

DESCRIPTION DES MODELES A INTRODUIRE DANS LE LOGICIEL DE THERMOMECANIQUE DU CRAYON COMBUSTIBLE CYRANO3

> DESCRIPTION OF MODELLING TO BE IMPLEMENTED IN THE FUEL ROD THERMOMECHANICS CODE CYRANO3

÷



LIP-1 エッシ

5, 114

EDF Electricité de France

# **Direction des Etudes et Recherches**

SERVICE RÉACTEURS NUCLÉAIRES ET ECHANGEURS Département Mécanique et Technologie des Composants Département Etude des Matériaux

TTIMIN FR 9 JUI 871

Juin 1993

BARON D. BOUFFIOUX P.

### DESCRIPTION DES MODELES A INTRODUIRE DANS LE LOGICIEL DE THERMOMECANIQUE DU CRAYON COMBUSTIBLE CYRANO3

# DESCRIPTION OF MODELLING TO BE IMPLEMENTED IN THE FUEL ROD THERMOMECHANICS CODE CYRANO3

Pages: 111

### 94NB00094

Diffusion : J.-M. Lecœuvre EDF-DER Service IPN. Département SID 1, avenue du Général-de-Gaulle 92141 Clamat Cedex

© Copyright EDF 1994 ISSN 1161-0611 **EXECUTIVE SUMMARY:** 

CYRANO3 is the new EDF thermomechanical code developed to evaluate the overhall fuel rod behavior under irradiation. In that context, this paper presents the phenomena to be simulated and the correlations adopted for modelling purposes. The empirical models presented are taken from the CYRANO2 code and a compilation of the relevant literature. The present revision corrects and supplements version B on the basis of its use during the software coding phase from January 1991 to May 1993.

. . . .

XIEN YEJ

authors Figs tabs 120 refs

1 × 1 × 1 × 2

------

EDF

# Direction des Etudes et Recherches

Electricité de France

SERVICE RÉACTEURS NUCLÉAIRES ET ECHANGEURS Département Mécanique et Technologie des Composants Département Étude des Matériaux

Juin 1993

BARON D. BOUFFIOUX P.

# DESCRIPTION DES MODELES A INTRODUIRE DANS LE LOGICIEL DE THERMOMECANIQUE DU CRAYON COMBUSTIBLE CYRANO3

# DESCRIPTION OF MODELLING TO BE IMPLEMENTED IN THE FUEL ROD THERMOMECHANICS CODE CYRANO3

Pages : 111

94NB00094

Diffusion : J.-M. Lecœuvre EDF-DER Service IPN. Département SID 1, avenue du Général-de-Gaulle 92141 Clamart Cedex

© Copyright EDF 1994 ISSN 1161-0611

-- -

### SYNTHÈSE :

~~~~

Dans le cadre du développement du logiciel de comportement thermomécanique du crayon combustible REP CYRANO3, cette ne présente l'ensemble des phénomènes à prendre en compte et les corrélations retenues pour les modéliser. Les modèles empiriques présentés proviennent du logiciel CYRANO2 et d'une compilation de la littérature existante. La présente révision corrige et complète la version B sur la base de son utilisation pendant la phase de codage du logiciel de Janvier 91 à Mai 93.

(HT 25/90-01C) (HT 43/NEQ-1001C)

94NB0(094

### **EXECUTIVE SUMMARY :**

CYRANO3 is the new EDF thermomechanical code developed to evaluate the overhall fuel rod behavior under irradiation. In that context, this paper presents the phenomena to be simulated and the correlations adopted for modelling purposes. The empirical models presented are taken from the CYRANO2 code and a compilation of the relevant literature. The present revision corrects and supplements version B on the basis of its use during the software coding phase from January 1991 to May 1993.

.

, . <u>1</u>, . .

| - 3 -                                                        |           |         |
|--------------------------------------------------------------|-----------|---------|
|                                                              | ,<br>1 ш, |         |
|                                                              | -<br>     | -<br>-  |
| SOMMAIRE                                                     | -         | ,       |
|                                                              |           | -       |
|                                                              |           | х.<br>х |
| A - INTRODUCTION                                             | 6         |         |
|                                                              | 8         | ·<br>·  |
| B - PASTILLE COMBOSTIBUE ET DED FASIINDE GALME               |           |         |
| 1 - THERMIQUE DE L'OXYDE COMBUSTIBLE                         | 8         | · ·     |
| 1.1 - Conductibilité                                         | 8         | -       |
| 1.1.1 - Conductivité thermique de référence                  | 8         |         |
| 1.1.2 - Effet de la porosité                                 | 9         |         |
| 1.1.3 - Effet du taux de combustion                          | 9         |         |
| 1.2 - Capacité calorifique                                   | 10        |         |
| 2 DILATATION THERMIQUE DE L'OXYDE                            | 12        |         |
| 2.1 - Formulation de la version CYRANO 2C (ref /120/)        | 12        |         |
| 2.2 - Corrélations formulées dans MATPRO                     | 13        |         |
| 2.2.1 - Dilatation thermique de l'oxyde d'Uranium            | 13        |         |
| 2.2 2 - Oxydes Mixtes (U-Pu)O2                               | 13        |         |
| 3 - GENERATION DE PUISSANCE ET REPARTITION DES NOYAUX LOURDS | 15        |         |
| 3.1 - Distribution radiale fine de puissance dans la past    | ille      |         |
|                                                              | 15        |         |
| 3.1.1 - Situation actuelle dans le logiciel CYRANO           | . 15      |         |
| 3.1.2 - Développement d'une méthodologie EDF pour générer le | )s        |         |
| abaques                                                      | 15        |         |
| 3.2 - Répartition des noyaux lourds                          | 16        |         |
| 4 - DENSIFICATION ET GONFLEMENT SOLIDE                       | 18        |         |
| 4.1 - Modèle de gonflement "solide"                          | 18        |         |
| 4.2 - Modèle de densification                                | 18        |         |
| 4.2.1 - Modèles de CYRANO                                    | 19        |         |
| 4.2.2 - Modèle de NRC adapté                                 | 20        |         |
| 5 - FORMATION DES PRODUITS DE FISSION                        | 24        |         |
| 6 - RELACHEMENT DES PRODUITS DE FISSION GAZEUX               | 29        |         |
| 6.1 - Modèle de CAPART                                       | 30        |         |
| 6.2 - Modèle empirique de Baron-Maffeis (ref /7/)            | 34        |         |

|                                                                     | 5.<br>     | -       |
|---------------------------------------------------------------------|------------|---------|
| 6.2.1 - Relâchement thermique                                       | 34         | •       |
| 6.2.2 - Relâchement athermique                                      | 36         | î,<br>⊥ |
| 6.3 - Conclusions                                                   | 36         |         |
|                                                                     |            |         |
| 7 - GONFLEMENT PAR LES PRODUITS DE FISSION GAZEUX                   | 38         | -       |
| 7.1 - Modèle COMETHE utilisé dans CYRANO 2C (ref /120/)             | 38         | j-      |
| 7.2 - Modèle proposé dans MATPRO                                    | 39         | · .     |
|                                                                     |            | =       |
| 8 - RESTRUCTURATION DU COMBUSTIBLE                                  | 41         | e       |
| 8.1 - Croissance équiaxe                                            | 41         | -       |
| 8.2 - Croissance de grains colonnaire                               | 42         |         |
| 9 - PROPRIETES MECANIQUES DE L'OXYDE COMBUSTIBLE                    | 44         |         |
| 9.1 - Module d'YOUNG et coefficient de POISSON                      | 44         |         |
| 9.1.1 - Formulations dans CYRANO 2C (ref /120/)                     | 44         |         |
| 9.1.2 - Formulations proposées dans MATPRO (ref /57/)               | 45         | -       |
| 9.2 - Limite d'élasticité en compression, contrainte de             |            |         |
| fissuration                                                         | 45         |         |
| 9.3 - Fluage de l'oxyde                                             | 46         |         |
| 10 - TRANSFERT THERMIQUE DANS LE JEU PASTILLE-GAINE                 | 49         |         |
| 10.1 - Transfert par conduction                                     | 49         |         |
| 10.1.1 - Distance d'extrapolation                                   | 49         |         |
| 10.1.2 - Conductivité du mélange gazeux                             | 50         |         |
| 10.1.3 - Conductivité des gaz                                       | 51         |         |
| 10.2 - Transfert thermique par rayonnement                          | 51         | -       |
| 10.3 - Transfert thermique par contact                              | 52         |         |
| 10.4 - Prise en compte de la fracturation de la pastille            | 53         |         |
| 10.5 - Formulation utilisée dans CYRANO 2C                          | 53         |         |
| C - TUBE DE GAINAGE                                                 | 55         |         |
| 1 - TRANSFERT THERMIQUE DANS LA GAINE                               | 55         |         |
| 1.1 - Distribution de température dans la gaine                     | 55         |         |
| 1.2 - Prise en compte de la couche de zircone                       | 5 <b>6</b> |         |
| 1.3 - Transfer <sup>,</sup> dans la couche limite gaine-réfrigérant | 57         |         |
| 1.3.1 Conductance en convection forcée                              | 57         |         |
| 1.3.2 Ebullition nucléée                                            | 58         |         |
| 1.3.3 Ebullition franche                                            | 58         |         |

----

| - <b>5</b> - "provenue                                    |                          |
|-----------------------------------------------------------|--------------------------|
|                                                           | •                        |
| 2 - COMPORTEMENT MECANIQUE DU TUBE DE GAINE               | 59                       |
| 2.1 - Introduction                                        | 59                       |
| 2.2 - Anisotropie du matériau de gainage                  | <b>60</b> . <sup>1</sup> |
| 2.2.1 - Anisotropie élastique                             | 60                       |
| 2.2.2 - Anisotropie plastique                             | 62                       |
| 2.2.2.1 - Aspects fondamentaux de la théorie de Hill      | 62                       |
| 2.2.2.2 Principes de base de la théorie de Lee            | 65                       |
| 2.2.3 - Conclusion                                        | 66                       |
| 2.3 - LOIS DE COMPORTEMENT                                | 67                       |
| 2.3.1 - Plasticité et fluage thermique                    | 68                       |
| 2.3.1.1 - Position du problème                            | 68                       |
| 2.3.1.2 - Lois de comportement                            | 71                       |
| 2.3.2 - Fluage d'irradiation                              | 83                       |
| 2.3.2.1 - Corrélation initialement programmée dans CYRANO | ) 83                     |
| 2.3.2.2 - Corrélations utilisées actuellement             | 84                       |
| 2.3.2.3 - Orientations à prendre pour ces modélisations   | 85                       |
| 2.4 DILATATION THERMIQUE                                  | 89                       |
| 2.5 - Allongement de la gaine sous irradiation            | 89                       |
| 3 - RUPTURE DE GAINE PAR IPG                              | 92                       |
| 3.1 - MECANISMES DE RUPTURE                               | 92                       |
| 3.1.1 - Rupture par dépassement de la limite d'élasticité | 92                       |
| 3.1.2 - Rupture par Corrosion sous Contrainte             | 93                       |
| 3.2 - CONCLUSION                                          | 95                       |
| 4 - ENDOMMAGEMENT DE LA GAINE PAR FATIGUE                 | 95                       |
| 5 - CORROSION GENERALISEE DU ZIRCALOY                     | 97                       |
| D - CONCLUSIONS                                           | 100                      |
| E _ DEFEDDNADC                                            | 101                      |

--- ·

•

## DESCRIPTION DES MODELES À INTRODUIRE DANS LE LOGICIEL DE THERMOMECANIQUE DU CRAYON COMBUSTIBLE

### A - INTRODUCTION

Le crayon combustible a pour fonction de générer la chaleur et de transmettre cette énergie au fluide primaire. Il doit être conçu pour garder son intégrité dans toutes les conditions de fonctionnement de classe 1 et classe  $2^{(*)}$ . Pour cela, il doit répondre à un certain nombre de critères limitatifs, principalement sur les points suivants:

- la température maximale du combustible,
- la température maximale de gaine,
- la pression interne,
- les contraintes maximales dans le gainage,
- le cumul d'endommagement du tube de gainage,
- le taux de déformation maximal du gainage,
- le taux maximal de corrosion du matériau de gainage.

Le crayon combustible doit également supporter des sollicitations non opérationnelles telles que celles dues aux opérations de transport et de manutention.

Pour simuler le comportement thermomécanique du crayon combustible en réacteur et vérifier le respect des critères, EDF a utilisé jusqu'à présent le logiciel CYRANO2 dérivé de la version III-E du logiciel COMETHE.

Compte tenu de l'augmentation du temps d'irradiation, de l'utilisation de combustibles recyclés et des trajets de chargement plus sévères que ceux prévus par le concepteur (suivi de charge et téléréglage), il est nécessaire de faire évoluer les modélisations des différents phénomènes, afin d'étendre leurs domaines de validité, de réduire les incertitudes de calcul et de pouvoir ainsi justifier une plus grande souplesse de fonctionnement des réacteurs vis à vis des objectifs visés.

- 7 -

En conséquence, dès 1989, le SEPTEN a demandé à la DER de développer le logiciel de comportement thermomécanique du crayon combustible CYRANO 3, en recherchant plus particulièrement une meilleure simulation de la thermomécanique à fort taux de combustion, une évaluation plus réaliste de l'endommagement du tube de gainage dans les conditions de fonctionnement de classes 1 & 2 <sup>(\*)</sup> et un traitement optimimal des effets thermiques non stationnaires (ref /112/).

Ce document est une réactualisation du document initial (version B, 19 Septembre 1990) qui décrivait les modélisations les mieux adaptées à simuler, sur la base d'une approche monodimensionnelle, la physique des phénomènes induits dans le crayon combustible. Il prend en compte les modifications et adaptations faites pendant la programmation.

(\*) Dans la classification NRC, les catégories 1 et 2 correspondent respectivement aux transitoires normaux de fonctionnement et aux transitoires incidentels pour lesquels l'intégrité du combustible doit être garantie à tout instant.

С



17

|   | avec | k1   | $= 5,8915 \ 10^{-2}$                                        |
|---|------|------|-------------------------------------------------------------|
|   |      | k2   | $= 4,3554 \ 10^{-5}$                                        |
|   |      | k3   | $= 1,3324 \ 10^{-8}$                                        |
|   |      | K(T) | conductivité thermique à 96,4 % DT <sup>(*)</sup> (W/cm/°C) |
| 1 |      | T    | température (°C)                                            |

С

Cette formulation ne permet pas de simuler l'effet d'une adjonction d'oxyde de Plutonium ou d'une dérive de stoéchiométrie. Nous proposons donc de reprendre la corrélation utilisée par COMETHE (ref /62/, /81/ et /10/), en la modifiant sur la base des travaux de GIBBY (ref /51/), VAN CRAEYNEST et WEILBACHER (ref /100/) ainsi que de ceux rapportés par SCHMIDT et RICHTER (ref /91/). Cela conduit à la formulation suivante:

$$K(T) = \frac{k_1}{k_2 + k_3 x + (1 + k_4 q) T} + k_5 T^3$$
(3)

En ce qui concerne les oxydes d'Uranium contenant du Gadolinium, les résultats du programme NFIR Gadolinium (ref /25/, loi n° 2) suggèrent la corrélation suivante:

$$K(T) = \frac{1}{(a_1 + a_2 g + a_3 g^2) + (b_1 + b_2 g + b_3 g^2) T}$$
(4)

5,9089 a<sub>1</sub> == a2 = 3,4009 a3 = 1564,7 b1 = 0,021621 0,066866  $b_2 =$  $b_3 = -1,3491$ K(T) conductivité thermique (W/cm/°C) température (°K) т teneur en Gadolinium g

C

### 1.1.2 - Effet de la porosité

Pour prendre en compte l'effet des porosités, la corrélation actuellement utilisée dans la version 2C de CYRANO (ref /50/) est inspirée de celle de LOEB et ROSS (ref /10/). La formulation est la suivante, si K(T) représente la conductivité à 95 % D.T.:

$$K(T, por) = K(T) \frac{1 - por \alpha(T)}{1 - por_0 \alpha(T)}$$
(5)

 $\alpha(T) = 2,58 - 0,58 \ 10^{-3} \ T \quad \text{si } T \le 1000 \ ^{\circ}\text{C}$   $\alpha(T) = 2 \qquad \qquad \text{si } T > 1000 \ ^{\circ}\text{C}$   $\alpha(T) = 2 \qquad \qquad \text{si } T > 1000 \ ^{\circ}\text{C}$   $por \qquad volume \ relatif \ des \ porosités \ (\% \ Densité \ Théorique)$   $por_0 \qquad volume \ porosités \ de \ référence:$   $por_0 = 0,036 \quad \text{modèle} \ (2)$   $por_0 = 0,05 \quad \text{modèles} \ (3) \ et \ (4)$ 

# 1.1.3 - Effet du taux de combustion

Le modèle de LOKKEN et COURTRIGHT est utilisé pour simuler l'effet de l'accumulation des produits de fission dans la matrice sur la conductivité de l'oxyde combustible (ref /10/):

$$K(T, por, BU) = \frac{K(T, por)}{1 + k_6 K(T, por) \frac{BU}{T}}$$
(6)

k6 = 0,124avec taux de combustion local (MWj/tU) BU Т température locale (°K)

L'ensemble de la chaîne thermique du logiciel (conductibilité de l'oxyde, transfert thermique dans le jeu pastille/gaine, dépression radiale de flux) doit finalement être calibré sur des expérimentations telles que CONTACT et les données provenant du programme HBC (High Burnup Chemistry, ref (59)). Le coefficient k<sub>6</sub> peut servir de terme d'ajustement comme montré dans la référence /9/.

- 10 -

### 1.2 - Capacité calorifique

La capacité calorifique, non utilisée dans CYRANO où le calcul thermique se limite aux états stables, peut être évaluée par la formulation proposée dans MATPRO (ref /8/):

$$C_{p} = \frac{a_{1} \theta^{2} e_{T}^{\theta}}{T^{2} \left[ e_{T}^{\theta} - 1 \right]^{2}} + a_{2} T + \left( \frac{1}{2} O/M \right) \frac{a_{3} E_{d}}{R T^{2}} e^{-\frac{E_{d}}{R T}}$$
(7)

θ température de Debye (°K)

ED énergie d'activation des défauts de FRENKEL (J/mol) т température (°K)

Cp capacité calorifique à pression constante (J/Kg/°K)

O/M rapport stoechiometrique (-)

```
= 8.3143 \text{ J/mol/°K}
R
```

Le premier terme représente la capacité calorifique à volume constant (Cv), le deuxième est le terme linéaire liant Cv et Cp et le troisième représente la contribution des porteurs libres à haute température (paires de Frenkel).

Les valeurs prises pour les constantes sont:

- 002

 $a_1 = 296,7$ J/Kg/°K  $a_2 = 2,43 \ 10^{-2} \ J/Kg/^{\circ}K$  $a_3 = 8,745 \ 10^7 \ J/Kg$  $\theta = 535,3$ °K  $E_D = 1,577 \ 10^5 \ J/mol$ 

- PuO<sub>2</sub>  $a_1 = 347, 4$  J/Kg/°K  $a_2 = 3,95 \ 10^{-4}$  J/Kg/°K  $a_3 = 3,860 \ 10^7$  J/Kg  $\theta = 571$  °K  $E_D = 1,967 \ 10^5$  J/mol

La capacité calorifique du mélange (U-Pu)O2 est obtenue par pondération:

$$Cp = Cp_{UO_2} (1-q) + Cp_{PuO_2} q$$
 (8)

Une formulation simplifiée est proposée par GIBBY, LEIBOWITZ, KERRISK et CLIFTON (ref /106/), sans distinction de la nature de l'oxyde :

$$C_p = 194,4 + 0,2638 \text{ T} - 1,809 10^{-4} \text{ T}^2 + 4.749 10^{-8} \text{ T}^3$$
 (9)

T température (°K) Cp capacité calorifique à pression constante (J/Kg/°K)

Cette corrélation est utilisée dans le programme COMETHE pour des températures supérieures à 100 °C mais ne tient pas compte d'un éventuel écart à la stoéchiométrie théorique.

L'évolution de la capacité calorifique avec le taux de combustion est mal connue. Cependant la stoéchiométrie locale (O/M) est certainement le paramètre le plus influent. C'est pourquoi, dans l'attente des résultats du programme international HBC (High Burnup Chemistry, ref /59/) qui tente actuellement de mieux appréhender la variation locale du rapport O/M en fonction du taux de fissions et des conditions thermiques, nous proposons de retenir la formulation de MATERO.

С

Service IPN. Département SID 1, avenue du Général-de-Gaulle 92141 Clamart Cedex

ISSN 1161-0611

### - 12 -

### 2.- DILATATION THERMIQUE DE L'OXYDE

L'évaluation de la dilatation thermique de l'oxyde est primordiale puisqu'elle conditionne l'amplitude de la contrainte d'interaction pastillegaine. On s'accorde à penser que l'effet de l'irradiation sur cette dilatation est négligeable bien qu'aucune expérimentation n'ait pu le confirmer. Quoiqu'il en soit, cette dilatation est obligatoirement entachée d'une incertitude significative car la description de la fracturation et du repositionnement des fragments garde un caractère aléatoire.

### 2.1 - Formulation de la version CYRANO 2C (ref /120/)

La corrélation retenue dans la version 2C de CYRNO pour décrire la dilatation thermique linéaire de l'oxyde est basée sur la loi de CONWAY (ref /34/):

$$\Delta L/L = a_1 + a_2 T + a_3 T^2$$
(10)

Où  $a_1 = -1,723 \ 10^{-4}$   $a_2 = 6,797 \ 10^{-6}$   $a_3 = 2,896 \ 10^{-9}$ T température (°C)  $\Delta L/L$  allongement relatif (-)

En ce qui concerne les oxydes stoéchiométriques UO<sub>2</sub> et  $(U-Pu)O_2$ , un excellent accord existe entre les travaux de R.L.GIBBY (ref /107/) et ceux de LORENZELLI (ref /108/). Dès que l'oxyde s'écarte de l'état stoéchiométrique (O/M = 2), on observe un accroissement notable de la dilatation thermique. La référence /108/ montre une dépendance linéaire du coefficient de dilatation avec l'écart à la stoéchiométrie (x = 0/M - 2):

$$\Delta L/L(T, x) = \Delta L/L(T, 0) (1 + \beta(T) x)$$
(11)

où T est la température en °C. La fonction  $\beta$ (T) peut etre approchée dans le domaine de température (25 - 1500 °C) par l'équation:

$$\beta(T) = 4 - T/900$$
(12)

Les valeurs extrèmes calculées sont cohérentes avec celles obtenues par le CEA (2 <  $\beta$  < 4) (ref /108/).

## ~ 13 -

La longueur de référence est prise à 25°C.

# 2.2 - Corrélations formulées dans MATPRO

### 2.2.1 - Dilatation thermique de l'oxyde d'Uranium

~ ~ `

La corrélation retenue pour décrire la dilatation thermique linéaire de l'oxyde d'Uranium à l'état solide est basée sur de nombreuses données issues de la littérature (ref /13/, /14/, /24/, /31/, /33/, /34/, /61/, /66/ et /76/). Elle est de la forme:

$$\Delta L/L = a_1 + a_2 T + a_3 T^2 + a_4 T^3$$
(13)

 $\begin{array}{rcl} O\dot{u} & a_1 &= -4,972 \ 10^{-4} \\ & a_2 &= \ 7,107 \ 10^{-6} \\ & a_3 &= \ 2,581 \ 10^{-9} \\ & a_4 &= \ 1,140 \ 10^{-13} \\ & T & température (°C): \ 0 < T < T_f \\ & T_f & température de fusion \end{array}$ 

Dans l'hypothèse d'un changement local de phase, cette équation est cependant remplacée par la corrélation suivante (ref /31/):

$$\Delta L/L = \Delta L/L (Tf) + a_5 R$$
(14)

où a<sub>5</sub> = 3,096 10<sup>-2</sup> R fraction de combustible en phase liquide;

2.2 2 - Oxydes Mixtes (U-Pu)O2

La dilatation thermique linéaire de l'oxyde de Plutonium à l'état solide est exprimée par la corrélation suivante, basée sur les données des références /98/ et /20/:

$$\Delta L/L = b_1 + b_2 T + b_3 T^2 + b_4 T^3$$
(15)

Où  $b_1 = -3,9735 \ 10^{-4}$   $b_2 = 8,4955 \ 10^{-6}$   $b_3 = 2,1513 \ 10^{-9}$   $b_4 = 3,7143 \ 10^{-16}$ T température (°C), 0 < T < TfTf température de fusion.

.

EDF-DER Service IPN. Département SID 1, avenue du Général-de-Gaulle 92141 Clamart Cedex

# © Copyright EDF 1994 ISSN 1161-0611

3

1

### - 14 -

La dilatation thermique des oxydes mixtes est calculée à partir de la corrélation  $UO_2$  et de la corrélation  $PuO_2$  en pondérant sur le poids relatif de chaque oxyde. En cas de changement de phase, la dilatation thermique est supposée identique à celle de l'oxyde d'Uranium. Cette approximation se justifie compte tenu de la similarité de structure de l' $UO_2$  et de l' $(U-Pu)O_2$ .

En conclusion, nous proposons de reprendre l'ensemble des équations formulées dans MATPRO (ref /57/) du fait de la distinction entre les deux oxydes.

### - 15 -

3 - GENERATION DE PUISSANCE ET REPARTITION DES NOYAUX LOURDS

3.1 - Distribution radiale fine de puissance dans la pastille

La génération de puissance n'est pas uniforme dans :, pastille car le nombre de fissions instantanées est plus faible au centre par l'effet d'autoprotection de l'U<sup>238</sup> (ref /11/). La plus grande partie de la puissance est générée dans la périphérie de la pastille combustible où se crée une grande quantité de noyaux Plutonium. La couche superficielle de la pastille sur une profondeur de 100  $\mu$ m environ peut produire jusqu'à deux fois plus d'énergie par unité de volume que le reste du combustible. Le profil radial de puissance et son évolution au cours de l'irradiation conditionnent la distribution de température dans le combustible de deux façons principales:

- la génération de chaleur locale;

- l'évolution de la composition chimique du combustible et de sa densité, agissant sur la conductivité thermique locale.

#### 3.1.1 - Situation actuelle dans le logiciel CYRANO

La distribution radiale de puissance p(r) est évaluée par interpolation parabolique à partir d'abaques du type:

#### p(r) = f(r, enrch, Bu)

où rcoordonnée radialeenrchenrichissement initial du combustibleButaux de combustion moyen de la pastille

Les abaques ont été générés pour des enrichissements initiaux de 1,5, 3, 4,5, 6, 7,5 et 9 % en Uranium 235 et des taux de combustion moyens "pastille" variant de 0 à 80 GWj/tU par tranche de 5 GWj/tU.

# 3.1.2 - Développement d'une méthodologie EDF pour générer les abaques

Une méthodologie de calcul des distributions radiales fines de puissance dans la pastille a été développée depuis le début 1989 dans le cadre d'une collaboration entre les départements PhR et MTC. Cette méthodologie, est fondée sur un couplage des logiciels CYRANO, RESON et - 16 -

APOLLO:

- CYRANO pour les distributions de températures;

94NB00094

- RESON pour déterminer la répartition radiale des captures de l'Uranium 238 dans le combustible. Ce module a été acquis par le département PhR auprès de la société BELGONUCLEAIRE;

- APOLLO pour l'évaluation des distributions fines de puissance.

Le principe de la méthode consiste à utiliser des coefficients définis par zone de combustible pour ajuster les sections d'absorption de l'Uranium 238 afin de décrire l'effet d'autoprotection spatial. Ces coefficients, issus d'une comparaison RESON-APOLLO permettent de tenir compte de la variation spatiale de la capture résonnante de l'<sup>238</sup>U (les captures résonnantes se situent dans le domaine epithermique du spectre neutronique) (ref /26/).

La méthodologie développée à EDF (ref /19/) fera l'objet d'une qualification sur des spectrographies  $\gamma$  radiales de combustibles irradiés (UO<sub>2</sub>, (U-Pu)O<sub>2</sub>) et servira à regénérer de nouveaux abaques implantables dans le logiciel de thermomécanique du crayon combustible.

### 3.2 - Répartition des noyaux lourds

A partir de calculs APOLLO, une évaluation quantitative locale des noyaux lourds pourra être faite en relation avec le taux de fission local. Les principaux noyaux traités sont: <sup>235</sup>U, <sup>236</sup>U, <sup>238</sup>U, <sup>237</sup>Np, <sup>238</sup>Pu, <sup>239</sup>Pu, <sup>240</sup>Pu, <sup>241</sup>Pu, <sup>242</sup>Pu, <sup>242</sup>Am, <sup>243</sup>Am, <sup>242</sup>Cm et <sup>243</sup>Cm. Le tableau 3.1 rappelle les chaînes de filiation des transuraniens.

L'évolution des isotopes lourds est décrite dans APOLLO par une équation différentielle du premier ordre, intégrée numériquement:

$$dN_i/dt = C_i + L_k - A_i - L_i$$
(16)

- Ni nombre de noyaux de l'isotope i,
- Cj terme de formation par capture neutronique sur l'isotope j,
- $L_k$  terme de formation par filiation radioactive de l'isotope k vers l'isotope i,
- Ai terme de disparition de l'isotope i par absorption,
- Li terme de disparition par décroissance radioactive de l'isotope i.





1.3.2 Ebullition nucléée 1.3.3 Ebullition franche

### - 18 -

### 4 - DENSIFICATION ET GONFLEMENT SOLIDE

### 4.1 - Modèle de gonflement "solide"

Les résultats expérimentaux montrent que le gonflement du combustible sous l'action des produits de fission solides et pseudo-solides se traduit par une variation volumique linéaire avec le taux de fission local (ref /57/):

$$\Delta V/V_0 = \alpha * Fiss \tag{17}$$

où Fiss est le taux de fission cumulé (fissions/cm<sup>3</sup>)

La vitesse de gonflement ( $\alpha$ ) pour les combustibles REP varie, selon les différents auteurs, entre 0,13 et 0,54  $10^{-22}/(\text{fissions/cm}^3)$  (ref /4/,/46/,/57/,/58/ et /101/). Le meilleur ajustement sur l'ensemble des données disponibles provenant de combustibles standards des réacteur REP, nous conduit à recommander la valeur optimale  $\alpha = 0,30 \ 10^{-22}/(\text{fission/cm}^3)$ , soit  $\beta = 0,078 \ \text{%}/(\text{GWj/tM})$  si l'on exprime la formulation en fonction de l'épuisement massique:

$$\Delta V/V_0 = \beta * \rho_0 * BU \tag{18}$$

- BU épuisement local (GWJ/tM),
- p0 densité initiale relative exprimée en % de la densité théorique de l'UO2 (10,96 g/cm<sup>3</sup>)

### 4.2 - Modèle de densification

La densification du combustible en début d'irradiation résulte d'une continuation du frittage de la pastille sous l'action combinée de la température et de l'énergie apportée au réseau cristallin par les fissions. Dans un réacteur REP, la gamme de températures rencontrées dans le combustible, en fonctionnement normal, se situe entre 500 et 1100 °C. Les fissions sont alors la principale source d'énergie activant la mobilité des pores. C'est la raison pour laquelle la plupart des modèles de densification proposés sont exprimés en fonction du taux de fission uniquement.

### 4.2.1 - Modèles de CYRANO

Dans le modèle de densification initialement programmé dans le logiciel CYRANO, le taux de fission intervient comme opérande d'une tangente hyperbolique (ref /50/):

 $\Delta V/V_0 = -\Delta \rho_{\text{max}} / (\rho_0 + 1/2 \Delta \rho_{\text{max}}) \text{ TANH}(K (a_1 \chi + a_2 \chi^2 + a_3 \chi^3))$ (19)

Δp<sub>max</sub> représente la reprise de densité dans le test de stabilité thermique hors pile en fin de fabrication (24h à 1700 °C, stoechiomètrique). Cette variation de densité est supposée représentative de la densification maximale en pile (ref /7/)

| <u>a</u> 1 | $= 1,97 \ 10^{19} \ (radial) \ / \ 0,468 \ 10^{19}$   | (axial)  |
|------------|-------------------------------------------------------|----------|
| a2         | -4,18 (radial) / 1,57                                 | (axial)  |
| a3         | $= 4,57 \ 10^{-17}$ (radial) / 1.23 $10^{-19}$        | (axial)  |
| ĸ          | $= 2 \ 10^{-37}$ (radial) / 0,50 $10^{-37}$           | (axial)  |
| ρo         | = densité initiale (relatif DT.)                      |          |
| χ          | = Fiss/t <sup><math>\alpha</math></sup> (t en heures) |          |
| α          | = +0,55 (radial) / +0,44                              | (axial). |

Pour les oxydes mixtes, l'expression proposée par BELGONUCLEAIRE (ref /109/) a été reprise dans la version CYRANO 2C (ref /120/):

 $\Delta V/V_0 = - \operatorname{Amax} (1 - \exp(-BU/3000))$ (20)

où BU est le taux de combustion exprimé en MWj/tU. A<sub>nax</sub> est la valeur maximale de densification déterminée par regression linéaire logarithmique. Le SEPTEN recommande de retenir  $A_{max} = 1$  % DT pour les combustibles IDR.

Par contre, ces modèles ne représentent pas correctement le comportement des combustibles instables tels que ceux fabriqués à partir de poudres AUC. On entend par combustibles instables, ceux dont le test de stabilité thermique standard (1700 °C pendant 24 heures) donne une valeur de reprise de densité supérieure à 1.2 % de la densité théorique. Les examens post-irradiation ont montré que ces oxydes peuvent parfois ne pas reprendre leur densité initiale avant un taux de combustion de 40 GWj/tM. Pour traiter le cas de ces combustibles, le SEPTEN propose de prendre  $A_{max} = 2,3 % DT$ .

### - 19 -

# •

C

C

Pour simuler le comportement thermomécanique du crayon combustible en réacteur et vérifier le respect des critères, EDF a utilisé jusqu'à présent le logiciel CYRANO2 dérivé de la version III-E du logiciel COMETHE.

- 20 -

Quant à BELGONUCLEAIRE, il simule le retard au gonflement de ces oxydes par un terme d'accomodation:

> $(\Delta V/V_0)_A = - P_A (1 - \exp(-BU/BU_A))$ avec :  $P_A = a_1 P_0 - A_{max}$  , et  $BU_A = P_A/\beta$

 $\beta$  est la variation de volume due au gonflement par les =produits de fission solides et  $a_1 = 0,3$  est ajusté sur les résultats du programme PRIMO (ref /110/) où Amax est supposé égal à 2,1 % D.T. Po est la fraction initiale stable de porosités.

### 4.2.2 - Modèle de NRC adapté

Le modèle proposé par la NRC (ref /21/ et /75/), combiné au modèle de gonflement linéaire par les produits de fission solides, simule mieux l'ensemble des cinétiques des combustibles stables ou instables. Ce modèle suppose que le maximum de reprise de densité observé en pile est équivalent à la reprise de densité obtenue lors d'un test standard de C stabilité thermique (24h à 1700 °C),  $\Delta \rho_{max}$ . Cette hypothèse a été validée par les travaux rapportés dans les références /21/, /75/ et /113/. Le modèle est basé initialement sur une loi logarithmique pour la composante de densification:

> $\Delta \rho = 0.$ si BU < 20 MWj/tU  $\Delta \rho = A \ln(BU/20)$ si BU > 20 MWj/tU (22)

c

 $\Delta \rho \leq \Delta \rho_{\max}$ 

Il en résulte un modèle combiné de densification/ gonflement formulé de la façon suivante:

$$\frac{\Delta V}{V_0} = \frac{-A \ln \left(\frac{BU}{20}\right) (1 + \beta \rho_0 BU)}{\rho_0 + A \ln \left(\frac{BU}{20}\right)} + \beta \rho_0 BU$$
(23)

$$\frac{\Delta V}{V_0} = 0 \qquad \text{pour } BU < \text{Bulim} \tag{24}$$

(21)

• -

incidentels pour lesquels l'integrite u c us e oi e re gar i tout instant.

. .- 21 - .

C .

- c |

Les figures 4.1 et 4.2 comparent la prédiction des modèles présentés avec des mesures expérimentales, pour des valeurs du test de stabilité thermique ( $\Delta p_{max}$ ) respectives de 0.6 et 2.44 % D.T. (un combustible stable stable standard et un combustible instable). Les résultats expérimentaux sont extraits d'allongements de colonnes combustibles mesurés après irradiation.

(\*)



FIGURE 4.1 - COMPARAISON DES MODELES DE DENSIFICATION/GONFLEMENT SOLIDE PROPOSES SUR LA BASE D'UN TEST DE STABILITE THERMIQUE DE 0.6 % D.T.



FIGURE 4.2 - COMPARAISON DES MODELES DE DENSIFICATION/GONFLEMENT SOLIDE PROPOSES SUR LA BASE D'UN TEST DE STABILITE THERMIQUE DE 2.44 % D.T.

•

ī. ī

-7

. · ·

### 5 - FORMATION DES PRODUITS DE FISSION

L'évaluation de la répartition des noyaux lourds et des produits de fission a plusieurs objectifs: calibrer les calculs de dépressions radiales de flux, accéder à une évaluation des équilibres chimiques locaux sur la base des états chimiques connus pour chaque élément de fission (tableau 5.1) et quantifier la concentration des isotopes corrosifs stables ou méta-stables susceptibles d'être relâchés.

Actuellement, les produits de fission traités par le logiciel CYRANO se limitent aux isotopes stables du Xénon et du Krypton. Il est à noter que le Krypton est formé en quantité sept à dix fois moindre que le Xénon.

Sachant que chaque fission produit, pour un isotope i donné,  $Y_{fi}$  atomes associés à une énergie utilisable E, le nombre de moles ( $E_{qmi}$ ) par unité d'énergie qui sera créée est:

$$E_{qmi} = \frac{Y_{fi}}{A} \times \frac{f}{E}.$$
 (25)

Ecmi Moles/joules

A Nombre d'Avogadro (6,023 10<sup>23</sup> mole<sup>-1</sup>)

f facteur de conversion (6,27 1012 MeV/joule)

E énergie libérée par fission ( $\approx$  195 MeV).

 $Y_{fi}$  est aussi appelé rendement de fission. Il dépend de la nature de l'isotope fissile (<sup>235</sup>U, <sup>238</sup>U, <sup>239</sup>Pu,...). On distingue:

- le rendement indépendant  $(Y_I)_i$  qui est la probabilité d'apparition par fission de l'isotope i;

- le rendement cumulé  $(Y_c)_i$  qui est le nombre par fission de noyaux de l'isotope i, de masse atomique A apparaissant directement par fission plus le nombre de noyaux qui vont apparaître par désintégration d'autres isotopes de masse atomique A ou A+1.

Se référant aux gaz de fission (Xe + Kr), on a  $(Y_c)_i = 0,31$  atome/fission pour l'Uranium 235.

Le nombre d'atomes Bi formés par seconde dans le combustible pour un isotope i peut aussi s'évaluer à partir de la puissance dégagée:

 $Bi = 3,27 \ 10^{10} P_{(Y_I)}$ 

(26)

P puissance en Watt (Y<sub>I</sub>)<sub>i</sub> rendement de fission indépendant 3,27 10<sup>10</sup> nombre de fissions par seconde correspondant à une puissance de 1 Watt en supposant que l'énergie libérée par une fission est de 195 MeV.

Pour évaluer de façon plus précise et plus détaillée la formation des produits de fission gazeux et corrosifs, il conviendra:

a/ d'établir la liste des isotopes à prendre en compte, par exemple:

Krypton <sup>82</sup>Kr, <sup>83</sup>Kr, <sup>83</sup>MKr, <sup>84</sup>Kr, <sup>85</sup>MKr, <sup>86</sup>Kr, <sup>87</sup>Kr, <sup>88</sup>Kr, <sup>89</sup>Kr
Xénon <sup>131</sup>MXe, <sup>131</sup>Xe, <sup>132</sup>Xe, <sup>133</sup>Xe, <sup>134</sup>Xe, <sup>135</sup>Xe, <sup>136</sup>Xe
Césium <sup>133</sup>Cs, <sup>135</sup>Cs, <sup>136</sup>Cs, <sup>137</sup>Cs
Iode <sup>127</sup>I, <sup>129</sup>I, <sup>131</sup>I, <sup>133</sup>I, <sup>135</sup>I
Brome <sup>82</sup>Br, <sup>83</sup>Br, <sup>84</sup>Br

b/ de considérer les schémas de filiation associés (tableau 5.2); un produit de fission peut être produit soit directement par fission ou par décroissance radioactive d'un produit de fission père;

c/ de préciser les données de base: constante de décroissance et rendement de fission pour les principaux noyaux fissiles (tableau 5.3, ref /87/).

Une réflexion est en cours avec les neutroniciens pour définir la forme du module destiné à évaluer localement les isotopes formés et se donner ainsi ultérieurement la possibilité d'évaluer la stoechiomètrie locale à partir des diagrammes d'équilibre thermodynamiques des différentes phases en présence. Il est à noter qu'à ce jour, aucun logiciel de thermomécanique du crayon combustible ne simule ce genre de démarche.

- 25 -



TABLEAU 5.1 - ETAT CHIMIQUE DES DIFFERENTS PRODUITS DE FISSION PRESENTS DANS LES OXYDES COMBUSTIBLES



- 27 -

TABLEAU 5.2 - CHAINES DE DECROISSANCE DES PRODUITS DE FISSION

| ENTS                |                      |               |               | <u> </u>      | ~~              |                  |               |                 |               | ~              |               | ~~~          | ]             |  |
|---------------------|----------------------|---------------|---------------|---------------|-----------------|------------------|---------------|-----------------|---------------|----------------|---------------|--------------|---------------|--|
| CIFFERI<br>CTIALE L |                      | 14<br>E       |               | < 10-2        | 0.1             | 1.7<br>0.8       | 15.9<br>7.8   | 9.7<br>3.7      | - 5 · 6       | 0.3            | 9.0<br>0.6    | < 10-2       |               |  |
| POIDS DES           |                      | C FP = 0.98   |               | H )           | - S#<br>- S#    | ¥                | ¥ 5           | 23              | ۳<br>۲<br>۲   | 2 Z (<br>)     | 5 3 3<br>     | ª+`          |               |  |
| ELATIVE EN          |                      | - 100 AND 20  |               | ( 4-01 >      | 0-1 )<br>< 0-0× | 1.1              | 2.6<br>1.4    | 10-7            | 10.1          | 1.1            | <b>3.9</b>    | 1 2.0        |               |  |
| NTRATION R          | UITS DE F1           | ហ៊ីដ<br>ភូន   | ł             | +             | C Se            | 2<br>2<br>2<br>2 | ۲ S           | r 2<br>85<br>85 | to<br>Tc      | 2 H            | 4 PD          | 8            |               |  |
| CONCE               | PROD                 |               |               | L             |                 |                  |               |                 |               |                |               |              | -             |  |
|                     | 6 R                  | 0.550429      | 181061-0      | 0.949696      | 1.322630        | 0.621223         | 3.744998      | 6.929547        | 6.9:2876      | 6.312209       | 7.466496      | 4.389651     | S.453676      |  |
| nts cumilê:         | 8 0                  | 1,061625      | 0.231125      | 1.760819      | 1.062771        | 0.237190         | 3. 294866     | 6. 168159       | 6.168181      | 6.A40846       | 6.655749      | 5.9-3994     | 101010.0      |  |
| Render              | 15                   | 1.510675      | 0.288253      | 2.542062      | 3.583954        | 0.354400         | 2,835197      | 6.765345        | 670491        | 6.4064BC       | 6.633370      | 6.283569     | ددورات.ه      |  |
| 511                 | a<br>2               | 0.008561      | 0.0104080     | 0,1699460     | 0.687971        | 0.416302         | 0.009527      | 0.958488        | 0.009595      | 1.512909       | 0.525322      | 4.055074     | 0.362085      |  |
| its indépend        | •                    | 0,000115      | 0.000115      | 0.034126      | 0, 160388       | 0.007617         | 1.22 E-5      | 0.009220        | 1,11 E-5      | 0.65345        | 0.008755      | 1,532700     | 0.060807      |  |
| Rendemen            |                      | 0.015389      | 0.003050      | 0.340438      | 1.075064        | 9(0)1/9036       | 0.004102      | 0. 165051       | 271600.0      | 3:000.5        | 0.112215      | 4.669665     | 0.309145      |  |
|                     | λ (s <sup>-1</sup> ) | 4.2977859 E-5 | 2.0464214 E-9 | 1.5140039 E-4 | 6.8764595 E-S   | 6.6854491 E-6    | 9.9782574 E-7 | 9.256778 E-6    | 1.5165469 5-6 | 2.87373415 E-5 | 2.10¢2695 E-5 | 8.157536 E-4 | 3.5877153 E-4 |  |
|                     | Isotopes             | Kr 85 m       | Kr 85         | Kr 87         | 88 JJ           | Te 151 B         | 1 131         | 1 135           | Xe 115        | 1 135          | Xe 135        | Xe 138       | C3 138        |  |

TABLEAU 5.3 - RENDEMENTS INDEPENDANTS ET CUMULES POUR LES PRINCIPAUX ISOTOPES LOURDS:  $^{235}\mathrm{U},~^{239}\mathrm{Pu}$ 

- 28 -

# 6 - RELACHEMENT DES PRODUITS DE FISSION GAZEUX

c |

La cinétique de diffusion des produits de fission gazeux dans la matrice combustible est régie principalement par la température mais aussi par un grand nombre d'autres paramètres tels que la porosité ouverte, la répartition spectrale et spatiale des porosités et des défauts cristallins, la structure du matériau, la stoéchiométrie locale, etc...(ref /28/,/29/ et /84/).

- 29 -

Cette diffusion peut être soit activée thermiquement, soit par l'énergie cinétique des produits de fission (reculs ou chocs). La seconde source d'énergie est pratiquement athermique et est active sous irradiation quelle que soit la température locale du combustible.

Le processus de relâchement, relativement complexe, est souvent modélisé comme se produisant en deux temps (ref /57/ et /62/). Les produits de fission gazeux diffusent vers les joints de grains où ils sont piégés. Au fur et à mesure que les gaz s'accumulent, les bulles s'interconnectent et une proportion de plus en plus grande de ces gaz diffusent vers les surfaces libres (porosités ouvertes et fissures). Ils sont alors relâchés dans les volumes libres (réservoir supérieur et jeu pastille/gaine).

Le solide dans lequel les gaz diffusent peut être représenté par une sphère équivalence dont le rayon dépend du rapport surface/volume, celui-ci évoluant dans le temps avec la porosité et la fissuration. Le joint de grain est un piège de grande efficacité pour les produits de fission gazeux, conduisant à une accumulation des atomes relâchés par les grains, sous forme de bulles. La probabilité de remise en solution dans les grains si elle est faible, est cependant non nulle mais difficilement quantifiable expérimentalement.

Les chapelets de bulles sur les surfaces de grains grossissent progressivement jusqu'à s'interconnecter à longue distance, ouvrant des passages vers la surface externe. Le modèle de CAPART (ref /27/) modélise ce phénomène par une évolution du rayon "a" de la sphère de diffusion équivalente en fonction de la surface spécifique (surface totale en communication avec l'extérieur):

1/a = S/3V

l'isotope i, terme de disparition de l'isotope i par absorption, Ai

terme de disparition par décroissance radioactive de l'isotope i.

L

- 30 -

La porosité ouverte initiale tend à disparaître partiellement sous l'effet de la densification. Par contre elle augmente globalement sous l'action de l'interconnection des bulles dans les joints de grains, le gonflement par les produits de fission gazeux à forte température et la micro-fissuration pendant les transitoires rapides de température. Cette du rapport S/V reste cependant difficile à quantifier évolution expérimentalement.

En théorie, l'équation différentielle décrivant la diffusion des molécules d'un gaz stable dans une sphère équivalente de rayon "a", avec prise en compte de la probabilité de piégeage et de remise en solution par une population de défauts stables, considérés comme tous identiques, est de la forme:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \beta \dot{F} + \frac{1}{r^2} D \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{\partial C}{\partial r} \right) - g C + b M$$
<sup>(27)</sup>

- coefficient de diffusion réel du gaz (cm<sup>2</sup>/s), OÙ D
  - probabilité de piégeage par unité de volume (-), g
  - b probabilité de remise en solution des gaz piégés (-),
  - population d'atomes piégés à l'instant t par unité de volume М  $(moles/cm^3)$ ,
  - С population d'atomes libres à l'instant t par unité de volume,  $(moles/cm^3)$ ,
  - Ė taux de fission instantané (fission/cm<sup>3</sup>/s),
  - ß taux de production d'atomes de gaz par fission. (-)
  - distance par rapport au centre de la sphère où l'on évalue la r variation de concentration (cm)
  - t temps (s)

L'équilibre entre les gaz piégés et libres dans le réseau se traduit par:

$$\frac{\partial M}{\partial t} = g C - b M$$
(28)

Les conditions aux limites sont les suivantes:

C(a,t) = M(a,t) = 0.(29)

### 6.1 - Modèle de CAPART

Le modèle actuellement utilisé dans la version CYRANO 2C (ref /120/) est celui proposé par CAPART (ref /27/), fourni par Belgonucléaire dans le cadre des échanges sur le combustible à oxydes mixtes. La résolution des équations de la diffusion montre qu'il est possible de définir un coefficient de diffusion équivalent ou "effectif" applicable à la quantité de moles C + M présentes dans le combustible à un instant donné:

$$D_{\text{eff}} = \frac{Db}{b+g}$$
(30)

Dans cette expression, le coefficient de diffusion D est la somme de deux coefficients représentant respectivement une diffusion activée thermiquement et une diffusion activée par l'irradiation:

$$D = D_t + D_{irr} = D_0 e^{-\frac{4.18 A}{RT}} + \gamma \dot{F}$$
(31)

où

2

C

2

C

 $\begin{array}{l} D_0 = 0,1 \ \mathrm{cm}^2/\mathrm{s} \\ \mathrm{R} = 8,31432 \ \mathrm{J/mole/K} \\ \gamma = 2 \ 10^{-30} \ \mathrm{cm}^5 \\ \mathrm{T} \ \mathrm{température} \ \mathrm{(K)} \\ \mathrm{\dot{F}} \ \mathrm{taux} \ \mathrm{de} \ \mathrm{fissions/cm}^3/\mathrm{s}) \end{array}$ 

A est une énergie d'activation, fonction de la température et du taux de combustion; elle s'exprime en calories/mole. Pour un taux de combustion inférieur à 30630 MNj/tM, on prend:

Pour un taux de combustion local supérieur ou égal à 30630 MWj/tM et une température locale inférieure à 950 °C, on prend:

$$A = 86000 - 21500 \left(1 - e^{-\frac{BU - 30630}{10000}}\right)$$
(33)

Pour un taux de combustion local supérieur ou égal à 30630 MWj/tM et une température locale supérieure à 950 °C, on prend la valeur maximum entre les deux expressions suivantes:

$$\frac{A}{T} = \max \left\{ \frac{\frac{86000}{T}}{\frac{86000 - 21500 (1 - e^{-\frac{BU - 30630}{10000}})}{950}} \right\}$$
(34)

Par ailleurs, la probabilité de piégeage par unité de volume peut s'exprimer en fonction du libre parcours moyen L (cm):

- 31 -

. . .

$$g = \frac{D}{T^2}$$

Si l'on suppose que la probabilité de remise en solution b est une fonction lineaire du taux de fission par un coefficient  $\mu$ , la formulation du coefficient de diffusion équivalent devient:

- 32 -

$$D_{eff} = \frac{1}{\frac{1}{D} + \frac{g}{Db}} = \frac{1}{\frac{1}{D_t + \gamma \dot{F}} + \frac{1}{\mu L^2 \dot{F}}}$$
(36)

Cependant, pour tenir compte du fait qu'à fortes températures, le coefficient de diffusion équivalent observé expérimentalement est supérieur à ce que prédirait la formule ci-dessus, le deuxième terme du dénominateur a été corrigé de façon empirique dans le modèle de CAPART pour simuler l'effet de saturation des pièges. Le coefficient de diffusion effectif s'exprime donc finalement ainsi dans ce modèle:

$$\frac{1}{D_{\text{eff}}} = \frac{1}{D_t + \gamma \dot{F}} + \frac{1}{\epsilon \dot{F} + \lambda \left[\frac{24000 \text{ G}_a}{\mathcal{N}_a}\right]^2 D_t}$$
(37)

С

С

σù

Dans le cas de la simulation du comportement des oxydes mixtes, le taux de fission utilisé dans l'expression du coefficient de diffusion est multiplié par un facteur d'hétérogéneité égal à 1,3 (ref /109/).

A partir du rayon de la sphère équivalente et du coefficient de diffusion effectif, l'algorithme de CAPART (ref /27/) permet de calculer l'évolution au cours du temps du nombre total de moles,  $G_a$  (Ga = C + M) présentes dans le combustible par unité de volume:

$$G_{a}(t+\Delta t) = \frac{\beta \dot{F} a^{2}}{15 D_{eff}} R(\Delta \alpha) + G_{a}(t) \frac{R(\alpha + \Delta \alpha) - R(\Delta \alpha)}{R(\alpha)}$$
(38)

Le paramètre  $\alpha$  est défini à partir de la relation différentielle suivante:

` a

(35)
leur densité initiale avant un taux de combustion de 40 GWj/tM. Pour traiter le cas de ces combustibles, le SEPTEN propose de prendre  $A_{max} = 2,3 %$  DT.

- 33:-

 $\frac{d\alpha}{dt} = \pi^2 \frac{D_{eff}}{a^2}$ (39)

<u>\_\_\_</u>

et  $\Delta \alpha$  s'obtient par intégration de cette équation sur le pas de temps considéré. La fonction R( $\alpha$ ) est définie par un développement en série:

$$R(\alpha) = \frac{90}{\pi^4} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1 - e^{-\alpha n^2}}{n^4}$$
(40)

Cette série est approchée par les approximations suivantes suivant la valeur prise par  $\alpha$ :

2

5

$$R(\alpha) = \frac{15}{\pi^2} \alpha \left[ 1 - \frac{4}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\frac{\alpha}{\pi^2}} + \frac{3}{2} \frac{\alpha}{\pi^2} \right] \qquad \text{pour } \alpha < 0,1$$
  

$$R(\alpha) = 1 - \frac{90}{\pi^4} e^{-\alpha} \qquad \qquad \text{pour } \alpha \ge 0,1 \qquad (41) \text{ et } (42)$$

De plus, pour les forts taux de combustion, ce modèle a été complété par un terme correctif prenant en compte l'augmentation du relâchement des gaz de fission par les effets athermiques (recul ou éjection), principalement dans la périphérie de la pastille où les fissions de noyaux Plutonium deviennent prépondérantes. Ceci avait été particulièrement mis en évidence sur le combustible des crayons irradiés cinq cycles dans la tranche 2 de Fessenheim (assemblage FEC57). Le terme correctif a été exprimé de la façon suivante:

$$\Gamma = 50 \left[ 1 + \tanh(0.04187 \text{ (BU - 118)}) \right]$$
(43)

où le taux de combustion est exprimé en 10<sup>3</sup> MWJ/tM. Le modèle complet utilisé dans la version 2C du logiciel CYRANO est donc finalement ainsi formulé:

$$G_{a}(t+\Delta t) = \frac{\beta \dot{F} a^{2}}{15 D_{eff}} R(\Delta \alpha) + G_{a}(t) \frac{R(\alpha + \Delta \alpha) - R(\Delta \alpha)}{R(\alpha)} - \beta \dot{F} \Delta t \left[ \Gamma(Bu) + \frac{1}{\Delta Bu} \int_{Bu}^{Bu + \Delta Bu} \Gamma(x) dx \right]$$
(44)

Le rayon de la sphère équivalente utilisée dans ce modèle, prend en compte la porosité ouverte initiale du combustible ainsi que la fracturation et un éventuel gonflement gazeux local survenu depuis le début de l'irradiation. Le rayon de la sphère équivalente se traduit donc par:

(24)

(45)

. . . . . . .

$$a = \frac{3}{\frac{S}{V}} = \frac{3}{\frac{6.6}{r_p} + 4.5 \ 10^5 \left[ P_{ouv,i} + \left( \frac{\Delta V}{V_0} \right)_{gaz} \right]^2}$$
avec  $r_p$  rayon de la pastille (cm)

С

- 34 -

Pouv,i volume relatif de porosités ouvertes initiales

accroissement de volume d'au gonflement gazeux

On voit donc que ce modèle phénoménologique comporte un certain nombre de paramètres ajustables et parfois difficilement maîtrisables lorsqu'on s'écarte des domaines de validation. Certains autres logiciels utilisent des modèles beaucour plus empiriques mais, comme cela a été vu lors

utilisent des modèles beaucoup plus empiriques mais, comme cela a été vu lors de comparaisons, tous aussi performants si ce n'est plus pour prédire le relâchement à trés fort taux de combustion.

### 6.2 - Modèle empirique de Baron-Maffeis (ref /7/)

Le modèle empirique de la référence /7/ se décompose en deux termes, l'un représentant le relâchement activé thermiquement, l'autre le relâchement athermique (reculs et éjections).

### 6.2.1 - Relâchement thermique

 $\begin{pmatrix} \underline{\Delta V} \\ V_0 \end{pmatrix}_{gaz}$ 

L'ensemble des résultats expérimentaux montre un accroissement du relâchement des gaz de fission avec le taux de combustion, crés rapide en début d'irradiation, diminuant progressivement pour devenir assez stable à partir de 25 GWj/tM. Cet effet est expliqué par la saturation progressive des joints de grains et l'ouverture de ceux-ci vers les surfaces extérieures.

Le principe de ce modèle est donc de représenter par une fonction simple le taux de remplissage des joints de grains. La recirculation des gaz dans ces joints de grains dépend de la température (mobilité) et du taux de combustion, représentatif de la population d'atomes de gaz présents dans le combustible.

La fraction de gaz relâchée est alors le produit entre le terme résultant de la diffusion dans une sphère équivalente ( $F_{diff}$ ) et le

terme représentant la probabilité de relâchement lorsque les molécules de gaz arrivent dans le joint (Fjoints):

- 35 -

$$F_{gr} = F_{diff} \cdot F_{joints}$$
 (46)

Le premier terme est représenté par un modèle de diffusion comme celui de BOOTH (ref /114/ et /115/) avec pour solutions:

pour t 
$$\leq \frac{a^2}{\pi^2 D}$$
  $F_{diff} = 6 \sqrt{\frac{Dt}{\pi a^2}} - 3 \frac{Dt}{a^2}$  (47)

pour t > 
$$\frac{a^2}{\pi^2 D}$$
  $F_{diff} = 1 - \frac{6}{\pi^2} \left[ e^{-\frac{\pi^2 D t}{a^2}} + \frac{1}{4} e^{-\frac{4\pi^2 D t}{a^2}} \right]$  (48)

où t est le temps(s), a la taille moyenne de grain (cm) qui peut être multiplié par un coefficient d'ajustement et D le coefficient de diffusion réel du gaz dans la matrice combustible (cm<sup>2</sup>/s). Ce modèle reprend le coefficient de diffusion du Xénon donné par TURNBULL dans la référence /116/ en fonction de la température locale et du taux de fission local:

$$D = 7,6\ 10^{-6}\ e^{-\frac{35000}{T}} + 1,41\ 10^{-18}\ \sqrt{\dot{F}}\ e^{-\frac{13800}{T}} + 2\ 10^{-30}\ \dot{F}$$
(49)

où T température (°K)

5

**F** Taux de fission local (fissions/cm<sup>3</sup>/s)

En ce qui concerne la recirculation dans les joints de grains, le coefficient empirique proposé par le modèle est une tangente hyperbolique fonction de la température et du taux de combustion. Il est de la forme:

$$F_{joints} = \frac{Tanh \left[ \alpha \frac{Bu}{45000} - \beta \right] + Tanh \left[ \beta \right]}{1 + Tanh \left[ \beta \right]}$$
  

$$\alpha = 0,0213 \text{ T} - 24,22$$
(50)  

$$\beta = -0,0052 \text{ T} + 10,87$$

où T température moyenne locale du combustible (°K) Bu Taux de combustion moyen local (MWj/tM)

Cette fonction traduit l'évolution de la température seuil de relâchement des gaz de fission avec le taux de combustion observée expérimentalement; elle tend vers une valeur comprise entre 1000 et 1050 °C à fort taux de combustion (au delà de 30 GWj/tM), cohérente avec les seuils de températures évalués à partir des résultats du "High Burnup Effect Program" (ref /59/).

- 36 -

· · · · · ·

Ce modèle a montré sa capacité à prédire l'ordre de grandeur des relâchements observés dans des combustibles UO2 et (U-Pu)O2 jusqu'à de très forts taux de combustion (ref /7/).

والمراجع والمرجع والمرجع والمرجع

6.2.2 - Relâchement athermique

inférieure à 900 °C, le principal mécanisme de relâchement est le recul par la fission (éjection due aux collisions en chaîne sous l'effet de l'énergie cinétique des produits de fission).

Ce phénomène est la principale source de relâchement dans les crayons combustibles REP (ref /8/ et /28/) en fonctionnement normal. La fraction de gaz relâchée dépend du taux de fission et du volume local de porosités ouvertes. Dans les zones froides, le volume de porosités ouvertes à un instant donné peut être représenté avec une bonne approximation par le taux de combustion si l'on suppose qu'il évolue linéairement avec celui-ci. Un modèle empirique est suffisant pour évaluer correctement le taux de relâchement des gaz stables. La formulation proposée par la reférence /57/, par exemple, peut être utilisée:

 $F_{ath} = a_1 \exp(a_2 BU^2) + a_3 \ln(0, 9 + por_0)$ 

(51)

### 6.3 - Conclusions

Les deux types de modèles ont été programmés dans le logiciel. Les modèles empiriques répondent plus au besoin d'utilisateurs occasionels, car plus faciles à maîtriser. Par contre, pour l'analyse fine d'expérimentations en terme de thermique et de relâchements, certains pensent qu'un modèle tel que celui de CAPART est mieux adapté. Cela reste cependant à démontrer car le phénomène n'est pas limité à un aspect diffusion. L'avantage du deuxième modèle est qu'il prend en compte les effets de saturation de la matrice

С

combustible. Par ailleurs, il est à noter qu'en fonctionnement normal de classe l le relâchement reste majoritairement athermique compte tenu des températures maximales atteintes.

La performance d'un modèle de relâchement ne peut être dissociée de la chaîne thermique utilisée pour les calculs de température. Particulièrement, l'hypothèse faite sur l'évolution du transfert thermique dans le combustible et le jeu pastille-gaine avec le taux de combustion moyen, influera beaucoup sur le terme correctif d'épuisement introduit dans le modèle de relâchement des gaz de fission.

- 37 -

Ē.

### 7 - GONFLEMENT PAR LES PRODUITS DE FISSION GAZEUX

Le gonflement du combustible sous l'action des produits de fission gazeux résulte principalement de l'accroissement du nombre de bulles de gaz dans le solide et surtout aux joints de grains. Les mécanismes provoquant ce genre de gonflements sont complexes (ref /83/). C'est la raison pour laquelle les logiciels de thermomécanique du combustible se limitent à des corrélations empiriques simples pour représenter le gonflement libre de l'oxyde, dépendant des deux paramètres principaux: la température et le taux de fission.

Au delà d'un seuil situé d'après les observations expérimentales vers 1300 °C mais évoluant certainement avec le taux de combustion, la croissance des macropores s'accélère, augmentant significativement le gonflement du combustible (ref /11/). Des modélisations empiriques ou semi-empiriques décrivent le gonflement macroscopique dû à la croissance des bulles intergranulaires entre 1100 et 1700 °C. Nous en avons retenues deux.

### 7.1 - Modèle COMETHE utilisé dans CYRANO 2C (ref /120/)

Le modèle de gonflement gazeux actuellement utilisé dans le logiciel CYRANO est dérivé de celui de Belgonucléaire (ref /62/ et /109/). La variation locale de volume par gonflement gazeux,  $v = (\Delta V/V_0)_{gaz}$  est décrite par l'équation différentielle suivante:

$$\frac{\mathrm{d}v}{\mathrm{d}t} = k_0 \left(\frac{G_0}{G}\right) \frac{D_{\mathrm{eff}}}{v}$$
(52)

cù  $k_0 = 1,63 \ 10^8 \ cm^{-2}$ ,  $G_0 = 4 \ \mu m$  et G est la taille de grain moyenne. Le coefficient  $D_{eff}$  est celui calculé dans le modèle de relâchement des gaz de fission décrit précédemment au chapitre (6.1). L'intégration de cette équation permet de calculer la variation de volume par gonflement gazeux au cours d'un incrément de temps.

Le calcul est activé pour des niveaux de températures ne pouvant être atteints que lors de transitoires de puissance.

De plus, pour prendre en compte l'effet de la pression hydrostatique  $(P_h)$ , on apporte la correction suivante:

# - 38 -

- 5

- .A

$$v(t+\Delta t) = \frac{v(t) + \Delta v}{1 + \frac{238}{270} - \frac{P_h \Delta B u}{a} + \frac{\Delta v}{V_{max}}}$$

Ph en GPa, ΔBu en MWj/tM

Le paramètre "a" a été ajusté pour ne pas avoir de réduction sensible du gonflement gazeux pour des pressions hydrostatiques de l'ordre de la pression interne. Ainsi le paramètre "a" est pris égal à 50 GPa MWj/tM.

La grandeur Vmax qui représente le gonflement maximum sous l'effet des produits de fission gazeux est définie par une fonction de la température:

$$V_{\text{max}} = 0.06 \left( 1 + \frac{T - 1400}{300 + [T - 1400]} \right)$$
(54)

T en degré C

### 7.2 - Modèle proposé dans MATPRO

Le modèle proposé par MATPRO (ref /57/) simule un changement de volume en conditions isothermes et hors contraintes entre 1000 et 2000 K, considérant qu'au delà de 2000 K, la croissance colonnaire des grains annihile l'effet du gonflement gazeux. Ce modèle a été corrélé sur les variations de volumes rapportées par CHUBB (ref /117/) et TURNBULL (ref /118/). La formulation donnant la vitesse de gonflement en fonction de la température est la suivante:

$$S_{\alpha} = a_1 (2800 - T)^{\alpha} \exp(a_2 (2800 - T))$$
 (55)

 $\begin{array}{rcl} c\dot{u} & T & température locale (°K) \\ a_1 & = 8,8 \ 10^{-30} \\ \alpha & = 11,73 \\ a_2 & = -0,0162 \\ S_g & (/(fissions/cm^3)) \end{array}$ 

En prenant en compte l'accroissement de la population des moles de gaz sous l'effet du taux de combustion, la variation relative de volume  $(/10^{20} fiss/cm^3)$  est alors donnée par:

$$(\Delta V/V)_{g} = S_{g} \Delta BU \exp(a_{3} BU)$$
(56)

- 39 -

.....

(53)

avec BU taux de fission (fiss/cm<sup>3</sup>),  $\Delta$ BU nombre de fissions/cm<sup>3</sup> cumulé depuis l'initiation du gonflement gazeux (fiss/cm<sup>3</sup>)  $a_3 = -8,0 \ 10^{-21}$ 

Le choix entre ces deux modèles pourra être fait ultérieurement car il sera nécessaire de faire au préalable une étude de leurs performances respectives. Dans un premier temps, nous proposons de retenir le modèle actuellement dans CYRANO puisqu'il prend en compte l'effet de la pression hydrostatique. Il ne tient cependant pas compte d'une éventuelle évolution avec le taux de combustion contrairement au modèle proposé dans MATPRO.

- 40 -

# 8 - RESTRUCTURATION DU COMBUSTIBLE

Lorsque le combustible REP est soumis à des excursions de puissance, la température - atteinte par l'oxyde peut initier une restructuration du matériau. Pour des températures intermédiaires (de 1200 à 1800 °C environ), la croissance granulaire est équiaxe. Au delà, les gradients radiaux de températures sont tels qu'il s'établit un régime d'évaporation - condensation conduisant à une croissance colonnaire au centre de la pastille avec formation d'un trou central.

瘛

L'évaluation de l'évolution de ce paramètre dans le combustible présente deux intérêts:

~ la taille de grain locale est un paramètre important pour simuler le comportement visco-plastique de l'oxyde combustible dans les zones chaudes (ref /17/)

- la taille du grain est utilisée lors des examens post-irradiation comme un marqueur de la température maximale vue par le combustible. On part du principe que la cinétique de croissance n'est pas altérée pendant l'irradiation, ce qui est contestable. Cependant, ne disposant pas pour l'instant de mesures fiables de températures à fort taux de combustion, il est bien utile d'évaluer ces températures par recoupement entre le taux local de relâchement des gaz et la croissance granulaire. Cela permet de contrôler l'ordre de grandeur des températures évaluées par les logiciels.

### 8.1 - Croissance équiaxe

Il existe un certain nombre de modélisations dans la littérature se basant sur des essais hors pile. Les corrélations proposées sont fonction de la température et du temps comme le modèle proposé dans MATPRO (ref /57/).

Il est cependant admis que la croissance sous irradiation est différente de celle observée en laboratoire compte tenu du rôle inhibiteur des bulles de gaz qui se forment aux joints de grains aprés un certain temps en réacteur.

Le modèle proposé par AINSCOUGH (ref /3/), et utilisé par le logiciel COMETHE, introduit la notion de taille de grain limite, fonction de la température locale. La cinétique de croissance se traduit alors par

- 41 -

### TABLEAU 5.3 - RENDEMENTS INDEPENDANTS ET CIMULES POUR LES PRINCIPAUX ISOTOPES LOURDS: 2350, 2380, 239pu

- 42 -

l'équation suivante:

 $dG/dt = k \{1/G - f(BU)/Gm\}$ 

où G taille de grain (µm)

Gm taille de grain limite (µm):

 $Gm = 2,23 \ 10^3 \exp(-7620/T) \tag{58}$ 

# $k = 5,24 \ 10^7 \ \exp(-2,67 \ 10^5/(8,314 \ T))$

T température (°K)

f(BU): fonction du taux de combustion qui, d'une part limite l'effet de la taille de grain maximale, d'autre part, inclue une influence du gonflement gazeux lorsque celui-ci dépasse 0.1 %. Cette fonction reste donc à définir suivant le modèle de gonflement gazeux qui sera sélectionné.

### 8.2 - Croissance de grains colonnaire

Dans les conditions de fonctionnement REP, il est rare d'atteindre des températures conduisant à ce type de restructuration. C'est la raison pour laquelle de nombreux logiciels en font abstraction. Le point le plus délicat concernant ce type de croissance granulaire est la cinétique du phénomène. Les travaux de NICHOLS (ref /78/,/79/ et /80/) ont abouti a une corrélation basée sur la migration de porosités dans un gradient thermique. Cette modélisation a été adaptée dans le logiciel COMETHE (ref /62/). Elle suppose que le temps de déclenchement de la croissance colonnaire est lié au temps théorique (t<sub>d</sub>) nécessaire pour densifier, au niveau de température locale (T<sub>d</sub>).

Soit l'anneau i de la pastille combustible à une température  $T_{dik}$ , pendant le pas de temps de durée  $\Delta t_k$ . On définit une fonction, représentative de la fraction de temps écoulée par rapport à la densification maximale, et telle que:

$$F_{ik} = \Delta t_k / t_{di} (T_{dik})$$
(60)

Lorsque  $\Sigma F_{ik} = 1$ , la croissance colonnaire est supposée activée dans l'anneau i. Pour tenir compte par ailleurs d'une possible désactivation du phénomène d'évaporation - condensation en cas de baisse de la température locale, une autre fonction (G<sub>im</sub>) est calculée à partir du moment (instant m-1)

(57)

(59)

où  $\Sigma F_{ik}$  a atteint l'unité. Soit  $T_{dim}$  la température locale au pas de temps suivant m de durée  $\Delta t_{m}$ , on a:

$$G_{im} = \left(\sum_{k=0}^{m-1} \Delta t_k + \Delta t_m\right) / t_{dm}$$
(61)

si  $G_{im} > 1$ , le mécanisme de croissance colonnaire est toujours actif dans l'anneau;

si  $G_{\rm im} < 1,$  le mécanisme d'évaporation - condensation est inactif.

La formulation peut être étendue aux pas de temps suivants :

$$G_{i\alpha} = (\sum_{k=0}^{m-1} \Delta t_k + \sum_{j=m}^{\alpha} \Delta t_j) / t_{d\alpha}$$
(62)

Ce modèle permet de simuler la formation progressive du trou central. La formation de ce trou abaisse la température centrale du combustible pour atteindre une valeur stationnaire lorsque la cinétique de restructuration se stabilise. Le modèle actuellement utilisé dans la version CYRANO 2C (ref /120/) est celui proposé par CAPART (ref /27/), fourni par Belgonucléaire

- ---

-3

- 44 -

### 9 - PROPRIETES MECANIQUES DE L'OXYDE COMBUSTIBLE

En tant que céramique, l'oxyde combustible polycristallin est un matériau fragile dans les conditions normales (T < 1200 °C et hors irradiation). Lorsqu'on applique une contrainte à un tel matériau, il se fracture dès que celle-ci dépasse la limite d'élasticité, sans déformation rémanente notable.

Cependant, à hautes températures (T > 1400 °C), ce type de matériau acquiert une ductilité mesurable et peut se déformer plastiquement avant de rompre (ref /55/).

Entre 1200 et 1400 °C, le matériau combustible est dit semi-fragile et est capable de fluer de façon importante.

La modélisation du comportement mécanique d'une pastille combustible sous irradiation est très complexe du fait de son état fracturé et de l'évolution physico-chimique de l'oxyde et de ses propriétés. Plusieurs approches simplifiées ont été proposées dans la littérature ouverte.

Une reflexion est actuellement engagée entre les différents partenaires des Etudes et Recherches pour décider de la méthodologie la mieux adaptée pour traiter le comportement de la pastille. Elle fera l'objet d'un document particulier. Nous ne traitons donc dans ce chapitre que les propriétés mécaniques de l'oxyde.

### 9.1 - Module d'YOUNG et coefficient de POISSON

### 9.1.1 - Formulations dans CYRANO 2C (ref /120/)

Les formulations du module d'young et du coefficient de Poisson utilisées dans CYRANO 2C sont celles proposées par BELGONUCLEAIRE (ref /109/):

$$\mathbf{E} = 2,29 \ 10^5 \ (1-1,4 \ 10^{-4} \ (\text{TC} - 20)) \ (1 - 2,3 \ \text{por}) \tag{63}$$

E en MPa

c

où TC est la température (°C) et por le volume relatif des porosités (% DT) du combustible. Le coefficient de Poisson est pris égal à 0,31.

# 9.1.2 - Formulations proposées dans MATPRO (ref /57/)

La formulation du module d'Young proposée par MATPRO au dessous de 1300 °C tient aussi compte de la température et de la porosité du combustible. Pour l'UO2 stoechiomètrique elle prend la forme suivante:

 $Es = 2,334 \ 10^5 \ (1 - 2,752 \ por) \ (1 - 1,0915 \ 10^{-4} \ T)$ (64)

dans le cas d'un oxyde non stoechiomètrique ou contenant du plutonium, un terme correctif est apporté, fonction de la teneur en Pu et de la déviation par rapport à l'état stoéchiométrique (O/M - 2):

$$E = Es (1 + 0,05 W) exp(-B x)$$

où por volume relatif de porosité (/DT)

T température (K)

С

c

x écart à la stoéchiométrie (-)

B = 1,34 pour combustible hyperstoechiométrique ou stoéchiométrique

B = 1,75 pour combustible hypostoechiométrique

W est la masse PuO2 / masse combustible (-)

E module d'Young (MPa)

En ce qui concerne le coefficient de Poisson, MATPRO propose une valeur moyenne de 0,316 pour l'UO2, et de 0,276 pour les Oxydes Mixtes, quelle que soit la densité.

Nous proposons de retenir les formulation de MATPRO, plus générales dans leur application.

# 9.2 - Limite d'élasticité en compression, contrainte de fissuration

Plusieurs formulations sont proposées dans la littérature (ref /55/). Nous recommandons de retenir celle utilisée dans le logiciel FEMAXI III (ref /77/), correspondant à l'évaluation du  $R_{0.2}$  en traction:

$$R_{0.23} = 1176, 1 - 1,688 T + 8,179 10^{-4} T^2 - 1,293 10^{-7} T^3$$
(66)

où T est la température (°C)

Pour T > 1800 °C, on prend  $R_{0.2\xi} = 33,62$  MPa

- 45 -

(65)

suivante:

- 46 -

Pour ce qui est de la fissuration du combustible, OLSEN propose dans MATPRO (ref /57/) une formulation pour l'évaluation de la contrainte de fissuration de l'oxyde d'Uranium fonction de la densité relative et de la température jusqu'à 1000 °K; 1000 °K est en effet la température la plus basse pour laquelle la plastification a été observée en pile. Au dessus de 1000 °K, la résistance à la traction en pile est prise constante et égale à celle à 1000 °K:

pour 273 < T < 1000 °K:  $\sigma_{f} = 1,7 \ 10^{2} \ (1 - 2,62 \ (1-p))^{1/2} \exp(-1590/(8,314 \ T))$  (67) pour T > 1000 °K :  $\sigma_{f} = \sigma_{f}(1000 \ ^{\circ}K)$   $\sigma_{f}$  contrainte de fissuration (MPa)  $\rho$  densité relative rapportée à la densité théorique (10,96 g/cm<sup>3</sup>) T température (°K)

Remarque: Cette équation est basée sur des données hors pile décrivant le comportement fragile de l'oxyde d'Uranium, confirmées par des expériences instrumentées en irradiation. Le comportement dans le domaine ductile relève de considérations théoriques car aucune donnée en pile n'est actuellement disponible. L'utilisation dans le domaine ductile reste donc d'après OLSEN sujet à caution.

# 9.3 - Fluage de l'oxyde

On distingue trois modes de fluage de la pastille combustible:

- le fluage athermique au dessous de 1000 °C;

- entre 1000 et 1700 °C, la vitesse de fluage s'accroît très vite avec la température;

- enfin, à très haute température, la vitesse de fluage est quasiment infinie (plastification) mais le phénoméne est inhibé par la formation de larges grains colonnaires.

La vitesse de fluage est en général représentée par deux fonctions: la première à faibles sollicitations, proportionnelle à la

fracturation et un éventuel gonflement gazeux local survenu depuis le début de l'irradiation. Le rayon de la sphère équivalente se traduit donc par:

contrainte; la deuxième à fortes contraintes, modélisant l'accélération du phénomène avec l'activation de la montée des dislocations. Cette dernière est proportionnelle à une puissance n de la contrainte (ref /55/).

- 47 -

La contrainte de transition n'est fonction que de la taille de grain moyenne du matériau:

$$\sigma_{\rm s} = 1,655 \ 10^7 \ / \ {\rm G}^{0,5714}$$

où  $\sigma_s$  contrainte de transition (Pa) G taille moyenne des grains (µm)

Nous proposons un modèle du type de celui mentionné dans MATPRO, basé sur la formulation suggérée par SOLOMON (ref /94/) et EVANS (ref /43/) pour prendre en compte l'effet d'accélération du phénomène sous irradiation. Cette formulation est calibrée sur l'ensemble des données d'irradiation couvrant le domaine d'utilisation en contraintes et températures qui nous concerne (500 < T < 1800 °C,  $6,9 < \sigma < 70$  MPa) (ref /23/,/32/,/54/,/86/,/95/ et /97/). La vitesse de fluage s'exprime de la façon suivante:

$$\frac{de}{dt} = 3600 \left[ \sigma \frac{A_1 + A_2 \dot{F}}{(A_3 + D) G^2} e^{-\frac{Q_1}{T}} + \sigma^{4,5} \frac{A_4}{A_5 + D} e^{-\frac{Q_2}{T}} + \sigma A_6 \dot{F} e^{-\frac{Q_3}{T}} \right]$$
(69)

avec  $A_1 = 0,3919$ 

- -- -- ----

C

С

 $A_2 = 1,310 \ 10^{-13}$  $A_3 = -87,7$  $A_4 = 2,039 \ 10^{-25}$  $A_5 = -90,5$  $A_6 = 3,723 \ 10^{-29}$ 

$$Q_{1} = \frac{9000}{e^{-\left[\frac{20}{\ln(x-1,99999)} + 8\right] + 1}} + 36294,4$$
(70)

$$Q_2 = \frac{10000}{e \left[\frac{20}{\ln(x-1,99999)} + 8\right] + 1} + 56431,8$$
(71)

$$Q_3 = 2617$$
 (72)

dɛ/dtvitesse de fluage (h-1)Gtaille de grains(µm)Øcontrainte(Pa)Ttempérature(°K)Ddensité moyenne(%DT)

(68)

dans le combustible.

La fraction de gaz relâchée est alors le produit entre le terme résultant de la diffusion dans une sphère équivalente ( $F_{diff}$ ) et le

- 48 -

### $\dot{F}$ taux de fission instantané (fiss/cm<sup>3</sup>/s) x stoéchiométrie (-)

Lorsque la contrainte est inférieure ou égale à  $\sigma_s$ , seuls les termes linéaires en  $\sigma$  sont utilisés et en prenant la valeur réelle de la contrainte. Par contre, si la contrainte est supérieure à  $\sigma_s$ , on utilise  $\sigma_s$ pour la contrainte dans le premier terme et la contrainte réelle pour les deux autres termes.

Quand la contrainte atteinte est supérieure à toutes celles atteintes précédemment, la vitesse de déformation est corrigée de la façon suivante:

$$\frac{d\varepsilon}{dt} = \frac{d\varepsilon}{dt} (1 + 2,5 e^{-0,00504 t})$$
(73)  
où t est le temps en heures.

Pour les oxydes mixtes, MATPRO version 11 conseille de prendre la corrélation suivante:

$$\frac{de}{dt} = 3600 \left[ \sigma \frac{B_1 + B_2 \dot{F}}{G^2} e^{\left[ -\frac{Q_0}{T} + B_3 (1 - 0,01 D) + B_4 C \right] + B_5 \sigma^{4.5}} e^{\left[ -\frac{Q_4}{T} + B_6 (1 - 0,01 D) + B_4 C \right] \right]}$$
(74)  
où  $B_1 = 0,1007$   
 $B_2 = 7,57 \ 10^{-14}$   
 $B_3 = 33,3$   
 $B_4 = 0,014$   
 $B_5 = 6,469 \ 10^{-25}$   
 $B_6 = 10,3$   
 $Q_3 = 50327,1$   
 $Q_4 = 70458$   
C teneur en PuO<sub>2</sub> (% PuO<sub>2</sub>)  
D densité moyenne (%DT)

c

### T Température locale (K)

Si la contrainte est inférieure à la contrainte de transition  $\sigma_s$ , seul le premier terme de l'équation est utilisé. Dans le cas contraire, la contrainte de transition intervient dans le premier terme et la contrainte C réelle est utilisée dans le second. Le domaine de validité de cette dernière corrélation est Temp > 1400 °C, 88 % DT < D < 97 % DT. Cette fonction traduit l'évolution de la température seuil de relâchement des gaz de fission avec le taux de combustion observée expérimentalement; elle tend vers une valeur comprise entre 1000 et 1050 °C à fort taux de

# 10 - TRANSFERT THERMIQUE DANS LE JEU PASTILLE-GAINE

Quand le combustible et le gainage ne sont pas physiquement en contact, le principal mécanisme de transfert de chaleur est la conduction à travers le gaz de remplissage. Les deux autres mécanismes régissant le transfert de chaleur sont l'échange radiatif entre la surface du combustible et la surface interne du gainage, et lorsque le jeu est-fermé, le transfert de chaleur par contact solide pastille-gaine.

-- 49 -

En réalité, du fait des rugosités de surface, ainsi que de la fracturation et du repositionnement des fragments du combustible, les trois types de transfert sont rapidement en compétition dès le début de l'irradiation (ref /6/).

La conductance globale peut donc s'écrire:

$$h_{jeu} = h_{qaz} + h_{rav} + h_{cont}$$

### 10.1 - Transfert par conduction

La conduction à travers le gaz dans le jeu se traduit par:

$$h_{gaz} = k_{gaz} / \delta_{th}$$
(76)

(75)

La largeur du jeu thermique peut se décomposer ainsi:

$$\delta_{\rm th} = \delta_{\rm m} + \delta_{\rm r} + d_{\rm q} + d_{\rm c} \tag{77}$$

 $\delta_{\rm m}$  jeu mécanique gaine-combustible (cm)

 $\delta_r$  rugosité moyenne combinée des deux surfaces (cm)

dg distance d'extrapolation dans la gaine (cm)

dc distance d'extrapolation dans la pastille (cm)

10.1.1 - Distance d'extrapolation

Cette distance d'extrapolation permet de prendre en

plus faciles à maîtriser. Par contre, pour l'analyse fine experimentations

C en terme de thermique et de relâchements, certains pensent qu'un modèle tel que celui de CAPART est mieux adapté. Cela reste cependant à démontrer car le phénomène n'est pas limité à un aspect diffusion. L'avantage du deuxième modèle est qu'il prend en compte les effets de saturation de la matrice

compte le libre parcours moyen des atomes légers tels que l'Hélium à l'intérieur des couches superficielles de chaque surface en regard (ref /6/). On peut évaluer une valeur combinée des deux distances d'extrapolation (cm) avec la corrélation suivante utilisée par COMETHE (ref /62/) et CYRANO (ref /49/):

- 50 -

$$d_{g} + d_{c} = 3,75 \frac{2 - \alpha}{\alpha} \frac{\lambda_{ref}}{760} \frac{1 + \frac{S}{273}}{1 + \frac{S}{T}} \frac{T}{273} \frac{1}{P}$$

(78)

α terme d'accommodatica (-)

 $\lambda_{ref}$  libre parcours moyen à 0°C et 1mm de Mercure (cm)

S constante de Sutherland du mélange gazeux(K)

C T température moyenne du mélange (K)

P pression du mélange gazeux (bars)

### 10.1.2 - Conductivité du mélange gazeux

La conductivité du mélange gazeux (W/cm/K) est tirée de la corrélation de Brokaw (ref /22/):

$$k_{gaz} = \sum_{i=1}^{n} \frac{k_i}{1 + \sum_{j=1 \neq i}^{n} \psi_{ij} \frac{x_j}{x_i}}$$
(79)

avec:

$$\psi_{ij} = \frac{1}{4} \left( 1 + \sqrt{\frac{\mu_i \left[ \frac{M_j}{M_i} \right]^{\frac{3}{4}} \frac{1 + \frac{S_i}{T}}{1 + \frac{S_j}{T}}} \right)^2 \frac{\left( 1 + \frac{\sqrt{S_i S_j}}{T} \right)}{1 + \frac{S_i}{T}} \right)$$
(80)

 $S_i$  et  $S_j$  constantes de Sutherland des gaz i et j(°K) $\mu_i$  et  $\mu_j$  viscosités respectives des gaz i et jTTempérature moyenne du mélange (°K)

C  $\frac{\mu_{i}}{\mu_{j}} = \frac{k_{i}}{k_{j}} \frac{C_{pj}}{C_{pi}} \frac{9 - 5 \frac{C_{vj}}{C_{pj}}}{9 - 5 \frac{C_{vi}}{C_{pi}}}$ (81)

 $C_{pi}$  et  $C_{pj}$  capacités calorifiques des gaz i et j à pression constante,

### - 51 -

Cvi et Cvj capacités calorifiques des gaz i et j à volume constant.

Les valeurs à prendre pour l'ensemble des constantes sont reportées dans le tableau 10.1.

### 10.1.3 - Conductivité des gaz

Dans le domaine de températures considéré, la conductivité des différents gaz pouvant être présents dans le jeu est donnée par une relation du type:

 $k_i = C_{1i} T^C_{2i}$ (82)

T Température du gaz (°K)

k conductivité (W/cm/°K)

Les valeurs des coefficients  $C_{11}$  et  $C_{21}$  sont données dans le tableau 10.2.

# 10.2 - Transfert thermique par rayonnement

Le transfert radiatif est en général négligeable devant le terme de conduction. Cependant, en conditions incidentelles, il peut devenir significatif. Ce terme dépend des températures moyennes respectives des deux surfaces. On peut utiliser la corrélation suivante:

$$h_{ray} = \frac{\sigma}{\frac{1}{\varepsilon_g} + \frac{1}{\varepsilon_c} - 1} \frac{T_{sc}^4 - T_{sg}^4}{T_{sc} - T_{sg}}$$
(83)

 $\sigma$  constante de Boltzman = 5,67 10<sup>-12</sup> W cm<sup>-2</sup> °K<sup>-4</sup>

 $\epsilon_g$  émissivité de la surface interne de la gaine (-)

ε émissivité de la surface du combustible (-)

T<sub>sc</sub> température superficielle de la pastille (°K)

T<sub>sq</sub> température superficielle interne de la gaine (°K)

hray conductance radiative (W/cm<sup>2</sup>/°K)

c

c

L'émissivité de l'oxyde d'Uranium donnée par Touloukian (ref /6/ et /99/) est la suivante:

$$\varepsilon_{\rm c} = 0,725 - 0,235 \, {\rm Tanh}(1,375 \, 10^{-3} \, ({\rm T}_{\rm sc} - 273.15) - 1,945)$$
 (84)

Pour le Zircaloy 4, l'émissivité dépend de l'épaisseur de la

couche d'oxyde (ref /57/):

| $\varepsilon_{\rm g} = 0,325 + 0,1246  {\rm d}$         | d < 3,88 µm | (85) |
|---------------------------------------------------------|-------------|------|
| $\varepsilon_{\rm r} = 0.8086 - 50 \ 10^{-6} \ {\rm d}$ | d > 3,88 µm | (86) |

Eq émissivité hémisphérique

d épaisseur de la couche d'oxyde (µm)

Ce modèle suppose donc une évaluation la couche d'oxyde à un moment donné sur la face interne de la gaine. En général les céramographies post-irradiation montrent que l'épaisseur maximale de zircone à l'interface pastille-gaine est de l'ordre de 10  $\mu$ m. L'option choisie actuellement dans le logiciel CYRANO 2C et que nous pouvons retenir dans un premier temps, est de prendre une valeur constante moyenne pour l'émissivité de la gaine:

 $\boldsymbol{\varepsilon}_{\mathbf{g}} = \mathbf{0}, \mathbf{4} \tag{87}$ 

### 10.3 - Transfert thermique par contact

Lorsqu'il y a contact, la conductance dépend de l'état de ce contact (ferme ou non). En effet, en cas de contact ferme, les observations céramographiques post-irradiation montrent que l'interface pastille-gaine devient complexe du fait de l'apparition, sous forme de couches successives, de plusieurs composés chimiques (uranates de césium, zirconates de césium, zircone ...). Le transfert thermique à cet interface est difficile à calibrer et doit certainement atteindre une valeur de saturation restant à évaluer. Il existe plusieurs corrélations (ref /6/). Nous proposons de retenir pour l'instant la plus simple programmée dans CYRANO (ref /49/):

$$h_{cont} = 5 \ 10^{-3} \ P_{cont} \tag{88}$$

Rappelons pour mémoire la formulation utilisée dans le logiciel URGAP (ref /67/):

$$h_{cont} = a_1 k_{gaz} \delta_r (P_{cont}/\delta_r^2/H)^m$$
(89)

 $\begin{array}{lll} k_{gaz} & \mbox{conductivité moyenne du mélange gazeux (W/cm/°C)} \\ P_{cont} & \mbox{pression de contact (Pa)} \\ H & \mbox{dureté Meyer du matériau le plus mou (Pa)} \\ \delta_r & \mbox{rugosité combinée des deux matériaux (µm)} \end{array}$ 

# - 53 -

### n 40 mm Ha 10.4 - Prise en compte de la fracturation de la pastille

Pour prendre en compte la fracturation de la pastille et le repositionnement des fragments dans le transfert thermique oxyde-gaine, on caractérise (ref /6/) la fracturation par un facteur f; ce facteur f représente la fraction de surface de la gaine en contact avec les fragments de l'oxyde combustible. Sur cette base, la conductance du jeu à travers les gaz s'exprime de la manière suivante:

$$h_{gaz} = f h_{cont} + (1-f) h^{t}_{gaz}$$
(90)

۳.

1.....

c I

conductance moyenne à travers le mélange gazeux hgaz h<sub>cont</sub> conductance jeu fermé sans pression ht<sub>gaz</sub> conductance théorique du jeu ouvert

Une corrélation proposée par Mac DONALD et WEISSMAN (ref /74/)

pour f:

$$\mathbf{f} = \mathbf{A} + \mathbf{B} \exp\left(-\mathbf{C} \cdot \mathbf{\delta}_{\mathbf{m}} / \mathbf{d}_{\mathbf{p}}\right) \tag{91}$$

 $\delta_m$  jeu mécanique moyen pastille-gaine (cm)

- diamètre à chaud de la pastille (cm) ďp
- Ā = 0,05
- = 0,95 в
- = 1300С

# 10.5 - Formulation utilisée dans CYRANO 2C

La formulation retenue pour le calcul du coefficient d'échange dans CYRANO 2C (ref /120/) est la suivante:

- en cas de contact pastille-gaine

$$h_{jen} = \frac{k_{gaz}}{\delta_r + d_g + d_c}$$
(92)

- avec jeu ouvert

$$\mathbf{h}_{jeu} = \mathbf{f} \frac{\mathbf{k}_{gaz}}{\delta_{r} + \mathbf{d}_{g} + \mathbf{d}_{c}} + (1 - \mathbf{f}) \frac{\mathbf{k}_{gaz}}{\sqrt{\left[\delta_{m} + \delta_{r} + \mathbf{d}_{g} + \mathbf{d}_{c}\right]^{2} - \varepsilon^{2} \delta_{m}^{2}}} + \mathbf{h}_{ray}$$
(93)

avec  $\varepsilon = 0, 4$ 

Dans les deux cas, la conductance  $\rm h_{jeu}$  est limité à 1,6 W/cm2/°K

en horne supérieure.

Le parmètre Cutilisé pour le calcul de f dans la corrélation de Mac DONALD et WEISSMAN(cf § 10.4) est pris égal à 200.

|     | М             | S    | Cp     | Cv/Cp | L     | α      |
|-----|---------------|------|--------|-------|-------|--------|
| GAZ | g             | °K   | J/g/°C | -     | μm    | -      |
| Kr  | 8 <b>3,</b> 7 | 179  | 0,243  | 0,6   | 36,9  | 0,8329 |
| Xe  | 131,3         | 248  | 0,158  | 0,6   | 26,4  | 0,8684 |
| He  | 4             | 79   | 5,196  | 0,6   | 133,2 | 0,1821 |
| A   | 39,94         | 131  | 0,519  | 0,6   | 47,1  | 0,625  |
| H2O | 18            | 1300 | 0,500  | 0,6   | 0     | 1,00   |
| N2  | 28            | 118  | 1,084  | 0,75  | 63,7  | 0,61   |
| H2  | 2             | 84   | 14,62  | 0,75  | 83,9  | 0,105  |
|     |               | 1    |        | 1     |       |        |

M Masse molaire du gaz

С

S Constante de Sutherland Cp Capacité calorifique à pression constante Cv Capacité calorifique à volume constant L Libre parcours moyen des molécules à 0 °C et 1 mm de mercure

TABLEAU 10.1 - CONSTANTES UTILISEES POUR LES GAZ

|           | C1                      | C2     |
|-----------|-------------------------|--------|
| HELIUM    | 3,3660 10 <sup>-5</sup> | 0,668  |
| ARGON     | 3,4210 10-6             | 0,701  |
| XENON     | 4,0288 10-7             | 0,872  |
| KRYPTON   | 4,7260 10-7             | 0,923  |
| AZOTE     | 2,0910 10-6             | 0,846  |
| HYDROGENE | 1,6355 10 <sup>-3</sup> | 0,8213 |
|           | •                       |        |

TABLEAU 10.2 - CONDUCTIVITE DES GAZ, DONNEE PAR: K = C1 T $^{\rm C2}$  où K est en W/cm/K et T EN K

- 55 -

#### C - TUBE DE GAINAGE

### 1 - TRANSFERT THERMIQUE DANS LA GAINE

Le flux de chaleur sortant du combustible, traveuse la gaine pour être évacué par le fluide du circuit primaire. Le transfert thermique entre la surface interne de la gaine et le réfrigérant peut se subdiviser en quatre étapes:

a) transfert thermique à travers le matériau de gainage: celui-ci est régi par l'équation de la chaleur, la conductivité du zircaloy étant essentiellement fonction de la température locale;

b) transfert thermique à travers la couche d'oxyde (zircone): la corrosion généralisée du zircaloy dans le fluide primaire conduit à la formation d'une couche de zircone sur la paroi externe du gainage plus ou moins uniforme; l'accroissement progressif de la température à l'interface métal/oxyde accélère la formation de cette couche de zircone 10 fois moins conductrice que le métal et de plus faible densité. Son épaisseur atteint plusieurs dizaines de microns aux points les plus sollicités, augmentant l'épaisseur effective de la gaine d'une valeur moindre puisque l'oxyde se forme au détriment du métal (environ 64 µm pour 100 µm de zircone);

c) transfert thermique dans d'éventuels dépôts: la formation de ce genre de dépôts est généralement inexistante compte tenu du contrôle rigoureux de la chimie de l'eau primaire;

d) transfert thermique dans la couche limite gaine-réfrigérant: ce transfert est régi par les lois de la thermohydraulique à l'interface solide/eau en régime monophasique ou diphasique. La qualité du transfert à cet interface est fortement influencée par l'éventuelle formation de bulles stagnantes le long du gainage au moment de la transition de l'ébullition nucléée à l'ébullition franche.

# 1.1 - Distribution de température dans la gaine

La distribution de température dans la gaine proprement dite est calculée de proche en proche à partir de la température de la surface externe en résolvant l'équation de la chaleur en coordonnées cylindriques et en négligeant l'énergie générée dans la gaine: du phénomène d'évaporation - condensation en cas de baisse de la température locale, une autre fonction ( $G_{im}$ ) est calculée à partir du moment (instant m-1)

$$-\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}(r k_{g}(T)\frac{\partial T}{\partial r}) = 0$$
 (1)

Les conditions aux limites sont données par:

 $T(R_{ext})$  = température sur la surface externe de la gaine calculée en fonction des conditions de refroidissement (§ 1.3), de la corrosion généralisée du Zircaloy (formation de zircone (cf § 1.2) et du flux de chaleur

$$-r k_g(T) \frac{dT}{dr} = \frac{P_1}{2\pi}$$
(2)

exprimant la condition de continuité sur le flux de chaleur

P1: puissance linéique (W/cm)

# 1.2 - Prise en compte de la couche de zircone

Deux approches sont envisageables:

a) La température à l'intérieur de la couche de zircone est déterminée à partir de la température extérieure de la couche en résolvant l'équation de la chaleur comme précédemment dans le cas du matériau de gainage. La conductivité d'une zircone 100 % dense peut être évaluée par la relation suivante (ref /65/):

$$\begin{aligned} k_{ZrO2} &= 1,96 - 2,4 \ 10^{-4} \ T + 6,43 \ 10^{-7} \ T^2 - 1,95 \ 10^{-10} \ T^3 \end{aligned} \tag{3}$$
  
T température locale (°C)  
$$k_{ZrO2} \quad \text{conductivité de la zizcone (W/m/°K)}$$

b) En milieu primaire, la couche de zircone formée est relativement poreuse et la conductivité réelle est dégradée vis à vis de celle du solide ionique parfait. Des mesures (ref /53/) ont montré que celleci varie peu avec la température. La valeur la plus généralement admise est de 1,6 W/m/°K. Celle-ci est conservative et a été retenue dans CYRANO 2C (ref /120/). Compte tenu de la faible épaisseur de la couche de zircone (maximum 100  $\mu$ m), la chute de température dans cette couche peut être évaluée plus simplement par:

 $(\Delta T)_{Zr02} = \phi \star \delta_{Zr02}/k_{Zr02}$ 

 $\begin{aligned} \delta_{ZrO2} & \text{épaisseur de la couche d'oxyde (cm) (cf chapitre 5)} \\ \phi & \text{flux de chaleur (W/cm<sup>2</sup>)} \\ k_{ZrO2} &= 1,6 \text{ W/m/°K} \end{aligned}$ 

### 1.3 - Transfert dans la couche limite gaine-réfrigérant

La température à la surface de la couche d'oxyde est déduite de la température moyenne du réfrigérant au niveau considéré et du saut de température dans la couche limite. Trois situations peuvent se présenter pour l'état local de l'eau : la phase liquide, la phase vapeur ou l'état diphasique. Dans les réacteurs REP, la phase vapeur est supposée ne pas être atteinte en fonctionnement normal et incidentel de classe 2. Nous nous limiterons donc aux deux autres états.

Le saut de température dans la couche limite est de la forme:

 $(\Delta T)_{film} = \phi / h_{film}$ 

(5)

(4)

flux de chaleur sortant du crayon (W/cm<sup>2</sup>)
 h<sub>film</sub> conductance de la couche limite

### 1.3.1 Conductance en convection forcée

Lorsque la température de surface de la gaine est inférieure à la température de saturation  $T_{sat}$ , le transfert thermique s'effectue en convection forcée. La conductance de la couche limite peut être évaluée avec la corrélation de DITTUS-BOELTER (ref /73/):

$$h_{film} = 0,023 \ k_e^{0,6} \ D_h^{-0,2} \ G^{0,8} \ \mu^{-0,4} \ C_D^{0,4}$$
(6)

ke conductivité thermique du réfrigérant (W/cm/°C)

- D<sub>h</sub> diamètre hydraulique du canal (cm)
- G vitesse massique du réfrigérant (g/cm<sup>2</sup>/s)

Cp capacité calorifique du réfrigérant (J/g/°C)

 $\mu$  viscosité du réfrigérant (g/cm/s)

- 57 -

C

des porosités (% DT) du combustible. Le coefficient de Poisson est pris égal à 0,31.

- -

(7)

- 58 -

on a alors:

· · ·

C

 $T_{surf} = T_{eau} + \phi / h_{film}$ 

φ flux de chaleur sortant du crayon (W/cm<sup>2</sup>)

1.3.2 Ebullition nucléée

Si la température de paroi dépasse la température de saturation du réfrigérant, la correlation précédente n'est plus applicable. Des bulles se forment le long de la paroi sans avoir atteint l'ébullition franche. La correlation de JENS et LOTTES peut s'appliquer:

 $h_{i1} = 0,1267 e^{(0,01582 P)} \phi^{0,75}$ 

on a alors:

 $T_{surf} = T_{sat} + \phi / h_{jl}$ 

La conductance réelle est:

 $h_{film} = (T_{surf} - T_{eau}) / \phi$ 

1.3.3 Ebullition franche

Lorsque l'enthalpie moyenne du réfrigérant dans le canal dépasse l'enthalpie de saturation, le régime d'ébullition franche est atteint. La corrélation a utiliser est la suivante:

 $h_{film} = 0,147 \text{ p}^{0,024} \text{ } \phi^{0,72}$   $\phi \quad \text{flux de chaleur local (W/cm^2)}$   $P \quad \text{pression du réfrigérant (bar)}$ on a à nouveau:

 $T_{surf} = T_{eau} + \phi / h_{film}$ 

où T est la température (°C)

Pour T > 1800 °C, on prend  $R_{0.28} = 33,62$  MPa

#### - -

# 2 - COMPORTEMENT MECANIQUE DU TUBE DE GAINE

#### 2.1 - Introduction

Le calcul du comportement mécanique du tube de gaine est actuellement basé sur les hypothèses suivantes (ref /49/):

- 59 -

a/ les chargements qui s'exercent sur le tube résultent de la pression externe du réfrigérant primaire, de la pression interne des gaz (Hélium de remplissage et gaz de fission), de la pression de contact en cas d'Interaction Pastille/Gaine (IPG) et du gradient thermique dans l'épaisseur.

Les sollicitations axiales induites par les déformations différentielles de la pastille combustible et de la gaine en cas d'IPG ne sont pas prises en compte. Seules les forces axiales dues aux pressions des fluides sont modélisées (configuration biaxée  $\sigma_z = 1/2 \sigma_0$ );

b/ le tube de gaine présente une symétrie de révolution;

c/ tout plan orthogonal aux directions principales demeure plan aprés déformation;

d/ le matériau de gainage est supposé isotrope.

Compte tenu de la deuxième et de la troisième hypothèse, il ne peut exister de cisaillement. En conséquence, seules interviennent les composantes principales des contraintes et déformations qui ne dépendent que de la coordonnée radiale (problème monodimensionnel).

Si ces hypothèses étaient acceptables dans leur ensemble pour traiter le comportement mécanique de la gaine dans les conditions de fonctionnement initialement prévues, leur validité est remise en cause dans le cas où l'on recherche une simulation plus représentative du comportement à fort épuisement massique associé à des cyclages de puissance (ref /37/,/38/,/62/,/68/,/70/ et /103/).

Deux hypothèses doivent être conservées pour aboutir à brève échéance à un logiciel opérationnel: la symétrie de révolution et le traitement monodimensionnel. orma 10n e

La vitesse de fluage est en général représentée par deux fonctions: la première à faibles sollicitations, proportionnelle à la

- 60 -

Quant aux chargements axiaux, ils doivent être évalués de manière plus réaliste (rapport des contraintes principales  $\sigma_z/\sigma_\theta$  et composante de cisaillement  $\sigma_{rz}$ ). Une méthode cohérente avec l'approche monodimensionnelle est en cours de développement au département MMN.

Enfin, du fait de la structure hexagonale compacte du Zirconium et des conditions de fabrication, le tube de gaine présente une anisotropie prononcée de ses propriétés mécaniques. Cet aspect doit être pris en compte.

Il est également nécessaire de revoir la méthode générale de calcul, basée sur les principes suivants:

- une résolution des équations d'équilibre et de compatibilité aux différences finies;

- des relations contraintes/déformations, dans le domaine plastique, qui obéissent aux lois de SODERBERG;

- des lois de comportement en fluage d'irradiation et thermique exprimées en termes de déformations et contraintes circonférentielles;

- des algorithmes peu performants pour le traitement des phénomènes de relaxation des contraintes à cinétique rapide.

# 2.2 - Anisotropie du matériau de gainage

### 2.2.1 - Anisotropie élastique

Les relations déformations/contraintes dans le domaine élastique s'écrivent sous la forme matricielle:

$$\begin{vmatrix} \boldsymbol{\epsilon}_{r} \\ \boldsymbol{\epsilon}_{\theta} \\ \boldsymbol{\epsilon}_{z} \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} \frac{1}{E_{r}} & -\frac{\boldsymbol{\nu}_{r\theta}}{E_{r}} & -\frac{\boldsymbol{\nu}_{rz}}{E_{r}} \\ -\frac{\boldsymbol{\nu}_{\theta r}}{E_{\theta}} & \frac{1}{E_{\theta}} & -\frac{\boldsymbol{\nu}_{\theta z}}{E_{\theta}} \\ -\frac{\boldsymbol{\nu}_{zr}}{E_{z}} & -\frac{\boldsymbol{\nu}_{z\theta}}{E_{z}} & \frac{1}{E_{z}} \end{vmatrix} \begin{vmatrix} \boldsymbol{\sigma}_{r} \\ \boldsymbol{\sigma}_{\theta} \\ \boldsymbol{\sigma}_{z} \end{vmatrix}$$
(1)

avec les conditions de symétrie:

$$\frac{\mathbf{v}_{r\theta}}{\mathbf{E}_{r}} = \frac{\mathbf{v}_{\theta r}}{\mathbf{E}_{\theta}} ; \frac{\mathbf{v}_{rz}}{\mathbf{E}_{r}} = \frac{\mathbf{v}_{zr}}{\mathbf{E}_{z}} ; \frac{\mathbf{v}_{\theta z}}{\mathbf{E}_{\theta}} = \frac{\mathbf{v}_{z\theta}}{\mathbf{E}_{z}}$$
(2)

Ccontrainte(Pa)Ttempérature(°K)Ddensité moyenne(%DT)

. .. .. ... .

- 61 -

Les modules  $E_z$  et  $E_0$  sont accessibles par l'expérience, soit par des essais de traction longitudinale, soit par des essais d'éclatement uniaxé ( $\sigma_z = 0$ ). Le couplage de ces essais avec des essais d'éclatement biaxé ( $\sigma_z = 1/2 \sigma_0$ ) permet de déterminer les coefficients de Poisson  $V_{0Z}$  et  $V_{Z0}$ 

Par contre, le module  $E_r$  est inaccessible expérimentalement dans un tube car on imagine la difficulté matérielle de mettre en œuvre un essai de traction dans la direction radiale.

Néanmoins, dans un tube mince sous pression, l'hypothèse "contrainte plane" ( $\sigma_r = 0$ ) peut être appliquée avec une bonne précision pour l'exploitation des résultats d'essais. L'évaluation des paramètres  $v_{ir}$  ne se pose donc pas. De plus, la déformation radiale  $\varepsilon_r$  n'étant directement mesurable, les grandeurs  $E_r$  et  $v_{ri}$  ne sont pas calculables.

Par contre, dans le logiciel de calcul, l'approximation du tube mince, et l'hypothèse de contrainte plane qui en découle, ne sont pas retenues. Comme le rapport des contraintes  $\sigma_r/\sigma_0$  est de l'ordre du rapport épaisseur sur rayon moyen, on peut imposer les valeurs approchées suivantes, sans pour autant diminuer la précision recherchée:

$$E_{r} = E_{\theta}; v_{r\theta} = v_{\theta r} \text{ et } v_{rz} / v_{zr} = E_{\theta} / E_{z}$$
(3)

Jusqu'à présent, l'anisotropie élastique du Zircaloy 4 a toujours été éludée dans les logiciels de thermomécanique et il est communément admis que les constantes élastiques du matériau de gainage sont isotropes. Les corrélations retenues sont les suivantes:

- Le module d'YOUNG varie linéairement avec la température. Dans CYRANO, il obéit à l'équation (ref /49/ et /47/):

E = 97080 - 58 T (4) E : MPaT : °C

Dans MATPRO (ref /57/), on propose une corrélation permettant de prendre en compte l'effet de l'irradiation:

contrainte de transition intervient dans le premier terme et la contrainte réelle est utilisée dans le second. Le domaine de validité de cette dernière corrélation est Temp > 1400 °C, 88 DT < D < 97 DT.

- 62 -

# $\mathbf{E} = (1,075 \ 10^5 - 54,75 \ \mathrm{T})/C \tag{5}$

E : MPa T : °K C = 0,88 + 0,12 exp( $-\Phi t/10^{21}$ )  $\Phi t$  : n/cm<sup>2</sup>

- Le coefficient de POISSON diminue linéairement avec la température et s'évalue par la relation (ref /49//47/):

 $v = 0,298 - 1,2610^{-4} T$  (6) T : °C

Les constantes élastiques seront déterminées dans le cadre des essais qui sont réalisés au département EMA et les résultats permettront de juger si une description anisotrope de ces paramètres se justifie.

# 2.2.2 - Anisotropie plastique

Une théorie du comportement en plasticité des matériaux métalliques anisotropes a été développée par Lee (ref /71/). Sa validation expérimentale n'est guère aisée, du fait du nombre important de paramètres. Une approche simplifiée a été proposée par Hill (ref /60/). Elle est courannent utilisée soit dans les interprétations expérimentales (ref /12/,/45/ et /63/) soit dans certains logiciels (ref /62/) et semble à ce jour suffisante.

Schroeder et Holicky ont présenté une description du fluage secondaire anisotrope du Zircaloy (ref /92/) qui a été appliquée au dépouillement de résultats expérimentaux par Stehle (ref /96/). Il est aisé de démontrer qu'en vertu des hypothèses sur lesquelles se fondent Schroeder et Holicky leur modèle se ramène à celui de Hill (ref /45/).

### 2.2.2.1 - Aspects fondamentaux de la théorie de Hill

La théorie de la plasticité de Hill des matériaux métalliques anisotropes est basée sur les hypothèses suivantes:

- les axes d'anisotropie sont orthogonaux et confondus

С

Cette distance d'extrapolation permet de prendre en

# - 63 -

avec les directions principales  $(r, \theta, z)$  d'application des contraintes;

- le matériau présente une symétrie de ses propriétés mécaniques en traction et en compression;

- l'effet Bauschinger n'est pas considéré.

Le comportement arisotrope du matériau est décrit par trois facteurs  $F_r$ ,  $F_0$  et  $F_z$  tels que les relations déformations/contraintes vérifient les équations de Lévy-Mises modifiées:

$$d\varepsilon_{r} = d\lambda \left( F_{\theta} \left( \sigma_{r} - \sigma_{z} \right) + F_{z} \left( \sigma_{r} - \sigma_{\theta} \right) \right)$$

$$d\varepsilon_{\theta} = d\lambda \left( F_{z} \left( \sigma_{\theta} - \sigma_{r} \right) + F_{r} \left( \sigma_{\theta} - \sigma_{z} \right) \right)$$

$$d\varepsilon_{z} = d\lambda \left( F_{r} \left( \sigma_{z} - \sigma_{\theta} \right) + F_{\theta} \left( \sigma_{z} - \sigma_{r} \right) \right)$$
(7)

où la constante d $\lambda$  est définie par

$$d\lambda = dE_{eq}/\sigma_{eq} \tag{8}$$

 $\mathcal{E}_{eq}$  et  $\sigma_{eq}$  représentent respectivement la déformation et la contrainte équivalentes qui sont définies, suivant Von Mises, par les relations:

$$\sigma_{eq} = \sqrt{F_r (\sigma_{\theta} - \sigma_z)^2 + F_{\theta} (\sigma_z - \sigma_r)^2 + F_z (\sigma_r - \sigma_{\theta})^2}$$
(9)

$$d\varepsilon_{eq} = K \sqrt{F_z (F_r d\varepsilon_r - F_\theta d\varepsilon_\theta)^2 + F_r (F_\theta d\varepsilon_\theta - F_z d\varepsilon_z)^2 + F_\theta (F_z d\varepsilon_z - F_r d\varepsilon_r)^2}$$
(10)

avec :

$$\mathbf{K} = \frac{1}{\mathbf{F}_{\mathrm{r}} \mathbf{F}_{\mathrm{\theta}} + \mathbf{F}_{\mathrm{r}} \mathbf{F}_{\mathrm{z}} + \mathbf{F}_{\mathrm{\theta}} \mathbf{F}_{\mathrm{z}}} \tag{11}$$

Les coefficients d'anisotropie  $F_i$  ne sont pas directement accessibles par l'expérience. En effet, les résultats des essais mécaniques uniaxés et biaxés fournissent des conditions où interviennent des rapports de ces coefficients.

Seuls les coefficients R et P, définis par les relations (12) , peuvent être évalués:

$$R = F_r/F_\theta ; P = F_r/F_z$$
(12)

 $\frac{\mu_i}{\mu_j} = \frac{k_i}{k_j} \frac{C_{pj}}{C_{pi}} \frac{1}{q}$ 

 $C_{pi}$  et  $C_{pj}$  capacités calorifiques des gaz i et j à pression constante,

R est le coefficient de contraction (CSR) obtenu dans un essai de traction longitudinale. Le coefficient P est l'équivalent du coefficient de contraction, évalué à partir d'un essai d'éclatement avec compensation de l'effet de fond ( $\sigma_z = 0$ ).

- 64 -

La détermination complète des coefficients  $F_i$  passe par une normalisation arbitraire qui peut varier selon les expérimentateurs. Deux conditions de normalisation sont proposeas

soit 
$$F_r + F_{\theta} = 1$$
 (13)

en relation directe avec l'essai de traction longitudinale où l'on s'impose  $\sigma_{eq} = \sigma_z$ ;

$$soit F_r + F_\theta + F_z = 1,5 \tag{14}$$

par cohérence avec l'état isotrope qui est défini pour  $F_r = F_\theta = F_z = 0,5.$ 

La loi de comportement établie expérimentalement et exprimée en termes de déformation et de contrainte équivalentes tient compte de la normalisation choisie dans la détermination des constantes. Par contre, l'application d'une loi existante peut introduire des écarts significatifs sur le calcul de la déformation suivant la normalisation retenue.

A titre d'exemple, la figure 1 montre l'effet de cette normalisation sur la déformation circonférentielle (Eq) de fluage à 350 °C dans une configuration de contraintes biaxée ( $\sigma_z = 1/2 \sigma_0 \text{ et } \sigma_0 = 80$  MPa) avec l'approximation du tube mince ( $\sigma_r = 0$ ). La loi de comportement est exprimée suivant la corrélation (36) du § 2.3.1.1 où la contrainte tangentielle intervient comme opérande d'un sinus hyperbolique:

 $\mathcal{E}_{\theta,th} = A_{\theta} C_{th} \exp\{ K(T-315) / (T+273,15) \} \sinh(a_0 B_{\theta} \sigma_{\theta}) t^{0,5}$ (15)

Les coefficients Aq et Bq dépendent des facteurs d'anisotropie  $F_i$  ( $i = r, \theta, z$ ), via la normalisation choisie. Les paramètres R et P sont pris respectivement égaux à 1,6 et 2,6, valeurs généralement retenues pour du Zircaloy 4 détendu. On constate un écart supérieur à 35 % sur la déformation calculée, la normalisation (14) donnant les valeurs maximales.



- 65 -

FIGURE 1 - Fluage thermique du Zincaloy - 83 = f(t) - Effet de la normalisation des facteurs d'anisotropie

### 2.2.2.2 Principes de base de la théorie de Lee

La théorie de l'anisotropie plastique du Zircaloy développée par Lee permet de prendre en compte la différence existant entre les caractéristiques mécaniques en traction et en compression.

Les relations déformations/contraintes s'expriment suivant la formulation de Prandtl-Reuss:

$$d\mathbf{E}_{i} = \frac{d\mathbf{E}_{eq}}{\sigma_{eq}} \sum_{j} M_{ij} (\sigma_{j} - \alpha_{j}) \quad (i, j = r, \theta, z) \quad (16)$$

La composante  $\alpha_j$  traduit l'effet différentiel traction/compression et les  $M_{ij}$  sont les coefficients d'anisotropie.

La contrainte équivalente s'écrit, au sens de Von Mises:

$$\sigma_{eq} = \sqrt{\sum_{i} \sum_{j} M_{ij} (\sigma_i - \alpha_i) (\sigma_j - \alpha_j)}$$
(17)

ou encore

$$\sigma_{eq} = \sqrt{\sum_{i} \sum_{j} M_{ij} \sigma_{i} \sigma_{j}} - \sum_{i} L_{i} \alpha_{i} - \sum_{i} \sum_{j} M_{ij} \alpha_{i} \alpha_{j}}$$
(18)

- 66 -

avec

$$\mathbf{L}_{i} = 2 \sum_{j} M_{ij} \alpha_{j} \tag{19}$$

La déformation équivalente vérifie l'équation (hypothèse

de normalité):

$$\sigma_{eq} d\varepsilon_{eq} = \sum_{i} \sigma_{i} d\varepsilon_{i}$$
(20)

Considérant que le tube de gaine possède trois plans de symétrie orthogonaux et que les axes d'anisotropie coincident avec les directions principales d'application des contraintes et des déformations  $(r, \theta, z)$ , la condition de symétrie suivante est respectée:

$$M_{ij} = M_{ji} \quad i \neq j \tag{21}$$

La règle d'incompressibilité du matériau, qui se traduit par la conservation du volume dans le domaine des contraintes et des déformations plastiques susceptibles d'être atteintes en fonctionnement, conduit aux conditions suivantes:

$$\Sigma_{i} dE_{i} = 0$$
 (22)

$$\Sigma_{i} M_{ij} = 0$$
 (23)

$$\Sigma_{i} L_{i} = 0 \tag{24}$$

Ainsi, la détermination expérimentale, par des essais uniaxés et biaxés en traction/compression, des trois paramètres  $M_{\underline{i}\underline{i}}$  et de deux des trois  $L_{\underline{i}}$  est suffisante pour caractériser l'état d'anisotropie mécanique du matériau.

# 2.2.3 - Conclusion

Sous réserve de vérifier la validité de certaines hypothèses, le comportement mécanique anisotrope du tube de gaine dans le domaine élastique peut être modélisé dans un logiciel 1D.

Deux modèles décrivant l'anisotropie mécanique en

plasticité sont proposés et ont l'avantage d'être aisément intégrables dans un logiciel 1D.

Le modèle de Hill est très séduisant par sa simplicité. On le retrouve généralement dans les logiciels prenant en compte l'anisotropie. Néanmoins, il présente deux inconvénients majeurs:

-il fait appel à une normalisation arbitraire;

-les coefficients R et P varient en fonction de l'état de sollicitation de la gaine (traction ou compression), ce qui pose problème pour la simulation du comportement mécanique sous chargements cycliques.

Le modèle de Lee offre l'avantage de prendre en compte les effets différentiels traction/compression. La détermination expérimentale des coefficients est beaucoup plus complexe.

Les résultats du programme d'étude engagé au département EMA apporteront les éléments qui permettront de trancher sur le type de modèle le plus approprié. On propose dans un premier temps de s'orienter vers le modèle de Hill, sachant qu'une option ultérieure pour l'approche de Lee ne remettra pas en cause le choix du futur logiciel d'accueil.

### 2.3 - LOIS DE COMPORTEMENT

Les lois de comportement mécanique du matériau de gainage en plasticité et en fluage (thermique et d'irradiation) s'exprimeront sous la forme d'équations en termes de déformation et de contrainte équivalente.

Elles pourront être fonction de la température, de la composition chimique (à titre d'exemple, les teneurs en Sn et en O<sub>2</sub> ont une influence significative ) et de l'état métallurgique (microstructure et texture).

Pour un matériau anisotrope, la détermination complète de ces lois passe par des essais uniaxés et biaxés.

En réacteur, la déformation permanente par fluage du matériau de gainage est amplifiée par le flux neutronique de haute énergie (>80 KeV environ). Pour décrire le phénomène, il est usuel de simplifier le problème en considérant que la vitesse de fluage se décompose en deux termes: où Kest en W/cm/K et TEN K

(dE/dt)<sub>t</sub> = (dE/dt)<sub>th</sub> + (dE/dt)<sub>irr</sub>
(dE/dt)<sub>t</sub> : vitesse totale de déformation
(dE/dt)<sub>th</sub> : fluage thermique
(dE/dt)<sub>irr</sub>: fluage d'irradiation

Dans les conditions normales de fonctionnement en réacteur, hors transitoires rapides de puissance, la gaine du crayon combustible est soumise pendant la première partie de l'irradiation à une contrainte circonférentielle de compression variant de -60 à -100 MPa en fonction des conditions de pressurisation initiale. Lorsque le jeu pastille-gaine se referme, la gaine est sollicitée progressivement en traction et la contrainte tend vers un état d'équilibre correspondant au conditionnement (ref /11/).

- 68 -

Cette contrainte de conditionnement est d'autant plus élevée que le matériau de gainage est résistant au fluage; dans un REP commercial, elle oscille entre 40 MPa pour du Zircaloy détendu et 100 Mpa pour du Zircaloy recristallisé  $\alpha$ .

Compte tenu des températures (300 à 400°C) et de ces niveaux de contraintes, le fluage thermique est faible devant le fluage activé par l'irradiation. De plus, aucune déformation par plasticité n'est à craindre.

Il est donc raisonnablement possible en irradiation dite "de base" de simuler la déformation permanente de la gaine en se limitant au terme de fluage d'irradiation.

Par contre, en cas de transitoire accidentel, ou de variations rapides de puissance (téléréglage), ou encore d'un retour à pleine puissance après un fonctionnement prolongé à puissance réduite, les niveaux de contrainte atteints peuvent être suffisamment élevés pour que le fluage thermique et même la plasticité deviennent des termes du premier ordre.

### 2.3.1 - Plasticité et fluage thermique

### 2.3.1.1 - Position du problème

Supposons que le comportement en fluage thermique du matériau obéisse à une loi générale du type:

### (25)
$$\mathcal{E}_{eq} = A K(T) f(\mathcal{O}_{eq}) t^n$$

La vitesse de déformation, obtenue en dérivant

l'équation (26), s'écrit:

# $dE_{eq}/dt = n A K(T) f(G_{eq}) t^{n-1}$ (27)

Si les conditions de chargement (contrainte et température) sont stables, la déformation accumulée à un instant donné s'obtient de façon explicite par l'équation (26).

Si, par contre, les conditions de chargement varient dans le temps, par exemple dans une configuration de relaxation des contraintes, il faut pouvoir cumuler les déformations entre des états différents. Pour se faire, on a le choix entre deux hypothèses:

-la première, dite de "l'écrouissage par le temps" (time hardening), où la réponse du matériau dépend de l'état de chargement instantané; en d'autres termes, le durcissement du matériau résultant de la déformation de fluage est uniquement fonction du temps. Le principe de cette approche est schématisé à la figure 2a qui montre que la déformation cumulée à un instant donné s'obtient explicitement par intégration de l'équation (27);

- la deuxième, dite de "l'écrouissage par la déformation" (strain hardening), dans laquelle la réponse du matériau à un instant donné est fonction de son historique de déformation (effet mémoire). La règle du "strain hardening" s'exprime en éliminant le temps entre les équations (26) et (27):

> $d\mathcal{E}_{eq}/dt = n \ \mathcal{E}_{eq}^{(n-1)/n} \ \{ \mathbb{A} \ \mathbb{K}(\mathbb{T}) \ \mathbf{f}(\mathbf{G}_{eq}) \}^{1/n}$ (28) De (28), on déduit  $\mathbf{G}_{eq} = \mathbf{f}^{-1} \{ \mathbb{B} \ (d\mathcal{E}_{eq}/dt)^n \ \mathbf{E}_{eq}^{1-n} \}$ (29)

avec  $B = 1/\{n^n \in K(T)\}$ 

L'équation (29) est typique d'une loi d'écrouissage classique. Le principe de cette approche est illustré à la figure 2b, montrant que la variation de déformation dans un intervalle de

(26)

temps dépend de la déformation cumulée.

L'hypothèse du "strain hardening" présente l'avantage de pouvoir décrire les phénomènes de plasticité et de fluage thermique du matériau par une loi unique. La validité de cette hypothère doit néanmoins être vérifiée expérimentalement.

- 70 -





궈

(a) "Time hardening"

(b) "Strain hardening"

FIGURE 2 - Fluage thermique du Zircaloy - Cumul des déformations: hypothèses de "strain hardening" et de "time hardening" Viscosie re 1

# - 71 -

- 5

# 2.3.1.2 - Lois de comportement

Parmi toutes les lois de fluage thermique existantes, nous avons comparé trois formulations :

a/ la loi de fluage thermique, utilisée dans CYRANO, qui est exprimée en termes de déformation et contrainte tangentielles. Cette corrélation superpose une composante primaire exprimée suivant une loi exponentielle et une composante secondaire obéissant à une loi type Norton.

 $\epsilon_{\theta ch} = \{ C_{ch} \epsilon_{fab} (1 - e^{-\lambda t}) + t \} (d\epsilon_s/dt) F_{rec}$ (30)

 $C_{th} = 4450$ 

Ş

 $\mathcal{E}_{fab}$ : déformation de fluage (%) obtenue dans un test à 400 °C, 100 MPa, 250 heures. (Valeur moyenne sur matériau détendu = 0,6)

 $\lambda$ : constante de temps de la composante primaire = 4,5 10-3 /h

t : temps en heures

 $F_{rec}$ : facteur tenant compte du traitement thermique final de fabrication. Il est calculé par la relation:

 $F_{rec} = 1,816 \ 10^{-4} \exp\{ 6400 / (T_{rec} + 273, 15) \}$  (31)

Trec étant la température de traitement (°C)

dEs/dt : vitesse de fluage secondaire formulée par:

$$dE_s/dt = A_{th} \exp\{-K/(T_g + 273, 15)\} \sigma_0^n$$
 (32)

3

 $A_{\rm th} = 9,529 \ 10^{17}$ 

 $n = e^{(2,304 \ 10-3 \ \sigma_{A} - \ 0,413)}$ 

K = 39000

**G9:** contrainte tangentielle (MPa)

T<sub>q</sub> : température de gaine (°C)

Cette loi a été validée sur la base de données WESTINGHOUSE constituée à partir d'essais de fluage réalisés sur des gaines non-irradiées à 385 °C et dans une gamme de contraintes variant de 200 à 345 MPa (ref /119/). De plus, les constantes ont été affinées sur les résultats des essais de fluage sous pression interne (400 °C, 120 MPa, 250 heures) réalisés, dans le cadre des tests de recette, sur le matériau détendu standard FRAGEMA au GDL/SCMI et au LCQG (ref /36/);

b/ la deuxième corrélation est celle proposée par Gittus. Elle s'inspire de la loi de Bailey-Norton et est extraite de la référence /52/:

$$\begin{split} & \epsilon_{eq,th} = C_{th} \; \sigma_{eq}{}^n \; exp\{ \; K(T_g - 300) / (T_g + 273, 15) \; \} \; t^p \quad (33) \\ & \epsilon_{eq,th} : \; déformation équivalente de fluage thermique (-) \\ & \sigma_{eq} : \; contrainte équivalente \; (MPa) \\ & t : \; temps \; (heures) \\ & T_g : \; température de gaine (°C) \\ & n = 2,76 \\ & p = 0,085 \\ & K = 11,5 \end{split}$$

 $\label{eq:particular} \begin{array}{l} \mbox{Par cohérence avec la loi utilisée dans CYRANO,} \\ \mbox{la constante $C_{th}$ sera ajustée à partir des résultats des essais de recette sur \\ \mbox{les gaines détendues FRAGEMA évoqués plus haut. De plus, conformément à \\ \mbox{l'approche de Gittus, le matériau est considéré isotrope, ce qui, pour une configuration biaxée ($G_z = $G_0/2$), conduit à: \\ \end{array}$ 

 $\boldsymbol{\varepsilon}_{eq} = 1,155 \boldsymbol{\varepsilon}_{\boldsymbol{\theta}}$  $\boldsymbol{\sigma}_{eq} = 0,866 \boldsymbol{\sigma}_{\boldsymbol{\theta}}$ 

Pour les conditions (400 °C, 120 MPa, 250 h), on a une déformation moyenne  $\mathcal{E}_{0} = 0.95$  %, ce qui conduit à  $C_{\rm th} = 3.3755 \ 10^{-9}$ .

c/ la troisième corrélation est celle

- 72 -

.3

-

- 73 -

programmée dans COMETHE III-L (ref /42/ et /62/), où la contrainte équivalente est opérande d'un sinus hyperbolique. Elle est un ajustement empirique du modèle à variables internes proposé par Miller (ref /45/):

 $\boldsymbol{\varepsilon}_{eg,th} = F(T_g) \sinh(a_0 \sigma_{eg}) t^{0,5}$ (34)

 $F(T_{q}) = C_{th} \exp\{ K(T_{q} - 315) / (T_{q} + 273, 15) \}$ (35)

 $K = 27 \text{ pour } T_g > 315 \text{ °C et } K = 5,62 \text{ pour } T_g < 315 \text{ °C}$  $a_0 = 0,0156$ 

 $\mathcal{E}_{eq,th}$ : déformation équivalente de fluage thermique (-)  $\sigma_{eq}$ : contrainte équivalente (MPa)

t : temps (heures)

 $T_{\sigma}$  : température de gaine (°C)

Dans COMETHE III-L, la gaine est traitée comme un matériau anisotrope conformément à la théorie de Hill (cf.§ 2.2.2.1) avec la normalisation (14).

Dans le cas d'une configuration biaxée ( $\sigma_z = \sigma_{\theta}/2$ ), l'équation (34) devient:

$$\mathbf{\mathcal{E}}_{\text{fth}} = \mathbf{A}_{\theta} \mathbf{F}(\mathbf{T}_{g}) \sinh(\mathbf{a}_{0} \mathbf{B}_{\theta} \mathbf{\sigma}_{\theta}) \mathbf{t}^{0,5}$$
(36)

les coefficients A<sub>0</sub> et B<sub>0</sub> étant corrélés aux facteurs d'anisotropie F<sub>i</sub> (i = r,0,z ) via la normalisation (14) et le couple de valeurs (R, P).

Pour un matériau détendu, on retient R = 1,6 et P = 2,6, ce qui conduit aux valeurs suivantes: Ag = 0,86 et Bg = 0,768.

Comme précédemment, on ajuste la constante  $C_{\rm th}$  de (35) sur les essais de recette, ce qui donne  $C_{\rm th} = 1,159 \ 10^{-5}$ .

Nous avons alors confronté les prédictions de la loi retenue dans CYRANO avec celles des deux autres corrélations sur une base de données constituées par les résultats d'essais de fluage sous pression interne.

Ces données expérimentales concernent uniquement le matériau détendu et couvrent une gamme de contraintes assez avec les conditions de symétrie:

$$\frac{\mathbf{v}_{r\theta}}{\mathbf{E}_{r}} = \frac{\mathbf{v}_{\theta r}}{\mathbf{E}_{\theta}} ; \frac{\mathbf{v}_{rz}}{\mathbf{E}_{r}} = \frac{\mathbf{v}_{zr}}{\mathbf{E}_{z}} ; \frac{\mathbf{v}_{\theta z}}{\mathbf{E}_{\theta}} = \frac{\mathbf{v}_{z\theta}}{\mathbf{E}_{z}}$$

(2)

- 74 -

large (70 - 220 MPa) dans le domaine de température 350-400 °C (réf /12/,/36/,/42/,/104/ et /105/).

Les tableaux I et II ainsi que les figures 3 à 6 comparent les déformations de fluage biaxé  $\epsilon_{0,th}$  calculées par les trois lois aux résultats expérimentaux cohérents avec les conditions ( $T_g$ ,  $\sigma_0$ , t) imposées.

#### TABLEAU I - Fluage thermique du tube de gainage Comparaison calculs et expérience sur des essais biaxés sous pression interne

| Température<br>Tec (°C) | Contrainte<br>Ga (MPa) | Temps<br>(neures) |            | Déformation<br>EAth | diamétrale |         |
|-------------------------|------------------------|-------------------|------------|---------------------|------------|---------|
| -y ( 0/                 | -0                     | (                 | Expérience | CYRANO              | GITTUS     | C.III-L |
|                         |                        | 50                | 0,070      | 0,010               | 0,115      | 0,068   |
| 371                     | 68,9                   | 100               | 0,105      | 0,019               | 0,122      | 0,096   |
|                         |                        | 150               | 0,125      | 0,025               | 0,127      | 0,118   |
|                         |                        | 200               | 0,137      | 0,031               | 0,130      | 0,136   |
|                         |                        | 50                | 0,165      | 0,019               | 0,353      | 0,117   |
| 371                     | 103,3                  | 100               | 0,220      | 0,034               | 0,374      | 0,165   |
|                         |                        | 150               | 0,257      | 0,047               | 0,387      | 0,202   |
|                         |                        | 200               | 0,280      | 0,057               | 0,397      | 0,233   |
|                         |                        | 50                | 0,175      | 0,128               | 0,177      | 0,190   |
|                         |                        |                   | 0,200      |                     |            |         |
| 399                     | 68, 9                  | 100               | 0,235      | 0,232               | 0,187      | 0,269   |
|                         |                        |                   | 0,275      |                     |            |         |
|                         |                        | 150               | 0,292      | 0,316               | 0,194      | 0,330   |
|                         |                        |                   | 0,337      |                     |            |         |
|                         |                        | 200               | 0,330      | 0,384               | 0,199      | 0,381   |
|                         |                        | ļ                 | 0,390      |                     | <u> </u>   |         |
|                         |                        | 50                | 0,390      | 0,236               | 0,540      | 0,326   |
| 399                     | 103,3                  | 100               | 0,605      | 0,427               | 0,573      | 0,461   |
|                         |                        | 150               | 0,755      | 0,582               | 0,593      | 0,565   |
|                         |                        | 200               | 0,885      | 0,708               | 0.607      | 0,652   |

Matériau S1 : fabrication SANDVIK SPECIAL METAL détendu 485 °C (réf./12/ & /42/)

# TABLEAU II - Fluage thermique du tube de gainage Comparaison calculs et expérience sur des essais biaxés sous pression interne

- 75 -

i Ť

| Température | Contrainte | Temps    |            | Déformation | diamétrale |         |
|-------------|------------|----------|------------|-------------|------------|---------|
| Tg (°C)     | σθ (MPa)   | (heures) | ደብረት (%)   |             |            |         |
| -           |            |          | Expérience | CYRANO      | GITTUS     | C.III-L |
| 350         | 110        | 250      | 0,17       | 0,007       | 0,341      | 0,125   |
|             |            | 500      | 0,22       | 0,01        | 0,361      | 0,177   |
|             |            | 1000     | 0,30       | 0,012       | 0,383      | 0,25    |
| 350         |            | 250      | 0,15       | 0,008       | 0,433      | 0,143   |
|             |            | 500      | 0,23       | 0,012       | 0,459      | 0,202   |
|             | 120        | 1000     | 0,31       | 0,015       | 0,487      | 0,286   |
|             |            | 1500     | 0,37       | 0,017       | 0,504      | 0,351   |
|             |            | 2000     | 0,43       | 0,019       | 0,517      | 0,405   |
|             |            | 2500     | 0,48       | 0,021       | 0,527      | 0,453   |
| 350         |            | -250     | 0,26       | 0,012       | 0,663      | 0,186   |
|             | . 140      | 500      | 0,37       | 0,016       | 0,703      | 0,263   |
|             |            | 1000     | 0,47       | 0,021       | 0,745      | 0,372   |
|             |            | 2000     | 0,60       | 0,026       | 0,791      | 0,526   |
| 350         |            | 250      | 0,47       | 0,023       | 1,326      | 0,307   |
|             | 180        | 500      | 0,68       | 0,032       | 1,406      | 0,435   |
|             |            | 1000     | 0,88       | 0,041       | 1,492      | 0,615   |
|             |            | 2000     | 1,16       | 0,052       | 1,582      | 0,869   |
| 350         |            | 250      | 0,79       | 0,048       | 2,307      | 0,50    |
|             |            | 500      | 1,16       | 0,067       | 2,447      | 0,708   |
|             | 220        | 750      | 1,37       | 0,077       | 2,533      | 0,867   |
|             |            | 1000     | 1,60       | 0,084       | 2,595      | 1,002   |
|             |            | 2000     | 2,15       | 0,108       | 2,753      | 1,416   |
| 400         | 120        | 250      | 0,95       | 0,866       | 0,95       | 0,95    |
| 400         | 130        | 240      | 1,30       | 1,0         | 1,181      | 1,063   |
|             |            |          | 1,44       | <u> </u>    |            |         |
| 400         | 228        | 240      | 13 21      | 5.64        | E ECC      | 3 50    |

Matériau détendu standard FRAGEMA (réf./104/, /105/ & /36/)

- les axes d'anisotropie sont orthogonaux et confondus





anisotropie i 1 = r, 2, via no is . et P sont pris respectivement égaux à 1,6 et 2,6, valeurs généralement retenues pour du Zircaloy 4 détendu. On constate un écart supérieur à 35 % sur la déformation calculée, la normalisation (14) donnant les valeurs maximales.





FIGURE 5 - Comparaison des lois de fluage thermique du Zircaloy 4 Matériau détendu S1 3712. Essai sous pression interne (399 °C, 69 & (103 MPa) Loi: CYRANO (1), GITTUS (2), COMETHE III-L (3) Á, 0 : points expérimentaux

.

-----

- - -

ب <sup>مر</sup>می ا پی بالی ا

L'analyse de ces résultats appelle les

commentaires suivants:

- à 350 °C, la loi de Gittus surestime systématiquement la déformation de fluage, quel que soit le niveau de contrainte. A 400 °C, elle s'ajuste relativement bien sur deux points expérimentaux du matériau S1, 50 heures pour la faible contrainte et 100 heures pour la contrainte élevée. En deçà de ces temps, elle surestime; au delà, elle sous-estime. Cette loi ne semble pas du tout représentative de la cinétique de fluage du matériau, en particulier dans le domaine primaire;

- la corrélation de CYRANO a été validée dans un domaine de température trop restreint (385 - 400 °C). Il en résulte une sous-estimation importante de la déformation aux basses températures: à 350 °C, on observe plus d'un facteur 20 entre l'expérience et le calcul alors qu'à 371 °C, l'écart expérience-calcul se réduit à un facteur 5. Au voisinage de 400 °C, elle est en bon accord avec les déformations expérimentales mesurées sur le matériau S1, en particulier à faible contrainte. Un réajustement des constantes des équations (30) et (32) devrait permettre de mieux cerner les résultats expérimentaux;

- les calculs avec la loi de COMETHE III-L semblent bien reproduire l'expérience dans le domaine des contraintes 70-140 MFa. Pour des contraintes supérieures à 140 MFa, la corrélation a tendance à sous-estimer la déformation de fluage, l'écart s'amplifiant avec la contrainte. En fait, au delà de 140 MFa, on sort du domaine de validation. Néanmoins, on constate une évolution homothétique dans le temps entre la déformation calculée et la déformation expérimentale. La sensibilité à la température est bien représentée.

En conclusion, nous proposons de retenir, dans un premier temps, la corrélation (34) pour décrire le comportement en fluage thermique du matériau détendu standard.

Par contre, cette corrélation ainsi que les deux autres ne tiennent pas compte d'une éventuelle différence de comportement entre la traction (pression interne) et la compression (pression externe), comme le montrent les quelques résultats existants, obtenus par Stehle (ref /96/) et illustrés à la figure 7:

- 80 -



FIGURE 7 - Comparaison du fluage thermique du Zircaloy 4 en traction et en compression Matériau détendu KWU: Essai sous prassion interme et extreme (370°C, 140 MPa)

La base de données expérimentales actuellement disponible est donc trop limitée. Les études en cours permettront de l'élargir dans la gamme de températures comprises entre 350 et 450 °C, surtout à fortes contraintes de traction pour la simulation des cinétiques rapides de relaxation et à des contraintes de compression représentatives des conditions de fonctionnement en réacteur. Ces études aboutiront vraisemblablement à une formulation plus phénomélogique du comportement viscoplastique, tel qu'un modèle proche de celui de A.K.Miller par exemple (ref /45/).

- 81 -

Le comportement en plasticité peut être actuellement décrit par l'équation suivante, obtenue en appliquant la règle du "strain hardening" à la relation (34):

$$\boldsymbol{\sigma}_{eq} = 1/a_0 \sinh^{-1} \{ (2 \boldsymbol{\epsilon}_{eq} d\boldsymbol{\epsilon}_{eq}/dt)^{0,5}/F(T_g) \}$$
(37)

Cette équation peut aussi se ramener, avec une bonne approximation dans le domaine des déformations et contraintes de fonctionnement, à une loi logarithmique:

$$\sigma_{eq} = 1/a_0 \ln\{ (2 \ \epsilon_{eq} \ d\epsilon_{eq}/dt)^{0,5}/F(T_g) \}$$
(38)

L'effet de l'irradiation peut être simulé via le paramètre a<sub>0</sub>. L'irradiation provoque un durcissement du matériau et cet effet se traduit par une évolution décroissante de a<sub>0</sub> avec la fluence. Les résultats des essais mécaniques réalisés par le CEA sur le matériau détendu (ref /104/) devraient permettre de dégager une tendance. A titre d'exemple, le tableau III donne la limite à 0,2 % déterminée dans des essais d'éclatement biaxé en fonction de la fluence rapide (E > 1 Mev).

TABLEAU III - Essais d'éclatement biaxé sur Zircaloy 4 détendu Limite d'élasticité à 0,2 % en fonction de la fluence (E > 1 Mev) /104/

| $\Phi t (n/cm^2)$  | Rp0,2 (MPa) |
|--------------------|-------------|
| 0                  | 430         |
| 10 <sup>20</sup>   | 492         |
| 5 10 <sup>20</sup> | 552         |
| 10 <sup>21</sup>   | 576         |
| 5 10 <sup>21</sup> | 636         |

Une régression non linéaire réalisée sur ces données montre que le  $R_{p0,2}$  suit une loi puissance en fonction de la fluence du type:

$$Y = Y_0 + k \ (0^{\pm})^n \tag{39}$$

: /:

figure 2b, montrant que la variation e

A partir de ces résultats d'essais d'éclatement, on pourra extraire une loi d'évolution du paramètre a<sub>0</sub> en fonction du taux d'irradiation et en vérifier sa validité sur les données de fluage thermique.

# 2.3.2 - Fluage d'irradiation 2.3.2.1 - Corrélation initialement programmée dans CYRANO

Comme pour le fluage thermique, la corrélation initialement utilisée par CYRANO tient compte de la température du dernier traitement thermique subi par la gaine en fabrication (TREF) et de la déformation  $\mathcal{E}_{fab}$  mesurée après un test de fluage biaxé à (400°C, 100 MPa, 250 heures).

Le modèle ainsi développé par le SEPTEN (ref /49/) permet de simuler le comportement de différents gainages en Zircaloy 4.

La corrélation comporte une composante primaire et secondaire; elle est de la forme:

 $\mathbf{\mathcal{E}}_{\text{firr}} = ((\mathbf{C}_{\text{irr}} \mathbf{\mathcal{E}}_{\text{fab}} (1 - \exp(-\mathbf{K}_{\text{irr}} t)) + t) (d\mathbf{\mathcal{E}}/dt)_{\text{irr}}) \mathbf{F}_{\text{rec}} (40)$ 

 $\begin{aligned} & \epsilon_{0,irr} : déformation tangentielle (-) \\ & C_{irr} = 4000 \\ & K_{irr} = 3 \ 10^{-3} \\ & t : temps (heures) \\ & \epsilon_{f:k} : test de fluage hors pile (%) \\ & F_{rec} = 1,816 \ 10^{-4} \exp\{6400/(T_{rec} + 273,15)\} \ (cf \ §2.3.1.1) \\ & (d\epsilon/dt)_{irr} = \lambda_{irr} \ \phi^{pirr} \ c_{0}^{nirr} \\ & (41) \\ & \lambda_{irr} = 1,2 \ 10^{-22} \\ & p_{irr} = 1 \\ & h_{irr} = 1 \end{aligned}$ 

 $\phi$ : flux neutronique (E > 1 Mev, n/cm2/s)

**Go:** contrainte tangentielle (MPa)

#### 2.3.2.2 - Corrélations utilisées actuellement

Suite à une étude bibliographique, le SEPTEN a adopté en 1989 un système de deux corrélations pour tenir compte de la différence de comportement du matériau de gainage en traction et en compression (ref /15/).

Concernant le fluage d'irradiation en compression, la formulation retenue est celle proposée par SHAH et TOLLI (ref /90/). C'est une loi du type Norton ajustée par régression linéaire multiple sur les résultats d'irradiation de tubes vides en Zircaloy 4 dans des réacteurs de puissance (OCONEE 2 et CALVERT CLIFFS 1) et expérimentaux (HALDEN).

La formulation est la suivante:

(42)

 $\epsilon_{0,irr} = A \phi^{c} t^{m} C_{0}^{n} exp(-Q/T)$   $A = 8,6614 \ 10^{-9}$  m = 0,548 n = 0,656 p = 0,640 Q = 8631 T : température de gaine (°K)  $\phi : flux neutronique (E > 1 Mev, n/cm2/s)$  $G_{0}: contrainte tangentielle (MPa)$ 

Pour le fluage de la gaine en traction, se référant à une base de données incluant des résultats post-irradiation sur des gainages en Zircaloy 2 et Zircaloy 4 sollicités en traction, le Septen propose une loi en sinus hyperbolique de la contrainte inspirée du modèle développé par WATKINS et WOOD:

 $\mathbf{\mathcal{E}}_{\mathbf{Q},\mathrm{irr}} = \mathbf{A} \, \boldsymbol{\phi}^{\mathrm{p}} \, \mathbf{t}^{\mathrm{m}} \, \sinh(\boldsymbol{\alpha} \boldsymbol{\sigma}) \, \exp\left(-\mathbf{Q}/\mathbf{T}\right) \tag{43}$ 

L'ajustement par régression multiple non linéaire conduit aux valeurs des constantes suivantes:

# - 84 -

T<sub>q</sub> : température de gaine (°C)

- 85 -

 $A = 9, 6 \ 10^{-5}$ m = 0,4266 p = 0,3834 Q = 7209  $\alpha$  = 0,0112

Cette corrélation en sinus hyperbolique de la contrainte a été choisie pour mieux simuler la cinétique de relaxation en cas d'interaction pastille-gaine, compte tenu de sa validité à fortes contraintes. La base de données couvre un domaine de 57 à 412 MPa (ref /64/).

# 2.3.2.3 - Orientations à prendre pour ces modélisations

. . . .

١.

 $\lambda_{i}$ 

Concernant le premier modèle en compression, la base de données de SHAH et TOLLI donne une trop forte importance à la température, conduisant à des problèmes de simulation dans les réacteurs à température de réfrigérant primaire plus basse que dans les REP commerciaux (appelés communément réacteurs froids). La base de données utilisée couvre en fait une gamme de température trop restreinte.

C'est la raison pour laquelle, reprenant l'ensemble des données disponibles, nous avons réljusté les coefficients de la loi de Norton par régression linéaire multiple.

La corrélation obtenue donne un poids moitié moindre à la température et met en évidence une meilleure adéquation, comme le confirme la comparaison expérience-calcul présentée dans les figures 8 à 10.

Nous proposons donc de retenir les valeurs suivantes pour les constantes de l'équation (42):

 $A = 4,196 \ 10^{-9}$ ; m = 0,402; n = 1,314p = 0,360; Q = 3958

En ce qui concerne la simulation de la cinétique de relaxation en traction, il est nécessaire de combiner une loi de fluage sous irradiation telle que celle du SEPTEN avec une loi de fluage thermique telle que celle proposée au § 3.1.2.



la

c/

troisième

corrélation

est

celle

· .



FIGURE 9 - Fluage d'irradiation sur gaines en Zircaloy 4 détendues Comparaison expérience - calcul Corrélation de SHAH et TOLLI



÷.

, ; ני

FIGURE 10 - Fluage d'irradiation sur gaines en Zircaloy 4 détendues Comparaison expérience - calcul Corrélation de SHAH et TOLLI optimisée

Il restera à corréler ces lois de comportement à fortes contraintes sur des données provenant de matériaux de gainage irradiés.

- 89 -

Il faudra aussi exprimer les lois de fluage en termes de déformation et de contrainte équivalentes dès que le choix d'une théorie de l'anisotropie mécanique du matériau aura été arrêté.

# 2.4 DILATATION THERMIQUE

400

22

Le coefficient de dilatation thermique est principalement fonction de la température locale. La corrélation programmée actuellement dans le logiciel CYRANO 2C (ref /120/) provient de MATPRO (ref /57/) et décrit la dilatation thermique dans la direction circonférentielle:

$$\Delta D/D = -2,373 \ 10^{-4} + 6,721 \ 10^{-6} \ T \tag{44}$$

T est la température (°C)

Par son anisotropie naturelle, le matériau de gainage présente une dilatation dans le sens axial différente. Cette composante peut être évaluée par la deuxième loi proposée par REYMAN dans MATPRO (ref /57/):

 $\Delta L/L = -2,506 \ 10^{-5} + 4,441 \ 10^{-6} \ T$ (45)

T est la température (°C)

Les équations (44) et (45) s'appliquent uniquement pour le matériau dans la phase  $\alpha$  (20 < T < 800 °C).

# 2.5 - ALLONGEMENT DE LA GAINE SOUS IRRADIATION

L'allongement global du tube de gainage durant l'irradiation résulte de trois phénomènes distincts:

- la dilatation thermique axiale (cf § 2.4)

- la composante axiale du fluage (cf § 2.3)

- le grandissement

Le grandissement du Zircaloy est une déformation induite par le

FIGURE 3 - Comparaison des lois de fluage thermique du Zircaloy 4 Matériau détendu standard FRAGEMA Essai sous pression interne (350 °C, 120 MPa) Loi: CYRANO (1), GITTUS (2), COMETHE III-L (3) + = points expérimentaux

<u>ي</u> اً د

- 90 -

bombardement neutronique (E > 1 MeV) en l'abscence de toute contrainte. Il est proportionnel à la concentration de défauts cristallins (interstitiels et lacunes) qui sont libres de migrer vers des sites préférentiels. Ce phénomène est très sensible à la microstructure du matériau et à la texture cristallographique.

Pour ce qui est de l'aspect microstructural, on observe qu'un matériau recristallisé  $\alpha$  grandit environ deux fois moins qu'un matériau détendu. Cet effet est encore plus marqué pour un Zircaloy trempé  $\beta$ .

La texture de laminage conduit à une croissance  $(G_i)$  de la gaine dans la direction i proportionnelle à la fraction résolue des pôles de base [0002] f<sub>i</sub> suivant cette direction tel que (ref /1/ et /2/):

$$G_{i} \div (1-3 f_{i})$$
  $i = r, \theta, z$  (46)

Le phénomène s'opère donc à volume constant ( $\Sigma$  f<sub>i</sub> = 1).

Dans le matériau détendu standard FRAGEMA, les pôles de base sont préférentiellement orientés dans les directions radiale ( $f_r \sim 0.65$ ) et tangentielle ( $f_0 \sim 0.3$ ). En conséquence, le facteur  $f_z$  étant quasiment nul, le grandissement s'effectue majoritairement dans le sens axial suivant une cinétique proportionnelle à la fluence et la composante tangentielle est négligeable. Cela se traduit par les conditions:

**€<sub>θ,g</sub> = 0** 

n = 0,7

\_\_\_\_\_

 $\mathcal{E}_{r,g} = -\mathcal{E}_{z,g}$ 

Pour ce type de matériau, la déformation de grandissement peut être alors évaluée par une loi du type:

$$\mathbf{\mathcal{E}}_{\mathbf{z},\mathbf{q}} = \mathbf{C} \ (\mathbf{\Phi}_{\mathbf{L}})^{\mathbf{n}} \tag{47}$$

Cette loi est programmée actuellement dans le logiciel CYRANO avec, pour les constantes, les valeurs suivantes:

 $C=3,312\ 10^{-18}$  pour les gaines FRAGEMA et  $C=2,494\ 10^{-18}$  pour les gaines KWU.

 $\Phi$ t: fluence est exprimée en n/cm<sup>2</sup>.

Matériau détendu standard FRAGEMA Essai sous pression interne (350°C, 220 MPa) Loi: CYRANO (1), GITTUS (2), COMETHE III-L (3) Q = points expérimentaux

- 91 -

Cette loi ne tient pas compte de la température. L'influence de ce paramètre est d'ailleurs relativement mal maîtrisée et l'ensemble de la littérature traitant du sujet ne permet pas de définir une corrélation générale (ref /1/, /2/, /102/ et /44/). Les auteurs s'accordent cependant sur deux points:

- le phénomène s'accélère au delà de 400 °C;

- dans les conditions de fonctionnement des REP, le grandissement varie peu avec la température du gainage.

La validité de cette deuxième hypothèse est acceptable à condition qu'il n'y ait pas de surchauffe locale. En effet, la distribution axiale de la température moyenne de gaine ne varie pas de façon homothétique au cours de l'irradiation du fait de la formation de la couche de zircone plus importante en haut du crayon. Il y a donc lieu d'être prudent sur le domaine de validité des corrélations que l'on peut actuellement proposer.

On peut retenir que dans MATPRO (ref /57/), D.L.HAGRMAN propose une corrélation en  $\sqrt{\phi t}$ , prenant en compte la température, l'écrouissage résiduel CW et le facteur de texture f<sub>z</sub>:

> $\mathcal{E}_{z,g} = 1,407 \ 10^{-16} \exp(240,8/T) \sqrt{\Phi t} \ (1-3 f_z) \ (1 + 2 CW) \ (48)$ T : température (<sup>6</sup>K)  $\Phi t$  : fluence  $(n/m^2)$

Cette formulation est calibrée dans un domaine de températures se situant entre 40 et 360 °C. Elle a l'avantage de généraliser le formalisme à tout type de gainage, sous réserve de connaître bien évidemment les paramètres métallurgiques. Dans le cas de cette formulation, le grandissement s'amplifie quand la température diminue; cela va dans le sens des résultats observés sur les crayons combustibles irradiés dans le BR3 et dans les REP.

Par contre, dès que la couche de zircone devient importante et que la température moyenne de la gaine s'accroît au delà de 360 °C, il faut devenir prudent quant à l'utilisation d'une telle loi qui va à l'encontre des résultats expérimentaux (ref /44/) à ces températures.

Pour conclure, il n'existe actuellement pas dans la littérature de

modèle couvrant les domaines de fluence rapide et de températures susceptibles d'être atteints par le crayon combustible à fort épuisement massique. Des expérimentations complémentaires sont nécessaires pour aboutir à une modélisation plus élaborée du phénomène. Si cela est envisageable pour les nouveaux produits en cours de développement, nous recommandons de s'orienter pour le matériau détendu actuel vers un modèle assez conservatif tel que celui de MATPRO dont les constantes pourraient être réajustées sur la base des données disponibles.

#### 3 - RUPTURE DE GAINE PAR IPG

- ---

L'augmentation du taux de combustion au déchargement associée à des conditions de fonctionnement cycliques en puissance (suivi de charge, téléréglage) amplifie le risque à rupture du matériau par Interaction Pastille Gaine.

#### 3.1 - MECANISMES DE RUPTURE

On peut distinguer deux mécanismes probables de rupture de gaine par IPG:

#### 3.1.1 - Rupture par dépassement de la limite d'élasticité

La contrainte tangentielle sur la surface interne de la gaine dépasse la limite d'élasticité du matériau irradié. Comme la ductilité du Zircaloy diminue avec l'irradiation (moins de 1 % soit de plus d'un facteur 3 à des fluences rapides E > 1 Mev avoisinant 5  $10^{21}$  n/cm<sup>2</sup> où le risque de rupture devient prépondérant), on dispose de peu de marges sur la déformation plastique tangentielle de la gaine. A très fortes doses (>  $10^{22}$  n/cm<sup>2</sup>), on peut considérer que l'on se trouve en présence d'une rupture fragile.

Ce cas de figure est très rare car, du fait du durcissement induit par le bombardement neutronique, les contraintes d'IPG devraient excéder plus de 650 MPa aux doses indiquées.

La modélisation de cette situation est relativement simple: on considérera que la rupture de la gaine surviendra instantanément lorsque la condition suivante sera vérifiée:

$$\mathbf{G}_{\theta,i} \geq \mathbf{R}_{\theta 0}(\Phi t) \tag{1}$$

- 92 -

cù  $\sigma_{\theta,i}$  est la contrainte tangentielle sur la surface interne de la gaine et  $R_{\theta 0}(\Phi t)$  la limite d'élasticité déterminée dans un essai d'éclatement biaxé à la fluence rapide  $\Phi t$ .

Cette approche est conservative. Elle le sera encore plus si on introduit la limite d'élasticité  $R_{90}$  ( $\Phi$ t) extraite de l'essai de traction transverse sur anneau, à condition toutefois que cet essai soit validé.

#### 3.1.2 - Rupture par Corrosion sous Contrainte

La contrainte tangentielle sur la surface interne est inférieure à la limite d'élasticité du matériau irradié. Le mécanisme de rupture qui fait actuellement consensus est attribué à un phénomène de corrosion sous contrainte (CSC) par des produits de fission aggressifs, tel que l'Iode qui est relativement abondant (ref /5/, /15/, /16/, /18/, /35/, /38/, /39/, /40/, /41/, /48/, /56/, /85/, /88/, /89/ et /90/).

Deux types d'approche en terme de modélisation de la rupture sont proposées dans la littérature:

1/ la première s'appuie sur les principes de la mécanique de la rupture. Les conditions étant remplies pour amorcer un défaut (contrainte tangentielle supérieure à une valeur seuil et concentration critique en Iode libre atteinte), sa propagation sera contrôlée par la contrainte et s'amorcera dès que le défaut initial aura atteint une taille critique estimée à une dizzine de microns. La vitesse de propagation est corrélée au facteur d'intensité des contraintes K suivant la relation:

# $da/dt = A K^n$ (2)

A : constante dépendant de la température

- n : exposant du facteur K estimé à environ 9.
- K : fonction de la contrainte locale et de la géométrie
- $K = f(a/w) \sigma_{\theta} \sqrt{\Pi}a$ (3)

w étant l'épaisseur initiale de la gaine et a la profondeur du défaut

E.Smith (ref /7/) propose le formalisme suivant pour la fonction f(a/w):

 $f(a/w) = \{1 + \mu w/R_p (2R_p/w \Theta_{max} - 10/\Pi) + 4\mu w/\Pi R_p (1 + \ln(w/a))\}$ (4)

 $R_p$ : rayon de la pastille combustible  $\mu$ : coefficient de frottement pastille/gaine  $\Theta_{max} = \Pi/N$ , N étant le nombre de fissures radiales dans la pastille combustible.

Comme la taille de la fissure grandit, la contrainte nécessaire pour la propager diminue et peut même devenir inférieure à la contrainte seuil d'amorçage du défaut.

Dès que la contrainte tangentielle réelle dans l'épaisseur du tube de gaine dépasse la limite à rupture (Rem) du matériau, on a rupture par instabilité plastique.

Cela se traduit par la condition:

$$G_{\theta}/(1-a/w) > R_{\theta m}$$

(5)

2/ la deuxième fait intervenir la notion de temps à rupture du matériau, corrélant ce paramètre aux conditions de chargement (contrainte tangentielle sur la surface interne et température), à la concentration d'iode libre dans le jeu et dans certains cas aux propriétés mécaniques et métallurgiques du matériau.

Citons, à titre d'exemple, le modèle développé par J.T.A.Roberts où le temps à rupture se déduit de la relation (ref /88/):

 $\sigma_{\theta}/R_{p0,2} = 1,2 - 1,96 \cos\Phi \sin\Phi \{1 - \exp(-(X/490)^{1/3})\}$  (6)

R<sub>p0,2</sub> : limite d'élasticité du matériau

- Φ : angle de texture (orientation au pic d'intensité maximale de l'axe c [0002] dans le plan z,θ)
- X : corrélé au temps à rupture  $t_r$  et à la concentration en iode I par la relation:

 $X = 33,33 t_r I$  (7)

 $I = 2 \ 10^{-6} Bu FGR$  (8)

- 95 -

Bu : taux de combustion en atomes % FGR : fraction relâchée des gaz de fission

La rupture de gaine survient lorsque la condition suivante est satisfaite:

$$\Sigma \Delta t/tr > 1$$
 (9)

La DE/SEPTEN s'est basée sur le modèle SCCIG-B développé par l'EPRI (ref /39/) et a ajusté une loi de temps à rupture sur les quelques résultats expérimentaux disponibles sur gaines irradiées et sur les résultats de calcul du programme SCCIG-B. Le formalisme proposé est (ref /15/):

$$t_{r} = A \exp(-\alpha G_{\theta}) \exp(-Q/T) [G_{\theta}/(G_{\theta} - G_{\theta})]^{n}$$
(10)  

$$A = 4,3038 \ 10^{-8}$$
  

$$a = 0,00362$$
  

$$Q = 15451,12 \ ^{\circ}K^{-1}$$
  

$$n = 0,7513$$
  

$$G_{\theta n} = 199 MPa$$

#### 3.2 - CONCLUSION

Le modèle retenu par la DE/SEPTEN peut parfaitement bien convenir. Néanmoins, cette approche est assez conservative car le temps à rupture  $(t_r)$  considéré englobe deux composantes: le temps d'incubation pour la formation du défaut critique représentant environ 80 % de  $t_r$  et le temps de propagation. Il serait aussi utile de vérifier la validité du formalisme sur les données expérimentales acquises sur des tubes de gainage détendus à l'état de réception.

### 4 - ENDOMMAGEMENT DE LA GAINE PAR FATIGUE

Le fonctionnement du réacteur en téléréglage peut conduire localement à un endommagement du matériau par fatigue. En effet, suivant l'amplitude du mouvement des grappes grises de commande, les variations de puissance linéique locale des crayons combustibles situés dans les assemblages téléréglés peuvent conduire à des sollicitations cycliques répétées ou alternées.

Un modèle d'endommagement de la gaine par fatigue est proposé par

D.L.Hagrman dans MATPRO (ref /57/). Il pré-suppose que les conditions sont remplies pour l'amorçage du défaut dont la propagation est basée sur les principes de la mécanique de la rupture. La formulation proposée tient compte des cycles lents (domaine élastique) et des cycles rapides (domaine plastique). En fatigue cycles lents, la vitesse de propagation du défaut rapportée au nombre de cycles s'exprime par:

$$da/dN = B (\Delta K)^{n} \text{ pour } \Delta K \ge 9,5 \ 10^{6} \text{ Pa}\sqrt{m}$$
(1)

et

da/dN = 0 pour  $\Delta K < 9,5 \ 10^6 \ Pa \sqrt{m}$  (2)

ΔK : amplitude du facteur d'intensité de contrainte a : profondeur du défaut B et n : constantes dépendant de la fluence neutronique

rapide (E > 1 Mev):

 $B = 2 \ 10^{-11} \ C(\Phi) \tag{3}$ 

$$C(\Phi) = 15,53^{12} \{\exp(-\Phi t/10^{20}) - 1\}$$
(4)

 $n = 15 - 12 \exp(-\Phi t / 10^{20})$  (5)

 $\Phi t$ : fluence rapide (n/cm<sup>2</sup>)

En fatigue cycles rapides (déformation plastique du matériau), la loi est celle proposée par Tomkins:

 $da/dN = \beta (\Delta \epsilon_p)^{1/\alpha} a$  (6)  $\Delta \epsilon_p$ : incrément de déformation plastique

 $\beta, \alpha$ : constantes de matériau

Ce modèle ne s'applique pas aux données de Langer et O'Donnell (cf figure 1, ref /82/) sur lesquels s'appuient actuellement les études de conception menées en France par le fabricant et l'exploitant. Les résultats obtenus par le CEA sur tubes non irradiés /72/ sont cohérents avec ceux de Langer et O'Donnell, comme le montre la figure 1, mais ils n'ont pas été confrontés au modèle MATPRO car ce dernier ne convient pas pour les fissures courtes et notamment pour une simulation de l'amorçage.



- 97 -

Figure 1 - Données de fatigue sur gaines non irradiées par Langer - O'Donnell et CEA/SRMA

Actuellement, on ne dispose pas de modèle sastifaisant pour prédire l'endommagement de la gaine par fatigue, fatigue/fluage et fatigue/corrosion, les méthodologies utilisées étant en général trop conservatives. Les actions engagées dans le cadre des fiches tripartites T65, T159 et T164 visent à aboutir à la formulation de lois mieux adaptées, en liaison avec les études de comportement menées dans la fiche T163. Ces lois devront tenir compte de l'effet de l'irradiation et de l'environnement.

# 5 - CORROSION GENERALISEE DU ZIRCALOY

La corrosion généralisée du Zircaloy en milieu primaire peut devenir un critère limitatif de la durée de vie du crayon combustible à des taux de combustion supérieurs à 40 GWj/tU. De nombreux modèles ont été développés pour simuler la cinétique de formation de la couche de zircone. La plupart sont décrits de façon détaillée dans la note de synthèse citée dans la référence /53/.

Le modèle adopté actuellement dans CYRANO est celui de l'EPRI (ref /111/ et /53/). L'épaisseur de la couche de zircone au cours de la phase d'incubation est déterminée par la corrélation de DYCE: ÷ ₹

 $\mathbf{e}_{inc} = \mathbf{K}_{inc} \mathbf{e} \left[ \frac{\mathbf{Q}_{ac}}{\mathbf{R} \mathbf{T}_{surf}} \right] (\mathbf{F} \mathbf{t})^{0.33}$ épaisseur d'oxyde dans la phase d'incubation (cm) avec: einc  $K_{inc} = 0,2533 \text{ cm/j}^{0,33}$  $Q_{inc}/R = 5417 \,^{\circ}K^{-1}$ T<sub>surf</sub> température externe de la gaine à l'interface milieu primaire - oxyde (°K) (\*) facteur d'ajustement dépendant des caractéristiques de F

fabrication de la gaine, défini comme une donnée durée de l'oxydation (jour) t

Une durée de transition permet d'estimer l'instant où la phase de postincubation est atteinte:

$$t_{\rm trans} = \frac{1}{F} e^{(27.2 - 0.035 \,\mathrm{T})}$$
 (2)

Net an the still of

où T est la température à l'interface métal-oxyde (°K).

En phase de post-transition, l'évolution de l'épaisseur d'oxyde est donnée par la corrélation de STEHLE:

$$e_{\text{post}}^{n} = e_{\text{post}}^{n-1} + e^{*} \ln\left(1 + \frac{k_{\text{post}}}{e^{*}} F(t^{n} - t^{n-1}) e^{-\frac{Q_{\text{post}}}{RT}}\right)$$
(3)

où

$$e^* = -\frac{T^2 \lambda R}{Q_{\text{post}} \phi}$$
(4)

epost avec: épaisseur d'oxyde dans la phase de post-transition (cm) conductivité thermique de la zircone (W/cm/°K) λ  $Q_{\rm post}/R = 14199 \,^{\circ} \rm K^{-1}$ flux thermique local  $(W/cm^2)$  $k_{\rm cost} = 1,5 \ 10^4 \ {\rm cm/j}$ 

(\*) La couche de zircone maximale atteinte en phase d'incubation est très faible et la température externe de gaine à l'inteface milieu primaire oxyde déduite du transfert de chaleur dans la couche limite peut être utilisée avec une bonne approximation.

Les études en cours au Département EMA ont pour objectif d'identifier les mécanismes de base et de proposer un modèle susceptible de mieux décrire la corrosion généralisée du tube de gaine aux taux de combustion visés par EDF (60 GWj/tU).

#### D - CONCLUSIONS

Ce document présente l'ensemble des modélisations qui apparaissent aujourd'hui les mieux adaptées pour simuler le comportement thermomécanique du crayon combustible REP à fort taux de combustion, en fonctionnement de l<sup>ère</sup> et 2<sup>ème</sup> catégorie.

Ces modèles permettent de prendre en compte le recyclage du Plutonium dans les REP. Ils sont déjà pour la plupart implantés dans le logiciel CYRANO3 et sont cohérents avec les hypothèses de base retenues, en particulier sur l'approche monodimensionnelle axisymétrique.

Certains de ces modèles seront réactualisés en fonction des résultats des programmes de R&D (nationaux et internationaux) en cours. Des gains peuvent être attendus pour réduire les incertitudes sur la thermique des combustibles oxydes et sur les trajets de chargement du tube de gaine. Un nouveau modèle de comportement viscoplastique de la gaine est en cours de développement avec le IMAB (Laboratoire de Mécanique Appliquée de Besançon) pour mieux cerner la cinétique de relaxation des contraintes et les effets d'endommagement.

Le comportement mécanique de la pastille combustible fissurée ainsi que la modélisation de l'effet de RIM ne sont pas abordés dans cette note. Ils font actuellement l'objet d'études et d'expérimentations pour être ultérieurement pris en compte dans le logiciel CYRANO3.

Des améliorations devront être aussi apportées pour une meilleure simulation des combustibles contenant du Gadolinium.

- 100 -

С

#### E - REFERENCES

- /1/ R.B.ADAMSON Irradiation Growth of Zircaloy 3rd Int.Conf.on Zirconium in the Nuclear Industry (ASIM SIP 633,p 326) Quebec, CANADA, 1976
- /2/ R.B.ADAMSON, R.P.TUCKER and V.FIDLERIS High Temperature Irradiation Growth in Zircaloy 5th Int.Conf.on Zirconium in the Nuclear Industry (ASTM STP 754,p 208) Boston USA, 1980
- /3/ J.B.AINSCOUGH et al Isothermal Grain Growth Kinetics in Sintered U02 Pellets Journal of Nucl.Mat. 49, 117-128 (1973-74)
- /4/ F.ANSELIN The Role of Fission Products in the Swelling of Irradiated UO<sub>2</sub> and (U-Pu)O<sub>2</sub> Fuel GEAP-5583 (1969)
- /5/ G.BARÖ and al Deformation and Fracture Properties of Stress Relieved Zircaloy-4 in Iodine, Ceasium, Cadmiun and a mixture of Cs/Cd Res Mechanica 17 (pp 99-124), 1986
- /6/ D.BARON Crayon combustible REP: Transfert thermique dans le jeu pastille-gaine DER/MTC/HT.M2/83-18A, Décembre 1988
- /7/ D.BARON
   FRAMATOME Experience on Fission Gas Release under Base and Transient
   Operating Conditions
   ANS WILLIAMSBURG, April 1988
- /8/ D.BARON, B.HOUDATILE, M.TROTABAS, A.RAYBAUD French Experiments on Fission Product Release under Normal and off-normal PWR Conditions IAEA Technical Committee, KARLSRUHE (11-15 November 1995)
- /9/ D.BARON Combustible REP - Une interprétation des expérimentations CONTACT note EDF/DER/HT-25/89.11A
- /10/ D.BARON point sur la thermique des oxydes combustibles note EDF/DER/HT-M2/88.13A
- /11/ D.BARON et P.BOUFFIOUX Le crayon combustible des réacteurs à eau pressurisée de grande puissance DER/MIC/HT.M2/88-27A, HT.43/PVD.692A, Janvier 1989

Deformation characteristics of cold-worked and recrystallized Zircaloy 4 cladding ASTM STP 824 pp 306-339 (1984) /13/ I.P.BELL and S.M.MAKIN Fast Reactor - Physical Properties of Materials of Construction Review of Progress from September 1953 to April 1954 RDB(C)/TN-70 (1954) /14/ J.BELLE Uranium Dioxide: Properties and Nuclear Applications, TID-7546 USAEC (1961) /15/ C.BERNAUDAT Comportement thermomécanique des gaines de combustible: estimation de l'endommagement par corrosion sous tension EDF/DE/ENTMS/89.026A 1989 /16/ P.BOUFFIOUX and al Potential Causes of Failures associated with Power Changes in LWR's Journal of Nuclear Materials 87 (pp 251-258), 1979 /17/ P.BOUFFIOUX et D.BARON Crayon combustible REP: approche phénoménologique de l'interaction pastille-gaine en liaison avec les essais de sauts de puissance HT-43/NTE.1044A, HT-25/90.04A (1990) /18/ P.BOUFFIOUX et D.BARON Crayon Combustible REP: Approche phénoménologique de l'interaction pastille-gaine en liaison avec les essais de sauts de puissance EDF/DER/RNE - HT.43/NIE 1044A & HT.25/90.04A /19/ A.BRETAULT et J.M GOMIT Crayon combustible REP: Distribution radiale fine de puissance dans un crayon UO2; méthodologie et application note EDF/DER MIC-PhR HT 25/89.25A - HT 12/89.132A /20/ N.H.BRETT and L.E.RUSSEL The Thermal Expansion of PuO2 and Some Other Actinide Oxides Between Room Temperature and 1000 °C in Plutonium 1960; E.GRISON, W.B.H.LORD and R.D.FOWLER (eds), Proceedings of the 2nd International Conference on Plutonium Metallurgy, Grenoble, France, (April 1960), page 397 /21/ DW.BRIGHT, JL. DANIEL, NC. DAVIS, MD. FRESHLEY, PE. HART, RK. MARSHALL EEI/EPRI - Fuel Densification Program Final Report, March 1975" BATTELLE NORTHWEST LABORATORIES /22/ R.S.BROKAW Alignment Charts for Transport Properties, Viscosity, Thermal Conductivity and Diffusion Coefficients for Non-polar Gases and Gas Mixtures at low Density Lewis Research Center, NASA-TR-R-81 (1960)

- 102 -

/12/ D.L.BATY and al

- /23/ D.BRUCKLACHER and DIENST Creep Behaviour of Ceramic Nuclear Fuels under Irradiation Journal of Nuclear Materials 42, 1972, page 285
- /24/ M.D.BURDICK and H.S.PARKER Effect of Particle Size on Bulk Density and Strength Properties of Uranium Dioxide Specimens Journal of the American Ceramic Society, 39, (1956), page 181
- /25/ R.A.BUSH et al NFIR-Properties of the Urania-Gadolinia system (Part 1), NFIR-RP-03 December 86 (Draft Final Report)
- /26/ J.BUSSAC et P.REUSS Traité de neutronique Herman - Paris 1985
- /27/ G.CAPART Fission Gas Release from Oxide Fuels BN7311-02 November 1973

ఎం మండికి క

- /28/ M.CHARLES, JJ.ABASSIN, D.BARON Utilization of CONTACT Experiments to Improve the Fission Gas Release Knowledge in FWR Fuel Rods IAEA Specialist'Meeting PRESTON (March 1982)
- /29/ M.CHARLES, P.CHENEBAULT, P.MELIN Mechanisms of Fission Gas Release from Different Types of Fuel Rods During Normal Operation- Result and Analysis of CONTACT Experiments ORLANDO ANS Meeting (April 1985)
- /30/ R.CHRISTENSEN Cladding Temperature and Thermal Expansion Calculation including the fuel heat capacity effect Rapport Entropy limited (1980)

#### /31/ J.A.CHRISTENSEN Thermal Expansion and Change in Volume of Uranium Dioxide on Melting Journal of the American Ceramic Society, 46, (1963), page 607

- /32/ D.J.CLOUGH Creep Properties of Oxide and Carbide Fuels under Irr. Hation Journal of Nuclear Materials 65, 1977
- /33/ J.B.CONWAY, R.M.FINCEL, R.A.HEIN The Thermal Expansion and Heat Capacity of UO2 to 2200 °C TM-63-6-6, General Electric Company (1963)
- /34/ J.B.CONWAY, R.M.FINCEL, R.A.HEIN The Thermal Expansion and Heat Capacity of UO2 to 2200 °C Transactions American Nuclear Society, 6, (june 1963)
- /35/ D.CUBICCIOTI and al Chemical Aspects of Iodine Stress Corrosion Cracking of Zircaloys ASIM SIP 754 (pp 146-157), 1982

/36/ D.DALLERY Combustible FRAGEMA - Gaines ZIRCOTUBE Résultats d'essais mécaniques sur prélèvements E-SCF-HC 86 252 A /37/ EPRI J.A.DEARIEN and al FRAP-S2: A computer code for the steady state analysis of oxide fuel rods TREE-NUREG-1107 /38/ EPRI Stress Corrosion Cracking of Zircaloys EPRI RP 455-1-6, Final Report NP-1329 (1980) /39/ EPRI SCCIG: A Phenomenological Model for Iodine Stress Corrosion Cracking of Zircaloys - Volumes 1 and 2 EPRI RP 700-3 and 2061-1, Report NP-1798 (1981 & 1988) /40/ EPRI Characterization of Irradiated Zircaloy: Susceptibility to Stress Corrosion Cracking EPRI RP 1027, Reports NP-1155 (1979) and NP-1557 (1980) /41/ EPRI EPRI NASA Cooperative Project on Stress Corrosion Cracking of Zircaloys

- /42/ EPRI Evaluation and modification of COMETHE III-J EPRI NP-2911 / RP 1452-1
- /43/ S.K.EVANS et al Compressive Creep of Urania-Plutonia Fuels GEAP-13732, August 1971

RP 455-1, Report NP-717 (1978)

- /44/ V.FIDLERIS et al An Overview of Microstructural and Experimental Factors that affect the Irradiation Growth Behavior of Zirconium Alloys 7th Int.Conf.on Zirconium in the Nuclear Industry (ASIM SIP 939,p 49) Strasbourg, FRANCE, 1985
- /45/ D.G.FRANKLIN and al Creep of Zirconium alloys in nuclear reactors ASIM SIP 815 - 1983
- /46/ B.R.FROST Studies of Irradiation Effects in Ceramic Fuel at Harwell Ceramic Nuclear Fuel Journal of the American Society (1969)
- /47/ M.GALIMBERTI Propriétés du Zircaloy dans les réacteurs à eau légère Mémento technique de l'Equipement - Fiche n° 82 (1984)
- /48/ F.GARZAROLLI and al The Main Causes of Fuel Element Failure in Water-Cooled Power Reactor Atomic Energy Review, 17 - 1 (1979)

#### - 104 -
/49/ B.GAUTIER CYRANO2-code de comportement thermomécanique du crayon combustible PWR. 1/Note descriptive du code et des modèles EDF/SEPTEN/E-SE/TB-82-99A, Juillet 1984 /50/ B.GAUTIER CYRANO2 - Code de comportement thermomécanique du crayon combustible PWR. Note descriptive du code et des modèles EDF/SEPTEN/E-SE/T3-82-99A , Juillet 1984 /51/ R.L.GIBBY The Effect of Oxygen Stoichiometry on the Thermal Diffusivity and Conductivity USAEC Report BNWL-927, BATTELLE NORTHWEST LABORATORIES, January 1969 /52/ J.H.GITTUS and al. Theoretical Analysis of Cladding Stresses and Strains produced by Expansion of Cracked Fuel Pellets Nuclear Application and Technology, Volume 9, p.43 (July 1970) /53/ J.M.GRAS Etude bibliographique de la corrosion généralisée des alliages Zircaloy dans les conditions intéressant le fonctionnement des réacteurs à eau légère EDF/DER/HT-45 PV D 654, (Mars 1988) /54/ Y.GUERIN Etude par compression à hautes températures de la déformation plastique du bioxyde d'Uranium polycristallin Journal of Nuclear Materials 56, 1975, page 61 /55/ E.GUEZ et D.BARON Rapport de stage; Propriétés mécaniques de l'oxyde d'Uranium EDF/DER/HT25/89-17A /56/ P.HAFMANN and J.SPINO Conditions under which CsI can cause SCC failure of Zircaloy tubing Journal of Nuclear Materials 127 (pp 205-220), 1985 /57/ D.L.HAGRMAN et C.A.REYMAN MATPRO version 11 - A Handbook of Materials Properties for Use in the Analysis of LWR Fuel Rod Behavior NUREG/CR.0497, February 1979 /58/ J.W.HARISSON ans L.M.DAVIS The Variation of Solid Fission Product and Gas Swelling in Uranium Compounds with Thermal Neutron Dose Rate Journal of Nucl. Materials 27 (1968) /59/ HBC - First Program Committee Meeting Bruxelles November 4th, 1987 /60/ R.HIIL The mathematical theory of plasticity Oxford Engineering Science Series (Clarendon Press) - 1986

- 105 -

/61/ M.HOCH and A.C.MOMIN High Temperature Thermal Expansion of Uranium Dioxide and Thorium Dioxide High Temperature-High Pressures 1,4(1969), page 401 /62/ N.HOPPE, M.BILLAUX, J.VAN VLIET COMETHE 3L, General Description BN8201-04, January 1982 /63/ C.E.L.HUNT Anisotropic theory and the measurement and use of the anisotropic factors for Zircaloy 4 fuel sheaths AECL - CRNL - 1248 (1975) /64/ E.F.IBRAHIM Creep Ductility of CW Zircaloy 2 and Zr2.5Nb Tubes in Reactor Journal of Nuclear Materials 96, (1981), p297 /65/ W.D.KINDERY and al Thermal Conductivity: X, Data for several Pure Oxide Materials Corrected to Zero Porosity Journal of the American Ceramic Society 37, p107-110, (1954) /66/ W.A.LAMBERTSON and J.H.HANDWERK The Fabrication and Physical Properties of Urania Bodies ANL-5053 (1956) /67/ K.LASSMANN et F.PAZDERA URGAP: A Conductance Model for Transient Conditions IAEA Specialist's Meeting on Fuel Performance Computer Modelling PRESTON (UK) March 1982 /68/ K.LASSMANN and al Modeling of fuel rod behaviour and recent advances of the TRANSURANUS code Nuclear Engineering and Design - Volume 106, pp 291-313 (1988) /69/ K.LASSMANN et T.PREUSSER an Advanced Method for Transient Temperature Calculation in Fuel Element Structural Analysis Nucl. Techno. 60, March 83, P 406-419 /70/ K.LASSMANN The structure of fuel element codes Nuclear Engineering and Design - Volume 57, pp 17-39 (1980) /71/ C.LEE and al Plasticity theories and structural analysis of anisotropic metals -Zircalovs EPRI NP-500 ( RP 456-2 ) - May 1977 /72/ P.LEMOINE and co Sustained Fatigue of Zircaloy-4 Claddings - Non irradiated material AIEA - Technical Committee Meeting on Power Ramping, Cycling and Load Following Behaviour of Water Reactor Fuel Lyon, May 18-21 1987

- 106 -

,1 -

/73/ W.H.MAC ADAMS Heat Transmission" Mac Graw-Hill Book Company, New York (1954) /74/ P.E.Mac DONALD et J.WEISSMAN Effect of Pellet Cracking on Light Water Reactor Fuel Temperatures Nuclear Technology 31, 357, December 1976 /75/ R.O.MEYER The Analysis io Fuel Densification Office of Nuclear Reactor Regulation U.S Nuclear Regulatory Commision, NUREG-0085 (July 1976) /76/ P.MURRAY and R.W.THACKRAY The Thermal Expansion of Sintered UO2 AERE-M/M 22 /77/ T.NAKAJIMA et al FEMAXI III : A Computer Code for the Analysis of Thermal Behavior of Fuel Rods JAERI 1298, December 1985 /78/ F.A NICHOLS Theory of Colomnar Grain Growth and Central Void Formation in Oxide Fuel Rods Journal of Nucl. Mat. 23, (1967) 214 /79/ F.A NICHOLS Kinetics of Diffusional Motion of Pores in Solids. Journal of Nucl. Mat. 30, (1969) 149 /80/ F.A NICHOLS Pore Migration in Ceramic Fuel Elements Journal of Nucl. Mat. 27, (1968) n°2 /81/ S.Y.OGAWA, EE.A.LEES et M.F.LYONS Power Reactor High Performance UO2 Program. Fuel Design Summary and Progress Status GEAP-5591, January 1968 /82/ W.J.O'DONNELL & B.F.LANGER Fatigue Design Basis for Zircaloy Components Nuclear Science and Engineering, 20, 1 (1964) /83/ D.D.OLANDER Fundamental Aspect of Nuclear Reactor Fuel Elements TID-26711-P1 (1976) chapitre 13 /84/ D.D.OLANDER Fundamental Aspect of Nuclear Reactor Fuel Elements TID-26711-P1 (1976) chapitre 15 /85/ M.PEEHS and al Out-of-Pile Testing of Iodine Stress Corrosion Cracking in Zircaloy Tubing in Relation to the PCI Phenomenom ASIM SIP 681 (pp 244-260), 1979

- 107 -

٠,

- 108 -
- /86/ J.S.PERRIN and W.R.D.WILSON Effect of Irradiation on the Creep of Uranium Dioxide BMI-1899, March 1971
- /87/ B.F.RIDER Compilation des rendements de fission NEDO 12 154-3 (1981)

٠...

- /88/ J.T.A.ROBERTS and al A SCC Model for PCI Failures in LWR Fuel Rods 4th Int.Conf.on Zirconium in the Nuclear Industry Stratford-Upon-Avon, 1978
- /89/ J.T.A.ROBERTS and F.E.GELHAUS Zircaloy Performance in Light Water Reactor ASTM STP 681 (pp 19-39), 1979
- /90/ V.N.SHAH, J.E.TOLLI et D.LANNING A Regression Model for Zircaloy Cladding in-Reactor Creepdown: Database, Development, and assessment Nucl. Eng. & Design 101 (1987)
- /91/ H.E.SCHMIDT et J.RICHTER Symposium on Oxide Fuel Thermal Conductivity, Stockolm (1967)
- /92/ H.SCHROEDER and M.J.HOLICKY On secondary Creep of Anisotropic Nuclear Materials Journal of Nuclear Materials Volume 33 - pp 52-63 (1969)
- /93/ E.SMITH
  Fracture of Zircaloy Cladding by Interaction with Uranium-Doixide Pellets
  in Water Reactor Fuel Rods
  ASTM STP 633 (pp 543-556), 1977
- /94/ A.A.SOLOMON et al Fission Induced Creep of UO<sub>2</sub> and its Significance to Fuel Element Performance ANL-7857, September 1971
- /95/ A.A.SOLOMON and R.H.GEBNER Instrumented Capsule for Measuring Fission Induced Creep of Oxide Fuels Nuclear Technology 13, February 1972
- /96/ H.STEHLE and al Mechanical properties, anisotropy and microstructure of Zircaloy canning tubes ASIM SIP 633 pp 486-507 (1977)
- /97/ E.C.SYKES and P.T.SAWBRIDGE The Irradiation Creep of Uranium Dioxide CEGB, RD/EN/1489, November 1969
- /98/ M.TOKAR, A.W.NUIT, T.K.KEENAN Linear Thermal Expansion of Flutorium Dioxide Nuclear Technology, 17 (February 1973) page 147

/99/ TOULOUKIAN Thermophysical Properties of High Temperature Solid Materials The Mac Millan Co, New York (1967) /100/ J.C.VAN CREYNEST et J.C.WEILBACHER Journal of Nuclear Materials 26, 132 (1968) /101/ A.D.WHAPHAM and B.E.SHALDON Electron Microscope Observation of the Fission Gas Bubble Distribution in ບົບຊ AERE-R-4970 (April 1969) /102/ John WILLIAMS et al Irradiation Growth of annealed Zircaloy 2 6th Int.Conf.on Zirconium in the Nuclear Industry (ASIM SIP 824,p 376) Vancouver, CANALA, 1982 /103/ J.WORDSWORTH IAMBUS 1 - A digital computer code for the design, in-pile performance prediction and post-irradiation analysis of arbitrary fuel rods Nuclear Engineering and Design - Volume 31, pp 309-336 (1974) /104/ Séminaire Combustible Tripartite - Cadarache 23 et 24 mars 1988 Propriétés mécaniques des gaines /105/ Données fournies par CEA/SECS - Réunion du 21/11/89 sur FADT 161 /106/ R.L.GIBBY, and al Analytical Expressions for Enthalpy and Heat Capacity for U-Pu Oxide Journal of Nuclear Marterials 50 (1974) pages 155-161 /107/ R.L.GIBBY Thermal Expansion of Mixed Oxide Fuel HEDL Quaterly Technical Report HEDL-TME 74-3 /108/ R.LORENZELLI et M. EL SAYED ALI Dilatation thermique d'oxydes mixtes  $(U-Pu)O_{2-x}$  en fonction de l'écart à la stoéchiométrie Journal of Nuclear Materials 68 (1977) pages 100-103 /109/ J.VAN VLIET Propriétés et modèles physiques de 1'UO2-PuO2 EN 8601-02 janvier 1986 /110/ Minutes of the Second Programme Committee meeting held in Brussels on November 2 1988 PRIMO Belgonucléaire PR 89/12 /111/ F.GAZAROLLI and al Review of PWR Fuel Rod Waterside Corrosion Behavior EPRI NP-1472, AUgust 1980

- 109 -

/112/P.PERMEZEL Cahier des charges d'un logiciel de calcul de la thermomécanique du crayon combustible: Première partie - Principes EDF/SEPTEN/ENT/MS/90 037A , Avril 1990 /113/ J.JOUAN Incidence de conditions de fabrication dur la densification en pile du combustible FRAMATOME Congrès IAEA, Vienne 1979 /114/ A.H.BOOTH A Method of Calculating Fission Gas Diffusion from UO2 Fuel and its Application to the X-2-f Loop Test, Canadian Report CRDC-721, September 1957; /115/ A.H.BOOTH and G.T.RYMER Determination of the Diffusion Constant of Fission Xenon in UO2 Crystals ans Sintered Compacts, Canadian Report AECL-692, August 1958; /116/ J.A TURNBULL and A.D APPELHANS Measured Release of Radioactive Xenon, Krypton ans Iodine from UO2 at Typical Light Water Reactor Conditions, and Comparisons with Release Models, NUREG/CR-2298, November 1981; /117/ W.CHUBB and al Observations Relating to the Mechanisms of Swelling and Gas Release in Uranium Dioxide of High Temperatures Journal of Nuclear Materials 44 (1972) pp 136-152; /118/ J.A.TURNBULL and M.O.TUCKER Swelling in UO2 under Conditions of Gas Release The Philosiphical Magazine, 30 (July 1974) pp 47-64 /119/ M.GALIMBERTI Lois de fluage du Zircaloy 4: Etude comparative, élaboration d'un modèle de fluage thermique du Zircaloy 4 détendu EDF/DE/SEPTEN E-SE-PN-85/59-A (1985) /120/ X.THIBAULT CYRANO 2C - Description et qualification des modèles adaptés au comportement des combustibles UO2 et MOX à haut taux de combustion EDF/DE/SEPTEN ENT-CO-90/18 A , (Août 1990)

- 110 -

|                                                                             | EDF                                                                                                                     | Direction<br>et Rechei                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                         | t des Etudes<br>rches                                                                        |                                                                    |                |              |
|-----------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------------------|----------------|--------------|
|                                                                             | Electricité<br>de France                                                                                                | Service I<br>Prospect                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          | nformation<br>ive et Normalisation                                                           | CLAMART                                                            | Le 07/03/9     | 5            |
| Dép                                                                         | Département Systemes d'information<br>et de des mentation<br>Groupe Exploitation<br>de la Documentation Automatisée     |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                | on<br>e                                                                                      | CEA<br>MIST/SBDS/SPRI<br>CENTRE DE SACLAY                          |                |              |
| -                                                                           | 1, avenue du Gal de Gaulle<br>92141 CLAMART Cedex                                                                       |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                |                                                                                              | 91191 GIF SUR YVETTE CEDEX                                         |                | DEX          |
|                                                                             | tel : 47 (                                                                                                              | 65 56 33                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                       | à l'atten                                                                                    | tion de ·                                                          |                |              |
|                                                                             |                                                                                                                         |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                |                                                                                              |                                                                    |                |              |
|                                                                             |                                                                                                                         | MEMC                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                           | IRE TECHNIQ                                                                                  | UE ELECTRO                                                         | DNIQUE         |              |
|                                                                             |                                                                                                                         |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                |                                                                                              |                                                                    |                |              |
|                                                                             |                                                                                                                         |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                |                                                                                              |                                                                    |                |              |
|                                                                             |                                                                                                                         | **********<br>Cette feuille                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                    | est détachable grâce à la                                                                    | microperforation sur                                               | le coté droit. |              |
|                                                                             |                                                                                                                         | *********<br>Cette feuille<br>*****                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                            | est détachable grâce à la                                                                    | **************************************                             | e coté droit.  |              |
|                                                                             |                                                                                                                         | **********<br>Cette feuille<br>*********                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                       | est détachable grâce à la                                                                    | **************************************                             | le coté droit. |              |
| Référ                                                                       | rence de la dem.<br>ne : <b>NOU</b>                                                                                     | Attack of the second se | est détachable grâce à la<br>39<br>EDF-DOC                                                   | microperforation sur                                               | le coté droit. |              |
| Référ<br>Drigit                                                             | rence de la dem.<br>ne : NOU<br>éro du documer                                                                          | ande : F5145.<br>VEAUTES D                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     | est détachable grâce à la<br>39<br>EDF-DOC                                                   | microperforation sur                                               | le coté droit. |              |
| Référ<br>Drigin<br>Numé<br><b>Titre</b>                                     | rence de la dem.<br>ne : NOU<br>éro du documer<br>e : E<br>E                                                            | ande : F5145<br>VEAUTES D<br>at : 94NB00<br>DESCRIPTIO<br>ECANIQUE D                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                           | est détachable grâce à la<br>39<br>EDF-DOC<br>1094<br>N DES MODELES A IN<br>DU CRAYON COMBUS | TRODUIRE DANS                                                      | le coté droit. | L DE THERM C |
| Référ<br>Drigin<br>Numé<br><b>Fitre</b><br>Auteu                            | rence de la dema<br>nc : NOU<br>éro du documer<br>e : E<br>E<br>Uurs : BA]                                              | ande : F5145<br>VEAUTES D<br>at : 94NB00<br>DESCRIPTIO<br>CANIQUE D<br>RON D./BOU                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                              | 39<br>EDF-DOC<br>1094<br>N DES MODELES A IN<br>DU CRAYON COMBUS                              | microperforation sur<br>Votre c<br>NTRODUIRE DANS<br>TIBLE CYRANO3 | le coté droit. | L DE THERM C |
| Référ<br>Drigin<br>Numé<br><b>Titre</b><br>Auteu<br>Soure<br>Scria          | rence de la dem.<br>ne : NOU<br>éro du documer<br>e : E<br>urs : BA]<br>urs : BA]<br>ce : COLL                          | ande : F5145<br>VEAUTES D<br>at : 94NB00<br>DESCRIPTIO<br>CANIQUE D<br>RON D./BOU                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                              | 39<br>EDF-DOC<br>1094<br>N DES MODELES A IN<br>OU CRAYON COMBUS<br>FFIOUX P.                 | microperforation sur<br>Votre c<br>Votre c<br>TIBLE CYRANO3        | le coté droit. | L DE THERM C |
| Référ<br>Origin<br>Numé<br><b>Titre</b><br>Auteu<br>Soure<br>Seria<br>Référ | rence de la dema<br>ne : NOU<br>éro du documer<br>e : E<br>urs : BA]<br>urs : BA]<br>ce : COLL<br>l :<br>rence du docum | ande : F5145<br>VEAUTES D<br>ht : 94NB00<br>DESCRIPTIO<br>CANIQUE D<br>RON D./BOU<br>NOTES INT<br>hent : SANS                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                  | 39<br>EDF-DOC<br>0094<br>N DES MODELES A IN<br>DU CRAYON COMBUS<br>FFIOUX P.                 | microperforation sur<br>Votre c<br>NTRODUIRE DANS<br>TIBLE CYRANO3 | le coté droit. | L DE THERM C |

.