

## Modèles de comportement métallurgique du zircaloy

---

### Résumé :

Ce document présente les modèles de comportement métallurgique décrivant les transformations structurales, au chauffage et au refroidissement, que subit le zircaloy (gaine de crayon de combustible) entre environ 700 °C et 1000 °C.

## Table des matières

1	Introduction.....	3
2	Présentation du modèle.....	4
2.1	Proportion à l'équilibre.....	4
2.2	Équation d'évolution au chauffage.....	4
2.3	Équation d'évolution au refroidissement.....	5
2.4	Conditions d'utilisation du modèle métallurgique pour des transitoires quelconques de température.....	5
2.4.1	Quelques règles.....	5
2.4.2	Algorithme.....	5
3	Formulation numérique.....	7
3.1	Détermination du sens de l'évolution.....	7
3.2	Intégration des équations.....	7
4	Modèle ZIRC dans Code_Aster.....	9
4.1	Variables internes.....	9
4.2	Utilisation du modèle.....	9
5	Bibliographie.....	10
6	Historique des versions du document.....	10

## 1 Introduction

Les gaines de combustibles des réacteurs nucléaires à eau pressurisée sont constituées d'alliage de zirconium. Ces alliages subissent des transformations métallurgiques entre  $700^{\circ}\text{C}$  et  $1000^{\circ}\text{C}$ , où ils passent d'une phase de structure hexagonale compacte à une phase de structure cubique. Dans certains cas d'analyse tels les scénarios d'accident de cœur par perte de réfrigérant primaire (APRP), la gaine atteint des températures de l'ordre  $1000^{\circ}\text{C}$  et subit alors des transformations métallurgiques. Pour analyser le comportement mécanique de la gaine dans ces situations, il est nécessaire de prendre en compte l'influence de la métallurgie sur la mécanique (modification des caractéristiques mécaniques).

Le présent document concerne la modélisation des transformations structurales du Zircaloy au chauffage et au refroidissement et ce, à une échelle qui, tout en restant "raisonnable" pour le métallurgiste, soit facilement utilisable par le mécanicien.

Les calculs de métallurgie dans *Code\_Aster* se font avec l'opérateur dédié `CALC_META`, en « post-traitement » d'un calcul d'évolution thermique. Le choix du modèle se fait avec le mot-clé `RELATION = 'ZIRC'` sous `COMPORTEMENT`. Ce type de modélisation est réalisable au sein du *Code\_Aster* pour l'ensemble des éléments (PLAN, AXIS, 3D) du PHENOMENE "THERMIQUE". Pour la définition du comportement métallurgique du Zircaloy le renseignement du mot clé facteur `META_ZIRC` sous la commande `DEFI_MATERIAU [U4.43.01]` est nécessaire. Enfin, la définition de l'état métallurgique initial est réalisable à l'aide de la commande `CREA_CHAMP`, sous le mot clé facteur `ETAT_INIT` de l'opérateur `CALC_META`.

Les modèles implantés dans *Code\_Aster* pour modéliser les transformations métallurgiques du Zircaloy sont des modèles développés par le CEA. Ces modèles ont été identifiés sur la base d'essais de dilatométrie et de calorimétrie pour les alliages de gaines (standard et nouveaux).

Pour le comportement mécanique avec effet des transformations structurales, on a le choix entre plusieurs modèles :

- Soit les mêmes relations de comportement mécanique développées initialement pour l'acier de cuve 16MND5. Il s'agit de toutes les relations déclarées dans l'opérateur `STAT_NON_LINE` sous le mot clé `COMPORTEMENT` du type `META_XX_XX`. Ces sont des modèles élastoplastique ou élastoviscoplastique, écrouissage isotrope (linéaire ou non linéaire) ou cinématique, prise en compte ou non des phénomènes de plasticité de transformation et de restauration d'écrouissage d'origine métallurgique (cf. R4.04.02 et R4.04.03).
- Soit la loi spécifique au Zircaloy. Il s'agit d'un modèle élastoviscoélastique sans seuil et anisotrope (matrice de Hill). Le mot clé sous `COMPORTEMENT` est `META_LEMA_ANI` (cf. R4.04.05).

## 2 Présentation du modèle

### 2.1 Proportion à l'équilibre

Le Zircaloy a une structure hexagonale compacte appelée phase  $\alpha$ , stable jusqu'à des températures de l'ordre de  $700^{\circ}\text{C}$ . Au delà d'environ  $700^{\circ}\text{C}$  s'amorce une transformation allotropique vers une phase cubique  $\beta$ , et qui est complète aux environs de  $975^{\circ}\text{C}$ .

La proportion de la phase  $Z_{\beta}^{\text{eq}}$  à l'équilibre est donnée par l'équation, de type Johnson-Mehl-Avrami, suivante :

$$\begin{cases} Z_{\beta}^{\text{eq}} = 0 & \text{pour } T \leq T_d^{\text{eq}} \\ Z_{\beta}^{\text{eq}} = 1 - \exp\left[-\left(K(T - T_d^{\text{eq}})\right)^n\right] & \text{pour } T_d^{\text{eq}} \leq T \leq T_f^{\text{eq}} \\ Z_{\beta}^{\text{eq}} = 1 & \text{pour } T > T_f^{\text{eq}} \end{cases} \quad \text{éq 2.1-1}$$

où  $T_d^{\text{eq}}$  est la température de début de transformation  $\alpha \Leftrightarrow \beta$  à l'équilibre,  $T_f^{\text{eq}}$  la température de fin de transformation à l'équilibre,  $T$  la température et  $K$  et  $n$  deux paramètres matériau.

De manière équivalente, en inversant l'équation 2.1, on obtient la température équivalente  $T^{\text{eq}}$  en fonction de la proportion  $Z_{\beta}$  de phase  $\beta$ .

$$\begin{cases} T^{\text{eq}} = T_d^{\text{eq}} + \frac{1}{K} \log\left(\frac{1}{1 - Z_{\beta}}\right)^{1/n} & \text{pour } 0 \leq Z_{\beta} \leq 0.99 \\ T^{\text{eq}} = T_f^{\text{eq}} & \text{pour } 0.99 \leq Z_{\beta} \leq 1 \end{cases} \quad \text{éq. 2.1-2}$$

La température de fin de transformation à l'équilibre  $T_f^{\text{eq}}$  est choisie telle que correspondant à 0.99 de phase  $\beta$  transformée, soit

$$T_f^{\text{eq}} = T_d^{\text{eq}} + \frac{1}{K} \log\left(\frac{1}{1 - 0.99}\right)^{1/n} \quad \text{éq. 2.1-3}$$

### 2.2 Équation d'évolution au chauffage

La transformation au chauffage est la transformation  $\alpha \Rightarrow \beta$ .

- La température de début de transformation de phases  $T_c$  au chauffage dépend de la vitesse de température au chauffage et est donnée par l'équation :

$$T_c = T_l^c (V_{\text{ch}})^{T_2^c} \quad \text{avec } V_{\text{ch}} = \text{vitesse au chauffage en } ^\circ\text{C/s} \text{ et } T_c \geq T_d^{\text{eq}} \quad \text{éq. 2.2-1}$$

- Le modèle d'évolution de la phase  $\beta$  au chauffage est donné par l'équation différentielle (modèle de Holt) suivante :

$$\text{Pour } T > T_c \geq T_d^{eq} \quad \frac{dZ_\beta}{dt} = A_c \exp \left[ -\frac{E}{RT} \right] |T - T_{eq}(Z_\beta)|^M \quad \text{éq. 2.2-2}$$

$T_{eq}(Z_\beta)$  est la température d'équilibre correspondant à la proportion instantanée  $Z_\beta$  de phase  $\beta$  et donnée par l'équation 2.1-2.

$T_1^c, T_2^c, A_c, \frac{E}{R}$  et  $M$  sont des paramètres matériau.

## 2.3 Equation d'évolution au refroidissement

La transformation au refroidissement est la transformation  $\beta \Rightarrow \alpha$ .

- La température de début de transformation de phases  $T_r$  au refroidissement dépend de la vitesse de température au refroidissement et est donnée par l'équation :

$$T_r = T_1^r + T_2^r \ln V_{ref} \text{ avec } V_{ref} = \text{vitesse de refroidissement en } ^\circ\text{C/s} \text{ et } T_r \leq T_f^{eq} \quad \text{éq. 2.3-1}$$

- Le modèle d'évolution de la phase  $\beta$  au refroidissement est donné par l'équation différentielle suivante :

$$\text{Pour } T < T_r \leq T_f^{eq} \quad \frac{dZ_\beta}{dt} = - |T - T_{eq}| \exp(A_r + B_r |T - T_{eq}|) \cdot Z_\beta \cdot (1 - Z_\beta) \quad \text{éq. 2.3-2}$$

$T_1^r, T_2^r, A_r$  et  $B_r$  sont des paramètres matériau.

## 2.4 Conditions d'utilisation du modèle métallurgique pour des transitoires quelconques de température

### 2.4.1 Quelques règles

- Lors des calculs, si la proportion de phase  $\beta$  est supérieure stricte à 0.99, on arrondit à un.
- Pour une vitesse au chauffage inférieure à  $0.1^\circ\text{C/s}$ , on utilise  $T_c = T_d^{eq}$ .
- Si  $0 \leq Z_\beta \leq 0.99$ , on doit appliquer la règle suivante :
  - Si  $T > T_{eq} \Leftrightarrow Z_\beta < Z_\beta^{eq}$ , on applique le modèle au chauffage (même si la vitesse de température est négative)
  - Si  $T < T_{eq} \Leftrightarrow Z_\beta > Z_\beta^{eq}$ , on applique le modèle au refroidissement (même si la vitesse de température est positive)

### 2.4.2 Algorithme

On considère un transitoire quelconque de température  $T(t)$ .

Remarque : pour calculer les températures de début de transformation au chauffage  $T_c$  et au refroidissement  $T_r$ , il est nécessaire de calculer les vitesses de chauffage et de refroidissement, respectivement (éq. 2.2-1 et éq. 2.3-1). Pour les calculer, on utilise la

| méthode de la sécante glissante (et non la vitesse instantanée) d'où les étapes 1 et 2 ci-dessous.

| Remarque : une fois les températures seuil  $T_c$  ou  $T_r$  dépassées et tant que la transformation n'est pas totale (au chauffage ou au refroidissement), on intègre les équations d'évolution même si la température repasse par le seuil.

- **Étape 1** : Recherche de l'instant  $t_d^{eq}$  (ou  $t_f^{eq}$ ) correspondant à la température de début  $T_d^{eq}$  (ou de fin  $T_f^{eq}$ , respectivement) de transformation à l'équilibre.
  - Cas où  $Z_\beta = 0$  initialement : recherche de  $t_d^{eq}$
  - Cas où  $Z_\beta = 1$  initialement : recherche de  $t_f^{eq}$
- **Étape 2** : Recherche de l'instant  $t_c$  (ou  $t_r$ ) correspondant à la température de début de transformation  $T_c$  (ou  $T_r$ , respectivement) en utilisant la méthode de la sécante glissante :
  - Cas où  $Z_\beta = 0$  initialement : recherche de l'instant où la température  $T(t)$  dépasse  $T_c$ .
    - Si  $T(t) > T_d^{eq}$ , on incrémente le temps, on calcule  $T_c$  et on teste la condition suivante :  

$$\text{Si } T(t) > T_c = T_1^c \frac{\left| T(t) - T_d^{eq} \right|^{T_2^c}}{\left| t - t_d^{eq} \right|}, \text{ alors on passe à l'étape 3}$$
    - Si  $T(t) \leq T_d^{eq}$  sans que l'on atteint  $T_c$ , il faut alors actualiser  $t_d^{eq}$  en recommençant l'étape 1 à partir de l'instant courant.
  - Cas où  $Z_\beta = 1$  initialement : recherche de l'instant où la température  $T(t)$  repasse par  $T_r$ 
    - Si  $T(t) < T_f^{eq}$ , on incrémente le temps, on calcule  $T_r$  et on teste la condition suivante :  

$$\text{Si } T(t) < T_r = T_1^r + T_2^r \ln \frac{\left| T(t) - T_f^{eq} \right|}{\left| t - t_f^{eq} \right|}, \text{ alors on passe à l'étape 3}$$
    - Si  $T(t) \geq T_f^{eq}$  sans que l'on atteint  $T_r$ , il faut alors actualiser  $t_f^{eq}$  en recommençant l'étape 1 à partir de l'instant courant.
- **Étape 3** : Une fois  $T_c$  (ou  $T_r$ ) atteint, on calcule pas à pas l'évolution de la fraction de phase  $\beta$  apparaissant à l'aide de l'équation de Holt (au chauffage) ou de l'équation au refroidissement suivant le signe de  $(Z - Z_{eq})$  et ceci tant que la fraction de phase  $\beta$  demeure inférieure à 0.99 et supérieure à 0. et même si l'on passe par un pic de température.
- **Étape 4** : Si au cours de l'étape 3, la fraction de phase  $\beta$  devient égale à 1 (ou 0), on recommence l'étape 1 à partir de l'instant courant.

## 3 Formulation numérique

Connaissant  $(t^-, T^-, Z_\beta^-, t^+, T^+)$ , l'instant moins, la température à l'instant moins, la proportion de phase  $\beta$  à l'instant moins, l'instant plus et la température à l'instant plus, respectivement, on cherche à déterminer la proportion de phase  $\beta$  à l'instant plus  $Z_\beta^+$ .

A un instant plus donné, on cherche la solution  $Z_\beta^+$  telle que  $G(Z_\beta^+) = 0$ , équation qui est résolue par une méthode de Newton avec bornes contrôlées.

$$Z_\beta^{i+1} = Z_\beta^i - \frac{G(Z_\beta^i)}{G'(Z_\beta^i)} \quad \text{éq. 3-1}$$

Le critère d'arrêt est donné par la condition suivante :

$$\text{Si } G(Z_\beta^{i+1}) \leq 10^{-6}, Z_\beta^{i+1} = Z_\beta^+ \quad \text{éq. 3-2}$$

### 3.1 Détermination du sens de l'évolution

Pour savoir quel est le modèle à intégrer à un instant  $t^+$  donné, il suffit de faire les constatations suivantes :

- Si  $Z_\beta^- < Z_\beta^{\text{eq}}(T^+)$  et si on intègre le modèle au refroidissement, on aura obligatoirement  $Z_\beta^+ < Z_\beta^- < Z_\beta^{\text{eq}}(T^+)$ . Or, ceci est contraire à la condition d'application du modèle au refroidissement qui suppose que  $Z_\beta^+ > Z_\beta^{\text{eq}}(T^+)$ . Il faut donc choisir le modèle au chauffage. De la même manière :
- Si  $Z_\beta^- > Z_\beta^{\text{eq}}(T^+)$  et si on intègre le modèle au chauffage, on aura obligatoirement  $Z_\beta^+ > Z_\beta^- > Z_\beta^{\text{eq}}(T^+)$ . Or, ceci est contraire à la condition d'application du modèle au chauffage qui suppose que  $Z_\beta^+ < Z_\beta^{\text{eq}}(T^+)$ . Il faut donc choisir le modèle au refroidissement.

### 3.2 Intégration des équations

- Modèle au chauffage** : la solution est telle que  $Z_\beta^- \leq Z_\beta^+ < Z_\beta^{\text{eq}}(T^+)$ . La fonction  $G^c(Z_\beta)$  et sa dérivée sont données par :

$$G^c(Z_\beta) = Z_\beta - Z_\beta^- - \Delta t \cdot A_c \exp\left[-\frac{E}{RT}\right] |T - T_{\text{eq}}|^M \quad \text{éq. 3.2-1}$$

$$G'^c(Z_\beta) = 1 + M \Delta t \cdot A_c \exp\left[-\frac{E}{RT}\right] |T - T_{\text{eq}}|^{M-1} \cdot T_{\text{eq}} \quad \text{éq. 3.2-2}$$

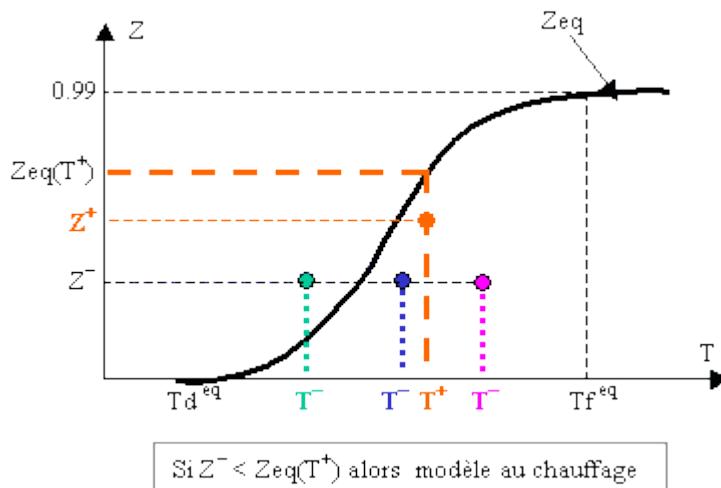
- Modèle au refroidissement** : la solution est telle que  $Z_\beta^{\text{eq}}(T^+) < Z_\beta^+ \leq Z_\beta^-$ . La fonction  $G^r(Z_\beta)$  et sa dérivée sont données par :

$$G^r(Z_\beta) = Z_\beta - Z_\beta^- + \Delta t \cdot \left| T - T_{eq} \right| \exp \left( A_r + B_r \cdot \left| T - T_{eq} \right| \right) \cdot Z_\beta \cdot [1 - Z_\beta] \quad \text{éq. 3.2-3}$$

$$G^r(Z_\beta) = 1 + \Delta t \cdot \left| T - T_{eq} \right| \exp \left( A_r + B_r \cdot \left| T - T_{eq} \right| \right) [1 - 2 \cdot Z_\beta] - \Delta t \cdot \text{sig} \left( T - T_{eq} \right) T_{eq}' \exp \left( A_r + B_r \cdot \left| T - T_{eq} \right| \right) \cdot Z_\beta \cdot (1 - Z_\beta) [1 + B_r \cdot \left| T - T_{eq} \right|] \quad \text{éq. 3.2-4}$$

Avec

$$\begin{cases} \text{Si } Z_\beta = 0, & T_{eq} = 1000 \\ \text{Si } 0 < Z_\beta \leq 0.99, & T_{eq} = \frac{1}{Kn} \log \left( \frac{1}{1 - Z_\beta} \right)^{\frac{1}{n} - 1} \cdot \frac{1}{(1 - Z_\beta)} \\ \text{Si } 0.99 < Z_\beta \leq 1, & T_{eq} = T_{eq}(0.99) \end{cases} \quad \text{éq. 3.2-5}$$



## 4 Modèle ZIRC dans Code\_Aster

### 4.1 Variables internes

Les variables internes de la relation de comportement 'ZIRC' sont :

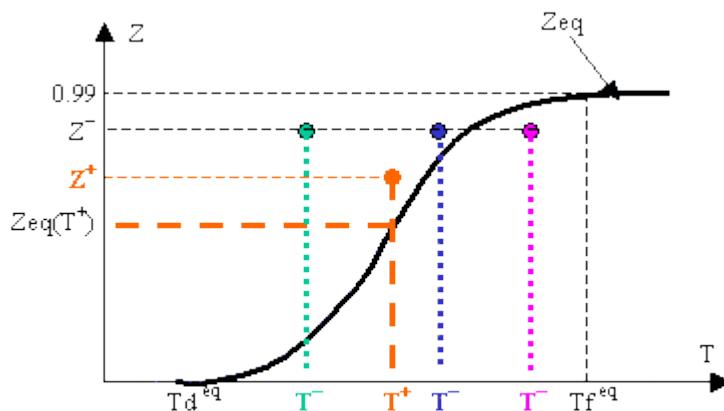
v1 :  $Z_{\alpha 1}$  proportion de la phase alpha1,

v2 :  $Z_{\alpha 2}$  proportion de la phase alpha2,

v3 : TP, température aux nœuds,

v4 :  $t_d^{eq}$  ou  $t_f^{eq}$  correspondant à  $T_d^{eq}$  ou  $T_f^{eq}$ , respectivement.

La proportion des phases  $\alpha$  et  $\beta$  est donnée par :  $Z_{\alpha} = Z_{\alpha 1} + Z_{\alpha 2}$  et  $Z_{\beta} = 1 - Z_{\alpha}$  avec les relations suivantes :



Si  $Z^- > Z_{eq}(T^+)$  alors modèle au refroidissement

Si  $0 \leq Z_{\alpha} \leq 0.9$  alors  $Z_{\alpha 1} = 0, Z_{\alpha 2} = Z_{\alpha}$  et  $Z_{\beta} = 1 - Z_{\alpha}$

- Si  $0.9 \leq Z_{\alpha} \leq 1$  alors  $Z_{\alpha 1} = \frac{Z_{\alpha} - 0.9}{0.1}, Z_{\alpha 2} = Z_{\alpha} - Z_{\alpha 1}$  et  $Z_{\beta} = 1 - Z_{\alpha}$

A terme, les variables v1 et v2 disparaîtront pour ne stocker que  $Z_{\alpha}$  dans v1.

**Remarque :** on considère pour les paramètres matériaux du modèle mécanique, 3 phases différentes :  $\alpha$ ,  $\alpha\beta$  et  $\beta$ , c'est pourquoi deux phases v1 et v2 sont stockées. Or les relations ci-dessus ne sont pas adaptées.

Dans le modèle mécanique META\_LEMA\_ANI, on considère les relations suivantes :

- Si  $0 \leq Z_{\alpha} \leq 0.01$ , on prend les données mécaniques de la phase  $\beta$
- Si  $0.01 \leq Z_{\alpha} \leq 0.1$ , on prend les données mécaniques de la phase  $\beta$  et  $\alpha\beta$
- Si  $0.1 \leq Z_{\alpha} \leq 0.9$ , on prend les données mécaniques de la phase  $\alpha\beta$
- Si  $0.9 \leq Z_{\alpha} \leq 0.99$ , on prend les données mécaniques de la phase  $\alpha$  et  $\alpha\beta$
- Si  $0.99 \leq Z_{\alpha} \leq 1$ , on prend les données mécaniques de la phase  $\alpha$

### 4.2 Utilisation du modèle

Pour activer ce modèle, il suffit de renseigner dans la commande CALC\_META, sous le mot clé COMPORTEMENT, la relation 'ZIRC' (COMPORTEMENT=\_F(RELATION='ZIRC')).

Les paramètres matériaux sont renseignés sous le mot-clé facteur META\_ZIRC de DEFI\_MATERIAU.

Enfin, la définition de l'état métallurgique initial est réalisable à l'aide de la commande `CREA_CHAMP`, sous le mot clé facteur `ETAT_INIT` de l'opérateur `CALC_META`. Il est obligatoire de renseigner les variables internes `V1`, `V2` et `V4`.

**Remarque** : en principe, l'état initial métallurgique est soit  $Z_\alpha = 1$ , soit  $Z_\alpha = 0$  et la variable `V4` n'a pas besoin d'être renseignée initialement. Mais, si pour une raison quelconque, un utilisateur souhaite réaliser le calcul suivant :  $Z_\alpha = 1$  initialement pour  $T_d^{eq} < T(t) < T_c$  alors l'instant  $t_d^{eq}$  sera pris par défaut à zéro si `V4` n'était pas renseignée obligatoirement. C'est pourquoi, la variable `V4` est obligatoire et correspond au 1<sup>er</sup> instant du calcul métallurgique (par nécessairement égal à zéro).

## 5 Bibliographie

- 1) Forgeron, T., et al., "Experiment and modeling of advanced fuel rod cladding behavior under LOCA conditions: A-B phase transformation kinetics and EDGAR methodology", Zirconium in the Nuclear Industry: Twelfth International Symposium, 1998, Toronto, ASTM STP 1354, ASTM

## 6 Historique des versions du document

Version Aster	Auteur(s) ou contributeur(s), organisme	Description des modifications
5	A.RAZAKANAIVO	Texte initial
9.4	V.CANO	Modifications du modèle concernant les températures de début de transformation, qui dépendent de la vitesse de transformation, et nouvelle méthode de résolution