

Conductivité thermique d'une céramique affectée par un réseau de fissures localisées aux joints de granulats : simulations 2D de l'effet d'une distribution bimodale de taille de granulats

Léo Moutin¹, Renaud Masson¹, Vincent Bouineau¹, Christelle Duguay¹, Laurent Fayette¹, Frédéric Adenot¹, Marc Josien¹ et Michel Bornert²

¹ CEA, DES, IRESNE, DEC, Cadarache F-13018 Saint-Paul-lez-Durance, France

² Laboratoire Navier, Ecole des Ponts, Univ. Gustave Eiffel, CNRS, 6-8 avenue Blaise Pascal, Champs-sur-Marne, 77455 Marne-la-Vallée Cedex

Résumé - Un modèle numérique a été développé pour évaluer l'influence de la porosité de céramiques UO₂ sur leur comportement thermique. Ce modèle repose sur des simulations numériques par champs complets réalisées sur des microstructures synthétiques. Pour que le modèle prédisse correctement la conductivité thermique de ces céramiques, il est essentiel que les microstructures synthétiques soient fidèles aux microstructures des céramiques étudiées. Par rapport aux microstructures synthétiques de référence, présentées dans [1], de nouvelles considérations sont faites et notamment une distribution bimodale de taille de granulats et une orientation préférentielle de la porosité. Une caractérisation des microstructures ainsi qu'une évaluation de leur comportement thermique par simulation 2D est réalisée.

Nomenclature

ρ_{3D}	densité de fissures	l_{tot}	longueur totale de fissures, μm
l_{tot}	longueur totale de fissures, μm	$\tilde{\lambda}$	conductivité thermique, $\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$
S	surface du V.E.R, μm^2	$\Phi_{norm,x}$	flux normalisé selon x
N_b	nombre de branches dans le V.E.R	\mathbf{q}	vecteur densité de flux, $\text{W} \cdot \text{m}^{-2}$
l_b	longueur des branches dans le V.E.R, μm	∇T	gradient de température, $\text{K} \cdot \text{m}^{-1}$

1. Introduction

Les matériaux céramiques obtenues par frittage présentent une porosité qui peut être plus ou moins marquée et dont les caractéristiques morphologiques varient fortement d'un matériau à l'autre. Cette porosité peut avoir une forte influence sur leur comportement thermique. Il est alors essentiel de bien caractériser cette porosité pour comprendre précisément le rôle qu'elle joue sur le comportement thermique de ces matériaux.

Les matériaux céramiques étudiés dans ce document présentent un réseau de porosité très développé. En particulier, il se caractérise par la présence d'une porosité de forme fine et allongée qui peut être assimilée à un réseau de fissures. Cette porosité est appelée dans cette étude porosité "filamentaire" en référence à sa forme.

Un modèle numérique a été développé pour évaluer l'influence de cette porosité sur le comportement thermique des céramiques [1]. Ce modèle repose sur des simulations numériques réalisées sur des microstructures synthétiques elles-même obtenues par simulation. Pour que le modèle prédisse correctement la conductivité thermique de ces céramiques, il est essentiel que ces microstructures soient les plus fidèles possibles à celles des céramiques étudiées.

L'objectif de cette contribution est donc d'évaluer la représentativité des microstructures synthétiques générées, en se limitant volontairement à des comparaisons 2D (l'étude 3D et la comparaison à des mesures fera l'objet d'une étude ultérieure).

2. Matériaux d'étude et microstructures synthétiques

2.1. Matériaux d'étude

Le matériau au centre de cette étude est une céramique de dioxyde d'uranium (UO_2). L' UO_2 est le combustible principalement utilisé dans le parc électronucléaire français. Les céramiques étudiées sont obtenues par métallurgie des poudres avec un procédé de fabrication alternatif légèrement différent du procédé standard qui se compose notamment d'une étape de précompaction suivie d'une granulation puis d'un pressage uniaxial pour réaliser la mise en forme des céramiques. Deux familles de porosité sont observées sur ces céramiques :

- Une famille de pores de forme quasi-sphérique et de petite taille appelée porosité "occluse" et qui est assimilée à la porosité fermée.
- Une famille de pores de forme élancée et de taille plus importante, localisée aux joints inter-granulés, qui est appelée porosité "filamentaire" et qui est assimilée à la porosité ouverte. C'est cette porosité qui sera étudiée ici.

Plusieurs céramiques ont été fabriquées au Laboratoire des Combustibles Uranium (LCU) du CEA Cadarache afin de caractériser cette porosité et d'évaluer son influence sur le comportement thermique des combustibles. Les conditions de mise en forme de ces céramiques ont été réfléchies et optimisées pour obtenir des échantillons avec des propriétés variées, notamment en terme de fraction volumique de porosité fermée et de porosité ouverte. Dans la suite, un lot en particulier sera étudiée. Ce lot présente une fraction volumique de porosité fermée de 1.04 % et de porosité ouverte de 2.48 %. Également, la porosité filamentaire de ce lot présente une orientation préférentielle perpendiculaire à la direction de pressage.

Les images de coupes de céramiques sont obtenues par microscopie optique permettant une caractérisation 2D quantitative du réseau de porosité filamentaire affectant la céramique. Avant cela, les images brutes doivent être traitées avec un protocole de traitement d'images qui se compose de quatre opérations principales, décrites dans [1], qui permettent de passer d'une image brute de microscopie optique à une image squelettisée. La squelettisation permet notamment d'homogénéiser l'épaisseur des fissures et donc de limiter l'impact des arrachements lors de la préparation des échantillons. La figure 1 présente une image brute de microscopie optique prise sur la céramique étudiée ainsi que l'image squelettisée obtenue avec le protocole.

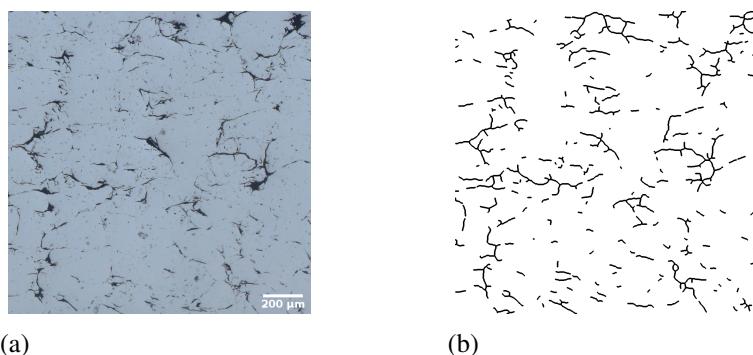


Figure 1 : Image brute de la céramique étudiée (a) et cette même image traitée (b)

2.2. Génération de microstructures à porosité filamentaire

Les microstructures synthétiques sont obtenues à l'aide d'un logiciel développé au CEA (nommé Mérope) permettant de générer des volumes élémentaires représentatifs (V.E.R) afin

de réaliser des calculs de thermique et de mécanique pour déterminer les grandeurs homogénéisées de matériaux hétérogènes par simulation numérique. Le concept de V.E.R est à la base de la simulation numérique à une échelle microscopique pour obtenir des grandeurs macroscopiques [2].

Dans [1], la génération des microstructures à porosité filamentaire est réalisée en trois étapes :

1. Dans un premier temps, le réseau de joints de granulats est obtenu en réalisant une tessellation générée à partir de germes répartis de manière quasi-homogène avec un algorithme RSA¹.
2. Dans un second temps, un certain nombre de sphères délimitantes (disques en 2D) sont tirées aléatoirement dans le domaine à l'aide d'un algorithme booléen. Le nombre de sphères délimitantes est choisi en fonction de la couverture de joints de granulats par la porosité qui est visée.
3. Enfin, la microstructure à porosité filamentaire peut être obtenue. Pour cela, l'intersection entre les sphères délimitantes et le réseau de joints de granulats est éliminée.

Pour la génération des microstructures synthétiques présentées dans cette étude, une distribution de taille des granulats est considérée. La tessellation de Laguerre est alors utilisée [3]. La distribution de taille des granulats considérée dans cette étude est une distribution bimodale. Ceci permet de générer deux populations de granulats de dimensions fixées et de contrôler leur proportion. Les propriétés de ces deux populations ont été fixées de la manière suivante :

- Petits granulats : le rayon est proche de celui des petits granulats observés sur les microstructures réelles ($\approx 41 \mu\text{m}$). Les petits granulats représentent 85 % du nombre total de granulats.
- Gros granulats : le rayon est proche de celui des zones vides de fissures observées sur les microstructures réelles ($\approx 132 \mu\text{m}$).

Également, le réseau de porosité des microstructures synthétiques générées pour cette étude présente une orientation préférentielle. Pour obtenir de telles microstructures, la fonction distance est altérée en intégrant un critère de rapport d'aspect. Ceci revient à appliquer une tessellation à des coordonnées déformées.

3. Caractérisation

La caractérisation permet une première évaluation de la représentativité des microstructures synthétiques. Deux paramètres d'entrée sont fixés pour la génération de ces microstructures. Ils sont déterminés sur les céramiques étudiées et permettent de leur associer des microstructures synthétiques. Ces paramètres sont la longueur totale de la porosité filamentaire et son orientation préférentielle. La façon dont sont calculés ces paramètres est explicitée dans la suite. La figure 2 rappelle la microstructure de la céramique étudiée et présente la microstructure synthétique qui lui est associée. La microstructure synthétique de référence est également introduite.

3.1. Paramètres morphologiques

La porosité des céramiques étudiées étant élancée et de faible épaisseur, elle peut être assimilée à un réseau de fissures. Un paramètre a été introduit par Budiansky afin de quantifier la

1. L'algorithme RSA, pour Random Sequential Adsorption, permet de réaliser le tirage aléatoire d'un nombre donné de sphères non-interpénétrantes (disques en 2D)

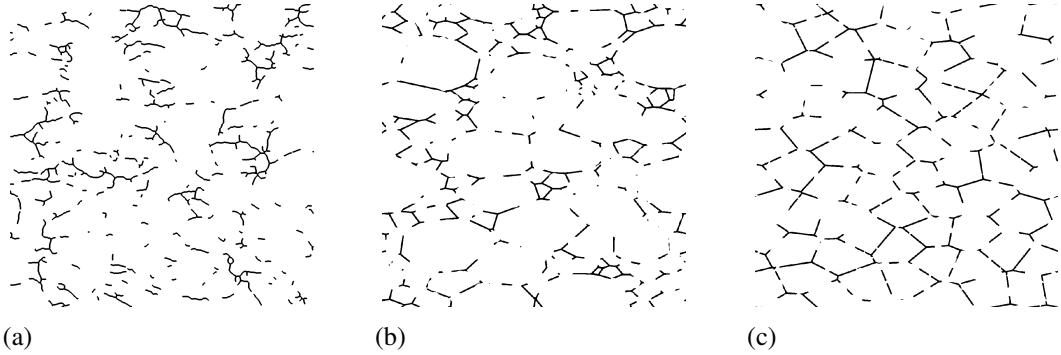


Figure 2 : Images squelettisées de la microstructure réelle (a), de la microstructure synthétique étudiée (b) et de la microstructure synthétique de référence (c)

concentration de fissures dans un domaine d'étude [4]. Ce paramètre est appelé la densité de fissures (ρ_{3D}) et il est obtenu à partir d'une coupe 2D (de surface S) d'un matériau constitué de fissures de même forme convexe et dont la répartition spatiale et la distribution angulaire sont aléatoires :

$$\rho_{3D} = \frac{8}{\pi^3 S} \frac{l_{tot}^2}{N_b} \quad (1)$$

Dans cette relation, l_{tot} et N_b correspondent à la longueur totale de fissures et au nombre de fissures présentes sur cette coupe. Un code de calcul, appelé Crackcut, a été développé pour obtenir, entre autres, les paramètres nécessaires au calcul de la densité de fissures à partir d'images de microscopie optique [5]. Les hypothèses sur lesquelles reposent cette relation sont restrictives et ne sont pas complètement vérifiées pour les matériaux étudiés.

Un autre paramètre intéressant est le diamètre géodésique qui est par définition le plus long chemin qu'il est possible de parcourir dans une particule [6]. Pour une particule très ramifiée le diamètre géodésique est bien inférieur à la somme de la longueur des branches de la particule. Le diamètre géodésique permet donc de rendre compte de la ramification des objets étudiés. Ceci fait intervenir la notion de branches primaires et de branches secondaires, les branches primaires étant les parties des particules couvertes par le diamètre géodésique. Le tableau 1 regroupe différents paramètres obtenus avec Crackcut et avec le diamètre géodésique sur la microstructure réelle étudiée et sur la microstructure synthétique générée.

	N_b	$\langle l_b \rangle$	ρ_{3D}	$\langle l_{bPrim} \rangle$	$l_{bPrim,tot}/l_{tot}$	N_{bPrim}
	(-)	µm	(-)	µm	%	(-)
Réelle	385	35	0,053	146	65	60
Synthétique	381	34	0.05	163	69	64

Tableau 1 : Paramètres obtenus avec Crackcut et avec le diamètre géodésique

La longueur totale de fissures de la microstructure synthétique a été optimisée en contrôlant le nombre de disques délimitants tirés de sorte à atteindre la longueur totale de fissures mesurée sur la microstructure réelle (étape 2 de la génération de microstructures à porosité filamentaire). L'étude des paramètres morphologiques obtenus avec Crackcut permet de souligner la représentativité de la microstructure synthétique générée. Le nombre de branches ainsi que leur longueur moyenne sont très proches de ceux de la microstructure réelle. La densité de fissures calculée est également cohérente. Les propriétés des branches primaires de la microstructure

synthétique sont globalement assez proches de celles de la microstructure réelle, notamment en terme de couverture de la longueur totale. Ceci signifie que la microstructure synthétique rend bien compte de la ramifications de la porosité de la microstructure réelle. À noter tout de même que la longueur moyenne des branches primaires de la microstructure synthétique est supérieure à celle de la microstructure réelle. De plus longues fissures sont donc observées sur la microstructure synthétique.

3.2. Orientation préférentielle

De nombreuses méthodes ont été mises au point pour analyser l'orientation des objets présents sur une image, plusieurs sont présentées dans [7]. Ces méthodes reposent sur un calcul du nombre de connexités par unité de longueur et permettent d'étudier des cas généraux. Dans le cas présent, l'étude de l'orientation est grandement simplifiée par le fait que les objets étudiés soient des fissures et qu'une orientation préférentielle selon l'axe horizontal ($\theta = 0^\circ$) ait déjà été identifiée. Un indicateur plus direct est donc utilisé. Cet indicateur permet de quantifier la proportion d'objets orientés dans une direction donnée, qui dans le cadre de l'étude est l'axe horizontal, et il est noté c_{0° . Plus précisément, l'indicateur c_{0° s'appuie sur la description que renvoie Crackcut de la microstructure étudiée. Crackcut "discrétise" les objets étudiés en segments de longueur l_s et d'angle θ_s . Il est ainsi possible de calculer c_{0° :

$$c_{0^\circ} = \frac{1}{l_{tot}} \sum_s \cos(\theta_s) l_s \quad (2)$$

Pour une microstructure dont l'orientation des fissures est tirée aléatoirement, le coefficient c_{0° est proche de 0.64. Dans le cas où il y a une orientation préférentielle selon l'axe $\theta = 0^\circ$, le coefficient c_{0° se rapproche de 1. Pour la microstructure réelle associée à la céramique étudiée, le coefficient de projection vaut $c_{0^\circ} = 0.76$. Les fissures de la microstructure réelle présentent donc une orientation préférentielle selon l'axe $\theta = 0^\circ$. C'est ce paramètre qui a été utilisé pour contrôler l'orientation des microstructures synthétiques générées, il est égal à 0.78 pour la microstructure synthétique. La figure 3 présente les histogrammes de distribution angulaire de la microstructure réelle et de la microstructure synthétique. Les histogrammes présentent un pic autour de 0° . L'orientation préférentielle du réseau de fissures selon cet axe est donc bien retrouvée sur la microstructure réelle et elle apparaît également sur la microstructure synthétique.

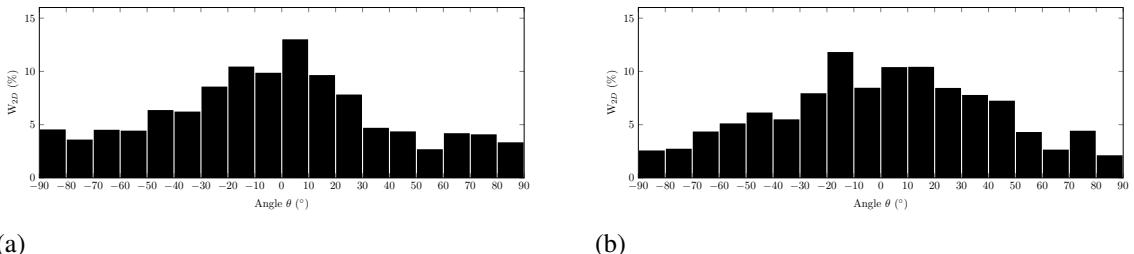


Figure 3 : Histogrammes de distribution angulaires des fissures de la microstructure réelle (a) et synthétique (b)

4. Comportement thermique

Pour évaluer l'influence des paramètres identifiés dans la partie précédente sur les propriétés thermiques des microstructures, des simulations numériques sont réalisées. Il faut souligner ici que le comportement thermique des microstructures est étudié à partir de coupes 2D. Les

simulations qui suivent ne représentent donc pas le comportement des microstructures réelles ou synthétiques mais celui de microstructures virtuelles présentant des fissures rubans (infinies dans la direction opposée au plan d'observation), ce qui exacerbe l'effet des fissures sur les propriétés thermiques simulées. Dans cette étude, les fissures sont considérées isolantes ($\lambda = 10^{-6} \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$) et les effets de type Knudsen ou radiatif ne sont pas considérés. L'objectif étant de donner une première estimation du comportement thermique des microstructures en maximisant le rôle de la porosité.

Le comportement thermique des microstructures est évalué à l'aide de grandeurs calculées avec la méthode FFT [8]. L'intérêt principale de cette méthode est qu'elle ne nécessite pas de maillage. Cette méthode présente cependant des difficultés pour converger, notamment lors de l'étude d'objets de type fissure. L'utilisation de filtres et le fait de donner une épaisseur non nulle aux fissures permet d'assurer la convergence. La première grandeur étudiée est la conductivité thermique effective qui est obtenue à partir des champs de densité de flux thermique \mathbf{q} et de gradient de température ∇T :

$$\tilde{\lambda} = - \frac{\langle \mathbf{q} \rangle_{\text{V.E.R.}}}{\langle \nabla T \rangle_{\text{V.E.R.}}} \quad (3)$$

Où l'opérateur $\langle \cdot \rangle_{\text{V.E.R.}}$ représente la moyenne spatiale sur le V.E.R. La seconde grandeur étudiée est le flux normalisé qui est le flux rapporté au flux moyen dans une direction donnée :

$$\Phi_{norm,x} = \frac{\Phi_x}{\langle \Phi_x \rangle} \quad (4)$$

Le gradient de température imposé dans ces simulations FFT est fixé arbitrairement étant donné qu'il ne joue pas, en thermique linéaire, sur les grandeurs normalisées. La conductivité thermique de la matrice solide est fixée à $9.3 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^1$, valeur cohérente avec la conductivité thermique de l' UO_2 à 50°C . Les calculs sont réalisés sur les microstructures synthétiques et sur les microstructures réelles (images squelettisées et dilatées). La figure 4 présente les cartes de flux normalisé obtenues pour la microstructure réelle et la microstructure synthétique en imposant un gradient de température selon y . La carte de flux obtenue sur la microstructure synthétique de référence est également présentée. Concernant l'échelle, le flux normalisé est compris entre 0 (bleu foncé) et 2 (rouge foncé). La flèche blanche située en haut à gauche de l'image de la microstructure synthétique étudiée donne la direction du gradient imposé.

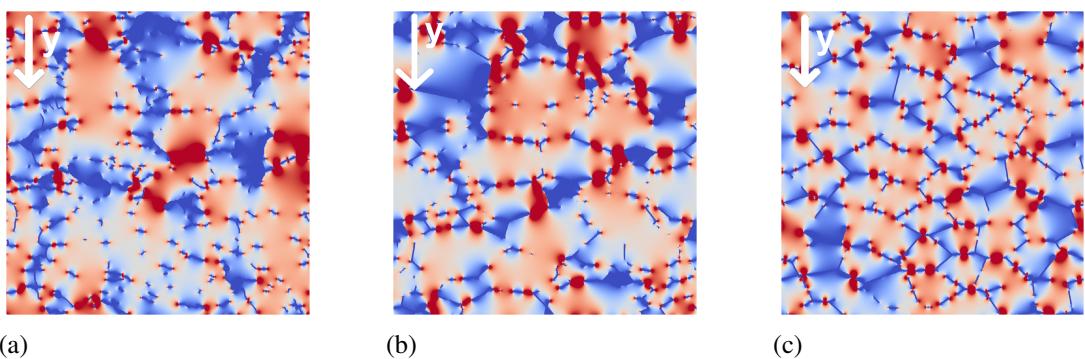


Figure 4 : Cartes de flux normalisé de la microstructure réelle (a), de la microstructure synthétique étudiée (b) et de la microstructure synthétique de référence (c) avec un gradient imposé selon y

De larges zones bleues dans lesquelles le flux normalisé est très faible apparaissent sur les cartes de flux. Il existe ainsi des zones "mortes", dues à la présence d'amas de fissures, qui

constituent de véritables barrières pour le flux thermique. Ces zones sont identifiées sur les cartes de flux de la microstructure réelle et retrouvées sur celles de la microstructure synthétique. À noter qu'elles n'apparaissent pas sur la microstructure synthétique de référence. De nombreuses zones rouges foncées apparaissent également sur la microstructure synthétique et sont moins nombreuses sur la microstructure réelle. Ces zones révèlent la présence de chemins étroits pour le flux thermique qui sont dus à la présence de longues fissures. Ces longues fissures sont le fruit des plus gros granulats générés avec la distribution bimodale.

L'orientation préférentielle du réseau de porosité selon l'axe x a un effet sur le comportement du flux thermique. En imposant un gradient de température selon y, les zones mortes sont bien plus larges qu'en imposant un gradient selon x. L'effet de l'orientation des fissures se retrouve également sur la conductivité thermique effective (tableau 2).

	$\tilde{\lambda}_x$ $W.m^{-1}.K^{-1}$	$\tilde{\lambda}_y$ $W.m^{-1}.K^{-1}$	$\tilde{\lambda}_y/\tilde{\lambda}_x$ (-)
Réelle	6,47	5,36	1,21
Synthétique	6,02	5,02	1,2

Tableau 2 : *Conductivités effectives selon x et selon y obtenues sur la microstructure réelle et synthétique*

Le rapport entre les conductivités thermiques selon y et selon x de la microstructure synthétique est du même ordre que celui de la microstructure réelle. Cependant, la microstructure synthétique présente une conductivité thermique plus faible. Ceci est dû à la présence des longues fissures mentionnées précédemment. Pour aller plus loin dans l'étude du comportement thermique, les histogrammes de distribution du flux sont étudiés (figure 5).

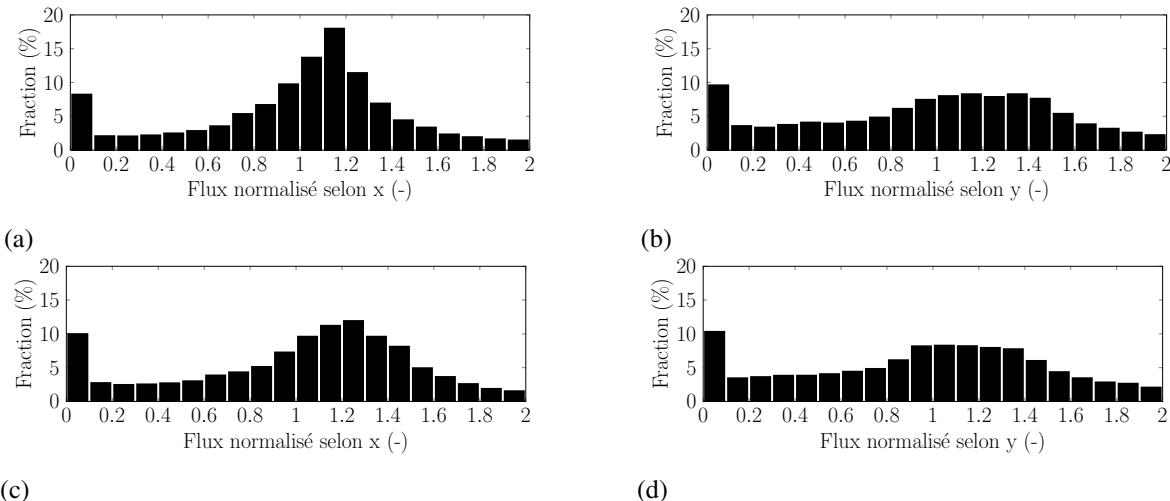


Figure 5 : *Histogrammes de distribution du flux normalisé de la microstructure réelle ((a) et (b)) et synthétique ((c) et (d)) obtenus avec un gradient imposé selon x ((a), (c)) et selon y ((b), (d))*

La distribution de flux normalisé de la microstructure synthétique suit la même tendance que celle de la microstructure réelle. Un pic est atteint pour des valeurs de flux normalisé proches de 1.1, il est légèrement plus aplati sur la microstructure synthétique. Ce pic est dû à la présence de zones vides de fissures (rouges claires sur les cartes de flux). Un pic pour des valeurs de flux nulles est également identifié, ce pic est dû à la présence de zones mortes.

L'orientation préférentielle du réseau de fissures se retrouve sur les histogrammes de distribution du flux normalisé. En effet, l'histogramme obtenu quand le gradient de température est imposé selon x est moins aplati que celui obtenu quand le gradient est imposé selon y. Ceci

signifie que le flux normalisé est plus homogène dans ce cas ce qui est cohérent avec le fait que les fissures représentent des barrières moins efficaces pour le flux. Cette propriété se retrouve sur la microstructure synthétique.

5. Conclusion

L'objectif de l'étude qui a été présentée est d'évaluer la représentativité des microstructures synthétiques générées par rapport aux microstructures réelles des céramiques étudiées. Ces microstructures synthétiques sont au cœur du modèle développé pour évaluer l'influence de la porosité filamentaire sur le comportement thermique des céramiques et il est donc essentiel qu'elles soient représentatives des microstructures réelles. Les microstructures synthétiques étudiées présentent, par rapport au microstructures de référence introduites dans [1], une distribution bimodale de taille de granulats et une orientation préférentielle de leur réseau de porosité.

Une céramique en particulier a été étudiée. Une microstructure synthétique lui a été associée en se basant sur une mesure de la longueur totale de sa porosité filamentaire et de son orientation préférentielle. Une caractérisation détaillée du réseau de porosité de la céramique étudiée et de la microstructure synthétique qui lui est associée a ensuite été réalisée. La microstructure synthétique générée présente des caractéristiques proches de celles obtenues sur la microstructure réelle, notamment en terme de longueur des branches et de ramification.

Le comportement thermique des microstructures a ensuite été étudié. Des simulations numériques ont été réalisées avec la méthode FFT pour simuler la réponse thermique des différentes microstructures. L'étude des cartes de flux thermique a permis de mettre en évidence la présence de zones dans lesquelles le flux circule peu. Ces "zones mortes" sont liées à la présence de zones d'amas de la porosité identifiées lors de la caractérisation. Ces zones sont présentes sur la microstructure réelle et sur la microstructure synthétique. L'orientation préférentielle du réseau de porosité a des effets concrets sur le comportement thermique de la microstructure de la céramique étudiée. Cet effet est bien reproduit par la microstructure synthétique.

Références

- [1] Meynard J, Ibrahim M, Monnier A, Bornert M, Castelier E, Duguay C, Garajeu M, and Masson R. Effective properties of an isotropic solid weakened by micro-cracks localized at inter-granular position. *Journal of Mechanics and Physics of Solids*, 2021.
- [2] Kanit T, Forest S, Galliet I, Mounoury V, and Jeulin D. Determination of the size of the representative volume element for random composites : statistical and numerical approach. *International Journal of Solids and Structures*, Vol.40, p.3647-3679, 2003.
- [3] Aurenhammer F. Power diagrams : properties, algorithms and applications. *SIAM Journal on Computing*, Volume 16, No. 1, 1987.
- [4] Budiansky B and O'Connell R.J. Elastic moduli of a cracked solid. *International Journal of Solids Structures*, Volume 12, p81-97, 1976.
- [5] J. Meynard. Influence de la taille, de la morphologie et de la distribution spatiale des pores sur la conductivité thermique de céramiques uo2. *Manuscrit de thèse, Aix-Marseille Université*, 2019.
- [6] Morard V, Decencière E, and Dokladal P. Geodesic attributes thinnings and thickenings. *10th International Symposium on Mathematical Morphology and Its Application to Signal and Image Processing, ISMM 2011, Jul 2011, Verbania-Intra, Italy*, p.200-211, 2011.
- [7] Racine A. Influence de l'orientation des hydrures sur les modes de déformation, d'endommagement et de rupture du zircaloy-4 hydrure. *Manuscrit de thèse, Ecole Polytechnique X*, 2005.
- [8] F. Willot, Abdallah B, and Pellegrini Y.P. Fourier-based schemes with modified green operator for computing the electrical response of heterogeneous media with accurate local fields. *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, Wiley, 98, p.518-533, 2014.