'absorption n'est pas déterminé. L'auteur estime cependant que le coefficient d'absorption est très supérieur à celui obtenu pour un monocristal ($4,5.10^6\ cm^{-1}$ à 1 500 nm). Le reste des études porte donc sur des échantillons monocristallins avec des valeurs de coefficient d'absorption variables. Toutes ces études mettent cependant en évidence la présence d'une bande d'absorption commençant autour de 2 eV (620 nm) et qui est attribuée au band-gap du matériau. De manière générale les valeurs du coefficient d'extinction présentent une assez grande dispersion entre 10^{-3} et 1 et peu de valeurs existent à la longueur d'onde de notre laser (1080 nm). La partie réelle de l'indice de réfraction semble être autour de 2 avec des valeurs allant de 1,89 et à 2,42. Le tableau 3.1 et la Figure 3.5 récapitulent les valeurs trouvées dans la littérature. Du fait de la dispersion des valeurs du coefficient d'extinction et de la quasi-absence d'étude sur un matériau polycristallin, nous avons décidé d'étudier l'interaction laser-UO_2 sur des échantillons polycristallins préparés depuis les mêmes pastilles depuis lesquelles seront découpés les disques utilisés pour les chauffes lasers. Nous allons présenter dans la suite de ce chapitre le banc de spectro-photométrie développé à cet effet et les mesures obtenues sur UO_2 grâce à ce banc. La méthode de détermination des constantes optiques et les valeurs obtenues seront ensuite présentées.

	λ (nm)	k	α (m^{-1})	δ_p (μm)	n
Ackerman et al [115]	800	0,002	31 415	31,8	2,29
	600	0,009	188 495	5,3	2,42
	500	0,098	2 463 000	0,4	2,52
Bates [116]	1500	0,005	45 000	22	X
Bober et al [120] (300 K)	752,5	0,7	11 690 000	0,08	2,24
(3000 K)	458	0,72	19 755 000	0,05	2,09
(3000 K)	514,5	0,68	16 610 000	0,06	2,04
(3000 K)	647	0,89	17 286 000	0,06	1,89
Griffiths et al [121]	1000	0,008	100 000	10	X
Ruello et al [122]	620	0,0024	49 000	20	X
	1128	0,0032	36 000	28	X
Meek [123]	1239	0,049	500 000	2	X

TABLEAU 3.1. – Tableau récapitulatif des constantes optiques relevées dans la littérature

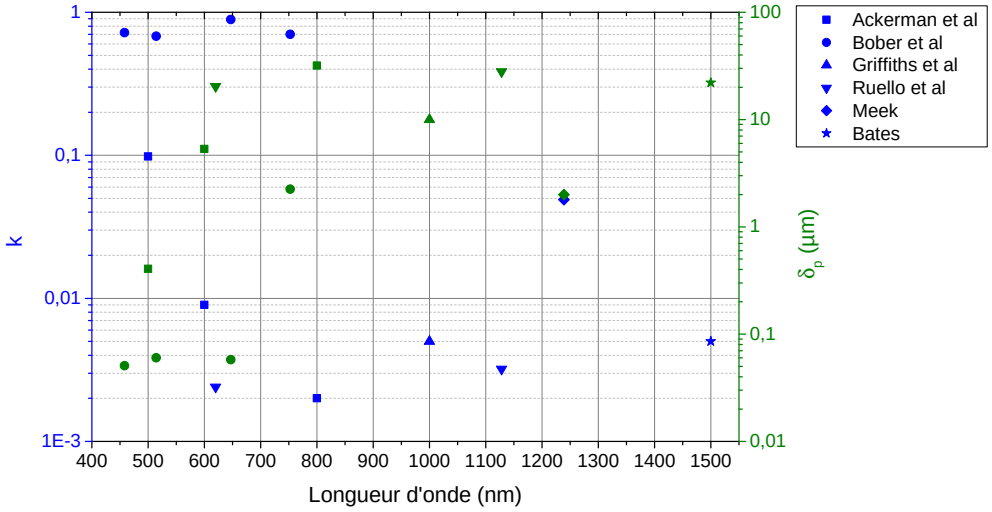


FIGURE 3.5. – Valeurs de k et δ_p disponibles dans la littérature.

3.3. Méthode de détermination des propriétés optiques

Il existe deux grandes méthodes de mesure et d'analyse permettant de déterminer les constantes optiques d'un matériau : l'ellipsométrie et la spéctro-photométrie. C'est cette dernière que nous utiliserons pour étudier les propriétés optiques de l'UO_2.

3.3.1. Spectro-ellipsométrie

La mesure ellipsométrique est une mesure du changement de polarisation d'un faisceau lumineux collimaté polarisé linéairement après réflexion sur la surface d'un échantillon. Plus précisément l'ellipsométrie mesure le ratio (complexe) des composantes s et p de la réflexion :

$$\rho = \frac{r_s}{r_p} = tan\Psi.e^{i\delta} \tag{3.7}$$

Avec r_s la composante transverse électrique de la réflexion et r_p la composante transverse magnétique de la réflexion, $tan\Psi$ étant la composante en amplitude du ratio et δ la composante de phase. Il est possible à partir de Ψ et δ de remonter aux constantes optiques de l'échantillon soit par inversion directe dans certains cas spécifiques (matériau isotrope, homogène et épais) soit en passant par l'utilisation d'un modèle de dispersion adapté au matériau et en procédant à la résolution du problème inverse, le plus souvent par optimisation numérique.

3.3.2. Spectro-photométrie

La spectro-photométrie consiste à mesurer le flux lumineux réfléchi ou transmis par un matériau lorsqu'il interagit avec un faisceau de lumière à un angle d'incidence donné. La spectro-photométrie repose comme son nom l'indique sur l'utilisation d'un spectro-photomètre qui est un appareil capable de mesurer une l'intensité lumineuse en fonction de la longueur d'onde. Ce photomètre mesure les intensités du flux incident I_0, du flux réfléchi I_R et transmis I_T. La réflectance et la transmittance sont alors :

$$R = \frac{I_R}{I_0} \tag{3.8}$$

$$T = \frac{I_T}{I_0} \tag{3.9}$$

L'absorbance du matériau vaut alors $A = 1 - R - T$ (si on néglige le phénomène de diffusion comme nous l'expliciterons par la suite). La réflectance et la transmittance d'un échantillon étant déterminés par son indice optique complexe et par son épaisseur, la spectrophotométrie est une technique qui permet d'estimer les constantes optiques d'un échantillon. Là encore soit par inversion directe si le cas étudié s'y prête soit en passant par l'utilisation d'un modèle de dispersion et en ajustant les courbes expérimentales et calculées.

Banc de spectro-photométrie pour la mesure de réflectance et de transmittance

Un banc de spectro-photométrie pour la mesure de la réflectance et de la transmittance d'échantillons d'UO_2 a été développé. Ce travail de développement expérimental a notament fait l'objet de deux stages de fin d'études que j'ai encadrés. Dans son principe, un tel banc a besoin de trois éléments :

— Une source de lumière polychromatique
— Un collecteur du flux réfléchi ou transmis
— Un spectromètre pour analyser le spectre réfléchi ou transmis en fonction de la longueur d'onde

Dans notre configuration, la source de lumière est un laser super-continuum qui émet de la lumière de manière continue entre 420 et 2400 nm. Un tel laser utilise des phénomènes d'optiques non-linéaires pour élargir le spectre d'un faisceau laser afin d'obtenir un super-continuum. Le laser que nous utilisons utilise un faisceau initial de longueur d'onde 1064 nm.

Le flux réfléchi ou transmis est collecté avec une sphère intégrante (Thorlabs 4P4), c'est à dire une cavité dont l'intérieur est un revêtement hautement diffusant. Lorsqu'un faisceau laser est envoyé dans une telle cavité, il est donc réfléchi avec la même intensité dans toutes les directions. L'intensité lumineuse est donc identique en tout point de la cavité lorsqu'elle est illuminée. Le revêtement de la sphère est du polytétrafluoroéthylène - (C_2F_4) ou PTFE. La sphère intégrante est dotée de plusieurs ports de mesure sur lesquels on peut brancher une fibre optique. Plusieurs ports d'entrée/sortie amovibles permettent de configurer la sphère pour faire des mesures de transmittance ou de reflectance.

Les mesures de transmittance s'effectuent avec une seule entrée sur la sphère. L'échantillon est alors placé devant cette ouverture et est illuminé. Le flux transmis va directement dans la sphère dans laquelle il est diffusé et collecté au moyen de fibres optiques fixées sur les ports de mesure. Pour les mesures en réflectance, le faisceau rentre par une première ouverture de la sphère et illumine l'échantillon placé derrière une deuxième ouverture placée de l'autre côté de la sphère. Le flux réfléchi est alors renvoyé à l'intérieur de la sphère. Un schéma de ces deux configurations est visible Figure 3.6. Les mesures de réflectance sont effectuées en relatifs en utilisant la relation entre les intensités lumineuses et la réflectance de deux objets :

$$\frac{\rho_{ref}}{\rho_e} = \frac{\%R_{ref}}{\%R_e} \quad \longleftrightarrow \quad \%R_e = \frac{\rho_e.\%R_{ref}}{\rho_{ref}} \tag{3.10}$$

ρ_{ref} et ρ_e correspondent à l'intensité du flux lumineux mesuré par les spectromètres pour chaque longueur d'onde en U.A pour un échantillon de référence (dans notre cas un miroir argent neuf) et l'objet que l'on souhaite mesuré. $\%R_{ref}$ est la réflectance du miroir de référence qui est connue.

Nous disposons de deux spectromètres reliées à la sphère par deux fibres optiques qui décomposent et analysent le flux en fonction de la longueur d'onde. L'un travaille dans la bande UV-visible-proche infrarouge (Avantes, SensLine Avaspec-ULS2048x64-EVO, bande 200-1150 nm) et l'autre travaille dans le proche infrarouge (Avantes, NIRline AvaSpec-NIR256/512-2.5-HSC-EVO, bande 1000-2500 nm). Une photo du banc complet est visible en Figure 3.7. Le spectromètre fonctionnant dans l'IR n'est pas assez sensible et le rapport signal/bruit de l'appareil est proche de 1 dans notre configuration. De fait et en l'absence d'une source plus puissante, nous n'avons pas travaillé dans l'IR. Durant ce travail nous avons donc étudié les spectres obtenus avec le premier appareil dans la bande 500 - 1100 nm. Sa résolution spectrale est de 9,2 nm.

Le banc a été calibré en réflexion et en transmission par rapport à des échantillons connus. Les éléments optiques étudiés ont étés des miroirs, des filtres et des densités réfléchissantes commerciaux.

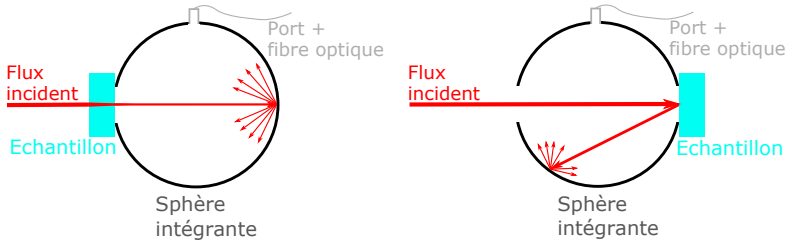


FIGURE 3.6. – A gauche : principe de mesure de la transmittance. A droite : principe de mesure de la reflectance.

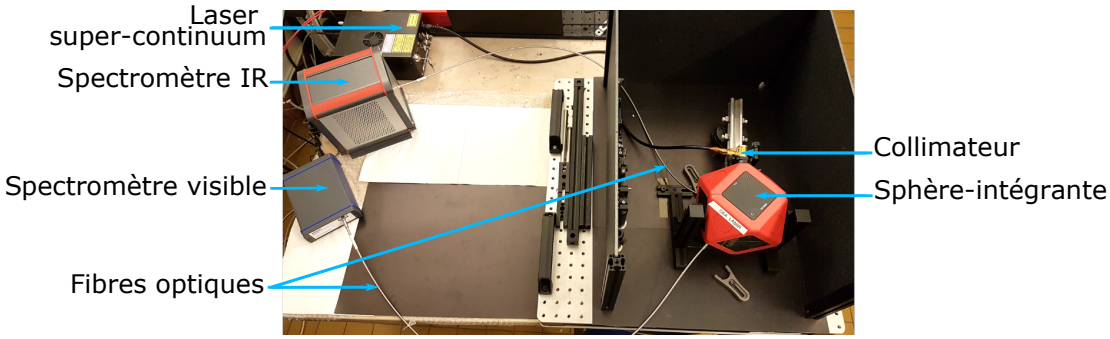


FIGURE 3.7. – Photo du banc expérimental de spectro-photométrie avec les différents appareils

Cette étape de calibration a permis de dégager les paramètres expérimentaux (taille du faisceau, ouverture-numérique et épaisseur de cœur des fibres utilisées, taille des ports de la sphère intégrante, paramétrage des spectromètres, etc...) qui minimisent l'erreur de mesure.

L'utilisation de densités optiques réfléchissantes en plus de miroirs ou de filtres passe-bande permettait d'avoir un nombre important de composants optiques ayant des transmittance et réflectance variable entre 0 et 100% dans le spectre 450-1100 nm. Les mesures obtenues visibles Figures 3.8 et 3.9 ont été comparées aux valeurs annoncées par le constructeur. Le constructeur indique pour ces éléments qu'une petite variation des valeurs réelles (T% et R%) par rapport aux valeurs annoncées était possible. Le résultat de cette étape de calibration montre que l'erreur de mesure en absolue sur ce banc est en dessous de 6% en transmission et de 5% en réflexion. En relatif, l'erreur augmente drastiquement sur les bas niveaux de signal, jusqu'à 30% de différence entre la valeur de référence et la valeur mesurée en transmission pour des transmittances autour de 0,5% et 15% d'écart relatif entre la valeur mesurée et la valeur de référence pour des réflectances en dessous de 20%.

Il faut néanmoins noter que la stabilité du laser super-continuum est de ±2% et bien que l'acquisition est faite sur environ 1 minute, il est probable que la mesure soit impactée.

Composant étudié	T% moyen (450-1100 nm)	R% moyen (450-100 nm)
Densité Optique 0,1	79%	10%
Densité Optique 0,2	63%	12,5%
Densité Optique 0,5	32%	26%
Densité Optique 10	10%	52,5%
Densité Optique 13	5%	57,5%
Densité Optique 20	1%	65%
Miroir Aluminium	X	>90%

TABLEAU 3.2. – Récapitulatif des éléments optiques utilisés pour calibrer le banc de spectro-photométrie

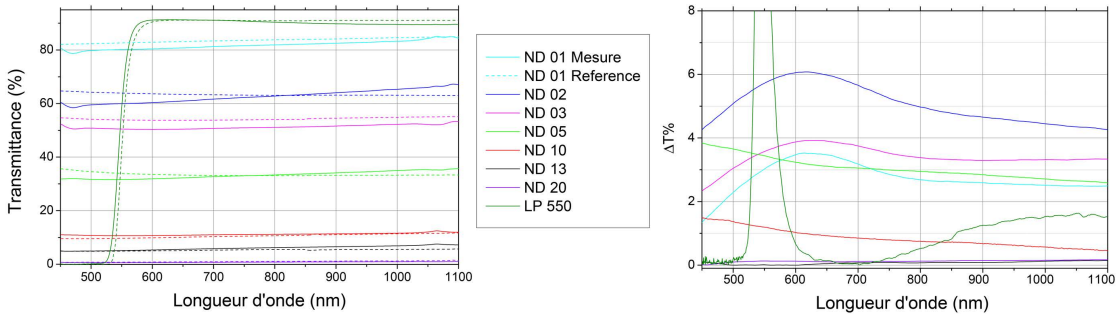


FIGURE 3.8. – A gauche : Transmittances mesurées et courbes de références pour différents éléments optiques de transmittances variables. A droite : différences entre les mesures et les valeurs de référence.

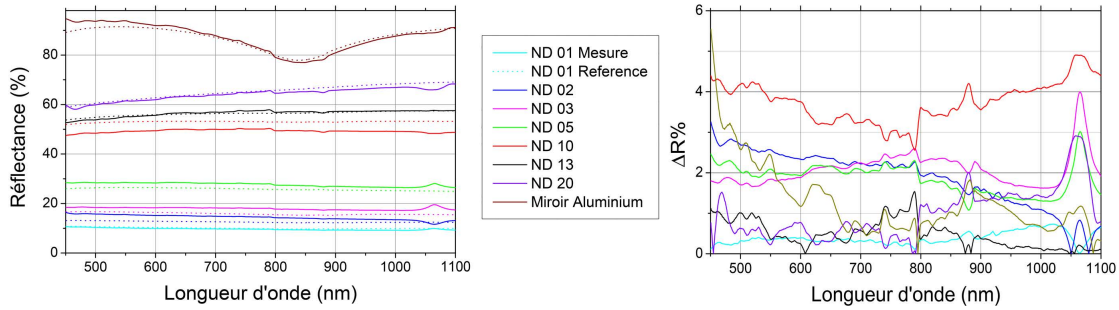


FIGURE 3.9. – A gauche : Réflectances mesurées et courbes de références pour différents éléments optiques de réflectances variables. A droite : différences entre les mesures et les valeurs de référence.

3.4. Échantillon et caractérisations optiques

3.4.1. Préparation des lames minces

Les échantillons utilisés pour la mesure de réflectance et de transmittance doivent être suffisamment fins pour transmettre de la lumière, l'approche retenue se basant sur la mesure de la réflectance et de la transmittance à incidence normale. Nous avons donc mis en place une méthodologie afin de réaliser de tels échantillons. La mise au point du protocole de réalisation d'échantillons a été mis en place à l'Installation Classée pour la Protection de l'Environnement (ICPE) Labo UO_2 du CEA Cadarache.

Ces échantillons fins sont appelés "lames minces" et ont une épaisseur de l'ordre de quelques dizaines de micromètres. Ces lames minces sont obtenues en partant de disques découpés faisant une épaisseur d'environ 1 mm à partir de pastilles d'UO_2. Ces disques sont dans un premier temps polis "miroir" sur un côté avec une polisseuse mécanique; les disques ont alors une épaisseur d'environ 500 μm. Ces disques sont ensuite polis à la main au moyen d'un grinder (Gatans Disc Grinder model 623) montré Figure 3.10. La finesse du papier abrasif utilisé est progressivement augmentée à mesure que l'on enlève de la matière jusqu'à atteindre une épaisseur de lame comprise entre 30-50 μm. La mesure de l'épaisseur des lames minces est réalisée au microscope optique en faisant la mise au point successivement sur le bas et le haut de la lame alors quelle est toujours fixée sur le plot du grinder. La distance parcourue entre les deux positions de mise au point est mesurée grâce à la vis micrométrique du microscope et est prise comme étant l'épaisseur de la lame mince. Bien que l'on se place dans les conditions où la profondeur de champ est la plus petite possible, cette technique reste assez grossière -notamment du fait du jeu sur la vis micrométrique- et l'on considère donc une incertitude de $\pm 10\,\mu m$ sur les épaisseurs des échantillons.

La lame mince ainsi obtenue (visible Figure 3.10, à droite) est particulièrement fragile et est donc enfermé entre deux lames de verre d'épaisseur 175 $\mu m \pm 5$ (Thorlabs CG15KH1). La lame mince d'UO_2 est encollée sur une première lame de verre avec une colle d'indice optique n=1,52 (Norland Products, NOA65) ; l'indice optique de la colle est égal à celui du verre et permet ainsi de combler les porosités de surface et d'avoir une transition d'indice optique UO_2-verre sur toute la surface de l'échantillon, évitant ainsi les réflexions parasites.

La lame de verre utilisée pour la face avant de l'échantillon d'UO_2 (face poli miroir) a été découpée au laser à l'Institut Fresnel pour laisser un trou circulaire permettant un accès direct à l'UO_2 tout en contribuant au maintien de la lame sur la périphérie (Figure 3.11). Le système d'étude ainsi obtenu est donc le système air-UO_2-verre-air (Figure 3.11).

Au total 4 lames minces d'épaisseurs entre 30 et 55 μm ont étés réalisées suivant ce protocole.

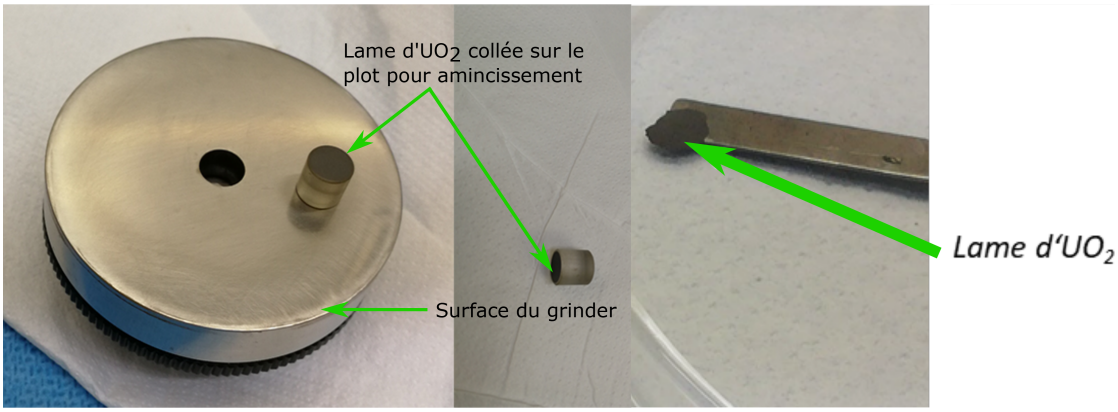


FIGURE 3.10. – A gauche : lame d'uranium collée sur le plot et grinder utilisé pour l'amincissement. A droite : lame d'uranium une fois amincie et décollée du plot.

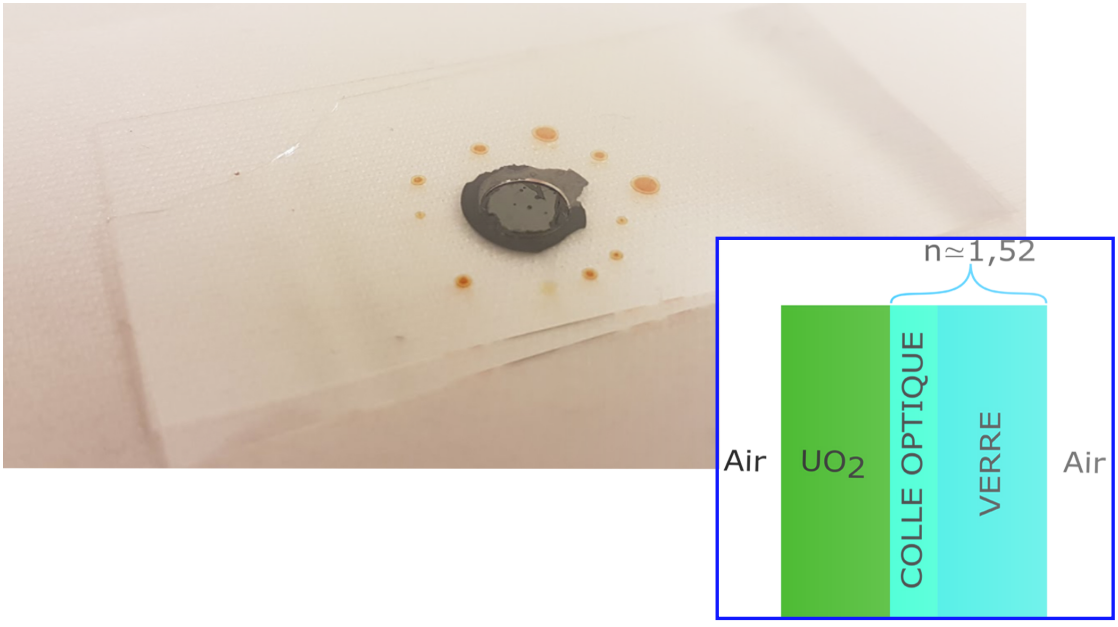


FIGURE 3.11. – Photo de lame mince encollée. Un schéma du système optique ainsi obtenu est visible dans l'encart.

3.4.2. Caractérisation de l'état de surface

L'état de surface des échantillons a été caractérisé par profilométrie optique (Zygo NewView 7300). L'analyse topographique des échantillons par AFM n'était pas envisageable pour des raisons de contamination. La mesure de la rugosité quadratique à partir des données profilométriques a été effectuée sur le centre de l'échantillon sur une surface de 2x2 mm qui correspond plus ou moins au diamètre du faisceau utilisé pour la mesure spectrométrique. Les résultats des mesures profilométriques sont visibles Figures 3.12 et 3.13 et les valeurs de rugosité arithmétique et quadratique sont données dans le Tableau 3.3.

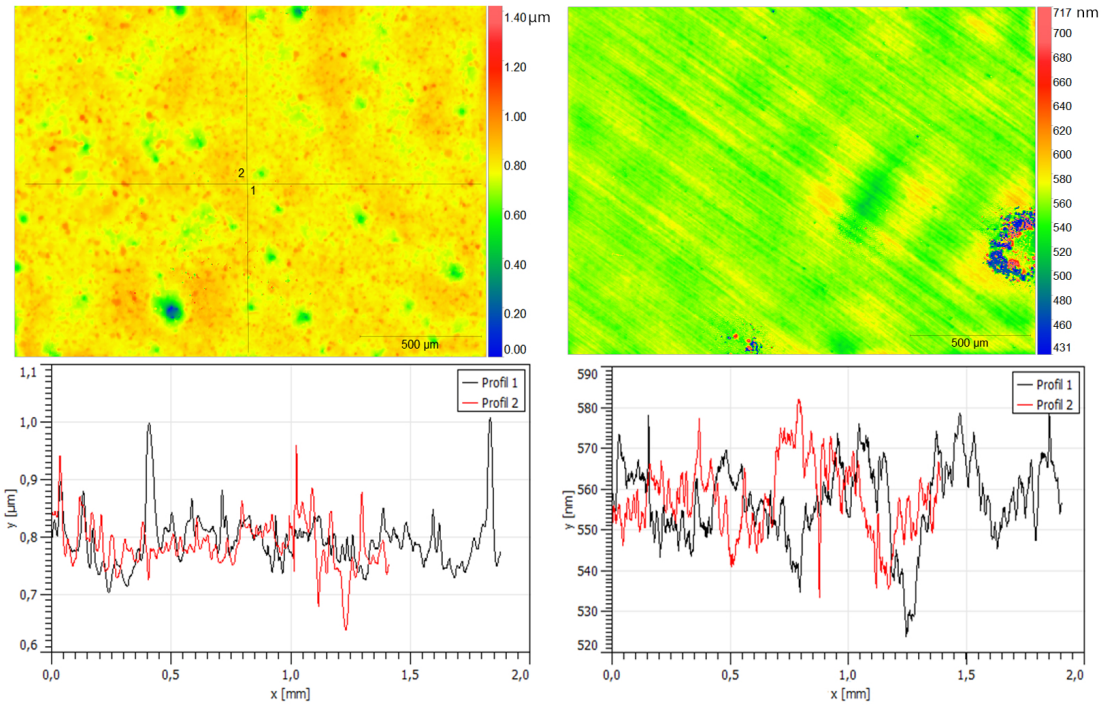


FIGURE 3.12. – Visualisation de la rugosité de surface et profils de rugosités pour l'échantillon 1 (à gauche) et l'échantillon 2 (à droite)

	Epaisseur μm	Ra (nm)	RMS (nm)
Echantillon 1	30	34,81	51,04
Echantillon 2	40	7,31	15,18
Echantillon 3	50	42,80	62,81
Echantillon 4	55	39,33	57,02

TABLEAU 3.3. – Récapitulatif de la caractérisation de l'état de surface des échantillons

3.4.3. Mesures de réflectance et de transmittance

Pour chaque échantillon, 4 mesures ont étés effectuées sur le banc présenté précédemment :

— Une mesure de réflectance totale en face avant notée R_{tot}
— Une mesure de réflectance diffuse notée R_{diff}, effectuée en renvoyant la composante spéculaire de la réflexion à l'extérieur de la sphère par un deuxième port prévu à cet effet (voir Figure 3.14)
— Une mesure de transmittance notée T
— Une mesure de le réflectance totale en face arrière notée R_{arr}

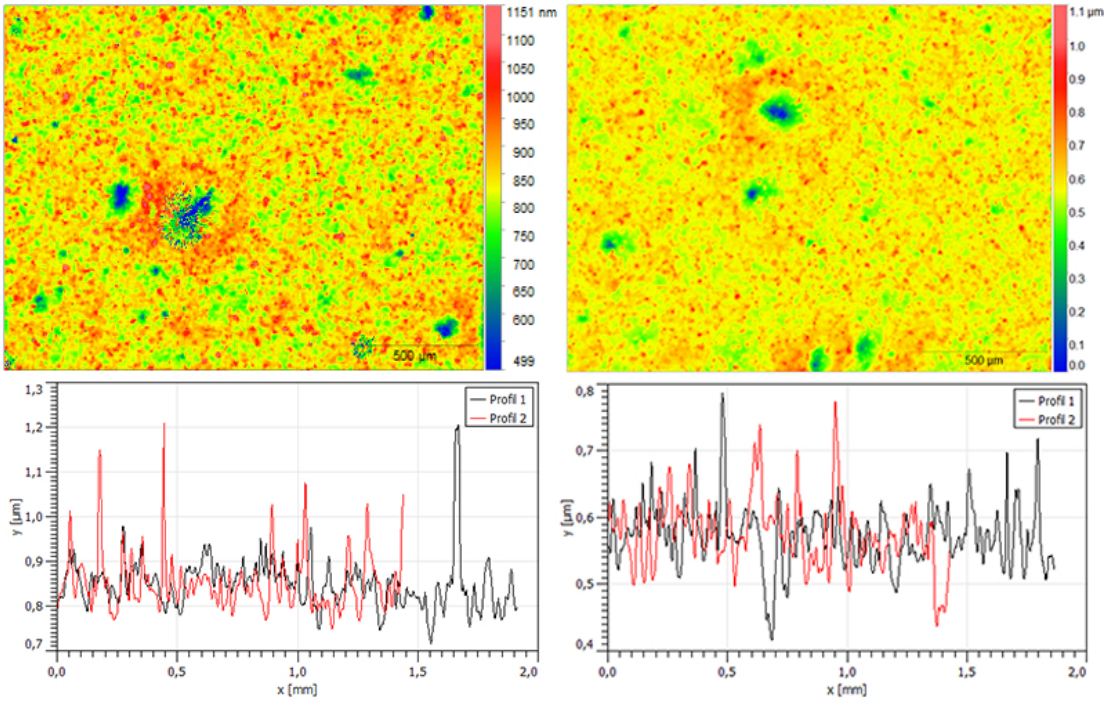


FIGURE 3.13. – Visualisation de la rugosité de surface et profils de rugosités pour l'échantillon 3 (à gauche) et l'échantillon 4 (à droite)

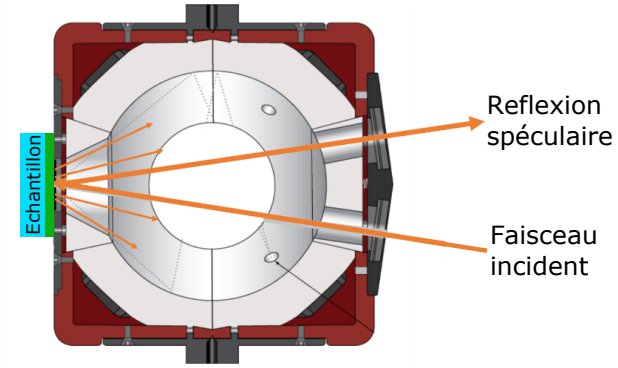


FIGURE 3.14. – Schéma de la configuration utilisée pour mesurer la composante diffuse de la réflectance.

La composante uniquement spéculaire de la réflectance vaut alors $R_{tot} - R_{diff}$. A noter que cette opération induit un biais ; une partie de la composante diffuse étant aussi extraite de la sphère intégrante par le port utilisé pour extraire la composante spéculaire. Les composantes diffuses et spéculaires auront donc tendance à être sous-estimées et sur-estimées, respectivement. Les résultats de ces mesures pour chaque échantillons sont visibles Figure 3.15. Les incertitudes de mesures ont étés propagées sur les mesures de T et de R en prenant pour chaque longueur d'onde la valeur d'incertitude la plus élevée parmis tous les échantillons de référence utilisés pendant la phase de calibration. Nous n'avons pas tracés l'intervalle d'incertitude sur R_{diff} pour ne pas surcharger les graphiques. On peut voir que la réflexion diffuse semble être fortement lié à la rugosité, l'échantillon 2 ayant la rugosité quadratique la plus basse (15,18 nm) et le niveau de réflexion diffuse le plus bas. Pour les trois autres échantillons, la réflectance diffuse est comprise entre 4 et 6%. La réflectance spéculaire semble être bien comprise

entre 16 et 14% pour les échantillons 2, 3 et 4 et décroit fortement avec la longueur d'onde jusqu'à 10% pour l'échantillon 1.

Pour l'échantillon le plus fin (Echantillon 1, ≈30 μm), on observe bien la fin de la bande de transmission à 550 nm (2,25 eV) ce qui correspond assez bien avec la littérature et l'énergie de bande interdite se situant autour de 2 eV. Pour les 4 échantillons, la transmittance baisse bien de manière logique avec l'épaisseur. De manière générale, on observe le comportement classique d'un semi-conducteur avec une forte absorption après le band-gap et vers les plus petites longueurs d'ondes autour de 550 nm, caractérisé sur les graphiques par une baisse de la transmittance jusqu'à 0% et une bande de transmission qui part du visible dans le rouge pour continuer dans le proche infra-rouge.

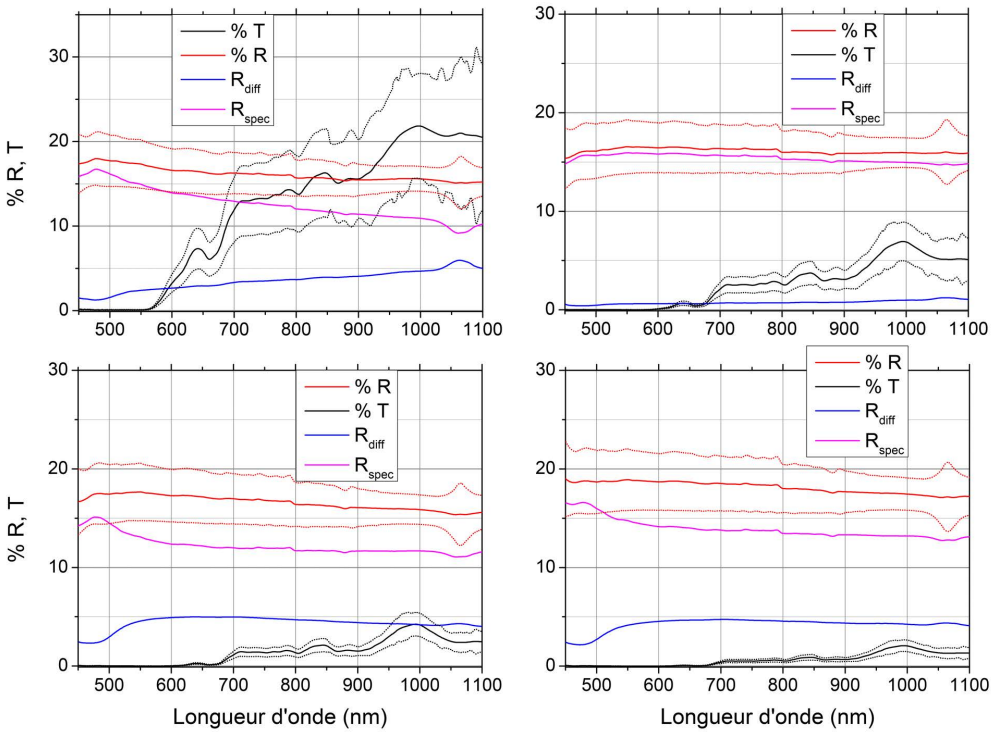


FIGURE 3.15. – De gauche à droite : mesures spectro-photométriques pour les échantillons 1, 2, 3 et 4. Les incertitudes de mesures sont représentées par les courbes en pointillées

3.5. Propagation de la lumière dans les échantillons de type "lame mince"

Pour déterminer la valeur des couples (n;k) il faut d'abord exprimer R, T en fonction de n et k pour chaque longueur d'onde mesurée par les spectromètres. Nous allons d'abord introduire des notions d'optiques décrivant les phénomènes de réflexions, de réfraction et de transmission pouvant survenir à l'interface entre deux milieux d'indices optiques différents. Nous introduirons ensuite les notions de puissances transmises, réfléchies et absorbées pour enfin proposer un modèle analytique simple permettant de traiter en première approche les mesures spectrophotométriques que nous venons de voir.

3.5.1. Quelques éléments de théorie

La deuxième loi de Snell-Descartes indique qu'à une interface entre deux milieux d'indices optiques différents, leurs indices de réfraction n_1 et n_2 sont reliés avec les angles d'incidences θ_1 et de réfraction

θ_2 d'un rayon incident par la relation suivante :

$$n_1 sin\theta_1 = n_2 sin\theta_2 \tag{3.11}$$

On rappelle que pour une onde plane en polarisation rectiligne, on distingue deux états de polarisation : Transverse Magnétique (TM) et Transverse Électrique (TE). Dans le premier cas le champ électrique de l'onde est contenu dans le plan d'incidence de celle-ci quand dans l'autre le champ électrique est orthogonal au plan d'incidence et le champ magnétique est lui compris dans le plan d'incidence.

Les fractions des amplitudes réfléchies ou transmises d'une onde incidente à l'interface entre deux milieux d'indices optiques différents s'appellent coefficients de Fresnel. Ils sont fonction des indices optiques, de l'état de polarisation et des angles d'incidences et de réfractions :

$$r_{TE} = \frac{\underline{n}_1 \cos\theta_1 - \underline{n}_2 \cos\theta_2}{\underline{n}_1 \cos\theta_1 + \underline{n}_2 \cos\theta_2}, \quad r_{TM} = \frac{\underline{n}_2 \cos\theta_1 - \underline{n}_1 \cos\theta_2}{\underline{n}_2 \cos\theta_1 + \underline{n}_1 \cos\theta_2} \tag{3.12}$$

$$t_{TE} = \frac{2\underline{n}_1 \cos\theta_1}{\underline{n}_1 \cos\theta_1 + \underline{n}_2 \cos\theta_2}, \quad t_{TM} = \frac{2\underline{n}_1 \cos\theta_1}{\underline{n}_2 \cos\theta_1 + \underline{n}_1 \cos\theta_2} \tag{3.13}$$

Dans le cas de matériaux ayant un indice de réfraction complexe ces coefficients sont eux aussi complexes.
La fraction réfléchie de la puissance est alors égale au carré du module du coefficient de Fresnel :

$$R_{TM,TE} = \left| r_{TM,TE} \right|^2 \tag{3.14}$$

Dans le cas d'une lumière non polarisée on a alors :

$$R_{eff} = \frac{R_{TM} + R_{TE}}{2} \tag{3.15}$$

Les fractions de puissance transmises sont égales au carré de la valeur absolue du coefficient de Fresnel multiplié par la composante normale (direction de propagation) du vecteur de Poynting[3] :

$$T_{TE} = |t_{TE}|^2 \frac{Re(\underline{n}_2 \cos\theta_2)}{Re(\underline{n}_1 \cos\theta_1)} \tag{3.16}$$

$$T_{TM} = |t_{TM}|^2 \frac{Re(\underline{n}_2^* \cos\theta_2)}{Re(\underline{n}_1 \cos\theta_1)} \tag{3.17}$$

De même, dans le cas d'une lumière non polarisée, on a :

$$T_{eff} = \frac{T_{TM} + T_{TE}}{2} \tag{3.18}$$

Dans le cas où l'incidence est normale ou quasi-normale, il n'y a plus de distinction entre les états de polarisation TE et TM. Les coefficients de réflexion et de transmission s'écrivent alors :

$$r = \frac{\underline{n}_1 - \underline{n}_2}{\underline{n}_1 + \underline{n}_2}, \quad t = \frac{2\underline{n}_1}{\underline{n}_1 + \underline{n}_2} \tag{3.19}$$

et on a logiquement pour les fractions réfléchies et transmises de puissance :

$$R = |r|^2, \quad T = \frac{\underline{n}_2}{\underline{n}_1} |t^2| \tag{3.20}$$

La loi de Beer-Lambert décrit l'absorption dans l'épaisseur d'un matériau absorbant pour une onde

3. Égal au produit du champ électrique E et du champ magnétique H d'une onde électromagnétique. Correspond à la densité de flux directionnel. Son module est donc en $W.m^{-2}$ et sa direction est la direction de propagation de l'onde.

se propageant de manière rectiligne dans la direction de propagation z :

$$I(z) = I_0.exp(-\alpha z) \tag{3.21}$$

avec I_0 l'intensité initiale, z la distance parcourue et α le coefficient d'absorption que nous avons introduit en début de chapitre. Pour une couche absorbante d'épaisseur e, l'intensité initiale d'un rayon incident est donc réduite d'un facteur $exp(-\alpha.e)$ par passage dans celle-ci si on néglige au premier ordre les effets liées aux réflexions multiples aux interfaces.

3.5.2. Modèle analytique

Le modèle analytique que nous allons présenter repose sur les hypothèses de simplifications suivantes :

1. Étant donné le caractère très absorbant et au regard des épaisseurs considérées, on néglige les multiples réflexions secondaires à l'intérieur de l'épaisseur d'UO_2,
2. L'angle d'incidence θ est pris comme égal à 0 (incidence quasi-normale),
3. On suppose un contact parfait à l'interface UO_2-Verre du fait de l'utilisation de la colle d'indice optique,
4. La lumière se propage de manière rectiligne dans le matériau.

Pour l'hypothèse numéro 1, nous pouvons regarder l'intensité d'une onde électromagnétique se propageant de manière rectiligne en fonction de la distance parcourue pour plusieurs valeurs de coefficient d'extinction correspondants à des valeurs de profondeurs de pénétration comprises entre 0,1 et 50 μm à 1080 nm(Figure 3.16). De manière logique, plus le coefficient d'extinction est élevé -et plus la profondeur de pénétration est petite-, plus cette intensité décroit rapidement. Nos échantillons faisant entre 30 et 55 μm, on peut voir que si on considère la plus petite valeur de coefficient d'extinction disponible dans la littérature -qui est celle donnée par Ruello et al [122] et vaut 0,0032 autour de 1100 nm-, l'intensité vaut 13% de sa valeur initiale après 60 μm et 7% après 80 μm ce qui correspond à un aller retour dans l'échantillon 1 et 2 respectivement. Dans le cas où la profondeur de pénétration vaut 20 μm, ces valeurs tombent à 5 et 1,8% respectivement. Aussi si on considère que les valeurs de la littérature encadrent la valeur réelle de k et que l'observation de J.L Bates [116] qui indique que l'absorption est plus important pour un échantillon polycristallin est vraie dans notre cas, on est en droit de penser que l'hypothèse 1 est valable. Nous avons de plus effectué des calculs de transmittance pour une lame d'un matériau d'indice de réfraction complexe $\underline{n} = 2,2 + 0,001\,j$, baignant dans l'air et d'épaisseur 25 μm en négligeant les multiples réflexions secondaires ou en les considérant. La différence de T% était inférieure à 1%.

Pour L'hypothèse 2, le calcul de R avec l'angle d'incidence réel (θ=5°) une différence inférieure au dixième de % entre le cas réel et le cas en considérant θ=0°. Le calcul a été effectué en considérant une lame mince d'épaisseur 25 µm baignant dans l'air. Le calcul a été effectué en considérant la dépendance à la polarisation pour le cas où θ=5°. La différence est là encore inférieure au 1%.

Pour l'hypothèse 3, nous avons choist la colle optique d'indice 1,52 (ie., égal à celui du verre) avec la plus faible viscosité afin de s'assurer que les porosités de surface ou les poches d'air dues à la rugosité à l'interface UO_2-Verre soient comblées. Nous avons de plus vérifié l'indice optique de la colle une fois polymérisée en collant deux lamelles de verre avec. Nous avons ensuite mesuré la réflectance et la transmittance de ce système et avons obtenu des valeurs identiques à celles d'une lame de verre seule.

Pour l'hypothèse 4 nous négligeons donc le phénomène de diffusion susceptible de survenir dans le matériau. La caractérisation des propriétés optiques d'un matériau diffusant est plus complexe comme nous le verrons par la suite. Nous mettrons les résultats qui vont suivre en perspective dans la suite de ce manuscrit en introduisant une étape de simulation de la propagation et de la diffusion d'une onde électro-magnétique dans l'échantillon d'UO_2.

Un schéma de la propagation de la lumière considérée suite à nos différentes hypothèses de simplification et de la signification des différentes fractions de puissance réfléchies ou transmises est donnée Figure 3.17.

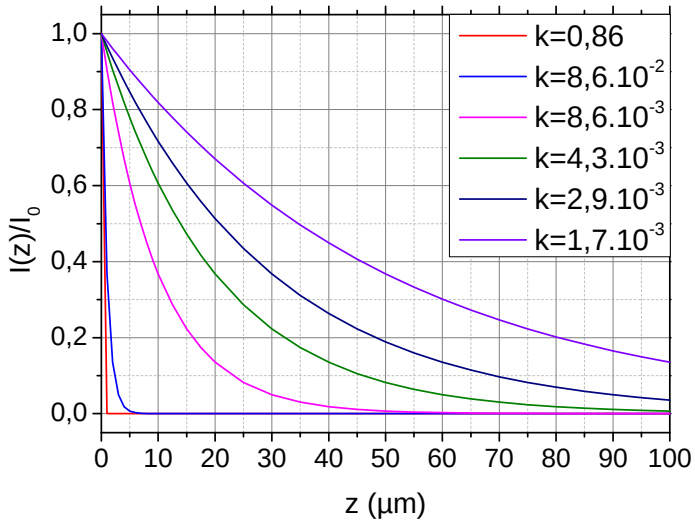


FIGURE 3.16. – Atténuation en fonction du coefficient d'extinction d'après la loi de Beer-Lambert pour différentes valeurs de profondeurs de pénétration.

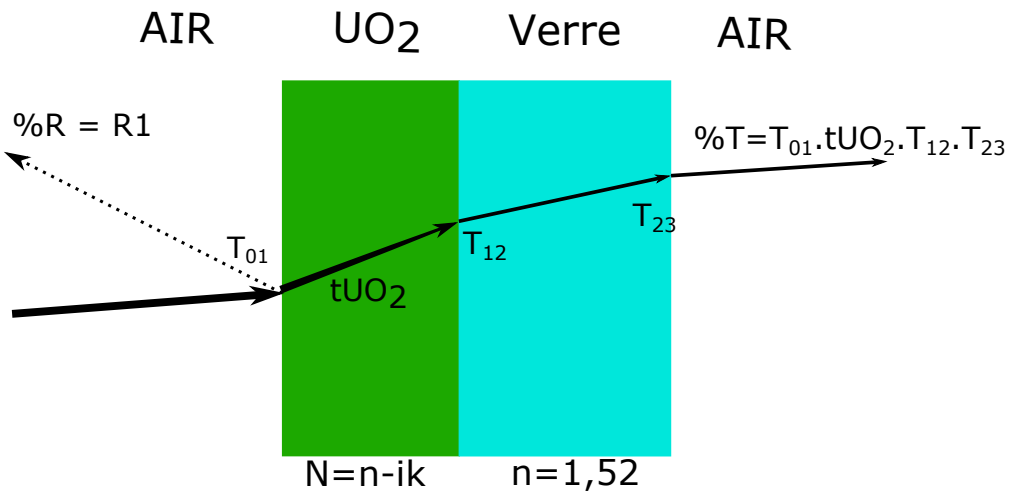


FIGURE 3.17. – Schéma du modèle de propagation considéré.

Nous avons donc la composante spéculaire de la réflectance de l'échantillon :

$$R_{spec} = \frac{(n_{UO_2} - n_{air})^2 + k_{UO_2}^2}{(n_{UO_2} + n_{air})^2 + k_{UO_2}^2} \tag{3.22}$$

avec $n_{air} = 1$.

$$T = T_1.t(UO_2).T_2.T_3 \tag{3.23}$$

Soit T_{01}, T_{12}, T_{23} les fractions de puissance transmises aux interfaces Air-UO_2, UO_2-Verre et Verre-Air, respectivement. Nous avons alors la transmission interne de la couche d'UO_2 :

$$t(UO_2) = \frac{T}{T_{01}.T_{12}.T_{23}} \tag{3.24}$$

Avec la loi de Beer-Lambert dans la couche absorbante, on peut écrire :

$$t(UO_2) = exp(-\alpha.e) \tag{3.25}$$

qui correspond à la fraction transmise après un passage dans l'épaisseur e d'UO_2. On a donc le coefficient d'absorption :

$$\alpha = \frac{-ln(tUO_2)}{e} \tag{3.26}$$

A partir duquel on peut déduire le coefficient d'extinction k :

$$k_{UO_2} = \frac{\alpha\lambda}{4\pi} \tag{3.27}$$

Enfin, n_{UO_2} peut-être estimé à partir de l'équation 3.22 (détails en annexe C).

$$n_{UO_2} = \sqrt{\frac{k_{UO_2}^2 R - k_{UO_2}^2 + R - 1}{R-1} + \frac{(-2R-2)^2}{4(1-R)^2}} - \frac{-2R-2}{2(1-R)} \tag{3.28}$$

3.5.3. Résultats

A partir des mesures présentées et des relations que nous venons de voir, on assimile T à la mesure de transmittance %T et %R à la mesure $R_{spec} = R_{tot} - R_{diff}$. Les valeurs de k obtenues grâce à l'équation 3.27 (Annexe C) sont tracées sur la Figure 3.18. Pour des longueurs d'ondes inférieures comprises entre 450 et 600 nm, la transmittance réelle est bien inférieure à la limite de détection du spectro-photomètre et le signal est donc noyé dans le bruit (voir mesures Figure 3.15) ; les résultats montrés ici sont donc restreints sur la plage 550-1100 nm. Dans le cas de l'échantillon 3 et 4, les plus épais et donc les plus opaques, on peut voir que les valeurs de k en dessous de 600 nm présentent ce décrochage du fait que la mesure de la transmittance sur cet intervalle est noyée dans le bruit. On peut voir que les valeurs obtenues pour les échantillons 2, 3 et 4 sont très proches et dans le même intervalle d'incertitude mais diffèrent de celles obtenues pour l'échantillon 1. Nous n'expliquons pas totalement la différence de comportement marqué entre les trois premiers échantillons et celui-ci. Il est probable qu'une ou plusieurs de nos hypothèses initiales de soient pas valides pour cet échantillon. De plus, cet échantillon est aussi le seul qui présentait un comportement différent des autres sur la mesure de réflexion diffuse avec une décroissance marquée de celle-ci sur toute la gamme mesurée, au contraire des autres échantillons où la mesure de R_{diff} était plutôt constante.

Les profondeurs de pénétrations correspondantes sont visibles Figure 3.19. On peut voir que pour les échantillons 2, 3, 4, une valeur de δ_p comprise entre 22 et 10 μm est obtenue pour $\lambda = 1080$ nm soit un coefficient d'extinction compris entre 0,004 et 0,01. Ces valeurs restent cohérentes avec la littérature au niveau de l'ordre de grandeur, à l'exception des valeurs données par Bober et al [120].

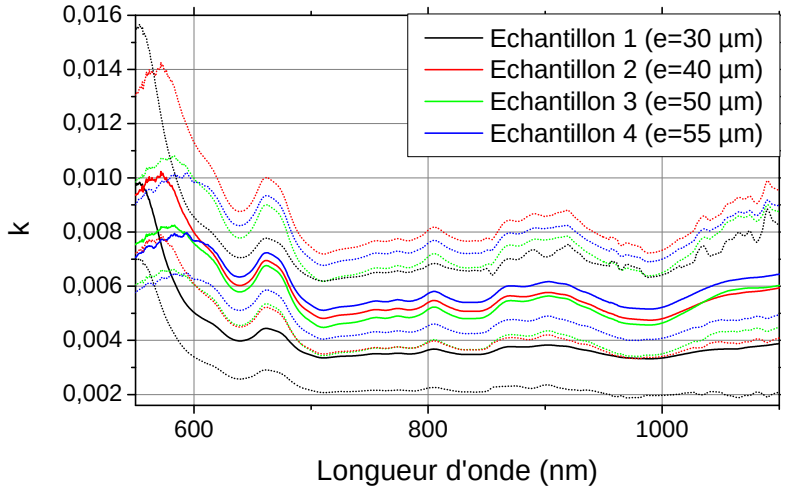


FIGURE 3.18. – Valeurs de k déterminées pour chaque échantillon en fonction de la longueur d'onde

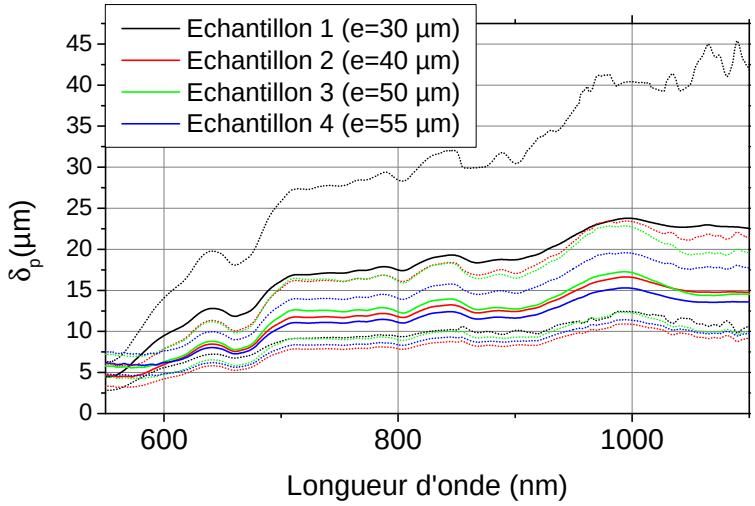


FIGURE 3.19. – Valeurs de δ_p, en μm, déterminées pour chaque échantillon en fonction de la longueur d'onde

Les valeurs de n obtenues grâce aux valeurs de k précédemment calculées et d'après l'équation 3.28 sont visibles Figure 3.20. Les valeurs entres 450 et 550 nm ne sont pas montrées puisque les valeurs de k dans cet intervalle n'ont pas de sens comme nous venons de le voir. Les valeurs de n obtenues montrent une plus grande dispersion entre chaque échantillon que pour la détermination du coefficient d'extinction avec des valeurs comprise entre 1,9 et 2,3 à 1080 nm. On peut voir qu'à l'exception de l'échantillon 1 les valeurs obtenues sont relativement stables sur le spectre étudié avec néanmoins une très légère baisse de ses valeur à mesure que la longueur d'onde augmente. L'écart de comportement entre l'échantillon 1 et les autres est directement dû à la mesure de R_{diff} qui évolue fortement avec la longueur d'onde dans le cas de l'échantillon 1.

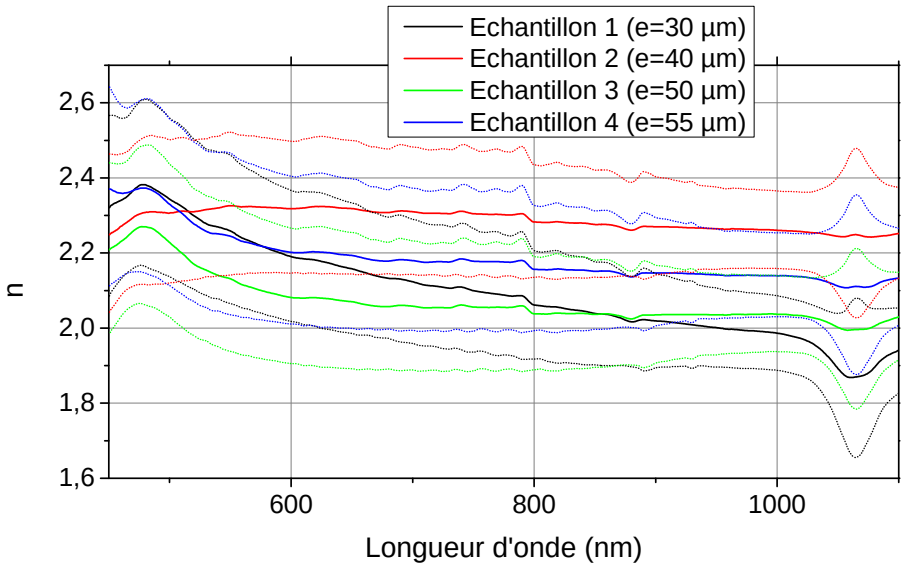


FIGURE 3.20. – Valeurs de n déterminées pour chaque échantillon en fonction de la longueur d'onde

La grande dispersion observée entre les valeurs de n peut-être en partie expliquée par l'effet de la rugosité de surface et de la diffusion associée. Il serait intéressant d'analyser les mesures de réflexions diffuses avec des modèles statistiques capables de reproduire le phénomène de diffusion de la lumière par des surfaces rugueuses. La prise en compte de la porosité de surface ou de la rugosité aux joints de grains pourrait aussi permettre de modéliser plus finement la propagation de la lumière et l'interaction lumière-UO_2 afin de proposer une meilleure détermination des constantes optiques du matériau étudié. Toujours est-il que dans le cas de notre étude, la valeur particulièrement d'intérêt était celle relative à la profondeur de pénétration puisqu'elle permet d'apprécier la dynamique du dépôt de puissance dans le volume de l'UO_2 lorsque soumis à une chauffe laser.

3.6. Conclusion

Nous avons présenté dans ce chapitre un banc de mesure permettant de réaliser des mesures de réflectance et de transmittance spectrales sur des échantillons d'UO_2. Ces échantillons se présentent sous formes de lames minces de quelques dizaines de micromètres d'épaisseurs. Elles ont étés obtenues par polissage manuel de disques découpés puis polis à partir de pastilles. Les mesures de transmittance sur ces échantillons confirment bien la présence du gap dans la structure électronique de l'UO_2 autour de 2 eV. La réflectance des échantillons est comprise entre 19% et de 15% et la composante diffuse de cette réflectance est l'ordre de 4% et est fortement liée à l'état de surface en terme de rugosité.

Un modèle analytique simple se basant sur les équations de Fresnel nous a permis d'estimer les constantes optiques (n et k) des échantillons. La partie réelle de l'indice de réfraction présente une assez grande dispersion entre les échantillons et semble relativement constante avec la longueur d'onde. On peut retenir une valeur moyenne de 2,2.

Le coefficient d'extinction présente une assez grande variation aux alentours de l'énergie de bande interdite de façon assez attendue. Une valeur, celle obtenue avec l'échantillon le moins épais, diffère cependant des trois autres. On peut supposer que cela est en partie du à la non validité d'une de nos hypothèses de travail du fait de l'épaisseur trop petite pour que cette hypothèse soit valable. On peut retenir une valeur de k de 0,006, ce qui correspond à une profondeur de pénétration d'environ 15 μm. Ces valeurs sont cohérentes avec la littérature qui ne s'était intéressée jusqu'à maintenant que très majoritairement à l'étude des propriétés optiques de l'UO_2 mono-cristallin. Néanmoins l'analyse effectuée des mesures de transmittance et de réflectance néglige plusieurs phénomènes dont la diffusion de l'onde electro-magnétique qui peut-être due à l'hétérogénéité du matériau.

Une étude plus poussée de différents types de dioxyde d'uranium (différences de densités, présences de macro/micro porosité ou encore dopés en matériaux simulant les produits de fission) devrait permettre de construire une cartographie intéressante de l'évolution des constantes optiques de l'UO_2 avec l'évolution de sa microstructure. Une microstructure plus poreuse, avec d'avantage de sauts d'indices à cause de dopants ou d'une porosité plus importante devrait notamment amener à un phénomène de diffusion plus important dans le volume du matériau.

Bien entendu, la dépendance à la température des propriétés optiques de la céramique reste inconnue. La mesure de reflectance ou de transmittance à hautes-températures nécéssiterait le dévellopement d'un système de mesure sous vide pour éviter l'oxydation de l'échantillon. De plus l'approche expérimentale ici retenue d'une mesure de transmittance sur une lame de faible épaisseur collée n'est pas possible du fait de l'utilisation de colle optique. Une approche sur un échantillon plus massif mettant en oeuvre plusieurs mesures de réfléctance à différents angles d'incidence et états de polarisation pourrait à temre permettre de déduire les constantes optiques de l'échantillon.

4. Modèle numérique pour la simulation thermo-mécanique de chauffes laser réalisées sur UO_2

Sommaire

4.1. Propriétés thermophysiques de l'UO_2 . . . 86
4.1.1. Température de fusion . . . 87
4.1.2. Masse molaire . . . 87
4.1.3. Masse volumique . . . 87
4.1.4. Capacité thermique . . . 88
4.1.5. Conductivité thermique . . . 88
4.1.6. Dilatation thermique . . . 88
4.1.7. Module de Young . . . 89
4.1.8. Coefficient de Poisson . . . 90
4.2. Loi de comportement pour l'UO_2 soumis à un chauffage laser . . . 91
4.3. Simulation du chargement laser . . . 95
4.3.1. Terme source de chaleur en négligeant la diffusion du rayonnement laser . . . 95
4.3.1.1. Cas du faisceau homogène . . . 96
4.3.1.2. Cas du faisceau annulaire . . . 96
4.3.2. Terme source de chaleur en prenant en compte la diffusion du rayonnement laser 96
4.3.3. Simulation Monte-Carlo pour la diffusion de la lumière dans l'UO_2 . . . 98
4.4. Maillage et conditions limites . . . 100
4.5. Conclusion . . . 101

Comme expliqué dans le chapitre bibliographique, l'objectif des chauffes laser à long terme est l'étude des mécanismes sous-tendant un Relâchement des Gaz de Fission (RGF) en situation de RIA. Il est donc important de coupler l'approche expérimentale que nous avons présentée dans le chapitre 2 à la simulation thermique et mécanique précise de ces expériences. Nous allons donc présenter dans ce chapitre le code de simulation par éléments finis que j'ai développé dans le cadre de mes travaux de thèse. Nous utilisons le code de simulation thermo-mécanique Cast3m du CEA [124].

Nous présenterons dans un premier temps les propriétés thermophysiques de l'UO_2 nécessaires à la résolution des calculs thermique et mécanique. Ces propriétés sont issues de la littérature. Dans une deuxième partie, nous présenterons la loi de comportement mécanique mise au point pour la simulation de la réponse mécanique des échantillons soumis à des chauffes lasers. Cette loi de comportement a été paramétrée sur les données disponibles sur le combustible et sur son comportement à haute-vitesse de déformations (>10^{-1} /s) et à hautes-températures (> 1100 °C).

Enfin nous décrirons la discrétisation spatiale et temporelle adoptée et les conditions limites appliquées. Nous verrons enfin comment le dépôt de puissance laser est modélisé et le couplage thermique-mécanique mis en place.

4.1. Propriétés thermophysiques de l'UO_2

La simulation thermomécanique de chauffes laser nécessite de connaître les propriétés thermiques et mécaniques du matériau. La plupart de ces propriétés sont issues de deux synthèses, l'une effectuée

par J.K. Fink [125] et l'autre effectuée par l'IAEA [1] sous la forme d'un handbook [5]. Seules les propriétés de l'UO_2 non irradié à l'état solide sont présentées. En effet les échantillons utilisés durant ce travail de thèse sont issus de pastilles d'UO_2 appauvri comme nous le verrons dans le chapitre 5 et nous nous intéressons seulement au comportement combustible à l'état solide.

Toutes ces propriétés matériaux ont étés passées en unité SI et compilées avec MFRONT [126] sous la forme de librairies logicielles utilisables par Cast3m.

4.1.1. Température de fusion

La température de fusion T_f communément acceptée dans la littérature est [127] :

$$T_f = 3116 \pm 25\ K \tag{4.1}$$

La température de vaporisation, quant à elle, est supérieure d'environ 700 K :

$$T_v = 3815\ K \tag{4.2}$$

4.1.2. Masse molaire

D'après la Commission on Isotopic Abundances and Atomic Weights (CIAWW) qui définit les valeurs recommandées de poids atomique [128], la masse molaire de l'UO_2 est égale à :

$$M = 0,2700277 \pm 0,0000006\ kg/mol \tag{4.3}$$

4.1.3. Masse volumique

La masse volumique présente logiquement une dépendance en température et est exprimée dans la gamme 298,15 :3120 K (Figure 4.1, en rouge) par le produit de la densité à 273 K m par le cube de la dilatation thermique [5] :

$$\rho(T) = \rho_{273}.\left(\frac{L(T)}{L_{273}}\right)^3 \tag{4.4}$$

avec ρ_{273} la densité à 273 K égale à $10,963\ Mg/m^3$. Le rapport $L(T)/L_{273}$ décrit la dilatation thermique et sera explicité par la suite.

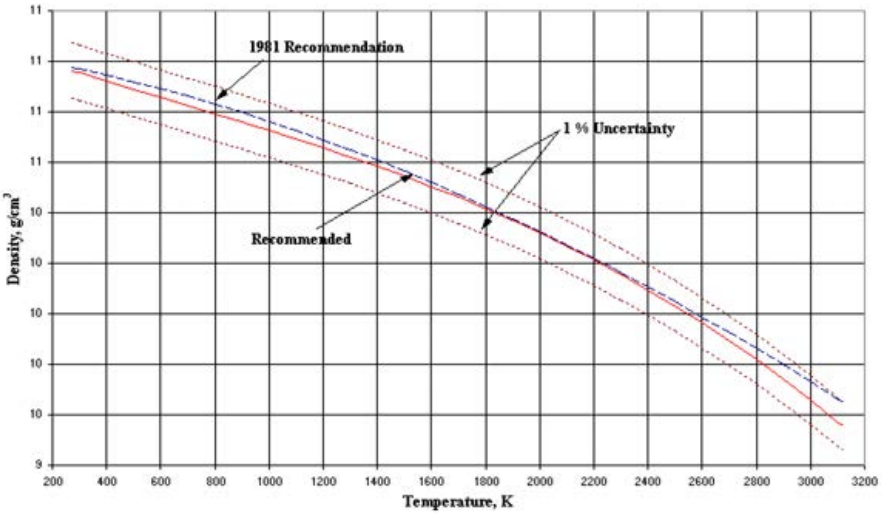


FIGURE 4.1. – Masse volumique de l'UO_2 en fonction de la température. D'après [5].

1. International Atomic Energy Agency

4.1.4. Capacité thermique

La capacité thermique molaire entre 298,15 et 3120 K (Figure 4.2, en rouge) est décrite par le polynôme suivant [5] :

$$C_p(T) = 52,1743 + 87,951\tau - 84,2411\tau^2 + 31,542\tau^3 - 2,6334\tau^4 - 0.71391\tau^{-2} \tag{4.5}$$

avec $\tau = T/100$, T la température en K et C_p en $J.mol^{-1}K^{-1}$.

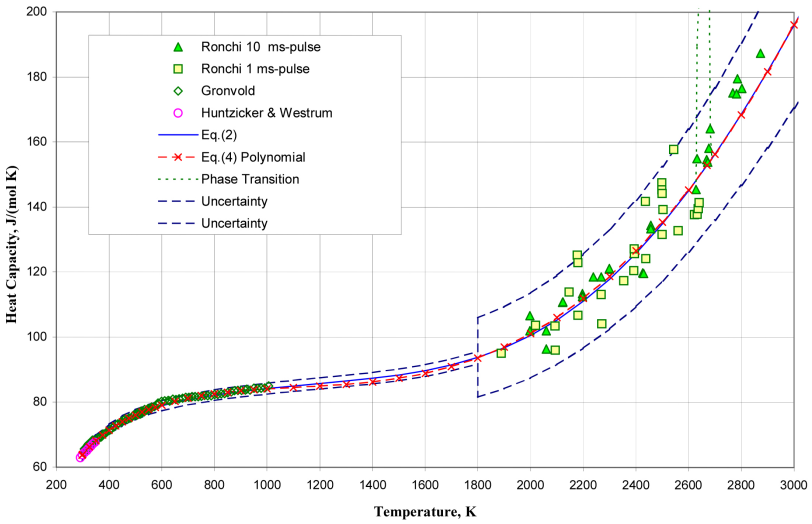


FIGURE 4.2. – Capacité thermique de l'UO_2 en fonction de la température. D'après [5].

4.1.5. Conductivité thermique

La conductivité thermique de l'UO_2, déterminée par des mesures de diffusivité -notamment par flash-laser- est décrite par le polynôme suivant [5] (Figure 4.3, en rouge) :

$$k(T) = \frac{100}{7,5408 + 17,962\tau + 3,6142\tau^2} + \frac{6400}{\tau^{\frac{5}{2}}} e^{-\frac{16,35}{\tau}} \tag{4.6}$$

avec $\tau = T/1000$, T étant la température en K et k la conductivité thermique exprimée en $W.m^{-1}.K^{-1}$. Comme toutes céramiques, la conductivité thermique de l'UO_2 est relativement basse ($< 10\ W.m^{-1}.K^{-1}$ quand des métaux comme l'or ou l'argent sont autours de 300-400 $W.m^{-1}.K^{-1}$).

4.1.6. Dilatation thermique

La dilatation thermique linéaire, d'après [5] s'écrit comme suit entre 273,15 et 923 K (Figure 4.4) :

$$\frac{L(T)}{L_{273}} = 9,973.10^{-1} + 9,082.10^{-6}T - 2,705.10^{-10}T^2 + 4,391.10^{-13}T^3 \tag{4.7}$$

puis de 923 à 3120 K :

$$\frac{L(T)}{L_{273}} = 9,9672.10^{-1} + 1,179.10^{-5}T - 2,429.10^{-9}T^2 + 1,219.10^{-12}T^3 \tag{4.8}$$

Avec T la température en K, $L(T)$ la longueur de l'échantillon en m et L_{273} sa longueur à 273 K.

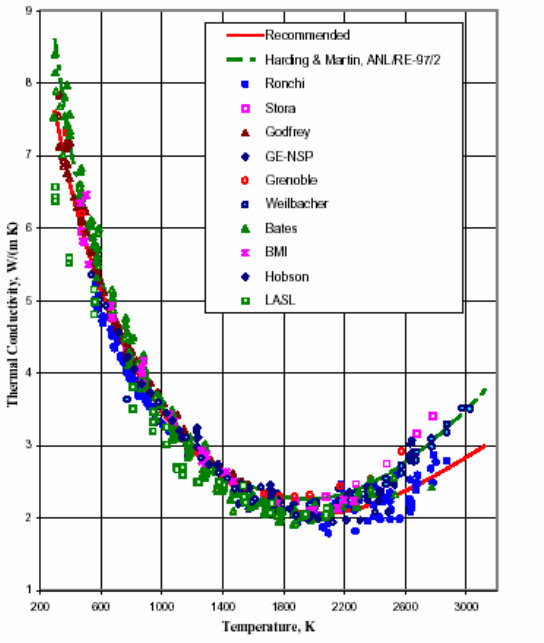


FIGURE 4.3. – Evolution de la conductivité thermique de l'UO_2 vierge en fonction de la température. D'après [5].

Le coefficient linéaire de dilatation thermique s'écrit alors :

$$\alpha_l(T) = \frac{1}{L}\left(\frac{\partial L}{\partial T}\right) \tag{4.9}$$

Les dérivées partielles des équations 4.7 et 4.8 sont approximées par les polynômes de degré 3 suivants : entre 273 K et 923 K,

$$\alpha_l(T) = 9,828.10^6 - 6,930.10^{10}\,T + 1,330.10^{12}\,T^2 - 1,757.10^{-17}\,T^3 \tag{4.10}$$

et entre 923 et 3120 K :

$$\alpha_l(T) = 1,1833.10^5 - 5,3013.10^9\,T + 3,756.10^{12}\,T^2 - 6,125.10^{-17}\,T^3 \tag{4.11}$$

4.1.7. Module de Young

Le module de Young ou module d'élasticité de l'UO_2 est d'environ $180 \pm 20\ GPa$. Il est homogène à une pression (contrainte en Pa) et relie la contrainte à la déformation dans le domaine de déformation élastique d'un matériau. Pour l'UO_2, il s'écrit en fonction de la température et de la porosité p de la façon suivante [129] :

$$E(T,p) = (2,27.10^2 - 1,54.10^{-2}\,T - 9,60.10^{-6}\,T^2).(1-2,5p).10^9 \tag{4.12}$$

Avec T la température en K, p la porosité comprise entre 0 et 1 et E le module élastique en Pa. On peut voir sur la Figure 4.5 que l'augmentation de la température a pour effet de diminuer le module de Young de l'UO_2. De même, d'après l'équation 4.12 la porosité a aussi pour effet de faire baisser le module élastique de l'UO_2.

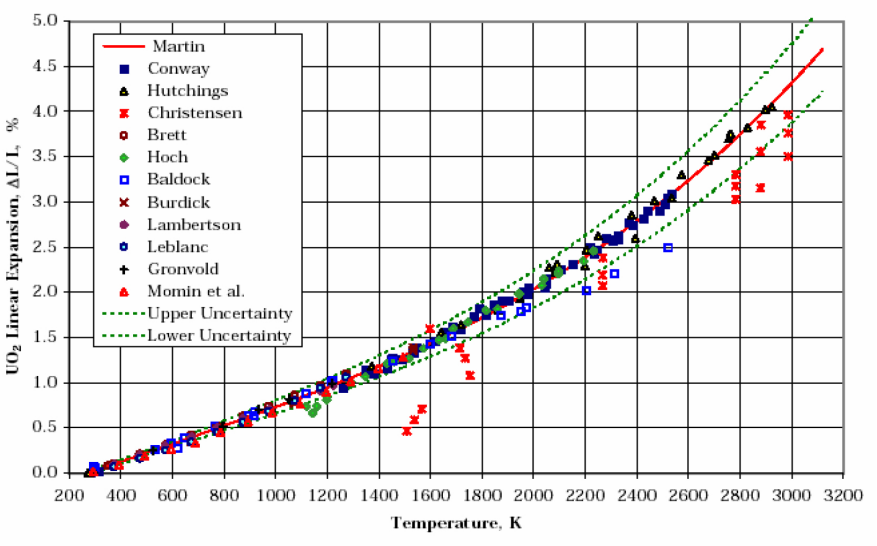


FIGURE 4.4. – Ratio de dilatation linéique thermique de l'UO_2 avec la température. D'après [5].

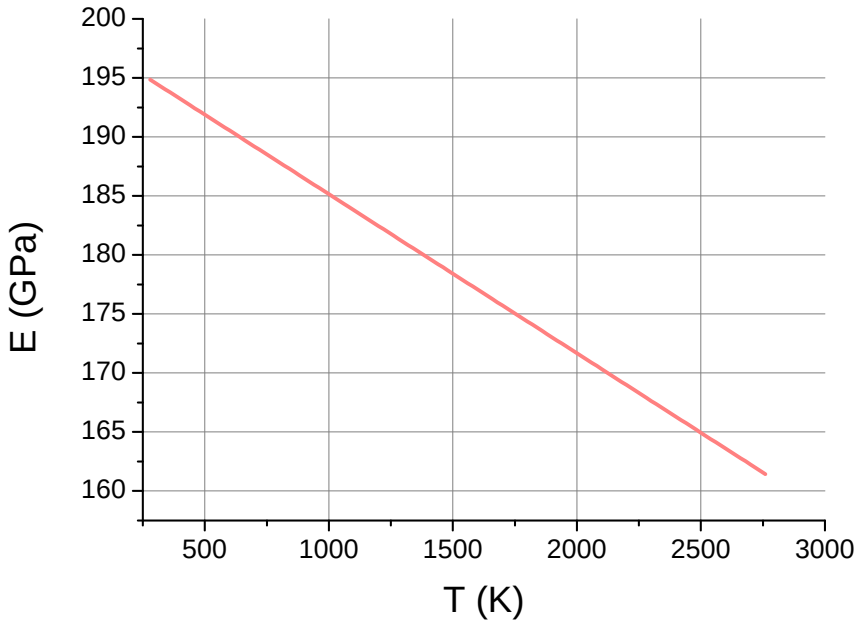


FIGURE 4.5. – Évolution du module de Young en fonction de la température pour un UO_2 dense à 95%. D'après [129].

4.1.8. Coefficient de Poisson

Le coefficient de Poisson ν à la température ambiante est égal à [130] :

$$\nu = 0,311 \pm 0,005 \tag{4.13}$$

4.2. Loi de comportement pour l'UO_2 soumis à un chauffage laser

Pour simuler le comportement mécanique des chauffes laser présentées dans le chapitre suivant, nous avons tout d'abord essayé d'utiliser la L3F. Malheureusement la L3F ne nous permettait pas de reproduire fidèlement le comportement mécanique des échantillons soumis aux chauffes laser. Nous avons donc développé une loi de comportement mécanique spécialement pour ce faire.

Comme nous l'avons expliqué dans la partie 1.4.1, l'UO_2 présente le comportement typique d'une céramique avec un comportement fragile en traction et en compression à basse température et un comportement plus ductile à haute-température. La contrainte à la rupture est cependant dissymétrique, avec une contrainte à la rupture autour de 100 MPa en traction et jusqu'à 1000 MPa en compression.

Pour modéliser le comportement dissymétrique de la céramique en tension et en compression, nous adoptons le μ-model proposé par Mazars et al [131]. Classiquement utilisé pour la modélisation du comportement mécanique du béton, ce modèle est une amélioration d'un premier modèle d'endommagement proposé par Mazars [132]. L'endommagement est décrit par une variable scalaire D comprise entre 0 et 1 et qui est utilisée pour décrire la perte de rigidité du matériau en étant directement appliquée au module d'élasticité. La relation contrainte-déformation est alors la suivante :

$$\overline{\overline{\sigma}} = (1-D)\,\overline{\mathbf{C}} : \overline{\overline{\epsilon}} \tag{4.14}$$

avec $\overline{\sigma}$ le tenseur des contraintes, $\mathbf{C}$ le tenseur d'élasticité [2] et $\overline{\epsilon}$ le tenseur des déformations élastiques.

Deux modes d'endommagements distincts sont considérés pour la traction et la compression, que l'on appellera fissuration et écrasement, respectivement. L'endommagement par écrasement est directement lié à la décohésion des joints de grains et à la fragmentation observable sous contraintes de compression. Les deux modes d'endommagements sont décrits par deux variables thermodynamiques, Y_t pour l'endommagement par traction et Y_c pour l'endommagement par compression, qui représentent chacune l'état de charge maximal atteint dans l'espace des déformations subies. La valeur D est calculée en fonction de ces deux variables. Les effets unilatéraux comme la fermeture ou l'ouverture de fissures sont modélisés par cette loi de comportement si la direction du chargement est inversée. De plus, l'évolution de l'endommagement est directement reliée au premier et au second invariant (Equations 4.17 et 4.18) du tenseur des déformations -et donc aux déformations principales-, les directions de fissurations ne sont donc pas fixées *a priori*. Cette approche est de fait plus générale que pour la plupart des lois de comportement mécaniques proposées pour l'UO_2 dans lesquels les directions de fracturations sont fixées par le système de coordonnées cylindriques [133].

Pour modéliser l'endommagement, le concept de déformation équivalente est utilisé. La fissuration et l'écrasement sont respectivement associées aux deux déformations équivalentes ϵ_t et ϵ_c. Elles sont définie de la façon suivante :

$$\epsilon_t = \frac{I_\epsilon}{2(1-2\nu)} + \frac{\sqrt{J_\epsilon}}{2(1+\nu)} \tag{4.15}$$

$$\epsilon_c = \frac{I_\epsilon}{5(1-2\nu)} + \frac{6\sqrt{J_\epsilon}}{5(1+\nu)} \tag{4.16}$$

Avec I_ϵ et J_ϵ le premier et second invariant du tenseur des déformations et ν le coefficient de Poisson.

La notion de déformation équivalente permet de rendre compte avec un scalaire de la déformation contribuant à l'endommagement. Le premier et second invariant du tenseur de déformations s'écrivent :

$$I_\epsilon = \epsilon_1 + \epsilon_2 + \epsilon_3 \tag{4.17}$$

$$J_\epsilon = \frac{1}{2}\left[(\epsilon_1-\epsilon_2)^2 + (\epsilon_2-\epsilon_3)^2 + (\epsilon_3-\epsilon_1)^2\right]^{\frac{1}{2}} \tag{4.18}$$

2. Le tenseur d'élasticité relie le tenseur des contraintes au tenseur des déformations. Ses composantes généralisent le module de Young aux matériaux anisotropes. Elles ont donc la dimension d'une pression (Pa en unité SI). C'est un tenseur du 4ème ordre.

Avec ϵ_1, ϵ_2 et ϵ_3 les valeurs propres du tenseur de déformation qui correspondent aux directions principales de déformation.

On peut alors définir deux surfaces de charges, définies dans l'espace des déformations principales, pour la traction et la compression, délimitant le domaine élastique.

$$f_t = \epsilon_t - Y_t \quad \text{et} \quad f_c = \epsilon_c - Y_c \tag{4.19}$$

avec Y_t et Y_c deux variables thermodynamiques reliées au maximum atteint par les déformations équivalentes pendant le chargement. Elles caractérisent l'état de sollicitation maximale atteint pendant le chargement :

$$Y_t = \mathrm{Sup}[\epsilon_{0t}, \max(\epsilon_t)] \quad \text{et} \quad Y_c = \mathrm{Sup}[\epsilon_{0c}, \max(\epsilon_c)] \tag{4.20}$$

On voit ici, qu'avant le développement de l'endommagement, Y_t and Y_c sont égales aux seuils de déclenchement d'endommagement en traction et en compression, respectivement ϵ_{0t} et ϵ_{0c}. L'évolution de l'endommagement D s'écrit alors comme suit :

$$D = -\frac{(1-A)Y_0}{Y} - A.\exp\{(B(Y-Y_0))\} \tag{4.21}$$

avec Y_0 la valeur initiale de Y, elle même définie par :

$$Y = rY_t + (1-r)Y_c \tag{4.22}$$

et A, B deux paramètres qui déterminent l'évolution de l'endommagement, exprimés par les relations suivantes :

$$A = A_t(2r^2(1-2k) - r(1-4k)) + A_c(2r^2 - r + 1) \tag{4.23}$$

$$B = r^{(r^2-2r+2)}B_t + (1 - r^{(r^2-2r+2)}B_c) \tag{4.24}$$

Avec r le facteur de triaxilité [134] indiquant la nature de la sollicitation, qui évolue entre 0 et 1 :

$$r = \frac{\sum\langle\overline{\sigma_i}\rangle_+}{\sum|\overline{\sigma_i}|} \tag{4.25}$$

Avec $\langle\overline{\sigma_i}\rangle_+$ les valeurs positives et $|\overline{\sigma_i}|$ les valeurs absolues des composantes du tenseur de contraintes. Ce facteur triaxial est donc indépendant de la valeur d'endommagement et peut-être calculé explicitement à chaque itération. $r = 0$ correspond à un chargement unixial en compression et $r = 1$ à un chargement unixial en traction. Quand $r = 1$, $A = A_t$ et $B = B_t$, et quand $r = 0$, $A = A_c$ et $B = B_c$. k est un paramètre qui définit la contrainte asymptotique dans le cas d'un chargement en cisaillement pur.

Les quatre paramètres A_t, B_t, A_c et B_c peuvent être facilement identifiés à partir des courbes contraintes-déformations obtenues grâce à des essais uniaxiaux en compression et en traction-flexion. Comme introduit dans l'équation 4.20, deux seuils d'activation de l'endommagement doivent aussi être définis pour la tension et la compression respectivement ϵ_{t0} et ϵ_{c0}.

Le comportement en compression du modèle a été ajusté sur la base des courbes contraintes-déformations obtenues par M.Salvo sur des essais de compression uniaxiaux à haute-vitesse de déformation (10^{-1} /s) et à hautes-températures (entre 1373 et 1973 K) qui sont des conditions représentatives d'un RIA et qui ont clairement mis en évidence une transition fragile-ductile dans le comportement de l'UO_2 [54, 55]. L'extrapolation du comportement mécanique vers la température ambiante et de fusion a été faite sur la base d'autres essais uniaxiaux en compression disponibles dans la littérature bien qu'aucun n'ait une vitesse de déformation aussi élevée que ceux de M.Salvo. Au final une décroissance de la contrainte maximale atteinte en compression a été considérée pour des températures supérieures à 1973 K (1700 °C) avec une valeur cible de 60 MPa autour de la température de fusion de l'UO_2 (autour de 3000 K). Le comportement modélisé en traction reste quant à lui fragile indépendant de la température et est caractérisé par une contrainte à la rupture de 80 MPa. Les paramètres sont données dans le tableau 4.1.

Le modèle est résolu numériquement et le code source généré sous forme de librairie logicielle

utilisable par Cast3m avec Mfront. Le comportement de la loi une fois paramétrée a été vérifiée avec le logiciel MTest fourni avec Mfront qui permet des simulations sur un point matériel. De nombreuses configurations de chargement (uniaxial, biaxial), de température (isotherme, évolution de température négative ou positive) ont étés testées, particulièrement autour de la température de transition fragile-ductile.

Les courbes contraintes-déformations et endommagement-déformations obtenues en isotherme pour un chargement unixial sont visibles sur les Figures 4.6 et 4.7. On peut notamment observer la transition fragile-ductile à 1500 K (1227 °C) avec un changement clairement visible dans les courbes déformations-contraintes et déformations-endommagements. Pour des températures inférieures à la température de transition les courbes contraintes-déformations sont caractérisées par une baisse de la contrainte une fois le pic de compression passé. La contrainte résiduelle est nulle pour toutes les températures inférieures à 1500 K (1227 °C) mais elle est atteinte pour des valeurs de déformations de plus en plus élevées à mesure que la température augmente. La contrainte maximale à l'ambiante est de 1000 MPa qui est la valeur haute disponible dans la littérature [135]. Au dessus de la température de transition les courbes contraintes-déformations sont caractérisées par un pic de contrainte atteint pour des valeurs de déformation comprises entre 1 et 2 % suivi d'un plateau à une contrainte légèrement inférieure à celle du pic. L'amplitude de ce pic tend à décroitre avec la température.

Ce comportement est typique de l'UO_2 testé à haute-température et est attribué à des effets d'originels structurels ou matériaux. D'après Guérin [136], ce pic de compression est fortement lié à un défaut d'axialité et de parallélisme des cales en tungstène utilisées pour mettre en chargement l'échantillon ; un défaut de parallélisme de l'ordre du demi-degré modifiant l'amplitude du pic d'un facteur 3 ou 4. Sauter et al [137] ont proposé un modèle basé sur la théorie des dislocations pour reproduire ce pic de compression qui serait dû à une mise en mouvement soudaine des dislocations une fois un palier en contrainte dépassé. Du fait que la mobilité des dislocations est un phénomène dépendant de la température, le pic de compression tend à décroître avec la température, le glissement des dislocations étant grandement facilité à haute-température.

Enfin, n'ayant pas d'informations sur le comportement de la céramique en cisaillement pur, nous posons $k = 1$.

Une caractéristique importante du modèle proposé est le développement de l'endommagement en compression quand bien même aucun adoucissement n'est observé sur les courbes contraintes-déformations. C'est le cas pour les températures supérieures à la température de transition pour lesquelles on peut observer le développement d'un endommagement important (> 0,8) même pour des niveaux de déformations relativement bas. Ce comportement est cohérent avec la fragmentation et la décohésion des grains observées par Salvo et al à hautes-températures et hautes-vitesses de déformation [54].

Paramètre	Expression
A_t	3.2
B_t	2850
ϵ_{t0}	0,00001
A_c	$T < 1500\,K$
	$A_c = 8,7919.10^{-7}.T^2 - 3,11509.10^{-3}.T + 2.8.57$
	$T \geq 1500\,K$
	$A_c = 9,47303.10^{6}.T^{-2,6154}$
B_c	$T < 1500\,K$
	$B_c = -0.828T + 173,59$
	$T \geq 1500\,K$
	$B_c = 50$
ϵ_{c0}	$T < 1500\,K$
	$\epsilon_{c0} = -0.00001$
	$1500\,K \leq T \geq 2500K$
	$\epsilon_{c0} = -4.10^{-10}.T^2 + 2.10^{-6}.T - 0.0032$
	$T > 2500\,K$
	$\epsilon_{c0} = -0,00058$
k	1

TABLEAU 4.1. – Valeurs des paramètres du modèle de Mazars (équations 4.20, 4.23 et 4.24)

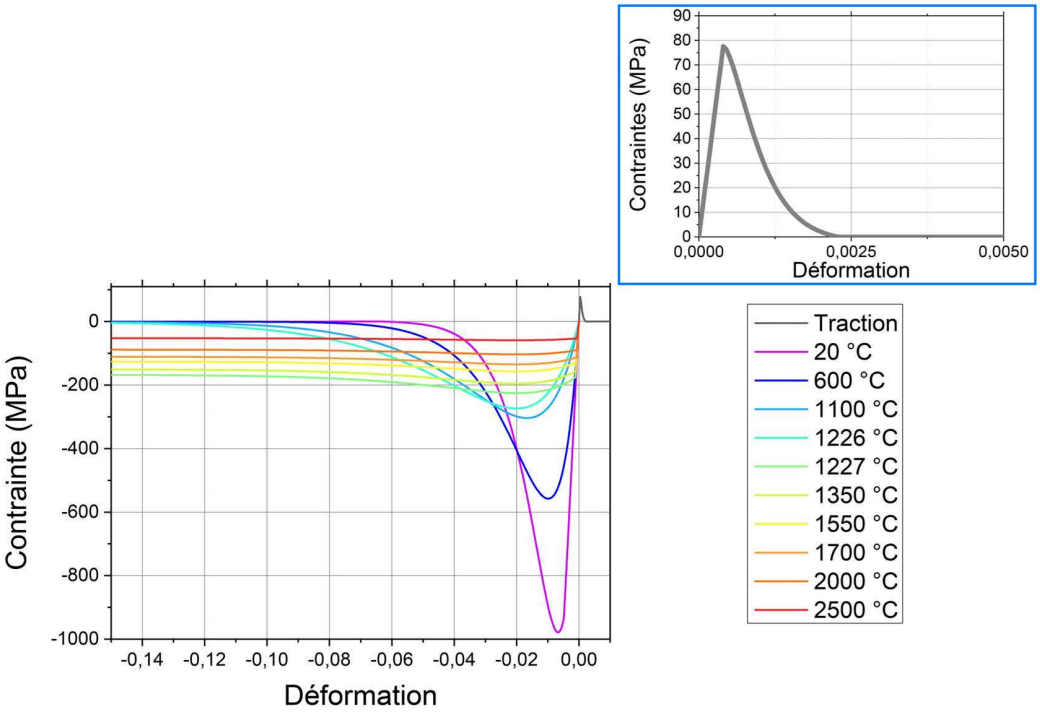


FIGURE 4.6. – Courbes contraintes-déformations de la loi de comportement paramétrée en fonction de la température. L'encart représente la partie traction de l'espace de charge.

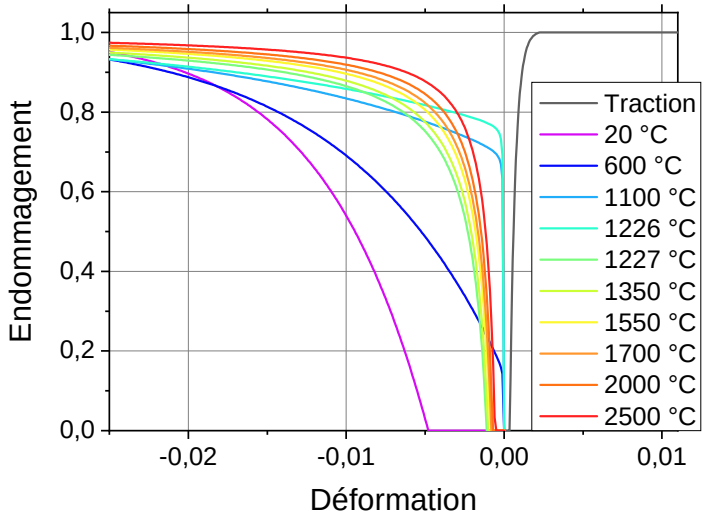


FIGURE 4.7. – Courbes endommagements-déformations de la loi de comportement paramétrée en fonction de la température.

4.3. Simulation du chargement laser

Nous venons de présenter les différentes propriétés matériaux nécessaires aux simulations envisagées et une loi de comportement mécanique censée rendre compte du comportement mécanique d'échantillons d'UO_2 soumis à de fortes vitesses de déformation et ce sur une large gamme de température. Nous allons maintenant dans cette section présenter la description du chargement laser et la résolution de l'équation de la chaleur en transitoire. Nous posons tout d'abord les hypothèses ou simplifications suivantes :

— La convection est négligée, les chauffes laser étant réalisées sous vide primaire,
— Tous les matériaux sont considérés comme homogènes, sans impuretés et isotropes,
— D'éventuels changement de phase ou phénomènes d'évaporation ne sont pas considérés.

L'équation de la chaleur en transitoire s'écrit alors :

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} - \nabla(k \nabla T) = Q \tag{4.26}$$

Avec ρ la masse volumique en $kg.m^{-3}$, C_p la capacité thermique en $J.kg^{-1}.K^{-1}$, T la température en K, t le temps en s, k la conductivité thermique en $W.m^{-1}.K^{-1}$ et Q le terme source de chaleur en $W.m^{-3}$.

4.3.1. Terme source de chaleur en négligeant la diffusion du rayonnement laser

En trois dimensions, le terme source de chaleur peut s'écrire :

$$Q(x,y,z,t) = A.f(t).dI(x,y,z)/dz \tag{4.27}$$

Avec A l'absorption égale à (1-R) et R un terme de pertes global (réflexions sur l'échantillon, sur le saphir etc), $f(t)$ la fonction temporelle normalisée du dépôt de puissance et $dI(x,y,z)/dz$ la densité de puissance volumique en $W.m^{-3}$.

La fonction temporelle est une fonction créneau :

$$f(t) = \begin{cases} 1 & si \quad t \in [0, t_f] \\ 0 & si \quad t \in]t_f, \infty[\end{cases} \tag{4.28}$$

avec t_f la durée de la chauffe. Nous avons mesuré que le temps de montée du laser que le temps de montée du laser est inférieur à 1 ms et assimilons le front de montée à une fonction créneau. Le terme R est principalement composé des pertes sur le saphir du porte échantillon et sur l'échantillon lui même de sorte que $R \simeq R_{saphir} \times R_{échantillon} \simeq 0,17 \times 0,15$.

4.3.1.1. Cas du faisceau homogène

L'absorption du rayonnement laser peut-être décrite avec une loi de Beer-Lambert. Elle s'écrit classiquement :

$$I(z) = I_0 e^{-\alpha.z} \tag{4.29}$$

Le terme source de chaleur volumique (densité volumique de puissance homogène à des W/m^3), issue de la dérivation de I_z s'écrit alors :

$$Q(z) = -\frac{d}{dz}\left(I_0 exp(-\alpha.z)\right) = -I_0 exp(-\alpha.z).\frac{d}{dz}(-\alpha.z) = I_0.exp(-\alpha.z).\alpha \tag{4.30}$$

Avec I_0 l'intensité initiale en $W.m^{-2}$ qui est égale à la puissance totale du faisceau P_h en W divisée par la surface du faisceau. Afin de prendre en compte le fait que le faisceau homogène est plus grand que la pastille, on calcule le ratio entre l'aire de la pastille $Aire_P$ et celle du faisceau $Aire_f$ et l'on multiplie le terme d'intensité par ce facteur de perte. On a donc $I_0 = P_h.\frac{1}{Aire_f}.\frac{Aire_P}{Aire_f}$.

Le terme source de chaleur s'écrit donc :

$$Q(z) = P_h.\frac{1}{Aire_f}.\frac{Aire_P}{Aire_f}.\alpha.exp(-\alpha.z) \tag{4.31}$$

4.3.1.2. Cas du faisceau annulaire

La densité volumique de puissance Q du faisceau annulaire, en 2D axisymmétrique, s'écrit :

$$Q(r,z) = I_{max}.exp\left(\frac{-2(r-R_{an})^2}{\omega_{an}^2}\right).\alpha.exp(-\alpha.z) \tag{4.32}$$

Avec I_{max} (équation 2.2) l'intensité en $W.m^{-2}$ maximale du faisceau annulaire gaussien à $r = R_{an}$. On identifie ici clairement la fonction gaussienne qui correspond à la forme de l'anneau de waist ω_{an} et l'exponentielle décroissante qui est la loi de Beer-Lambert décrivant l'absorption dans l'épaisseur. Nous retrouvons α le coefficient d'absorption dont la valeur a été discutée au chapitre précédent. Cette description fait l'hypothèse d'une propagation rectiligne du faisceau dans l'épaisseur. Ce terme source est ensuite appliqué au maillage comme source de chaleur volumique.

4.3.2. Terme source de chaleur en prenant en compte la diffusion du rayonnement laser

Nous avons vu dans le chapitre 3 les résultats d'une expérience de spectrophotométrie menée sur des lames minces (entre 30 et 50 μm d'épaisseurs) d'UO_2 dense et polycristallin. L'analyse des mesures de réflectance et de transmittance effectuées nous a permis d'estimer l'indice de réfraction complexe de nos échantillons avec des valeurs pour n autour de 2,2 et de k autour de 0,006.

Toutefois l'interprétation des mesures s'est bornée à considérer une propagation rectiligne de la lumière dans le volume du matériau et nous n'avons donc pas considéré un des phénomènes qu'est susceptible de subir une onde lorsqu'il se propage dans un matériau : la diffusion. Si la réflexion, la transmission et l'absorption ont été traitées, nous n'avons pas considéré la diffusion qui peut-être par exemple causée par la présence de pores ou des joints de grains. On distingue donc dans le volume du

matériau le phénomène d'absorption et le phénomène de diffusion que l'on peut tous deux caractériser par deux coefficients de perte α_a et α_s en m^{-1} qui expriment donc la longueur à partir de laquelle une onde se propageant dans un milieu ne vaut plus que $1/e$ fois sa valeur initiale si l'on ne considère que l'un ou l'autre phénomène. On peut alors écrire le coefficient d'atténuation total $\alpha_t = \alpha_s + \alpha_s$ comme illustré sur la Figure 4.8.

Pour complètement caractériser le phénomène de diffusion, en plus du coefficient de diffusion, il est nécessaire de connaître la distribution angulaire du rayonnement diffusé par un objet. Dans la cas de la théorie de Mie qui décrit la diffusion de la lumière par des particules de dimensions supérieures à la longueur d'onde considérée, les solutions sont exactes –dans le cas d'une sphère prise comme objet diffusant- mais ne sont pas forcément analytiques et doivent être approchées numériquement. Dans de nombreux cas, on préfère utiliser une fonction de phase analytique qui décrit de façon suffisante la distribution angulaire du rayonnement diffusé.

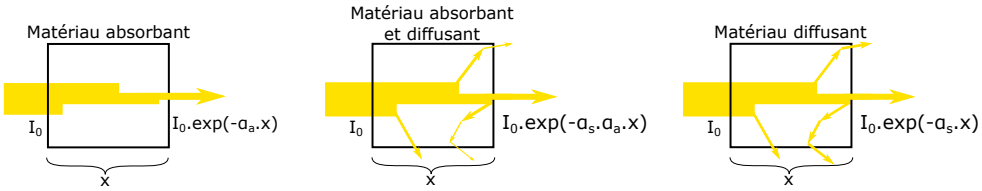


FIGURE 4.8. – Illustration du phénomène d'absorption et de diffusion pour un faisceau de lumière collimaté

On comprend ici qu'il est important de regarder les résultats obtenus sur le coefficient d'extinction k dans la partie précédente avec un certain recul car, en ignorant la diffusion nous avons considéré, que $\alpha_t = \alpha_a$. Il est néanmoins tout à fait possible que dans les faits le terme de diffusion soit en effet négligeable devant le terme d'absorption.

Le but de cette section n'est pas de déterminer les paramètres matériaux de la diffusion de l'UO_2 polycristallin[3]. Nous allons dans cette section nous borner à présenter un outil de simulation du phénomène de diffusion que l'on peut utiliser pour obtenir une distribution de puissance dans le volume du matériau. Cette distribution de puissance peut ensuite être utilisée comme terme source de chaleur dans le code de simulation thermo-mécanique. Cet outil de simulation de la diffusion permettra d'apprécier si la diffusion est susceptible de jouer un rôle important sur les transitoires thermiques obtenus par chauffage laser et d'analyser si d'éventuelles différences entre les températures calculées et mesurées sont susceptibles d'être dues à ce phénomène.

On peut citer parmi les fonctions de phases analytiques les plus couramment utilisées, la fonction de phase de Henyey-Greenstein (HG) [139, 140], la fonction de Henyey-Greenstein modifiée (MHG) ou encore la fonction de phase de Gegenbauer (Geg) [141]. La fonction de phase de Henyey-Greenstein s'écrit :

$$P_{HG}(\theta, g) = \frac{1}{4\pi} \frac{1-g^2}{(1+g^2-2gcos\theta)^{3/2}} \tag{4.33}$$

Avec θ l'angle en radians et g le facteur d'anisotropie compris entre -1 et 1. Une valeur comprise entre -1 et 0 indique une rétro-diffusion majoritaire, 0 correspond à une répartition angulaire de la diffusion isotropique et une valeur supérieure à 0 indique une diffusion "vers l'avant" majoritaire par rapport à la direction de propagation originale. Un graphique montrant la valeur normalisée entre 0 et 1 de cette fonction de phase en fonction de l'angle pour différentes valeurs de g est visible Figure 4.9. Cette fonction de phase initialement proposée pour décrire la diffusion de la lumière par des nuages de poussières interstellaires s'est ensuite montrée adaptée pour décrire la diffusion de la lumière dans des milieux diffusant comme les tissus biologiques.

3. On peut toutefois noter qu'avec les mesures de réflexion diffuse et de transmission totale, il ne manque qu'une mesure angulairement résolue du rayonnement diffusé (ie., une mesure de la fonction de phase) pour complètement caractériser la propagation de la lumière dans le matériau [138].

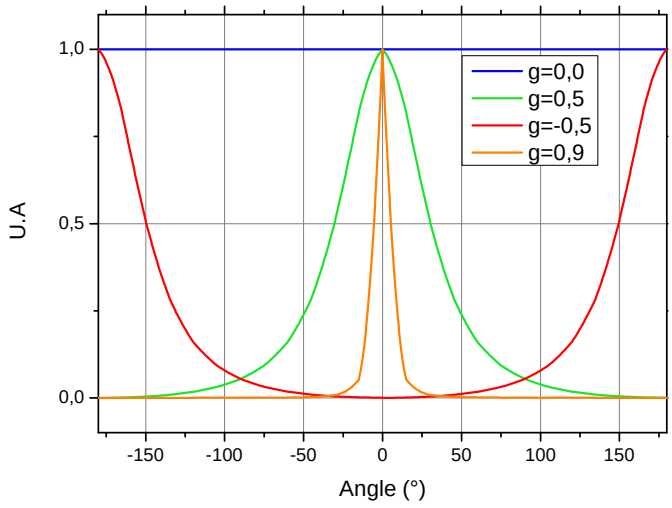


FIGURE 4.9. – Valeurs normalisées de la fonction de phase de Henyey-Greenstein en fonction de l'angle pour différentes valeurs du facteur d'anisotropie g

4.3.3. Simulation Monte-Carlo pour la diffusion de la lumière dans l'UO_2

La méthode de Monte-Carlo est une méthode algorithmique permettant d'obtenir une valeur numérique approchée en se basant sur des procédés aléatoires.

Cette méthode a été largement adoptée par la communauté scientifique pour simuler la diffusion de la lumière, particulièrement dans le domaine de l'optique pour le biomédical, les tissus humains étant des matériaux très diffusants. L'utilisation de cette méthode pour la modélisation de la propagation de la lumière dans des tissus biologiques a été proposée pour la première fois en 1983 par Wilson et al [142]. La méthode a ensuite été améliorée pour prendre en compte la réflexion interne des photons par exemple (Prahl et al [143]). En 1995, Lihong Wang et al présentent MCML [144] qui est un code de simulation Monte-Carlo codé en C implémentable relativement facilement sur n'importe quelle machine permettant de simuler des tissus multi-couches.

MCmatlab [145] est un code de simulation Monte-Carlo open source développé en C++ et interfacé sur Matlab basé sur le code mcxyz [146]. Le domaine de simulation est un cuboïde discrétisé en voxels de dimensions données. A chaque voxel sont assignés les paramètres matériaux α_a, α_s et g correspondants. La fonction de phase utilisée est la fonction de phase de Henyey-Greenstein. La réfraction, réflexion et transmission des photons peuvent être considérées à l'interface entre deux milieux d'indices optiques différents. Des profils d'intensités personnalisés peuvent être donnés en entrée (comme un faisceau annulaire gaussien par exemple).

La source de chaleur volumique résultant de l'absorption dans l'ensemble du cuboïde peut-être calculée en multipliant la fluence normalisée de chaque voxel (sortie de MCmatlab) qui est la fluence en W/m^2 divisée par la puissance incidente –dans notre configuration de calcul cette puissance incidente est par défaut fixée à 1- par le coefficient d'absorption de chaque voxel et la puissance incidente réelle. On obtient alors une source de chaleur volumique en W/m^3. Un schéma d'explications est visible Figure 4.10, la distribution d'intensité dans le volume considéré correspond à la fluence normalisée fois la puissance incidente $\phi_{norm}.P$. Les algorithmes de simulation Monte-Carlo pour la propagation de la lumière utilisent le concept de paquet de photons afin de respecter le fait qu'un photon est un quantum d'énergie. L'algorithme peut-être décrit ainsi [143], pour un paquet de photons se propageant dans un même milieu :

1. Un paquet de photons est "lancé"

2. Une distance de propagation est calculée. Elle est contrôlée par les valeurs des coefficients α_s, α_a et une variable aléatoire.
3. Une fois cette distance parcourue, une fraction du paquet est absorbée est l'autre est diffusée
   — La fraction absorbée est calculée sur la base des coefficients d'absorption et de diffusion
   — La nouvelle direction de la fraction diffusée est aléatoire et pondérée par la fonction de phase
4. Un paquet de photons dont le poids p est inférieur à un seuil donné a une 1 chance sur m de survivre avec un nouveau poids pm. Dans le cas contraire il est détruit. Cette étape dite de "roulette russe" permet de terminer un paquet de photon tout en respectant le principe de conservation d'énergie.
5. le processus est répété un très grand nombre de fois. Le nombre d'itérations doit être choisi suffisamment grand afin que le résultat ait du sens.

Certains codes de calcul -c'est le cas de MCmatlab- permettent de prendre en compte la différence d'indice de réfraction entre deux milieux et calculent le % transmis et réfléchi à l'interface avec les équations de Fresnel et une nouvelle direction de propagation avec la loi de Snell-Descartes.

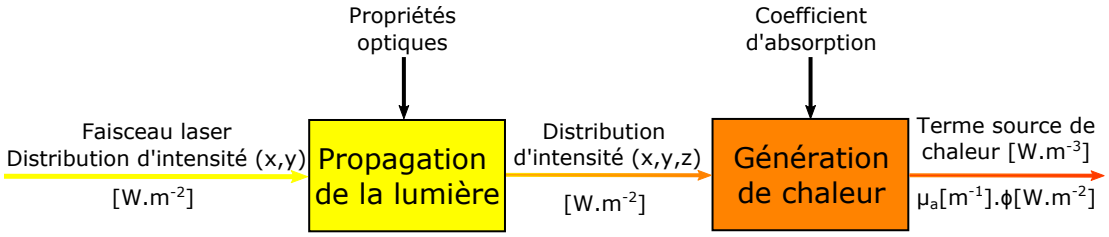


FIGURE 4.10. – Schéma de l'obtention d'un terme source de chaleur. L'obtention de la distribution d'intensité se fait grâce à la simulation Monte-Carlo qui correspond à l'étape "propagation de la lumière".

Pour illustration des capacités de MCmatlab, prenons un cuboïde de simulation de dimension 1x1x1 cm^3. Le cylindre de rayon 4,1 mm centré sur ce cuboïde est défini comme ayant les paramètres suivants :

— $g = 0,5$
— $\alpha_s = 1/15.10^{-4}\ m^{-1}$
— $\alpha_a = 1/100.10^{-4}\ m^{-1}$
— $n = 2,5$

Le milieu ambiant est fixé comme étant de l'air, soit :

— $g = 1$
— $\alpha_s = 10.10^{-10}\ m^{-1}$
— $\alpha_a = 10.10^{-10}\ m^{-1}$
— $n = 1$

La géométrie ainsi définie est visible Figure 4.11. On illumine la géométrie avec un faisceau annulaire gaussien centré sur le cylindre. Son rayon est 3,7 mm et son waist de 0,25 mm.

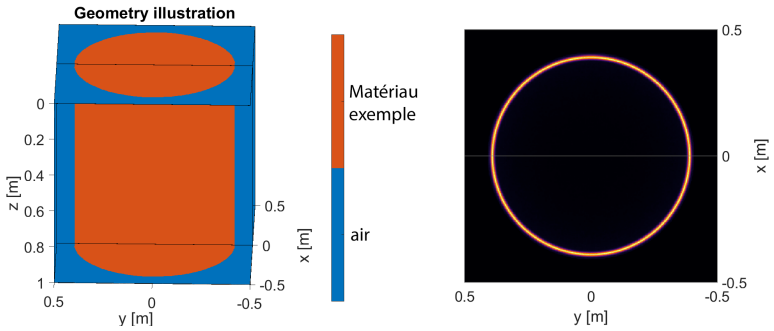


FIGURE 4.11. – A gauche : visualisation du cuboïde de simulation utilisé. A droite : profil d'irradiance utilisé pour le lancer de photons de la simulation Monte-Carlo de chauffes annulaires.

Le résultat de la simulation obtenue est visible en Figure 4.12. Pour cet exemple un million de paquets de photons ont étés lancés. Cet exemple illustre bien l'effet d'élargissement qu'est susceptible de subir le faisceau laser alors qu'il se propage dans l'épaisseur du matériau.

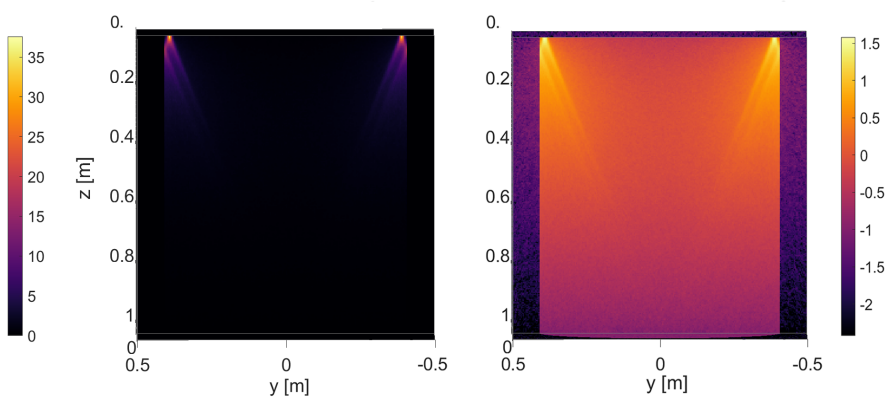


FIGURE 4.12. – A gauche : Graphique de la distribution d'intensité normalisée dans le cuboïde. Vue de coupe passant par le centre du cuboïde. A droite : Idem mais en échelle log.

Pour les simulations visant à obtenir un terme source de chaleur que nous verrons dans le prochain chapitre, le cuboïde de simulation fait $8{,}4.10^{-3}$x$8{,}4.10^{-3}$x(EP+10^{-6}) m^3, avec EP l'épaisseur du disque considéré. Les voxels ont un volume de 5x5x1 μm^3. Nous sommes ici limités par la mémoire vive de l'ordinateur utilisé (256 Go) et par l'outil en lui même qui n'est pas adapté pour des domaines composés d'autant d'éléments (crash de Matlab notamment). Une lame d'air de 10 μm est placée au dessus de la face illuminée par le profil d'irradiance choisi afin de simuler le changement de milieu directement dans l'étape de simulation Monte-Carlo (% de réflexion calculé avec les équations de Fresnel).

4.4. Maillage et conditions limites

Nous mettons à profit l'axisymétrie du chargement annulaire et réalisons les calculs avec un schéma 2D axisymétrique, l'axe de symétrie étant le centre du disque (voir Figure 4.13 pour illustration). Dans le cas d'une chauffe laser réalisée en utilisant le faisceau homogène seul ou combiné, l'hypothèse d'axisymétrie reste évidement valide.

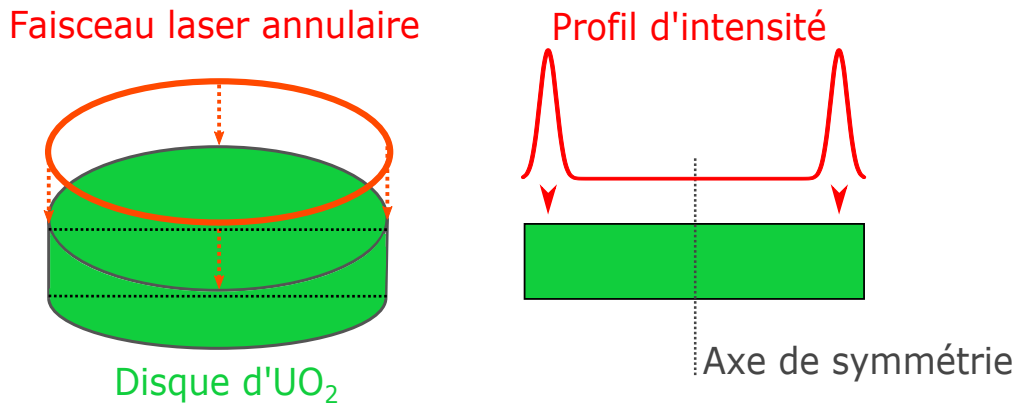


FIGURE 4.13. – A gauche : représentation d'un disque d'UO_2 chauffé sur une face par un faisceau annulaire. A droite : coupe axiale du disque montrant l'axe centrale.

Le maillage réalisé consiste donc en une coupe axiale du disque sur un demi-diamètre. Nous utilisons des éléments à 4 faces (quadrangles) quadratiques pour réaliser le maillage. La densité du maillage est

axialement dense au niveau de la face chauffée (1 μm) et est progressivement relâchée jusqu'à atteindre 25 μm. Radialement la densité est maximale (5 μm) au niveau de la zone d'intensité maximal (r=R_{an}) et est progressivement relâchée dans les deux directions jusqu'à atteindre 50 μm.

Pour les conditions limites appliquées, nous considérons les pertes de chaleur par rayonnement sur la face externe et la face chauffée du disque. Une émissivité de 0,85 est considérée. Les déplacements mécaniques radiaux sont logiquement bloqués au niveau de l'axe symétrie. Nous bloquons de plus les déplacements axiaux sur la face basse de la pastille. Un exemple de maillage pour une épaisseur de 1 mm avec les conditions limites appliquées est donné Figure 4.14.

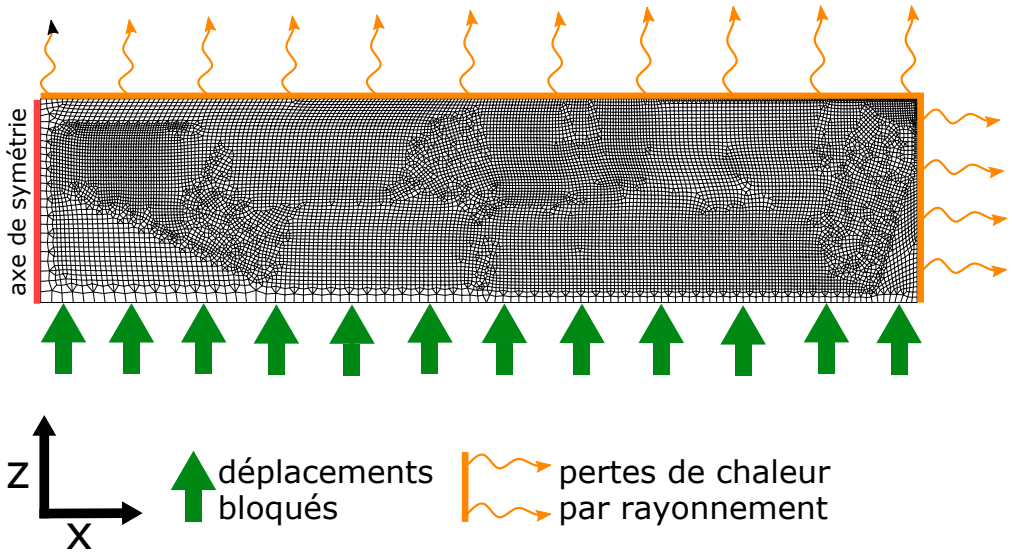


FIGURE 4.14. – Maillage et conditions limites associées

4.5. Conclusion

Ce chapitre nous a permis de présenter une revue des propriétés thermophysiques de l'UO_2 dense non irradié disponibles dans la littérature. Ces propriétés sont pour la plupart toutes issues de deux compilations, l'une qui se présente sous la forme d'un article paru dans le Journal of Nuclear Materials[125] et l'autre sous la forme d'un handbook publié par l'AIEA [5].

Nous avons ensuite présenté le paramétrage d'un modèle d'endommagement, le μ-model, classiquement utilisé pour la description du comportement mécanique du béton. Ce paramétrage permet de décrire la dépendance à la température du comportement mécanique de l'UO_2 à haute-vitesse de déformation. Le choix des paramètres du modèle a été effectué à partir de la littérature disponibles sur le comportement mécanique de l'UO_2 en compression, notamment les essais réalisés par Salvo et al à haute-vitesse de déformation ($\dot{\epsilon} = 10^{-1}/s$) [54].

Avec ce modèle, la perte de rigidité du matériau est représenté par un scalaire D compris entre 0 et 1 qui est directement appliqué au module élastique du matériau pour traduire son endommagement. L'endommagement peut-être causé par des chargements à dominante de traction ou de compression et considère deux modes d'endommagements distincts. Le modèle a été spécialement développé pour des chargements mécaniques bi ou tri-axiaux. Ce modèle doit à terme rendre compte du comportement des échantillons soumis à une chauffe laser et ainsi nous permettre d'interpréter ou de prédimensionner les expériences.

La description du chargement laser a ensuite été présentée avec deux formulations possibles : la première se base sur l'hypothèse d'une propagation rectiligne de l'onde électro-magnétique dans le matériau et permet une formulation analytique d'une source de chaleur volumique. La deuxième approche permet de prendre en compte une éventuelle diffusion de l'onde électro-magnétique à

mesure qu'elle se propage dans le matériau et passe par une étape de lancer de photons par simulation Monte-Carlo. Nous notons en particulier que les différents paramètres physiques permettant de décrire complètement le phénomène de diffusion ne sont pas connus et n'ont pas été déterminés durant ces travaux de thèse, aussi l'approche du lancer de photons ne pourra conduire qu'à une étude d'impact d'un potentiel phénomène de diffusion. Pour terminer, nous avons explicité l'hypothèse de symétrie retenue et le maillage généré pour la réalisation des simulations thermo-mécaniques. Les conditions limites imposées à ce maillage ont été présentées.

Dans le chapitre suivant nous présenterons d'abord les résultats expérimentaux obtenues en effectuant des chauffes laser sur UO_2. La confrontation calculs/mesures de ces expérimentations et leur interprétation seront présentées dans une deuxième partie de ce même chapitre.

5. Résultats

Sommaire

5.1. Disques d'UO_2 pour la réalisation de chauffes laser . . . 104
5.1.1. État de surface et réflectance des échantillons . . . 104
5.2. Chauffes laser et comparaison calcul-mesure . . . 104
5.2.1. Configuration expérimentale . . . 105
5.2.2. Chauffes laser annulaire . . . 105
5.2.2.1. Comparaison simulation-expérience des chauffes annulaires . . . 109
5.2.2.2. Synthèse des chauffes laser annulaires . . . 122
5.2.3. Chauffes laser homogènes . . . 122
5.2.3.1. Comparaison simulation-expérience des chauffes homogènes . . . 125
5.2.3.2. Origines de l'inhomogénéité de la température observée pendant les chauffes dites homogènes . . . 127
5.2.3.3. Synthèse des chauffes homogènes . . . 127
5.2.4. Bilan de la simulation de la thermique des chauffes laser . . . 128
5.3. Étude du comportement thermo-mécanique d'échantillons soumis à des chauffes laser annulaires . . . 129
5.3.1. Configuration expérimentale . . . 129
5.3.2. Première validation de la loi de comportement mécanique . . . 130
5.3.2.1. Présentation de la première série de chauffes "mécaniques" . . . 130
5.3.2.2. Simulations thermo-élastiques . . . 130
5.3.2.3. Simulations thermo-mécaniques avec le μ-model . . . 133
5.3.3. Deuxième série de chauffes laser annulaires "mécaniques" . . . 138
5.3.3.1. Simulations thermo-mécanique avec le μ-model . . . 138
5.3.4. Bilan de l'analyse thermo-mécanique des chauffes laser annulaires . . . 146
5.4. Chauffes combinées : vers la reproduction de la totalité du transitoire RIA . . . 147
5.4.0.1. Comparaison simulations-mesures de la thermique des chauffes combinées 149
5.4.0.2. Bilan des chauffes combinées . . . 151
5.5. Bilan des chauffes laser . . . 152

Nous avons présenté dans les chapitres précédents la plateforme expérimentale et l'approche retenue pour soumettre des échantillons d'UO_2 à des transitoires thermiques représentatifs d'un RIA. L'interaction laser-matière a fait l'objet d'une première caractérisation au cours du chapitre 3. Enfin, un modèle numérique de simulation thermique et mécanique a été présenté dans le chapitre 4.

Ce chapitre est donc consacré à la description détaillée des chauffes lasers réalisés sur céramique nucléaire, des résultats expérimentaux obtenus et des résultats de la simulation ainsi qu'à la confrontation calcul/mesure.

Nous allons dans un premier temps présenter les échantillons utilisés et certaines de leurs caractéristiques clefs. La deuxième partie de ce chapitre sera un volet thermique qui présentera 1) les acquisitions d'imagerie infrarouge réalisées pendant différentes chauffes laser, 2) la confrontation calcul/mesure sur les champ de température mesurés et calculés. La troisième partie s'intéressera au comportement mécanique des échantillons soumis à des transitoires de type RIA et à leur interprétation par la simulation thermo-mécanique. Le modèle d'endommagement que nous venons de présenter sera confronté aux observations expérimentales.

Enfin nous terminons le chapitre par une dernière série de chauffes qui combinent le faisceau annulaire et le faisceau homogène afin de reproduire la phase de montée en température d'un transitoire RIA.

5.1. Disques d'UO_2 pour la réalisation de chauffes laser

Les échantillons utilisés dans ces travaux de thèse sont des disques d'épaisseurs variables d'UO_2 appauvri dense. Ces disques ont étés obtenus en découpant des pastilles cylindriques (ie., elles ne présentent pas les évidements des pastilles industrielles) à la scie à fil. Les pastilles ont étés obtenues par frittage de poudres sous pression isostatique (450 MPa) à 1650 °C pendant 2h sous balayage d'H_2. Toutes les opérations de préparations des échantillons ont étés réalisés à l'ICPE Labo UO_2 du CEA Cadarache. Le choix a été fait de ne pas polir ces disques et ils présentent donc des états de surface bruts de découpage avec des stries régulières. Le fait de ne pas polir les disques après découpes permet d'avoir des épaisseurs contrôlées (500, 1000, 1500 μm etc.), le réglage de la largeur des découpes se faisant à la vis micrométrique en prenant en compte l'épaisseur du fil de découpe. Cette approche permet aussi d'avoir le meilleur parallélisme entre les faces possible. En effet une étape de polissage mécanique engendre un défaut de planéité difficilement rattrapable avec les machines à notre disposition.

5.1.1. État de surface et réflectance des échantillons

Ces disques présentent comme nous l'avons dit une surface relativement rugueuse avec des stries espacées de manière régulière du fait de l'absence d'une étape de pollissage après découpe. Nous avons donc mesuré la réflexion de ces échantillons au moyen du banc de spectro-photométrie présenté dans le Chapitre 3. Cette caractérisation a été effectuée sur plusieurs échantillons afin d'obtenir une valeur moyenne de la réflectance, particulièrement à la longueur d'onde du laser (1080 nm). Nous obtenons un coefficient de réflexion de l'ordre de 0,14 à la longueur d'onde d'intérêt comme le montre la courbe de réflectance en fonction de la longueur présentée Figure 5.1.

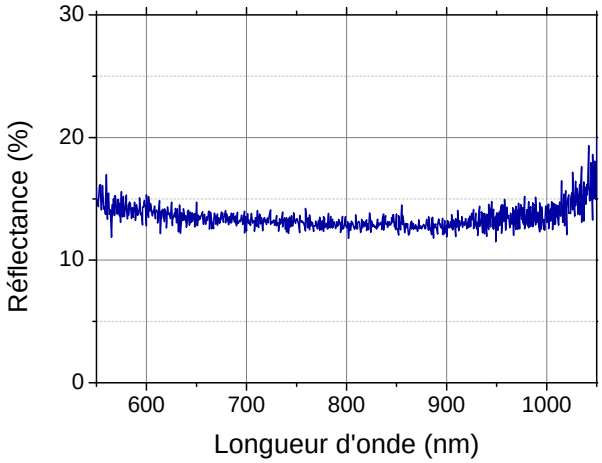


FIGURE 5.1. – Réflectance d'un disque d'UO_2 non poli.

5.2. Chauffes laser et comparaison calcul-mesure

L'objectif de ces chauffes était d'induire un chargement thermique rapide, de le caractériser et de le confronter au champ de température surfacique obtenu par la simulation numérique dont la description a été effectuée dans le chapitre 4 de ce manuscrit. La première série d'étude est constituée

de chauffes annulaires uniquement quand la deuxième est une série de chauffes réalisées avec le faisceau homogène.

5.2.1. Configuration expérimentale

La configuration expérimentale pour ces chauffes est basée sur le banc présenté dans le chapitre 2. Dans cette partie nous n'utilisons soit que le faisceau annulaire obtenu avec le laser mono-mode de 1500 W ou soit que le faisceau homogène obtenu avec le laser 2000 W multi-mode. Un schéma de la configuration expérimentale ici considérée est visible Figure 5.2. L'échantillon est placé dans le porte échantillon 2 qui maintient l'échantillon grâce à un système de mâchoires verticales. La caméra thermique observe les échantillons avec une incidence de 45°. Les images obtenues sont traitées afin de corriger la déformation due à l'angle d'incidence, d'être colorisée en fonction des températures mesurées et d'être mises à l'échelle avec le logiciel ImageJ [147]. Les extractions des profils de températures sont aussi effectuées avec ce logiciel. Pour les chauffes avec un faisceau annulaire, la mise à l'échelle est effectuée en mesurant la distance pic à pic de l'anneau thermique mesuré. Cette distance en pixels est alors considérée comme étant égal à la distance pic à pic de l'anneau laser que l'on connaît grâce à la mesure du profil d'intensité du faisceau laser avec l'imageur. Pour les chauffes sans faisceau annulaire, on se base sur une mesure du diamètre de la pastille pour mettre à l'échelle les images.

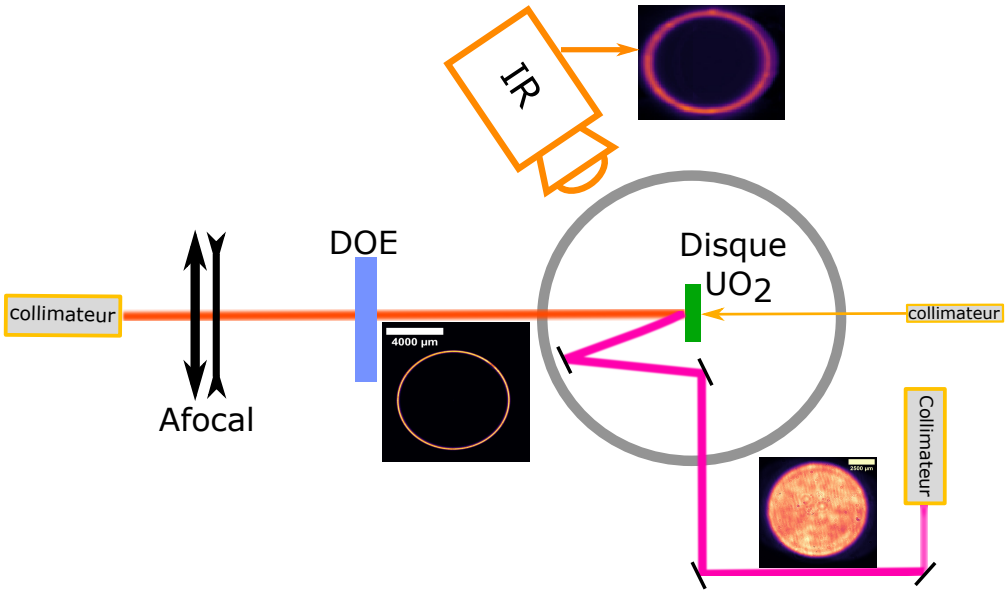


FIGURE 5.2. – Schéma de la configuration expérimentale utilisée pour la validation du modèle thermique. Le faisceau représenté en rouge correspond au faisceau annulaire et le faisceau représenté en rose au faisceau homogène. Le faisceau représenté en orange correspond à la diode de préchauffe en face arrière.

5.2.2. Chauffes laser annulaire

Deux dimensions d'anneaux laser, visibles sur la Figure 5.3 ont étés utilisées dans cette série :

— Dimensions obtenues à la distance focale de l'optique diffractive avec un rayon R_{an} de 3,9 mm et un waist à $1/e^2$ de 0,1 mm.
— Dimensions obtenues dans une configuration légèrement défocalisée (environ 5 cm) avec des dimensions d'anneau de rayon 3,660 mm et 0,260 mm de waist à $1/e^2$.

La caméra infrarouge que nous utilisons peut travailler dans la gamme 35 :350 °C, 250 :1500 °C et 500-3000 °C (Tableau 2.2). Pour cette série de chauffes nous nous sommes placés dans la première et

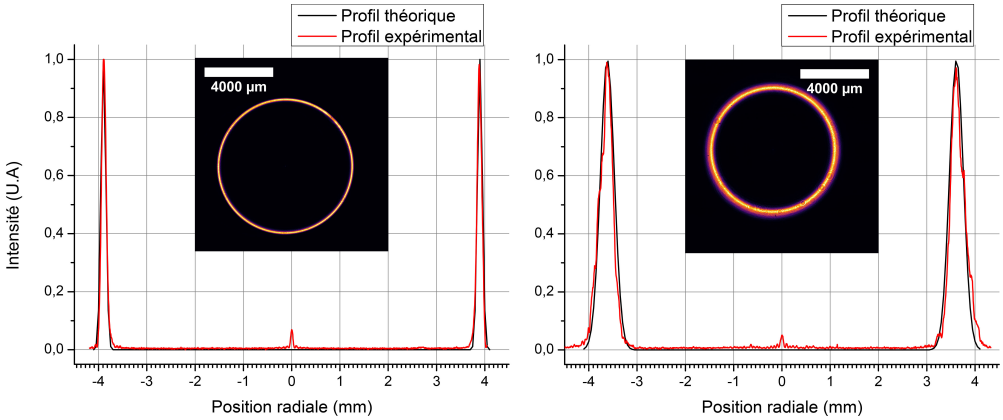


FIGURE 5.3. – Profil expérimental mesuré avec l'imageur Beamage-4M et théorique pour le faisceau annulaire focalisé (à gauche) et défocalisé (à droite). L'image des faisceaux est au centre des deux graphiques.

deuxième gamme de température soit une température initiale de 35 ou 300 °C. Les durées d'impulsions étaient toujours de 20 ms et la puissance a été augmentée de façon à aller progressivement jusqu'au maximum de la gamme de température considérée.

La température maximale mesurée a été bornée autour de 1300 - 1500 °C du fait que les disques d'UO_2, lorsque soumis à une chauffe laser annulaire, présentent une modification de l'état de surface si la température atteinte est trop importante et il est possible que ce changement d'état de surface modifie le couplage du laser dans l'échantillon pendant la chauffe (Voir Figure 5.4 pour un exemple d'une telle modification de l'état de surface observée post-chauffe).

Nous verrons aussi par la suite que la température réelle est en réalité certainement bien supérieure à la température mesurée, avec par exemple 1300 °C mesurée correspondant dans certains cas à des températures réelles autour de 2000 °C. Un récapitulatif de la matrice de test est donné dans le tableau 5.1. L'épaisseur des échantillons utilisés pendant cette série de chauffes était de 1 mm. Les chauffes manquantes correspondent à des expériences non exploitables (erreur d'alignement du faisceau, saturation de la caméra infrarouge etc.)

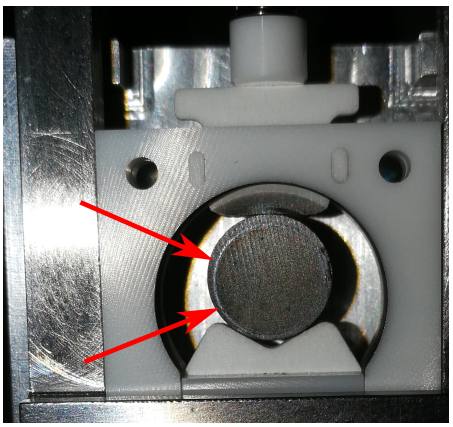


FIGURE 5.4. – Exemple de marquage périphérique de l'échantillon observé post-chauffe. Nb : on peut voir ici que le faisceau annulaire était mal aligné durant cette chauffe.

Dans cette section, nous allons particulièrement étudier les quatre chauffes suivantes : C11, C13, C17 et C18. Elles correspondent à quatre chauffes de même durée et même puissance (20 ms, 120 W) dans les deux configurations de faisceaux étudiées et à deux températures initiales différentes (55 et 330 °C, respectivement).

N°	Config. Faisceau	Puissance (W)	Température initiale (°C)
C1	défocalisé	120	35
C4	défocalisé	120	310
C6	défocalisé	320	340
C8	focalisé	120	300
C9	focalisé	250	300
C11	défocalisé	120	55
C12	défocalisé	146	60
C13	défocalisé	120	320
C15	défocalisé	320	320
C16	défocalisé	453	320
C17	focalisé	120	55
C18	focalisé	120	330

TABLEAU 5.1. – Récapitulatifs des chauffes annulaires de la série "thermique".

Présentons tout d'abord les chauffes C17 et C18. Plusieurs remarques peuvent êtres faites de prime abord en regardant les acquisitions thermographiques comme celles données pour illustration sur la Figure 5.5.

Premièrement on peut remarquer que lorsqu'on part d'une température supérieure à la température ambiante, un effet de bord est visible du fait que le bord de la pastille rayonne. Cet effet, indiqué par les flèches pleines sur l'image, est le plus important sur le bord gauche de l'image qui est le côté saillant pour la caméra qui visualise l'échantillon à 45°. On peut aussi voir sur la chauffe avec une température initiale de 330 °C un effet du porte échantillon. En effet l'influence des mâchoires haute et basse sur les images thermographique se devine assez facilement et est indiqué par les flèches en pointillées sur l'image. De plus et du fait de la visualisation avec un angle d'incidence de 45°, la mise au point n'est pas la même le long de l'axe horizontal de l'image. Pour toutes ces raisons, nous décidons de ne regarder que le profil de température vertical passant par le centre du disque. Néanmoins, des mesures de températures le long de la circonférence seront parfois présentées pour estimer l'homogénéité du chauffage.

Deuxièmement la 20ème image pour chaque acquisition est à des niveaux de températures inférieurs à ceux observés sur la 19ème malgré la synchronisation de l'impulsion laser avec le déclenchement de la caméra. La fréquence d'acquisition de la caméra étant fixée à 1000 Hz, on pourrait s'attendre à ce que la première image corresponde à t=1 ms par rapport au début de l'impulsion laser. Le fait que la 20ème image présente des températures inférieures à la 19ème nous indique une incertitude temporelle d'au maximum 1 ms.

On peut voir sur la Figure 5.6 le tracé du profil de température pour la chauffe 17. Le profil a été tracé sur 8,2 mm -ce qui correspond au diamètre de la pastille- le long d'un segment centré sur le disque. On observe une bonne symétrie et un profil de température typique d'une chauffe laser annulaire.

On peut voir sur la Figure 5.7 les tracés des profils de température verticaux pour la chauffe 18. Ils sont tracés une fois sur toute la distance où l'on mesure une température qui n'est pas la limite basse de la gamme (250 °C) et tracés une fois sur 8,2 mm uniquement centré sur le disque. Là encore on note la bonne symétrie des profils et une forme typique d'une chauffe annulaire. Néanmoins on peut voir que le profil tracé est en réalité plus large que le diamètre du disque échantillon utilisé. On prendra donc soin par la suite de ne considérer les profils que sur la longueur correspondant au diamètre ou au rayon de l'échantillon. Nous verrons par la suite qu'il est probable que les aberrations du système de mesure étalent la mesure et le rayonnement thermique observé au delà des dimensions physiques de l'échantillon. Nous voyons au travers de ces 2 exemples qu'il est très important d'avoir conscience des biais induits par notre dispositif expérimental et de notre système de mesure : effets du porte échantillon légèrement visible, contributions de la tranche du disque observé qui rayonne, aberrations du système de mesure etc.

Au total une douzaine de chauffes annulaires d'une durée de 20 ms mais de puissance différentes en

configuration focalisée ou défocalisée ont étés réalisées. Nous avons voulu au travers des exemples ici utilisés mettre en exergue les biais induits et à prendre en compte lors de la confrontation calculs/mesures que nous allons réaliser dans la partie suivante.

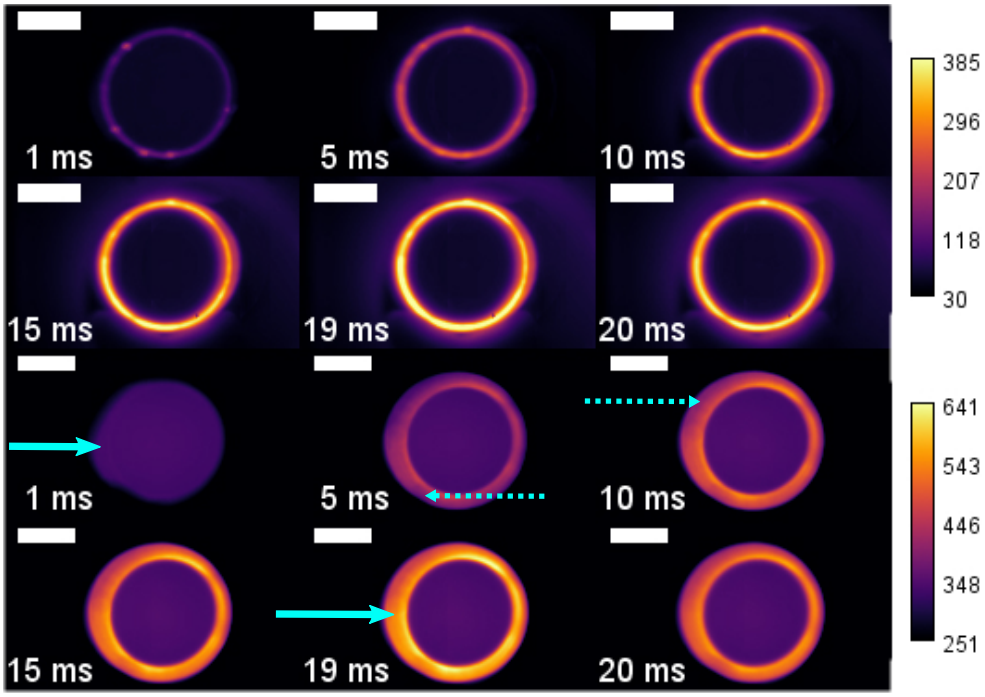


FIGURE 5.5. – Images en fausses couleurs pour deux chauffes de 20 ms réalisées avec un faisceau annulaire focalisé (C17 et C18). En haut : température initiale d'environ 55 °C. En bas : température initiale d'environ 330 °C. Les barres d'échelles font 4 mm. L'échelle de température est en °C.

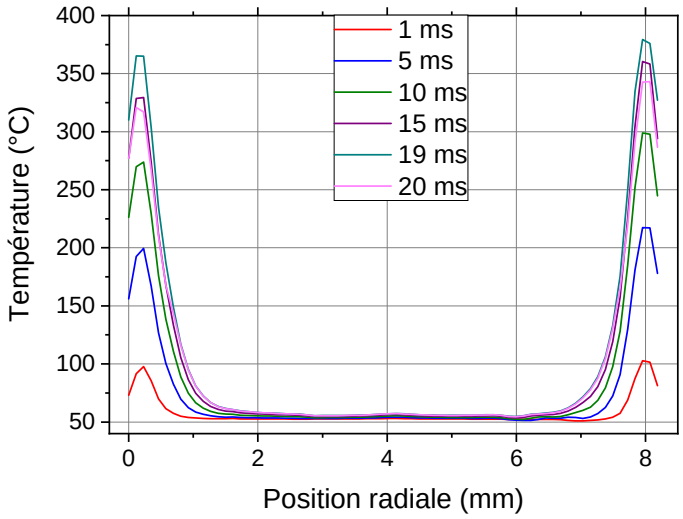


FIGURE 5.6. – Chauffe C17, profils de température pour différents instants tracés sur 8,2 mm centrés sur le disque

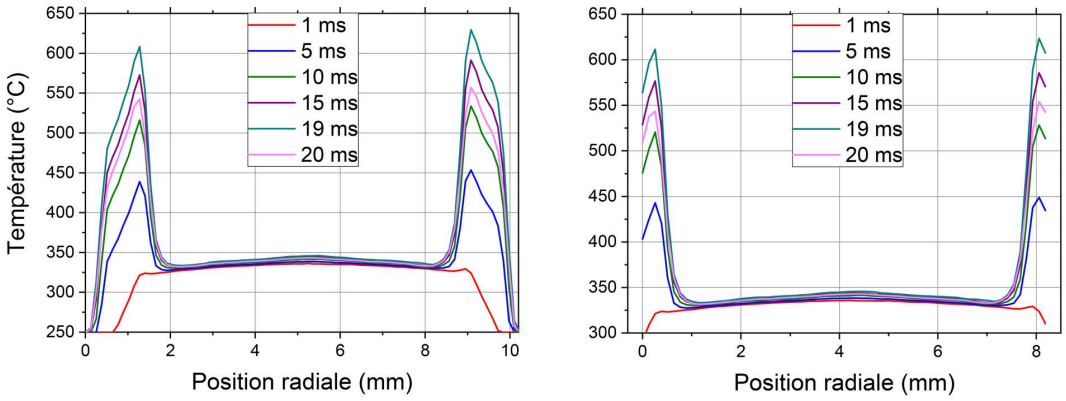


FIGURE 5.7. – A gauche : profils de températures en fonction du temps pour la chauffe C18 (température initiale 330 °C). A droite : Les profils sont tracés seulement sur 8,2 mm centrés sur le disque.

5.2.2.1. Comparaison simulation-expérience des chauffes annulaires

Nous venons de présenter la série de chauffes laser annulaire que nous allons utiliser pour valider la partie thermique du code de simulation présenté dans le chapitre précédent. Pour rappel nous utilisons pour décrire le chargement laser l'équation théorique de la répartition d'intensité du faisceau annulaire combinée à une loi de Beer-Lambert pour décrire l'absorption du faisceau dans l'épaisseur du matériau. La Figure 5.3 qui compare les profils d'intensité mesurés et théoriques montre bien que l'on peut utiliser le profil d'intensité théorique pour décrire le chargement laser.

Reprenons les deux chauffes présentées dans la section précédente (Figure 5.5, C17 et C18) et considérons en plus deux chauffes en configuration défocalisée, de 20 ms et de puissance 120 W avec une température initiale de 35 et 300 °C, respectivement. Cela correspond aux chauffes C11 et C13. On peut voir sur la Figure 5.8 les isovaleurs de température à 20 ms pour la chauffe C13. Du fait de l'absorption qui survient majoritairement proche de la surface et de la faible conductivité thermique de la céramique, l'élévation de la température est restreinte en profondeur comme le montre la courbe Température en fonction de la profondeur sur la figure. On peut voir que la température décroît rapidement avec la profondeur et que la zone affectée thermiquement est ici d'environ 200 µm en profondeur. En 20 ms, la faible conductivité thermique ne joue que très peu sur la taille de la zone affectée thermiquement, celle de l'UO_2 étant relativement basse. Aussi la zone affectée thermiquement par les chauffes lasers reste limitée à une zone sous la surface de l'échantillon. Par la suite nous allons nous concentrer sur les valeurs de températures surfaciques en comparant les profils radiaux.

La comparaison directe des profils de température simulés et mesurés visible sur la Figure 5.9 montre un écart très important entre les valeurs mesurées et calculées. On peut notamment voir que le profil de température mesuré est de moindre amplitude -de façon générale entre 1,5 et 2 fois plus petit- et plus large que le profil simulé. Cet effet est aussi visible sur les chauffes réalisées avec un faisceau plus large bien qu'il semblerait que l'utilisation du faisceau annulaire défocalisé qui est environ 2,5 fois plus large que le faisceau annulaire focalisé atténue l'écart calcul-mesure observé comme on peut le voir sur la Figure 5.9, en bas.

Assez logiquement, on peut émettre deux hypothèses sur l'origine de cet écart :

— Un phénomène physique impactant au premier ordre le dépôt de puissance et le couplage du laser dans le matériau qui n'est pas pris en compte dans la simulation
— Le système de mesure infrarouge utilisé induit des biais importants dans la mesure et les images thermographiques obtenues ne sont pas complètement représentatives de la réalité

FIGURE 5.8. – Isovaleurs de température en °C au temps t=20 ms, chauffe C13. A droite, dans l'encart : Température en fonction de la profondeur sur une coupe passant par la température maximale (position radiale r=R_{an})

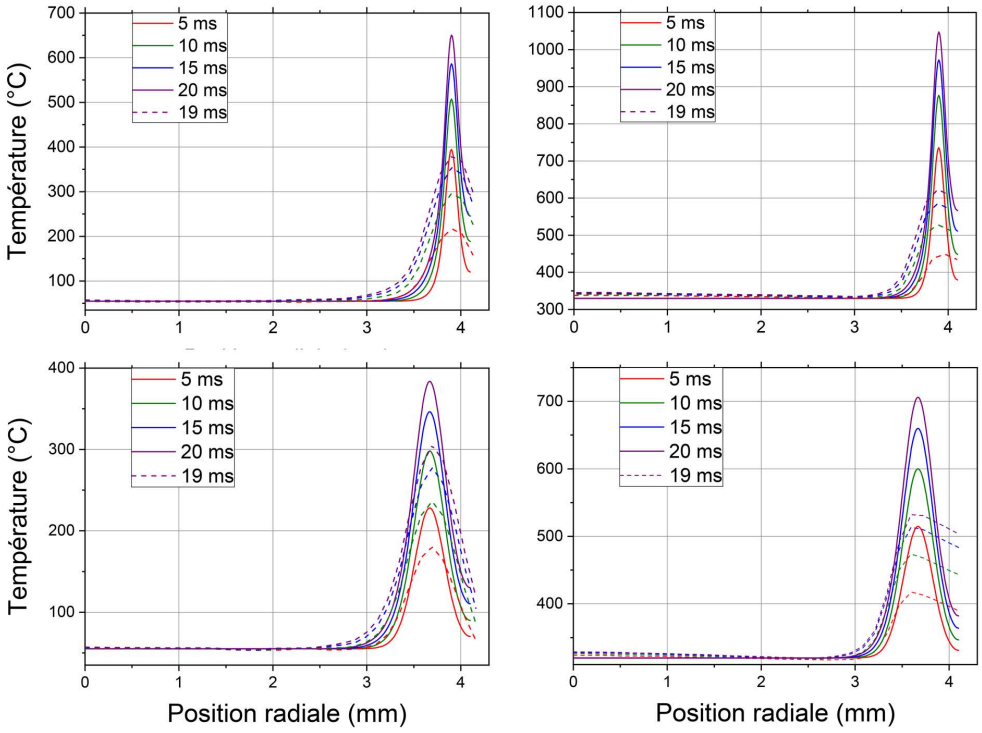


FIGURE 5.9. – De gauche à droite, en haut : profils simulés (lignes pleines) et mesurées (lignes en pointillées) pour deux chauffes de 20 ms, 120 W, faisceau annulaire focalisé avec une température initiale d'environ 55 et 330 °C (C17 et C18). En bas : profils simulés (lignes pleines) et mesurées (lignes en pointillées) pour deux chauffes de 20 ms, 120 W, faisceau annulaire défocalisé avec une température initiale d'environ 55 et 330 °C (C11 et C13).

Bien entendu, nous avons déjà introduit le concept d'aberrations et de PSF pour la caméra thermique qui, nous l'avons vu dans le Chapitre 2 de ce manuscrit, est susceptible de dégrader de manière importante les mesures thermiques obtenues par rapport au rayonnement thermique réel émis par l'objet chauffé. Nous avons aussi introduit le fait que la propagation du rayonnement laser dans l'échantillon n'est probablement pas rectiligne comme nous en faisons l'hypothèse dans la simulation. Même si la diffusion de la lumière par l'UO_2 n'est pas caractérisée, nous avons présenté au cours du chapitre précédent un outil de simulation Monte-Carlo (MC) qui devrait permettre de quantifier l'impact potentiel d'une éventuelle diffusion.

Prise en compte de la fonction d'étalement du point de la caméra infrarouge et impact sur les mesures

Nous venons de mettre en évidence un important écart calcul-mesure sur les profils de température qu'il convient donc d'expliquer.

Nous avons vu dans le Chapitre 2, Section 2.3.7, que la caméra infrarouge utilisée présente un étalement non-négligeable. Sa réponse impulsionelle ou Point Spread Function (PSF) a été estimée sous la forme d'une fonction gaussienne simple. Nous avons essayé de déconvoluer une fonction simple (ie., une fonction marche ou Edge Spread Function - ESF) avec l'algorithme de Richardson-Lucy qui est un algorithme de déconvolution classiquement utilisé. Nous avons pu voir que si l'algorithme arrive à reconstituer en partie la fonction marche attendue, des artefacts importants sont néanmoins induits. Ces artefacts sont dus au passage dans le domaine fréquentiel à cause de l'utilisation de la transformée de Fourier discrète par l'algorithme de déconvolution. Étant donné que la déconvolution d'une fonction 2D simple comme celle de l'ESF n'est pas satisfaisante, la déconvolution d'images plus complexes comme celles des acquisitions infrarouges réalisées pendant les chauffes laser annulaires est logiquement loin d'être satisfaisante.

Nous avons donc décidé de proposer l'approche inverse qui consiste à convertir les profils de température simulés en profils réels de température prenant en compte la PSF du système de mesure. Cela revient en pratique à "flouter" les profils calculés. Plus précisément, les profils issus de la simulation étant en 2D nous allons utiliser la représentation 2D de la PSF qui est la fonction d'étalement de la ligne ou LSF. Pour rappel la LSF est simplement la dérivée de l'ESF. Cette dernière a été mesurée expérimentalement et la LSF est obtenue par dérivation numérique de l'ESF. Nous allons donc convoluer les profils de température simulés avec la LSF pour simuler les aberrations du système de mesure infrarouge. A noter que la LSF a été normalisée de façon à ce que son intégrale soit égale à 1 afin de respecter la conservation d'énergie lors de l'opération de convolution. La LSF utilisée pour la convolution est visible Figure 5.10.

La procédure, implémentée sous forme d'un script Python, utilisée pour la convolution du profil issu de la simulation est la suivante :

1. La LSF, issue de la dérivation numérique de l'ESF est considérée. Elle a été préalablement normalisée pour que son intégrale vaille 1.
2. On génère un intervalle de valeurs comprises entre 0 et 4,1 mm par pas de 85 μm. Cela correspond aux coordonnées radiales de la simulation avec un espacement égal à la largeur des pixels de la caméra thermique.
3. Une nouvelle LSF centrée sur cet intervalle est générée numériquement. Son intégrale vaut toujours 1.
4. Le profil de température simulé est interpolé sur le même intervalle.
5. On effectue la convolution des deux fonctions.

Si la LSF n'est pas centrée sur les valeurs de position radiale, le profil de température convolué est déplacé sur l'axe des abscisses en conséquence. De plus, l'opération de convolution numérique exige que la même discrétisation et le même nombre de valeurs soient utilisés pour les deux fonctions d'où l'étape d'interpolation sur un axe réglé de 0 à 4,1 mm.

Comme on peut le voir sur la Figure 5.11, les profils de température convolués permettent de grandement améliorer la comparaison calcul-mesure. Dans le cas des chauffes partant de la température

ambiante l'agrément calcul-mesure est quasi parfait en amplitude du profil. Dans le cas des chauffes avec une température initiale d'environ 330 °C, l'erreur en amplitude en fin de chauffe est de 9% et de 11% pour le cas focalisé et défocalisé, respectivement.

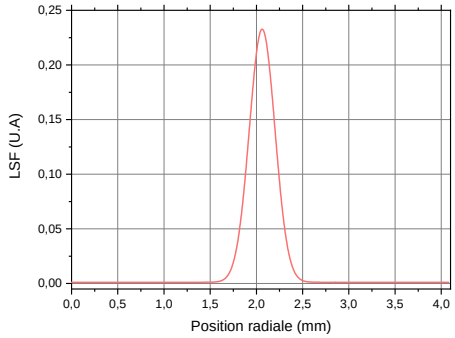


FIGURE 5.10. – LSF utilisée pour la convolution des profils de simulation. Elle est discrétisée par pas de 85 μm et centrée sur l'intervalle 0-4,1 mm

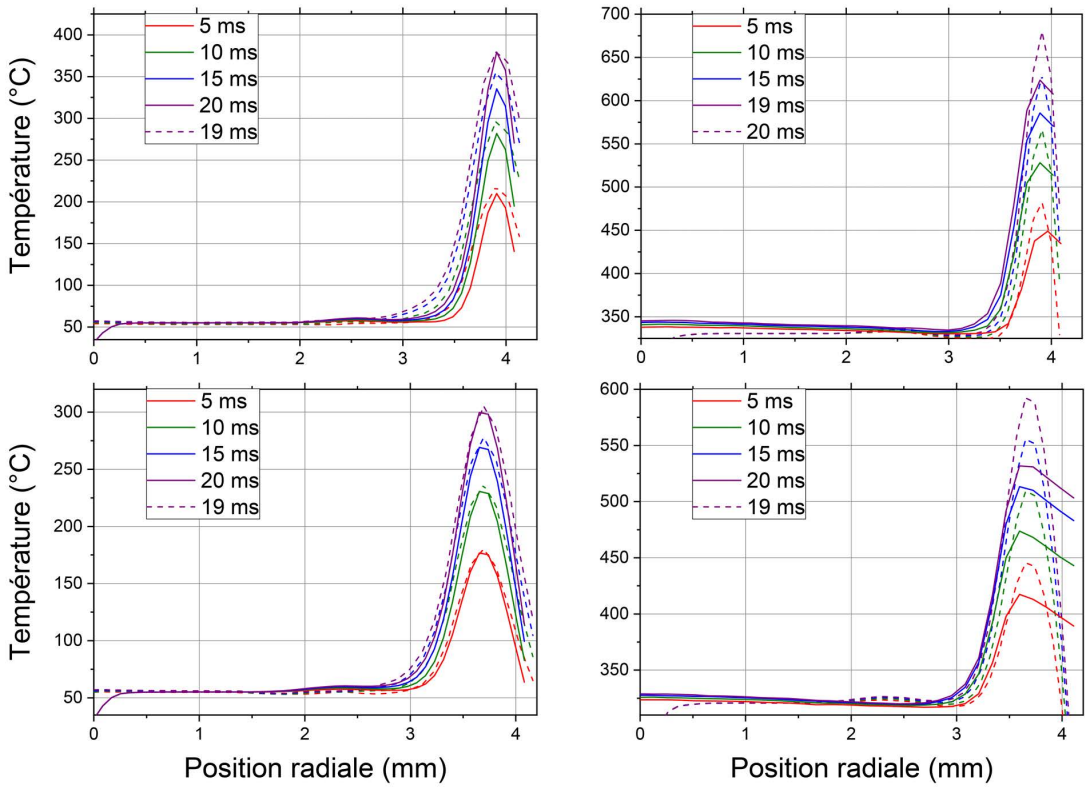


FIGURE 5.11. – De gauche à droite, en haut : profils mesurés (lignes pleines) et simulés-convolués (lignes en pointillées) pour les chauffes C11 et C13. En bas : profils mesurés (lignes pleines) profils simulés-convolués (lignes en pointillées) pour les chauffes C17 et C18.

Enfin, les trois profils de température (simulation, simulation convoluée et mesures) normalisés entre 0 et 1 sont aussi visibles Figure 5.12. Ces graphiques permettent de mieux apprécier l'élargissement des profils de températures après la convolution. Les profils de mesure ont été déplacés sur l'axe radial au

maximum de 85 μm (ie., la largeur d'un pixel) afin de bien superposer les pics et de pouvoir facilement les comparer.

On remarque tout d'abord sur ces graphiques que la différence de largeur des profils entre la simulation et la mesure est plus importante dans le cas où le faisceau est focalisé et est donc le plus fin possible. Par extension, dans cette configuration, le profil de température est aussi plus resserré et l'impact de la fonction d'étalement de la caméra est donc maximal. En effet la largeur à $1/e^2$ de la LSF est de 276 μm, soit plus du double de la largeur à $1/e^2$ du faisceau annulaire focalisé. En revanche, en configuration défocalisée les deux grandeurs sont similaires (276 et 280 μm, respectivement) et l'impact de la fonction d'étalement est donc, en proportion, moins important.

On note aussi que dans le cas de la chauffe en configuration défocalisée et partant d'une température de 330 °C, la convolution du profil de simulation rattrape moins le profil de température mesurée.

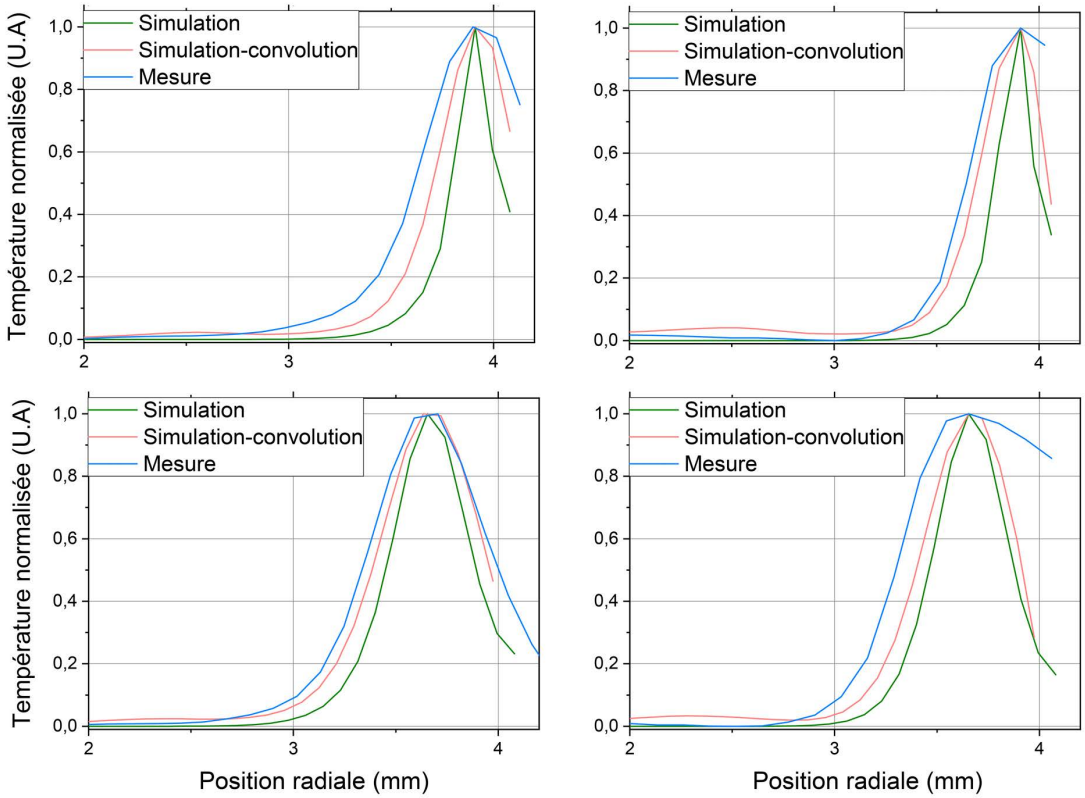


FIGURE 5.12. – De gauche à droite et de haut en bas : Profils de température normalisés pour les chauffes C11, C13, C17 et C18.

L'observation du rayonnement thermique émis par l'échantillon au travers d'un dispositif optique doté d'aberrations déforme le profil observé en l'élargissant et en réduisant son amplitude. Nous pouvons donc conclure que les niveaux de températures calculés pendant ces chauffes annulaires s'approchent surement des niveaux de température réels atteints par le matériau puisque la prise en compte du phénomène d'étalement permet de grandement améliorer la confrontation calcul-mesure.

Afin d'aller plus loin, nous proposons dans la section suivante l'utilisation de la caméra avec un objectif présentant des performances différentes, objectif que nous a prêté la société FLIR pendant quelques jours. Nous allons comparer les propriétés optiques de ce système à celui que nous avons utilisé dans ces travaux de thèse et présenterons les mesures thermiques que nous avons pu réaliser avec cet appareil.

Utilisation d'un objectif macroscopique

Afin de mieux quantifier l'impact de la fonction d'étalement de la caméra infrarouge, nous avons réalisé quelques chauffes comparatives avec un autre objectif de caméra que nous avons eu en prêt que nous appellerons par la suite objectif macroscopique. Cet objectif permet notamment une mise au point à une distance de travail comprise entre 100 et 600 mm et ne présente pas d'effet de vignettage [1] comparé à l'objectif de 100 mm couplé à des bagues allonges que nous utilisons. La résolution spatiale du système varie avec la distance de travail.

On remarque notamment l'assez grande différence de performances en terme de largeur de la fonction d'étalement entre l'objectif 100 mm couplé à une bague allonge de 0,75 pouces que nous utilisons et l'objectif macroscopique (Voir tableau 5.2). A cause de la distance de travail limité de cet objectif nous avons travaillé hors de la chambre à vide et à l'ambiante. Aussi nous nous sommes restreint à de plus courtes durées (10 ms) sans préchauffage afin de rester à des niveaux de température qui n'entraineraient pas l'oxydation du dioxyde d'uranium.

Pour chaque objectif, nous avons chauffé un disque d'UO_2 pendant 10 ms avec le faisceau annulaire focalisé et une puissance incidente de 120 W. Les profils de température mesurés à la fin de la chauffe pour les deux configurations avec le profil de température simulé sont montrés sur la Figure 5.13, à gauche. On note que la simulation thermique ne prend pas en compte la convection même si nous avons travaillé à l'air ambiant dans ce cas précis, aussi la température calculée risque d'être sur-estimée. En regardant la chauffe identique effectuée sous vide (Figure 5.9) on peut voir que la température mesurée avec l'objectif 100 mm était de 295 °C. La température mesurée en travaillant à l'air ambiante est ici de 240 °C soit une différence de 55 °C que nous attribuons donc aux pertes de chaleur par convection.

Objectif	Taille pixel	Waist ($1/e^2$) LSF (fit gaussienne)
Objectif 100 mm	85 μm	276 μm
Objectif macroscopique	50 μm	162 μm

TABLEAU 5.2. – Récapitulatif des caractéristiques de l'objectif 100 mm + bague allonge 0,75 pouce et de l'objectif macroscopique à la distance de travail utilisée pendant les chauffes

On peut voir que l'utilisation de l'objectif macroscopique qui a une fonction d'étalement différente de l'objectif 100 mm modifie le profil mesuré tant en amplitude qu'en largeur. Le profil de température mesuré avec cet objectif macroscopique est plus resserré et plus haut en amplitude que celui mesuré avec l'objectif 100 mm, se rapprochant ainsi du profil de température simulé. La convolution du profil simulé avec la LSF de l'un et l'autre objectif montre un assez bon rapprochement avec les profils mesurés dans chacun des cas. Une différence de 50 °C est visible dans le cas de l'objectif macroscopique pour des mesures réalisées à l'ambiante. Nous attribuons logiquement cette différence aux pertes de chaleurs par convection qui expliquent la raison pour laquelle le profil de simulation convolué est plus haut de 50 °C que celui mesuré.

On peut aussi comme précédemment, comparer les différents profils normalisés, ce que nous avons fait sur la Figure 5.13, à droite. On peut noter que les formes des profils convolués ne sont pas strictement identiques, ce à quoi on pourrait s'attendre si les aberrations étaient parfaitement caractérisées dans les deux cas. Néanmoins, si on ajuste le profil convolué-normalisé obtenu avec chacun des deux objectifs avec une fonction gaussienne, la différence de waist à $1/e^2$ est d'environ 50 μm. Nous nous trouvons donc dans l'incertitude du dispositif induite par la résolution d'un seul pixel (85 μm et 50 μm dans le cas de l'objectif 100 mm et macroscopique, respectivement).

1. Effet d'assombrissement de l'image sur ses bords

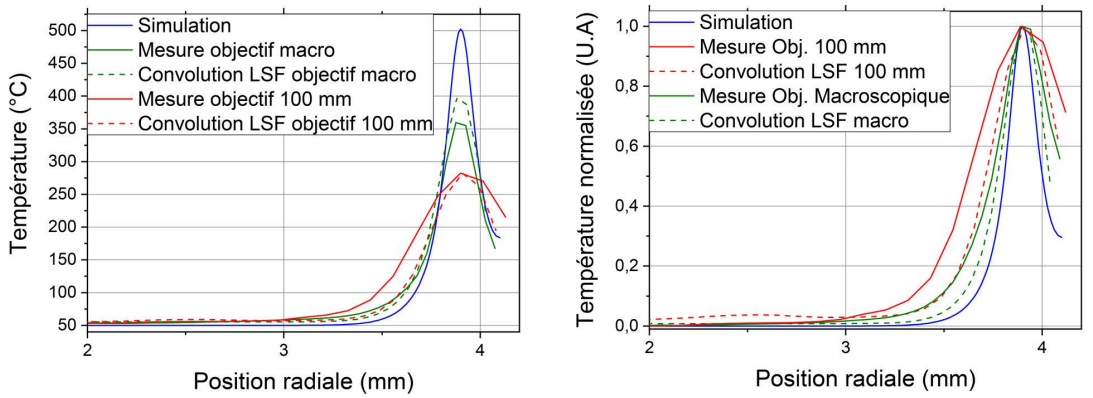


FIGURE 5.13. – A gauche : comparaison des profils de températures mesurés en fonction de l'objectif utilisé (lignes pleines, verte et rouge). Comparaison des profils simulés (en bleu) - convolués avec les LSF de chaque objectif (lignes en pointillées, verte et rouge). A droite : idem mais profils normalisés entre 0 et 1.

Pour conclure, il ressort de cette étude que :

1. Les aberrations du système de mesure infrarouge modifient bien la forme et l'amplitude des profils de température mesurés pendant les chauffes laser annulaire puisque deux objectifs aux performances différentes donnent deux profils différents en termes de forme et d'amplitude.
2. La convolution du profil de température simulé permet de bien prendre en compte l'effet d'étalement induit par la caméra infrarouge. Nous avons tracé sur la Figure 5.14 l'évolution des températures simulées par rapport celles mesurées dans le cas de la simulation prise telle quelle ou une fois convoluée. On voit très clairement que l'on améliore la comparaison calcul-mesure en convoluant le profil simulé de température.
3. Néanmoins une différence calcul-mesure subsiste au niveau de la forme des profils obtenus et parfois de l'amplitude. Le profil mesuré est systématiquement plus large que le profil simulé-convolué.

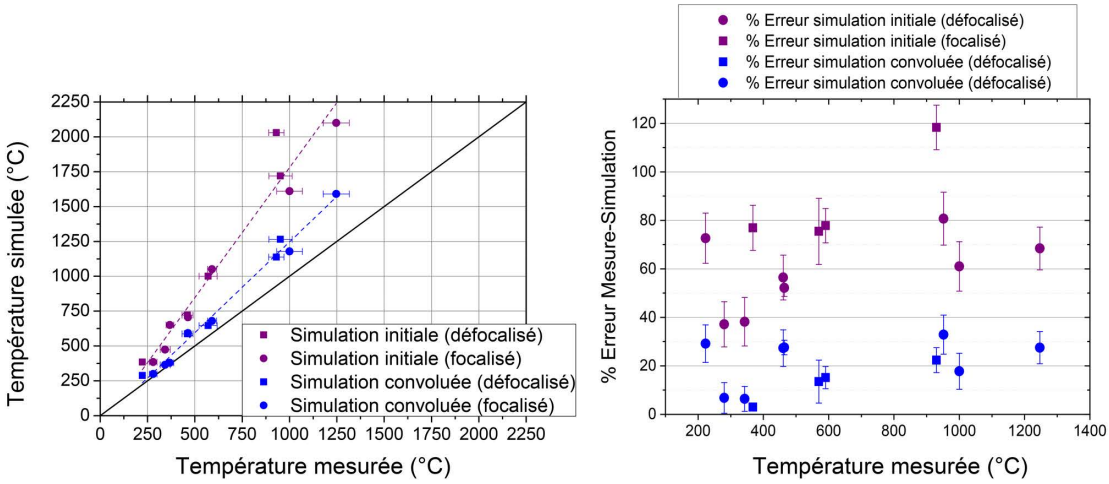


FIGURE 5.14. – A gauche : évolution des températures maximales simulées par rapport aux températures mesurées. La barre d'erreur indique l'écart type de 25 mesures effectuées sur la circonférence de l'anneau thermique. A droite : évolution du % d'erreur.

Nous attribuons cette différence restante au phénomène de diffusion lumineuse qui entrainerait un étalement latéral de la source de chaleur dans le matériau. Nous allons donc essayer de prendre en compte ce phénomène en intégrant une étape de simulation de propagation de la lumière dans un milieu diffusant avant le calcul thermique.

Impact de la diffusion : calcul d'un terme source de chaleur par la simulation Monte-Carlo

Nous venons de voir que malgré la prise en compte de la fonction d'étalement de la caméra qui permet une nette amélioration de la comparaison calcul-mesure des profils de températures de chauffes laser annulaires, des écarts subsistent entre les deux profils. Nous attribuons ces écarts au phénomène de diffusion de la lumière. Comme expliqué dans le chapitre 4, il n'existe pas, à notre connaissance, d'informations dans la littérature sur la diffusion de la lumière par l'UO_2, aussi nous souhaitons ici réaliser une étude d'impact en jouant sur les différents paramètres de la simulation Monte-Carlo. L'enchainement des calculs est alors le suivant :

1. Une simulation Monte-Carlo est effectuée avec 3 paramètres (μ_a, μ_s, g) dans un cuboïde représentatif d'un disque échantillon. Nous obtenons ainsi un terme source de chaleur.
2. Ce terme source de chaleur est utilisé dans Cast3m et est interpolé sur le maillage utilisé
3. L'équation de la chaleur en transitoire est résolue par le solveur thermique

Les profils de température obtenus par cet enchainement peuvent ensuite être comparés aux mesures thermographiques de la même manière que précédemment. Pour le choix des paramètres de la simulation Monte-Carlo nous avons considéré les points suivants :

— Le coefficient d'atténuation total α_t est égal à $\alpha_s + \alpha_a$. Dans le chapitre 3, nous avons estimé un coefficient d'absorption en ne considérant pas le phénomène de diffusion. Afin de garder une certaine cohérence, on prendra soin dans le paramétrage de la simulation Monte-carlo à ce que $\alpha_s + \alpha_a$ soit à peux près égal à 66666 m^{-1} ce qui correspond à la valeur obtenue pour α_a dans le Chapitre 3.
— Une autre grandeur connue est la réflectance d'un disque échantillon d'UO_2 qui est autour de 0,13. MCMatlab ne permet pas d'obtenir en sortie la réflexion totale d'une surface (ie., la composante spéculaire calculée sur la base des équations de Fresnel et la composante diffuse calculée statistiquement avec la méthode Monte-Carlo). Néanmoins on peut calculer avec les sorties MCMatlab le % de photons qui n'ont pas été absorbés dans le cuboïde de simulation. On prendra donc soin d'avoir un % de photons non absorbé proche de 13%.
— La partie réelle de l'indice de réfraction de l'UO_2 pour le calcul de la réflexion (équations de Fresnel) est 2,2 (cf. Chapitre 3).

Validation du schéma de calcul Monte-Carlo-Cast3m

Nous considérons tout d'abord le résultat obtenu après avoir généré un terme source de chaleur avec les propriétés matériaux suivantes : g=0,99, $\alpha_s = 1.10^{-8}$ m^{-1} et $\alpha_a = 1/15.10^{-6}$ m^{-1}=66 666,66 m^{-1}, correspondant à une profondeur de pénétration δ_{pa} de 15 μm. Le nombre de photons demandés était de 5 millions. Ces propriétés matériaux reviennent à considérer un matériau non diffusant avec un coefficient d'absorption correspondant à celui que nous avons déterminé dans le chapitre 3. Nous considérons une puissance de 120 W et les dimensions de faisceau $R_{an} = 3,66$ mm et $\omega_{an} = 0,260$ mm qui correspondent donc à la configuration défocalisée. Le terme source en fonction de la position radiale et de la profondeur est visible Figure 5.15.

Un ajustement avec une exponentielle décroissante des valeurs maximales du terme source en fonction de la profondeur donne un coefficient d'absorption égal à 70580 m^{-1} soit une profondeur de pénétration de 14,1 μm ce qui correspond relativement bien à la valeur de 15 μm. Les profils de températures obtenus lorsqu'on injecte et interpole le terme source ainsi obtenu dans Cast3m sont visibles Figure 5.16. Une bonne similitude est trouvée entre les deux schémas de calcul malgré quelques disparités, particulièrement aux premiers instants du calcul, que l'on attribue à la différence

de coefficient d'absorption entre l'expression analytique du terme source et son calcul par la simulation Monte-Carlo. L'écart à 5 ms est de 6 % entre les deux schémas de calcul. Augmenter le nombre de paquets de photons ne change pas drastiquement la valeur du coefficient d'absorption calculé avec la méthode de Monte-Carlo. Cette méthode étant probabiliste, une incertitude persistera dans tous les cas par rapport au calcul analytique.

A noter que dans le cas de la simulation Monte-Carlo, la perte par réflexion spéculaire a été calculée intrinsèquement dans MCmatlab en rentrant une valeur d'indice de réfraction pour l'UO_2 de 2,2 et de 1 pour le milieu ambiant. L'enchaînement des deux calculs semble donc fonctionner de manière satisfaisante. Nous allons donc maintenant proposer une étude d'impact de la diffusion sur les termes sources de chaleur et sur les champs de température obtenus à la fin du calcul thermique. Au cours de cette simulation, 15% des photons n'ont pas étés absorbés dans le cuboïde, ce qui est cohérent avec le % de réflectance attendu.

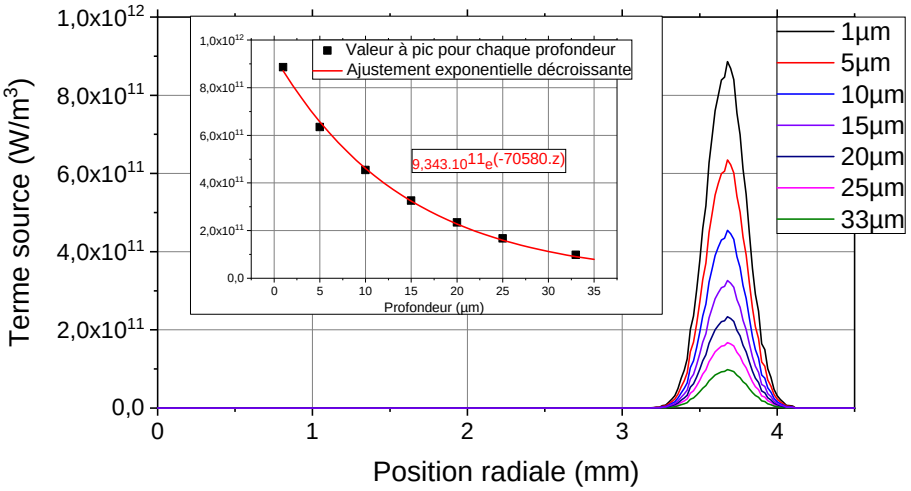


FIGURE 5.15. – Terme source de chaleur obtenu avec la simulation Monte-Carlo en considérant un matériau non diffusant à différentes profondeur. Insert : valeur maximale en fonction de la profondeur. L'ajustement avec une exponentielle décroissante permet d'obtenir la valeur du coefficient d'absorption.

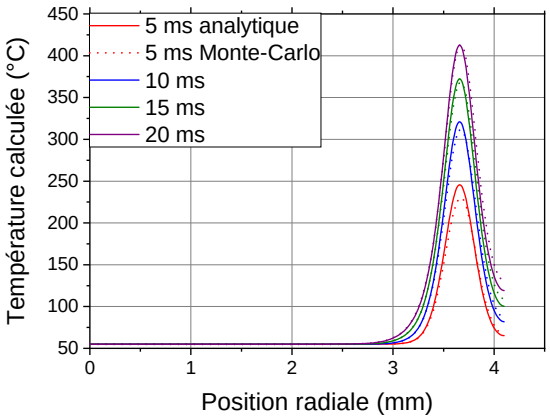


FIGURE 5.16. – Comparaison des profils de température surfaciques obtenus avec l'expression analytique du terme source de chaleur (lignes pleines) et avec un terme source obtenu numériquement avec la simulation Monte-Carlo (lignes en pointillées).

Etude paramétrique

Pour évaluer l'impact de la diffusion, nous avons généré les termes sources de chaleur pour un faisceau focalisé ou défocalisé avec une puissance incidente de 120 W, ce qui correspond aux chauffes que nous avons présentées en détail jusqu'ici (Chauffes C11, C14, C17 et C18, cf tableau 5.1).

Nous avons fait varier les paramètres de la simulation Monte-Carlo (MC) sur 9 couples de coefficient d'absorption et de diffusion avec 3 valeurs de coefficient d'anisotropie g, soit 27 configurations. Les 9 couples de coefficient d'absorption et de diffusion sont donnés dans le tableau 5.3. Les 3 valeurs de g sont 0,9, 0,75 et 0,5. Cela revient donc à générer 54 termes sources -27 jeux de paramètres matériau fois 2 configurations de faisceaux- pour 108 simulations au total -2 températures initiales pour chaque terme source-.

δ_{pa} (μm)	α_a (m^{-1})	δ_{ps} (μm)	α_s (m^{-1})	$\alpha_t = \alpha_a + \alpha_s$ m^{-1}
20	5.10^4	10	1.10^5	$1{,}5.10^5$
10	1.10^5	20	5.10^5	$1{,}5.10^5$
25	4.10^4	50	2.10^4	6.10^4
25	4.10^4	75	$1{,}33.10^4$	$5{,}33.10^4$
50	2.10^4	50	2.10^4	4.10^4
50	2.10^4	25	4.10^4	6.10^4
75	$1{,}33.10^4$	75	$1{,}33.10^4$	$2{,}67.10^4$
75	$1{,}33.10^4$	25	4.10^4	$5{,}33.10^4$
100	1.10^4	100	1.10^4	2.10^4

TABLEAU 5.3. – Couples de coefficients d'absorption et de diffusion utilisés pour le balayage paramétrique de la simulation Monte-Carlo

La variation entre 0.5 et 0.9 du coefficient d'anisotropie est négligeable dans la gamme de paramètres étudiés, que ça soit sur les niveaux ou sur la forme du profil de température atteints. Les tracés qui suivent considèrent donc la valeur intermédiaire g=0,75. L'évolution des profils de température pour chaque paramétrage est visible Figure 5.17.

On peut voir que la température à pic atteinte dépend au premier ordre du coefficient d'absorption et le coefficient de diffusion semble jouer au second ordre même si l'impact de celui reste important (courbes α_a=13333 m^{-1}, α_s=13333 m^{-1} et α_a=13333 m^{-1}, α_s=40000 m^{-1}). On remarque aussi que, dans la gamme de paramètres étudiés, l'impact sur la forme du profil de température et son élargissement est assez négligeable, comme on peut le voir sur les profils normalisés de température simulés à partir des termes sources obtenus par la simulation MC en Figure 5.18 et l'élargissement maximal est de l'ordre de la dizaine de micromètres.

Nous traçons aussi l'évolution de la température en fonction de la profondeur par rapport à la surface pour la chauffe défocalisée de température initiale 330 °C en Figure 5.19. Les températures sont tracées le long de la ligne $r = R_{an}$. On peut notamment voir que la température décroit le plus rapidement dans le cas sans diffusion, ce qui illustre bien l'impact potentiel de la diffusion sur la répartition axiale du chargement laser.

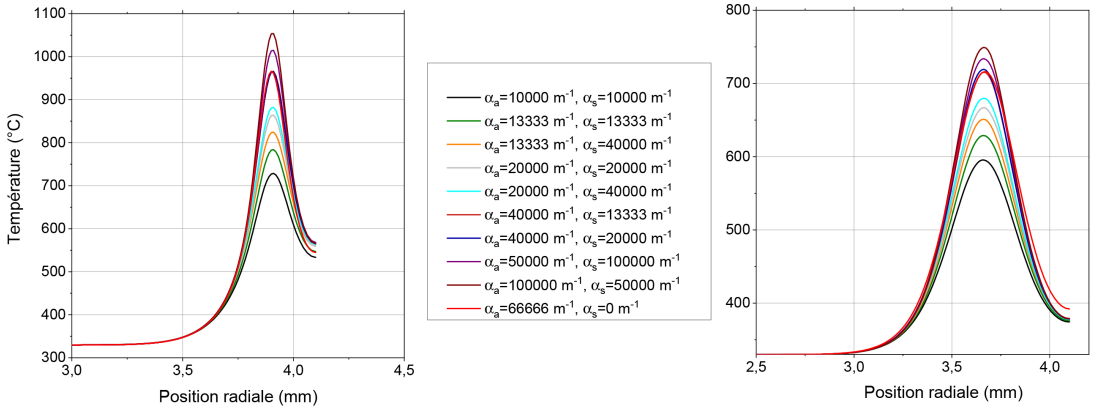


FIGURE 5.17. – A gauche : profils de température en fin de chauffes pour la chauffe de 120 W, température initiale 330 °C, faisceau focalisé pour les différents paramètres de la simulation MC utilisés. Pour tous les couples α_a, α_s, g=0,5. A droite : profils de température en fin de chauffes pour la chauffe de 120 W, température initiale 330 °C, faisceau défocalisé.

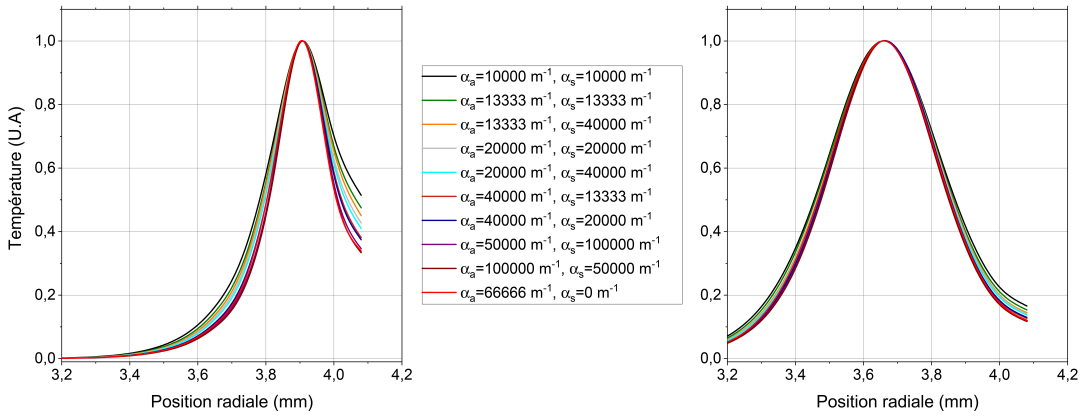


FIGURE 5.18. – A gauche : profils normalisés de température en fin de chauffes pour la chauffe de 120 W, température initiale 330 °C, faisceau focalisé pour les différents paramètres de la simulation MC utilisés. Pour tous les couples α_a, α_s, g=0,5. A droite : profils normalisés de température en fin de chauffes pour la chauffe de 120 W, température initiale 330 °C, faisceau défocalisé.

Sur la base des 108 simulations effectuées et en comparant les différents profils de température par rapport à la mesure, nous retenons le couple de paramètre α_a=2.10^4 m^{-1}, α_s=2.10^4 m^{-1} et g=0,75. Nous avons tracé en Figure 5.20 la comparaison calcul-mesure des températures à pic pour les deux types de simulations étudiées (simulation analytique avec une valeur α_a de 66666 m^{-1}-convoluée et simulation MC-convoluée avec comme paramètres α_a=2.10^4 m^{-1}, α_s=2.10^4 m^{-1} et g=0,75) pour la chauffe C18.

On peut nettement voir l'amélioration de la confrontation calcul-mesure obtenue en utilisant ce couple de paramètres. On voit néanmoins, en accord avec la remarque que nous venons de faire sur le faible écartement du profil de température simulé, l'effet négligeable de la simulation MC sur l'élargissement des profils de température obtenus et on comprend que l'amélioration de la comparaison calcul-mesure n'est pas du fait d'un élargissement du profil de température provenant de la diffusion comme nous l'attendions mais bien d'un simple abaissement de la valeur du coefficient d'absorption qui entraîne une température surfacique moins importante, cela est illustré sur la Figure 5.20, à droite, avec le tracé des profils normalisés de température entre 0 et 1 pour la même chauffe C18. Nous voyons bien que l'élargissement du profil de température induit par la simulation MC est négligeable avec nos paramètres et est complètement gommé par la convolution.

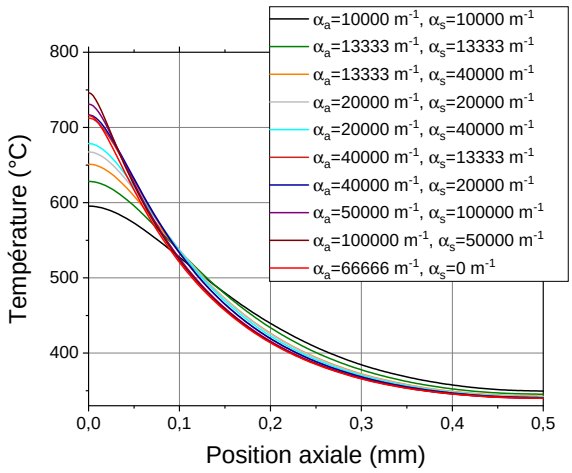


FIGURE 5.19. – Profil de température axial à R=R$_{an}$ pour la chauffe défocalisée de température initiale 330 °C pour les différents paramètres de simulation Monte-Carlo étudiés.

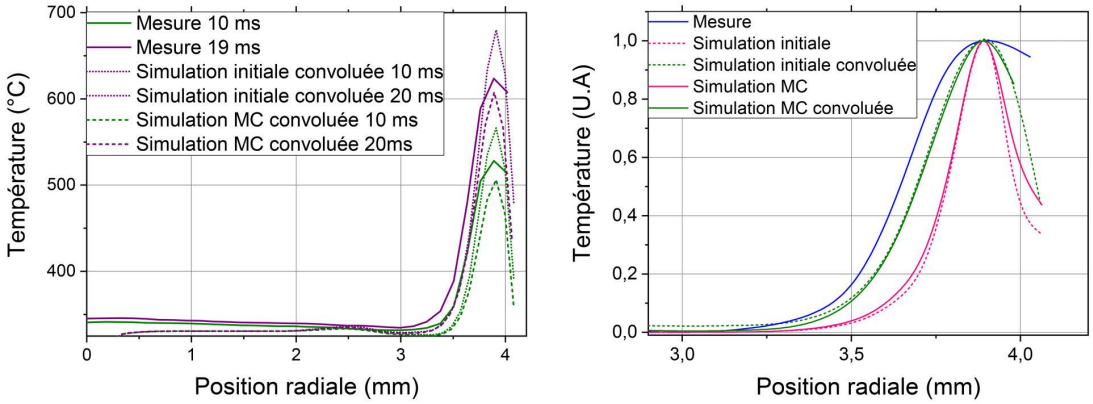


FIGURE 5.20. – A gachee : profils de températures à 10 et 20 ms mesurés, simulés-convolués et simulés MC-convolués. Chauffe laser C18. A droite : profils de température à 20 ms normalisés. Mesure, simulations (MC ou non) et simulations convoluées (MC ou non).

Enfin nous comparons les températures à pic dans le cas de la simulation MC et d'une simulation avec un terme source de chaleur analytique sans prise en compte de la diffusion avec α_a=2.10^4 m^{-1}. On peut voir sur la Figure 5.21 que, malgré la faible modification sur la forme du profil, on sous-estime maintenant les niveaux de température atteints par rapport à la mesure. Par conséquent si la diffusion ne semble pas avoir d'impact important sur l'élargissement des profils de température dans notre étude, elle joue quand même un rôle important sur les niveaux de température atteints pour une valeur donnée de coefficient d'absorption. L'évolution des températures mesurées versus les températures calculées avec la simulation Monte-Carlo est donnée sur la Figure 5.22. On peut voir que l'étape de simulation Monte-Carlo avec les paramètres retenus permet d'avoir un % d'erreur mesure-calcul autour de 10%.

Nous pouvons conclure que la prise en compte de la diffusion, si elle semble être importante, n'explique pas la différence calcul-mesure au niveau de la forme observée des profils de température. Il est donc possible que notre approche de convoluer les profils de températures simulés par la LSF de la caméra, bien qu'intéressante en première approche, ne soit pas assez rigoureuse ou précise pour complètement appréhender les aberrations induites par le système de mesure infrarouge. Il est aussi important de noter ici que la mesure de l'ESF (et donc la LSF qui en découle) est très sensible à la mise au point. La mesure de la LSF peut donc différer entre la mesure effectuée sur le corps noir et

le cas pratique. Si nous avons essayé de mesurer l'ESF dans les mêmes conditions que les conditions expérimentales il est possible que des biais aient été induits (mise au point légèrement différente, distance caméra-échantillon et caméra-corps noir légèrement différentes, position du hublot en BaF_2 différente etc.), ce qui pourrait expliquer le fait que la convolution ne rattrape pas complètement l'élargissement du profil observé.

En toute rigueur, il serait intéressant de mesurer l'ESF dans les conditions expérimentales de chauffe pour s'assurer qu'aucun biais n'est induit par la mesure de l'ESF. Nous sommes de plus limités par la résolution spatiale de la caméra de 85 μm. Enfin, les résultats du balayage paramétrique de la simulation MC sont soumis à caution et devraient être approfondis pour prendre en compte les potentiels effets de la différence de discrétisation spatiale entre la simulation Monte-Carlo et le calcul thermique de Cast3m ainsi que de l'interpolation du terme source sur le maillage utilisé dans Cast3m.

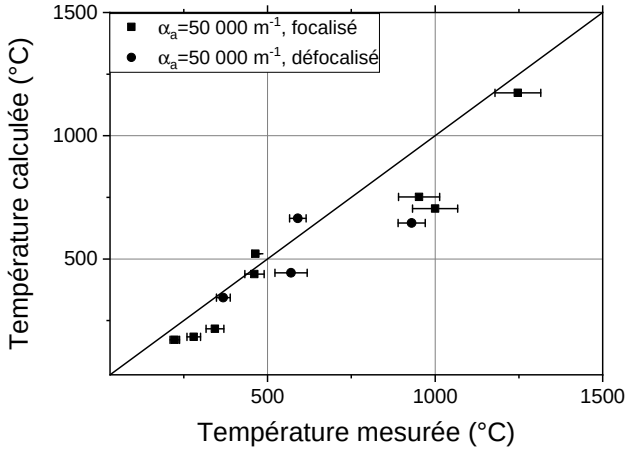


FIGURE 5.21. – Températures simulées avec α_a=5.10^4 m^{-1} sans passer par la simulation MC en fonction de la température mesurée.

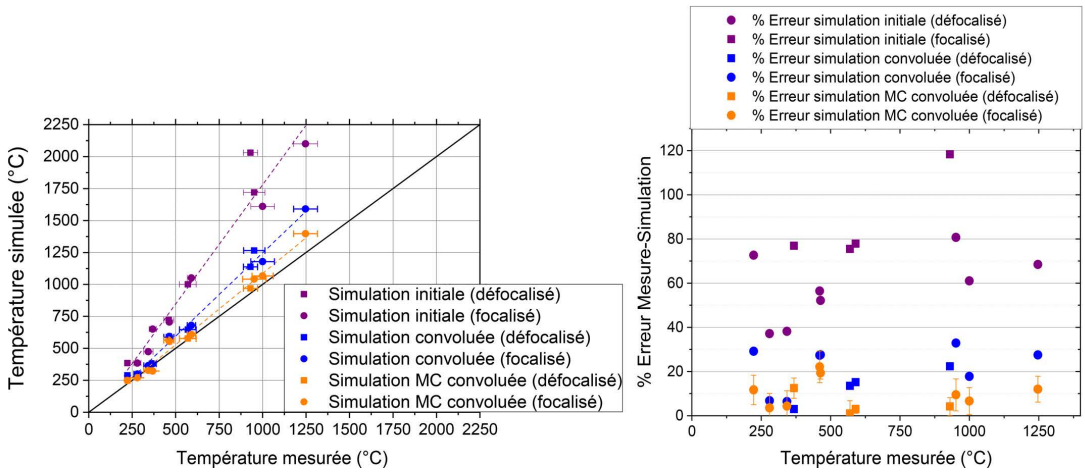


FIGURE 5.22. – A gauche : évolution des températures à pics simulées par rapport aux températures mesurées. La barre d'erreur indique l'écart type associé à 25 mesures effectuées sur la circonférence de l'anneau thermique. A droite : évolution du % d'erreur.

5.2.2.2. Synthèse des chauffes laser annulaires

Nous venons de voir une série de chauffes laser annulaires qui avait pour but d'ajuster la simulation thermique. Nous avons montré que dans le cas des chauffes annulaires, il était primordial de prendre en compte dans un premier temps la fonction de transfert optique du système d'imagerie infrarouge utilisé pour la mesure de température. L'approche que nous avons retenue consiste à convoluer les profils de températures simulés par la LSF de la caméra afin d'essayer de reproduire l'effet des aberrations sur la simulation.

Nous avons aussi comparé cette approche dans le cadre de deux objectifs de caméra différents et avons mis en évidence l'impact de la largeur de la LSF. Toutefois si cette opération de convolution permet d'améliorer la confrontation calcul-mesure, des erreurs sur la température maximale atteinte pouvant aller jusqu'à 30% subsistaient et nous avons constaté que le profil de température mesuré était systématiquement plus large que celui obtenu par la simulation-convolution.

Nous avons donc émis l'hypothèse que l'élargissement restant était dû au phénomène de diffusion de la lumière non pris en compte jusqu'ici. Nous avons alors réalisé une étude paramétrique en prenant en compte la diffusion grâce à une étape de simulation Monte-Carlo. Nous avons effectué une étude paramétrique pour essayer de quantifier l'impact potentiel de la diffusion sur les profils de température.

Nous avons pu constater que, pour les paramètres matériaux que nous avons considérés, l'élargissement des profils de températures causés par la diffusion semble négligeable. Néanmoins, nous avons mis en évidence que ce phénomène peut avoir un effet important sur les niveaux de températures. Une assez bonne comparaison calcul-mesure est obtenue en prenant comme paramètres α_a=2.10^4 m^{-1}, α_s=2.10^4 m^{-1} et g=0,75 même si nous n'arrivons pas à obtenir la même forme de profil radial de température. L'erreur calcul-mesure sur les températures à pic est alors de l'ordre 10%.

Il est possible que notre approche qui consiste à flouter les profils de température simulés par la LSF de la caméra ne permette pas de reproduire totalement l'effet des aberrations de la caméra. Il est aussi possible que la LSF mesurée sur corps noir et la LSF en condition expérimentale de chauffe soient différentes, cette fonction étant très sensible à la mise au point.

Enfin nous n'avons pas quantifié l'effet de la discrétisation spatiale utilisée pour la simulation Monte-Carlo ni de l'interpolation du terme source obtenu sur le maillage utilisé avec Cast3m pour le calcul thermique. Il est possible que ces paramètres ait aussi un impact dont il serait intéressant d'en quantifier l'importance. Il faut aussi noter que certaines incertitudes persistent sur certains paramètres tels que :

1. L'évolution de l'émissivité avec la température,
2. L'incertitude sur les propriétés thermophysiques qui tend à augmenter avec la température,
3. L'évolution de l'indice de réfraction avec la température de l'UO_2 (et donc du % de réflexion).
4. Enfin, même si nous avons calibré la puissance laser de manière régulière, des variations de puissances par rapport aux calibrations restent possibles. Une mesure en ligne de la puissance serait nécessaire en toute rigueur.

Pour conclure si on souhaite améliorer la mesure de température infrarouge, il est important de quantifier l'évolution de ces propriétés matériaux avec la température et de prendre en compte les incertitudes de celles-ci en plus des autres paramètres pouvant avoir un effet (mesure de l'ESF notamment).

5.2.3. Chauffes laser homogènes

Nous venons d'étudier le chauffage laser annulaire sur des disques d'UO_2. Nous avons discuté la confrontation calcul/mesure pour le transitoire thermique. L'impact important de l'étalement induit par la caméra infrarouge ou par le phénomène physique de diffusion de la lumière a été mis en évidence. Nous présentons maintenant dans cette section les chauffes laser utilisant le faisceau homogène pour chauffer l'intégralité de la surface de l'échantillon.

Ces chauffes dont le récapitulatif est donné Tableau 5.4 visaient à déterminer les dynamiques de température atteignables avec le montage de faisceau homogène que nous avons mis en place (chapitre 2). Elles consistent en des chauffes de durées 20 ou 100 ms avec une température initiale de 300 ou 600 °C. La puissance a été ajustée pour balayer une large gamme de température jusqu'à un maximum de 1900 W et une température maximale atteinte autour de 2600 °C.

N°	Durée (ms)	Puissance (W)	Température initiale (°C)
CH1	100	375	300
CH2	100	775	300
CH3	20	375	300
CH4	20	775	300
CH5	20	1160	300
CH6	20	1520	300
CH7	20	1900	300
CH8	100	375	600
CH9	100	775	600
CH10	100	1160	600
CH11	100	1520	600
CH12	20	375	600
CH13	20	775	600
CH14	20	1160	600
CH15	20	1520	600
CH16	20	1900	600

TABLEAU 5.4. – Récapitulatif des chauffes homogènes réalisées.

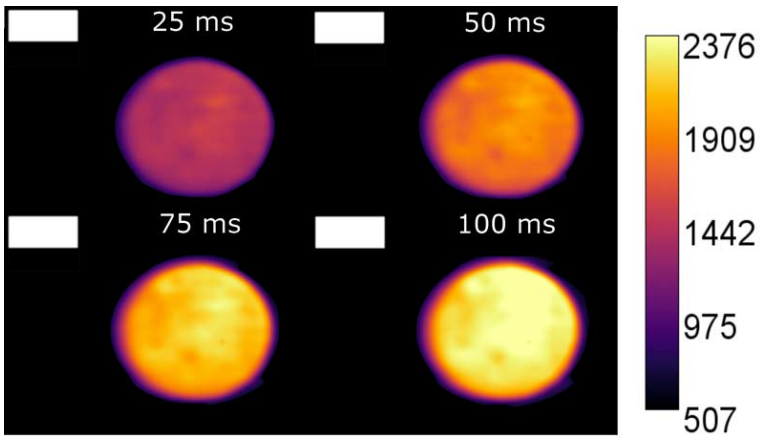


FIGURE 5.23. – Image en fausses couleurs pour une chauffe homogène de 100 ms, température initiale de 300 °C et une puissance de 1160 W. La barre d'échelle fait 4 mm et l'échelle de température est en °C.

Un exemple d'acquisition thermographique réalisée pendant une de ces chauffes homogènes est visible en Figure 5.23. On peut notamment voir que la totalité de la surface est chauffée de manière relativement homogène comme attendu. Nous présentons en Figure 5.24 les profils de températures selon deux axes obtenus pour les chauffes CH2, CH7, CH11 et CH16 qui correspondent aux quatre chauffes les plus puissantes pour chaque durée et température initiale considérées.

L'analyse des profils montre de manière générale une assez bonne homogénéité de chauffage relative avec toutefois des modulations qui peuvent être importantes. Au premier ordre, nous attribuons ces modulations au fait que le faisceau n'est pas parfaitement homogène. Une inhomogénéité de l'état de surface avec des zones plus absorbantes que d'autres qui entraîneraient des points chauds font aussi

partie des raisons pouvant expliquer les inhomogénéités de température constatées.

Néanmoins, on voit qu'il est clairement possible d'induire un chauffage relativement homogène de la surface de l'échantillon avec ce montage. Pour la chauffe la plus longue et la plus puissante (CH11, 1520 W, 100 ms, Figure 5.24, en bas à droite) la température maximale atteinte est d'environ 2600 °C, relativement proche de la température de fusion de l'UO_2 (environ 2850 °C). Les deux chauffes de 20 ms à pleine puissance (1900 W) ont des rampes de montée en température comprises entre 50 000 et 60 000 °C/s. La courbe $T = f(t)$ pour la chauffe de CH2 (100 ms, 775 W, température initiale de 300 °C) présente une vitesse de montée en température d'environ 8000 °C/s. La courbe $T = f(t)$ de la dernière chauffe (CH11, 100 ms, 1520 W, température initiale de 600 °C) fait ressortir clairement le début du transitoire avec une pente d'environ 40 000 °C/s qui se stabilise ensuite à des valeurs autour de 8000 °C/s. Ces courbes sont visibles Figure 5.25.

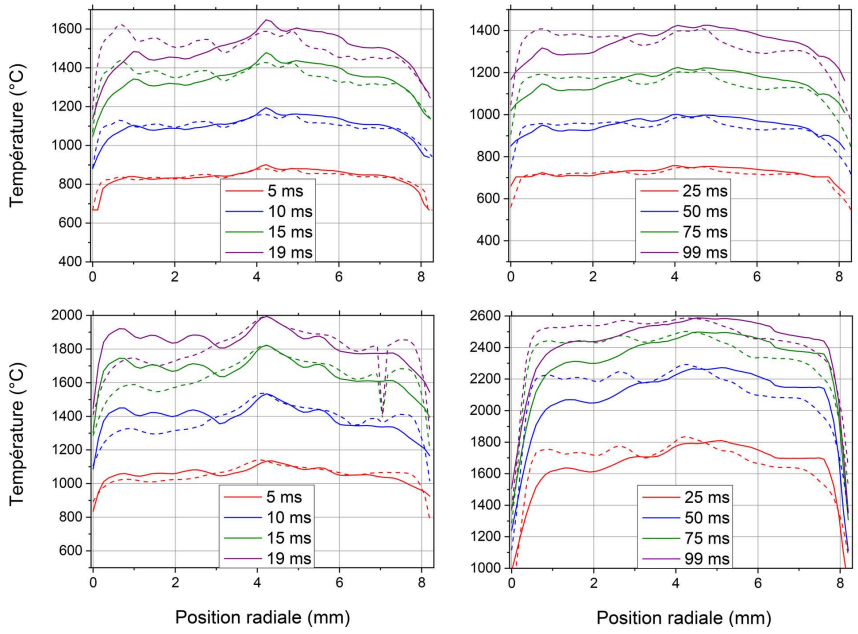


FIGURE 5.24. – En haut, de gauche à droite : Profils de température mesurées pour deux chauffes de 20 et 100 ms, 1900 et 775 W, température initiale de 300 et 600 °C (CH7 et CH2, respectivement). En bas, de gauche à droite : Profils de température mesurés pour deux chauffes de 20 et 100 ms, 1900 et 1510 W, température initiale de 300 et 600 °C (CH16 et CH11, respectivement).

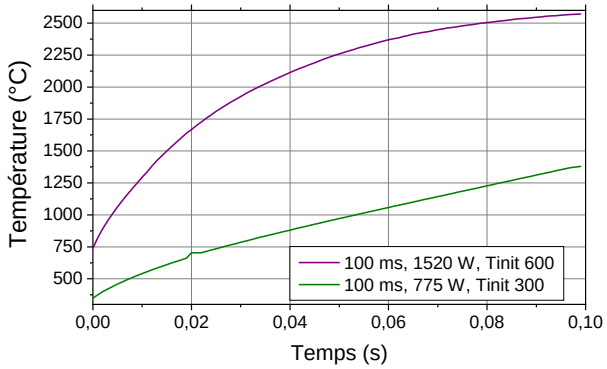


FIGURE 5.25. – Température mesurée en fonction du temps pour les chauffes CH2 et CH11.

5.2.3.1. Comparaison simulation-expérience des chauffes homogènes

Comme nous l'avons fait pour les chauffes annulaires, on compare maintenant les profils de températures mesurés et simulés.

L'expression du terme source de chaleur est analytique comme expliqué dans le chapitre 4. Le diamètre du faisceau a été mesuré dans le plan échantillon et fait 8,5 mm. Comme le terme source ainsi calculé est complètement homogène radialement, les profils de températures obtenus par la simulation sont de fait aussi totalement homogènes. Nous traçons donc pour comparaison les courbes $T = f(t)$ avec deux mesures effectuées en deux points du disque pour représenter le fait que le faisceau n'est pas parfaitement homogène. Les deux mesures ont étés effectuées sur un des pixels les plus chauds et un des pixels les plus froids de l'acquisition afin de borner la mesure.

On peut voir sur la Figure 5.26 les courbes $T = f(t)$ simulées et calculées pour les quatre chauffes homogènes que nous avons présentées dans la section précédente (CH2, CH7, CH11, CH16). On peut voir que la simulation est assez proche de la mesure, bien que la température simulée soit quasi-systématiquement supérieure à la température mesurée. Le % d'erreur est ici entre 5 et 17% à t=20 ms pour les chauffes de 20 ms, et entre 4 et 19% à t=100 ms pour les chauffes de 100 ms.

Nous avons tracé en Figure 5.27, à gauche, le graphique des températures mesurées versus les températures simulées en fin de chauffe. La mesure de la température moyenne a été effectuée avec ImageJ sur la totalité de la pastille et la barre d'erreur correspond à l'écart type. Nous traçons en Figure 5.27, à droite, le % d'erreur mesure/simulation.

On peut voir que, mise à part deux expériences qui se trouvent totalement à part, l'erreur mesure-calcul est ici d'environ 10%, avec la température calculée qui est systématiquement plus élevée que la température mesurée. Nous ne notons pas d'évolution de l'erreur avec la température. Ce dernier point indique potentiellement que l'évolution des propriétés optiques en fonction de la température ne joue pas au premier ordre sur le couplage du laser dans le matériau.

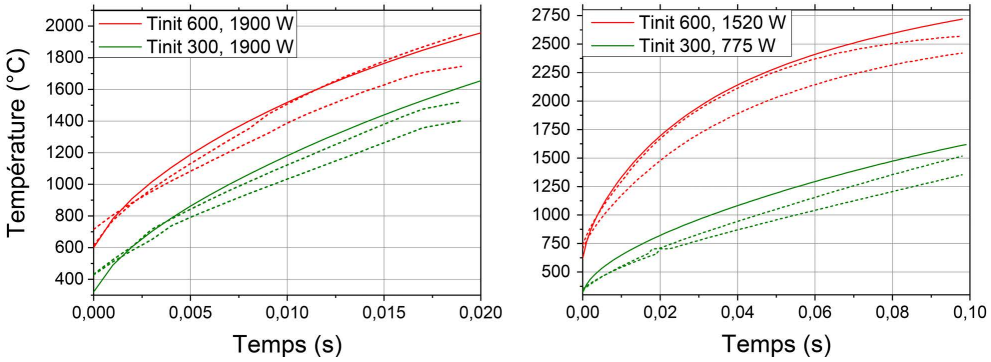


FIGURE 5.26. – Température calculée (lignes pleines) et mesurées (lignes pointillées) pour les quatre chauffes considérées. A gauche : CH16 et CH11. A droite : CH7 et CH2.

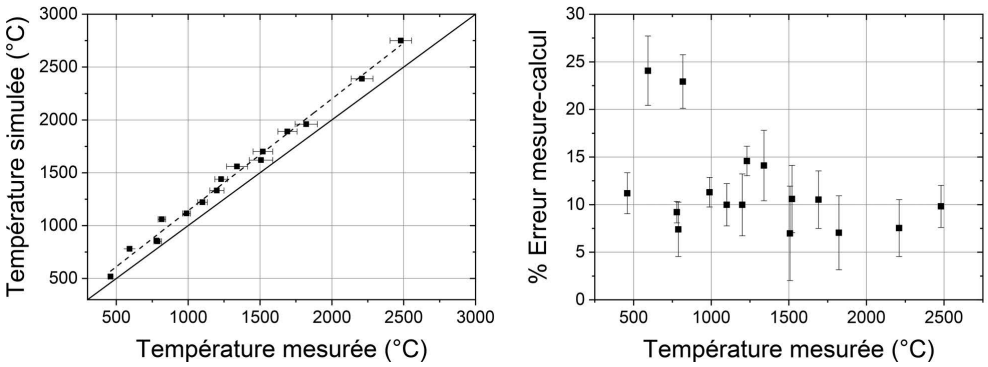


FIGURE 5.27. – A gauche : température simulée en fonction de la température mesurée moyenne pour les chauffes homogènes. A droite % d'erreur calcul-mesures.

Simulation avec un terme source issu de la simulation Monte-Carlo

Pour continuer les discussions relatives au rôle de la diffusion, nous avons calculé les termes sources de chaleur, avec les paramètres retenus dans la section précédente portant sur les chauffes annulaires(α_a=20 000 m^{-1}, α_s=20 000 m^{-1} et g=0,75), pour les chauffes homogènes. Pour ce faire, une face du cuboïde de la simulation MC est illuminée par une onde plane d'amplitude homogène.

La géométrie cubique est prise en compte en calculant le ratio de l'aire de la surface du cube sur l'aire du disque d'UO_2. La puissance totale est ainsi augmentée pour avoir la bonne quantité de puissance déposée sur la surface de l'échantillon.

Étant donné que pour ces simulations la surface du cuboïde est illuminée de manière homogène, nous avons augmenté le nombre de paquets de photons par simulation à 100.10^7 afin de s'assurer de la pertinence du terme source obtenu. Les résultats de la série de simulation sont visibles Figure 5.28.

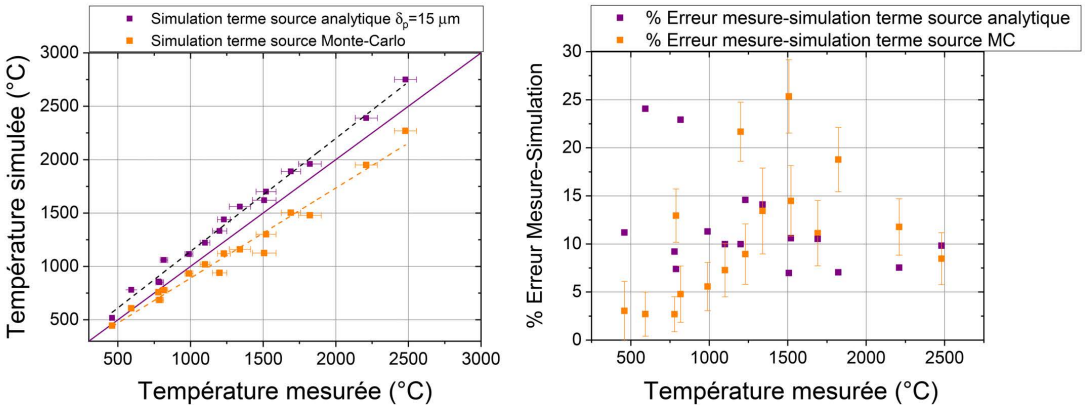


FIGURE 5.28. – A gauche : température simulée en fonction de la température mesurée pour les chauffes homogènes. A droite % d'erreur calcul-mesures.

On peut voir que dans le cas des chauffes homogènes, l'utilisation des mêmes paramètres que ceux retenus dans la section précédente amène à une sous-estimation quasi-systématique de la température. Le % d'erreur calcul-mesure n'est pas amélioré et reste autour de 10%. Il est donc intéressant de voir que dans le cas des chauffes homogènes, l'utilisation de la simulation Monte-Carlo avec les paramètres dégagés pendant l'étude paramétrique réalisée sur les chauffes annulaires ne permet pas d'améliorer la comparaison calcul-mesure.

Il est donc probable que ces paramètres ne reflètent pas totalement les caractéristiques du matériau et qu'ils permettent aussi, dans le cas des chauffes annulaires, de compenser au moins en partie

certaines sources d'erreurs systématiques que nous n'avons pas pris en compte.

Il est encore une fois probable que notre approche de simulation-convolution pour prendre en compte l'effet des aberrations ne soit pas complètement satisfaisante puisque nous l'avons vu dans le cadre des chauffes annulaires nous n'arrivons pas à reproduire complètement la forme des profils thermiques annulaires observés.

5.2.3.2. Origines de l'inhomogénéité de la température observée pendant les chauffes dites homogènes

Enfin, nous avons émis l'hypothèse que l'inhomogénéité des chauffes homogènes observées pourrait être attribuée au premier ordre aux modulations présentes dans le profil d'intensité du faisceau laser qui n'est pas strictement homogène.

Pour confirmer notre hypothèse, nous avons modulé le terme source de chaleur par une coupe normalisée du profil du faisceau dans le cas de la chauffe CH11 (100 ms, 1200 W avec une température initiale de 600 °C - Figure 5.29, à gauche). En dehors de l'écart de température déjà constaté entre la mesure et le calcul, on peut voir que la modulation du terme source de chaleur par le profil d'intensité mesuré du faisceau laser semble bien être capable de reproduire les modulations de température observées. Il semblerait que les modulations obtenues avec la simulation ont des amplitudes plus importantes, là encore la convolution du profil simulé par la LSF permet d'atténuer l'amplitude des modulations (Figure 5.29, à droite).

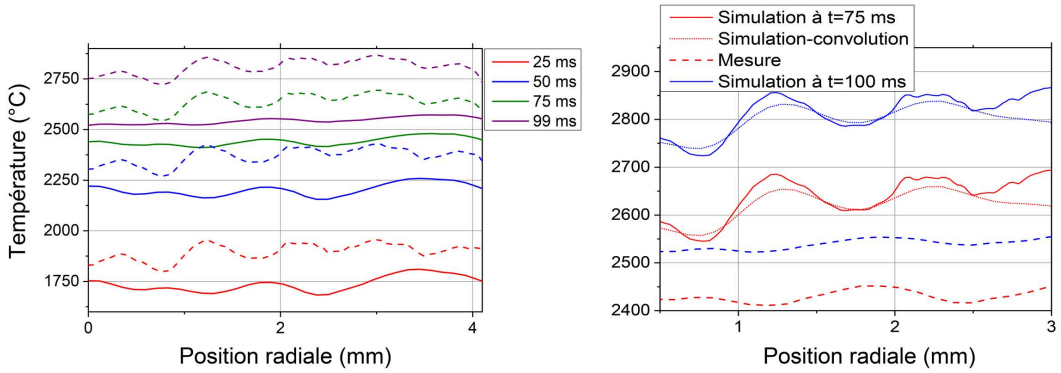


FIGURE 5.29. – Chauffe CH11. A gauche, profils de températures mesurés à différents instants (lignes pleines) et simulés (lignes en pontillées) avec un profil d'intensité modulé. A droite : convolution des profils de température simulés par la LSF de la caméra (en pointillés serrés).

5.2.3.3. Synthèse des chauffes homogènes

Nous venons de voir une série de chauffes réalisée avec le faisceau homogène avec différents paramètres de chauffes (température initiale, durée, puissance...). Une large gamme de température entre 500 et 2500 °C a été balayée. Le principe expérimental permet bien de réaliser une chauffe homogène de la surface de l'échantillon et permet surement d'amener l'UO_2 jusqu'à la fusion en une centaine de millisecondes. La comparaison calcul-mesure est globalement satisfaisante avec une erreur mesure-calcul d'environ 10%. Là encore, nous ne notons pas d'évolution de l'erreur avec la température malgré les incertitudes que nous avons sur certaines propriétés matériaux que nous avons déjà mentionnées. L'inhomogénéité de la température surfacique est attribuée à l'inhomogénéité du faisceau lui même, la prise en compte des modulations du profil d'intensité permettant de reproduire cette inhomogénéité en sortie de calcul thermique.

Il est intéressant de noter que la description analytique du faisceau homogène est ici suffisante pour obtenir un % d'erreur mesure-calcul de l'ordre de 10%, comparé aux chauffes annulaires où la même approche peut mener à des erreurs de l'ordre de 100%. Cette observation nous confirme

que les grands écarts calculs-mesures observés pendant les chauffes annulaires sont bien liées au double effet de l'étalement de la caméra infrarouge et du phénomène de diffusion. Dans le cadre des chauffes annulaires, une étape de simulation Monte-Carlo ainsi que la convolution du profil simulé par la LSF de la caméra sont nécessaires pour obtenir un niveau d'erreur minimal. Néanmoins, les paramètres matériaux retenus pendant l'étude paramétrique réalisée avec la simulation Monte-Carlo sur les chauffes annulaires ne permettent pas d'améliorer la comparaison calcul-mesure lorsque appliqués aux chauffes homogènes. Ces paramètres ne caractérisent donc sans doute pas tout à fait exactement notre matériau et l'interaction laser-UO_2. Il serait aussi intéressant d'effectuer le chemin inverse, c'est à dire de dégager des paramètres matériaux pour la simulation Monte-Carlo sur la base des simulations homogènes puis d'analyser les profils de températures obtenus lorsque appliqué aux chauffes annulaires.

5.2.4. Bilan de la simulation de la thermique des chauffes laser

Nous venons de voir deux séries de chauffes, annulaires ou homogènes, qui nous ont servis de base de validation pour la simulation thermique de ces chauffes. Dans le cas des chauffes annulaires, nous avons vu que la prise en compte des aberrations de la caméra infrarouge est primordiale. En effet, la prise en compte de la fonction de transfert du système optique, effectuée en convoluant les profils de température simulées par la LSF de la caméra infrarouge afin de reproduire l'effet des aberrations qui réduisent l'amplitude et élargissent le profil radial de température, permet de grandement améliorer la comparaison calcul-mesure.

Nous avons aussi simulé le phénomène de diffusion du rayonnement laser lorsqu'il se propage dans le matériau afin d'obtenir un terme source utilisable pour le calcul thermique. Nous n'avons pas dans le cadre de ces travaux de thèse caractérisé le phénomène de diffusion et nous nous sommes donc bornés à une étude d'impact. Nous avons mis en évidence par le biais d'une étude paramétrique que cet effet pouvait avoir un impact non négligeable sur le terme source de chaleur résultant de l'interaction laser-matière et sur les dynamiques de température obtenues en conséquence. Le jeu de paramètres pour la simulation de la diffusion que nous avons retenu permet d'avoir une erreur calcul-mesure sur la température à pic de l'ordre de 10%. Pour les chauffes homogènes, nous avons vu que, du fait que nous pouvons apparenter le chargement laser à un chargement radialement homogène, l'effet de la diffusion ou de la fonction de transfert de la caméra infrarouge semblent négligeable. Une erreur mesure-calcul là encore d'environ 10% est observée et ce dans une large gamme de température allant jusqu'à pratiquement la température de fusion de l'UO_2. Ce résultat montre que :

1. La prise en compte de la diffusion et des aberrations de la caméra est primordial pour l'étude des chauffes annulaires
2. le % d'erreur subsistant peut-être causé par des incertitudes sur certaines propriétés matériaux comme l'évolution de l'émissivité avec la température, par exemple.

L'utilisation de termes-sources issus de la simulation Monte-Carlo pour les chauffes homogènes entraîne une sous-estimation systématique de la température par rapport à la mesure et une erreur là encore d'environ 10%. On peut donc arguer que le choix des paramètres matériaux pour la simulation Monte-Carlo retenus après l'étude paramétrique surcompense au moins en partie d'autres sources d'erreurs puisqu'il ne permet d'améliorer la simulation des chauffes homogènes. Enfin, nous avons attribué l'inhomogénéité du champ de température observée expérimentalement pendant ces chauffes "homogènes" directement à l'inhomogénéité du faisceau utilisé pour chauffer l'échantillon et avons vérifié cette hypothèse par le biais de la simulation en modulant le terme source de chaleur selon le profil d'intensité expérimental.

L'effet d'étalement observé sur les profils mesurés avait été traité par T. Vidal [100] dans sa thèse par une approche pseudo-empirique qui consister à considérer des dimensions de faisceaux annulaires plus larges dans le calcul thermique pour reproduire l'élargissement du faisceau, l'objectif étant alors de fournir une preuve de concept du chauffage laser pour la reproduction du pic de température en périphérie de pastille représentatif d'un RIA. Nous venons de voir que nous avons traité cette question en mettant en évidence un effet évident de la réponse impulsionelle de la caméra infrarouge et de la

diffusion.

Nous sommes maintenant capables de simuler la thermique des chauffes laser, annulaires ou homogènes, et ce avec une erreur d'environ 10%. Nous allons maintenant nous intéresser à un schéma de calcul thermo-mécanique complet des chauffes laser.

5.3. Étude du comportement thermo-mécanique d'échantillons soumis à des chauffes laser annulaires

Nous venons de discuter la simulation thermique des chauffes laser et avons comparé les champs de température obtenus aux mesures thermographiques réalisées pendant les chauffes. Nous avons vu quels phénomènes étaient importants à prendre en compte pour atteindre une comparaison calcul-mesure satisfaisante. Nous allons maintenant discuter de la simulation thermomécanique de chauffes laser annulaires ayant mené à des phénomènes mécaniques tel que la fracturation totale ou partielle de l'échantillon. Nous avons étudié pour cela deux séries de chauffes que nous appellerons chauffes annulaires mécaniques. Nous allons tout d'abord nous intéresser à une série de chauffes conduites avec le porte échantillon 1 qui a servi comme base de validation du modèle mécanique. Cette première série est antérieure à mes travaux de thèse et ont étés réalisées par T. Vidal durant sa thèse ([100]). Nous présenterons ensuite la deuxième série de chauffes annulaires mécaniques réalisées avec le porte échantillon 2. L'un des objectifs était alors d'étudier l'impact du deuxième porte-échantillon sur le comportement mécanique observé de l'échantillon. Ce porte-échantillon assure une maîtrise des conditions limites thermiques en assurant qu'aucun contact saphir-échantillon susceptible d'agir comme un pont thermique n'existe. Cette deuxième série nous a permis de plus de tester le dispositif de visualisation développé pour l'observation en ligne de la fracturation.

5.3.1. Configuration expérimentale

La configuration expérimentale utilisée est similaire à la configuration utilisé en début de chapitre pour la réalisation des chauffes annulaires. Nous utilisons en plus le dispositif de visualisation que nous avons présenté dans le Chapitre 2. Le schéma de la configuration expérimentale utilisée dans cette section est visible Figure 5.30.

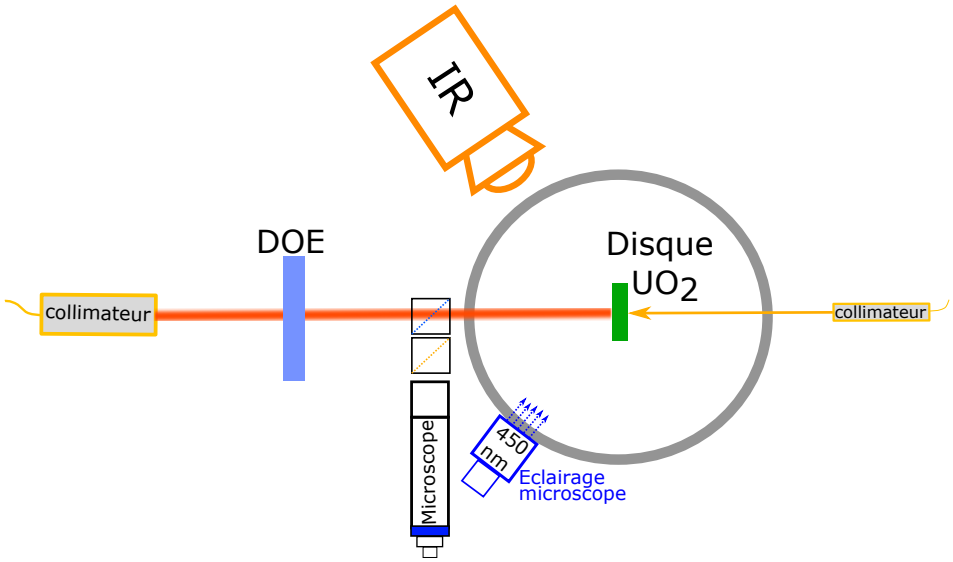


FIGURE 5.30. – Schéma de la configuration expérimentale utilisée pour la réalisation et la caractérisation des chauffes laser annulaires.

5.3.2. Première validation de la loi de comportement mécanique

Nous allons présenter dans cette section l'application de la loi de comportement mécanique tel que paramétrée dans le Chapitre 4 sur une série de deux chauffes réalisées antérieurement à cette thèse, dans le cadre de la thèse de T. Vidal [100]. Nous allons tout d'abord présenter la série de chauffes et les conditions expérimentales dans lesquelles elles ont été conduites. Nous présenterons ensuite la simulation thermo-élastique -c'est à dire en considérant un matériau élastique dont la relation contrainte-déformation est la loi de Hooke- de cette série de chauffes. Nous réaliserons ensuite la simulation thermo-mécanique avec notre loi de comportement mécanique et discuterons du comportement mécanique simulé.

5.3.2.1. Présentation de la première série de chauffes "mécaniques"

Cette série de chauffes a été réalisée dans le cadre de la thèse de T. Vidal [100], sur le porte-échantillon 1 qui maintient l'échantillon à la vertical en le posant entre deux hublots en saphir. Cette série consiste en deux chauffes annulaires consécutives réalisées sur le même échantillon d'une épaisseur de 930 μm. Le faisceau était en configuration focalisée avec R_{an}=3,9 mm et ω_{an}=0,1 mm. L'échantillon était à la température ambiante dans les deux cas. La durée de l'impulsion était de 100 ms dans les deux cas. La puissance incidente était de 150 W pour la première chauffe et de 300 W pour la deuxième chauffe. Nous appellerons ces chauffes SM1 (Série Mécanique 1) C1 (Chauffe 1) ou C2 (Chauffe2). Un récapitulatif des paramètres expérimentaux est donné dans le Tableau 5.5.

N°	Durée (ms)	Puissance annulaire (W)	R_{an}- ω_{an} (mm)	Tinit (°C)
SM1_C1	100	300	3,9-0,1	20
SM1_C2	100	150	3,9-0,1	20

TABLEAU 5.5. – Récapitulatif de la première série de chauffes dites "mécaniques"

Cette série est spécifique de part plusieurs aspects :

— La plateforme n'était alors pas dotée de moyens de caractérisations de la température en ligne,
— L'échantillon ne présentait pas d'endommagement apparent à la suite de la première chauffe,
— L'échantillon présentait une fracture circonferentielle sur tout le pourtour à la suite de la deuxième chauffe.

Pour le premier point, nous venons de discuter de manière relativement étendue de la simulation thermique et avons validé cette partie du modèle numérique avec une erreur maximale sur la température maximale atteinte autour de 20% sans l'étape de calcul Monte-Carlo et autour de 10% avec l'étape préalable de calcul Monte-Carlo et les paramètres retenus à la suite du balayage paramétrique. Nous n'utiliserons pas le schéma de calcul Monte-Carlo dans cette partie et utiliserons la description analytique du chargement laser avec un coefficient d'absorption de valeur $1/15e^{-6} = 66\,666$ m^{-1}. L'instant de fracturation a été déterminée avec une simple caméra visible rapide sans dispositif de filtration du rayonnement thermique. L'image est donc particulièrement saturée comme on peut le voir Figure 5.31, à gauche. Néanmoins on peut estimer l'instant de fracturation au cours de la deuxième chauffe comme étant aux alentours de 40 ms, indiqué par une flèche bleue sur la figure. Le cercle vert représente la position de l'anneau laser et la flèche rouge pointe vers des fragments visibles qui se sont détachés pendant la chauffe. La partie droite de la Figure 5.31 est une photo de l'échantillon post mortem avec une fracture circonferentielle clairement visible. L'analyse MEB autour de la fracture montre un profil de fracture fragile avec de la micro-fracturation sur les zones affectées.

5.3.2.2. Simulations thermo-élastiques

Nous avons d'abord effectué le calcul thermo-mécanique en considérant un modèle élastique parfait, c'est à dire que la relation contrainte déformation correspond à la loi de Hooke $\underline{\underline{\sigma}} = \underline{\underline{C}}\,\underline{\underline{\epsilon}}$ et ne considère pas de phénomènes plus complexes tels que la plasticité ou l'endommagement du matériau. Présentons tout d'abord les champs de température obtenus dans le cas de la description analytique du terme source de chaleur (Figure 5.32). On peut voir sur la Figure 5.32 les profils radiaux de température pour

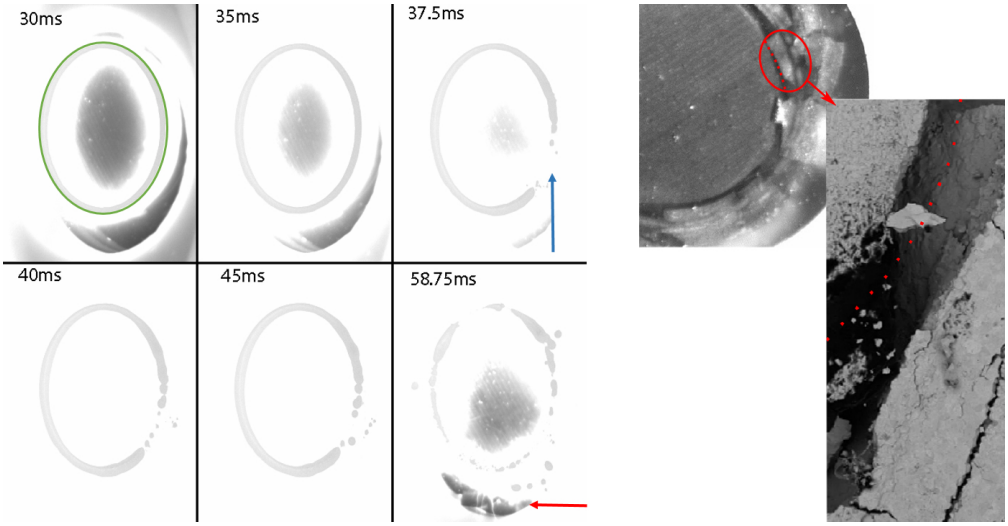


FIGURE 5.31. – Acquisition réalisée avec une caméra visible pendant la chauffe SM1_ C2. La position de l'anneau laser est indiqué par le cercle vert sur la première image de la frise chronologique. Malgré la saturation, on peut voir ce qui semble être un début de fracturation à 37,5 ms et des fragments sont clairement visibles au temps 58,75 ms. A droite : Image post mortem de l'échantillon et image MEB de la fracturation circonferentielle.

les deux chauffes en utilisant l'expression analytique du terme source de chaleur. On peut voir que les températures maximales atteintes se situent autour de 675 °C et de 1700 °C, respectivement pour les chauffes SM1_C1 et SM1_2. On peut voir que la fracturation pendant la deuxième chauffe, qui est survenue autour de 40 ms, a donc eu lieu pour des niveaux de température autour de 1200 °C.

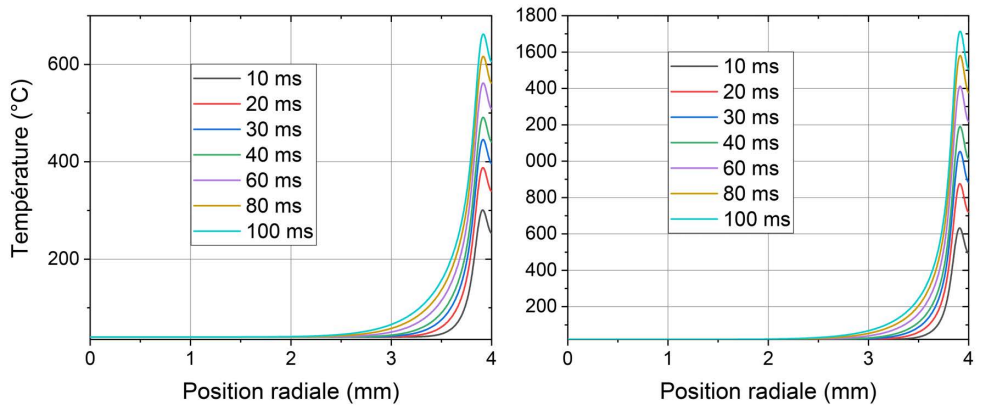


FIGURE 5.32. – Champs de température calculés pour la chauffe de 150 W (SM1_C1, à gauche) et de 300 W (SM1_C2, à droite). Terme source analytique.

Le calcul thermo-élastique de ces chauffes indique des vitesses de déformation maximales d'environ 3 /s et 5 /s pour les chauffes SM1_C1 et SM1_C2 respectivement, ce qui montre bien la capacité de notre approche expérimentale à induire des vitesses de déformation d'intérêts dans le cadre de l'étude du comportement du combustible pendant un transitoire de type RIA qui est caractérisé, entre autres, par des vitesses de déformation comprises entre 1 et 10 /s. L'analyse des champs de contraintes de la deuxième chauffe montre des pics de compression significatifs dans les deux premières directions (r et θ) au niveau de la zone chauffée à la périphérie de la pastille. Les valeurs sont en revanche très élevées comme on peut le voir sur la Figure 5.33 avec un pic de compression circonférentielle de -4000 MPa. Nous avons vu précédemment que la résistance en compression de l'UO_2 vaut au plus 1000 MPa à la

température ambiante et tend à décroître avec la température. De telles valeurs de contraintes sont donc grandement irréalistes. Si on regarde maintenant le champ de contraintes radiales sur tout l'échantillon, visible Figure 5.34, on peut voir la zone de compression au niveau de la zone directement chauffée (valeurs négatives) et une zone de traction concomitante qui se situe dans le volume en dessous de la zone chauffée (valeurs positives). On comprend donc que l'amplitude de ces contraintes de traction est directement pilotée par les valeurs atteintes par les contraintes de compression à la surface de l'échantillon. On comprend aussi, que comme les contraintes radiales de traction pilotent une éventuelle fracturation circonférentielle, la modélisation du comportement de l'UO_2 en compression et à forte vitesse de déformation est donc primordiale si l'on souhaite modéliser avec précision la fracturation circonférentielle observée. Les valeurs des contraintes de compression thermo-élastiques étant particulièrement importantes, les valeurs des contraintes de traction concommitantes surpassent largement la contrainte à la rupture de l'UO_2 (100-135 MPa) et la fracturation circonfenrentielle est donc bien attendue. Pour la première chauffe, la valeur maximale des contraintes de traction en fin de chauffe est autour de 65 MPa, ce qui est cohérent avec le fait qu'aucune fracturation ne soit survenue pendant celle-ci.

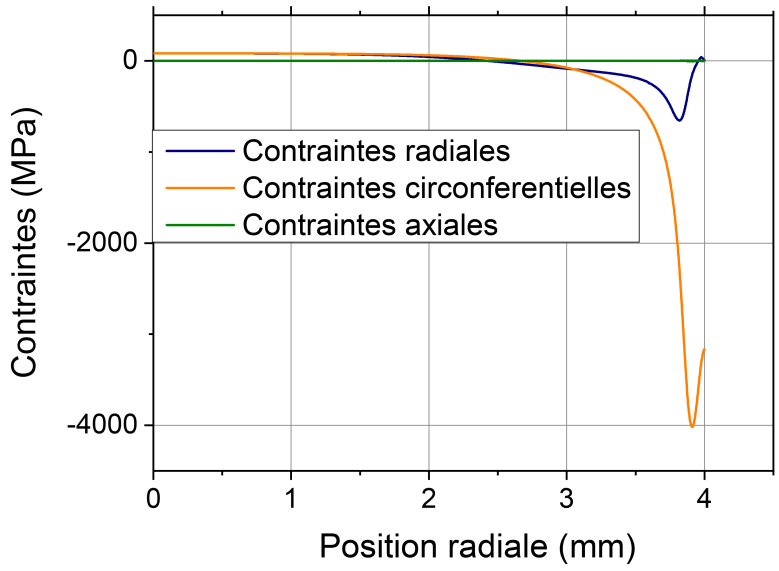


FIGURE 5.33. – Profils de contraintes (MPa) radiales, circonférentielles et axiales à la surface de l'échantillon. Chauffe de 300 W (SM1_C2), t=100 ms.

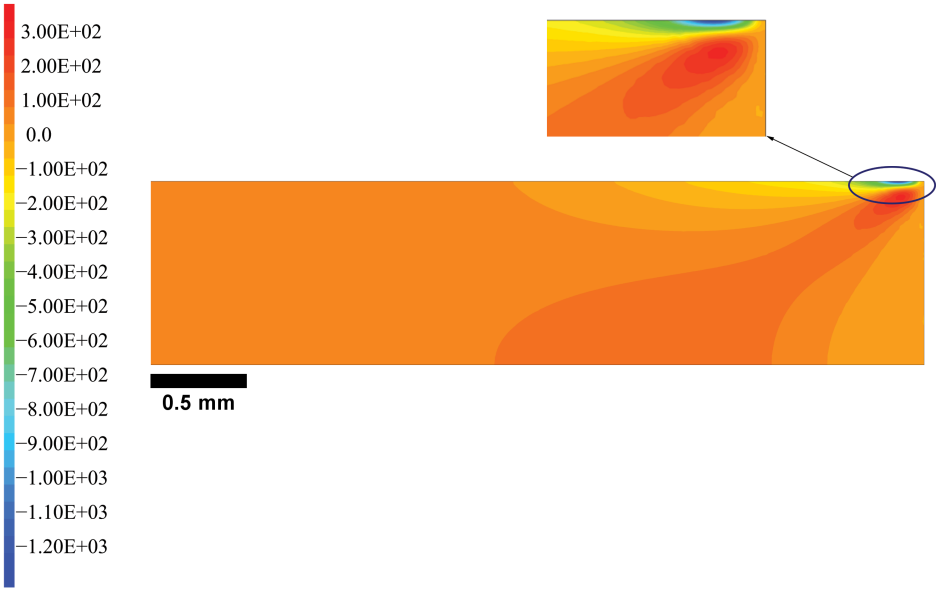


FIGURE 5.34. – Contraintes radiales en MPa dans la pastille à la fin (t=100 ms) de la chauffe SM1_C2.

5.3.2.3. Simulations thermo-mécaniques avec le μ-model

Nous utilisons maintenant le ţ-model tel que paramétré dans le Chapitre 4 pour la simulation des deux chauffes actuellement considérées. Pendant la simulation de la première chauffe de 150 W, des valeurs d'endommagement modérées avec un maximum proche de 0,5 sont calculées dans la zone chauffée comme on peut le voir sur la Figure 5.35. Cet endommagement est la conséquence des contraintes de compression comme le montre le tracé des isovaleurs de Y_c sur la Figure 5.36. Y_c est la variable du modèle d'endommagement qui pilote l'endommagement dû à la compression. Les valeurs d'Y_t, qui est la variable pilotant l'endommagement dû à la traction, ne dépassent pas 10^{-4} pendant le calcul. L'écrasement est donc le seul mode d'endommagement qui survient pendant cette chauffe.

FIGURE 5.35. – Valeurs d'endommagement à 50 (en haut) et 100 ms (en bas) calculées pendant la chauffe de 150 W (SM1_C1).

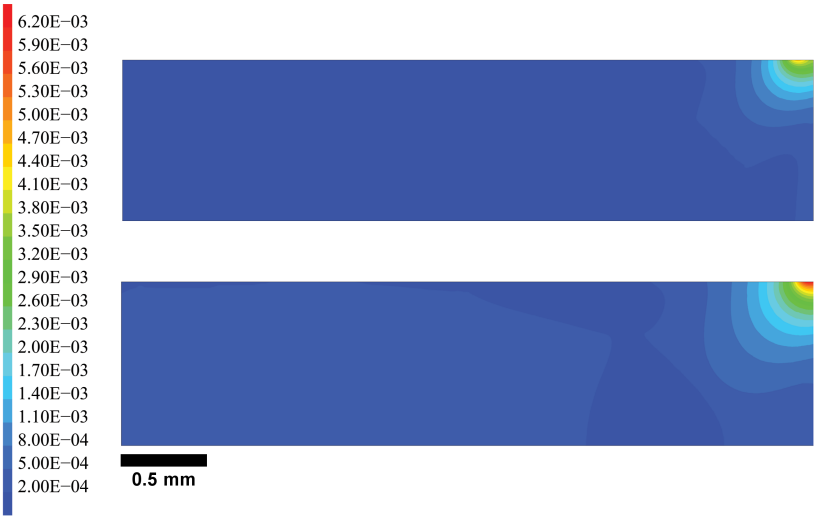


FIGURE 5.36. – Valeurs de Y_c à 50 (en haut) et 100 ms (en bas) calculées pendant la chauffe de 150 W (SM1_C1)

La simulation de la chauffe de 300 W avec le μ-model voit deux zones d'endommagements distinctes se développer comme on peut le voir sur la Figure 5.38. On retrouve l'endommagement localisé dans la zone thermiquement affectée par le chauffage laser qui est causé par les contraintes de compression. La deuxième zone se situe sous la zone thermiquement affectée et est elle causée par les contraintes de traction, comme le montre les valeurs de Y_t tracées sur la Figure 5.39 qui atteignent des valeurs maximales autour de 5.10^{-3}. On peut notamment voir que les valeurs de Y_t augmentent brutalement entre 42 et 44 ms, ce qui déclenche la fracturation. On retrouve ici le comportement fragile tel que paramétré dans le chapitre 4. Cette deuxième zone d'endommagement se développe à partir de 40 ms et se propage brutalement jusqu'à conduire à une fracturation complète à 44 ms. L'instant de fracturation est donc assez bien reproduit par le modèle d'endommagement. La direction de la fracturation est en revanche un peu oblique comparé au profil de rupture observé post-mortem qui a l'air d'être rectiligne. Enfin pour ce qui est de la localisation radiale de la fracturation, elle est manifestement déportée vers le centre du disque comparé aux observations. En effet la fracturation semble plutôt se situer radialement directement au niveau de la zone chauffé. L'analyse MEB de différentes chauffes ayant fracturée circonférentiellement ou non en plus des deux présentées ici montre deux types de fracturation comme on peut le voir sur la Figure 5.37 :

— Une série de micro-fissurations radiales non traversantes espacées de manière régulière le long de la circonférence. Ces micro-fissures se terminent le plus souvent en deux micro-fissurations circonférentielle ou oblique.
— Il semblerait que lorsque la fracturation circonférentielle a lieu, elle se développe le long des micro-fissures circonférentielles ou obliques qui terminent les micro-fissurations radiales. La fracturation circonférentielle totale n'est donc pas déportée vers le centre de la pastille comme simulée par le μ-model.

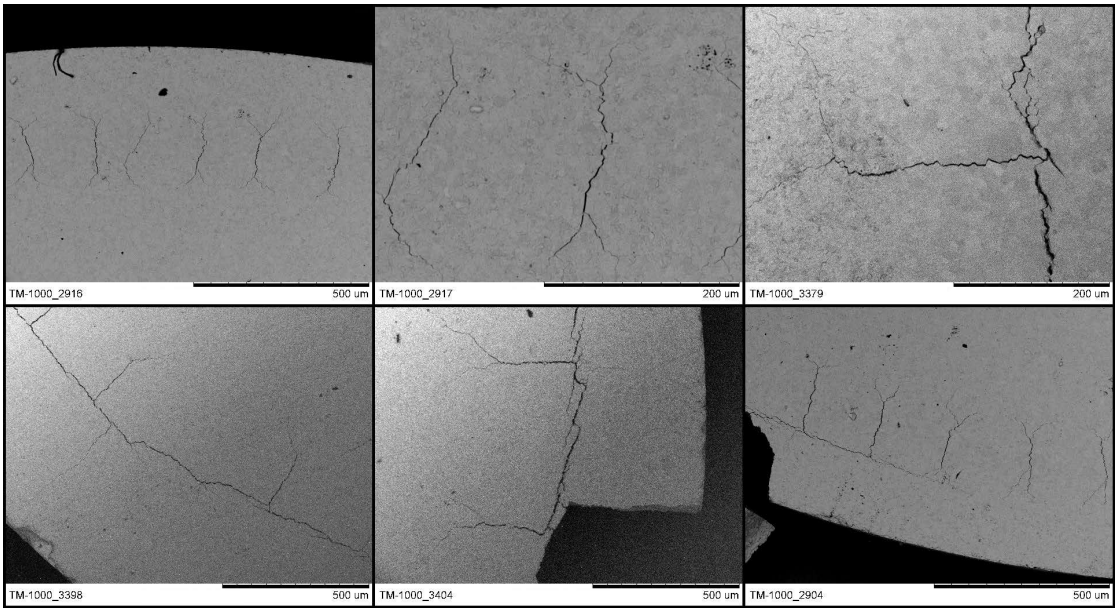


FIGURE 5.37. – Observation MEB de la zone chauffée par l'anneau laser après une chauffe ayant menée à de la fissuration circonférentielle partielle

Il se pourrait que l'endommagement simulé du fait des contraintes de compression corresponde à ce réseau de micro-fissurations radiales. Il est toutefois difficile de dire si ces micro-fissures surviennent pendant le transitoire ou pendant la phase de refroidissement qui induit des contraintes de traction du fait de la descente en température de la zone chauffée. Néanmoins le fait que, sur certains échantillons partiellement fissurés circonférentiellement, la fissuration circonférentielle semble se développer le long du réseau de micro-fissures peut être un indicateur que cette micro-fissuration radiale survient bien pendant la phase de chauffe. Des caractérisations en ligne supplémentaires seraient nécessaires pour caractériser complètement l'évolution de la fissuration le long de la zone chauffée par l'anneau laser.

Si l'on s'intéresse maintenant aux champs de contraintes radiales et circonférentielles calculées avec le μ-model, on peut tout d'abord noter des similarités par rapport au cas prototypique atteint en réacteur de recherche. Nous avons tracé sur le même graphique les profils de contraintes pendant l'essai RH-2 (réacteur NSRR, Japon) calculés avec le code ALCYONE-RIA et les profils de contraintes calculées pendant la chauffe laser jusqu'à 40 ms, soit quelques instants avant la fissuration. L'excursion de réactivité de l'essai RH-2 avait une largeur à mi-hauteur de 4,5 ms. On peut observer sur la Figure 5.40 que le chargement biaxial de compression en périphérie de pastille est reproduit dans une certaine mesure. La progression du pic de compression vers le centre de la pastille du fait de la conduction thermique, calculée avec le code ALCYONE, est aussi retrouvée pendant la chauffe laser. Les contraintes axiales sont négligeables pendant la chauffe laser du fait de la faible épaisseur de l'échantillon et de la chauffe limitée à une zone sous la surface de l'échantillon, aussi elles ne sont pas tracées en la Figure 5.40.

FIGURE 5.38. – Valeurs d'endommagement calculées pour la chauffe SM1_C2 (300 W) à 40, 42 et 44 ms.

FIGURE 5.39. – Valeurs de Y_t calculées pour la chauffe SM1_C2 (300 W) à 40, 42 et 44 ms.

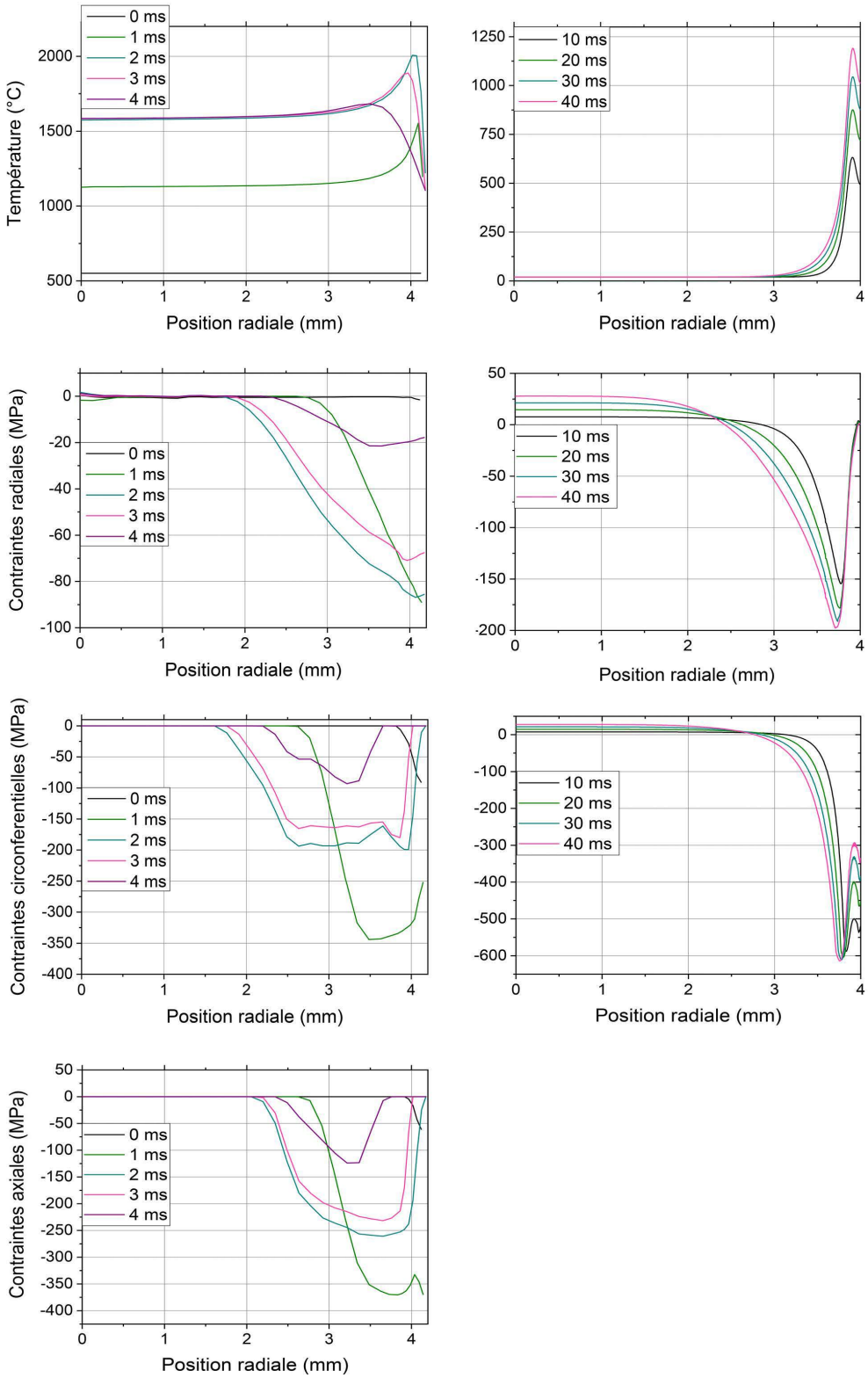


FIGURE 5.40. – A gauche : Profils de températures et de contraintes radiales, circonférentielles et axiales calculés avec le code ALCYONE au Plan Flux Maximal (PFM). Essai RH2, d'après [49]. A droite : Profils de températures et de contraintes radiales et circonférentielles calculés avec le μ-model. Chauffe SM1_C2. Les valeurs sont tracées jusqu'à quelques instants avant la fracturation de l'échantillon.

Nous venons de voir au travers de cette première série les états de contraintes induits par un chargement laser annulaire. Cette série est composée de deux chauffes réalisées consécutivement sur le même échantillon. La deuxième chauffe a notamment conduit à une fracturation circonférentielle complète de l'échantillon. Nous avons vu que ce mode de chauffage laser permet d'induire un chargement mécanique bi-axial ressemblant au cas prototypique avec un pic de compression en périphérie d'échantillon. L'utilisation du μ-model permet une assez bonne estimation de l'instant de fracturation.

5.3.3. Deuxième série de chauffes laser annulaires "mécaniques"

Nous présentons maintenant une deuxième série de chauffes annulaires, réalisées dans le cadre de cette thèse avec le porte échantillon 2 qui maintient l'échantillon grâce à deux mâchoires en ZrO_2 en contact avec l'échantillon en haut et en bas. Des mesures en ligne de la température ont été effectuées et des acquisitions vidéos dans le visible réalisées avec le dispositif présenté dans le chapitre 2 ont aussi été réalisées en temps réel. Cette série se compose de deux chauffes annulaires, réalisées sur deux échantillons différents, d'une puissance de 165 W et d'une durée de 75 ms. La première a été réalisé en configuration focalisée et la deuxième en configuration défocalisée. La température initiale était d'environ 550 °C en périphérie de pastille pour les deux chauffes. L'instant de fracturation pour chaque chauffe a été déterminé avec le dispositif de visualisation décrit dans le Chapitre 2. Un récapitulatif de cette deuxième série est donné Tableau 5.6.

N°	Durée (ms)	Puissance annulaire (W)	R_{an}- ω_{an} (mm)	Tinit (°C)
SM2_C1	75	165	3,9-0,1	550
SM2_C2	75	165	3,6-0,260	550

TABLEAU 5.6. – Récapitulatif de la deuxième série de chauffes dites "mécaniques"

Les acquisitions pour les chauffes 1 et 2 sont visibles Figure 5.41 et Figures 5.42 et 5.43, respectivement. On peut voir que durant la chauffe 1 la fracturation survient environ à 44 ms (très légèrement visible à 44 ms et clairement visible à 48 ms) et que durant la chauffe 2 elle survient à 50 ms (Figure 5.43 sur laquelle les images ne sont pas traitées, la fracturation est très légèrement visible à 50 ms et clairement visible à 52 ms).

Néanmoins il est intéressant de noter que la fracturation ne s'est pas produite sur la totalité de la circonférence lors des deux chauffes (exemple Figure 5.44). Il est en fait très probable que l'utilisation du porte-échantillon 2 avec le système de mâchoires modifient les conditions limites du système. La fracturation ne semble en effet se produire que sur les bords de la pastille qui ne sont pas en contact ou a proximité des mâchoires du porte-échantillon. Nous allons néanmoins utiliser le modèle 2D qui ne considère pas l'appui supplémentaire exercé par le porte-échantillon sur la pastille.

Les températures mesurées sont visibles Figure 5.45. On peut notamment voir que pendant la première chauffe, les températures mesurées à 50 et 60 ms sont quasi-identiques. Nous attribuons cela au fait que la fracturation s'ouvre autour de cet instant et que le couplage du faisceau laser dans l'échantillon s'en est trouvé modifié. Le rayonnement thermique mesuré par la caméra au niveau de la fissure a aussi dû être modifié. On comprend donc que les valeurs après 50 ms doivent être prises avec un certain recul dans le cas de la première chauffe. Pour la deuxième chauffe, il semblerait que la fracturation observée ne s'ouvre que vers la fin de la chauffe et on ne note pas de modifications dans le profil de température mesuré en fonction du temps.

5.3.3.1. Simulations thermo-mécanique avec le μ-model

Une bonne concordance entre les profils mesurés et simulés-convolués de températures est constatée jusqu'à 50 ms (Figure 5.46). Comme nous l'avons vu les échantillons se fissurent après 50 ms pour les deux chauffes aussi la comparaison calcul/mesure sur la température n'a plus vraiment de sens passée cet instant, le couplage du laser dans le matériau étant modifié.

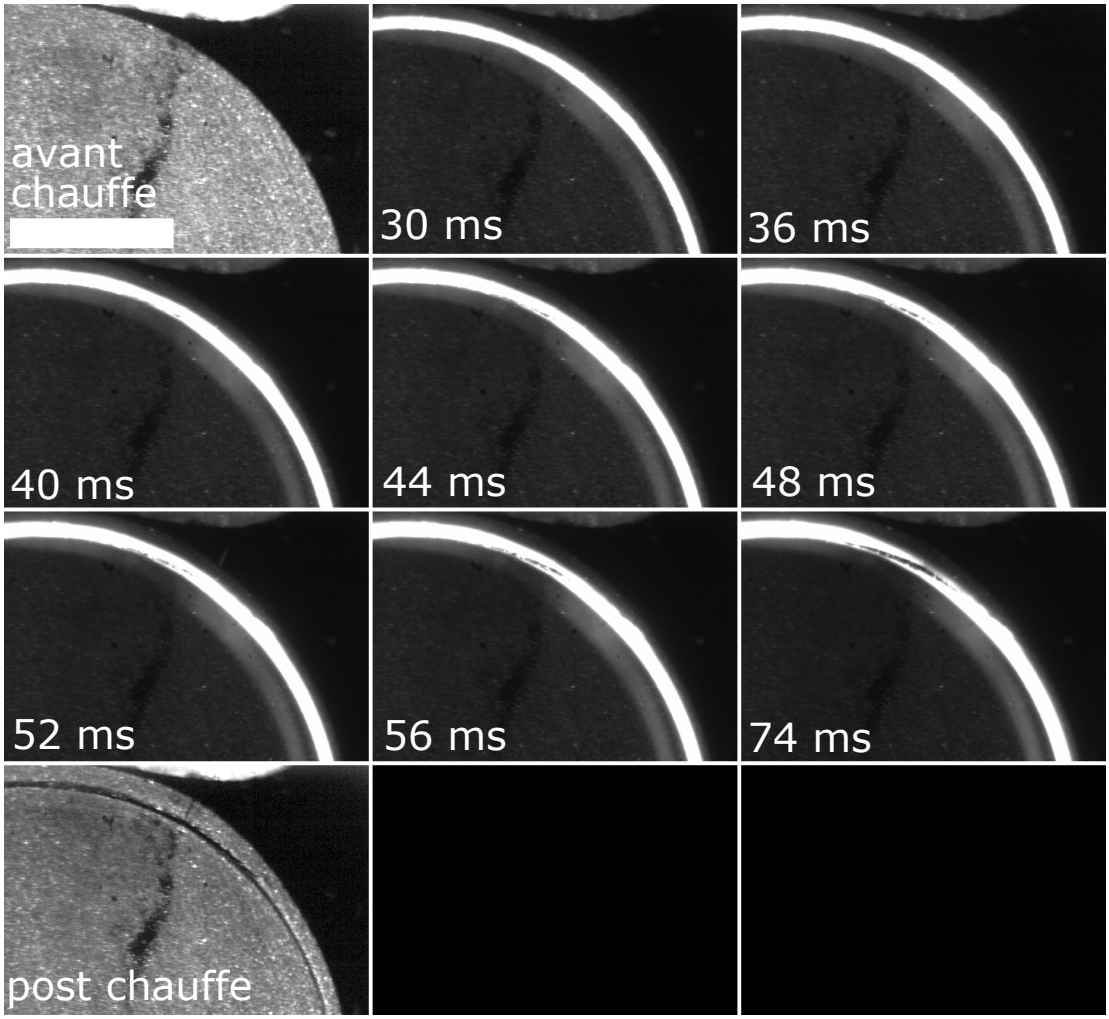


FIGURE 5.41. – Visualisation de l'échantillon avant, pendant et après la chauffe SM2_C1. Les images avant et après chauffe ont été traitées afin d'augmenter le contraste.

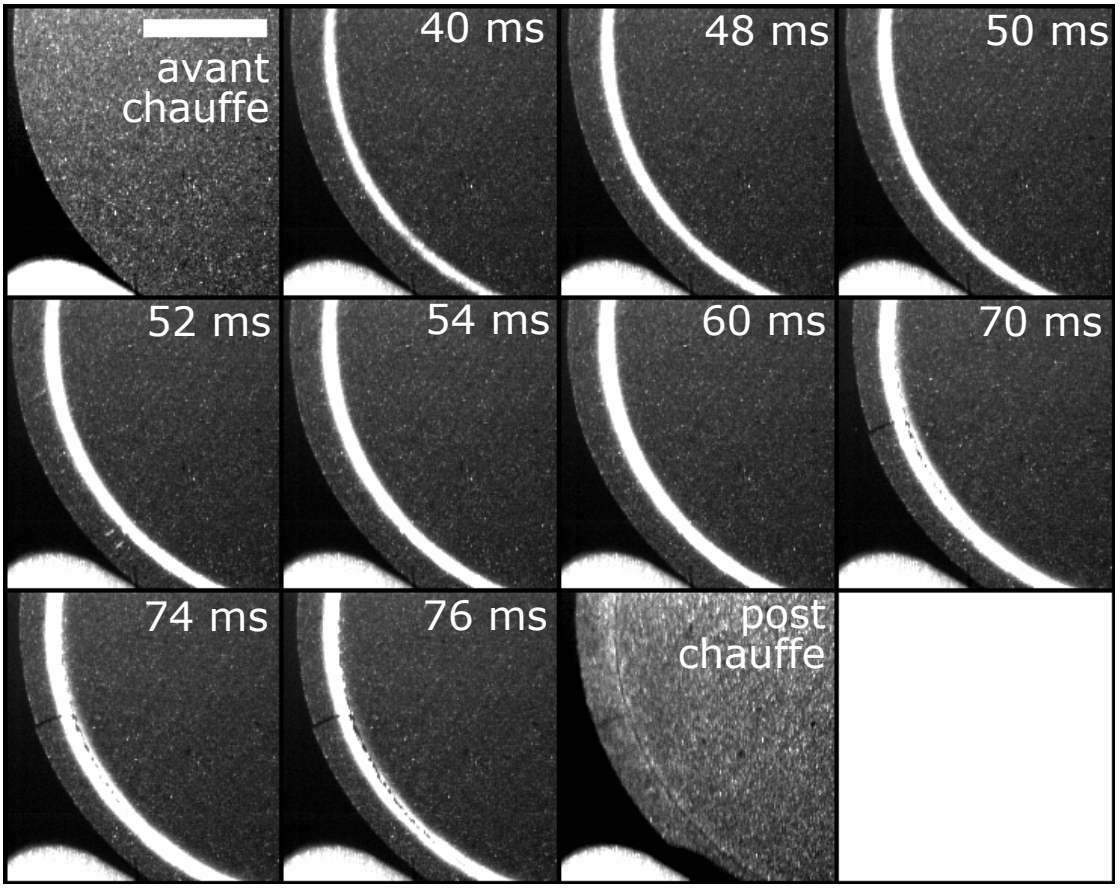


FIGURE 5.42. – Visualisation de l'échantillon avant, pendant et après la chauffe SM2_C2. Toutes les images ont été traitées sur cette série pour augmenter leur contraste. La barre d'échelle fait 2 mm.

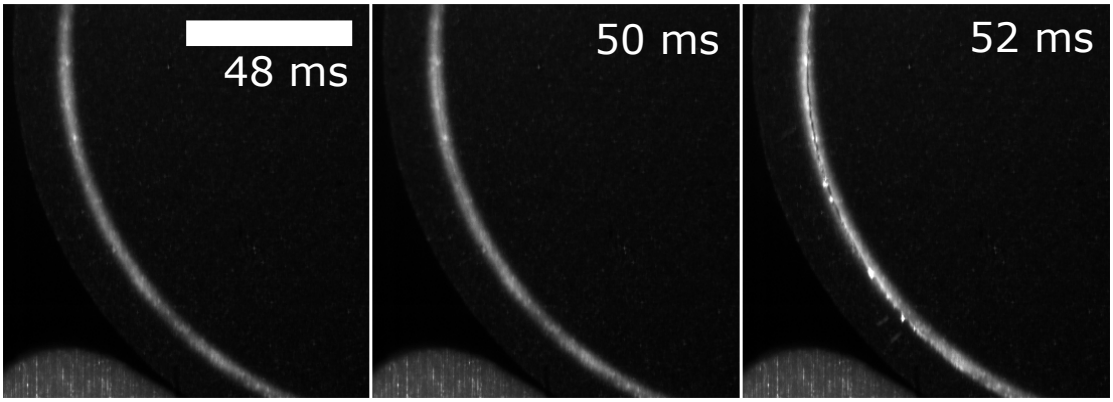


FIGURE 5.43. – Visualisation de l'échantillon pendant la chauffe SM2_C2 aux instants 48, 50 et 52 ms. Les images n'ont pas été traitées. La barre d'échelle fait 2 mm.

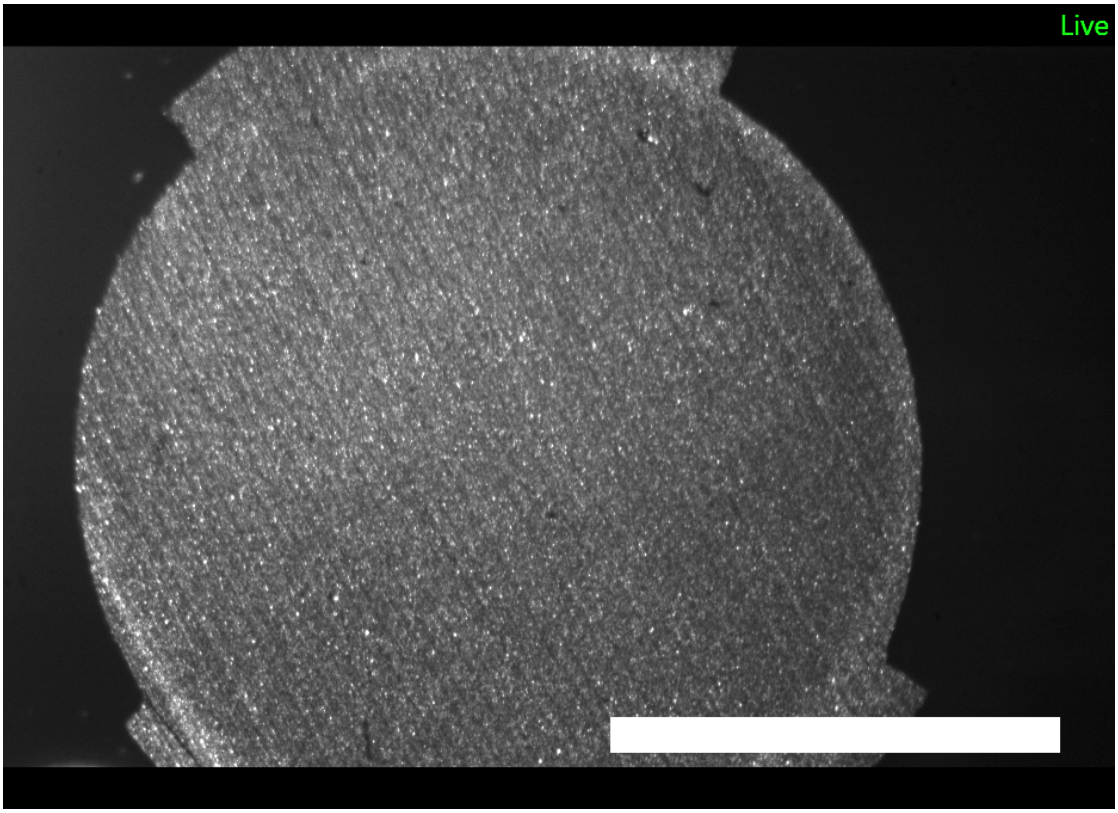


FIGURE 5.44. – Visualisation de l'échantillon après la chauffe SM2_C2. Les fragments se sont détachés après une première manipulation de l'échantillon. La barre d'échelle fait 4 mm.

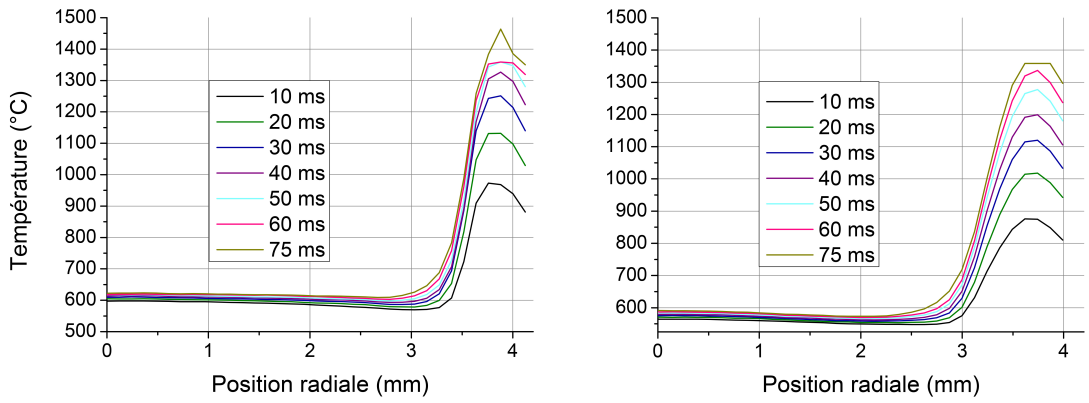


FIGURE 5.45. – Profils de températures mesurées. A gauche : chauffe 1, à droite : chauffe 2.

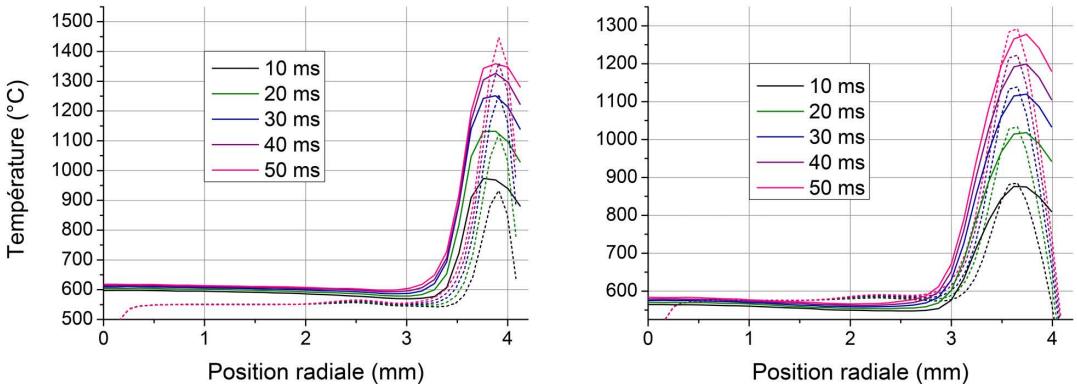


FIGURE 5.46. – Profils de températures mesurés (lignes pleines) et simulés-convolués (lignes pointillées). A gauche : chauffe 1, à droite : chauffe 2.

La simulation thermo-mécanique de ces deux chauffes avec la paramétrisation initiale du μ-model amène à une fracturation de l'échantillon très tôt dans le calcul, autour de 5 ms après le début de la chauffe. Ce résultat est éloigné de l'observation expérimentale de l'instant de fracturation avec des instants déterminés à environ 44 et 52 ms, respectivement pour la première et deuxième chauffe. A noter que les vitesses de déformations calculées lors de ces chauffes sont d'un ordre de grandeur inférieur avec des valeurs comprises entre 1 et 0,1 /s pour la chauffe 1 et entre 0,5 0,05 /s pour la chauffe 2. On peut donc émettre l'hypothèse que le paramétrage initial du modèle n'est pas adapté à des vitesses de déformations inférieures à 1 /s. Nous avons en conséquence modifié le comportement en traction du μ-model afin d'estimer la sensibilité du modèle sur la détermination de l'instant de fracturation. Le paramétrage initial de la loi de comportement mécanique en traction est celui d'une céramique très fragile, avec un endommagement qui atteint des valeurs de 1 pour des valeurs de déformation se situant un peu après 0,002. Sur la courbe contrainte-déformation, la descente en contrainte après le passage par la valeur de la contrainte à rupture -la relaxation des contraintes étant dû au développement de l'endommagement- est aussi particulièrement pentue. Nous avons donc un comportement très fragile avec un développement brutal de l'endommagement une fois la contrainte à la rupture atteinte. Nous avons légèrement modifié le comportement en traction de la façon suivante :

— La contrainte à rupture est amenée à un peu plus de 120 MPa. Pour rappel, la contrainte à rupture de l'oxyde se situe entre 80 et 150 MPa.
— Le développement de l'endommagement est moins brutal que dans le paramétrage initial, avec une déformation à la rupture se situant désormais autour de 0,0035.

Ce nouveau paramétrage ne remet donc pas en question le comportement fragile du matériau mais augmente la contrainte à la rupture tout en restant dans la gamme des mesures existantes l'UO_2. Le développement de l'endommagement est aussi légèrement moins brutal mais le comportement reste sensiblement fragile avec une déformation à la rupture qui reste extrêmement basse. Les courbes $\sigma = f(\epsilon)$ et D=$f(\epsilon)$ -générées avec le logiciel Mtest en simulant une déformation uni-axiale sur un point matériau-, pour le paramétrage initial et ce nouveau paramétrage, sont données Figure 5.47.

L'endommagement aux temps 10, 30, 35, 38 et 50 ms calculé au cours de la première chauffe est visible Figure 5.48. On peut voir que, comme avec le paramétrage initial, l'endommagement en traction se déclare tôt dans le calcul, avant 10 ms. Cela est cohérent avec le fait que le nouveau seuil d'endommagement est d'environ 80 MPa qui est la contrainte à la rupture de l'ancien paramétrage. On remarque donc que l'endommagement se développe progressivement et de manière moins brutale. L'analyse des valeurs de Y_t aux mêmes instants (10, 30, 35, 38 et 50 ms) montre bien une plus grande résistance avec des valeurs maximales autour de 3.10^{-2}, contre des valeurs maximales de 3.10^{-3} avec le paramétrage initial, ce qui est cohérent avec le comportement attendu du nouveau paramétrage avec des valeurs de déformations à la rupture plus importantes. On remarque sur ces deux tracés que la zone initiale d'endommagement se situe bien en dessous de la zone chauffée avant de se développer vers le centre de l'échantillon. C'est de cette de zone déportée vers l'intérieur de l'échantillon que la fracture, à nouveau oblique, se développe comme dans le cas précédent. On remarque en revanche que, une fois

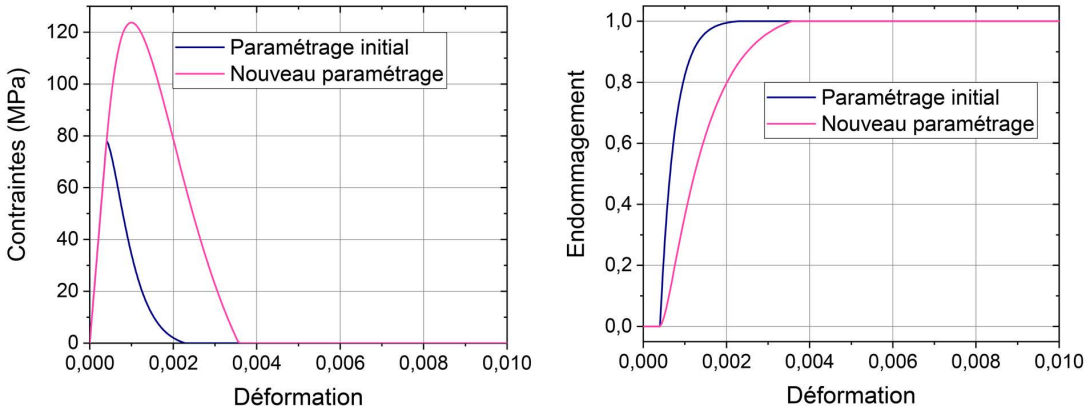


FIGURE 5.47. – Courbes contraintes-déformations et endommagement-déformations pour les deux paramétrages utilisés

la fracture oblique s'est développée, son extension jusqu'aux extrémités du maillage semble s'arrêter comme on peut le voir en comparant l'endommagement à 38 et 50 ms.

Pour la deuxième chauffe, l'instant de fracturation est situé là encore à 38 ms comme le montre l'évolution des valeurs d'endommagement à différents instants de calcul sur la Figure 5.50, alors que l'instant de fracturation observé à la caméra est à 46 ms. On voit donc que ce nouveau paramétrage n'est pas complètement capable de reproduire les instants de fracturation observés au cours de cette deuxième série de chauffes annulaires. Il est en revanche intéressant de noter que dans le cas où nous utilisons le faisceau défocalisé, dont le maximum d'intensité est plus à l'intérieur de l'échantillon comparé au faisceau focalisé (R_{an}=3,6 mm contre 3,9 pour le faisceau focalisé), la zone d'endommagement due à la traction et la fracturation qui s'en suit est cette fois-ci mieux localisée et n'est pas oblique. Dans cette configuration nous avons donc une meilleure localisation et direction de la fracturation. En revanche l'épaisseur de la zone endommagée semble surestimée comme on peut voir le voir sur la Figure 5.50 avec la présence d'une épaisse bande d'endommagement.

L'analyse des contraintes radiales, visibles sur les Figures 5.51 et 5.52, pour les deux chauffes à différents instants nous renseigne un peu plus sur le comportement simulé :

- L'endommagement en traction se déclenche bien quand la zone de traction radiale sous la zone chauffée atteint les 80 MPa,
- L'évolution des contraintes radiales est brutales au début du transitoire (de 0 à 80 MPa en 8 ms) et est ensuite un peu moins violente (de 80 à 95 MPpa entre 8 et 15 ms, par exemple),
- De fait, le nouveau paramétrage amène à un endommagement plus progressif du matériau jusqu'à atteindre la fracturation entre 35 et 40 ms.
- On observe que la zone de tension radiale est, dans le cas de la chauffe focalisée, présente aussi à l'intérieur de l'échantillon. Elle se situe en revanche complètement en dessous de la zone chauffée dans le cas du faisceau défocalisé. Cela est cohérent avec la localisation de la fracture observée pour l'une et l'autre chauffe.

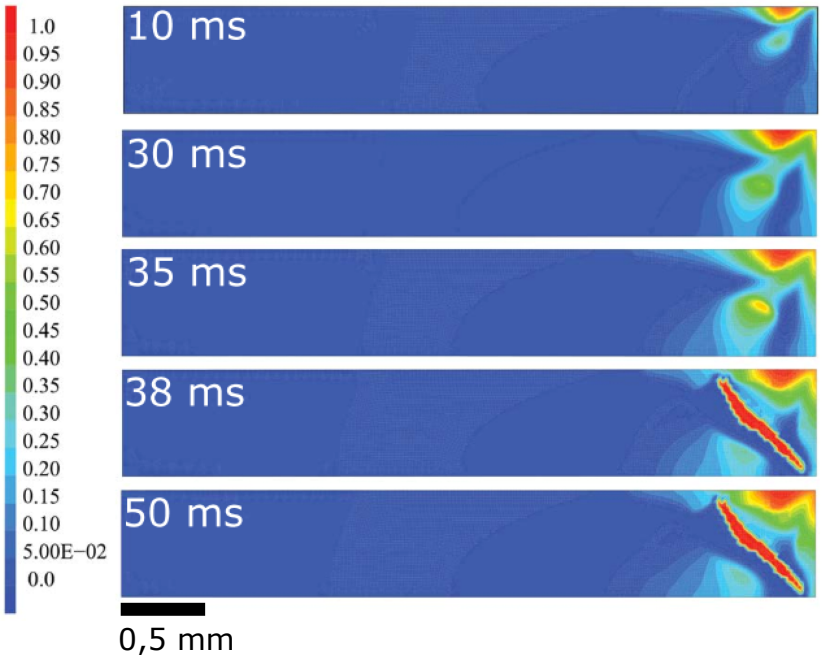


FIGURE 5.48. – Valeurs d'endommagement calculées à différents instants pendant la chauffe SM2_C1

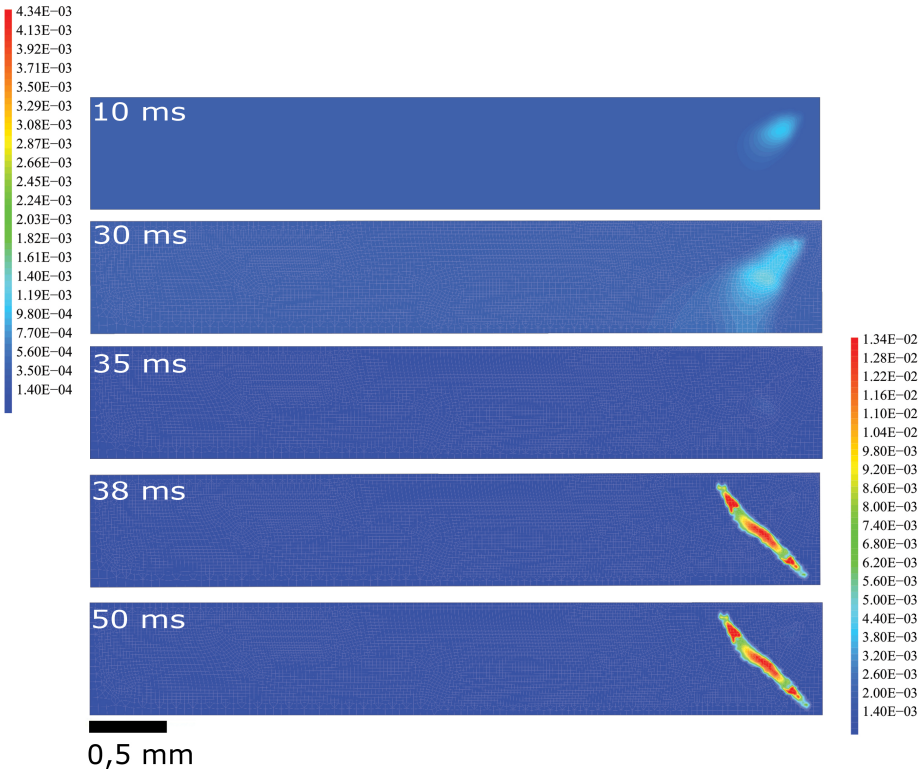


FIGURE 5.49. – Valeurs de Y_t calculées avec le nouveau paramétrage du μ-model pendant la chauffe SM2_C1 à différents instants. L'échelle de gauche correspond aux temps 10 et 30 ms et l'échelle de droite aux temps 35, 38 et 50 ms

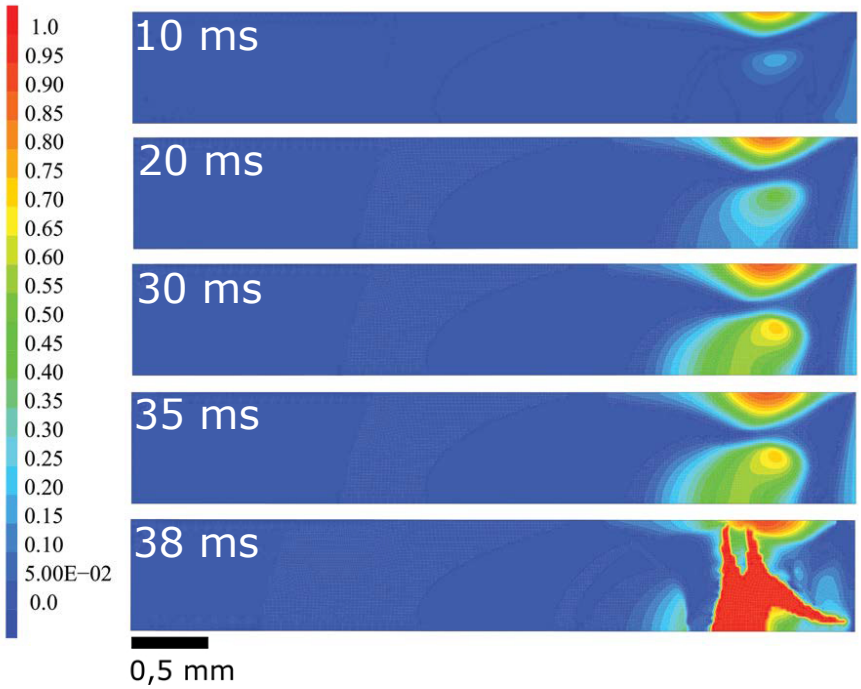


FIGURE 5.50. – Valeurs de D calculées avec le nouveau paramétrage du μ-model à différents instants pendant la chauffe SM2_C2

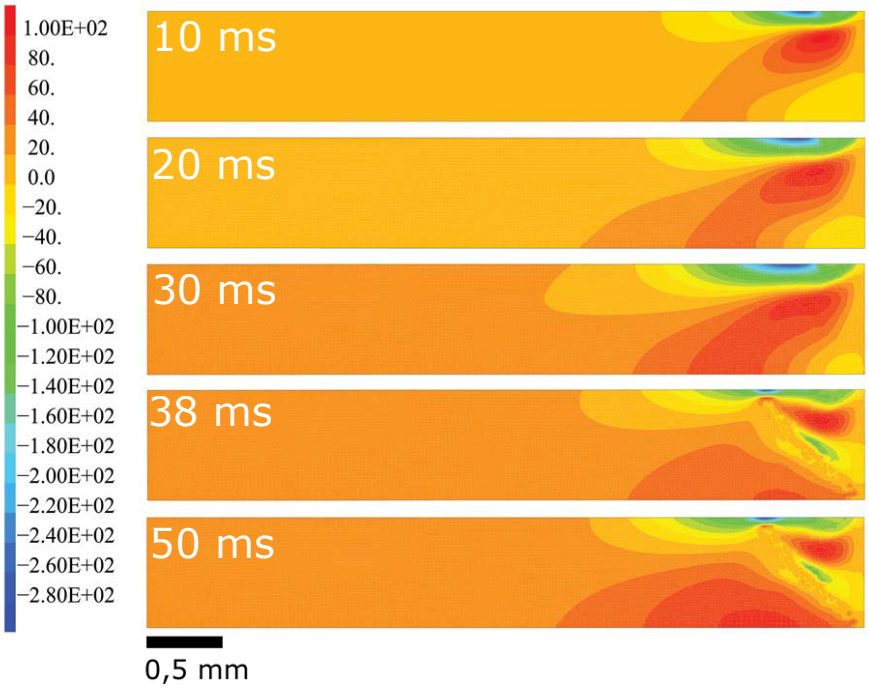


FIGURE 5.51. – Champs de contraintes radiales en MPa calculés à différents instants au cours de la chauffe SM2_C1

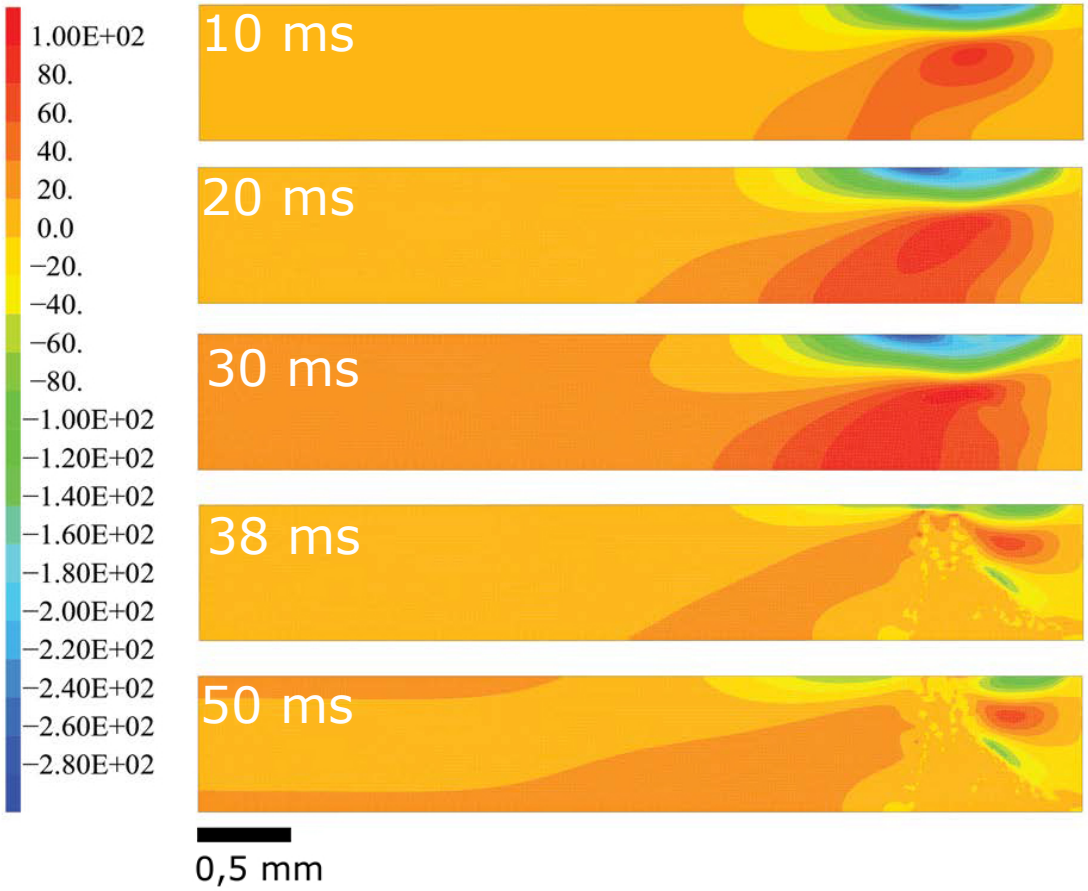


FIGURE 5.52. – Champs de contraintes radiales en MPa calculés à différents instants au cours de la chauffe SM2_C2

On voit donc au travers de ces deux chauffes que le paramétrage en traction du modèle est particulièrement important pour l'estimation de l'instant de fracturation. Les vitesses de déformations élevées et le développement rapide des contraintes de traction font qu'il n'est pas aisé de reproduire de façon régulière l'instant de fracturation. De manière globale, on voit néanmoins que les niveaux de contraintes de traction atteintes lorsque la fracturation se produit sont tout de même compris dans l'intervalle des mesures de la contrainte à la rupture de l'UO_2. De ce point de vue là, le paramétrage en compression du modèle qui pilote la mise en traction concomitante, basée sur la littérature et sur des essais réalisés à hautes vitesses de déformation, est tout à fait pertinent.

De plus, nous n'avons pas abordé le fait qu'utiliser le deuxième porte échantillon avec le système de mâchoires qui exerce une pression sur la circonférence de l'échantillon modifie sans doute les conditions limites. Il est très probable que ce cerclage retarde la fracturation du matériau, ce qui expliquerait la différence de comportement observé entre les deux séries. Un modèle 3D qui modéliserait un quart d'échantillon avec la cale supérieure de zircone, la pression exercée par celle-ci ainsi que les frottements échantillon-cale en zircone serait nécessaire en toute rigueur pour une analyse complète de ces chauffes. Cet exercice a été commencé dans le cadre de ces travaux de thèse mais n'est pas suffisamment abouti pour être présenté dans ce manuscrit.

5.3.4. Bilan de l'analyse thermo-mécanique des chauffes laser annulaires

Nous venons d'étudier quelques chauffes laser annulaires réalisées sur UO_2 qui ont mené à une fracturation circonférentielle totale et à de la micro-fissuration. La simulation thermo-élastique de telles chauffes met en évidence que, au niveau de la zone affectée thermiquement, la répartition des

contraintes est pertinente pour l'étude du comportement du combustible en situation accidentelle de type RIA. On retrouve notamment la biaxialité du chargement mécanique avec un pic de compression en périphérie d'échantillon. Nous avons aussi mis en évidence le fait que la fracturation circonférentielle observée est due à une zone de contraintes en traction qui se développe sous la zone affectée thermiquement de l'échantillon en réaction aux contraintes de compression qui se développent dans la zone chauffée. Nous avons déduit de cette observation que la modélisation au plus près du comportement en compression est essentielle si l'on souhaite modéliser fidèlement la fracturation, les contraintes de traction étant pilotées au premier ordre par les contraintes de compression.

Nous avons ensuite utilisé le μ-model pour la simulation thermo-mécanique des chauffes laser. Nous avons pu voir que le premier paramétrage en traction avec une contrainte à la rupture autour de 80 MPa -c'est à dire un comportement très fragile considérant la limite basse de la contrainte à la rupture de l'oxyde- permet de bien rendre compte du comportement thermo-mécanique dans le cas des essais réalisés pendant la thèse de T. Vidal. Dans le cadre d'une deuxième série de chauffe, nous avons vu que ce paramétrage mène à une fracturation très tôt durant la chauffe (avant 10 ms) ce qui allait à l'encontre des observations expérimentales. Nous avons proposé un deuxième paramétrage en traction du modèle, avec un comportement toujours fragile mais avec une contrainte et déformation à la rupture un peu plus élevées. Ce nouveau paramétrage permet de retarder le développement de l'endommagement, avec une croissance moins brutale de celui-ci. La deuxième série de chauffes dites "mécaniques" a été réalisée avec le porte échantillon qui tient le disque d'UO_2 par deux mâchoires verticales en ZrO_2. Il est certain que ce dispositif modifie les conditions limites du système en ajoutant une petite pression et des frottements sur la tranche du disque.

Des simulations en 3D avec une modélisation des différents appuis seraient nécessaire en toute rigueur pour l'analyse de ces chauffes. Ce travail a été commencé (réalisation du maillage 3D, notamment) mais n'est pas abouti à l'heure de la rédaction de ce manuscrit.

De manière générale, si la localisation et la direction de la fracturation ne sont pas parfaitement reproduites, on peut voir que la simulation précise du comportement en compression de la céramique permet tout de même de reproduire dans une certaine mesure le comportement mécanique de l'échantillon.

De plus, il semblerait qu'introduire une dépendance à la vitesse de déformation pour le comportement en traction avec un abaissement de la contrainte et de la déformation à la rupture à mesure que la vitesse de déformation augmente permettrait de mieux modéliser le comportement en traction et l'instant de fracturation de l'échantillon. L'ajout d'une dépendance à la température du comportement en traction pourrait aussi être une piste d'amélioration du modèle.

5.4. Chauffes combinées : vers la reproduction de la totalité du transitoire RIA

Nous présentons maintenant dans cette section une dernière série de chauffes dites combinées durant lesquelles nous combinons les faisceaux annulaire et homogène pour reproduire l'intégralité de la phase de montée en température d'un transitoire de type RIA. La configuration expérimentale est ici la plus avancée des configurations de chauffes laser présentées dans ce manuscrit :

1. Le chauffage périphérique est assuré par le faisceau annulaire,
2. Le chauffage de l'intégralité de la surface de l'échantillon est assuré par le faisceau homogène,
3. La caractérisation en temps réel des températures surfaciques est assurée par la caméra infrarouge,
4. La caractérisation de la réponse mécanique de l'échantillon est assurée par le dispositif de visualisation.

Nous nous bornons dans cette section à présenter les dynamiques de températures obtenues ainsi que les acquisitions avec le dispositif de visualisation et la comparaison calcul-mesure sur la thermique. Nous n'avons pas réalisé à ce jour de simulation thermo-mécanique de ces expériences. Nous présentons trois chauffes laser dites combinées dont le récapitulatif est donné dans le Tableau 5.7.

N°	Durée (ms)	Puissance annulaire (W)	Puissance homogène (W)	Température initiale (°C)
CC1	20	320	1540	600
CC2	100	160	800	600
CC3	20	450	1450	600

TABLEAU 5.7. – Récapitulatif des chauffes combinées

Les profils de températures obtenus pendant ces chauffes sont visibles sur les Figure 5.53 et 5.54. On peut voir que les pics de températures en périphérie ne sont pas strictement symétriques en termes d'intensités. Nous attribuons cette dissymétrie au fait que le faisceau homogène qui chauffe la totalité de la surface de l'échantillon n'est pas strictement homogène comme nous l'avons vu et que des modulations parfois importantes en amplitude sont de fait obtenues.

Les acquisitions dans le visible réalisées pendant les trois chauffes sont présentées sous forme de frises sur les Figure 5.55, 5.56 et 5.57.

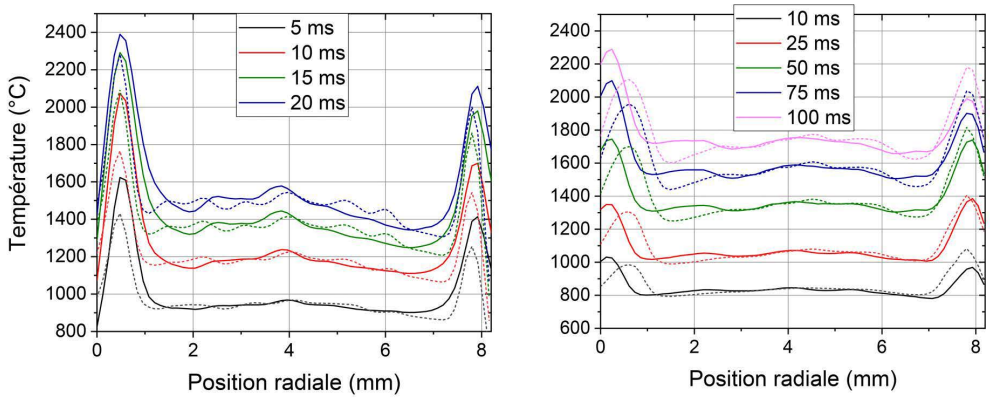


FIGURE 5.53. – Profils de températures mesurés pour la chauffe CC1 (à gauche) et pour la chauffe CC2 (à droite). Les profils en lignes pleines correspondent à la coupe verticale et les profils en lignes pointillées correspondent à la coupe horizontale.

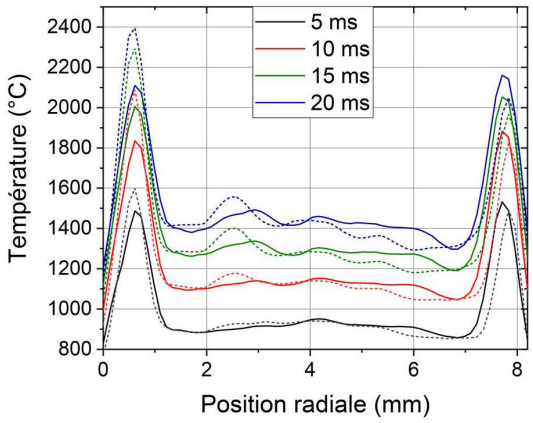


FIGURE 5.54. – Profils de températures mesurés pour la chauffe CC3. Les profils en lignes pleines correspondent à la coupe verticale et les profils en lignes pointillées correspondent à la coupe horizontale.

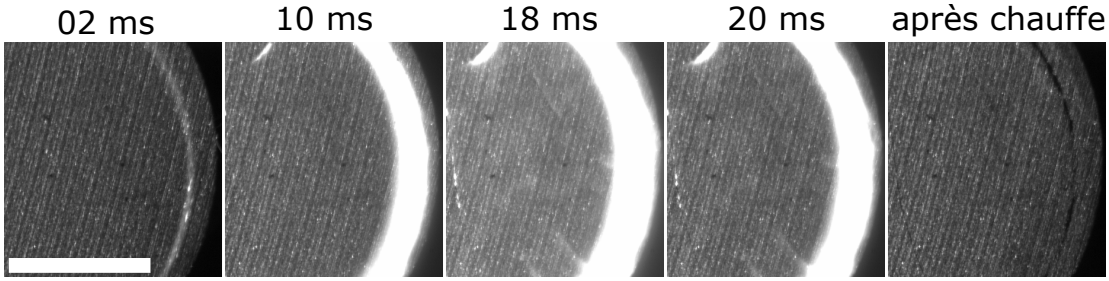


FIGURE 5.55. – Visualisation de l'échantillon pendant la chauffe CC1.

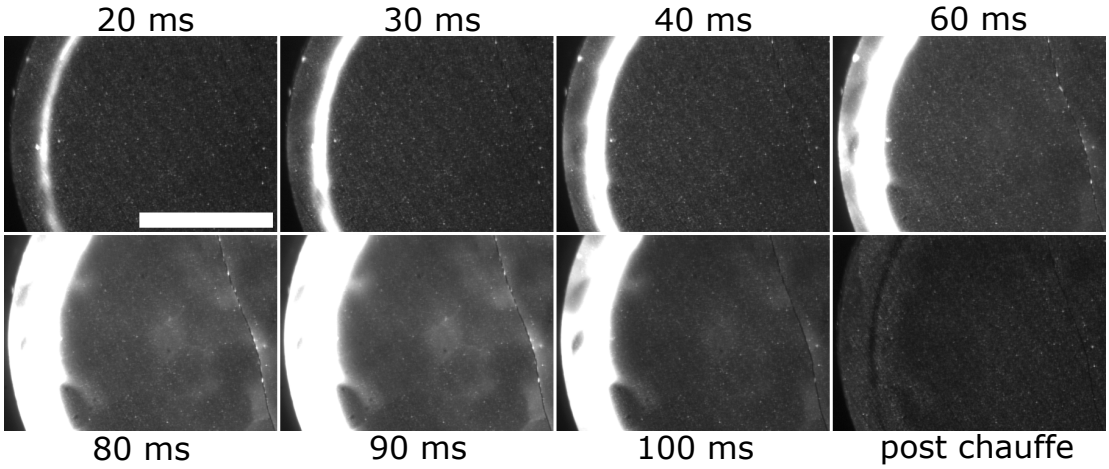


FIGURE 5.56. – Visualisation de l'échantillon pendant la chauffe CC2.

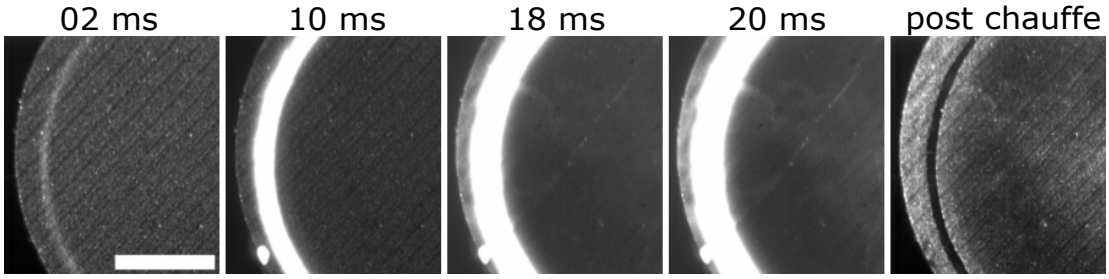


FIGURE 5.57. – Visualisation de l'échantillon pendant la chauffe CC3.

5.4.0.1. Comparaison simulations-mesures de la thermique des chauffes combinées

Comme précédemment nous comparons maintenant les profils obtenus par la simulation avec les profils mesurés. Comme pour l'analyse thermo-mécanique des chauffes précédentes, nous ne considérons que l'expression analytique du terme source de chaleur avec un coefficient d'absorption de 66 666,66 m^{-1}. Considérons d'abord les températures maximales calculées si on ne simule que le faisceau homogène. Cette étape permettra de différencier l'erreur induite par la simulation du faisceau homogène puis nous considérerons les profils de mesures obtenus en simulant les deux faisceaux. La température à pic en périphérie simulée devra être considérée en prenant en compte à la fois l'erreur induite par la simulation du faisceau homogène et l'erreur induite par la simulation du faisceau annulaire. Une comparaison des températures simulées et mesurées au dernier instant de la chauffe est donnée tableau 5.8. L'erreur simulation-mesure est comprise entre 14 et 18 % et, de manière attendue, la température simulée est systématiquement supérieure à la température mesurée. Ces pourcentages

d'erreurs sont dans la moyenne haute des % d'erreurs obtenus pendant l'étude de la thermique des chauffes homogènes en première partie de ce Chapitre.

N°	Température mesurée (°C)	σ_{mesure}	Température simulée (°C)	% Erreur
CC1	1455	66,3	1715	17,9
CC2	1677,8	70	1916	14,2
CC3	1385	68	1634	18

TABLEAU 5.8. – Température simulée (faisceau homogène seulement) et mesurée à 20 ms pour les chauffes CC1 et CC3 et à 100 ms pour la chauffe CC2. La mesure est effectuée sur la portion de pastille qui n'est pas chauffée par le faisceau annulaire.

Les profils simulés, simulés-convolués et mesurés aux derniers instants de chaque chauffe sont visibles sur les Figures 5.58 et 5.59. Les tracés des profils mesurés en vert correspondent à la moitié inférieure ou supérieure du profil de température vertical mesuré sur l'échantillon. On peut voir que pour les chauffes CC1 et CC2, les températures simulées à pic avant traitement avec la LSF de la caméra se trouvent juste en dessous de la température de fusion de l'UO_2. On rappelle que les valeurs simulées sur les chauffes annulaires sont sans doute celles se rapprochant le plus de la température réelle atteinte par l'échantillon, les profils de la simulation n'étant pas modifiés par la fonction de transfert optique du système de mesure. La convolution des profils permet là encore de se rapprocher de la température mesurée. Dans le cas de la CC3, la température simulée est supérieure à 3000 °C, soit bien au dessus de la température de fusion. Cette température simulée est cohérente avec l'état post-chauffe de l'échantillon qui semble avoir subit une modification de son état le long de la zone chauffée dont quelques images sont données Figure 5.60. En particulier, l'examen au MEB montre une modification assez nette de l'état de surface en plus du réseau de fissuration ou micro-fissuration classiquement observée le long de l'anneau laser. Il semblerait donc que la température de fusion ait été dépassée durant cette chauffe.

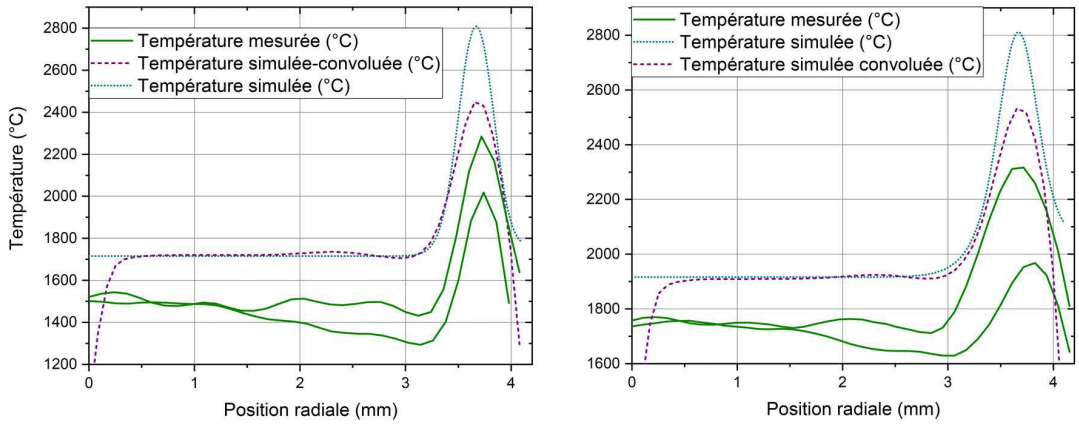


FIGURE 5.58. – Profils de températures mesurés, simulés, et simulés-convolués pour les chauffes CC1 (à gauche) et CC2 (à droite)

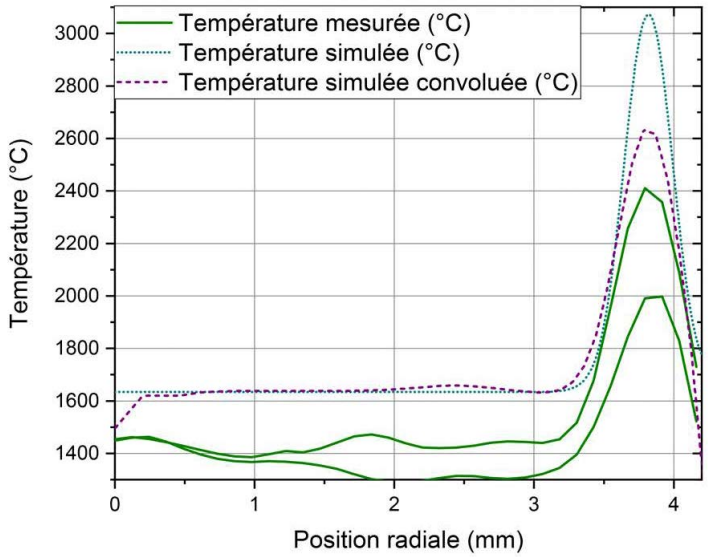


FIGURE 5.59. – Profils de températures mesurés, simulés, et simulés-convolués pour la chauffe C33.

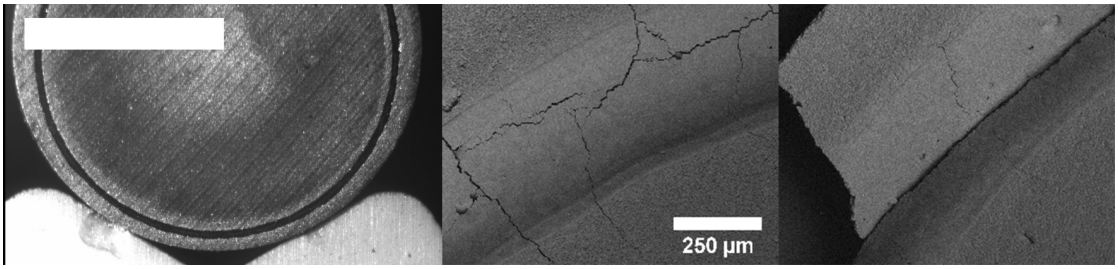


FIGURE 5.60. – A gauche : visualisation de l'échantillon post-chauffe. La barre d'échelle fait 4 mm. A droite : examination MEB de la zone chauffée par le faisceau annulaire.

5.4.0.2. Bilan des chauffes combinées

Nous venons de voir que la combinaison des deux faisceaux permet bien de complexifier le transitoire thermique induit sur l'échantillon. Nous avons réussi en première approche à reproduire la phase de montée en température d'un RIA avec un pic en périphérie d'échantillon. Nous avons aussi à nouveau comparé les températures simulées et mesurées et avons observé des écarts similaires à ceux observés pendant la qualification de la simulation thermique présentée en début de Chapitre.

Notamment la simulation nous indique que, dans le cas de la chauffe CC3, la température de fusion a été dépassée le long de la circonférence chauffée par le faisceau annulaire, ce qui explique la modification de l'état de surface observée post-chauffe avec ce qui semblerait être un creusement ou une densification de l'échantillon le long de cette zone. Ces expériences montrent qu'il est possible de générer des transitoires thermiques complexes avec notre approche.

La génération d'un profil plus complexe est tout à fait envisageable soit en modifiant les conditions limites de l'échantillon (refroidissement actif en périphérie de pastille par exemple) soit en ajoutant encore des faisceaux si nécessaires.

Une perspective intéressante serait de conduire cette chauffe combinée sur les deux faces d'un échantillon afin d'obtenir un chauffage le plus homogène possible axialement. On se trouverait alors dans des conditions quasi prototypique pour ce qui est de la phase de montée en température d'un RIA.

5.5. Bilan des chauffes laser

Pour terminer ce dernier chapitre, nous venons de voir plusieurs séries de chauffes laser, annulaires, homogènes ou chauffes dites "combinées" qui utilisent les deux faisceaux en même temps. Nous avons proposé une analyse poussée de la simulation thermique des chauffes annulaires et homogènes. Nous pouvons d'ailleurs noter les capacités expérimentales qu'offre notre approche de chauffage laser, avec des transitoires à la cinétique très rapide avec des températures simulées de l'ordre de 2250 °C -correspondant, comme nous l'avons vu, à des températures mesurées de 1250 °C- atteintes en 20 ms en partant d'une température d'environ 330 °C, et ce avec de relatives basses puissances (<500 W) dans le cas des chauffes annulaires.

Pour le chauffage homogène, nous avons vu que nous sommes capables d'atteindre des températures d'environ 2500 °C, proches de la température de fusion de l'oxyde, et ce en une centaine millisecondes avec une température initiale de 600 °C. La puissance utilisée était ici de 1500 W, soit environ 400 W encore disponibles avec le laser de 2000 W que nous utilisions.

L'analyse thermo-mécanique des chauffes annulaires s'est aussi montrée très intéressante et a montré que les répartitions des contraintes, la nature du chargement (biaxialité) mécanique et les vitesses de déformations atteintes pendant les chauffes laser étaient tout à fait pertinentes pour l'étude du combustible en situation de type RIA. Le modèle d'endommagement proposé a mis en évidence le potentiel de notre approche expérimentale à induire de l'endommagement en périphérie de pastille, phénomène qui est potentiellement responsable d'une bonne partie du RGF pendant le transitoire accidentel. Enfin nous avons mis en évidence la grande souplesse de cette technique expérimentale en combinant deux faisceaux laser (annulaire et homogène) pour complexifier le transitoire thermique induit par l'impulsion laser et reproduire l'intégralité de la phase de montée en température d'un RIA. De plus, les profils d'intensité, les durées d'impulsions et la puissance en fonction du temps de chaque faisceau pourraient être ajustés séparément pour contrôler avec finesse le transitoire thermique obtenu par chauffage laser un des avantages de cette technique étant sa grande flexibilité.

Conclusion et perspectives

Le travail de cette thèse était centrée sur la mise à profit d'une technique innovante de chauffage par laser, appliquée à de l'UO_2 appauvri, afin d'induire des conditions thermo-mécaniques d'intérêt pour l'étude du comportement du combustible nucléaire en situation accidentelle de type RIA. Le premier chapitre bibliographique nous a permis de mettre en évidence les phénomènes physiques (cinétique de la fragmentation et du relâchement des gaz de fission pendant le transitoire accidentel, notamment) qui gagneraient à être mieux compris grâce à des essais analytiques conduits sur irradié en laboratoire chaud. Nous avons aussi présenter les spécificités et la phénoménologie détaillée du transitoire.

Le deuxième chapitre a porté sur la présentation de la plateforme expérimentale CHAUCOLASE basée à l'Institut Fresnel et des configurations utilisées dans le cadre de cette thèse. Les développements ou caractérisations du matériel (système de visualisation, estimation de la fonction de transfert de la caméra thermique etc.) réalisés au cours de ce travail de thèse ont aussi étés présentés dans ce chapitre.

L'un des objectif initial de la thèse était de coupler le chauffage laser sur UO_2 à un schéma de calcul thermo-mécanique. En conséauence et afin de décrire au mieux le couplage du laser dans l'échantillon, nous avons présenté dans le troisième chapitre une étude de l'interaction laser-UO_2 par le biais d'un banc de spectro-photométrie permettant de réaliser des mesures de réflectance et de transmittance sur des échantillons de type lames minces (épaisseur de quelques dizaines de μm). A partir de ces mesures, nous avons proposé des valeurs de l'indice optique complexe de l'UO_2 par l'utilisation d'un modèle simple de propagation de la lumière dans l'échantillon. Ce modèle pourrait être complexifié pour affiner la détermination de l'indice optique complexe. Nous avons par exemple mis en évidence le fait que notre approche ne considère pas le phénomène de diffusion de la lumière lorsque celle-ci se propage dans le matériau. Néanmoins notre approche nous a permis de dégager une valeur de coefficient d'absorption permettant de nous positionner par rapport aux disparités observées dans la littérature sur la valeur de ce coefficient d'absorption.

Nous avons ensuite présenté dans le quatrième chapitre les modèles numériques développés pour la simulation et l'interprétation thermo-mécanique des chauffes lasers. Le schéma de calcul thermo-mécanique a été développé avec le solveur du CEA Cast3m, utilisé par exemple dans le code de performance ALCYONE. Nous avons détaillé la description du chargement laser par une source de chaleur volumique et avons introduit une étape de calcul Monte-Carlo permettant d'obtenir un terme source de chaleur prenant en compte la diffusion du rayonnement laser dans l'échantillon. Nous avons aussi introduit un modèle d'endommagement que nous avons paramétré sur la base de la littérature pour rendre compte du comportement mécanique de l'oxyde lorsque soumis à des chauffes laser. Ce modèle rend notamment compte du comportement spécifique en compression de la céramique à hautes-vitesses de déformation et reproduit la transition fragile-ductile observée expérimentalement.

Enfin le cinquième et dernier chapitre de ce manuscrit nous a permis de combiner et de mettre à profit tous les développements expérimentaux ou numériques présentés dans les chapitres précédents. Nous avons réalisé dans un premier temps une confrontation calcul-mesure des températures mesurées et calculées pendant des chauffes laser annulaires. Nous avons mis en évidence l'importance de la prise en compte de la fonction de transfert de la caméra thermique. Nous avons de plus réalisé une étude d'impact de la diffusion du rayonnement laser grâce au schéma de calcul Monte-Carlo présenté dans le chapitre 4. Nous avons réalisé la même confrontation calcul/mesure sur des chauffes réalisées avec un faisceau laser homogène. Une fois cette comparaison et caractérisation effectuée et nous être assuré de la maîtrise de la simulation thermique, nous avons réalisé une série d'études thermo-mécaniques de chauffes laser annulaires. La pertinence de notre approche expérimentale a été mise en évidence avec

l'obtention d'un état de contraintes proche du cas prototypique. L'utilisation du μ-model pour simuler la mécanique et la fracturation des échantillons a aussi donné de bons résultats mais nous avons mis en évidence la grande sensibilité du modèle à son paramétrage en traction.

Ce travail de thèse nous a donc permis d'exploiter une technique expérimentale originale et innovante pour l'étude du combustible en situation accidentelle. L'analyse thermo-mécanique des expériences a clairement montré la pertinence et l'opportunité qu'offre cette technique pour la réalisation d'essais analytiques en complément des programmes d'essais en réacteurs de recherche.

Le modèle d'endommagement proposé et sa paramétrisation pourrait être largement amélioré, notamment pour la partie traction qui, nous l'avons vu, est très sensible. Un objectif intéressant serait de découpler l'endommagement par compression de la fracturation et de reproduire l'endommagement par compression sur la zone chauffée. Le cas échéant, un calcul thermo-mécanique en considérant un matériau irradié avec un inventaire gazeux pourrait permettre de calculer un RGF et servirait donc de base de prédimenssionement pour de futurs essais sur irradié.

Comme nous l'avons discuté durant la dernière partie portant sur l'utilisation de deux faisceaux pour la reproduction de la totalité de la phase d'échauffement du transitoire, les transitoires thermiques induits par chauffage laser peuvent être facilement complexifiés ou modifiés. On peut tout à fait imaginer des profils de température complexes en jouant sur les caractéristiques des faisceaux eux mêmes : profils d'intensité, durée des impulsions, puissance variable avec le temps pour une maîtrise fine des montées en température, etc. Une étape supplémentaire pour complexifier les transitoires pourrait consister, dans le cadre du RIA, à contrôler le profil de température initial ainsi que la phase de redescente en température. De manière générale nous avons clairement montré l'intérêt qu'aurait cette technique à être nucléarisée et à être implantée en cellule blindée.

Pour ce faire, une étape importante préalable serait la caractérisation de l'absorption du rayonnement laser sur des matériaux plus complexes et hétérogènes simulant au plus près un combustible irradié, afin de quantifier l'impact éventuel de la modification de la composition et de la porosité du combustible sur le couplage et le dépôt de puissance du laser dans le matériau. Comme dit précédement, la quantification de l'évolution des propriétés optiques avec la température serait aussi à étudier en toute rigueur. Néanmoins nous n'avons pas noté d'évolution notable de l'erreur calcul-mesure en fonction de la température maximale atteinte, ce qui sous entend que les propriétés optiques ne varient pas de manière suffisament significative pour jouer au premier ordre sur les niveaux de température atteints.

ANNEXES

A. Equations du faisceau annulaire gaussien.

D'après T. Vidal [100].
Soit le profil radial d'intensité du faisceau annulaire gaussien :

$$I(r) = I_{max}.e^{-2\frac{(r-r_{an})^2}{\omega_{an}^2}} \tag{.1}$$

Avec r la position radiale, r_{an} le rayon du faisceau et ω_{an} la demie-épaisseur ou waist de l'anneau à $1/e^2$. Il nous faut maintenant exprimer I_{max} l'intensité maximale du faisceau à $r = r_{an}$ en fonction de la puissance P et des dimensions du faisceau annulaire caractérisées par R_{an} et ω_{an}.

$$P(r,\theta) = \int_0^{2\pi+\infty} I(r),\theta,r,d\theta,dr \tag{.2}$$

$$P(r) = 2\pi \int_0^{+\infty} I_0 e^{-2\frac{(r-r_{an})^2}{\omega_{an}^2}}.r.dr \tag{.3}$$

Soit $A = r - r_{an}$, on peut alors écrire :

$$\frac{P(r)}{2\pi} = I_0 \int_{-r_{an}}^{+\infty} e^{-2\frac{A^2}{\omega_{an}^2}}.(A + r_{an}).dA \tag{.4}$$

$$\frac{P(r)}{2\pi.I_0} = \int_{-r_{an}}^{+\infty} e^{-2\frac{A^2}{\omega_{an}^2}}.A.dA + \int_{-r_{an}}^{+\infty} e^{-2\frac{A^2}{\omega_{an}^2}}.r_{an}.dA \tag{.5}$$

$$\frac{P(r)}{2\pi.I_0} = \int_{-r_{an}}^{+\infty} \left(-\frac{\omega_{an}^2}{4}\right).\left(-\frac{4}{\omega_{an}^2}\right).A.e^{-2\frac{A^2}{\omega_{an}^2}}dA + r_{an}.\int_{-r_{an}}^{+\infty} e^{-2\frac{A^2}{\omega_{an}^2}}dA \tag{.6}$$

Soit $u = -\frac{2A^2}{\omega_{an}^2}$ et $u' = -\frac{4A}{\omega_{an}^2}$. On alors $\int u'.e^u.du = e^u$.
Soit $B = \frac{\sqrt{2}A}{\omega_{an}}$. On peut alors écrire :

$$\frac{P(r)}{2\pi.I_0} = -\frac{\omega_{an}^2}{4}.\left[e^{-2\frac{A^2}{\omega_{an}^2}}\right]_{-r_{an}}^{+\infty} + r_{an}.\frac{\sqrt{\pi}}{2}.\frac{2}{\sqrt{\pi}}.\frac{\omega_{an}}{\sqrt{2}}\int_{-\frac{\sqrt{2}r_{an}}{\omega_{an}}}^{+\infty} e^{-B^2}dB \tag{.7}$$

Avec $t = B$ et $x = -\frac{\sqrt{2}.r_{an}}{\omega_{an}}$ on a $erfc(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}}\int_x^{+\infty} e^{-t^2}.dt$

$$\frac{P(r)}{2\pi.I_0} = -\frac{\omega_{an}^2}{4}.\left(0 - e^{-2\frac{r_{an}^2}{\omega_{an}^2}}\right) + r_{an}.\frac{\omega_{an}.\sqrt{\pi}}{2.\sqrt{2}}.erfc\left(-\frac{\sqrt{2}.r_{an}}{\omega_{an}}\right) \tag{.8}$$

$$\frac{P(r)}{2\pi.I_0} = \frac{\omega_{an}^2}{4}.e^{-2\frac{r_{an}^2}{\omega_{an}^2}} + r_{an}.\frac{\omega_{an}.\sqrt{\pi}}{2.\sqrt{2}}.erfc\left(-\frac{\sqrt{2}.r_{an}}{\omega_{an}}\right) \tag{.9}$$

$$\frac{P(r)}{2\pi.I_0} = \frac{\omega_{an}^2}{4}.e^{-2\frac{r_{an}^2}{\omega_{an}^2}} + r_{an}.\frac{\omega_{an}.\sqrt{\pi}}{2.\sqrt{2}}.erfc\left(-\frac{\sqrt{2}.r_{an}}{\omega_{an}}\right) \tag{.10}$$

On a donc :

$$I_{max} = I_0 = \frac{P}{\pi\left(\frac{\omega_{an}^2}{2}.e^{\frac{-2R_{an}^2}{\omega_{an}^2}}\right) + R_{an}.\frac{\omega_{an}.\sqrt{\pi}}{\sqrt{2}}.erfc\left(-\frac{\sqrt{2}.R_{an}}{\omega_{an}}\right)} \tag{.11}$$

B. Estimation de la PSF de la caméra infrarouge depuis une mesure de l'ESF

Comme expliqué dans le Chapitre 2, on peut considérer l'ESF comme une combinaison linéaire de fonctions connues comme des fonctions erreur ou arc tangente [109-111]. La LSF étant la dérivée de l'ESF, on peut facilement exprimer la LSF comme la dérivée de ces fonctions. De même, si la transformée d'Abel inverse de ces fonctions est connue il est aisée d'exprimer la PSF comme une combinaison linéaire de fonctions connues comme montré dans le Tableau 9.

PSF Gaussien		PSF Cauchy	
$ESF(x) = \frac{1}{2} + \sum_{i=1}^{N} a_i.erf\left(\frac{x}{b_i}\right)$	(.12)	$ESF(x) = \frac{1}{2} + \sum_{i=1}^{N} \frac{a_i}{b_i} arctan\left(\frac{x}{b_i}\right)$	(.13)
$LSF(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \sum_{i=1}^{N} \frac{a_i}{b_i}.exp\left(\frac{-x^2}{b_i^2}\right)$	(.14)	$LSF(x) = \sum_{i=1}^{N} \frac{a_i}{x^2 + b_i^2}$	(.15)
$PSF(r) = \frac{2}{\pi} \sum_{i=1}^{N} \frac{a_i}{b_i^2}.exp\left(\frac{-r^2}{b_i^2}\right)$	(.16)	$PSF(r) = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^{N} \frac{a_i}{\left(x^2 + b_i^2\right)^{3/2}}$	(.17)

TABLEAU 9. – Combinaison linéaires pour les différentes fonctions d'étalements dans le cas où la PSF est une combinaison de fonctions Gaussienne et dans le cas où elle est une combinaison de fonctions de Cauchy

Nous pouvons donc obtenir de cette manière une fonction continue en 1D de la PSF. Pour déduire une PSF s'approchant de la PSF réelle du système, on intègre la fonction continue en (x,y). Pour chaque pixel de coordonnée (i,j) on intègre sur $i = [i - 0.5,\ i + 0.5]$ et $j = [j - 0.5,\ j + 0.5]$ [109] :

$$PSF_{i,j} = \int_{i-0.5}^{i+0.5} \int_{j-0.5}^{j+0.5} PSF_{theorique}\left(\sqrt{x^2 + y^2}\right) dx, dy \tag{.18}$$

Nous avons effectué un ajustement de l'ESF expérimentale présentée ci-dessus avec des combinaisons linéaires de fonctions erreur ou arc tangente et comparé la qualité des différentes optimisations. L'ajustement consiste à réaliser une optimisation numérique par la méthode des moindres carrés de la fonction objectif $\chi^2 = \sum ESF_{exp}(x) - ESF_{th}(x, a, b)$ avec l'algorithme de Levenberg-Marquadt. Des combinaisons linéaires de 1, 2, 3 et 5 fonctions ont étés optimisées pour le cas de la PSF gaussienne et pour le cas de la PSF exprimée avec des fonctions de Cauchy. Le tracé des optimisations est donné Figure 61 et le tableau 10 récapitule les résultats de ces optimisations. Globalement on peut voir qu'augmenter le nombre de fonctions n'améliore que très légèrement la qualité de l'ajustement et la racine de l'erreur quadratique moyenne (RMSE) semble stagner autour de 3% par rapport à l'ESF expérimentale. L'ajustement avec des fonctions de Cauchy est meilleur au centre de la courbe sur la transition entre 0 et 1 mais est moins bonne sur les extrémités de l'ESF comme on peut le voir en bas de la Figure 61.

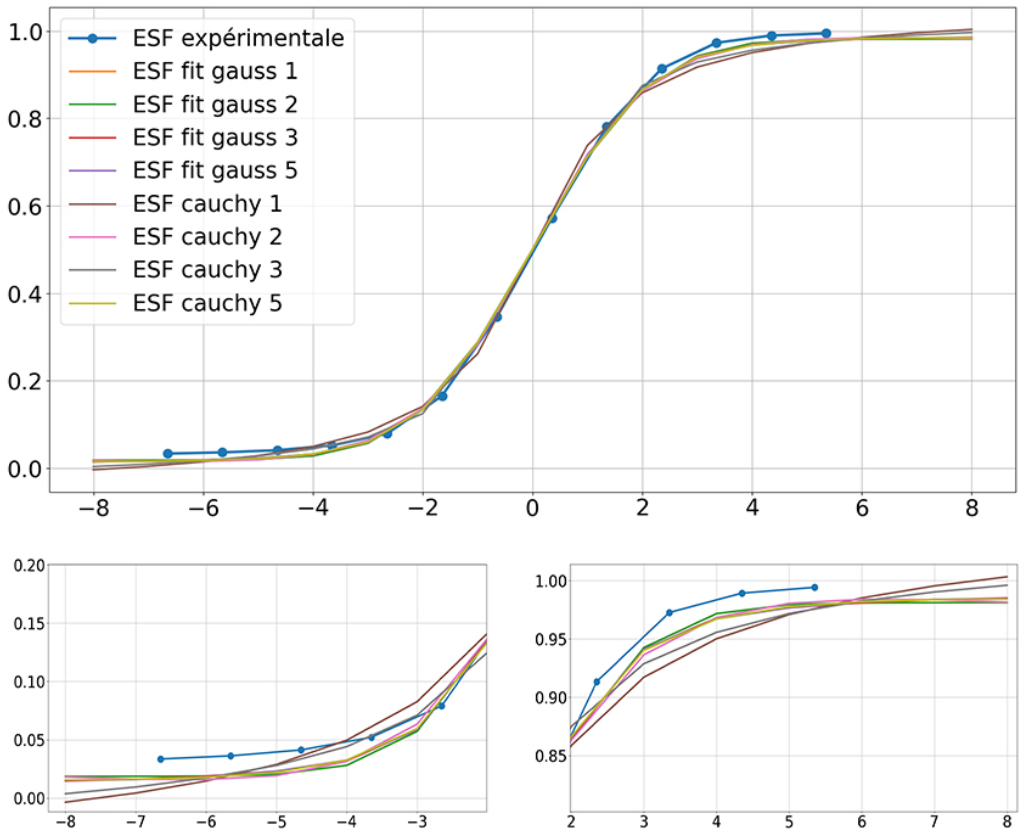


FIGURE 61. – Comparaison entre l'ESF expérimentale et les différents fits effectués. En bas : zoom sur les extrémités du graphe.

On décide d'exprimer notre estimation de la PSF avec une fonction gaussienne simple, la qualité de l'ajustement dans ce cas de figure n'étant que très légèrement inférieure au cas où l'on utilise 5 fonctions de Cauchy.

Nom	Coefficients		r^2	RMSE
Gauss 1	a1	0.48173	0.994459	0.0324
	b1	2.53656		
Gauss 2	a1	0.02845	0.994488	0.0323
	b1	5.48359		
	a2	0.45562		
	b2	2.43531		
Gauss 3	a1	79.34437	0.994494	0.0322
	b1	3.25525		
	a2	79.60968		
	b2	3.15381		
	a3	-158.46988		
	b3	3.20623		
Gauss 5	a1	-10.47188	0.994494	0.0322
	b1	3.21116		
	a2	-10.47117		
	b2	3.21114		
	a3	-10.47662		
	b3	3.21098		
	a4	15.24261		
	b4	3.32061		
	a5	16.66124		
	b5	3.09371		
Cauchy 1	a1	0.42572	0.992829	0.0368
	b1	1.22961		
Cauchy 2	a1	1.24156	0.993933	0.0338
	b1	$1.315e^{-0.3}$		
	a2	$-9.19683e^{-0.1}$		
	b2	$9.74407e^{-04}$		
Cauchy 3	a1	0.72061	0.993933	0.0338
	b1	0.00907		
	a2	0.72061		
	b2	0.00907		
	a3	-1.11932		
	b3	0.00706		
Cauchy 5	a1	23.35637	0.994489	0.0323
	b1	2.01574		
	a2	23.35886		
	b2	2.01588		
	a3	-40.14687		
	b3	2.21514		
	a4	-30.35478		
	b4	1.84525		
	a5	23.58049		
	b5	2.01599		

TABLEAU 10. – Coefficients obtenus après optimisation de plusieurs combinaisons linéaires dans le cas où le PSF est une combinaison de fonctions Gaussienne et dans le cas où elle est une combinaison de fonctions de Cauchy

On discrétise maintenant cette estimation de la PSF comme expliqué précédemment avec comme paramètre a=0,48173 et b=2,53656. La PSF obtenue est ensuite normalisée de façon à ce que l'aire sous sa courbe soit égale à 1 afin de respecter la conservation de l'énergie (la PSF ne représente que les aberrations optiques). L'estimation de la PSF ainsi obtenue est visible Figure 62 et sa largeur à $1/e^2$ est

de 7 pixels.

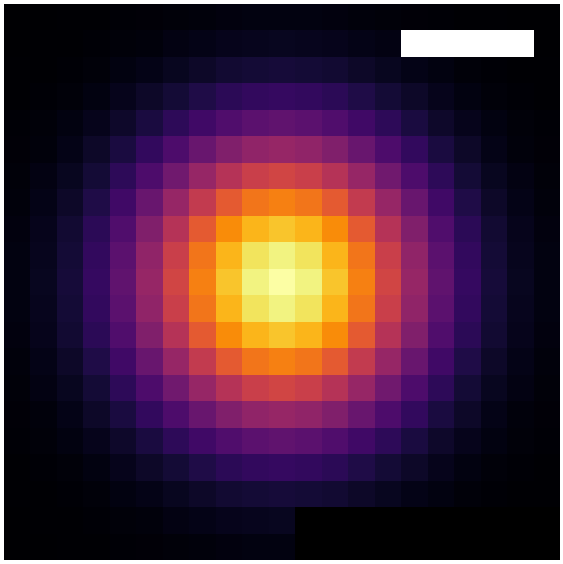


FIGURE 62. – Estimation de la PSF calculée. La barre d'échelle a une largeur de 5 pixels.

C. Equations pour le modèle analytique de propagation de la lumière

C.1. R vers n :

La reflection spéculaire à l'interface UO_2-Verre est classiquement obtenue avec les équations de Fresnel. Si l'on considère que la couche d'UO_2 est suffisamment absorbante pour négliger les multiples réflexions à l'intérieur de la couche d'UO_2, il est possible par inversion de R d'obtenir la valeur de n si k est connu. On peut alors écrire :

$$R = |r_1|^2 = \frac{(n_{UO_2} - n_{air})^2 + k_{UO_2}^2}{(n_{UO_2} + n_{air})^2 + k_{UO_2}^2} \tag{.19}$$

$$0 = -R + \frac{(n_{UO_2} - n_{air})^2 + k_{UO_2}^2}{(n_{UO_2} + n_{air})^2 + k_{UO_2}^2} \tag{.20}$$

$$\frac{1 + k_{UO_2}^2 - R - k_{UO_2}^2 R - 2n_{UO_2} - 2Rn_{UO_2} + n_{UO_2}^2 - Rn_{UO_2}^2}{n_{UO_2}^2 + 2n_{UO_2} + k_{UO_2}^2 + 1} = 0 \tag{.21}$$

$$1 + k_{UO_2}^2 - R - k_{UO_2}^2 R - 2n_{UO_2} - 2Rn_{UO_2} + n_{UO_2}^2 - Rn_{UO_2}^2 = 0 \tag{.22}$$

$$1 + k_{UO_2}^2 - R - k_{UO_2}^2 R + n_{UO_2}(-2R - 2) + n_{UO_2}^2(1 - R) = 0 \tag{.23}$$

$$\frac{-k_{UO_2}^2 R - R + k_{UO_2}^2 + 1}{1 - R} + \frac{n_{UO_2}(-2R - 2)}{1 - R} + n_{UO_2}^2 = 0 \tag{.24}$$

$$\frac{n_{UO_2}(-2R - 2)}{1 - R} + n_{UO_2}^2 = -\frac{-k_{UO_2}^2 R - R + k_{UO_2}^2 + 1}{1 - R} \tag{.25}$$

$$\frac{n_{UO_2}(-2 - 2R)}{1 - R} + n_{UO_2}^2 + \frac{(-2R - 2)^2}{4(1 - R)^2} = -\frac{-k_{UO_2}^2 R - R + k_{UO_2}^2 + 1}{1 - R} + \frac{(-2R - 2)^2}{4(1 - R)^2} \tag{.26}$$

$$\left(\frac{-2 - 2R}{2(1 - R)} + n_{UO_2}\right)^2 = \frac{(-2R - 2)^2}{4(1 - R)^2} - \frac{-k_{UO_2}^2 R - R + k_{UO_2}^2 + 1}{1 - R} \tag{.27}$$

$$\frac{-2 - 2R}{2(1 - R)} + n_{UO_2}.\sqrt{1 - R} = \sqrt{\frac{(-2 - 2R)^2}{4(1 - R)} + k_{UO_2}^2 R + R - k_{UO_2}^2 - 1}; -\sqrt{\frac{(-2 - 2R)^2}{4(1 - R)} + k_{UO_2}^2 R + R - k_{UO_2}^2} \tag{.28}$$

n est évidement positif dans notre cas, on retient donc la première expression. La partie réelle de l'indice de réfraction vaut donc :

$$n_{UO_2} = \sqrt{\frac{(-2 - 2R)^2}{4(1 - R)} + k_{UO_2}^2 R + R - k_{UO_2}^2 - 1}.\frac{1}{\sqrt{1 - R}} + 1 \tag{.29}$$

C.2. R_2 depuis la mesure de réflexion en face arrière

Soit R la reflectance mesurée en face arrière. On peut décomposer R comme la somme des multiples réflexions ayant eu lieu dans la couche de verre et par inversion, obtenir le coefficient R_2. On néglige les multiples réflexions à l'intérieur de la couche absorbante d'UO_2. Un schéma explicatif est visible Figure 63. Le coefficient R_3 à l'interface Air-Verre est évidement connu ou aisément obtenu à partir de l'indice de réfraction du verre et de l'air.

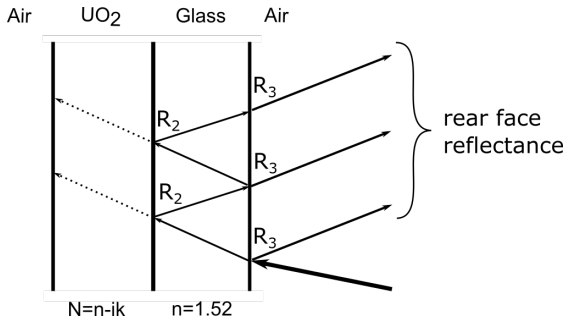


FIGURE 63. – Schéma du système optique considéré pour l'inversion de la mesure de réflectance en face arrière.

$$R = r_3 + \frac{T_3^2.R_2}{1-R_3.R_2} = R_3 + \frac{(1-R_3)^2.R_2}{1-R_3.R_2} \tag{.30}$$

$$\frac{2.R_3.R_2 - R_2 - R_3}{R_3.R_2 - 1} = R \tag{.31}$$

$$2.R_3.R_2 - R_2 - R_3 = R(R_3.R_2 - 1) \tag{.32}$$

$$R_2(2.R_3 - 1) - R_3 = R.R_3.R_2 - R \tag{.33}$$

$$R_2(-R.R_3 + 2.R_3 - 1) = -R + R_3 \tag{.34}$$

$$R_2 = \frac{-R + R_3}{-R_3 R + 2.R_3 - 1} \tag{.35}$$

Et nous avons $T_2 = 1 - R_2$.

Bibliographie

[1] *BP Statistical Review of World Energy 2019* (cf. p. 15).

[2] FRANCE et COMMISSARIAT À L'ÉNERGIE ATOMIQUE. *Le Traitement-recyclage du combustible nucléaire usé : La séparation des actinides - Application à la gestion des déchets*. CEA Saclay ; Groupe Moniteur, 2008 (cf. p. 16, 19).

[3] H. BAILLY, D. MÉNESSIER et C. PRUNIER. *Le combustible nucléaire des réacteurs à eau sous pression et des réacteurs à neutrons rapides : Conception et comportement*. 30 Octobre 1998. Collection du Commissariat à l'énergie atomique. Série synthèses. CEA (cf. p. 17, 23).

[4] C. RONCHI, M. SHEINDLIN, M. MUSELLA et al. « Thermal conductivity of uranium dioxide up to 2900 K from simultaneous measurement of the heat capacity and thermal diffusivity ». In : *Journal of Applied Physics* 85 (1999), p. 776-789 (cf. p. 18).

[5] *Thermophysical properties database of materials for light water reactors and heavy water reactors : final report of a coordinated research project, 1999-2005*. OCLC : 72476506. Vienna : International Atomic Energy Agency, 2006 (cf. p. 18, 23, 57, 87-90, 101).

[6] D. BARON et P. BOUFFIOUX. *Le crayon combustible des réacteurs à eau pressurisée de grande puissance (Tranches 900 et 1300 Mwe)* (cf. p. 19).

[7] L OI JERNKVIST. *Sensitivity Study on Clad Tube Failure under Reactivity Initiated Accidents in Light Water Reactors*. Rapp. tech. 2004 :34. SKI, p. 51 (cf. p. 19).

[8] K. NOGITA et K. UNE. « Irradiation-induced recrystallization in high burnup UO2 fuel ». In : *Journal of Nuclear Materials* 226.3 (1995), p. 302-310 (cf. p. 20).

[9] 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. 20).

[10] K NOGITA et K UNE. « High resolution TEM observation and density estimation of Xe bubbles in high burnup UO2 fuels ». In : *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms* 141 (1998), p. 481-486 (cf. p. 20).

[11] L E THOMAS, C E BEYER et L A CHARLOT. « Microstructural analysis of LWR spent fuels at high burnup ». In : *Journal of Nuclear Materials* 188 (1992), p. 80-89 (cf. p. 20).

[12] M.S. VESHCHUNOV. « Modelling of grain face bubbles coalescence in irradiated UO2 fuel ». In : *Journal of Nuclear Materials* 374.1-2 (2008), p. 44-53 (cf. p. 20).

[13] P. GARCIA, G. MARTIN, C. SABATHIER et al. « Nucleation and growth of intragranular defect and insoluble atom clusters in nuclear oxide fuels ». In : *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms* 277 (2012), p. 98-108 (cf. p. 20).

[14] P LÖSÖNEN. « On the behaviour of intragranular ®ssion gas in UO2 fuel ». In : *Journal of Nuclear Materials* 280 (2000), p. 56-72 (cf. p. 20).

[15] A MICHEL. « Etude du comportement des gaz de fission dans le dioxyde d'uranium : mécanismes de diffusion, nucléation et grossissement de bulles ». Thèse de doct. 2011 (cf. p. 20, 40).

[16] M TONKS, D ANDERSSON, R DEVANATHAN et al. « Unit mechanisms of fission gas release : Current understanding and future needs ». In : *Journal of Nuclear Materials* 504 (2018), p. 300-317 (cf. p. 20).

[17] M. MARCET, Y. PONTILLON, L. DESGRANGES et al. « High Burn up Structure Contribution to the Fission Gas Release under Transient Conditions ». In : *Proceedings of the Water Reactor Fuel Performance Meeting - WRFPM / Top Fuel 2009* (cf. p. 21, 32).

[18] L. NOIROT. « MARGARET : A comprehensive code for the description of fission gas behavior ». In : *Nuclear Engineering and Design* 241.6 (2011), p. 2099-2118 (cf. p. 21).

[19] 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. 21, 22).

[20] OECD et NUCLEAR ENERGY AGENCY. *Fission Gas Behaviour in Water Reactor Fuels : Seminar Proceedings, Cadarache, France, 26-29 September 2000*. Nuclear Science. OECD, 2002 (cf. p. 21, 22).

[21] Antonino ROMANO, Matthias I. HORVATH et Renato RESTANI. « Evolution of porosity in the high-burnup fuel structure ». In : *Journal of Nuclear Materials* 361.1 (2007), p. 62-68 (cf. p. 21).

[22] C. RONCHI, M. SHEINDLIN, D. STAICU et al. « Effect of burn-up on the thermal conductivity of uranium dioxide up to 100.000 MWdt-1 ». In : *Journal of Nuclear Materials* 327.1 (2004), p. 58-76 (cf. p. 21).

[23] J. SPINO, K. VENNIX et M. COQUERELLE. « Detailed characterisation of the rim microstructure in PWR fuels in the burn-up range 40–67 GWd/tM ». In : *Journal of Nuclear Materials* 231.3 (1996), p. 179-190 (cf. p. 21).

[24] M MOGENSEN, J H PEARCE et C T WALKER. « Behaviour of fission gas in the rim region of high burn-up UO2 fuel pellets with particular reference to results from an XRF investigation ». In : *Journal of Nuclear Materials* (1999), p. 99-112 (cf. p. 21).

[25] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. *Nuclear Fuel Behaviour Under Reactivity-initiated Accident (RIA) Conditions, State-of-the-art Report*. 2010 (cf. p. 21, 24, 26, 35).

[26] M E CUNNINGHAM, M D FRESHLEY et D D LANNING. « Development and characteristics of the rim region in high burnup UO, fuel pellets ». en. In : (), p. 9 (cf. p. 21).

[27] *State-of-the-Art Report on Multi-scale Modelling of Nuclear Fuels*. NSC/R/(2015)5. Nuclear Energy Agency, 2015 (cf. p. 22).

[28] J. SERCOMBE, I. AUBRUN et C. NONON. « Power ramped cladding stresses and strains in 3D simulations with burnup-dependent pellet–clad friction ». In : *Nuclear Engineering and Design* 242 (2012), p. 164-181 (cf. p. 22, 35).

[29] Masaomi OGUMA. « Cracking and relocation behavior of nuclear fuel pellets during rise to power ». In : *Nuclear Engineering and Design* 76.1 (1983), p. 35-45 (cf. p. 22).

[30] LEVY, S et WILKINSON, J.P.D. « Three-dimensional study of nuclear fuel rod behavior during startup ». In : *NUCLEAR ENGINEERING AND DESIGN* 29 (1974), p. 157-166 (cf. p. 22).

[31] J H KIM, M H LEE, B K CHOI et al. « Effects of oxide and hydrogen on the circumferential mechanical properties of Zircaloy-4 cladding ». In : *Nuclear Engineering and Design* 236.18 (2006), p. 1867-1873 (cf. p. 23).

[32] BERAT-ROBERT, L., ET AL. « Influence of a zirconia layer on the mechanical behavior of Zircaloy-4 cladding and thimble tubes ». In : *ANS topical meeting on light water reactor fuel performance*. Park City, Utah, USA, 2000 (cf. p. 23).

[33] Satoshi YANAGIHARA et Shusaku SHIOZAWA. « Cladding Embrittlement and Fuel Rod Failure Threshold under Reactivity Initiated Accident Condition ». In : *Journal of Nuclear Science and Technology* 24.11 (1987), p. 897-905 (cf. p. 23).

[34] C.E. ELLS. « Hydride precipitates in zirconium alloys (A review) ». In : *Journal of Nuclear Materials* 28.2 (1968), p. 129-151 (cf. p. 23).

[35] J. B. BAI, C. PRIOUL et D. FRANÇOIS. « Hydride embrittlement in ZIRCALOY-4 plate : Part I. Influence of microstructure on the hydride embrittlement in ZIRCALOY-4 at 20 °C and 350 °C ». In : *Metallurgical and Materials Transactions A* 25.6 (1994), p. 1185-1197 (cf. p. 23).

[36] T FUKETA, T SUGIYAMA et F NAGASE. « Behavior of 60 to 78MWd/kgU PWR Fuels under Reactivity-Initiated Accident Conditions ». In : *Journal of Nuclear Science and Technology* 43.9 (2006), p. 1080-1088 (cf. p. 24, 25, 29).

[37] P E P. E. MacDonald, S L Seiffert, Z R Martinson et al. « Assessment of light water reactor fuel damage during a reactivity initiated accident ». In : Espoo, Helsinki, Finland, 1980 (cf. p. 25).

[38] M Ishikawa et S Ship. « A study of fuel behavior under Reacitivty Initiated Accident conditions - Review ». In : *Journal of Nuclear Materials* 95 (1980), p. 1-30 (cf. p. 25, 28, 32).

[39] T Fujishiro, K Yanagisawa, K Ishijima et al. « Transient fuel behavior of preirradiated PWR fuels under reactivity initiated accident conditions ». In : *Journal of Nuclear Materials* 188 (1992), p. 162-167 (cf. p. 25).

[40] T Sugiyama, M Umeda, T Fuketa et al. « Failure of high burnup fuels under reactivity-initiated accident conditions ». In : *Annals of Nuclear Energy* 36.3 (2009), p. 380-385 (cf. p. 25, 28).

[41] 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. (Visité le 21/04/2020) (cf. p. 25).

[42] B K. Heath et C C Race. « TREAT Restart Project ». In : *Nuclear Technology* 205.10 (2019), p. 1369-1377 (cf. p. 25).

[43] C Bernaudat, H Billat, J J Vermoyal et al. « Updated RIA criteria in France ». en. In : (), p. 9 (cf. p. 25).

[44] W. Lyon, R. Montgomery, N. Jahingir et al. « Capabilities of the FALCON Steady State and Transient Fuel Perfomance Code ». In : *Proceedings of the 2004 International Meeting on LWR Fuel Perfomance*. Orlando, USA, 2004, p. 23 (cf. p. 25, 35).

[45] M.E. Cuningham, C.E. Beyer, P.G. Medvedev et al. *FRAPTRAN : A Computer Code for the Transient Analysis of Oxide Fuel Rods*. Rapp. tech. NURERG/CR-6739, VOL.1 (cf. p. 25, 35).

[46] Motoe Suzuki, Tomoyuki Sugiyama et Toyoshi Fuketa. « Thermal Stress Analysis of High-Burnup LWR Fuel Pellet Pulse-Irradiated in Reactivity-Initiated Accident Conditions ». In : *Journal of Nuclear Science and Technology* 45.11 (2008), p. 1155-1164 (cf. p. 25, 33-35).

[47] A Moal, V Georgenthum et O Marchand. « SCANAIR : A transient fuel performance code Part One : General modelling description ». In : *Nuclear Engineering and Design* 280 (2014), p. 150-171 (cf. p. 25, 35).

[48] *BISON : A Finite Element-Based Nuclear Fuel Performance Code, Idaho National Laboratory*. 2020. URL : https://bison.inl.gov/SitePages/Home.aspx (cf. p. 25, 35).

[49] I Guénot-Delahaie, J Sercombe, T Helfer et al. « Simulation of RIA transient on UO2–M5® fuel rods with ALCYONE V1.4 fuel perfomance code ». In : *2017 Water Reactor Fuel Perfommance Meeting*. 2017 (cf. p. 25-27, 33, 35, 37, 40, 137).

[50] B. Cazalis, J. Desquines, C. Poussard et al. « The PROMETRA Program : Fuel Cladding Mechanical Behavior under High Strain Rate ». In : *Nuclear Technology* 157.3 (2007), p. 215-229 (cf. p. 25).

[51] B. Cazalis, C. Bernaudat, P. Yvon et al. « The PROMETRA program : a reliable material database for highly irradiated zircaloy-4, Zirlo and M5 claddings ». In : Beijing, China, 2005 (cf. p. 25).

[52] M Balounlet, C Bernaudat, V Basini et al. « The Prometra Programme : Assessment of Mechanical Properties of Zircaloy 4 Fuel Cladding During an RIA ». In : 1999 (cf. p. 25).

[53] Vincent BESSIRON. « MAIN OUTCOMES OF THE PATRICIA PROGRAM ». In : *NSRC 2002*. 2002 (cf. p. 25).

[54] M Salvo, J Sercombe, T Helfer et al. « Experimental characterization and modeling of UO 2 grain boundary cracking at high temperatures and high strain rates ». en. In : *Journal of Nuclear Materials* 460 (2015), p. 184-199 (cf. p. 25, 38, 39, 92, 93, 101).

[55] M Salvo, J Sercombe, J-C Ménard et al. « Experimental characterization and modelling of UO2 behavior at high temperatures and high strain rates ». In : *Journal of Nuclear Materials* 456 (2015), p. 54-67 (cf. p. 25, 28, 39, 92).

[56] D J Diamond, B P Bromley et A L Aronson. *Studies of the Rod Ejection Accident in a PWR*. Rapp. tech. W-6382. Brookhaven National Laboratory, 2002 (cf. p. 26).

[57] DAVID L. HETRICK. *Dynamics of Nuclear Reactors*. 1993 (cf. p. 26).

[58] LE SAUX, MATTHIEU. « Comportement et rupture de gaines en zircaloy-4 détendu vierges, hydrurées ou irradiées en situation accidentelle de type RIA ». Thèse de doct. 2008 (cf. p. 27).

[59] T FUKETA, H SASAJIMA et T SUGIYAMA. « Behavior of High-Burnup PWR Fuels with Low-Tin Zircaloy-4 Cladding under Reactivity-Initiated-Accident Conditions ». In : *Nuclear Technology* 133.1 (2001), p. 50-62 (cf. p. 29, 31).

[60] Lars Olof JERNKVIST, Ali R MASSIH et Peter RUDLING. *A Strain-based Clad Failure Criterion for Reactivity Initiated Accidents in Light Water Reactors*. Rapp. tech. 2004-32. SKI, 2004 (cf. p. 30).

[61] F. LEMOINE, B. CAZALIS et H. RIGAT. « The role of fission gases on the high burn-up fuel behaviour in reactivity initiated accidents conditions ». In : *10th International Symposium on Thermodynamics of Nuclear Materials*. Halifax, Canada, 2000 (cf. p. 28, 30).

[62] J.F. BYRON. « The yield and flow of single crystals of uranium dioxide ». In : *Journal of Nuclear Materials* 28.1 (1968), p. 110-114 (cf. p. 28, 37).

[63] R. F. CANON, J. T. A. ROBERTS et R. J. BEALS. « Deformation of UO2 at High Temperatures ». In : *Journal of The American Ceramic Society* 54.2 (1971), p. 105-112 (cf. p. 28, 39).

[64] Schmitz F et Papin. J. « High burnup effects on fuel behaviour under accident conditions : the tests CABRI REP-Na ». In : () (cf. p. 30).

[65] Yang-Hyun KOO, Jae-Yong OH, Byung-Ho LEE et al. « Modeling of fission gas release in LWR UO2 fuel under RIA conditions using artificial neural network method ». In : *Proceedings of Top Fuel 2009*. 2009 (cf. p. 30, 31).

[66] Y PONTILLON, M P FERROUD-PLATTET, D PARRAT et al. « Experimental and Theoretical Investigation of Fission Gas Release from UO2 up to 70 GWd/t under Simulated LOCA Type Conditions : The GASPARD Program ». In : *Proceedings of the 2004 International Meeting on LWR Fuel Perfomance*. 2004 (cf. p. 32).

[67] S SHIOZAWA, S SAITO et S YANAGIHARA. « Zircaloy-U02 and -Water Reactions and Cladding Temperature Estimation for Rapidly-Heated Fuel Rods under an RIA Condition ». In : *Journal of Nuclear Science and Technology* 19.5 (1982), p. 368-383 (cf. p. 32).

[68] JERÔME SERCOMBE. *Besoins de la modélisation*. 2018 (cf. p. 34, 41).

[69] J.SERCOMBE, E.FÉDÉRICI, M. LE SAUX et al. « 1D and 3D modelling of PCMI during a RIA with ALCYONE v1.1 ». In : *Proceedings of 2010 LWR Fuel Perfomance/TopFuel/WRFPM*. 2010 (cf. p. 35, 37).

[70] Vincent GEORGENTHUM, Alain MOAL et Olivier MARCHAND. « SCANAIR a transient fuel performance code Part two : Assessment of modelling capabilities ». In : *Nuclear Engineering and Design* 280 (2014), p. 172-180 (cf. p. 35).

[71] Y UDAGAWA, M SUZUKI, T SUGIYAMA et al. « Stress Intensity Factor at the Tip of Cladding Incipient Crack in RIA-Simulating Experiments for High-Burnup PWR Fuels ». In : *Journal of Nuclear Science and Technology* 46.10 (2009), p. 1012-1021 (cf. p. 35).

[72] Jerôme SERCOMBE. *Dossier de présentation et de validation des schémas de calcul RIA D'ALCYONE V1.4 pour l'UO2*. NT DEC/SESC 17-019 - Ind. 0. 2017 (cf. p. 36, 38, 40).

[73] *RIA Fuel Codes Benchmark, Volume 1*. Rapp. tech. NEA/CSNI/R(2013)7. 2013 (cf. p. 37).

[74] I.C. SAGRADO et L.E. HERRANZ. « Modeling RIA benchmark cases with FRAPTRAN and SCANAIR : A comparative exercise ». In : *Nuclear Engineering and Design* 278 (2014), p. 150-162 (cf. p. 37).

[75] E Le FICHOUX. *Présentation et utilisation de Cast3m* (cf. p. 37).

[76] M. LE SAUX, J. BESSON, S. CARASSOU et al. « A model to describe the anisotropic viscoplastic mechanical behavior of fresh and irradiated Zircaloy-4 fuel claddings under RIA loading conditions ». In : *Journal of Nuclear Materials* 378.1 (2008), p. 60-69 (cf. p. 37).

[77] T. FORGERON, J.-C. BRACHET, F. BARCELO et al. « Experimental and modeling of advanced fuel rod cladding behavior under LOCA conditions : alpha/beta phase transformations kinetics and EDGAR methodology ». In : Toronto, Canada, 1998 (cf. p. 37).

[78] Yannick GUERIN. « Etude par compression a hautes temperatures de la deformation plastique du bioxyde d'uranium polycristallin ». In : *Journal of Nuclear Materials* 56.1 (1975), p. 61-75 (cf. p. 38).

[79] F DHERBEY, F LOUCHET, A MOCELLIN et al. « Elevated temperature creep of polycrystalline uranium dioxide : from microscopic mechanisms to macroscopic behaviour ». en. In : *Acta Materialia* 50.6 (2002), p. 1495-1505. (Visité le 07/03/2022) (cf. p. 38, 39).

[80] Julien PACULL. « Modèle numérique micro-mécanique d'agrégat polycristallin pour le comportement des combustibles oxydes ». fr. Thèse de doct. (cf. p. 39).

[81] A. G. EVANS et R. W. DAVIDGE. « The strength and fracture of stoichiometric polycrystalline UO2 ». In : *Journal of Nuclear Materials* 33 (1969), p. 249-260 (cf. p. 39).

[82] Maxime SALVO. « Etude expérimentale et modélisation du comportement mécanique du combustible UO2 en compression à haute température et forte vitesse de sollicitation ». Thèse de doct. 2014 (cf. p. 40).

[83] V GEORGENTHUM, J BACCOU, N TREGOURES et al. « OECD/NEA RIA FUEL ROD CODES BENCHMARK : SUMMARY OF THE THREE PHASES ». In : (), p. 12 (cf. p. 40, 41).

[84] Gérald JOMARD, Christine STRUZIK, Antoine BOULORE et al. « CARACAS An industrial model for the description of fission gas behavior in LWR-UO_2 fuel ». In : 2014, p. 784 (cf. p. 40).

[85] I GUÉNOT-DELAHAIE, J SERCOMBE, E FÉDÉRICI et al. « Investigation of clad ballooning during NSRR RIA tests using ALCYONE fuel performance code ». en. In : *Journal of Nuclear Materials* 562 (2022), p. 153584 (cf. p. 41, 42).

[86] NEA. *Nuclear Fuel Behaviour in Loss-of-coolant Accident (LOCA) Conditions, State-of-the-art Report*. 2009 (cf. p. 45).

[87] E. GUIGUES, A. JANULYTE, Y. ZEREGA et al. « On-line mass spectrometry measurement of fission gas release from nuclear fuel submitted to thermal transients ». In : *2013 3rd International Conference on Advancements in Nuclear Instrumentation, Measurement Methods and their Applications (ANIMMA)*. Marseille, France : IEEE, 2013, p. 1-6. (Visité le 12/04/2022) (cf. p. 45).

[88] M HELIN et J FLYGARE. *NRC LOCA tests at Studsvik - Design and construction of test train device and tests with unirradiated cladding materials*. Rapp. tech. STUDSVIK/N-11/1300. Studsvik (cf. p. 45).

[89] D MANARA, C RONCHI et M SHEINDLIN. « Solidus and liquidus of UO2+x from high-pressure melting experiments ». en. In : *High Temperatures-High Pressures* 35/36.1 (2003), p. 25-33. (Visité le 14/04/2022) (cf. p. 46).

[90] D. MANARA, R. PFLIEGER et M. SHEINDLIN. « Advances in the Experimental Determination of the Uranium–Oxygen Phase Diagram at High Temperature ». en. In : *International Journal of Thermophysics* 26.4 (2005), p. 1193-1206. (Visité le 11/04/2022) (cf. p. 46).

[91] F. DE BRUYCKER, K. BOBORIDIS, P. PÖML et al. « The melting behaviour of plutonium dioxide : A laser-heating study ». In : *Journal of Nuclear Materials* 416.1-2 (2011), p. 166-172. (Visité le 11/04/2022) (cf. p. 46).

[92] D. PRIEUR, F. LEBRETON, M. CAISSO et al. « Melting behaviour of americium-doped uranium dioxide ». In : *The Journal of Chemical Thermodynamics* 97 (2016), p. 244-252 (cf. p. 46).

[93] R. BÖHLER, M. J. WELLAND, F. De BRUYCKER et al. « Revisiting the melting temperature of NpO_2 and the challenges associated with high temperature actinide compound measurements ». In : *Journal of Applied Physics* 111.11 (2012), p. 113501 (cf. p. 46).

[94] M AMAYA, M HIRAI, H SAKURAI et al. « Thermal conductivities of irradiated UO2 and (U,Gd)O2 pellets ». In : *Journal of Nuclear Materials* 300.1 (2002), p. 57-64 (cf. p. 46).

[95] F. CAPPIA, R. JOVANI-ABRIL, J. SPINO et al. « Laser melting of nano-crystalline uranium dioxide ». In : *Progress in Nuclear Energy* 72 (2014), p. 11-16 (cf. p. 46).

[96] O CEDILLOS-BARRAZA, D MANARA, K. BOBORIDIS et al. « Investigating the highest melting temperature materials : A laser melting study of the TaC-HfC system ». In : *Scientific Reports* 6.1 (2016), p. 37962. (Visité le 11/04/2022) (cf. p. 46).

[97] T PAVLOV et Ec JRC. « Experimental Evaluation Of The High Temperature Thermo-Physical Properties Of Uo2 ». In : (2016), p. 10 (cf. p. 46).

[98] L. VLAHOVIC, D. STAICU, A. KÜST et al. « Thermal diffusivity of UO2 up to the melting point ». In : *Journal of Nuclear Materials* 499 (2018), p. 504-511 (cf. p. 46).

[99] T.R. PAVLOV, M.R. WENMAN, L. VLAHOVIC et al. « Measurement and interpretation of the thermo-physical properties of UO2 at high temperatures : The viral effect of oxygen defects ». In : *Acta Materialia* 139 (2017), p. 138-154. (Visité le 11/04/2022) (cf. p. 46).

[100] T. VIDAL. « Interaction Laser-UO2 : Vers une simulation du changement thermique d'un accident de réactivité (RIA) à l'échelle du laboratoire ». Thèse de doct. Aix-Marseille Université (cf. p. 46, 47, 51, 57, 128-130, 156).

[101] T. VIDAL, L. GALLAIS, J. FAUCHEUX et al. « Simulation of reactivity initiated accident thermal transients on nuclear fuels with laser remote heating ». In : *Journal of Nuclear Materials* 530 (2020), p. 151944 (cf. p. 46).

[102] M. MINISSALE, A. DURIF, P. HIRET et al. « A high power laser facility to conduct annealing tests at high temperature ». In : *Review of Scientific Instruments* 91 (2020). 035102 (cf. p. 46).

[103] M. W. Jr. CHASE. « NIST-JANAF Thermochemical Tables ». In : *Journal of Physical and Chemical Reference Data* 9 (1998), p. 161-168 (cf. p. 49).

[104] Thibault VIDAL, Laurent GALLAIS, Romain BURLA et al. « Optical system for real-time monitoring of nuclear fuel pellets at high temperature ». In : *Nuclear Engineering and Design* 357 (2020), p. 110383 (cf. p. 56).

[105] J. M. BLACKLEDGE. *Digital image processing : mathematical and computational methods*. Chichester, West Sussex : Horwood Pub, 2005 (cf. p. 60).

[106] G NECSOIU T vand Bostan et P STERIAN. « Results on the Optical Transfer Function of the Optical Systems Evaluation by Slanted Edge Method ». In : *Journal of Physics : Conference Series* 1297.1 (2019), p. 012018. (Visité le 12/04/2022) (cf. p. 61).

[107] K MASAOKA, T YAMASHITA, Y NISHIDA et al. « Modified slanted-edge method and multidirectional modulation transfer function estimation ». In : *Optics Express* 22.5 (2014), p. 6040. (Visité le 12/04/2022) (cf. p. 61).

[108] H LI, C YAN et J SHAO. « Measurement of the Modulation Transfer Function of Infrared Imaging System by Modified Slant Edge Method ». In : *Journal of the Optical Society of Korea* 20.3 (2016), p. 8 (cf. p. 61).

[109] Brandon M. LANE et Eric P. WHITENTON. *Calibration and Measurement Procedures for a High Magnification Thermal Camera*. Rapp. tech. NIST IR 8098. National Institute of Standards et Technology, 2016. (Visité le 12/04/2022) (cf. p. 62, 157).

[110] Jonathan M. MOONEY. « Measurement of the modulation transfer function of infrared cameras ». In : *Optical Engineering* 34.6 (1995), p. 1808 (cf. p. 62, 157).

[111] Elisa H. BARNEY SMITH. « PSF estimation by gradient descent fit to the ESF ». In : sous la dir. de Luke C. CUI et Yoichi MIYAKE. San Jose, CA, 2006, 60590E–60590E-9 (cf. p. 62, 157).

[112] D SAGE, L DONATI, F SOULEZ et al. « DeconvolutionLab2 : An open-source software for deconvolution microscopy ». In : *Methods-Image Processing for Biologists* 115 (2017), p. 28-41 (cf. p. 63).

[113] William Hadley RICHARDSON. « Bayesian-Based Iterative Method of Image Restoration* ». In : *Journal of the Optical Society of America* 62.1 (1972), p. 55. (Visité le 19/04/2022) (cf. p. 63).

[114] L. B. LUCY. « An iterative technique for the rectification of observed distributions ». In : *The Astronomical Journal* 79 (1974), p. 745 (cf. p. 63).

[115] R. J. ACKERMANN, R. J. THORN et G. H. WINSLOW. « Visible and Ultraviolet Absorption Properties of Uranium Dioxide Films$\ast$ ». In : *J. Opt. Soc. Am.* 49.11 (1959), p. 1107-1111 (cf. p. 67, 68, 70).

[116] J. L. BATES. « Visible and Infrared Absorption Spectra of Uranium Dioxide ». en. In : *Nuclear Science and Engineering* 21.1 (1965), p. 26-29 (cf. p. 67, 68, 70, 80).

[117] J. SCHOENES. « Optical properties and electronic structure of UO $_2$ ». In : *Journal of Applied Physics* 49.3 (1978), p. 1463-1465. (Visité le 15/06/2021) (cf. p. 68).

[118] J. SCHOENES. « Electronic structure of uranium monochalcogenides and uranium monopnictides ». en. In : *Physics Reports* 66.5 (1980), p. 187-212. (Visité le 15/06/2021) (cf. p. 69).

[119] Vera HAASE, éd. *Gmelin handbook of inorganic chemistry : system number 55. Suppl. Vol. C5 : U, Uranium Uranium dioxide, UO2, physical properties, electrochemical behavior*. eng. Berlin Heidelberg : Springer, 1986 (cf. p. 69).

[120] M. BOBER, J. SINGER et K. WAGNER. « Bestimmung der optischen konstanten von geschmolzenen kernbrennstoffen ». In : *Journal of Nuclear Materials* 124 (1984), p. 120-128 (cf. p. 69, 70, 82).

[121] Trevor R. GRIFFITHS et Hugh V.St.A. HUBBARD. « Absorption spectrum of single-crystal UO2 : Identification of and effect of temperature on the peak positions of essentially all optical transitions in the visible to near infrared regions using derivative spectroscopy ». In : *Journal of Nuclear Materials* 185.3 (1991), p. 243-259. (Visité le 03/05/2022) (cf. p. 69, 70).

[122] P. RUELLO, K.D. BECKER, K. ULLRICH et al. « Thermal variation of the optical absorption of UO2 : determination of the small polaron self-energy ». In : *Journal of Nuclear Materials* 328.1 (2004), p. 46-54 (cf. p. 69, 70, 80).

[123] T.T. MEEK, B. von ROEDERN, P.G. CLEM et al. « Some optical properties of intrinsic and doped UO2 thin films ». en. In : *Materials Letters* 59.8-9 (2005), p. 1085-1088. (Visité le 15/06/2021) (cf. p. 69, 70).

[124] *Cast3M*. 2019. URL : http://www-cast3m.cea.fr/ (cf. p. 86).

[125] J.K. FINK. « Thermophysical properties of uranium dioxide ». In : *Journal of Nuclear Materials* 279 (1999), p. 1-18 (cf. p. 87, 101).

[126] T HELFER, B MICHEL, J-M PROIX et al. « Introducing the open-source mfront code generator : Application to mechanical behaviours and material knowledge management within the PLEIADES fuel element modelling platform ». In : *Computers & Mathematics with Applications* 70.5 (2015), p. 994-1023. (Visité le 29/07/2020) (cf. p. 87).

[127] Mehdi BAICHI. « Contribution à l'étude du corium d'un réacteur nucléaire accidenté : aspects puissance résiduelle et thermodynamique des systèmes U-UO2 et UO2-ZrO2 ». Thèse de doct. 2001, 1 vol. (215 p.) (Cf. p. 87).

[128] *Commission on Isotopic Abundances and Atomic Weight*. URL : https://www.ciaaw.org/ (cf. p. 87).

[129] D.G. MARTIN. « The elastic constants of polycrystalline UO2 and (U, Pu) mixed oxides : A review and recommendations ». In : *High Temperatures - High Pressures* 21.1 (1989), p. 13-24 (cf. p. 89, 90).

[130] J. K. HOHORST. *Code Manual, Volume4 : MATPRO - A Library of Materials Properties for Light-Water-Reactor Accident Analysis*. Rapp. tech. NUREG/CR-6150, Volume 4, Revision 2. 1990 (cf. p. 90).

[131] J MAZARS, Fr HAMON et S GRANGE. « A new 3D damage model for concrete under monotonic, cyclic and dynamic loadings ». In : *Materials and Structures* 48.11 (2015), p. 3779-3793. (Visité le 02/06/2020) (cf. p. 91).

[132] Jacky MAZARS. « A description of micro and macroscale damage of concrete structures ». In : *Engineering Fracture Mechanics* 25.5-6 (1986), p. 729-737 (cf. p. 91).

[133] B. MICHEL, J. SERCOMBE, G. THOUVENIN et al. « 3D fuel cracking modelling in pellet cladding mechanical interaction ». In : *Engineering Fracture Mechanics* 75.11 (2008), p. 3581-3598. (Visité le 27/08/2020) (cf. p. 91).

[134] J LEE et Gregory L. FENVES. « Plastic-Damage Model for Cyclic Loading of Concrete Structures ». en. In : *Journal of Engineering Mechanics* 124.8 (1998), p. 892-900. (Visité le 09/06/2022) (cf. p. 92).

[135] N. IGATA et K. DOMOTO. « Fracture stress and elastic modulus of uranium dioxide including excess oxygen ». In : *Journal of Nuclear Materials* 45.4 (1973), p. 317-322. (Visité le 29/07/2020) (cf. p. 93).

[136] Yannick GUERIN. « Etude par compression à hautes temperatures de la deformation plastique du bioxyde d'uranium polycristallin ». In : *Journal of Nuclear Materials* 56.1 (1975), p. 61-75. (Visité le 29/07/2020) (cf. p. 93).

[137] F SAUTER et S LECLERCQ. « Modeling of the non-monotonous viscoplastic behavior of uranium dioxide ». In : *Journal of Nuclear Materials* 322.1 (2003), p. 1-14. (Visité le 09/06/2022) (cf. p. 93).

[138] Alexey N. BASHKATOV, Elina A. GENINA et Valery V. TUCHIN. « Optical properties of skin, subcutaneous, and muscles tissues : A review ». In : *Journal of Innovative Optical Health Sciences* 04.01 (2011), p. 9-38 (cf. p. 97).

[139] L.G. HENYEY et J.L. GREENSTEIN. « Diffuse radiation in the galaxy ». In : *Astrophysical Journal* 93 (1941), p. 70-83 (cf. p. 97).

[140] T BINZONI, T S LEUNG, A H GANDJBAKHCHE et al. « The use of the Henyey-Greenstein phase function in Monte-Carlo simulations in biomedical optics ». en. In : *Physics in Medicine and Biology* 51.17 (2006), N313-N322. (Visité le 12/05/2022) (cf. p. 97).

[141] Katherine W. CALABRO et William CASSARLY. « Modeling scattering in turbid media using the Gegenbauer phase function ». In : sous la dir. d'A WAX et V BACKMAN. (Visité le 12/05/2022) (cf. p. 97).

[142] B. C. WILSON et G. ADAM. « A Monte Carlo model for the absorption and flux distributions of light in tissue : Absorption and flux of light in tissue ». en. In : *Medical Physics* 10.6 (1983), p. 824-830 (cf. p. 98).

[143] Scott A. PRAHL, Martin J. C. van GEMERT et Ashley J. WELCH. « Determining the optical properties of turbid media by using the adding–doubling method ». en. In : *Applied Optics* 32.4 (1993), p. 559. (Visité le 12/05/2022) (cf. p. 98).

[144] Lihong WANG. « CML - Monte Carlo modeling of light transport in multi-la.yered. tissues ». en. In : *Computer Methods and Programs in Biomedicine* (1995), p. 16 (cf. p. 98).

[145] Dominik MARTI, Rikke N. AASBJERG, Peter E. ANDERSEN et al. « MCmatlab : an open-source, user-friendly, MATLAB-integrated three-dimensional Monte Carlo light transport solver with heat diffusion and tissue damage ». en. In : *Journal of Biomedical Optics* 23.12 (2018), p. 1 (cf. p. 98).

[146] S JACQUES, T LI et S PRAHL. *mcxyz.c, a 3D Monte Carlo simulation of heterogeneous tissues*. 2017. URL : omlc.org/software/mc/mcxy (cf. p. 98).

[147] J CHINDELIN, I ARGANDA-CARRERAS, E FRISE et al. « Fiji : an open-source platform for biological-image analysis ». In : *Nat Methods* 9 (2012), p. 676-682 (cf. p. 105).

Table des figures

1.1. Schéma d'un réacteur dans une centrale nucléaire . . . 16
1.2. A gauche : schéma d'une réaction de fission induite. A droite : probabilité de formation des produits de fission à partir de l'uranium 235 en fonction de leur masse . . . 17
1.3. A gauche : pastilles de combustibles nucléaire. Au centre : schéma d'un crayon combustible. A droite : schéma d'un assemblage. . . . 18
1.4. . . . 19
1.5. Profil axial typique de puissance normalisée le long d'un crayon. D'après [7]. . . . 19
1.6. Images MET de bulles intragranulaires pour plusieurs taux de combustions. (a) et (b) : Combustible de Réacteur à Eau Bouillante (REB) irradié en réacteur commercial, enrichi à 1,5 % (c) : Combustible REP irradié en réacteur de test, enrichi à 7.0 % [9] . . . 20
1.7. Visualisation des zones de microstructure distinctes pour un taux de combustion moyen de 72 GWj/t. Combustible REP [17]. . . . 21
1.8. Porosité radiale calculée (code MARGARET) et mesurée pour un échantillon combustible présentant un taux de combustion de 61 GWj/t [18]. . . . 21
1.9. Evolution de la porosité de la HBS en fonction du BU local de la zone périphérique de la pastille [20] . . . 22
1.10. Image SEM de la HBS , combustible irradié en REP, BU moyen de la pastille 73 GWj/t, taux d'enrichhissement : 4,5 % d'^{235}U [19] . . . 22
1.11. Coupe montrant le réseau de fracturation et schéma de la forme en diabolo prise par la pastille [3] . . . 23
1.12. Image MEB montrant la couche externe de zircone et les plaquettes d'hydride d'une gaine [36] . . . 24
1.13. Forme de l'impulsion calculée selon le modèle de Nordheim-Fuchs [57, p.194-170] et d'après [25]. La puissance et le temps sont normalisés. . . . 26
1.14. Température calculée avec le code ALCYONE pour l'essai REP-Na 11 (à gauche) et pour l'essai RH-1 (à droite) pour différents instants. (t1) avant le début du pulse, (t2) pendant la montée en puissance, (t3) au pic de puissance, (t4) pendant la descente en puissance, (t5) à la fin de la descente en puissance, (t6) après le pulse, (t7) dernier pas de calcul. D'après [49] . . . 27
1.15. Phénoménologie d'un RIA, d'après [58]. . . . 27
1.16. Observation de la fracture par IPG de l'essai OI-11, réacteur NSRR (5-8 GWj/t, 28 µm d'épaisseur d'oxyde, alliage de gaine ZIRLO, enthalpie maximale atteinte 157 cal/g UO_2)[36] 29
1.17. Essai TK-1, réacteur NSRR, 38 GWj/t, enthalpie maximale atteinte 125 cal/g UO_2, 7 µm d'épaisseur d'oxyde [59] . . . 29
1.18. Evolution de la déformation de la gaine en fonction de la température calculée pour deux essais Cabri dans le plan de puissance maximale. [60] . . . 30
1.19. Exemple de décohésion des joints de grains observée après essai [64] . . . 30
1.20. Mécanismes de décohésion des joints de grains, de gonflement gazeux et de relâchement des gaz de fission sous transitoire, d'après [59]. . . . 31
1.21. Fraction de l'inventaire en gaz de fission relâchée durant un RIA en fonction du taux de combustion moyen et de l'enthalpie maximale du combustible divisée par la largeur de l'impulsion pour différents essais NSRR et CABRI REP-Na [65] . . . 31
1.22. Evolution de la température maximale du combustible et de l'extérieur de la gaine pendant un essai NSRR [67] . . . 32
1.23. Profil radiaux de température et de contraintes axiales et circonfenrentielle pour l'essai REP-Na11 (gauche) et RH-1 (droite). D'après [49] . . . 33

1.24. Profil de température (à gauche) et de contrainte hydrostatique (à droite) dans le combustible lors de l'essai OI-12. D'après [46] . . . 34
1.25. Vitesse de déformation $\dot{\epsilon}_{\theta\theta}$ calculée en périphérie de pastille en fonction de sa température pendant une simulation de l'essai REP-Na 5. [68] . . . 34
1.26. Schéma de la modélisation multi-physique avec ALCYONE. D'après [72]. . . . 36
1.27. Comportement de l'UO_2 en traction et compression. D'après [72]. . . . 38
1.28. Evolution de la contrainte maximale (Ultimate Tensile Stress) sur des essais de flexion 4 points sur UO_2 à différentes températures et vitesses de chargement. D'après Canon [63]. 39
1.29. Surface de charge $(\sigma_{xx}, \sigma_{yy})$ donnée par la loi L3F pour une vitesse de déformation équivalente de 1 /s (à gauche) et de 10 /s (à droite). D'après [82] . . . 40
1.30. RGF calculé pour l'essai CIP0-1 pour différents codes de calcul. La mesure du RGF est en ligne noire. D'après [83]. . . . 41
1.31. Comparaison du relâchement des gaz de fission calculé avec ALCYONE et mesuré. De gauche à droite REP-Na 2, 4, 3 et 5. D'après [68]. . . . 41
1.32. Déformation circonférentielle résiduelle de la gaine calculée vs mesurée (moyenne des mesures) sans recalage temporel du RGF, calculs ALCYONE [85] . . . 42
1.33. Déformation circonférentielle résiduelle de la gaine calculée vs mesurée (maximum des mesures) après recalage temporel du RGF, calculs ALCYONE [85] . . . 42
1.34. Articulation des différents chapitres au vu des objectifs et de la problématique de recherche posée au cours de ce chapitre. . . . 44

2.1. Principe de chauffe par laser annulaire imaginé pour une section de crayon (pastille et gaine) et d'un matériau isolant, d'après T. Vidal [100] . . . 47
2.2. Photo et dessin technique de la chambre d'expérience . . . 48
2.3. A gauche : Vue de dessus de la chambre avec les platines de déplacement. La flèche et l'insert montrent la position et une photo du porte-échantillon 1. A droite : schéma détaillé du porte-échantillon 1 . . . 49
2.4. A gauche : Vision CAO du porte-échantillon 2. A droite : Photo du porte-échantillon monté sur la platine de déplacement avec un disque d'UO_2 . . . 50
2.5. A gauche : calorimètre utilisé pour la mesure de puissance. A droite : imageur utilisé pour la caractérisation du profil d'intensité des lasers . . . 51
2.6. Représentation d'un faisceau annulaire gaussien et de ses caractéristiques. D'après [100]. 51
2.7. En haut : schéma du montage optique utilisé pour obtenir un faisceau annulaire . En bas : photo et description du montage. . . . 52
2.8. A gauche : image normalisée du faisceau annulaire dans le plan focal du DOE. A droite : profil d'intensité théorique pour un rayon de 3,9 mm et un waist (demie-épaisseur) de 0,1 mm comparé aux profils mesurés . . . 53
2.9. Evolution des dimensions du faisceau annulaire en fonction de la distance depuis le plan focal . . . 53
2.10. En haut : Schéma du montage utilisé pour obtenir un faisceau homogène de dimension 9 mm de diamètre dans le plan échantillon. Le trajet optique du faisceau est représenté en rouge. En bas : image du faisceau en (a) sortie de tête laser, (b) au plan focal de la première lentille, (c) au plan échantillon. . . . 55
2.11. A gauche : Signal mesuré par la photodiode pour différentes impulsions de 20 ms et et de puissance différente. A droite : zoom entre 0 et 4ms. Laser 1500 W. . . . 55
2.12. A gauche : Puissance théorique versus la puissance mesurée avec le laser 1500 W. A droite : Puissance théorique versus la puissance mesurée avec le laser 2000 W. . . . 56
2.13. Schéma du dispositif de visualisation. Le trait rouge représente le trajet du faisceau laser annulaire, le bleu représente le trajet de la lumière issue de la source d'éclairage et l'orange le trajet du faisceau issu de la diode de préchauffage parfois placée orthogonalement à l'échantillon en face arrière. Ce système est visible en Figure 2.7. . . . 57
2.14. Photo d'un pyromètre . . . 58
2.15. Caméra FLIR avec la bague allonge 0,75 pouce et l'objectif de focale 100 mm . . . 59

2.16. Points de l'objet (à gauche) et PSF d'un système optique (centre). L'on voit que dans le plan image du système, l'objet subit un étalement (à droite). 60
2.17. Configuration expérimentale pour la mesure de l'ESF de la caméra infrarouge 61
2.18. A gauche : image de température obtenue en imageant la lame de cutter. A droite : image de l'ESF une fois normalisée. La barre d'échelle fait 20 pixels 61
2.19. ESF et LSF obtenues à partir de l'image de température donnée par la caméra 62
2.20. Estimation de la PSF calculée. La barre d'échelle a une largeur de 5 pixels. 62
2.21. ESF deconvoluée après 1, 2, 5 et 10 itérations avec l'algorithme de Richardson-Lucy et la PSF estimée précédemment. 63
2.22. Photo du montage expérimental en configuration double faisceaux. 64

3.1. Indice de réfraction et coefficient d'extinction obtenus à partir de films minces $d'UO_2$, d'après Ackerman [115] 68
3.2. Coefficient d'absorption pour de l'UO_2 mono-cristallin. D'après J.L Bates [116] 68
3.3. Spectre d'absorption de l'UO_2 monocristallin pour différentes températures et conditions de recuit entre 2 500 et 588 nm. D'après Griffiths [121]. 69
3.4. Spectre d'absorption de l'UO_2 pour différentes températures entre 2 500 et 540 nm. D'après Ruello [122]. 70
3.5. Valeurs de k et δ_p disponibles dans la littérature. 71
3.6. A gauche : principe de mesure de la transmittance. A droite : principe de mesure de la reflectance. 73
3.7. Photo du banc expérimental de spectro-photométrie avec les différents appareils 73
3.8. A gauche : Transmittances mesurées et courbes de références pour différents éléments optiques de transmittances variables. A droite : différences entre les mesures et les valeurs de référence. 74
3.9. A gauche : Réflectances mesurées et courbes de références pour différents éléments optiques de réflectances variables. A droite : différences entre les mesures et les valeurs de référence. 74
3.10. A gauche : lame d'uranium collée sur le plot et grinder utilisé pour l'amincissement. A droite : lame d'uranium une fois amincie et décollée du plot. 75
3.11. Photo de lame mince encollée. Un schéma du système optique ainsi obtenu est visible dans l'encart. 75
3.12. Visualisation de la rugosité de surface et profils de rugosités pour l'échantillon 1 (à gauche) et l'échantillon 2 (à droite) 76
3.13. Visualisation de la rugosité de surface et profils de rugosités pour l'échantillon 3 (à gauche) et l'échantillon 4 (à droite) 77
3.14. Schéma de la configuration utilisée pour mesurer la composante diffuse de la réflectance. 77
3.15. De gauche à droite : mesures spectro-photométriques pour les échantillons 1, 2, 3 et 4. Les incertitudes de mesures sont représentées par les courbes en pointillées 78
3.16. Atténuation en fonction du coefficient d'extinction d'après la loi de Beer-Lambert pour différentes valeurs de profondeurs de pénétration. 81
3.17. Schéma du modèle de propagation considéré. 81
3.18. Valeurs de k déterminées pour chaque échantillon en fonction de la longueur d'onde . . 83
3.19. Valeurs de δ_p, en μm, déterminées pour chaque échantillon en fonction de la longueur d'onde 83
3.20. Valeurs de n déterminées pour chaque échantillon en fonction de la longueur d'onde . . 84

4.1. Masse volumique de l'UO_2 en fonction de la température. D'après [5]. 87
4.2. Capacité thermique de l'UO_2 en fonction de la température. D'après [5]. 88
4.3. Evolution de la conductivité thermique de l'UO_2 vierge en fonction de la température. D'après [5]. 89
4.4. Ratio de dilatation linéique thermique de l'UO_2 avec la température. D'après [5]. 90
4.5. Évolution du module de Young en fonction de la température pour un UO_2 dense à 95%. D'après [129]. 90

4.6. Courbes contraintes-déformations de la loi de comportement paramétrée en fonction de la température. L'encart représente la partie traction de l'espace de charge. 94
4.7. Courbes endommagements-déformations de la loi de comportement paramétrée en fonction de la température. 95
4.8. Illustration du phénomène d'absorption et de diffusion pour un faisceau de lumière collimaté 97
4.9. Valeurs normalisées de la fonction de phase de Henyey-Greenstein en fonction de l'angle pour différentes valeurs du facteur d'anisotropie g 98
4.10. Schéma de l'obtention d'un terme source de chaleur. L'obtention de la distribution d'intensité se fait grâce à la simulation Monte-Carlo qui correspond à l'étape "propagation de la lumière". 99
4.11. A gauche : visualisation du cuboïde de simulation utilisé. A droite : profil d'irradiance utilisé pour le lancer de photons de la simulation Monte-Carlo de chauffes annulaires. . . 99
4.12. A gauche : Graphique de la distribution d'intensité normalisée dans le cuboïde. Vue de coupe passant par le centre du cuboïde. A droite : Idem mais en échelle log. 100
4.13. A gauche : représentation d'un disque d'UO_2 chauffé sur une face par un faisceau annulaire. A droite : coupe axiale du disque montrant l'axe centrale. 100
4.14. Maillage et conditions limites associées 101

5.1. Réflectance d'un disque d'UO_2 non poli. 104
5.2. Schéma de la configuration expérimentale utilisée pour la validation du modèle thermique. Le faisceau représenté en rouge correspond au faisceau annulaire et le faisceau représenté en rose au faisceau homogène. Le faisceau représenté en orange correspond à la diode de préchauffe en face arrière. 105
5.3. Profil expérimental mesuré avec l'imageur Beamage-4M et théorique pour le faisceau annulaire focalisé (à gauche) et défocalisé (à droite). L'image des faisceaux est au centre des deux graphiques. 106
5.4. Exemple de marquage périphérique de l'échantillon observé post-chauffe. Nb : on peut voir ici que le faisceau annulaire était mal aligné durant cette chauffe. 106
5.5. Images en fausses couleurs pour deux chauffes de 20 ms réalisées avec un faisceau annulaire focalisé (C17 et C18). En haut : température initiale d'environ 55 °C. En bas : température initiale d'environ 330 °C. Les barres d'échelles font 4 mm. L'échelle de température est en °C. 108
5.6. Chauffe C17, profils de température pour différents instants tracés sur 8,2 mm centrés sur le disque 108
5.7. A gauche : profils de températures en fonction du temps pour la chauffe C18 (température initiale 330 °C). A droite : Les profils sont tracés seulement sur 8,2 mm centrés sur le disque. 109
5.8. Isovaleurs de température en °C au temps t=20 ms, chauffe C13. A droite, dans l'encart : Température en fonction de la profondeur sur une coupe passant par la température maximale (position radiale r=R_{an}) 110
5.9. De gauche à droite, en haut : profils simulés (lignes pleines) et mesurées (lignes en pointillées) pour deux chauffes de 20 ms, 120 W, faisceau annulaire focalisé avec une température initiale d'environ 55 et 330 °C (C17 et C18). En bas : profils simulés (lignes pleines) et mesurées (lignes en pointillées) pour deux chauffes de 20 ms, 120 W, faisceau annulaire défocalisé avec une température initiale d'environ 55 et 330 °C (C11 et C13). . . 110
5.10. LSF utilisée pour la convolution des profils de simulation. Elle est discrétisée par pas de 85 μm et centrée sur l'intervalle 0-4,1 mm 112
5.11. De gauche à droite, en haut : profils mesurés (lignes pleines) et simulés-convolués (lignes en pointillées) pour les chauffes C11 et C13. En bas : profils mesurés (lignes pleines) profils simulés-convolués (lignes en pointillées) pour les chauffes C17 et C18. 112
5.12. De gauche à droite et de haut en bas : Profils de température normalisés pour les chauffes C11, C13, C17 et C18. 113

5.13. A gauche : comparaison des profils de températures mesurés en fonction de l'objectif utilisé (lignes pleines, verte et rouge). Comparaison des profils simulés (en bleu) -convolués avec les LSF de chaque objectif (lignes en pointillées, verte et rouge). A droite : idem mais profils normalisés entre 0 et 1. 115
5.14. A gauche : évolution des températures maximales simulées par rapport aux températures mesurées. La barre d'erreur indique l'écart type de 25 mesures effectuées sur la circonférence de l'anneau thermique. A droite : évolution du % d'erreur. 115
5.15. Terme source de chaleur obtenu avec la simulation Monte-Carlo en considérant un matériau non diffusant à différentes profondeur. Insert : valeur maximale en fonction de la profondeur. L'ajustement avec une exponentielle décroissante permet d'obtenir la valeur du coefficient d'absorption. 117
5.16. Comparaison des profils de température surfaciques obtenus avec l'expression analytique du terme source de chaleur (lignes pleines) et avec un terme source obtenu numériquement avec la simulation Monte-Carlo (lignes en pointillées). 117
5.17. A gauche : profils de température en fin de chauffes pour la chauffe de 120 W, température initiale 330 °C, faisceau focalisé pour les différents paramètres de la simulation MC utilisés. Pour tous les couples α_a, α_s, g=0,5. A droite : profils de température en fin de chauffes pour la chauffe de 120 W, température initiale 330 °C, faisceau défocalisé. 119
5.18. A gauche : profils normalisés de température en fin de chauffes pour la chauffe de 120 W, température initiale 330 °C, faisceau focalisé pour les différents paramètres de la simulation MC utilisés. Pour tous les couples α_a, α_s, g=0,5. A droite : profils normalisés de température en fin de chauffes pour la chauffe de 120 W, température initiale 330 °C, faisceau défocalisé. 119
5.19. Profil de température axial à R=R_{an} pour la chauffe défocalisée de température initiale 330 °C pour les différents paramètres de simulation Monte-Carlo étudiés. 120
5.20. A gachee : profils de températures à 10 et 20 ms mesurés, simulés-convolués et simulés MC-convolués. Chauffe laser C18. A droite : profils de température à 20 ms normalisés. Mesure, simulations (MC ou non) et simulations convoluées (MC ou non). 120
5.21. Températures simulées avec α_a=5.10^4 m^{-1} sans passer par la simulation MC en fonction de la température mesurée. 121
5.22. A gauche : évolution des températures à pics simulées par rapport aux températures mesurées. La barre d'erreur indique l'écart type associé à 25 mesures effectuées sur la circonférence de l'anneau thermique. A droite : évolution du % d'erreur. 121
5.23. Image en fausses couleurs pour une chauffe homogène de 100 ms, température initiale de 300 °C et une puissance de 1160 W. La barre d'échelle fait 4 mm et l'échelle de température est en °C. 123
5.24. En haut, de gauche à droite : Profils de température mesurées pour deux chauffes de 20 et 100 ms, 1900 et 775 W, température initiale de 300 et 600 °C (CH7 et CH2, respectivement). En bas, de gauche à droite : Profils de température mesurés pour deux chauffes de 20 et 100 ms, 1900 et 1510 W, température initiale de 300 et 600 °C (CH16 et CH11, respectivement). 124
5.25. Température mesurée en fonction du temps pour les chauffes CH2 et CH11. 124
5.26. Température calculée (lignes pleines) et mesurées (lignes pointillées) pour les quatre chauffes considérées. A gauche : CH16 et CH11. A droite : CH7 et CH2. 125
5.27. A gauche : température simulée en fonction de la température mesurée moyenne pour les chauffes homogènes. A droite % d'erreur calcul-mesures. 126
5.28. A gauche : température simulée en fonction de la température mesurée pour les chauffes homogènes. A droite % d'erreur calcul-mesures. 126
5.29. Chauffe CH11. A gauche, profils de températures mesurés à différents instants (lignes pleines) et simulés (lignes en pontillées) avec un profil d'intensité modulé. A droite : convolution des profils de température simulés par la LSF de la caméra (en pointillés serrés). 127
5.30. Schéma de la configuration expérimentale utilisée pour la réalisation et la caractérisation des chauffes laser annulaires. 129

5.31. Acquisition réalisée avec une caméra visible pendant la chauffe SM1_ C2. La position de l'anneau laser est indiqué par le cercle vert sur la première image de la frise chronologique. Malgré la saturation, on peut voir ce qui semble être un début de fracturation à 37,5 ms et des fragments sont clairement visibles au temps 58,75 ms. A droite : Image post mortem de l'échantillon et image MEB de la fracturation circonferentielle. 131
5.32. Champs de température calculés pour la chauffe de 150 W (SM1_C1, à gauche) et de 300 W (SM1_C2, à droite). Terme source analytique. 131
5.33. Profils de contraintes (MPa) radiales, circonférentielles et axiales à la surface de l'échantillon. Chauffe de 300 W (SM1_C2), t=100 ms. 132
5.34. Contraintes radiales en MPa dans la pastille à la fin (t=100 ms) de la chauffe SM1_C2. . . 133
5.35. Valeurs d'endommagement à 50 (en haut) et 100 ms (en bas) calculées pendant la chauffe de 150 W (SM1_C1). 133
5.36. Valeurs de Y_c à 50 (en haut) et 100 ms (en bas) calculées pendant la chauffe de 150 W (SM1_C1) 134
5.37. Observation MEB de la zone chauffée par l'anneau laser après une chauffe ayant menée à de la fissuration circonférentielle partielle 135
5.38. Valeurs d'endommagement calculées pour la chauffe SM1_C2 (300 W) à 40, 42 et 44 ms. 136
5.39. Valeurs de Y_t calculées pour la chauffe SM1_C2 (300 W) à 40, 42 et 44 ms. 136
5.40. A gauche : Profils de températures et de contraintes radiales, circonférentielles et axiales calculés avec le code ALCYONE au Plan Flux Maximal (PFM). Essai RH2, d'après [49]. A droite : Profils de températures et de contraintes radiales et circonférentielles calculés avec le μ-model. Chauffe SM1_C2. Les valeurs sont tracées jusqu'à quelques instants avant la fracturation de l'échantillon. 137
5.41. Visualisation de l'échantillon avant, pendant et après la chauffe SM2_C1. Les images avant et après chauffe ont été traitées afin d'augmenter le contraste. 139
5.42. Visualisation de l'échantillon avant, pendant et après la chauffe SM2_C2. Toutes les images ont été traitées sur cette série pour augmenter leur contraste. La barre d'échelle fait 2 mm. 140
5.43. Visualisation de l'échantillon pendant la chauffe SM2_C2 aux instants 48, 50 et 52 ms. Les images n'ont pas été traitées. La barre d'échelle fait 2 mm. 140
5.44. Visualisation de l'échantillon après la chauffe SM2_C2. Les fragments se sont détachés après une première manipulation de l'échantillon. La barre d'échelle fait 4 mm. 141
5.45. Profils de températures mesurées. A gauche : chauffe 1, à droite : chauffe 2. 141
5.46. Profils de températures mesurés (lignes pleines) et simulés-convolués (lignes pointillées). A gauche : chauffe 1, à droite : chauffe 2. 142
5.47. Courbes contraintes-déformations et endommagement-déformations pour les deux paramétrages utilisés 143
5.48. Valeurs d'endommagement calculées à différents instants pendant la chauffe SM2_C1 . . 144
5.49. Valeurs de Y_t calculées avec le nouveau paramétrage du μ-model pendant la chauffe SM2_C1 à différents instants. L'échelle de gauche correspond aux temps 10 et 30 ms et l'échelle de droite aux temps 35, 38 et 50 ms 144
5.50. Valeurs de D calculées avec le nouveau paramétrage du μ-model à différents instants pendant la chauffe SM2_C2 145
5.51. Champs de contraintes radiales en MPa calculés à différents instants au cours de la chauffe SM2_C1 145
5.52. Champs de contraintes radiales en MPa calculés à différents instants au cours de la chauffe SM2_C2 146
5.53. Profils de températures mesurés pour la chauffe CC1 (à gauche) et pour la chauffe CC2 (à droite). Les profils en lignes pleines correspondent à la coupe verticale et les profils en lignes pointillées correspondent à la coupe horizontale. 148
5.54. Profils de températures mesurés pour la chauffe CC3. Les profils en lignes pleines correspondent à la coupe verticale et les profils en lignes pointillées correspondent à la coupe horizontale. 148
5.55. Visualisation de l'échantillon pendant la chauffe CC1. 149

5.56. Visualisation de l'échantillon pendant la chauffe CC2. 149
5.57. Visualisation de l'échantillon pendant la chauffe CC3. 149
5.58. Profils de températures mesurés, simulés, et simulés-convolués pour les chauffes CC1 (à gauche) et CC2 (à droite) 150
5.59. Profils de températures mesurés, simulés, et simulés-convolués pour la chauffe C33. . . . 151
5.60. A gauche : visualisation de l'échantillon post-chauffe. La barre d'échelle fait 4 mm. A droite : examination MEB de la zone chauffée par le faisceau annulaire. 151
61. Comparaison entre l'ESF expérimentale et les différents fits effectués. En bas : zoom sur les extrémités du graphe. 158
62. Estimation de la PSF calculée. La barre d'échelle a une largeur de 5 pixels. 160
63. Schéma du système optique considéré pour l'inversion de la mesure de réflectance en face arrière. 162

Liste des tableaux

2.1. Caractéristiques principales des faisceaux laser utilisés 50
2.2. Caractéristiques constructeur de la caméra thermique utilisée. 59

3.1. Tableau récapitulatif des constantes optiques relevées dans la littérature 70
3.2. Récapitulatif des éléments optiques utilisés pour calibrer le banc de spectro-photométrie 73
3.3. Récapitulatif de la caractérisation de l'état de surface des échantillons 76

4.1. Valeurs des paramètres du modèle de Mazars (équations 4.20, 4.23 et 4.24) 94

5.1. Récapitulatifs des chauffes annulaires de la série "thermique". 107
5.2. Récapitulatif des caractéristiques de l'objectif 100 mm + bague allonge 0,75 pouce et de l'objectif macroscopique à la distance de travail utilisée pendant les chauffes 114
5.3. Couples de coefficients d'absorption et de diffusion utilisés pour le balayage paramétrique de la simulation Monte-Carlo 118
5.4. Récapitulatif des chauffes homogènes réalisées. 123
5.5. Récapitulatif de la première série de chauffes dites "mécaniques" 130
5.6. Récapitulatif de la deuxième série de chauffes dites "mécaniques" 138
5.7. Récapitulatif des chauffes combinées 148
5.8. Température simulée (faisceau homogène seulement) et mesurée à 20 ms pour les chauffes CC1 et CC3 et à 100 ms pour la chauffe CC2. La mesure est effectuée sur la portion de pastille qui n'est pas chauffée par le faisceau annulaire. 150
9. Combinaison linéaires pour les différentes fonctions d'étalements dans le cas où la PSF est une combinaison de fonctions Gaussienne et dans le cas où elle est une combinaison de fonctions de Cauchy 157
10. Coefficients obtenus après optimisation de plusieurs combinaisons linéaires dans le cas où le PSF est une combinaison de fonctions Gaussienne et dans le cas où elle est une combinaison de fonctions de Cauchy 159