



**HAL**  
open science

# Influence de l'orientation des hydrures sur les modes de déformation, d'endommagement et de rupture du Zircaloy-4 hydruré.

Aude Racine

► **To cite this version:**

Aude Racine. Influence de l'orientation des hydrures sur les modes de déformation, d'endommagement et de rupture du Zircaloy-4 hydruré.. Sciences de l'ingénieur [physics]. Ecole Polytechnique X, 2005. Français. NNT: . pastel-00002307

**HAL Id: pastel-00002307**

**<https://pastel.hal.science/pastel-00002307>**

Submitted on 29 Jul 2010

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THESE présentée pour l'obtention du grade  
de Docteur de l'Ecole Polytechnique

Discipline : **Mécanique et Matériaux**

Laboratoires d'accueil :

Laboratoire de Mécanique des Solides (**LMS**, Ecole Polytechnique)

Laboratoire de Comportement Mécanique des Matériaux Irradiés (**LCMI**, CEA Saclay)

---

INFLUENCE DE L'ORIENTATION DES HYDRURES SUR LES MODES  
DE DEFORMATION, D'ENDOMMAGEMENT ET DE RUPTURE  
DU ZIRCALOY-4 HYDRURE

---

*Aude RACINE*

Soutenue publiquement le 23 septembre 2005

devant le jury composé de :

M. Arthur MOTTA	président
M. Jacques BESSON	rapporteur
M. Ivan GUILLOT	rapporteur
M. François HILD	examineur
M. Pol BOUFFIOUX	invité
M. Marc PETIT	invité
<b>M. Claude SAINTE CATHERINE</b>	responsable de thèse, LCMI, CEA
<b>M. Michel BORNERT</b>	directeur de thèse, LMS, EP

---

## REMERCIEMENTS

---

*Mes remerciements s'adressent d'abord à Claude Sainte Catherine et à Michel Bornert, qui ont respectivement encadré cette thèse au CEA et dirigé celle-ci au LMS. Merci à Claude d'avoir proposé ce sujet et de m'avoir acceptée comme candidate, merci à Michel d'avoir accepté de me diriger. Merci donc à eux de m'avoir permis de passer trois années et demi dans le milieu de la Recherche, d'avoir pu découvrir les facettes de deux laboratoires, le LCMI et le LMS, et de m'avoir permis de bénéficier de cette formation par la recherche qu'est la thèse.*

*Merci à :*

*Jacques Besson et Ivan Guillot, rapporteurs, pour leur lecture très rapide et néanmoins attentive du manuscrit,*

*François Hild et Arthur Motta, celui-ci ayant fait le déplacement depuis les USA, examinateurs, pour leurs remarques pertinentes,*

*Pol Bouffioux et Marc Petit, invités, qui ont accepté de participer au jury.*

*Merci aussi aux nombreuses personnes, du LMS ou du CEA, qui ont apporté leur contribution dans cette thèse, à différents moments-clés et merci en particulier à :*

*Daniel Caldemaison, qui, grâce à sa patience héroïque, a réussi à déposer des micro-grilles sur les éprouvettes anneaux et a rendu possible la réalisation des essais in-situ sous MEB, sans lesquels le principal objectif de cette thèse n'aurait pas pu être atteint..., tout comme Philippe Mongabure, grâce à qui l'aérographe a été adopté, nous permettant de réaliser ainsi les essais « macro » et donc une partie importante de la thèse, et enfin, merci à David Leboulch et Christophe Poussard, sans qui la partie modélisation n'aurait pas vu le jour ...*

*Un grand merci à :*

*William Gilbert et Vincent de Greef pour leur aide précieuse lors de la réalisation des différents essais « macros », Graciela Bertolino pour son aide en particulier pour des essais mais aussi lors de discussions sur notre matériau fétiche, le Zircaloy-4 hydruré, Jérôme Crépin et Chantal Cappelaere pour les discussions autour du zirconium et/ou des hydrures, Olivier Rabouille et Stéphane Allègre pour les conseils de polissage et les échanges au sujet de l'analyse d'images, Jean-Luc Béchade et Jacques Pelé, pour les essais de DRX, Stéphane Urvoy pour le polissage de certaines éprouvettes et Françoise Barcelo pour l'analyse d'images, Sylvie Poissonnet pour les images au MEB FEG. Merci aussi à Martine Blat pour ses tentatives d'hydruration des éprouvettes plates.*

*Merci au LCMI, en particulier à Annie, Chantal, Marylène, Laure et Aurélie, même si je n'y étais pas souvent et si je passais « en coup de vent » ...*

*Merci enfin au LMS, et en particulier à Christiane, Alexandra, Myriam et Brigitte, Jean-Christophe et Jean-François, à l'équipe Microméca, « au bureau », c'est-à-dire à Kamal, puis Nicolas, ainsi qu'Emna et Vincent, – un remerciement spécial à l'adresse de ce dernier, notre « coach », l'organisateur patient des footings exutoires, merci à eux pour la bonne ambiance qui rendait ce lieu agréable ! Merci à Romain Zanni, stagiaire, avec qui les essais ont commencé. Merci aussi aux autres thésards ou post-docs, Benoit, compagnon des conseils de laboratoire et avec qui j'ai découvert le « fonctionnement » du LMS ; Marie, Eva, Alexandre, Cyril, Loïc, Ida, Arnaud, Sébastien, Nicolas, José, Xavier, Oscar, Martin, Kostas, Michele ... grâce à qui le LMS était cosmopolite et vivant ; et merci « aux plus vieux » thésards, Frédéric, Nicolas et Lionel. Et aussi un très grand merci à Emmanuelle et à Graciela, pour leurs conseils prodigués tout au long de la thèse et leur indispensable soutien moral ...*

*Merci à Claude Forsans, mon mentor lors de la formation « Valorisation des Compétences acquises pendant la thèse », réalisée pendant la phase la plus critique de la thèse, c'est-à-dire les neuf derniers mois, qui m'a soutenue activement dans ma recherche d'emploi.*

*Merci enfin à mes parents, qui m'ont « supportée » – aux sens anglo-saxon et français – pendant ces trois longues années et à Julien qui a accepté que notre temps libre soit sacrifié sur l'autel des hydrures à de nombreuses reprises ...*

*Et merci aux deux MEB, le vieux Jéol et le plus jeune Philips, avec lesquels j'ai pu découvrir le monde du très petit et grâce à qui la thèse devenait distrayante ...*





---

## SOMMAIRE

---

<i>INTRODUCTION</i>	<i>1</i>
---------------------	----------

### *CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE*

<i>1.1 Le zirconium et le zircaloy-4 : Généralités</i>	<i>6</i>
1.1.1 Pourquoi les alliages de zirconium sont-ils employés dans les REP ?	6
1.1.2 Le zirconium en phase $\alpha$	6
1.1.3 Le Zircaloy-4 bas-étain	7
1.1.4 Le Zircaloy-4 détendu	9
1.1.5 Modes de déformation du Zircaloy-4 non-irradié	9
<i>1.2 Les alliages de zirconium hydrures : formation des hydrures</i>	<i>12</i>
1.2.1 Limite de solubilité de l'hydrogène dans le zirconium et phénomène de « surcharge »	12
1.2.2 Origine et diffusion de l'hydrogène dans le zirconium et formation d'hydrures	14
1.2.3 Précipitation des hydrures	17
<i>1.3 Comportement mécanique des alliages de zirconium hydrurés</i>	<i>25</i>
1.3.1 Influence – à température ambiante – de la teneur en hydrogène sur la limite d'élasticité, sur la charge à rupture du Zircaloy-4 hydruré	26
1.3.2 ... sur l'allongement réparti et l'allongement à rupture	27
1.3.3 Influence de la température sur ces paramètres mécaniques	28
<i>1.4 Modes de déformation, d'endommagement et de rupture des alliages de zirconium hydrurés</i>	<i>30</i>
1.4.1 Différents mécanismes de dégradation par l'hydrogène / les hydrures	30
1.4.2 Modes de déformation	30
1.4.3 Modes d'endommagement et de rupture observés et recensés dans la littérature	31
<i>1.5 Existence d'une transition ductile-fragile en fonction de la teneur en hydrogène ?</i>	<i>34</i>

### *CHAPITRE 2 : LE MATERIAU : DESCRIPTION ET CARACTERISATION*

<i>2.1 Description du matériau de l'étude</i>	<i>41</i>
2.1.1 Le Zircaloy-4 détendu à basse teneur en étain	41
2.1.2 Hydruration	44
2.1.3 Réorientation des hydrures	46
2.1.4 Caractérisation de la morphologie des hydrures au MEB	47
<i>2.2 Caractérisation par analyse d'images</i>	<i>53</i>
2.2.1 Introduction : Paramètres fréquemment utilisés en Analyse d'images	53

2.2.2	Exemples de certains paramètres « morphologiques » retenus pour des analyses mécaniques	56
2.2.3	Techniques d'analyse d'images appliquées à l'étude des hydrures dans le Zircaloy	58
2.2.4	Caractérisation de la distribution statistique des hydrures : Méthode 1	64
2.2.5	Caractérisation de la distribution statistique des hydrures : Méthode 2	73

**CHAPITRE 3 : TECHNIQUES EXPERIMENTALES (SUIVI OPTIQUE DE MARQUEURS, CORRELATION D'IMAGES), DEROULEMENT DES ESSAIS MACROSCOPIQUES ET IN-SITU, EVALUATION DES INCERTITUDES SUR LES MESURES OPTIQUES.**

3.1	Présentation de l'essai de traction sur anneau	80
3.1.1	Géométrie de l'éprouvette et montage	80
3.1.2	Conditions expérimentales	81
3.1.3	Caractéristiques macroscopiques de la réponse des échantillons	82
3.2	Description des techniques expérimentales employées	83
3.2.1	Technique de suivi de marqueurs : détermination de la réponse globale	83
3.2.2	Technique de corrélation d'images numériques : détermination des champs globaux et locaux	86
3.3	Evaluation des incertitudes	103
3.3.1	Origine des erreurs sur la mesure de déplacement	103
3.3.2	Erreurs sur la mesure de déformation	103
3.3.3	Application : Incertitudes sur les mesures réalisées lors des essais in-situ sous MEB	106
3.3.4	Application : Incertitudes sur les mesures réalisées lors des essais avec caméras numériques	113
3.3.5	Synthèse	117

**CHAPITRE 4 : ESSAIS DE TRACTION SUR ANNEAUX MACROSCOPIQUES ET IN-SITU SOUS MEB : RESULTATS**

4.1	Réponse mécanique globale	120
4.1.1	Courbes des essais effectués à la fois avec suivi de marqueurs et avec extensomètre	120
4.1.2	Premières interprétations quant à l'influence de la teneur en hydrogène et de l'orientation des hydrures	122
4.2	Modes de Déformation	124
4.2.1	Champs de déformation globaux	124
4.2.2	Champs de déformation locaux	136
4.3	Modes d'endommagement et de rupture ; observation des surfaces et des faciès de rupture	151
4.3.1	Mode ductile : NH, 200C	152
4.3.2	Mode purement fragile : 200R	155
4.3.3	Mode fragile après déformation ductile (et endommagement) : 200M, 500C, 500M, 500R	157
4.4	Endommagement des hydrures ?	162

## CHAPITRE 5 : MODELISATION NUMERIQUE DE L'ESSAI SUR ANNEAU

5.1	<i>Préambule</i>	176
5.1.1	Objectifs	176
5.1.2	Bref rappel : modèle développé par [Grange 1998]	176
5.1.3	Choix d'un modèle non-couplé	176
5.2	<i>Modélisation numérique de l'essai sur anneau et confrontation avec la mesure par corrélation numérique</i>	177
5.2.1	Ajustement des paramètres du modèle numérique de l'essai sur anneau	177
5.2.2	Résultats obtenus	179
5.3	<i>Proposition d'un critère de rupture et mise en œuvre</i>	181
5.3.1	Modèle de type endommagement	181
5.3.2	Modèle proposé	183
5.3.3	Prise en compte de l'orientation des hydrures	185
5.4	<i>Résultats du calcul et comparaison avec l'expérience</i>	188
5.5	<i>Discussion</i>	194
	<i>CONCLUSIONS</i>	197
	<i>REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES</i>	207
	<i>ANNEXES</i>	211



---

## INTRODUCTION

---

### 1. RAPPEL DU CONTEXTE : LA FRAGILISATION PAR L'HYDROGENE, QUESTIONS POSEES DANS LE CADRE DE L' AVAL DU CYCLE DU COMBUSTIBLE

Le combustible des réacteurs à eau sous pression (REP) est confiné par une première barrière appelée gaine, en alliage de zirconium détendu. En opération à 300-350°C et sous environ 155 bars, ces gaines sont oxydées par l'eau du circuit primaire (suivant la réaction :  $Zr + 2 H_2O \rightarrow ZrO_2 + 2 H_2$ ) et, une partie de l'hydrogène dégagé par cette réaction diffuse dans l'alliage de zirconium. L'hydrogène se trouve d'abord en solution solide, puis une fois la limite de solubilité dépassée, il précipite sous forme d'hydrures de zirconium ( $ZrH_x$ ,  $1,53 \leq x \leq 1,66$ ). En fin de vie, les tubes peuvent contenir plusieurs centaines de ppm d'hydrogène, répartis d'une manière hétérogène : les teneurs maximales sont atteintes sur la paroi extérieure et en haut des tubes, l'hydrogène peut aussi former un "rim" – une épaisse couche externe – ou des lentilles – sortes d'amas –.

Suivant certains paramètres (teneur en hydrogène, orientation des hydrures par rapport à la sollicitation, température, répartition des hydrures ...), ces précipités peuvent conduire à une fragilisation de l'alliage pénalisante vis-à-vis de son utilisation. Or, l'intégrité mécanique des gaines doit être garantie pendant et après la vie en réacteur, la gaine étant la première barrière de confinement du combustible.

Après leur vie en réacteur, différentes voies sont envisagées concernant le devenir des assemblages de combustibles usés. Un Programme de Recherche sur l'Evolution à long terme des Colis de Combustibles Irradiés (PRECCI) a été lancé en 1999 dans le cadre de la loi Bataille de 1991. Cette loi-cadre a défini trois axes de recherche pour la gestion des déchets radioactifs à haute activité et à vie longue [*Loi n°91-1381 du 30 décembre 1991*] :

- la recherche de solutions permettant la séparation et la transmutation des éléments radioactifs à vie longue présents dans ces déchets (Axe 1) ;
- l'étude des possibilités de stockage réversible ou irréversible dans des formations géologiques profondes des déchets de haute activité à vie longue, notamment grâce à la réalisation de laboratoires souterrains (Axe 2) ;
- l'étude de procédés de conditionnement et d'entreposage de longue durée en surface de ces déchets (Axe 3).

Les activités du programme PRECCI se situent dans le cadre de l'axe 3 et ont été centrées en particulier sur les réponses aux questions opérationnelles posées par un entreposage.

L'entreposage à sec ou en piscine étant par définition provisoire, il sera nécessaire de reprendre les assemblages de combustible usés après une certaine période. Dans ce cas, il faut s'assurer que la « reprise » de ces colis sera possible : cela dépend de l'évolution des propriétés mécaniques des crayons combustibles et du squelette de l'assemblage à l'issue de la période d'entreposage, quelle que soit la solution envisagée. En effet, différents scénarii sont possibles :

- assèchement<sup>1</sup>, transport puis entreposage à sec. Les crayons ne sont pas dépastillés et restent pressurisés. De plus, comme ils vont être entreposés avec le combustible qu'ils contiennent, la température de l'assemblage reste élevée. Au cours du transport, dont la durée maximale envisagée est de l'ordre de 30 jours, la température ne doit pas dépasser 420°C ; en début d'entreposage, la température sera d'environ 300°C et va décroître lentement les années qui vont suivre ; les contraintes circonférentielles auxquelles les tubes sont soumises varient également : elles sont de l'ordre de 35 à 65 MPa pendant la phase de refroidissement en piscine, de 70 à 150 MPa pendant le transport et l'entreposage (Figure 1).
- assèchement, transport avec des conditions identiques au cas précédent, puis entreposage sous eau : lors de cette phase, le refroidissement est rapide ; la température d'entreposage serait de l'ordre de 50°C.
- entreposage en piscine à proximité des centrales sans phase de transport.

Au cours de ces différents scénarii, divers phénomènes peuvent se produire, suivant les conditions de température, de vitesse de refroidissement, de sollicitation, d'environnement : par exemple, on peut citer : le fluage des gaines, leur corrosion sous contrainte par l'iode et la dissolution de l'hydrogène contenu dans les tubes de gainage, puis sa reprecipitation sous forme d'hydrures, éventuellement radiaux. C'est ce dernier point qui a motivé le sujet de thèse présenté ici.

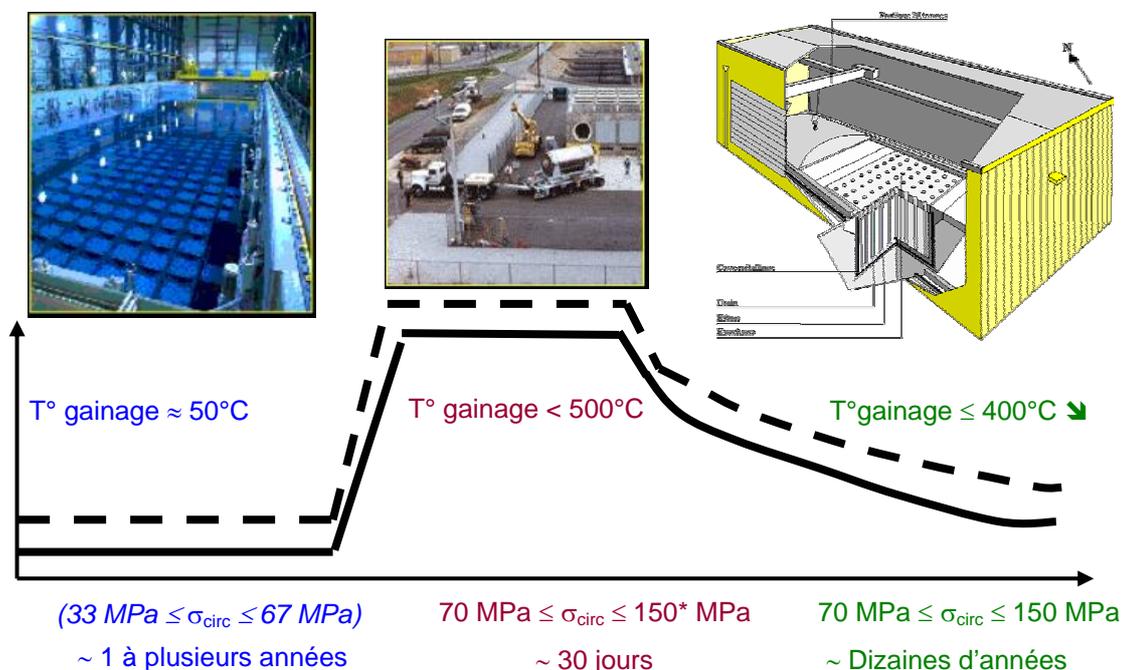


Figure 1 : De la sortie du réacteur à l'entreposage : ordres de grandeur des températures et contraintes circonférentielles auxquelles les tubes de gainage sont soumis.

<sup>1</sup> Assèchement des crayons : opération réalisée par tirage sous vide entre la sortie de la piscine et la mise en châteaux de transport.

## 2. OBJECTIFS DE L'ETUDE

Lors de la phase de transport, puis de manipulation, les tubes de gainage sont soumis à des variations de température : augmentation de cette température lors du transport, puis diminution lors de la manipulation et de l'entreposage, diminution lente ou rapide selon que l'entreposage est à sec ou sous eau. Ce cyclage thermique peut entraîner la dissolution des hydrures, puis la reprécipitation de l'hydrogène en hydrures. L'orientation de ceux-ci peut varier selon l'état de contrainte de la structure au cours du refroidissement.

L'objectif de cette étude est de déterminer l'influence de l'orientation des hydrures par rapport à l'axe de sollicitation sur les modes de déformation, d'endommagement et de rupture du Zircaloy-4. Le matériau de cette thèse provient du programme SP3 du projet PRECCI, qui concerne l'évolution des propriétés mécaniques des matériaux métalliques de l'assemblage irradié en entreposage. Dans ce cadre, outre le développement de modèles de fluage, des études sur le rôle de l'hydrogène sont également entreprises, qui visent à mieux connaître les conditions de réorientation des hydrures, et à évaluer les risques potentiels causés par cette réorientation, à chaud et à froid.

Les caractéristiques du matériau de l'étude ont été déterminées dans le cadre de ce programme par les trois partenaires EDF, CEA et Framatome. Il s'agit de Zircaloy-4 dans sa finition industrielle, détendu, non-irradié, hydruré à environ 200 et 500 ppm (teneurs représentatives de ce qui est observé en centrale REP), et ayant subi un traitement de réorientation des hydrures, de façon à obtenir pour chaque teneur trois distributions d'orientation des hydrures : la première, appelée « circonférentielle », est constituée d'hydrures alignés suivant la circonférence des tubes, cette orientation est celle des hydrures formés en réacteur et est fréquemment étudiée, la seconde, appelée « radiale », est constituée par des hydrures orientés perpendiculairement aux parois des tubes, la troisième, « mixte », est constituée à la fois par des hydrures radiaux et par des hydrures circonférentiels.

Afin de progresser dans la compréhension des micro-mécanismes d'endommagement et de rupture de cet alliage de zirconium hydruré, différents types d'essais ont été réalisés au cours de cette thèse, sur des anneaux issus de ces tubes de gainage. Le terme micro-mécanisme désigne la répartition des contraintes et déformations au niveau microstructural, conduisant à l'amorçage de l'endommagement, sa croissance et au déclenchement de la rupture.

Une première série d'essais dits « macroscopiques » avait pour objectifs d'une part, l'obtention de la réponse mécanique des sept configurations étudiées (six configurations de matériaux hydrurés et celle du matériau non-hydruré), d'autre part l'étude des champs globaux de déformation. Pour ce dernier point, les éprouvettes ont été recouvertes d'un fin mouchetis, sur leurs faces plane et bombée, et des images numériques étaient acquises tout au long de l'essai à une fréquence d'une image par seconde environ.

D'autres essais ont été réalisés in-situ sous MEB, sur des éprouvettes recouvertes de micro-grilles d'or de pas 2  $\mu\text{m}$ , dans le but d'observer au cours de l'essai les modes d'endommagement et de rupture du Zircaloy-4 et particulièrement des hydrures, et d'accéder, à partir du dépouillement des images haute résolution acquises au cours de l'essai, aux champs locaux de déformation. Il a ainsi été possible de déterminer si les hydrures perturbent ces champs.

L'exploitation de ces différents essais a été possible grâce à l'utilisation intensive de la technique de la corrélation d'images numériques, fournissant, en plus des réponses globales et des observations qualitatives locales plus classiques, une quantification du champ de déformation à diverses échelles. L'observation qualitative de l'endommagement et des faciès de rupture des éprouvettes permet

d'obtenir des informations complémentaires, sur différents plans d'observation, indispensables pour essayer d'identifier les mécanismes de ruine du matériau dans différentes configurations d'hydruration. Tous les essais ont été réalisés à 20°C, considérée comme une des températures possibles pour la reprise des assemblages de combustible. L'interprétation des résultats obtenus au cours de cette partie expérimentale s'appuie sur des travaux d'analyse d'images, qui ont permis de quantifier notamment la proportion d'hydrures radiaux, qui semblent jouer un rôle déterminant dans le comportement mécanique du matériau. Les résultats issus de l'analyse d'images et les résultats expérimentaux ont ensuite servi de support à une modélisation par la mécanique de l'endommagement, visant à reproduire la réponse mécanique obtenue lors des différents essais.

### 3. PLAN DU MEMOIRE

Le mémoire se divise en cinq chapitres.

Le premier est consacré à l'étude bibliographique et rappelle les principales caractéristiques du Zirconium (structure cristallographique, composition chimique, texture ...) et des hydrures (structure cristallographique, mode de formation ...), avant de présenter les propriétés mécaniques d'alliages de zirconium hydrurés, issues d'études réalisées sur différents matériaux, comportant des hydrures parallèles ou normaux à la sollicitation.

Le second chapitre est consacré au matériau de notre étude : ses caractéristiques métallurgiques, ainsi que la méthode d'hydruration et de réorientation des hydrures sont détaillées ; les caractéristiques morphologiques des hydrures obtenues à partir d'images MEB seront présentées. Ensuite, des techniques d'analyses d'images issues de la littérature sont discutées, et la technique mise au point et appliquée pour notre étude est explicitée.

Au cours du troisième chapitre, les différentes techniques expérimentales employées sont décrites : suivi de marqueurs, corrélation d'images numériques issues du MEB ou de caméras optiques. Des ordres de grandeur des incertitudes associées aux mesures par corrélation d'images sont précisés.

Enfin, le quatrième chapitre regroupe les résultats des essais réalisés : essais avec suivi de marqueurs pour obtenir la réponse mécanique des anneaux, dans leur sept configurations (non-hydruré, matériau hydruré à 200 ou 500 ppm avec des orientations circonférentielle, mixte ou radiale) ; essais sur anneaux avec mouchetis pour accéder aux champs de déformation globaux à l'échelle de l'éprouvette anneau ; essais in-situ sous MEB sur des anneaux comportant des micro-grilles d'or pour observer directement au cours de l'essai les mécanismes d'endommagement, de rupture et pour accéder aux champs de déformation locaux.

Dans le cinquième chapitre, l'approche concernant la modélisation de l'influence de l'orientation des hydrures sur le comportement mécanique, ou plutôt sur la rupture du matériau est décrite : il s'agit d'une modélisation par la mécanique de l'endommagement anisotrope non-couplé au comportement. Un critère de rupture portant sur le niveau de déformation à l'échelle d'un volume élémentaire représentatif de matériau hydruré et dépendant de l'orientation des hydrures est proposé et validé par une simulation complète de l'essai sur anneau.

Cette étude révèle la complexité du mode de déformation des anneaux soumis à traction, présentant ici des hétérogénéités à plusieurs échelles. La combinaison des diverses analyses et observations permet de préciser les divers scénarii de ruine du matériau, allant d'une rupture purement ductile faiblement influencée par les hydrures à une rupture fragile brutale induite par les hydrures radiaux.





---

## CHAPITRE 1 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

---

Avant de décrire le travail réalisé pendant cette thèse et les résultats auxquels il a abouti, nous présenterons quelques données et résultats issus de la littérature intéressants pour le sujet de l'étude. Ainsi on exposera d'abord les caractéristiques du matériau de l'étude au sens large, en commençant par celles du zirconium pour aboutir à celles du Zircaloy-4 hydruré. Ensuite, nous nous intéresserons au comportement mécanique des alliages en zirconium hydrurés, ainsi qu'à leurs modes d'endommagement et de rupture. La littérature étant très abondante sur le sujet – des articles traitant du système Zr-H datent de 1962 [Beck 1962] et d'autres concernant les alliages de zirconium hydrurés sont datés de 1966 [Evans 1966] –, cette étude bibliographique est loin d'être exhaustive. Elle rassemble seulement les quelques éléments nécessaires pour définir le cadre du sujet et l'état des connaissances actuelles, afin de mieux situer notre étude parmi les travaux déjà réalisés et de saisir l'originalité de notre démarche.

## 1.1 LE ZIRCONIUM ET LE ZIRCALOY-4 : GENERALITES

Nous commencerons l'étude bibliographique par la présentation du matériau, le Zircaloy-4, et du zirconium, métal de base de cet alliage : composition et influence des éléments d'addition, texture et modes de déformation seront explicités.

### 1.1.1 POURQUOI LES ALLIAGES DE ZIRCONIUM SONT-ILS EMPLOYES DANS LES REP ?

Les alliages de zirconium sont principalement employés pour la fabrication des tubes de gainage du combustible nucléaire et des tubes guides dans les centrales nucléaires de type REP. Les tubes de gainage (ou crayons combustibles) sont destinés à contenir les pastilles de combustible. Ils mesurent environ 4 m de long, 9,5 mm de diamètre, et 0,57 mm d'épaisseur. On en compte 41 448 dans un réacteur de centrale REP de 900 MW, répartis dans 157 assemblages de 264 crayons chacun. Ces tubes de gainage forment la première barrière de confinement du combustible, et leur intégrité doit donc être garantie au cours du fonctionnement et après, lors de l'aval du cycle<sup>1</sup>.

L'utilisation de ces alliages s'explique d'abord par leur très faible section efficace de capture des neutrons thermiques – ce qui contribue à l'amélioration du bilan neutronique du réacteur –, et ensuite par la stabilité de ces caractéristiques sous irradiation. Enfin, leur résistance à la corrosion par l'eau et leurs propriétés mécaniques sont suffisantes dans le domaine des températures de fonctionnement (300°C environ).

### 1.1.2 LE ZIRCONIUM EN PHASE $\alpha$

Le zirconium, de numéro atomique 40, appartient à la même classe que le titane (numéro 22) et le hafnium (numéro 72). En conditions normales de pression et température, il présente deux variétés allotropiques : la phase  $\alpha$ , hexagonale compacte, stable pour une température inférieure à 863°C, et la phase  $\beta$ , cubique centrée ( $a = 0,361$  nm), pour les températures supérieures à ce seuil. A température ambiante, un zirconium de haute pureté a pour paramètres de maille :  $a = 0,3232$  nm et  $c = 0,5147$  nm. Le rapport  $c/a$  égal à 1,593, est donc inférieur au rapport  $c/a$  idéal d'un empilement de sphères dures ( $((c/a)_{\text{idéal}} = \sqrt{\frac{8}{3}} = 1,633)$ ).

Les principales propriétés du zirconium sont résumées dans le tableau ci-dessous (Tableau 1) :

<b>Propriétés physiques à 20°C</b>	<i>Masse volumique</i>	6,5 g.cm <sup>-3</sup>
<b>Propriétés thermiques à 20°C</b>	<i>Température de fusion</i>	1850°C
	<i>Coefficient de dilatation</i>	6,5 10 <sup>-6</sup> /°C
<b>Propriétés mécaniques à 20°C</b>	<i>Module d'élasticité</i>	98 GPa
	<i>Module de cisaillement</i>	36,5 GPa
	<i>Coefficient de Poisson</i>	0,35

Tableau 1 : Principales propriétés du zirconium à 20°C [Tricot 1990].

<sup>1</sup> L'expression « aval du cycle » désigne l'ensemble des étapes de la vie du combustible utilisé après son service en réacteur : entreposage en piscine dans la centrale, transport, traitement éventuel (cycle fermé) et entreposage à sec ou sous eau soit des déchets issus du retraitement, soit des tubes et du combustible (cycle ouvert) qu'ils contiennent.

Les propriétés physiques du Zr dépendent de sa pureté. Les propriétés mécaniques sont particulièrement influencées par les teneurs en carbone, azote et oxygène, ces deux derniers ayant un important effet durcissant [Tricot 1990]. D'autres études ont aussi mis en évidence le rôle du soufre [Ferrer 2000] qui modifierait la cinétique de certains mécanismes de déformation (le soufre a un effet durcissant de 100 à 400°C) ou de fluage (l'addition de soufre ralentit la vitesse de fluage secondaire entre 350 et 430°C d'un facteur 3).

### 1.1.3 LE ZIRCALOY-4 BAS-ETAÏN

L'alliage de zirconium Zy-4, matériau dans sa finition industrielle tel qu'il est employé en réacteur et pour cette étude, est cristallisé dans la phase  $\alpha$ , sous forme hexagonale compacte. Suivant la température, les différentes phases de cet alliage sont [Miquet 1982] :

- $\alpha + \text{Zr}(\text{Fe}, \text{Cr})_2$  :  $T < 808^\circ\text{C}$  ;
- $\alpha + \text{Zr}(\text{Fe}, \text{Cr})_2 + \beta$  :  $808 \leq T \leq 845^\circ\text{C}$  ;
- $\alpha + \beta$  :  $845 \leq T \leq 1008^\circ\text{C}$  ;
- $\beta$  :  $T \geq 1008^\circ\text{C}$ .

La composition de plusieurs alliages de zirconium est résumée dans le tableau ci-dessous (Tableau 2) :

<i>Elément chimique (% massique)</i>	<i>Zircaloy-2</i>	<i>Zircaloy-4 : ancien standard</i>	<i>Zircaloy-4 : AFA 2G (bas étain)</i>	<i>Zircaloy-4 : ASTM B353</i>
<i>Etain</i>	1,2 – 1,7	1,38 – 1,52	1,25 – 1,27	1,2 – 1,7
<i>Fer</i>	0,07 – 0,2	0,20 – 0,23	0,20 – 0,21	0,18 – 0,24
<i>Chrome</i>	0,05 – 0,15	0,10 – 0,12	0,11	0,07 – 0,13
<i>Nickel</i>	0,03 – 0,08	-----	-----	-----
<i>Zirconium</i>	Complément à 100%	Complément à 100%	Complément à 100%	Complément à 100%

Tableau 2 : Composition chimique de différents alliages de zirconium.

Les éléments d'addition [Tricot 1990] sont :

- soit, alphasènes : ils stabilisent la phase  $\alpha$  et augmentent la température de transition entre la phase  $\alpha$  et la phase  $\beta$  du Zr ; ils sont en solution solide d'insertion (O, N, C) ou de substitution (Sn) ;
- soit bêtagènes : ils abaissent le transus et stabilisent la phase  $\beta$  où ils sont préférentiellement solubles (Ti) ;
- soit bêtaeutectoïdes : ils forment avec le Zr une réaction eutectoïde de décomposition de la phase  $\beta$  (Fe, Cr, Ni, et H en insertion). Ces éléments sont souvent insolubles en phase  $\alpha$ .

Outre leur influence sur le diagramme de phase du Zr, les divers éléments peuvent jouer un rôle sur [Mac Inteer 1989] :

- la limite d'élasticité et la résistance mécanique du Zy-4,
- son comportement en fluage,
- sa résistance à la corrosion,
- son absorption d'hydrogène,

- sa croissance – ou grandissement – sous irradiation (ce phénomène correspond à une déformation anisotrope obtenue sous flux en l'absence de sollicitation, spécifique des matériaux texturés ou fortement anisotropes ; dans les alliages de zirconium, la croissance se traduit par une réduction des dimensions selon l'axe  $\langle c \rangle$ , et une expansion selon l'axe  $\langle a \rangle$ ).
- l'interaction pastille de combustible - tube de gainage et la corrosion sous contrainte.

Quelques effets de certains éléments sont résumés d'une manière non exhaustive ci-après.

L'étain améliore la limite d'élasticité du zirconium [Kaufmann 1974]. Cependant, afin d'améliorer la résistance à la corrosion du Zy-4, sa teneur a été limitée à 1,2 – 1,7% (Norme ASTM B353), ce qui explique l'appellation « bas-étain ». Mais, d'après [Mac Inteer 1989], la résistance en fluage du Zy-4 croît avec la teneur en étain : ainsi, la diminution de la teneur en étain de 1,7 à 1,2% s'accompagne d'une multiplication de la vitesse de fluage par un facteur 6 (sur matériau non-irradié).

L'oxygène améliore aussi les propriétés mécaniques de l'alliage : une addition de 0,1% conduit à une augmentation de la limite d'élasticité de 130 MPa [Tricot 1990]. Cet élément, à cause de sa mobilité importante est aussi à l'origine du phénomène de « vieillissement dynamique » des alliages de zirconium observé aux températures de 200 - 450°C [Prioul 1995] : l'ancrage rapide des dislocations par l'oxygène se traduit par une augmentation de la contrainte d'écoulement, une chute de la ductilité, une baisse de la vitesse de fluage. Cependant, les phénomènes de vieillissement statique et dynamique sont éliminés par l'irradiation qui cause l'ancrage des atomes d'oxygène sur les lacunes, et cause une augmentation de la vitesse de fluage [Prioul 1995]. A température ambiante, la solubilité de l'oxygène dans le  $Zr\alpha$  est de 30% atomique. La grande affinité du Zr pour l'oxygène à toute température conduit à la formation d'une couche passive de zircone ( $ZrO_2$ ) sur la paroi externe des tubes de gainage [Robert-Berat 2001].

Le fer et le chrome sont pratiquement insolubles en phase  $\alpha$  (solubilité inférieure à 200 ppm à 800°C) : ils précipitent sous forme de composés intermétalliques  $Zr(Fe, Cr)_2$  de structure hexagonale [Tricot 1990] qui appartiennent à la catégorie des phases de Laves. Ils améliorent la tenue à la corrosion de l'alliage entre 0,1 et 0,3%, mais le rapport fer/chrome est à prendre en compte [Lemaignan 1998]. Ils limitent la croissance des grains lors de la recristallisation, favorisant ainsi ses propriétés mécaniques [Grange 1997]. Ils semblent influencer le site de formation des hydrures [Bertolino 2003].

L'hydrogène est quant à lui une impureté de fabrication qui n'est pas introduite volontairement dans le matériau au cours de la fabrication. Mais, de l'hydrogène provenant de la réaction d'oxydation de la gaine par l'eau du circuit primaire va diffuser dans l'alliage de Zr et être présent dans la matrice soit en solution solide, soit sous forme d'hydrures. Les atomes d'hydrogène sont situés sur les sites tétraédriques de la matrice de Zr. Leurs interactions avec les atomes d'oxygène favorisent une solubilité croissante des atomes d'hydrogène dans le  $Zr\alpha$  jusqu'à une certaine teneur en oxygène, puis au contraire, la solubilité de l'hydrogène diminue pour les fortes teneurs en oxygène [Yamanaka 1997]. L'hydrogène influence le comportement viscoplastique du matériau : la vitesse de fluage du matériau *détendu* est ralentie par effet inhibiteur de l'hydrogène sur la restauration statique de l'écroutissage pour des températures de 470 – 520°C [Bouffieux 2000].

#### 1.1.4 LE ZIRCALOY-4 DETENDU

Contrairement aux tubes guides qui sont en Zircaloy-4 recristallisé, les tubes de gainage, subissent après leur mise en œuvre par laminage au pas de pèlerin un traitement de détensionnement. Ce traitement thermomécanique consiste à porter le matériau à 460°C pendant 1h30 à 2h afin de relaxer l'essentiel des contraintes résiduelles de première espèce (macroscopiques). Il ne restaure que partiellement l'écroutissage du matériau. D'après [Béchade 1994], il n'influe presque pas sur les textures.

Le Zy-4 est fortement anisotrope, à cause d'une part, de la nature des cristaux de  $Zr\alpha$  (anisotropie de la maille hexagonale et des mécanismes de déformation associés) et d'autre part, de « l'organisation » des grains (taille, morphologie, orientation) fortement induite par le procédé de mise en œuvre.

Sa texture est donc très marquée, comme cela est représenté sur les figures de pôles présentées ci-après (Figure 1). On remarque que les axes  $\langle c \rangle$  de la maille hexagonale sont en majorité compris dans le plan transverse au plan de laminage et inclinés de 40° environ par rapport à la direction radiale. Les directions  $[10.0]$  sont très majoritairement orientées suivant la direction axiale.

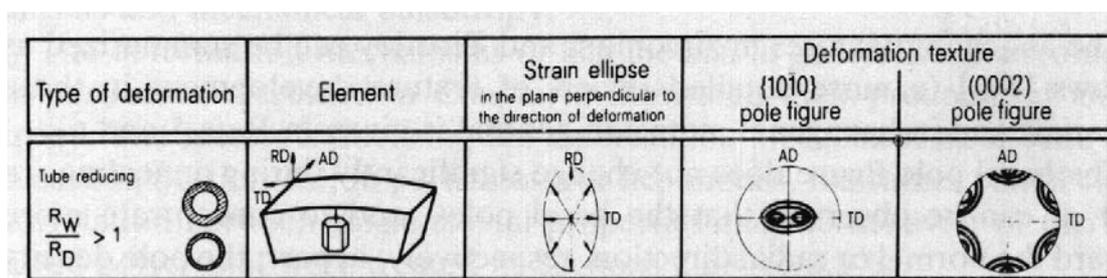


Figure 1 : Représentation schématique de la texture du Zircaloy-4 [Tenckhoff 1988], influencée par le mode d'élaboration.

D'après [Fandeur 2001], aucune évolution de la texture avec l'irradiation n'a pu être mise en évidence.

#### 1.1.5 MODES DE DEFORMATION DU ZIRCALOY-4 NON-IRRADIE

Les hexagonaux peuvent se déformer plastiquement par glissement des dislocations, par maillage ou par « pliage en genou » (appelé aussi « kink bands ») [Tenckhoff 1988]. Les modes de déformation activés dépendent notamment de la nature de la sollicitation, du rapport de compacité du matériau déformé et de la composition du matériau [Béchade 1994].

##### Le glissement des dislocations

A l'échelle microscopique, la déformation plastique est assurée par le glissement des dislocations, qui correspond à un cisaillement du réseau cristallographique selon un plan et une direction de glissement. Dans les métaux, les systèmes de glissement potentiellement activables sont en général définis par les règles suivantes :

- les directions de glissement sont les directions denses (celles ayant le plus petit vecteur de Burgers) ;
- les plans de glissement sont les plans denses ;

- selon la loi de Schmid et Boas, pour une certaine contrainte uniaxiale, c'est le système de glissement caractérisé par la plus grande valeur du facteur de Schmid ( $\cos \lambda \cos \varphi$ ) qui sera sollicitée au passage de la limite d'élasticité (avec  $\lambda$  : angle entre la direction de sollicitation et la normale au plan ;  $\varphi$  : angle entre la direction de sollicitation et la direction de glissement).

A ces règles, il faut ajouter pour les hexagonaux, l'influence du rapport  $c/a$  sur le plan de glissement (Figure 2). En effet, l'espacement interplanaire et la compacité varient avec la valeur de ce rapport. Pour les rapports ( $c/a$ ) supérieurs ou égaux à la valeur idéale, le plan de base est le plus dense. Si le rapport ( $c/a$ ) est inférieur à  $\sqrt{3}$ , alors le plan prismatique est en moyenne plus dense que le plan de base [Tenckhoff 1988].

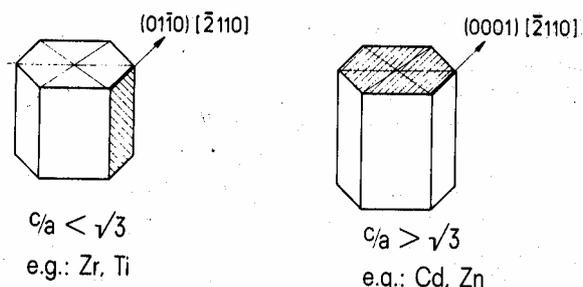


Figure 2 : Schéma illustrant la dépendance des plans de glissement des dislocations avec le ratio axial ( $c/a$ ).

Pour les hexagonaux, deux directions de glissement (une de type  $\langle a \rangle$  ( $\langle 1-210 \rangle$ ) et une de type  $\langle c+a \rangle$  ( $\langle 1-213 \rangle$ )), auxquelles sont associées quatre plans de glissement (basal, prismatique, pyramidal de 1<sup>ère</sup> et 2<sup>ème</sup> espèce) sont recensés [Tenckhoff 1988].

D'après les observations expérimentales recensées [Tenckhoff 1988], les alliages de zirconium non-irradiés, obéissent aux règles évoquées précédemment : le système de glissement principal (ou facile) est donc le glissement prismatique suivant le vecteur  $\mathbf{a}$  (un des trois vecteurs du plan de base).

Les modes de glissement principaux et secondaires sont résumés dans le Tableau 3 et dans la Figure 3 :

Système de glissement	Direction de glissement	
Prismatique {10-10} $\langle 1-210 \rangle$	$\langle a \rangle$	<b>Mode principal de déformation</b> pour une large plage de températures, en traction ou en compression [Akhtar73].
Pyramidal de 1 <sup>ère</sup> espèce $\pi_1$ {10-11} $\langle 1-210 \rangle$	$\langle a \rangle$	Glissement secondaire le plus actif, favorisé par une hausse de la température.
Basal {0001} $\langle 1-210 \rangle$	$\langle a \rangle$	Important à partir de 850°K lorsque les orientations sont défavorables au glissement prismatique [Akhtar73].
Pyramidal de 1 <sup>ère</sup> espèce {10-11} $\langle -1-123 \rangle$	$\langle c+a \rangle$	Actif dès qu'il faut accommoder la déformation plastique selon $\langle c \rangle$ , actif à température ambiante dans les échantillons de Zy-4 laminés à froid [Tenckhoff 1988]. En concurrence avec le maillage, surtout à basse température.
Pyramidal de 2 <sup>ème</sup> espèce $\pi_2$ {11-22} $\langle -1-123 \rangle$	$\langle c+a \rangle$	

Tableau 3 : Modes de glissement principaux et secondaires du Zircaloy-4 dans l'ordre croissant de leurs cissions critiques à température ambiante [Fandeur 2001].

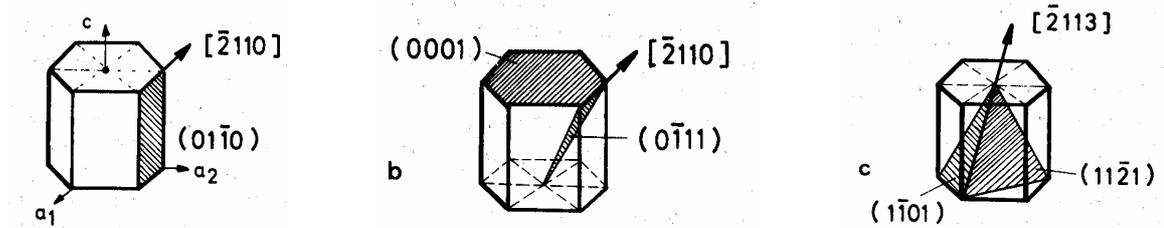


Figure 3 : Principaux systèmes de glissement observés dans les métaux à structure hexagonale [Tenckhoff 1988].

### Le maclage

Le maclage correspond à une translation de plans parallèles les uns par rapport aux autres, suivant une direction de maclage, de telle sorte que le cristal déformé devienne symétrique du cristal non-déformé par rapport au plan de macle. Il est présent dans les hexagonaux du fait du petit nombre de systèmes de glissement et de la restriction de ceux-ci à la déformation dans la direction  $\langle a \rangle$  [Tenckhoff 1988]. Le maclage permet donc d'accommoder la déformation suivant l'axe  $\langle c \rangle$ . Mais, il se produit principalement aux températures basses ou ambiantes et est très peu observé aux hautes températures [Crépin 1995]. Il peut jouer un rôle important dans la déformation, car il permet de réorienter localement le grain pour ensuite favoriser le glissement. On compte 4 systèmes de maclage dans le zirconium et ses alliages [Tenckhoff 1988].

*En conclusion, les modes de déformation du monocristal de zirconium sont nombreux et leur activation dépend de plusieurs facteurs : le mode de sollicitation, l'orientation du cristal par rapport à la direction de sollicitation, la composition de l'alliage [Béchade 1994], la température d'essai, la texture cristallographique dont dépendent les interactions entre les grains, la vitesse de déformation. Pour le Zircaloy-4, on peut retenir que :*

- les déformations de la forme  $(p \otimes a + a \otimes p)$ ,  $p$  vecteur quelconque, suivant la direction  $\langle a \rangle$  à température ambiante se produisent par glissement prismatique  $\{10\text{-}10\} \langle 1\text{-}210 \rangle$  ;
- l'accommodation des déformations locales comportant des termes de la forme  $(c \otimes p + c \otimes p)$  requiert l'activation de systèmes pyramidaux ou de maclage.

*Cette anisotropie à l'échelle du grain ajoutée à celle à l'échelle globale due à la mise en forme induit de fortes hétérogénéités de déformation.*

### Influence de l'irradiation

L'irradiation neutronique engendre la création de défauts qui font obstacles au mouvement des dislocations et provoque le durcissement du matériau (diminution de la ductilité). Elle modifie l'activation des systèmes de glissement, les cissons critiques étant plus élevées et leur hiérarchie changée. La déformation plastique à 350°C se produit par canalisation des dislocations, qui a lieu suivant les plans de base pour des sollicitations de traction sens travers et de pression interne ; dans les plans prismatiques et pyramidaux pour les sollicitations de traction axiale [Onimus 2003].

## 1.2 LES ALLIAGES DE ZIRCONIUM *HYDRURES* : FORMATION DES HYDRURES

Il est établi que l'hydrogène précipité en hydrures affecte les propriétés d'usage dans les domaines suivants [Blat 2002] :

- *Corrosion* :

La cinétique de corrosion est multipliée par 1,3 à 1,5 ;

- *Mécanique* :

- La vitesse de fluage du matériau *détendu* est ralentie (même observation si l'hydrogène est seulement en solution solide) car l'hydrogène a un effet durcissant ;

- Le comportement à rupture se dégrade pour les fortes teneurs en hydrogène ou pour certaines orientations d'hydrures ;

- *Métallurgie* :

- La température de transition de la phase  $Zr_{\alpha}$  en  $Zr_{\beta}$  est abaissée ;

- La précipitation d'hydrures s'accompagnant d'une dilatation volumique du  $Zr_{\alpha}$  d'environ 17%, elle contribue au grandissement des éléments d'assemblage aux forts taux de combustion ;

- L'hydrogène induit un retard dans la restauration / recristallisation du Zy-4 détendu.

Intéressons-nous donc aux mécanismes de formation des précipités d'hydrures de zirconium et essayons d'apporter des réponses aux questions suivantes : d'où vient l'hydrogène nécessaire à leur formation, dans quelles conditions les précipités se forment, quelle est leur phase et quelles sont leurs propriétés cristallographiques, quelle est leur morphologie, quelles sont les particularités liées à cette hydratation ?

### 1.2.1 LIMITE DE SOLUBILITE DE L'HYDROGENE DANS LE ZIRCONIUM ET PHENOMENE DE « SURCHARGE »

La formation des précipités d'hydrures est liée à la très faible limite de solubilité de l'hydrogène dans le zirconium : celle-ci est quasiment nulle (inférieure à 1 ppm) à température ambiante et augmente ensuite avec la température (Figure 4, Figure 5).

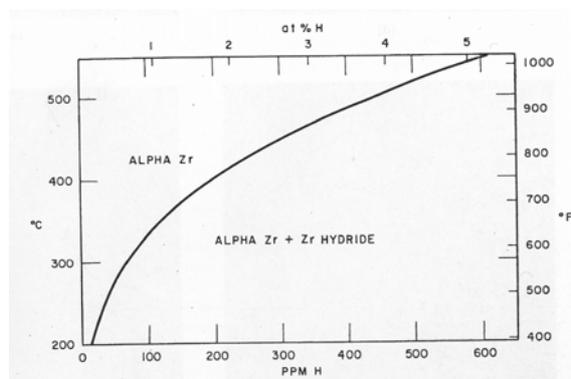


Figure 4 : Graphe donnant la limite de solubilité – au chauffage – de l'hydrogène dans la phase  $\alpha$  du Zy-2 et du Zy-4 selon la température [Kearns 1968].

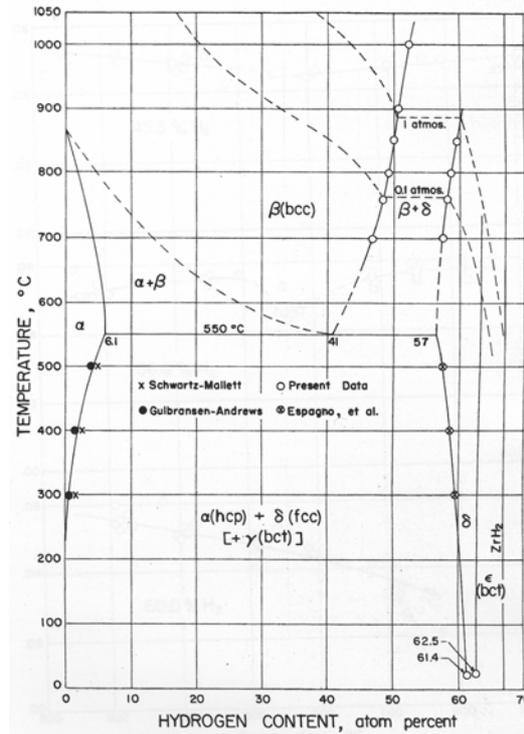


Figure 5 : Diagramme de phase Zr-H [Beck 1962].

La limite de solubilité terminale pour le Zircaloy-4 en dessous de 550°C (à l'équilibre thermodynamique) est donnée par la relation [Kearns 1967] :

$$C_s = 9,9 \cdot 10^4 e^{\frac{-8250}{RT}} = 9,9 \cdot 10^4 e^{\frac{-4152}{T}}$$

- $C_s$  : limite de solubilité de H dans Zr (ppm) ;
- T : température (K) ;
- R : constante des gaz parfaits,  $R = 1,9868 \text{ cal/mole } ^\circ\text{C}$ .

L'application de cette formule nous fournit des ordres de grandeur de la limite de solubilité de l'hydrogène dans le Zircaloy-4 (Tableau 4) :

Température (°C)	20	100	200	300	350	400	450	500
Limite de solubilité (ppm)	0	1.4	15	70	125	200	310	450

Tableau 4 : Limites de solubilité de l'hydrogène dans le zirconium : ordres de grandeur [Kearns 1967].

On remarque que l'influence des éléments d'alliage sur le processus d'absorption d'hydrogène n'est pas prise en compte [Bertolino 2003]. Mais il semble que la limite de solubilité soit peu influencée par la nature de l'alliage, la microstructure ou les contraintes résiduelles [Kearns 1967].

Le système Zr-H présente une particularité appelée « surcharge » (« supersaturation » en anglais) : la phase  $Zr_\alpha$  peut être sursaturée en hydrogène, c'est-à-dire qu'au refroidissement, la phase hydrure ne va

pas précipiter dans la phase  $Zr_\alpha$  à la température prédite par le diagramme de phase [Northwood 1983]. Par exemple, à 300°C, la matrice  $Zr_\alpha$  peut contenir environ 75 ppm de plus en solution solide (sans précipitation d'hydrures).

Ainsi la précipitation se produit pour une température inférieure à celle prévue par le diagramme de phase ; de même, la dissolution se produit pour une température supérieure à celle prévue par le diagramme de phase conduisant ainsi à une hystérésis dans les courbes de dissolution-précipitation (Figure 6).

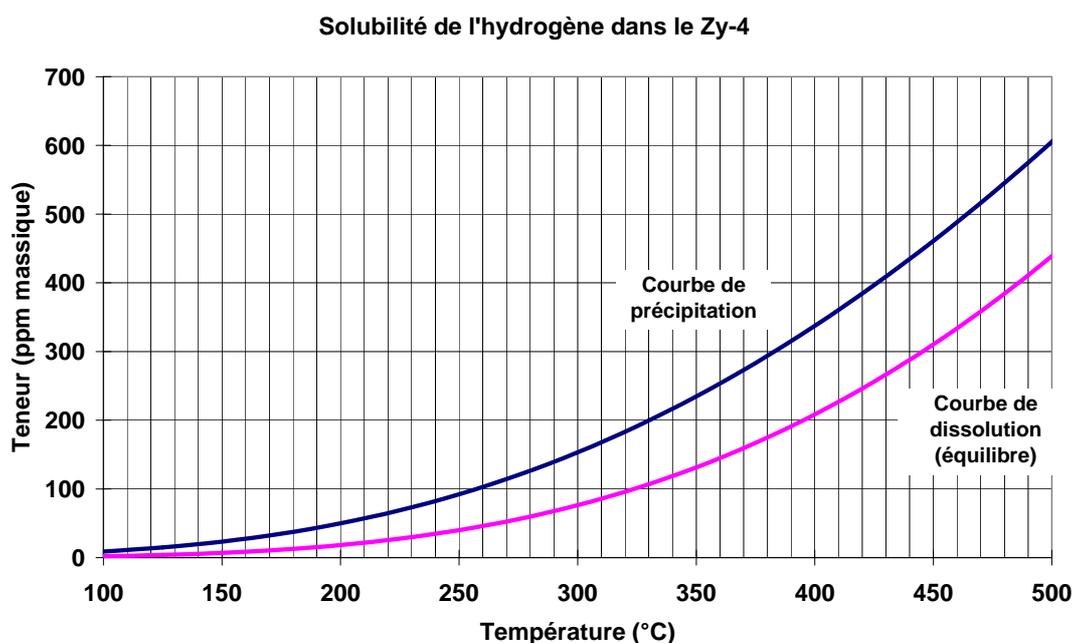


Figure 6 : Diagramme de solubilité de l'hydrogène dans le Zy-4, établi d'après des données de [Kammenzind 1996].

### 1.2.2 ORIGINE ET DIFFUSION DE L'HYDROGENE DANS LE ZIRCONIUM ET FORMATION D'HYDRURES

L'hydrogène qui diffuse dans le matériau des tubes de gainage peut provenir de différentes sources [Zhang 1993], [Lee 2002] :

- *externes* :

- la corrosion de la gaine par l'eau du circuit primaire,
- l'hydrogène dissout dans l'eau du circuit primaire (cette eau est préalablement désaérée, l'hydrogène dissout va aider à la recombinaison des produits de la radiolyse en eau, pour limiter la formation d'oxygène et l'oxydation des gaines),
- la radiolyse de l'eau (l'eau, soumise à un rayonnement intense, constitué de neutrons et de rayons gamma dû à la réaction de fission de l'uranium, se décompose en oxygène et en eau oxygénée),

- *internes* :

- l'hydrogène contenu dans les pastilles de combustible,
- l'humidité absorbée par les pastilles de combustible.

Ce mécanisme de diffusion concerne à la fois le métal du tube de gainage (Zr), l'oxyde (la couche externe de zircon) et l'eau, qui corrode [Northwood 1983]. Il est régi par l'équation suivante :

$$J = - \frac{D_H C_x}{RT} \left[ RT \left( \frac{d \ln C_x}{dx} \right) + \frac{Q^*}{T} \frac{dT}{dx} - \frac{V^*}{3} \frac{d\sigma}{dx} \right] \quad [\text{Northwood 1983}]$$

avec :

$$D_H = 2,17 \exp\left(\frac{-8380}{RT}\right) \text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1} \quad [\text{Kearns 1968}]$$

- $J$  : flux d'hydrogène ;  
 $C_x$  : concentration de l'hydrogène en solution au point  $x$  ;  
 $D_H$  : coefficient de diffusion de l'hydrogène dans le métal (A 400°C,  $D_H = 4,11 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ) ;  
 $Q^*$  : chaleur de transport de l'hydrogène dans le métal ;  
 $V^*$  : volume de transport de l'hydrogène dans le métal ;  
 $R$  : constante des gaz parfaits ( $R = 1,9868 \text{ cal/mole} \cdot \text{°C}$ ) ;  
 $T$  : température (°C) ;  
 $\sigma$  : contrainte de traction (une contrainte de compression aurait un signe négatif).

D'après cette équation, l'hydrogène diffuse vers les zones où :

- la concentration d'hydrogène est la plus faible ;
- la température est la plus basse ;
- la contrainte est la plus élevée.

Quant à la vitesse de diffusion de l'hydrogène, elle varie suivant la température et la « matière », ainsi elle est  $10^8$  fois plus faible dans l'oxyde que dans la matrice  $Zr\alpha$  ;  $10^2$  fois plus faible dans l'hydrure que dans la matrice  $Zr\alpha$  [Blat 2002].

Remarque : le taux d'hydruration (« hydrogen pick-up »)

Le taux d'hydruration (FH) correspond à la fraction d'hydrogène absorbé et caractérise le comportement du matériau lors de l'hydruration [Blat 2002]. Il est égal au rapport entre la quantité d'hydrogène absorbé par le matériau  $H - H_{ini}$  (quantité mesurée quantitativement par extraction à chaud sous vide par exemple et diminuée de la quantité initiale d'hydrogène) et la quantité théorique libérée par la réaction de corrosion  $H_T$ .

$$FH = 100 \cdot \frac{H - H_{ini}}{H_T}$$

- $H$  : teneur en hydrogène mesurée ;  
 $H_{ini}$  : teneur contenue initialement dans le matériau ;  
 $H_T$  : teneur totale théorique libérée par la réaction d'oxydation et que l'on suppose absorbée par le matériau.

Le taux d'hydrogène absorbé dépend de plusieurs facteurs :

- la composition chimique du matériau,
- les contraintes résiduelles,
- le traitement thermique,
- le rapport surface/volume de l'échantillon exposé,

- la présence d'une couche d'oxyde.

Le taux d'hydruration est souvent compris entre 5 et 20 % dans les alliages de zirconium.

### Superchargement (« Supercharging » en anglais)

Des observations ont montré que le Zircaloy pouvait absorber beaucoup plus d'hydrogène qu'une analyse basée sur la solubilité de la phase  $\alpha$  du zirconium ne le prédit, et que l'hydrogène « en excès » à la température de l'expérience est distribué aux joints de grain. Ceci est en contradiction avec le phénomène de diffusion, selon lequel, la concentration d'hydrogène devrait augmenter jusqu'à ce que la limite de solubilité soit atteinte [Northwood 1983]. Cet hydrogène serait supposé diffuser dans la gaine sans former d'hydrures. Puis, au-delà de la limite de solubilité, l'hydrogène précipiterait à la surface extérieure de la gaine – là où la limite de solubilité est atteinte en premier –. La couche ainsi formée devrait s'épaissir au fur et à mesure, comme cela se passe pour la couche de zircone ( $ZrO_2$ ), issue de l'oxydation du Zr. Cette couche d'hydrure massive se situerait à l'interface métal / couche de zircone.

Or, ce phénomène de précipitation massive en surface externe est bien observé lors du chargement artificiel par voie cathodique (réalisé à température ambiante), mais pas lors de l'hydruration par voie gazeuse (effectué en température et avec une surpression d'hydrogène), ou lors de corrosion par l'eau ou la vapeur. Le phénomène observé, en revanche, correspond à une distribution de l'hydrogène sous forme d'hydrures répartis dans la matrice. [Hillner 1972] prouve que la précipitation d'hydrogène se produit d'une manière discontinue lorsque la température diminue (Figure 7).

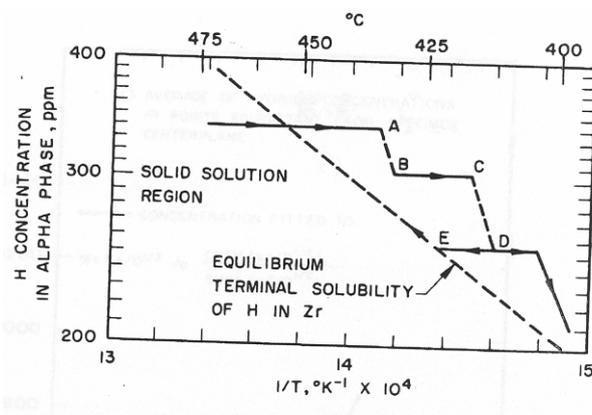


Figure 7 : Teneur en hydrogène dans la phase  $\alpha$  durant le refroidissement d'un échantillon de Zr contenant 340 ppm d'hydrogène [Hillner 1972].

Il explique que ce phénomène de « superchargement » peut se produire aussi en l'absence de cyclage thermique, contrairement aux interprétations antérieures. D'après lui, la capacité de la matrice  $Zr\alpha$  à être sursaturée en présence de la phase d'hydrures (phénomène de surcharge), permet l'existence d'un gradient de concentration dans la solution solide  $Zr\alpha$  suffisant pour engendrer une précipitation isotherme dans l'échantillon : c'est-à-dire que les hydrures précipités permettent à la matrice d'accepter plus d'hydrogène que le diagramme de solubilité ne le prédit. Le phénomène de surcharge (*supersaturation*) permet le superchargement (*supercharging*).

[Marino 1971] a élaboré un modèle quantitatif de diffusion et de croissance simultanée d'hydrures pour expliquer la répartition des précipités d'hydrures formés au cours de la corrosion isotherme du

Zircaloy. D'après les résultats de ce modèle, selon la valeur de la vitesse de croissance de l'hydrure, il y a un chargement d'hydrogène en sursaturation ou formation d'un film d'hydrure.

### 1.2.3 PRÉCIPITATION DES HYDRURES

#### Répartition des hydrures

Les hydrures sont des objets complexes, notamment suite à leur formation, que l'on peut observer à différentes échelles, comme cela sera détaillé ultérieurement. A une échelle très globale, celle de la gaine, on peut observer des hétérogénéités de répartition des hydrures. Voici des exemples de ces différentes de répartition, dans le matériau irradié d'une part, et dans le matériau non-irradié d'autre part.

- Dans les tubes de gainage issus des centrales REP, des hétérogénéités macroscopiques de répartition des hydrures sont induites par les conditions d'hydruration [Blat 2002] et on remarque :
  - un gradient radial dans la gaine ; le gradient de température entre la paroi interne et la paroi externe étant d'environ 50°C, et la paroi externe étant la plus froide, l'hydrogène y précipite préférentiellement et peut former un « rim », c'est-à-dire une couche externe dense en hydrure d'environ 50 à 80 µm d'épaisseur ; outre les rims, des lentilles d'hydrures se forment parfois lorsque la couche de zircone est partiellement desquamée et que l'hydrogène peut diffuser directement dans le matériau de gainage sans traverser la zircone. Le résultat de cette précipitation en hydrogène dense et localisée en forme de lunule est appelée « lentille » ou « blister ».
  - un gradient axial le long de la gaine ; la température est plus basse en bas des assemblages de tubes de gainage (290°C en bas et 320°C en haut), la réaction d'oxydation se produit donc davantage en haut du crayon, la couche externe de zircone y est plus épaisse et l'hydruration y est plus importante (Figure 8) ;

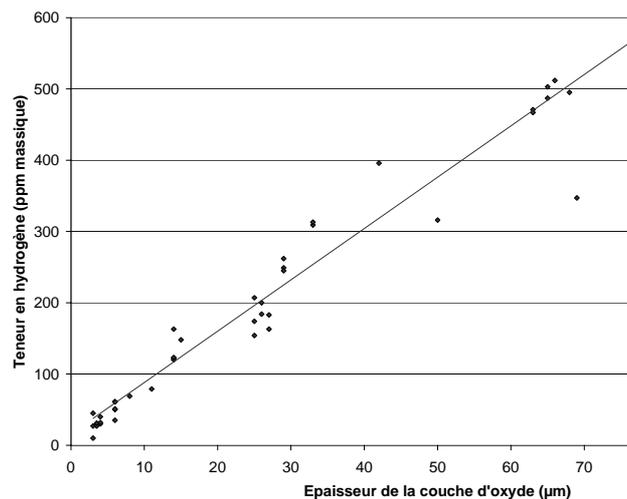


Figure 8 : Relation entre l'épaisseur d'oxyde et la teneur en hydrogène mesurée. Valeurs provenant de tubes en Zy-4 détendu irradiés, nombre de cycles variables [Données internes CEA]

- de zones plus hydrurées au niveau des interpastilles. Ces zones particulières présentent simultanément une température de quelques degrés inférieure et une distribution de contraintes différente dans l'épaisseur de la gaine.

- Dans le matériau détendu non-irradié (comme celui de l'étude), différentes situations peuvent être reproduites. La répartition des hydrures dépend de la teneur en hydrogène et du type de chargement en hydrogène : la voie gazeuse permet d'obtenir une répartition homogène dans l'épaisseur de la gaine, la voie cathodique produit une répartition hétérogène et est en général suivie d'un traitement thermique d'homogénéisation.

### Différentes phases d'hydrures

Différentes phases d'hydrures de zirconium peuvent précipiter. Quelques unes de leurs propriétés cristallographiques, ainsi que certaines caractéristiques de leur transformation sont résumées dans le Tableau 5 et le Tableau 6.

Hydrure	Composition	Structure et paramètres cristallins de la phase hydrure (Zr-H)	Relations d'orientation	Accommodation	Morphologie et plan d'habitat
<b>δ stable</b>	ZrH <sub>x</sub> 1,53 ≤ x ≤ 1,66	Cubique à faces centrées a = 0,4777 à 0,4779 nm [Elston 1965]	[1-10] <sub>δ</sub> // [11-20] <sub>α</sub> et (111) <sub>δ</sub> // (0001) <sub>α</sub>	Essentiellement plastique	Plaquettes // (0001) ou (10-17)
<b>γ métastable</b>	ZrH	Quadratique à faces centrées a = 0,4617 nm c = 0,4888 nm [Elston 1965]	[1-10] <sub>γ</sub> // [11-20] <sub>α</sub> et (111) <sub>γ</sub> // (0001) <sub>α</sub>	Elastique et plastique	Aiguilles // <11-20>
<b>ε</b>	ZrH <sub>x</sub> 1,71 ≤ x ≤ 2	Quadratique à faces centrées a = 0,488 à 0,502 nm c = 0,457 à 0,436 nm c/a = 0,935 à 0,865 [Elston 1965]			

Tableau 5 : Principales propriétés des différentes phases d'hydrures de zirconium. Les paramètres sont donnés pour une température de 20°C [Elston 1965], [Bai 1991], [Prat 1994], [Guillot 2003].

Hydrure	Vitesse de refroidissement	Dilatation volumique (%)	Type de transformation
<b>δ stable</b>	< 2°C/min	16,3 à 17,2	Martensitique : transformation de la maille hexagonale du Zrα en maille CFC, puis dilatation sous l'influence de l'H qui occupe certains sites tétraédriques en (1/4, 1/4, 1/4) et dans des positions équivalentes. Le rayon du site est environ 0,0378 nm et il y a deux sites par atome de Zr [Northwood 1983].
<b>γ métastable</b>	> 2°C/min	12,3 à 15,7	La phase γ se forme à partir de la phase α par un processus hybride impliquant un cisaillement de la maille hexagonale et simultanément une migration des atomes d'hydrogène (diffusion). Pour la transformation de la phase δ à γ, une situation similaire existe [Zuzek 1990].
<b>ε</b>			La phase ε est issue d'une transformation martensitique (à basse température, sans diffusion) de la phase δ [Libowitz 1962], [Northwood 1983].

Tableau 6 : Caractéristiques des transformations donnant naissance aux différentes phases d'hydrures [Elston 1965], [Bai 1991], [Prat 1994], [Guillot 2003].

Parmi ces trois phases d'hydrures, dans les conditions normales de service en réacteur, c'est la précipitation d'hydrures  $\delta$ , qui est observée. Ces précipités  $ZrH_x$  ( $1,53 \leq x \leq 1,66$ ) contiennent de 60,4 à 62,4 % atomique d'hydrogène [Elston 1965] et leur densité calculée par rayons X est de  $5,65 \text{ g.cm}^{-3}$ . La formation et la croissance de cette phase sont favorisées par les conditions suivantes :

- une teneur en oxygène supérieure à 1000 ppm [Cann 1984],
- un refroidissement lent (en réacteur ou en four),
- une teneur en hydrogène suffisamment élevée (supérieure à 100 ppm) [Cann 1984].

Dans les hydrures, les atomes de métal forment une maille cubique à face centrées pour les hydrures  $\delta$ , ou une maille tétragonale à faces centrées pour les hydrures  $\epsilon$ . Les atomes d'hydrogène occupent les sites interstitiels tétraédriques, de 76 à 83% pour la phase  $\delta$  et de 85 à 100 % pour la phase  $\epsilon$ . Dans la phase d'hydrure  $\delta$ , le sous-réseau des sites interstitiels tétraédriques des atomes d'hydrogène forme un réseau cubique simple [Wipf 2000].

### Mécanismes de formation et plans d'habitat des hydrures $\delta$ , sites de précipitation et géométrie de l'empilement

Avant de présenter davantage la structure des hydrures issue de leur formation, précisons que les hydrures peuvent être observés à différentes échelles :

- une échelle millimétrique : réseau d'hydrures observés dans la section d'un tube de gainage au microscope optique par exemple (après révélation des hydrures par attaque chimique) ;
- une échelle de la centaine de micromètres : hydrures « macroscopiques » (échelle du MEB) ;
- une échelle plus fine, de la centaine de nanomètres : plaquettes d'hydrures (échelle du MET).

Il est en effet admis [Westlake 1968], [Perovic 1983], [Perovic 1992] que les précipités d'hydrures sont formés par coalescence de plus petites plaquettes d'hydrures. On appellera les premiers simplement « hydrures » et les seconds « plaquettes ». Les schémas de la Figure 9 donnent une représentation simplifiée de la constitution de ces hydrures.

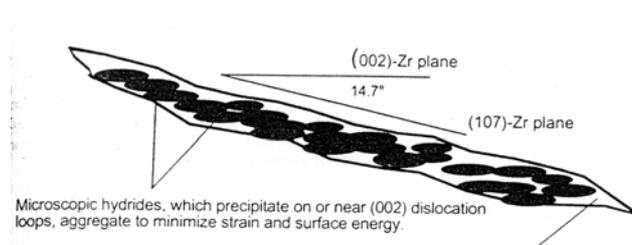


Figure 9 : Coalescence de plaquettes formant un hydrure macroscopique [Chung 2002]. Des ordres de grandeur des dimensions sont donnés dans le Tableau 7.

Le plan d'habitat dans lequel les plaquettes vont précipiter, et le plan « apparent » des hydrures (c'est-à-dire le plan des hydrures macroscopiques) dépendent de l'état de contrainte appliqué au tube de gainage [Chung 2002].

Dans un matériau irradié dans des conditions normales de fonctionnement, et dans le matériau non-irradié ne subissant pas de contrainte, les hydrures précipitent dans le plan  $\{10\text{-}17\}_{Zr}$  qui est à  $14,7^\circ$  du plan de base. Les plaquettes précipitent quant à elles sur des plans  $\{0002\}_{Zr}$ , sur ou à proximité de dislocations  $\langle c \rangle$  formées en réacteur. Ceci est résumé dans le Tableau 7.

	Echelle	Plan d'habitat
<b>Hydrures macroscopiques</b> (visibles au microscope optique si attaque chimique ou au MEB)	Longueur : 2000 à 10000 nm ; Epaisseur : 100 à 200 nm.	Hydrures précipités dans le plan (10-17), à 14,7° du plan de base.
<b>Plaquettes d'hydrures</b> (visibles au MET)	Longueur : 100 à 200 nm ; Epaisseur : 30 à 50 nm. Précipitation inter- ou intra-granulaire (taille du grain = environ 5 x 10 µm).	Plaquettes précipitées sur ou proche de boucles de dislocations dans le plan basal (0002).

Tableau 7 : Dimensions et plans d'habitat des hydrures et des plaquettes qui les constituent d'après des observations de [Chung 2002].

La proximité du plan d'habitat des hydrures avec le plan de base associée à l'effet de texture des alliages de zirconium (la majorité des grains ont leur axe  $\langle c \rangle$  orientés à 30° de la direction radiale) expliquent pourquoi les hydrures « circonférentiels » ne sont pas strictement alignés, mais sont disposés en « zig-zag » (Figure 10). En effet, une longue chaîne d'hydrures est composée de segments d'hydrures proches des plans de base dans des grains différents et sont donc alignés dans des directions différentes.

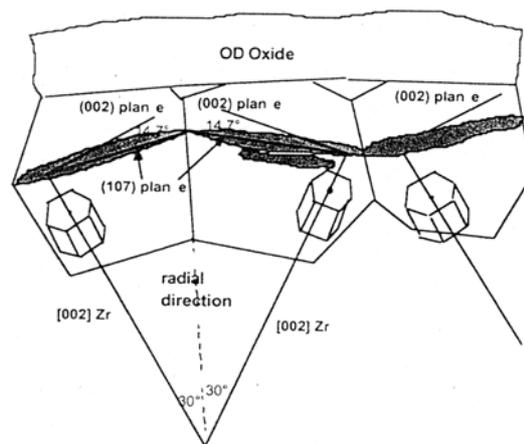


Figure 10 : Alignement d'hydrures macroscopiques à travers plusieurs grains [Chung 2002].

Dans les tubes de gainage non-irradiés soumis à une contrainte circonférentielle élevée (190 MPa) à 325°C, hydrurés à 430 ppm environ, puis lentement refroidis sous charge, certains hydrures se réorientent [Chung 2002]. Les hydrures « circonférentiels » précipitent dans un plan proche de  $\{10.4\}_{Zr}$  à 24,7° du plan de base ; d'autres hydrures « radiaux » précipitent dans un plan pyramidal à 61,5° du plan de base, le plan  $\{01.1\}_{Zr}$ .

D'après les schémas présentés précédemment, les hydrures précipitent dans les grains. Mais, aucun site privilégié de formation des hydrures n'a été mis en évidence. Par exemple, [Grange 1998] observe dans son matériau, du Zy-4 partiellement recristallisé, une précipitation aussi bien inter- que intragranulaire. Le lieu de germination des hydrures pourrait être lié à l'état de contrainte local sur les facettes des joints de grain, de macles ou à l'intérieur des grains [Perovic 1992] (Tableau 8). Ce facteur détermine également la formation des empilements d'hydrures.

Traitement thermo-mécanique		Sites de germination		
		Transgranulaire	Joint de grains	Joint de macles
1. Traction	+ 4%	*	***	
2. Compression	- 0,5%	**	**	
3. Compression	- 4%		**	**
4. (1 ou 2 ou 3) + 3h à 650°C + refroidissement lent		***	*	

Tableau 8 : Fréquence d'observation des sites de précipitation des hydrures  $\delta$  en fonction du traitement thermomécanique (\* : peu observé ; \*\*\* : fréquemment observé). Observations réalisées sur du Zy-2, soumis à une déformation en traction ou en compression, avant le chargement cathodique en deutérium (équivalent à 60 ppm d'hydrogène).

Cette relation entre lieu de germination et état de contrainte permet d'expliquer pourquoi le plan d'habitat apparent de l'hydrure peut être très différent de celui des plaquettes, et peut varier à l'intérieur d'un seul grain [Perovic 1992]. Cette variation est supposée être représentative des changements de l'état de contraintes internes d'un endroit à un autre au sein d'un grain. Ainsi, les angles d'empilement élevés sont favorisés par une contrainte de traction normale au plan d'habitat ; et les angles faibles par une contrainte interne de cisaillement agissant dans le même sens que le déplacement en cisaillement associé au changement de forme de l'hydrure.

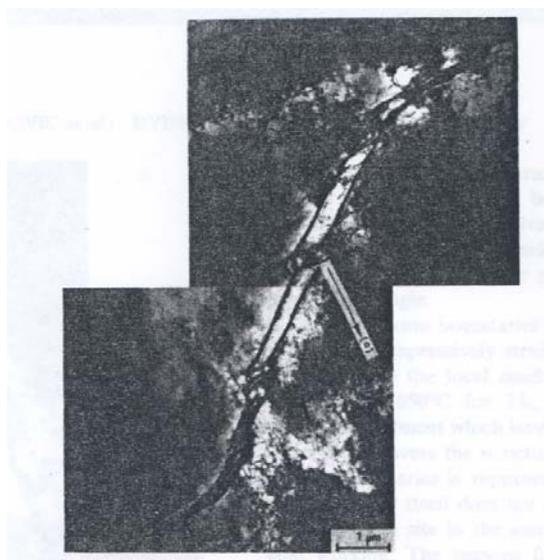


Figure 11 : Photographie (prise au MET) d'un hydrure macroscopique en forme de S dans un grain de Zy-2 (taille moyenne de grain de 20  $\mu\text{m}$ ) [Perovic 1992].

Sur la Figure 11, l'hydrure a une forme de « S », forme couramment observée dans le matériau détendu. Les plaquettes le constituant sont alignées le long d'un plan  $\{10-17\}_{\text{Zr}}$  conformément à des observations antérieures, mais dans le centre du grain, plusieurs plaquettes ont coalescé et sont alignées dans un plan d'habitat apparent plus proche de  $\{10-11\}_{\text{Zr}}$  que du plan de base. [Perovic 1992] insiste sur le fait que toutes les plaquettes de cette micrographie ont la même relation d'orientation avec la matrice, mais la forme de « S » vient seulement de la forme de l'empilement de ces plaquettes.

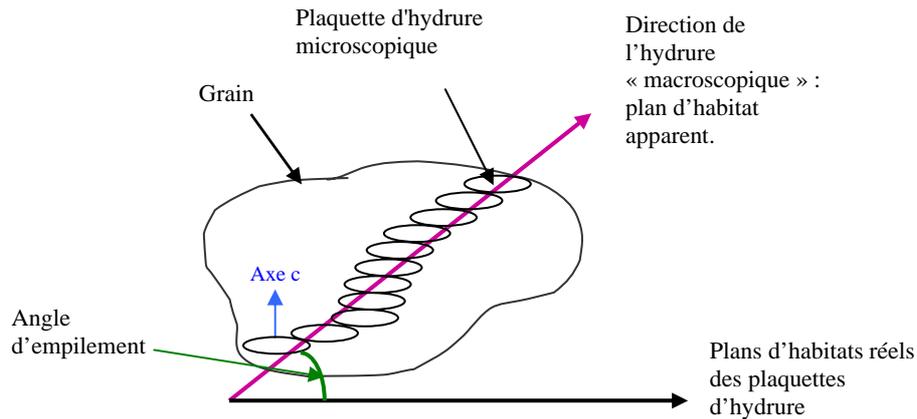


Figure 12 : Représentation schématique d'un empilement de plaquettes d'hydrures formant un hydrure macroscopique.

Remarquons que ces observations aboutissent à des descriptions des hydrures en deux dimensions. Or les hydrures sont des objets en trois dimensions. Mais très peu d'informations sur leur description volumique sont disponibles.

### Orientation des hydrures

Intéressons-nous maintenant aux hydrures macroscopiques, visibles au MEB ou au microscope optique. La notion d'orientation abordée dans ce paragraphe concerne les hydrures « macroscopiques ». L'orientation de ces hydrures, lorsque le matériau hydruré a une géométrie tubulaire, est souvent qualifiée de « circonférentielle » ou de « radiale ». Cela signifie respectivement que les hydrures sont soit sensiblement parallèles aux parois du tube, soit perpendiculaires à celles-ci et donc orientés suivant un des rayons du tube (Figure 13, Figure 14).

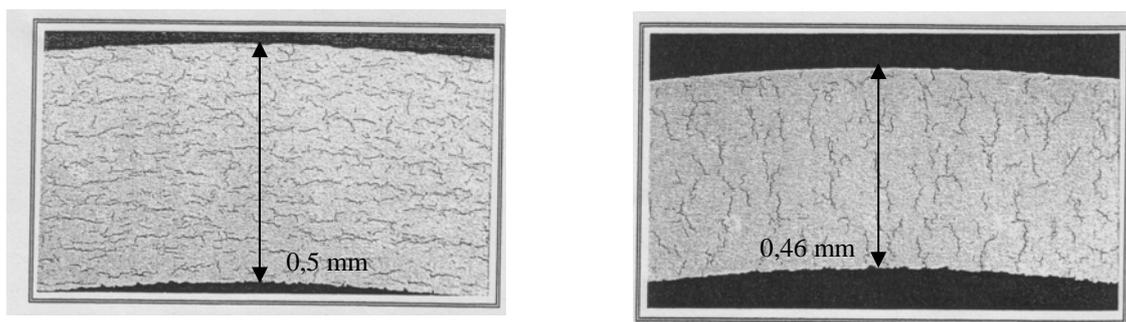


Figure 13 : Coupes de tubes de Zy-4 détendu hydruré à environ 150 ppm. A gauche, orientation « circonférentielle », à droite, orientation « radiale ».

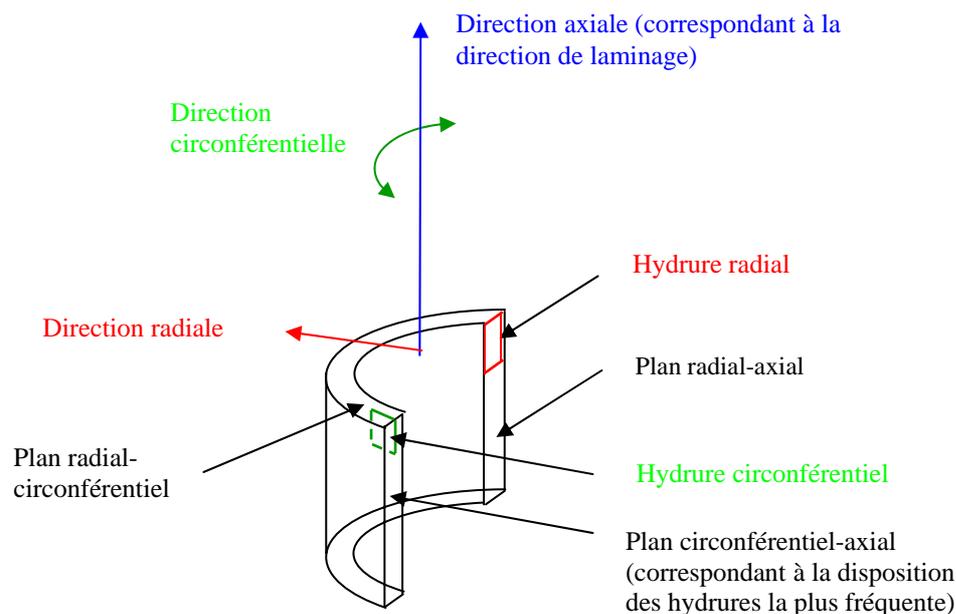


Figure 14 : Représentation schématique d'un hydrure orienté circonférentiellement et d'un autre orienté radialement.

L'orientation des hydrures est connue pour avoir une influence significative sur la rupture des tubes de gainage. Lorsque le matériau n'est pas sous charge, c'est l'histoire thermomécanique du matériau, c'est-à-dire les déformations préalablement induites, qui détermine l'orientation des hydrures [Hardié 1975]. En revanche, lorsque le matériau est sous charge, l'orientation dépend à la fois de la texture et de la contrainte appliquée. La réorientation d'hydrures sous charge n'est possible que sous certaines conditions. Premièrement, le mode de fabrication doit permettre l'obtention d'une texture favorable (dans le cas de l'alliage Zr-2,5Nb étudié par [Hardié 1975], il s'agit d'une texture avec une concentration élevée de pôles du plan de base parallèles à la direction de la contrainte appliquée). Deuxièmement, dans le cas d'une texture favorable, seuls les hydrures mis en solution peuvent être réorientés, parce que la contrainte affecte la précipitation durant le refroidissement sous contrainte. La valeur de la limite de solubilité de l'hydrogène dans le zirconium à la température de réorientation est donc déterminante. D'ailleurs, c'est en comparant la proportion d'hydrures réorientés à la teneur totale en hydrogène, que [Hardié 1975] a déduit que la limite de solubilité de l'hydrogène dans le zirconium à 400°C semble être de 100 ppm environ, soit deux fois moins que la valeur prédite par l'équation de solubilité. Cet écart est expliqué par la différence entre la limite de solubilité au chauffage (dissolution) et la limite de solubilité au refroidissement (précipitation), comme décrit dans le paragraphe 1.2.1. La solubilité réelle à 400°C est plus basse que celle prédite par l'équation de solubilité. Enfin, le traitement conduit à la réorientation des plaquettes perpendiculairement à l'axe de contrainte uniaxiale appliquée, s'il s'agit de traction, mais parallèlement à cet axe s'il s'agit de compression [Marshall 1967].

*En résumé, la littérature qui traite des alliages de Zr hydrurés est très vaste, mais les études portent sur des matériaux différents (composition chimique, traitements thermiques, taille de grain ...), sur des structures différentes (type d'éprouvette), hydrurés par diverses méthodes, et comportant parfois des phases d'hydrures différentes. De plus, la notion d'hydrure et l'échelle associée ne sont pas toujours précisées. C'est pourquoi, on semble y relever des contradictions, mais cela peut être davantage dû à des imprécisions.*

*On peut toutefois mettre en évidence les caractéristiques suivantes concernant la précipitation des hydrures :*

- les hydrures de phase  $\delta$  précipités dans le zircaloy-4 détendu sont constitués de plaquettes ou hydrures microscopiques visibles au MET. La coalescence de ces plaquettes conduit à la formation d'un hydrure macroscopique (visible au MEB ou au microscope optique).*
- les plaquettes précipitent sur des plans proches du plan de base. Mais elles peuvent aussi précipiter dans des joints de grains.*
- l'orientation des hydrures macroscopiques dépend de plusieurs facteurs :*
  - la texture du matériau,*
  - la présence de contrainte appliquée durant la précipitation,*
  - la présence de contraintes résiduelles et de déformations plastiques résiduelles dans les grains.*

*Concernant la géométrie des hydrures, on parle de plaquettes pour les hydrures  $\delta$  et d'aiguilles pour les hydrures  $\gamma$ . Cependant, les descriptions présentes dans la littérature sont souvent 2D, et correspondent à une observation soit dans le plan de laminage lorsqu'il s'agit de tôles, soit dans la section transversale s'il s'agit de tubes. La littérature est quasiment dépourvue d'informations concernant la géométrie 3D des hydrures.*

### 1.3 COMPORTEMENT MECANIQUE DES ALLIAGES DE ZIRCONIUM HYDRURES

Les propriétés mécaniques des alliages de zirconium et en particulier du Zircaloy-4 sont fortement influencées par la gamme de fabrication et le traitement thermique final (matériau détendu ou recristallisé), la teneur en hydrogène et la température de l'essai [Bai 1991]. Les valeurs des grandeurs mécaniques (contrainte à rupture, ductilité ...) dépendent aussi du type de sollicitation exercée, de la géométrie de l'éprouvette et de la structure dont elle provient (tubes ou plaques, éprouvette entaillée ou non...), de l'état de contrainte (uni- ou multiaxial), du mode de chargement en hydrogène. Chaque étude s'intéresse plus particulièrement à l'effet de certains paramètres, c'est pourquoi les résultats présentés ci-dessous et issus de la littérature ne sont pas directement comparables entre eux. De plus, à cause de la forte texture du matériau, la déformation est très anisotrope. Ces différents points vont être abordés dans les paragraphes suivants, après le Tableau 9 résumant les principales caractéristiques des études citées.

Dans les paragraphes suivants, l'orientation des hydrures sera précisée seulement s'il s'agit d'hydrures radiaux. En effet, comme la majorité des études concernent des hydrures circonférentiels, si l'orientation n'est pas précisée, c'est qu'aucun traitement de réorientation n'a été utilisé et que les hydrures sont circonférentiels.

	[Bai 1991]	[Arsène 1997]	[Huang 1994]	[Grange 1998]	[Yagnik 2004]
Teneur en H (ppm)	Jusqu'à 2000	Jusqu'à 4000	Jusqu'à 340	200 - 1200	0 à 2000 ppm ; pour hydrures radiaux : échantillons contenant 220 ppm H, mais de 0 à 70 ppm d'hydrures radiaux.
Alliage	Zy-4	Zy-2, Zy-4	Zy-4	Zy-4	Zy-4
Traitement métallurgique	Détendu, recristallisé, traité $\beta$ ; laminage standard et non-standard.	Zy-2 recristallisé et Zy-4 détendu.	Recristallisé (pas précisé dans l'article, mais grains équiaxes)	Partiellement recristallisé.	Détendu.
Géométrie du matériau	Tôles de 0,5 et 3,1 mm	Tubes	Tôle de 2 mm	Tôles de 0,54 mm	Tubes
Types d'essai	Traction simple, traction in-situ sous MEB.	Traction in-situ sous MEB.	Traction.	Traction.	Traction.
Types d'éprouvettes	Eprouvettes plates.	Anneau avec zone utile (montage « dog-bone »).	Eprouvettes plates lisses ou entaillées.	Eprouvettes plates, lisses ou entaillées et pré-fissurées.	Chargement circonférentiel : Slotted Arc Test ; Chargement axial : Uniaxial Tension Test.

Température d'essai	20 et 350°C	20 et 350°C	25, 100, 200, 300°C	20°C	20 et 300°C
Réorientation des hydrures / présence d'hydrures radiaux	Chargement à 400°C en H sans et sous contrainte $\Rightarrow$ matériau avec hydrures réorientés.	Pas de réorientation. Présence d'hydrures radiaux pour les fortes teneurs en H.	Pas de réorientation.	Pas de réorientation.	Réorientation par 2 méthodes : cyclage thermique avec une différence de pression constante entre l'intérieur et l'extérieur du tube ; chargement en hydrogène sous chargement circonférentiel (150 MPa).
Méthode pour mesurer la proportion d'hydrures radiaux		Non-précisée. Eprovettes en Zy-4 détendu avec hydrures réorientés contiennent environ 60-70 ppm H.			Non-précisée.

Tableau 9 : Tableau résumant les paramètres basiques des études le plus souvent citées ci-après.

### 1.3.1 INFLUENCE – A TEMPERATURE AMBIANTE – DE LA TENEUR EN HYDROGENE SUR LA LIMITE D'ELASTICITE, SUR LA CHARGE A RUPTURE DU ZIRCALOY-4 HYDRURE

#### Limite d'élasticité

Selon différentes sources bibliographiques, on peut affirmer que la limite d'élasticité du Zircaloy-4, à température ambiante est très peu ou pas modifiée par la présence d'hydrogène [Bai 1991], [Arsène 1997], [Grange 1998], bien que ces études aient porté sur des matériaux fortement chargés en hydrogène, de 0 jusqu'à respectivement 2000, 4000 et 1400 ppm (Figure 15). Etonnamment, même le matériau contenant 60 ppm d'hydrures « orientés » de [Bai 1991] sollicité en traction à 20°C a une limite d'élasticité seulement 50 MPa plus faible que celui contenant 610 ppm d'hydrures non-orientés.

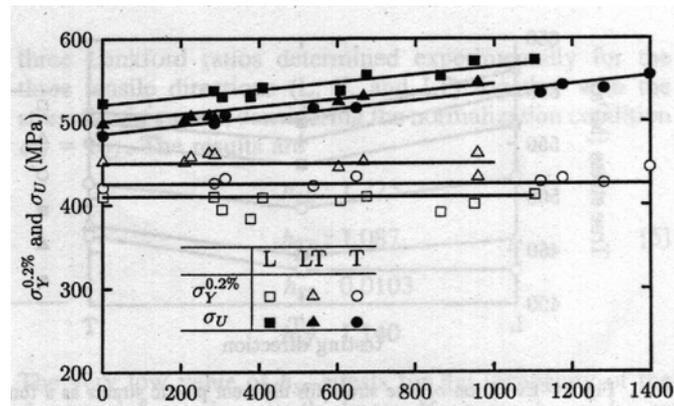


Figure 15 : Effet de la teneur en hydrogène sur la limite d'élasticité et la résistance mécanique pour les 3 directions testées, travers, longitudinal (direction de laminage), à 45° de ces deux directions [Grange 2000].

### Charge/Contrainte à rupture

Selon [Bai 1991], la charge à rupture augmente très légèrement (environ 20 Mpa) jusqu'à une teneur d'environ 700 ppm à température ambiante et diminue ensuite. Elle varie de 460 MPa pour 1600 ppm à 550 MPa environ pour 750 ppm, pour du matériau de type tôle mince (0,5 mm) détendu à 20°C. Pour le Zy-4 détendu de [Bai 1991], la teneur de 700 ppm représente le début du seuil de transition fragile-ductile, seuil qui s'étale de 700 à 1050 ppm environ.

En revanche, [Grange 1998] observe une augmentation linéaire de la charge à rupture avec la teneur en hydrogène, jusqu'à 1400 ppm. Le renforcement observé peut être expliqué par effet composite, les hydrures étant considérées comme des particules durcissantes [Prat 1998], [Huang 1994].

### 1.3.2 ... SUR L'ALLONGEMENT REPARTI ET L'ALLONGEMENT A RUPTURE

D'après [Grange 1998], l'allongement réparti (déformation conventionnelle correspondant à la charge maximale) diminue peu, de 1 à 3 % selon le sens de sollicitation, lorsque la teneur en hydrogène augmente (de 0 à 1400 ppm) (Figure 16). Mais ce paramètre présente quelques inconvénients : il est difficile à mesurer à cause de la forme de la courbe qui présente un long plateau, il dépend de la vitesse de sollicitation et de la géométrie (« imperfections ») de l'éprouvette.

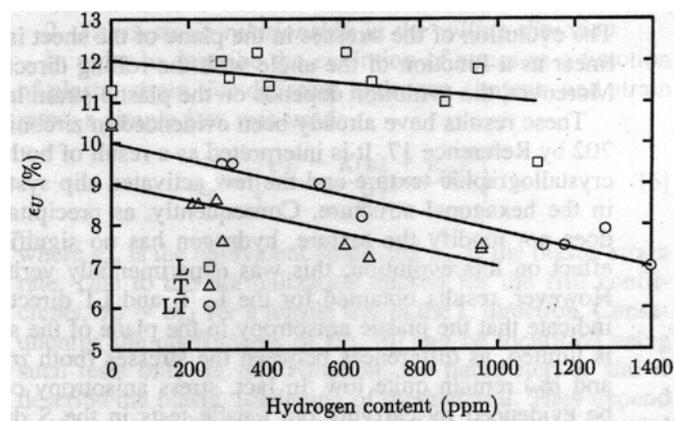


Figure 16 : Effet de la teneur en hydrogène sur l'allongement réparti pour les 3 directions testées [Grange 2000]

Quant à l'allongement à rupture, il est influencé par :

- *la teneur en hydrogène* : l'allongement à rupture du matériau détendu à température ambiante diminue à partir de 700 ppm environ, puis il est quasiment nul à partir de 1000 ppm [Bai 1991] ; dans les résultats de [Yagnik 2004], l'allongement à rupture diminue linéairement jusqu'à 900 ppm.

- *la répartition et la morphologie des hydrures* : pour une même teneur (1200 ppm), le matériau contenant des hydrures longs, répartis en longues bandes espacées, précipités pendant un refroidissement lent (au four) a une ductilité plus faible que le matériau ayant subi un refroidissement rapide et comportant des hydrures plus petits et répartis d'une manière plus homogène, lui-même étant moins ductile que le matériau non-hydruré [Hong 2002].

- *l'orientation des hydrures* : la présence d'hydrures radiaux, même en faible quantité, réduit drastiquement la ductilité : l'allongement à rupture diminue quasiment linéairement de 9 à 2 % pour des teneurs d'hydrures radiaux variant de 0 à 80 ppm, dans des essais sur des anneaux en Zy-4 détendu hydruré à 220 ppm environ [Yagnik 2004], lorsque la sollicitation est normale aux hydrures (Figure 17).

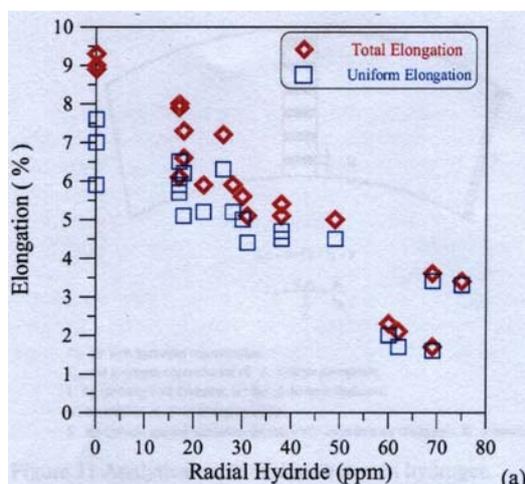


Figure 17 : Effet des hydrures radiaux sur l'allongement à rupture d'éprouvettes issues de tubes de gainage en Zircaloy-4 hydrurées à environ 200 ppm, à température ambiante. Eprouvette de type SAT – Slotted Arc Tension – sollicitées dans la direction circonférentielle [Yagnik 2004].

### 1.3.3 INFLUENCE DE LA TEMPERATURE SUR CES PARAMETRES MECANIQUES

La hausse de la température semble, dans une certaine mesure, effacer les dégradations induites par la présence d'hydrures. Ainsi, [Bai 1991] constate qu'il n'y a pas de fragilisation par les hydrures – circonférentiels – à 350°C pour moins de 1500 ppm d'hydrogène ; la fragilisation due aux hydrures réapparaît pour des teneurs en hydrogène supérieures. Le matériau de [Arsène 1997] hydruré à 4500 ppm est ductile à 300°C. Pour une teneur de 3000 ppm, les courbes  $\sigma - \epsilon$  sont de la même forme, mais à 300°C la contrainte conventionnelle maximale est à environ 460 MPa, soit 200 MPa plus faible qu'à température ambiante.

Même l'effet des hydrures radiaux disparaît (Figure 18) : à 300°C, l'allongement à rupture est constant pour des teneurs en hydrures radiaux de 0 à 70 ppm d'après les travaux de [Yagnik 2004], dans un matériau hydruré en moyenne à 220 ppm. Les auteurs remarquent que la teneur en hydrogène ayant été

mesuré par extraction sous vide, elle correspond à la quantité totale d'hydrogène présent dans le matériau. Or, à 300°C, environ 75 ppm sont en solution solide, le reste est sous forme d'hydrures. Les hydrures qui se sont dissous devaient être indifféremment radiaux ou circonférentiels, mais une dissolution préférentielle des hydrures radiaux pourraient expliquer les valeurs d'allongement élevées obtenues au cours des essais à 300°C, d'après les auteurs.

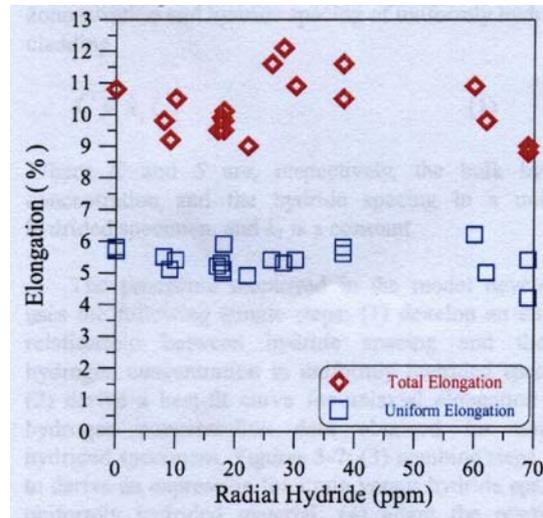


Figure 18 : Effet des hydrures radiaux sur l'allongement à rupture d'éprouvettes issues de tubes de gainage en Zircaloy-4 hydrurées à environ 200 ppm à 300°C. Eprouvette de type SAT – Slotted Arc Tension – sollicitées dans la direction circonférentielle [Yagnik 2004].

## 1.4 MODES DE DEFORMATION, D'ENDOMMAGEMENT ET DE RUPTURE DES ALLIAGES DE ZIRCONIUM HYDRURES

### 1.4.1 DIFFERENTS MECANISMES DE DEGRADATION PAR L'HYDROGENE / LES HYDRURES

La fragilisation par les hydrures peut opérer par différents mécanismes :

- l'un d'eux est appelé DHC (Delayed Hydride Cracking) ou fissuration différée par formation d'hydrures. Ce phénomène se produit dans des matériaux *fissurés* (ou contenant un défaut provoqué par l'hydrogène) et contenant de l'hydrogène. L'hydrogène dissous diffuse en tête de fissure sous l'effet de l'intense gradient de contraintes associé à la singularité. Puis, il précipite sous forme d'hydrures lors des refroidissements à cœur. Lorsque l'hydrure est soumis à une contrainte seuil, il se rompt et la fissure se propage, et s'arrête. La fissuration a lieu de manière discontinue [Coleman 1985], [Lemaignan 1998].

- un autre mécanisme, qui est l'objet de cette étude, correspond à une diminution de la ductilité du matériau, lorsque la teneur en hydrogène augmente et/ou lorsque les hydrures sont orientés défavorablement par rapport à la sollicitation (hydrures perpendiculaires à la sollicitation).

### 1.4.2 MODES DE DEFORMATION

Peu de données concernant l'étude des modes de déformation, à l'échelle globale ou locale, sont disponibles. Cependant, la déformation se localise dans le matériau hydruré ou non, et [Grange 1998] a comparé les moments d'apparition de la localisation de la déformation dans le matériau vierge et hydruré (matériau recristallisé). Grâce à un suivi par caméra infra-rouge de la déformation de ses éprouvettes, elle remarque que dans le matériau non-hydruré, la déformation se localise au centre de l'éprouvette : l'augmentation de température (due à la plastification) en ce point engendre une diminution de la capacité d'érouissage du matériau. Dans le matériau fortement hydruré, la localisation se produit plus tôt et là où l'épaisseur de l'éprouvette est la plus faible (ce qui ne correspond pas toujours au centre de l'éprouvette ; des variations d'épaisseur sont liées au traitement d'hydruration).

La localisation de la déformation dans le Zy-4 avait auparavant été mise en évidence par [Jensen 1972], lors d'essais de compression sur des tôles entre 20 et 800°C. Au-dessous de 300°C, la compression est accommodée principalement par des dislocations <c+a>confinées dans d'étroites bandes (larges de 2 µm) proches de {11-22}, dans lesquelles le cisaillement se localise. Cette forte localisation est attribuée à un adoucissement thermique survenant durant la formation des bandes.

A une échelle beaucoup plus locale, [Hong 2002] a calculé le volume d'activation associé au processus de déformation : comme il n'y a pas de différence significative entre un matériau non-hydruré ( $V_{app} = 35-46 \text{ b}^3$ ) et un matériau hydruré à 1200 ppm avec des hydrures circonférentiels ( $V_{app} = 30-41 \text{ b}^3$ ), il conclut que la présence de tels hydrures ne modifie pas les mécanismes de déformation, ce qui est confirmé par la similitude des courbes  $\sigma$ - $\varepsilon$ . Ce volume d'activation est calculé par la formule suivante :

$$V_{app} = kT \frac{\partial \ln \dot{\gamma}}{\partial \tau} \cong kT \frac{\ln(\dot{\varepsilon}_1 / \dot{\varepsilon}_2)}{\tau_1 - \tau_2}$$

avec  $k$  : constante de Boltzmann,  $\dot{\gamma}$  le taux de déformation de cisaillement,  $\tau_1$  et  $\tau_2$  les contraintes de cisaillement appliquées aux taux de déformation  $\dot{\epsilon}_1$  et  $\dot{\epsilon}_2$ , et  $T$  la température absolue.

### Comportement des hydrures au cours de la déformation

#### *Rotation des hydrures ?*

Au cours de la déformation, la texture est modifiée et pour [Grange 1998], ce phénomène est certainement à associer à la rotation des plaquettes d'hydrures qu'elle a observée. Ce réalignement des hydrures dans le sens de la sollicitation est plus important dans les deux plans contenant la direction de laminage (L-TC et L-T) que dans le plan normal à la direction de laminage (plan T-TC) – T désignant la direction Travers, TC : Travers court, L : direction de laminage –. [Bai 1991] aussi a remarqué au cours d'essai in-situ la rotation d'hydrures, en particulier dans la zone de striction.

#### *Déformabilité des hydrures ?*

D'autres observations portent sur la déformabilité des hydrures : [Arsène 1997] a mis en évidence, au cours d'essais in-situ sous MEB, que les hydrures se déformaient plastiquement de 10 à 80% à température ambiante sans rompre. Cependant, ces valeurs sont à modérer, car la surface des éprouvettes avait été attaquée, et les hydrures de surface partiellement dissous. Mais, [Grange 1998] a également constaté, en observant des éprouvettes post-mortem avec un MEB haute résolution (canon à émission de champ), que certains hydrures, proches de la surface de rupture ont suivi les changements de forme du grain, en s'allongeant dans la même direction, et ont permis le passage des lignes de glissement : ces hydrures sont transgranulaires. Certains hydrures, intergranulaires, sont eux rompus. [Puls 1988] semble aussi reconnaître que sous une tension uniaxiale, les hydrures peuvent se déformer plastiquement. Pourtant, [Birnbau 1984], qui a étudié les propriétés mécaniques des hydrures métalliques en général, conclut que la ductilité limitée des hydrures résulte de la structure de dislocations plutôt que d'une propriété intrinsèque des liaisons atomiques dans les hydrures. Le glissement des dislocations serait limité à cause de la structure désordonnée du sous-réseau formé par les atomes d'hydrogène. En tension, il y a plutôt propagation de la fissure et rupture fragile, alors qu'en compression, il y a un peu de glissement de dislocations.

#### *Influence du site de précipitation*

La meilleure accommodation de la déformation plastique de la matrice par les hydrures intragranulaires [Grange 1998] s'explique certainement par les relations de cohérence matrice/hydrure et par les systèmes de glissement actifs pour chacune des phases : le glissement peut être transmis de la matrice à l'hydrure soit par légère désorientation soit par activation d'un glissement secondaire [Arsène 1997].

### 1.4.3 MODES D'ENDOMMAGEMENT ET DE RUPTURE OBSERVÉS ET RECENSÉS DANS LA LITTÉRATURE

#### Moment d'apparition et sources de l'endommagement

L'endommagement dans le Zircaloy-4 hydruré apparaît tardivement : il apparaît « bien après » la localisation [Grange 1997] et [Grange 1998] observe des ruptures d'hydrures à partir d'une déformation plastique macroscopique de 20%. [Arsène 1997] a observé les premières fissures dans les

hydrures pour une déformation de la matrice d'environ 10% pour les teneurs inférieures à 1500 ppm, et celles-ci sont plus nombreuses lorsque la déformation dépasse 25%. De plus, elle constate une augmentation importante du nombre de cavités dans les hydrures peu avant la rupture de l'éprouvette. Mais, le comportement des hydrures est très variable selon leur largeur et leur longueur [Arsène 1997].

L'endommagement est donc généré majoritairement par les ruptures d'hydrures et dans une moindre mesure, par celles des précipités  $Zr(Fe,Cr)_2$  ou par la décohésion de ces précipités [Grange 1998]. Dans le matériau contenant des hydrures parallèles à la sollicitation, la rupture est ductile, même pour les fortes teneurs en hydrogène, et les trois étapes sont classiquement : la rupture d'hydrures (ou de précipités intermétalliques comme les phases de Laves) conduisant à la nucléation de cavités, la croissance des cavités et finalement la coalescence des cavités et la rupture des éprouvettes [Puls 1988].

### Endommagement des hydrures

Au cours d'essais in-situ, [Bai 1991] a observé que dans le matériau détendu les cavités apparaissent en tête des hydrures. Elles restaient de faible taille jusqu'à la rupture, mais leur nombre augmentait au cours de la déformation, et c'est dans la zone de striction qu'elles étaient les plus nombreuses. Une analyse quantitative des mécanismes d'endommagement a été réalisée par [Grange 1998], qui a procédé à un comptage manuel des cavités dues aux ruptures d'hydrures, sur des éprouvettes lisses, post-mortem et pour différentes positions axiales, donc pour différents niveaux de déformation. La corrélation de ces résultats avec la déformation plastique locale met en évidence que la déformation plastique est le paramètre permettant de décrire l'évolution de la formation de cavités. En-dessous d'un certain seuil de déformation, qui dépend de la teneur en hydrogène, aucune rupture d'hydrure n'est observée. Ce seuil se situe autour de 20% de déformation plastique équivalente environ.

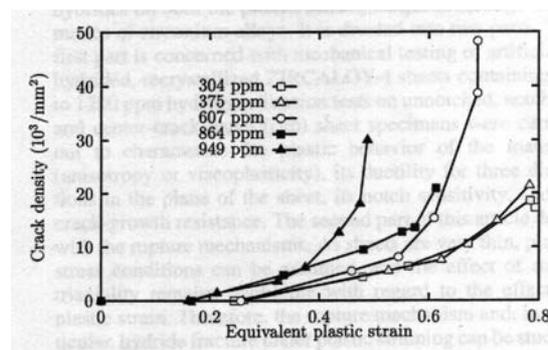


Figure 19 : Cinétique de nucléation en fonction de la déformation plastique pour différentes teneurs en hydrogène [Grange 2000].

### Rupture des hydrures

Comme on l'a déjà évoqué, les hydrures se rompent dans leur largeur, à un ou plusieurs endroits et plus rarement dans leur épaisseur [Grange 1998]. Le mode d'endommagement observé par [Grange 1998] est le même dans toutes les directions de sollicitation du plan de la tôle, mais elle souligne qu'une traction perpendiculaire aux plaquettes conduirait à d'autres résultats. Concernant l'interface matrice-hydrure, aucune décohésion n'est observée par [Prat 1994], [Arsène 1997], [Grange 1998].

Le mode de rupture des hydrures est donc supposé varier selon leur orientation par rapport à la contrainte. Dans le cas de Zy-2 contenant des hydrures orientés perpendiculairement à la contrainte, et dans lequel la majorité des grains sont orientés tels que leur plan de base est normal à la contrainte, l'interface hydrure-métal est parallèle au plan de base pour la plupart des plaquettes d'hydrures. Or ce plan est le plan de clivage prédominant dans les hexagonaux [Louthan 1964] : une fissure se développant à l'interface hydrure-métal initierait le clivage. Cette relation entre texture et orientation des hydrures pourrait expliquer pourquoi des surfaces de clivage sont observées dans des éprouvettes contenant des hydrures radiaux, même à une teneur faible de 50 ppm.

### Faciès de rupture

Les observations de [Bai 1991] mettent en évidence que les faciès de rupture des éprouvettes contenant des hydrures circonférentiels sont différents de ceux des éprouvettes non-hydrurées, car des fissures secondaires, coïncidant avec l'emplacement des hydrures, sont présentes. Dans les zones sans hydrures, le faciès est ductile à cupules, sauf pour les fortes teneurs où il est fragile. Il est aussi fragile pour les éprouvettes contenant des hydrures réorientés sous contraintes, c'est-à-dire radiaux : les faciès présentent des surfaces planes de mêmes dimensions que les plaquettes d'hydrures.

L'augmentation de la teneur en hydrogène entraîne une fragilisation progressive du matériau [Bai 1991], [Prat 1994]. En particulier, lorsque la teneur est très élevée, des hydrures radiaux précipitent (sans contrainte), surtout dans le matériau recristallisé, ce qui fragilise le matériau [Bai 1991], [Arsène 1997].

Le faciès de rupture dépend aussi de la morphologie et de la répartition des hydrures : dans les matériaux de [Hong 2002], le faciès du matériau refroidi à l'air et dans lequel des hydrures assez courts ont précipités, présente des fissures secondaires elles aussi courtes (20-30 $\mu$ m), et dispersées alors que le matériau refroidi lentement contient des fissures secondaires très longues (100  $\mu$ m) et larges, de dimensions comparables aux clusters d'hydrures qui se sont formés.

## 1.5 EXISTENCE D'UNE TRANSITION DUCTILE-FRAGILE EN FONCTION DE LA TENEUR EN HYDROGENE ?

Certains auteurs cités dans cette étude bibliographique, ayant réalisé des essais mécaniques sur du matériau hydruré jusqu'à des teneurs très élevées (4500 ppm par exemple pour [Arsène 1997] et à différentes températures (de l'ambiante jusqu'à 400°C) ont noté un changement de comportement de leur matériau hydruré avec l'augmentation de la teneur en hydrogène et qualifient ceci de transition ductile-fragile. D'autres n'observent pas un tel changement. Les arguments des uns et des autres sont présentés ci-dessous.

Rappelons d'abord que le terme de « transition ductile-fragile » est souvent utilisé pour les matériaux qui sont très fragiles à basse température, mais très ductiles au-dessus d'une température de transition, comme les aciers. Elle est associée à un changement de processus physique de rupture et n'existe que dans les métaux de maille cubique centrée ou hexagonale. Elle peut être définie de différentes façons, selon qu'elle se réfère à un niveau de ductilité ou à l'aspect de la rupture (on peut mesurer l'énergie de résilience ou la proportion de rupture cristalline). Elle dépend de nombreux paramètres (géométrie de l'éprouvette, microstructure et en particulier taille de grain du matériau).

Dans les alliages de zirconium, en présence d'hydrures radiaux, il existe aussi une transition ductile-fragile qui dépend de la teneur et de la température : par exemple [Chow 1986], pour une teneur de 90 ppm, au-dessous de 260°C, la fissure propage presque entièrement par clivage à travers des hydrures normaux à la sollicitation, le faciès de rupture est plat et fragile ; à une température légèrement supérieure (5 ou 10 degrés de plus) les hydrures n'ont plus d'influence sur le mode de rupture, qui est ductile.

Cependant, dans d'autres études sur les alliages de zirconium hydrurés, la transition ductile-fragile est davantage définie comme une diminution de l'allongement à rupture avec une hausse de la teneur en hydrogène. Par exemple, le Zircaloy-4 détendu sollicité à 20°C présente une variation de comportement entre 1500 et 2500 ppm pour [Arsène 1997], mais le même type de matériau, étudié par [Bai 1991], traverse une transition entre 700 et 1000 ppm environ. Dans le matériau détendu, la hausse de la teneur en hydrogène n'induirait pas une hausse significative du nombre d'hydrures radiaux, les auteurs attribuent le changement de comportement du matériau à une diminution de la distance inter-hydrure. [Arsène 1997] évoque une distance inter-hydrure critique, définie comme suit : l'apparition d'une fissure dans un hydrure provoquerait une fissure dans un hydrure voisin à cause des contraintes engendrées par la première fissure. En revanche, dans le matériau recristallisé, dont la hausse de la teneur en hydrogène s'accompagne de l'apparition d'hydrures radiaux, ce sont ces hydrures, normaux à la contrainte, formant un chemin continu perpendiculaire à la sollicitation de précipités fragiles, qui conduiraient à la rupture fragile. La transition serait donc liée, dans le cas du matériau recristallisé et à 20°C, à la longueur maximale d'hydrures radiaux cumulée. [Arsène 1997] met aussi en évidence que, pour une même teneur en hydrogène, la déformation à rupture dépend de la distribution des hydrures. Une distribution homogène (d'hydrures circonférentiels) est moins néfaste qu'un anneau avec un rim ou comportant des hydrures radiaux.

Ces valeurs élevées de teneur en hydrogène pour laquelle une transition est observée, sont à confronter avec celles de [Huang 1994], qui conclut à l'existence d'une transition ductile-fragile dans des éprouvettes en Zy-4 recristallisé entaillées, pour des teneurs entre 30 et 140 ppm, à température ambiante : en effet, la réduction d'aire chute de 40 à environ 12% entre ces deux teneurs (Figure 20). Il

faut souligner que la direction de traction est perpendiculaire à la direction de laminage, et l'entaille est elle aussi perpendiculaire à la direction de traction. Les plaquettes d'hydrures sont elles dans le plan de l'éprouvette (les hydrures n'ont pas été réorientés). Mais, pour les éprouvettes non-entailées, il n'est pas observé de brusques changements dans les paramètres mécaniques, que ce soit l'allongement à rupture ou la réduction d'aire. De plus, il est important de retenir que les faciès de rupture des éprouvettes entaillées testées à 25°C sont tous représentatifs d'une rupture ductile avec nucléation de cavités dans les hydrures rompus, croissance et coalescence.

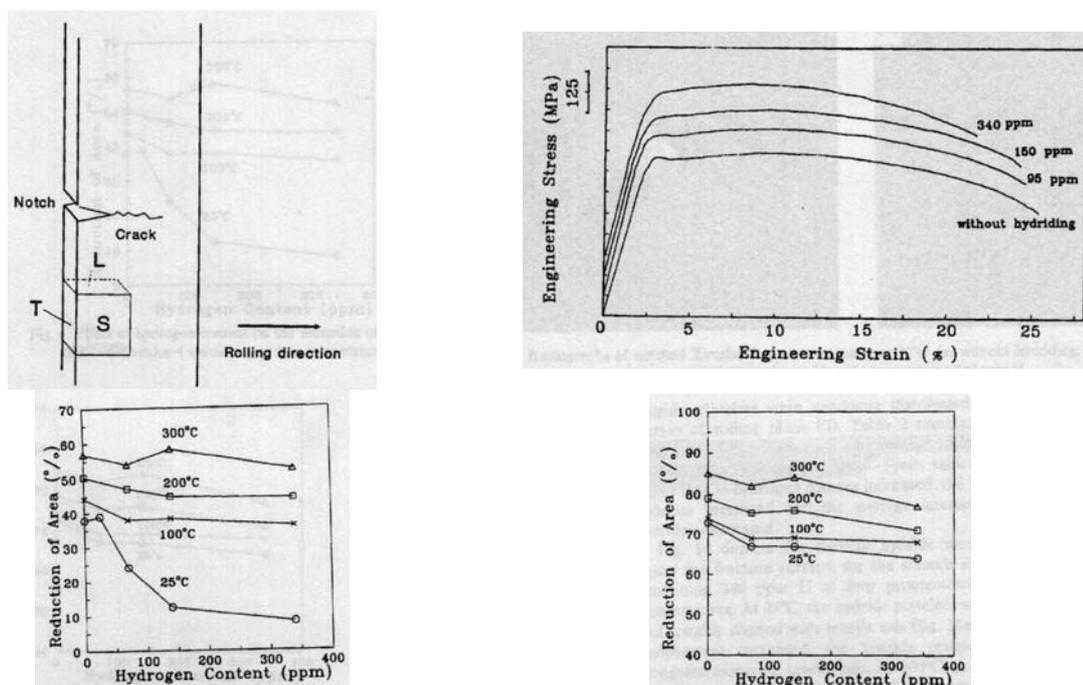


Figure 20 : En haut à gauche : schéma de l'éprouvette entaillée ; en haut à droite : courbe  $\sigma$ - $\varepsilon$  pour les éprouvettes non-entailées à 25°C, pour 4 teneurs en hydrogène ; en bas à gauche : effet de l'hydrogène sur la réduction d'aire des éprouvettes entaillées ; en bas à droite : idem mais éprouvettes non-entailées [Huang 1994].

En revanche, [Prat 1994] a observé une évolution continue des propriétés mécaniques du Zy-4, détendu ou recristallisé, hydruré jusqu'à 1200 ppm, avec la teneur en hydrogène, lors de différents types d'essai (traction simple et essais plus complexes). [Grange 2000] n'a pas, elle non plus, observé de transition ductile-fragile sur son matériau recristallisé, hydruré jusqu'à 1200 ppm. Sa comparaison de la cinétique de nucléation de cavités en fonction de la déformation plastique (Figure 19) le confirme et met en évidence que, quelle que soit la teneur en hydrogène :

- une première phase de la cinétique de nucléation correspond à une relation linéaire entre la densité de cavités et la déformation plastique, la proportionnalité étant indépendante de la teneur en hydrogène. Ces cavités correspondent pour la plupart à la rupture d'hydrures intergranulaires ;
- la seconde phase correspond à un accroissement exponentiel de la densité de cavités, dû à la rupture d'hydrures transgranulaires.

Cependant, suite à ses observations concernant les capacités des hydrures à suivre ou non la déformation des grains, [Grange 1997] déduit que l'apparition d'un comportement fragile, dépend du type d'hydrures contenus dans le matériau. Si ce sont des hydrures pouvant se déformer (hydrures transgranulaires), alors le matériau deviendra fragile si il se forme des hydrures plus massifs ou des

hydrures intergranulaires. Si les hydrures se déforment peu, la transition vers un comportement fragile dépendra de leur teneur, de leur orientation par rapport à la sollicitation et de leur répartition.

Quant à [Bertolino 2003], elle n'observe pas de transition ductile-fragile définie comme un changement à la fois du comportement macroscopique et des micro-mécanismes de rupture, sur le Zy-4, recristallisé, hydruré jusqu'à 2000 ppm. Cependant, si aux basses teneurs en hydrogène (quelle que soit la température), le mode de rupture est ductile (germination, croissance et coalescence de microcavités), à partir de 300 ppm et pour les plus fortes teneurs, de petites zones fragile apparaissent sur les faciès de rupture et leur taille augmente avec la teneur. Elle constate donc une transition dans les micro-mécanismes de rupture, qui s'accompagne d'instabilités et de rupture fragile, pour les teneurs en hydrogène les plus élevées et à température ambiante.

D'ailleurs, d'après ses observations fractographiques, il existe une relation entre la teneur en hydrogène et les précipités de  $Zr(Fe, Cr)_2$  dans le chemin de rupture. En effet, pendant l'absorption, l'hydrogène va diffuser d'abord dans les joints de grains et réagir avec les précipités de  $Zr(Fe, Cr)_2$  pour former les hydrures, ces derniers fragilisant ainsi les précipités de phase de Laves. Lorsque la teneur en hydrogène est inférieure à 250 ppm, les phases de Laves agiraient comme site de nucléation de cavités. Pour les plus fortes teneurs, la fissure se propage préférentiellement dans les hydrures et conduit à une rupture fragile si les hydrures sont suffisamment larges.

*En conclusion de cette partie, il semblerait que des changements dans le mode de rupture, au moins à l'échelle de la microstructure, se produisent à température ambiante, qui seraient expliqués par :*

- *la présence de gros hydrures, plus fragiles et accommodant peu la déformation,*
- *la présence d'hydrures intergranulaires, eux aussi semblent accommoder peu la déformation,*
- *la présence d'hydrures orientés de manière défavorable par rapport à la contrainte, c'est-à-dire perpendiculairement à celle-ci,*
- *une très forte teneur en hydrogène.*

## CHAPITRE 1 : RESUME

*Au cours de ce chapitre, nous avons présenté quelques caractéristiques du Zirconium et d'un de ses alliages, le Zircaloy-4, en particulier lorsque celui-ci comporte des hydrures.*

*On retiendra que le Zircaloy-4 détendu est un matériau fortement anisotrope, à cause de la symétrie hexagonale de sa maille cristalline d'une part, et d'autre part, suite au procédé de mise en forme des tubes de gainage. Il possède de bonnes propriétés mécaniques, bien que la déformation se localise lorsqu'il est soumis à une sollicitation mécanique, mais ses propriétés peuvent être fortement modifiées par la présence d'hydrogène précipité en hydrures, si la teneur en hydrogène est très importante, ou si les hydrures sont normaux à la sollicitation (à température ambiante). C'est pourquoi, certaines études ont porté sur la définition d'un paramètre « morphologique » permettant de corrélérer certaines caractéristiques de l'hydruration avec le comportement mécanique du matériau.*

*Cependant, parmi les travaux les plus récents, plusieurs [Zhang 1992], [Grange 1998] se situent dans le cadre de l'accroissement du taux de combustion et/ou du prolongement du temps de maintien des assemblages de combustible en réacteur. Les questions soulevées par cette problématique concernent le comportement mécanique et les modes de rupture de tubes fortement hydrurés, de manière homogène ou hétérogène (présence de rim) et les essais ont été réalisés sur du matériau fortement chargé en hydrogène (jusqu'à 4500 ppm). Le contexte de cette thèse étant différent, puisqu'il s'agit de l'aval du cycle du combustible, nous nous intéresserons à des matériaux comportant beaucoup moins d'hydrogène, 200 et 500 ppm, mais comportant pour chacune de ces teneurs, différentes orientations d'hydrures, dues à un traitement de réorientation adapté.*



---

## CHAPITRE 2 : LE MATERIAU, DESCRIPTION ET CARACTERISATION

---

Comme cela a été évoqué dans le chapitre précédent, beaucoup d'études expérimentales réalisées jusqu'alors avaient pour objet la caractérisation de l'influence de la teneur en hydrogène (présent sous forme d'hydrures) sur le comportement mécanique des alliages de zirconium. Dans cette étude, nous avons souhaité comparer, pour la même teneur en hydrogène, l'effet de l'orientation des hydrures. Le matériau utilisé a donc dû subir un traitement spécifique pour que l'hydrogène précipite de façon à former préférentiellement soit des hydrures parallèles aux parois des tubes, « hydrures circonferentiels », soit des hydrures normaux à la paroi, « hydrures radiaux ». La description de ce traitement de réorientation, du matériau en général, ainsi que de la morphologie des hydrures est exposée dans la première partie de ce chapitre. Dans la seconde partie, après avoir décrits les méthodes d'analyse d'image utilisées antérieurement pour quantifier soit les teneurs en hydrogène, soit des orientations préférentielles, on expose la méthode employée dans cette thèse pour caractériser les distributions d'orientation des hydrures, et leurs orientations moyennes.

Il est à noter qu'il avait été initialement envisagé de réaliser les essais mécaniques à la fois sur du matériau sous forme tubulaire et sous forme de plaque. En effet, cette dernière géométrie aurait facilité la mise en œuvre des essais et surtout l'interprétation de leurs résultats. Cependant, il n'a pas été possible d'obtenir du matériau de cette géométrie hydruré dans les conditions fixées, et aucun essai n'a pu être effectué sur des éprouvettes issues de la matière plaque avec des hydrures réorientés.

Vocabulaire :

Le terme « circonférentielle » qualifera l'orientation des hydrures parallèles à la paroi dans une section transversale des tubes (hydrures contenus dans le plan circonférentiel-axial) ; le terme « radiale » celle des hydrures normaux à la paroi des tubes (hydrures appartenant au plan radial-axial). Notons que dans la configuration de chargement en pression interne des tubes, la contrainte circonférentielle maximale est parallèle aux hydrures circonférentiels et normale aux hydrures radiaux.

Notations :

On désignera les sept configurations différentes de matériau utilisé comme suit :

- NH : non-hydruré ;
- 200C : matériau hydruré à 200 ppm environ et avec des hydrures non-réorientés, donc circonférentiels » ;
- 200M : matériau hydruré à 200 ppm environ et avec des hydrures réorientés sous 100 MPa (« 200 mixtes ») ;
- 200R : matériau hydruré à 200 ppm environ et avec des hydrures réorientés sous 150 MPa (« 200 radiaux ») ;
- 500C, 500M, 500R : comme précédemment avec une teneur moyenne de 500 ppm.

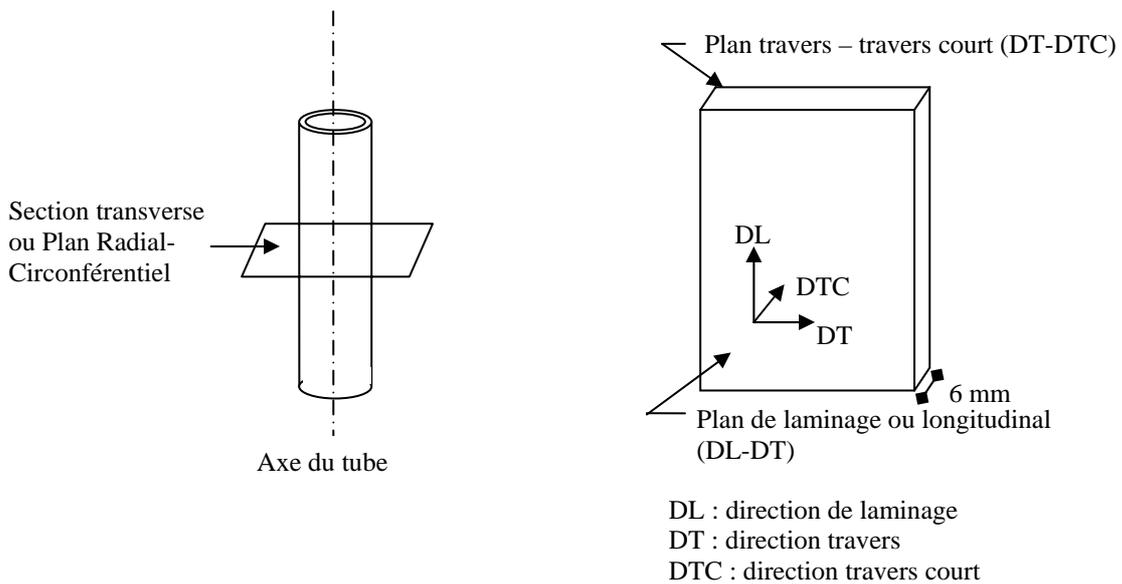


Figure 1 : Représentation schématique des deux formes de matériau (Zy-4 détendu) utilisées : à droite, tube de gainage d'épaisseur 0,57 mm ; à gauche, plaque d'épaisseur 6mm, à droite.

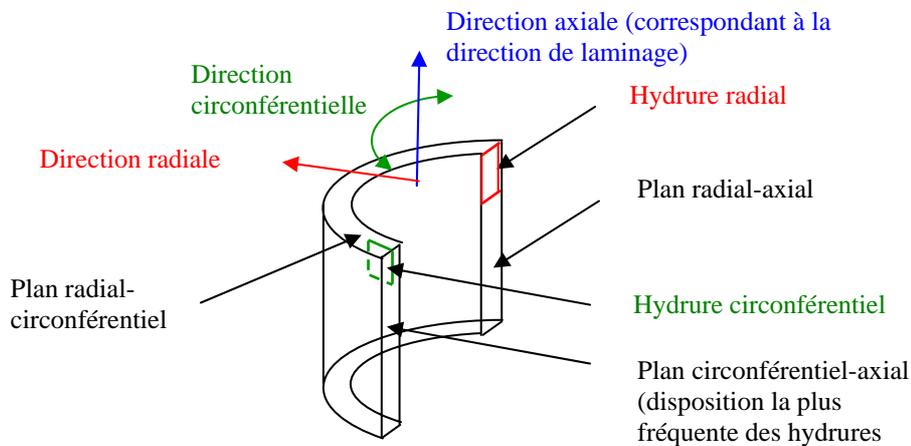


Figure 2 : Notation des plans dans un tube / anneau et représentation schématique d'hydrure.

## 2.1 DESCRIPTION DU MATERIAU DE L'ETUDE

Au cours de cette première partie, nous décrirons tout d'abord le matériau de l'étude d'un point de vue métallurgique, puis nous nous intéresserons au procédé d'hydruration et de réorientation des hydrures, et enfin, nous caractériserons la morphologie des hydrures dans chacune des configurations, à partir d'analyses effectuées au MEB.

### 2.1.1 LE ZIRCALOY-4 DETENDU A BASSE TENEUR EN ETAIN

#### Choix du matériau de l'étude

Il a été choisi de réaliser cette étude sur du Zircaloy-4 détendu à basse teneur en étain, car, d'une part, ce matériau est couramment employé pour la fabrication des crayons combustibles des centrales nucléaires de type REP en France, et d'autre part, c'est celui que le projet PRECCI<sup>1</sup>, et plus particulièrement le sous-programme SP3, d'où vient le matériau utilisé, avait choisi initialement pour son programme d'expérimentation. Tous les essais et observations seront donc réalisés sur du matériau détendu, sous forme tubulaire, malgré les restrictions que cela impose, le but étant de travailler sur un matériau dont la composition, la forme métallurgique et la géométrie soient celles du matériau fabriqué pour être utilisé en réacteur.

Cependant, les premiers essais réalisés sur des anneaux [*Racine 2003*] ont révélé une forte localisation de la déformation (plus de détails dans le Chapitre 4), de ce fait, la sollicitation n'est pas homogène dans l'anneau. Pour s'affranchir de l'influence possible de la géométrie sur le phénomène de localisation, et pour mieux caractériser le matériau, des essais sur éprouvettes plates ont été envisagés. Outre un état de sollicitation plus homogène, les éprouvettes plates présentaient l'avantage de pouvoir être prélevées dans différents plans et dans différentes directions. Des tôles de composition voisine de celles des tubes et d'épaisseur 6 mm ont donc été commandées à Cézus. L'épaisseur de ces tôles avait été choisie suffisamment élevée pour que des éprouvettes puissent être prélevées dans le plan Travers – Travers court, plan équivalent au plan Radial-Circonférentiel des anneaux. Ainsi, dans ces éprouvettes, les hydrures réorientés ou non, auraient été nettement visibles, puisque le plan d'observation est normal au plan de laminage, plan contenant les plaquettes d'hydrures. Mais, l'hydruration n'a pas pu être réalisée de manière satisfaisante, malgré les différentes solutions envisagées (hydruration par voie gazeuse ou par voie cathodique).

Les deux matériaux ont été élaborés par Cézus. Le matériau sous forme tubulaire a été hydruré par voie gazeuse (par Framatome ANP-Cézus). Il a ensuite été soumis à un traitement pour réorienter les hydrures, consistant à soumettre les tubes à une sollicitation de pression interne (essais réalisés au CEA/SRMA). Les caractéristiques du matériau final sont présentées ci-dessous (Tableau 1).

---

<sup>1</sup> PRECCI : Projet sur l'évolution à long terme du combustible utilisé en condition d'entreposage, réunissant le CEA, EDF et Framatome. Le sous-programme SP3 concerne en particulier l'étude de l'évolution des propriétés mécaniques des matériaux métalliques de l'assemblage irradié en entreposage à sec.

Caractéristiques de fabrication

<i>Forme</i>	<i>Fournisseur</i>	<i>Lot</i>	<i>Dimensions des tubes</i>	<i>Mode de fabrication</i>	<i>Etat métallurgique</i>
Tubes Gaine REP	CEZUS	271145	Diamètre externe : 9,5 mm Épaisseur : 0,57 mm Longueur : 90 à 125 mm	Laminage au pas de pèlerin.	Détendu (traitement thermique standard non-détaillé par CEZUS)

Tableau 1 : Caractéristiques du matériau tubulaire utilisé.

Le traitement de détensionnement permet de relaxer les contraintes internes et ne restaure que partiellement l'érouissage du matériau. Il n'y a pas de recristallisation et le matériau est donc à l'état écroui.

Caractérisation métallurgique

La composition chimique du matériau étudié est résumée dans le Tableau 2. Elle est conforme à celle d'un produit de gainage de finition industrielle et est en accord avec la norme ASTM B350.90. Comme cela a été évoqué dans le premier chapitre, la matrice de zirconium  $\alpha$  contient des éléments d'addition ou des impuretés, soit en substitution soit en insertion dans son réseau cristallin. Leurs propriétés et leur influence sur le comportement mécanique de l'alliage ont été décrites dans le premier chapitre.

<i>Élément</i>	Zr	Fe	Cr	Fe + Cr	Sn	O (ppm en masse)
<i>Teneur (% massique)</i>	Complément à 100%	0,21	0,10	0,31	1,25	1090

Tableau 2 : Composition chimique du Zircaloy-4 bas étain utilisé pour la matière tubulaire.

La microstructure du matériau détendu est difficile à révéler. Cependant, grâce à un protocole établi par le CEA/SRMA/LA2M, des échantillons ont pu être observés par microscopie optique en lumière polarisée, après polissage mécanique et mécano-chimique [Urvoy 2003]. Sur les images résultantes, les différentes couleurs correspondent à différentes orientations des grains. Leurs contours sont imparfaitement définis. On peut cependant avancer que les grains sont petits (environ 10 à 20  $\mu\text{m}$  de long et 5  $\mu\text{m}$  de large) et allongés dans la direction circonférentielle (Figure 3). D'après la littérature, ils sont aussi allongés dans la direction axiale. Cette forme de « plaquette » est due au procédé de fabrication par laminage à pas de pèlerin.

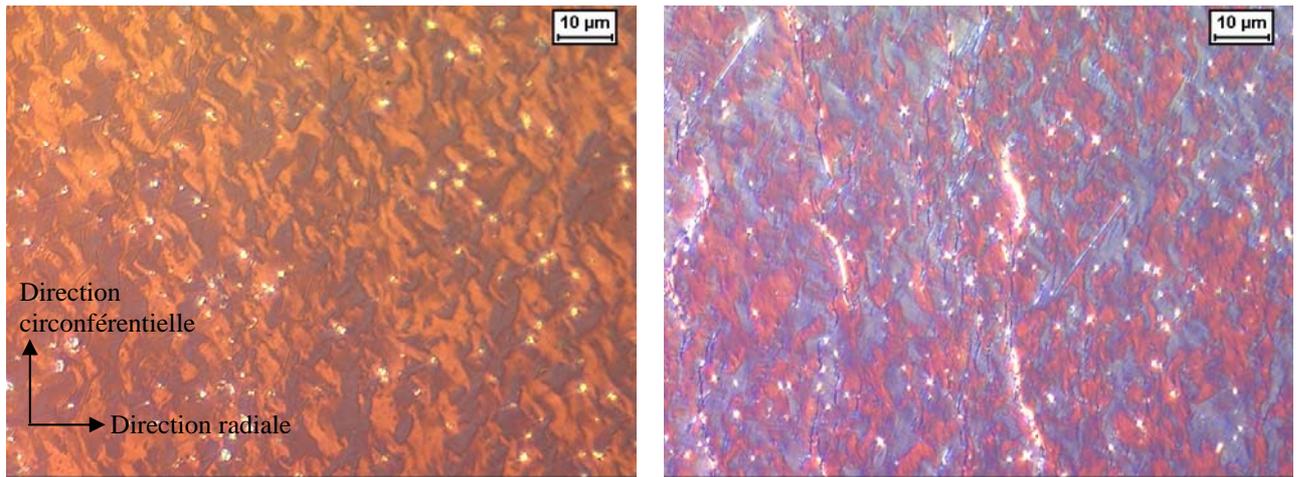
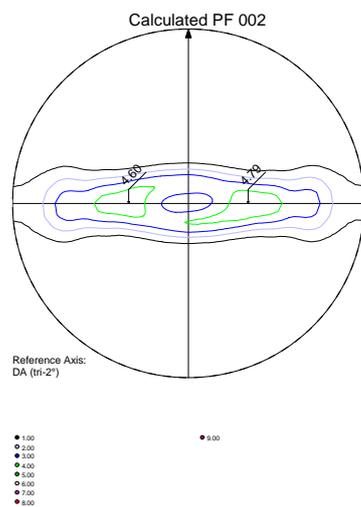


Figure 3 : Micrographies optiques en lumière polarisée permettant de révéler les grains de zirconium de différentes orientations dans le plan radial-circumférentiel. Matériau hydruré à 200 ppm environ, contenant des hydrures non-réorientés. A gauche, hydrures non visibles, car non-révéls. A droite,hydrures visibles en surbrillance, après révélation par attaque chimique au coton.

L'analyse des textures cristallographiques par diffraction des rayons X a été réalisée au CEA/SRMA/LA2M sur des tronçons de tubes amincis chimiquement jusqu'à une épaisseur inférieure à 0,05 mm, puis découpés et collés sur des supports plans. Deux matériaux ont été analysés : le matériau non-hydruré, le matériau hydruré à 200 ppm et ayant subi un traitement de réorientation des hydrures à 400°C et sous 150 MPa. Les textures obtenues sont celles de tubes de gainage à l'état détendu, où les axes  $\langle c \rangle$  sont majoritairement inclinés vers 40° de la direction radiale (DR) dans le plan radial – circumférentiel et les directions [10.0] sont très majoritairement orientées suivant la direction axiale (DA). Ni la température, ni la contrainte appliquée durant le traitement d'hydruration n'ont modifié la texture cristallographique du matériau.



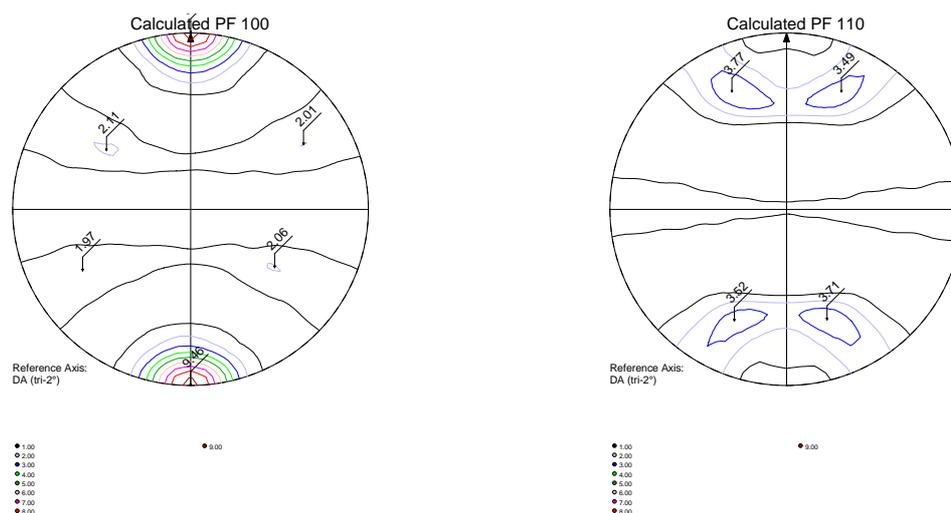


Figure 4 : Figures de pôles (00.2), (10.0) et (11.0) de la gaine non-hydruré reconstruites par la FDOC (fonction de distribution des orientations cristallines).

## 2.1.2 HYDRURATION

### Chargement en hydrogène

Le matériau de l'étude est soit non-hydruré (matériau de référence), soit hydruré à 200 ou 500 ppm. Ces teneurs ont été choisies pour le programme PRECCI, car elles sont représentatives des teneurs moyennes de tubes hydrurés en réacteur respectivement à un étage bas ou un étage haut en fin de vie (4 ou 5 cycles).

Le matériau a été hydruré par voie gazeuse par CEZUS : les tubes sont placés dans le four, balayé par un flux d'argon et d'hydrogène et chauffé à 250°C. Ensuite, la température est portée à 400°C en 12 mn environ. La durée du traitement thermique dépend de la teneur à atteindre : 2 heures pour une teneur de 200 ppm, et 4h30 pour une teneur de 500 ppm. Le refroidissement se produit four coupé. Cette méthode permet d'obtenir directement une distribution homogène dans l'épaisseur de la gaine, contrairement au chargement cathodique qui nécessite un traitement d'homogénéisation. Même si les distributions homogènes ne sont pas observées en réacteur, elles sont utiles à étudier dans le cadre d'études préliminaires comme celle-ci.

### Dosage de l'hydrogène

Les valeurs de teneur en hydrogène réellement absorbée par le matériau sont fournies par CEZUS et sont déterminées par la méthode dite de « fusion » ou d'« extraction à chaud sous vide » à chaque extrémité des tubes : la quantité d'hydrogène dégagée lors de la fusion de l'échantillon dans une enceinte sous vide est mesurée. La valeur obtenue correspond à une mesure globale de l'hydrogène présent dans l'échantillon, qu'il soit en solution solide ou sous forme d'hydrures. Pour chaque échantillon, la teneur indiquée correspond à la moyenne des valeurs mesurées à chaque extrémité. Le dosage de l'hydrogène réellement contenu dans les éprouvettes utilisées n'a pas été effectué, à cause de sa nature destructive.

Sur les tubes de 90 à 125 mm hydrurés à 200 et 500 ppm, l'écart entre les valeurs mesurées à chaque extrémité varie de 10 à 105 ppm. Cependant, comme la longueur axiale des anneaux est seulement de 5 mm, la distribution de l'hydrogène est supposée être relativement homogène dans les anneaux. De

plus, le mode d'hydruration choisi, la voie gazeuse, permet d'obtenir une distribution homogène dans l'épaisseur de la gaine.

### Identification de la phase des hydrures après chargement en hydrogène

Une analyse par diffraction des rayons X pour identifier la phase des hydrures a été effectuée au CEA/SRMA/LA2M, sur trois tronçons de tube : l'un hydruré à 500 ppm avec hydrures réorientés à 150 MPa, les deux autres à 200 ppm avec soit des hydrures non-réorientés, soit des hydrures réorientés à 150 MPa. Afin d'analyser la plus grande surface possible et d'ôter la couche externe perturbée par le laminage, les échantillons sont enrobés à froid dans une résine et l'ensemble résine + anneau est poli jusqu'au voisinage de la fibre neutre parallèlement à la direction axiale des gaines (le plan poli correspond au plan circonférentiel-axial) sur les deux faces. Sur l'une des faces, une couche d'or a été déposée pour permettre une observation au MEB de l'échantillon contenu dans la résine, afin de vérifier la présence des hydrures.

Les spectres obtenus sont présentés Figure 5. Les différentes amplitudes des pics s'expliquent par les différences de taille des surfaces analysées. Les pics de zirconium à structure hexagonale et de l'or à structure CFC sont facilement remarquables – en général –, mais le seul pic pouvant être attribué à l'hydrure  $\delta$  ( $2\theta = 32,5^\circ$ ) de structure CFC est visible pour le matériau hydruré à 500 ppm, il est faible et n'est pas confirmé par d'autres pics entre 20 et  $70^\circ$ . Dans les matériaux hydrurés à 200 ppm, les intensités de ce pic à  $2\theta = 32,5^\circ$  sont trop faibles pour être quantifiables.

Cette analyse de DRX ne permet pas de mettre en évidence la présence d'autres phases d'hydrure que la phase  $\delta$ .

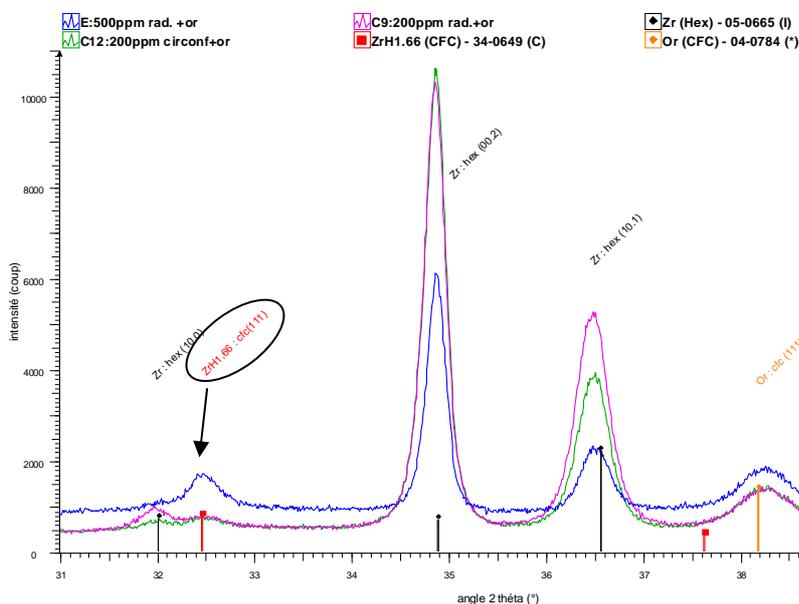


Figure 5 : Spectres obtenus sur les faces dorées de 3 tronçons de gaine. Le pic correspondant à la phase d'hydrure  $\delta$  est indiqué par une flèche.

### 2.1.3 REORIENTATION DES HYDRURES

Les tubes fournis par CEZUS sont hydrurés à environ 200 et 500 ppm, avec des hydrures majoritairement circonférentiels, puisque la texture est optimisée, grâce à l'orientation et la forme des grains notamment, pour que la précipitation des hydrures soit la moins nocive possible.

Certains de ces tubes sont soumis à un traitement de réorientation, réalisé par le CEA/SRMA/LC2M. Il consiste à appliquer aux tubes une contrainte circonférentielle, en température, de façon à ce que les hydrures se dissolvent et re-précipitent perpendiculairement à cette contrainte, radialement.

Les échantillons utilisés dans cette étude proviennent de tubes réorientés au cours d'essais sous pression interne d'huile à 400°C, température à laquelle la solubilité de l'hydrogène dans le zirconium est de 200 ppm environ. Les tubes sont placés dans une machine de fluage et une sollicitation circonférentielle, grâce à la pression interne d'huile exercée, leur est appliquée. Après que la valeur souhaitée de la charge est atteinte (vitesse de montée en charge de 8MPa/s), elle est maintenue pendant 10 mn à 400°C, puis pendant la décroissance de la température jusqu'à température ambiante (Figure 6). Des mesures d'extensométrie permettent de vérifier que l'éprouvette ne rentre pas en plasticité. La vitesse de refroidissement est d'environ 4,2°C/mn au début de la phase de décroissance (400-300°C), puis elle diminue progressivement, le refroidissement s'effectuant four coupé (Figure 6). Il est très important, comme cela est expliqué dans la partie bibliographique, que la vitesse de refroidissement soit suffisamment lente et qu'elle soit identique pour tous les traitements de réorientation, puisque la phase des hydrures formés en dépend.

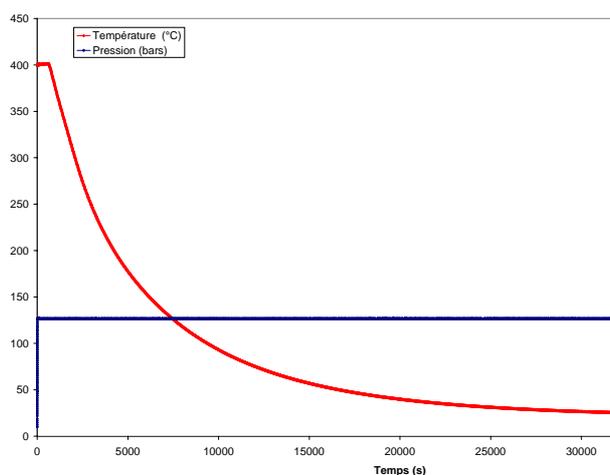


Figure 6 : Essai de réorientation sous pression interne d'huile à 400°C et sous 126 bars de pression : courbes de la pression imposée et du suivi en température.

Suivant l'intensité de la contrainte, la quantité d'hydrures qui se réorientent varie : les valeurs de 100 MPa et de 150 MPa ont donc été retenues, suite à des essais préliminaires, pour obtenir respectivement des hydrures « mixtes » ou « radiaux ». Ces valeurs de contrainte correspondent à des pressions de 126 et 189 bars, la contrainte circonférentielle et la pression étant liées par la formule

suivante [Limon 1991] :

$$\sigma_{\theta} - \sigma_R = \Delta p \frac{D_i}{2e}$$

avec,  $\sigma_{\theta}$  : contrainte circonférentielle (MPa),

$\sigma_R$  : contrainte radiale (MPa),

$\Delta p$  : pression interne (la pression extérieure est négligeable),

$D_i$  : diamètre intérieur du tube,

$e$  : épaisseur du tube.

Les déformations sont supposées planes et cylindriques loin des extrémités.

Comme cela a été précisé au paragraphe précédent, la texture du matériau n'est pas modifiée par ce traitement de réorientation.

#### 2.1.4 CARACTERISATION DE LA MORPHOLOGIE DES HYDRURES AU MEB

La morphologie des hydrures de zirconium est difficile à caractériser, car cela nécessite de définir d'abord la notion « d'objet hydrure ». En effet, les hydrures peuvent être observés à différentes échelles : microscopie optique, microscopie électronique à balayage ou en transmission fournissent des renseignements complémentaires, qui ne sont pas comparables les uns avec les autres. Outre le mode d'imagerie employé, les différences rencontrées dans la littérature, concernant la description des hydrures, s'expliquent par la dépendance de la morphologie avec :

- certains paramètres liés au matériau : son état métallurgique, le procédé de mise en forme utilisé ;
- d'autres paramètres se rapportant à l'hydruration : la teneur en hydrogène du matériau, la vitesse de refroidissement choisie, le site de précipitation, la phase d'hydrure, la présence ou non de réorientation.

L'étude de la morphologie des hydrures doit aboutir à la description qualitative et quantitative de la géométrie des hydrures : longueur, épaisseur dans différents plans d'observation – si possible –, courbure, ramification, répartition spatiale relative. La répartition macroscopique des hydrures dans l'échantillon est aussi un paramètre important influençant les propriétés mécaniques à prendre en compte : cependant, dans nos échantillons, contrairement à ce qui se produit en réacteur, les hydrures sont répartis de manière homogène dans l'épaisseur de la gaine.

##### Préparation des échantillons employés pour l'observation des hydrures

Afin d'observer les hydrures, on a d'abord cherché à utiliser des attaques chimiques pour les révéler et faciliter ainsi leur caractérisation. Cependant, réaliser des attaques chimiques conduit à dissoudre, en surface et légèrement sous la surface, les hydrures présents dans la matrice, plus ou moins selon la composition de la solution et sa force, la durée et le mode d'application. Cela peut donc engendrer d'une part, une surestimation de la quantité d'hydrures et de leurs paramètres morphologiques (longueur, épaisseur), d'autre part, une interprétation erronée de certains résultats expérimentaux, dans le cas d'étude de la déformation locale du matériau (cf Chapitre 4). De plus, différentes solutions d'attaque chimique ont été utilisées, mais d'une part leur application s'est révélée délicate et d'autre part, les résultats étaient peu reproductibles. Voici, à titre informatif, les différentes solutions employées :

- acide nitrique, acide fluorhydrique dans les proportions 9 : 1, 3 secondes environ, soit appliquée au coton sur l'échantillon, soit utilisée comme « bain » dans lequel on trempait l'éprouvette [Rabouille 2002] ;
- acide nitrique, acide lactique, acide fluorhydrique, dans les proportions 48,5 : 48,5 : 3, utilisée comme bain dans lequel on plonge l'éprouvette 30 s environ [Arsène 1997]. Cette solution se périmait très vite et ne révélait pas systématiquement les hydrures ;
- glycérol, acide nitrique, acide fluorhydrique, dans les proportions 10 : 9 : 1 [Grange 1998]. Cette attaque ne convenait pas non plus.

La face plane (section transversale) de tous les échantillons utilisés pour l'analyse d'image et pour les essais mécaniques in-situ ont donc été polis mécaniquement : papiers SiC 1200, 2400 et 4000, puis polissage avec une suspension de silice colloïdale (OPS). Les hydrures sont ainsi visibles au MEB, en électrons rétro-diffusés, sans avoir été révélées. Le numéro atomique de l'hydrogène, composant « principal » des hydrures étant plus faible que celui du zirconium, composant principal de la matrice de Zircaloy-4, les hydrures apparaissent noirs sur un fond plus clair.

Les réglages du MEB utilisés pour réaliser ces observations sont récapitulés ci-dessous :

MEB	Philips XL 40
Tension	20 keV
Taille de spot	Entre 4 et 5
Grandissement	Variable
Nature des électrons utilisés	BSE
Distance de travail	10 mm

#### Observations dans le plan radial-circonférentiel (coupe transversale)

Les premières observations ont naturellement été réalisées sur la coupe transversale des anneaux, parce que cette surface est plane, donc facile à polir et à observer, et surtout parce que c'est dans ce plan que les hydrures, quelle que soit leur orientation, sont le plus nettement visibles. Dans le matériau de l'étude, la répartition des hydrures est relativement homogène à travers l'épaisseur de la gaine (absence de « rim d'hydrure ») et il y a peu de différences d'un échantillon à l'autre pour les mêmes conditions de teneur et d'orientation. Mais les hydrures sont tout de même difficiles à caractériser. Il faut en effet définir l'entité hydrure et à partir de cette définition, déterminer d'une manière la moins subjective et la plus reproductible possible, les paramètres morphologiques des hydrures. Ainsi, d'après la littérature, « l'unité élémentaire », dont la juxtaposition crée un « hydrure », est probablement visible seulement au MET. Dans les articles de Perovic, ces très fines plaquettes mesurent sur les clichés issus d'observation au MET, environ 2  $\mu\text{m}$  de long et 0,2  $\mu\text{m}$  de large dans du Zircaloy-2 [Perovic 1992], et elles sont encore plus ténues dans le Zr-2,5Nb, 0,5  $\mu\text{m}$  environ de long pour 0,04  $\mu\text{m}$  de large [Perovic 1983]. Il est à noter que les rapports d'élanement sont très voisins dans les deux cas.

De telles observations au MET n'ont pas été réalisées, mais les images MEB mettent tout de même en évidence la structure complexe des hydrures. On a tenté, à partir de ces observations réalisées en électrons rétro-diffusés, à différents grandissements, de caractériser qualitativement et quantitativement les hydrures pour les différentes configurations de l'étude. Notre objectif principal était de déterminer si les répartitions des hydrures variaient avec la teneur, si la morphologie des hydrures dépendait de la teneur et de l'orientation. Les valeurs fournies ci-dessous sont issues d'estimations « visuelles » et ne sont pas issues de traitements d'analyse d'images. Des mesures statistiques issues d'analyse d'image ont été réalisées et seront décrites dans la partie suivante de ce chapitre.

Comme les images suivantes l'illustrent, dans la coupe transversale, et dans la configuration 200C, les hydrures apparaissent, aux plus faibles grandissements, comme étant de longues fibres très sinueuses. A plus fort grandissement, ils se révèlent être constitués de très petites plaquettes (de 2 à 5  $\mu\text{m}$  de long

et environ 0,4  $\mu\text{m}$  d'épaisseur) juxtaposées les unes aux autres, et toutes orientées dans une direction proche de la direction circonférentielle. Dans cette étude, on désignera par « hydrure » les hydrures « macroscopiques » qui correspondent à un agrégat de telles plaquettes. Ces hydrures macroscopiques sont longs, de 50 à 200  $\mu\text{m}$ , et sont souvent regroupés par bandes constituées chacune de deux ou trois longs hydrures, ces bandes étant elles-mêmes espacées de 50  $\mu\text{m}$  environ de matrice. Cette distinction de deux échelles d'observation est assez arbitraire, car si il est assez simple d'évaluer les dimensions des « petites » plaquettes d'hydrures visibles au MEB, il est plus délicat de définir la longueur des hydrures macroscopiques.

Dans la configuration 200R, les hydrures sont, visuellement, majoritairement orientés radialement. Ils sont plus courts (moins de 100  $\mu\text{m}$ ) et légèrement moins espacés les uns des autres dans la direction normale aux hydrures (direction circonférentielle). Ils semblent un peu plus tortueux que les hydrures circonférentiels.

Dans la configuration 200M, la longueur des hydrures varie selon leur orientation, radiale ou circonférentielle, mais même les hydrures circonférentiels sont plus courts que dans le cas 200C. Les hydrures radiaux sont nettement moins nombreux. Une quantification sera proposée à la fin du chapitre.

Concernant les matériaux hydrurés à 500 ppm, on peut se reporter aux images de la Figure 22 pour observer la répartition des hydrures dans le plan radial-axial. On constate que dans les trois cas les hydrures sont majoritairement circonférentiels : ce sont de longues bandes – jusqu'à 200  $\mu\text{m}$  –, constituées de petits hydrures. Certaines de ces bandes contiennent plus de petits hydrures et paraissent de fait plus épaisses. Radialement, ces bandes sont très rapprochées dans le cas 500C, puis, cet espacement augmente, et cet espace est occupé par de petits hydrures radiaux.

<i>Teneur et orientation</i>	<i>Longueur (<math>\mu\text{m}</math>)</i>	<i>Épaisseur (<math>\mu\text{m}</math>)</i>	<i>Espacement inter-hydrures (dans la direction perpendiculaire à l'orientation des hydrures)</i>
200C	50 à 200 $\mu\text{m}$	< 1 $\mu\text{m}$	Dans la direction radiale : 50 – 60 $\mu\text{m}$
200M	Variable selon l'orientation de l'hydrure	< 1 $\mu\text{m}$	Dans la direction radiale : 50 $\mu\text{m}$
200R	40 à 100 $\mu\text{m}$	< 1 $\mu\text{m}$	Dans la direction circonférentielle : 30 à 50 $\mu\text{m}$
500C	Difficile à déterminer, beaucoup de ramifications, beaucoup de petits hydrures regroupés en bandes de 50 à 100 $\mu\text{m}$ .	< 1 $\mu\text{m}$	Dans la direction radiale : 20 $\mu\text{m}$
500M	Bandes épaisses de 100 $\mu\text{m}$ de long, hydrures isolés et courts de 20 $\mu\text{m}$ .	variable, < 1 $\mu\text{m}$	Dans la direction radiale : 50 $\mu\text{m}$
500R	idem	< 1 $\mu\text{m}$	Dans la direction radiale : 100 $\mu\text{m}$

Tableau 3 : Récapitulatif des valeurs des principaux paramètres morphologiques des hydrures « macroscopiques » (coupe transversale).

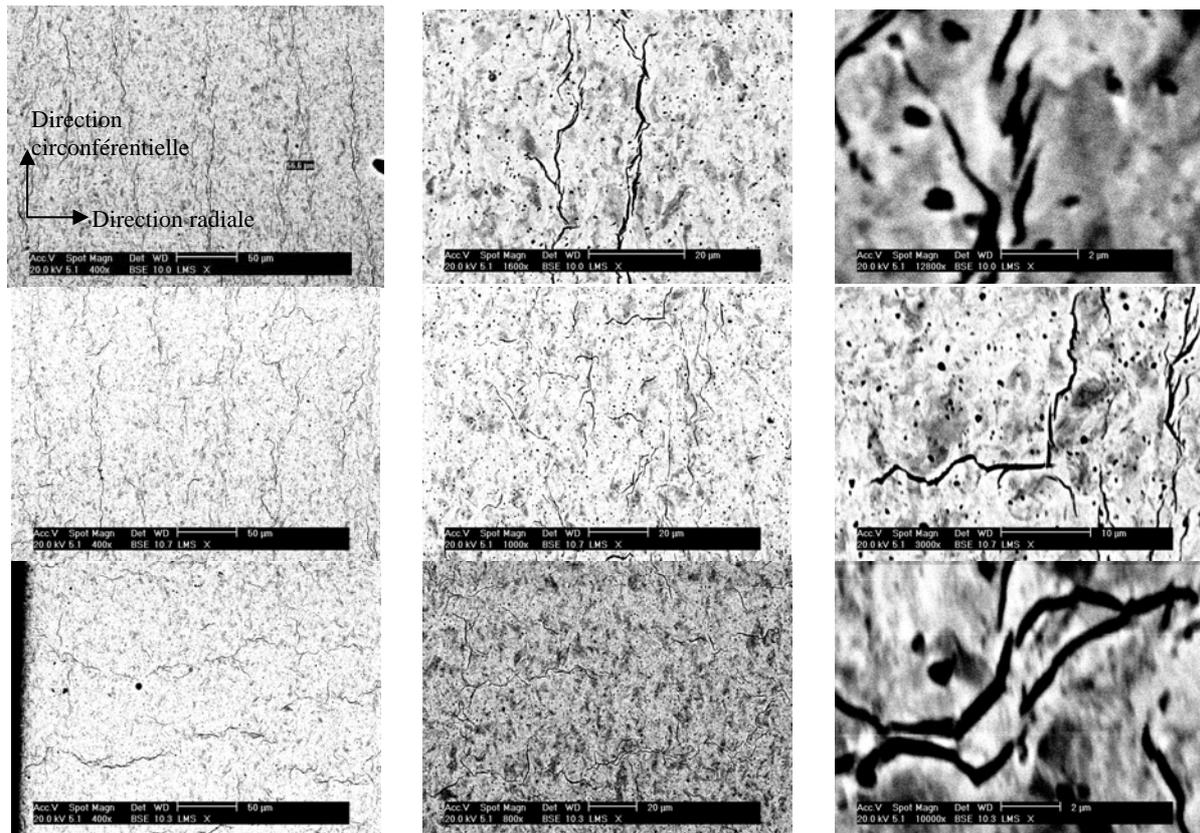


Figure 7 : Images MEB acquises en électrons rétro-diffusés, à différents grossissements, pour les configurations respectivement 200C (1<sup>ère</sup> ligne), 200M (2<sup>ème</sup> ligne), 200R (3<sup>ème</sup> ligne). Les zones représentées ici se situent sur le pôle ouest de l'anneau, dans le plan transversal.

### Observations dans le plan radial-axial (coupe longitudinale)

Dans le plan longitudinal, les grains sont allongés selon l'axe du tube, à cause du procédé de laminage et les hydrures sont eux aussi très rectilignes. Cela est visible pour la configuration 200C, dans laquelle les hydrures circonférentiels, normaux au plan d'observation, sont bien définis (Figure 8, c). Ce sont de longues bandes regroupant plusieurs plaquettes d'hydrures, sur une longueur supérieure à 100 µm et espacées d'environ 50 µm.

En revanche, dans la configuration 200R, le plan des hydrures radiaux est proche de celui d'observation : l'intersection des deux est une forme aux contours assez flous, constituée de lignes et/ou de surfaces (Figure 8, f), de 10 à 20 µm de large. Comme des hydrures circonférentiels sont aussi présents dans ce cas, on retrouve aussi des hydrures rectilignes, bien définis, comme dans le cas 200C (Figure 8, g). Ces hydrures sont plus courts, répartis d'une façon assez homogène.

Pour les matériaux à 500 ppm, peu de différences sont relevées lors des observations de ce plan pour les différentes configurations d'hydruration. Les hydrures sont longs (>100 µm), rectilignes et espacés d'environ 20 à 50 µm.

<i>Teneur et orientation</i>	<i>Longueur (<math>\mu\text{m}</math>)</i>	<i>Épaisseur (<math>\mu\text{m}</math>)</i>	<i>Espacement inter-hydrures</i>
200C	> 100 $\mu\text{m}$	« Cluster » : 10 à 20 $\mu\text{m}$ , plaquettes d'hydrure : < 1 $\mu\text{m}$	50 $\mu\text{m}$
200R	environ 50 $\mu\text{m}$	plaquettes d'hydrure : < 1 $\mu\text{m}$	environ 50 $\mu\text{m}$ , mais difficile à définir du fait de la répartition diffuse des hydrures.
500C	> 100 $\mu\text{m}$	« Cluster » : 20 $\mu\text{m}$ ,	entre 20 et 50 $\mu\text{m}$
500M	> 100 $\mu\text{m}$	« Cluster » : 20 $\mu\text{m}$ ,	entre 20 et 50 $\mu\text{m}$
500R	> 100 $\mu\text{m}$	« Cluster » : 20 $\mu\text{m}$ ,	entre 20 et 50 $\mu\text{m}$

Tableau 4 : Récapitulatif des valeurs des principaux paramètres morphologiques des hydrures « macroscopiques » (coupe longitudinale).

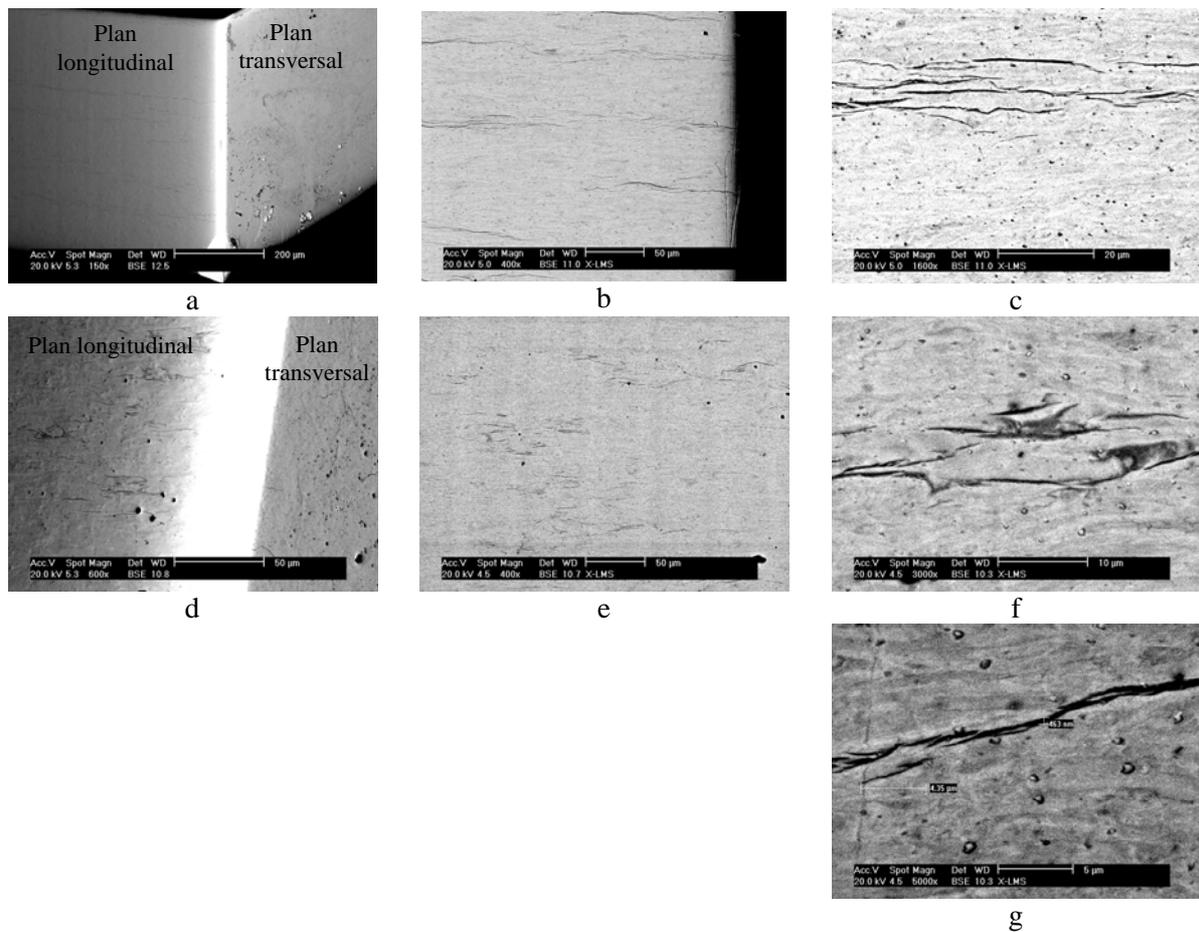


Figure 8 : Images MEB acquises en électrons rétro-diffusés, à différents grossissements, pour les configurations respectivement 200C (1<sup>ère</sup> ligne) et 200R (2<sup>ème</sup> et 3<sup>ème</sup> lignes). Les zones des images b, c, e, f, g se situent sur une coupe longitudinale de l'anneau (plan radial-axial).

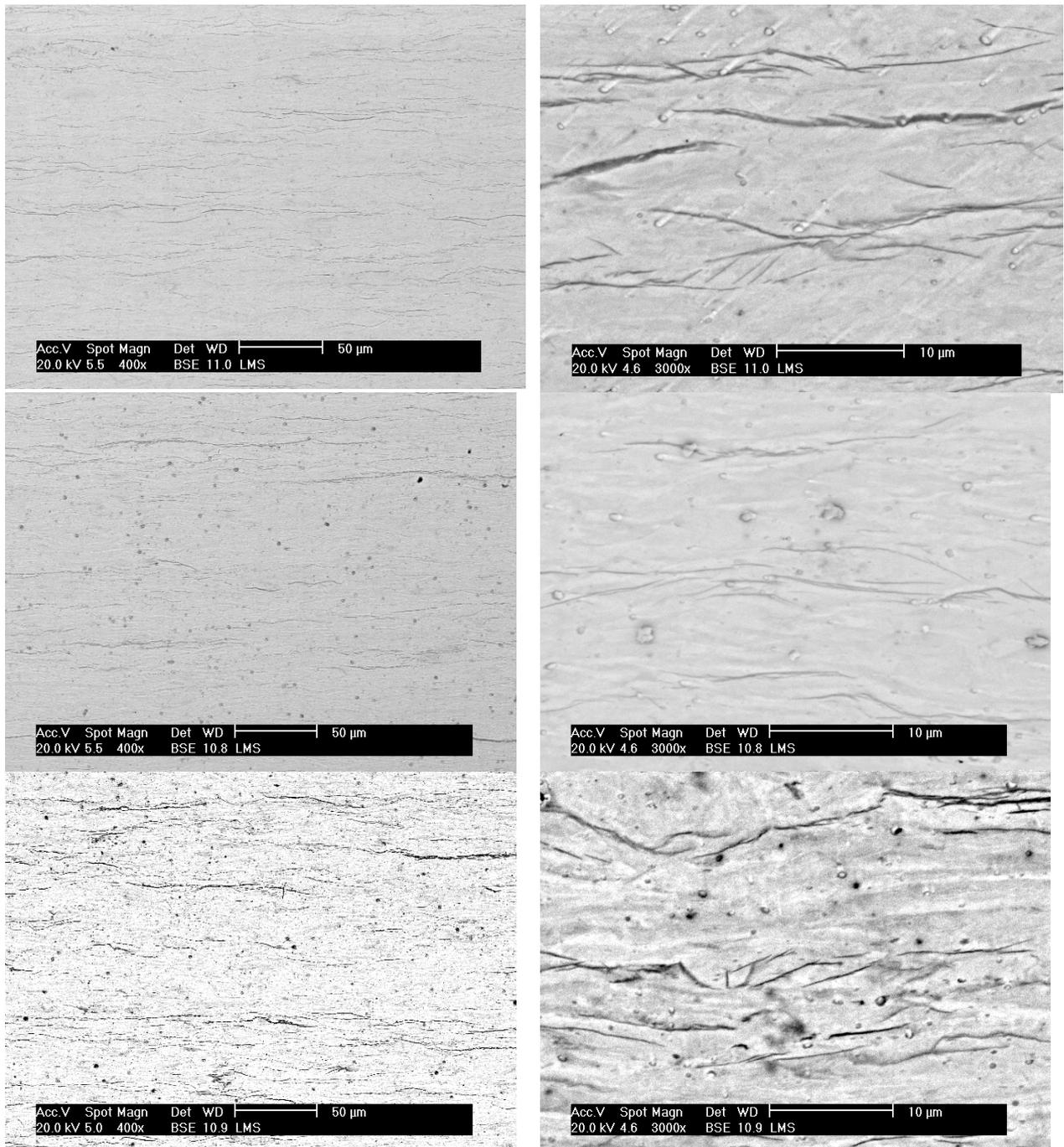


Figure 9 : Images MEB acquises en électrons rétro-diffusés, à différents grossissements, pour les configurations respectivement 500C (1<sup>ère</sup> ligne, 500M (2<sup>ème</sup> ligne) et 500R (3<sup>ème</sup> ligne). Ces zones se situent sur une coupe longitudinale (plan radial-axial) de l'anneau.

Ces différentes micrographies mettent en évidence les différences de morphologie des hydrures présents dans les échantillons utilisés dans cette étude. Les observations du 200C sont cohérentes avec les descriptions de la littérature, comme celles de [Hong 2002], ou bien avec celles de [Zhang 1993], pour un état métallurgique et des teneurs comparables.

## 2.2 CARACTERISATION PAR ANALYSE D'IMAGES

L'analyse d'image est une méthode générale, dont les applications sont très diverses, qui permet d'extraire des informations contenues dans une image, de façon objective et automatique le plus souvent [Souchier 1998]. Par exemple, elle permet de reconnaître des formes, de réaliser des mesures à partir d'images, de caractériser la taille, l'orientation, la dispersion, la forme d'éléments constitutifs de microstructures. Cet outil est particulièrement employé dans les sciences de la vie et dans les sciences des matériaux. D'ailleurs, le logiciel que nous avons utilisé, à la fois pour traiter les images et pour les analyser, « Image J » est développé par le National Institute of Health américain. Les descriptions quantitatives auxquelles conduit l'analyse d'images permettent notamment de comparer plusieurs situations expérimentales entre elles, ou un échantillon par rapport à des normes. L'analyse d'images, est l'étape ultime d'un processus, dont la première étape consiste à former des images, représentations bidimensionnelles d'un objet, à un instant et à un grandissement donnés. La seconde étape a pour but de transformer cette image numérique en une nouvelle image, binaire, qui servira elle de support à l'analyse.

Différentes techniques d'analyse d'images ont déjà été utilisées pour étudier l'état d'hydruration d'alliages de zirconium, principalement pour estimer le contenu en hydrogène d'un matériau ou pour quantifier l'orientation moyenne des hydrures. Elles seront décrites au début de cette partie. Ensuite, sera présentée l'analyse réalisée sur le matériau de cette étude, ses objectifs, sa mise en œuvre et les résultats obtenus.

### 2.2.1 INTRODUCTION : PARAMETRES FREQUEMMENT UTILISES EN ANALYSE D'IMAGES

#### Relations stéréologiques

Dans ce chapitre, le mot image renvoie à des images issues soit de microscopie optique, soit de microscopie électronique à balayage. Ces images sont constituées par un certain nombre de pixels, dont la quantité varie suivant la résolution de l'image. Pour les images acquises en niveaux de gris, le nombre de niveaux de gris dépend du codage du signal (de la mémoire associée à chacun des pixels) ; ainsi, pour une image acquise avec un signal codé sur 8 bits, chaque pixel sera constituée de 256 niveaux de gris. Lors du traitement de l'image, la première étape consiste à choisir un seuil de binarisation, de façon à transformer l'image initiale en un ensemble de pixels noirs (valeur : 0) et de pixels blancs (valeur : 1) exclusivement, qui forme une nouvelle représentation de l'objet à analyser. L'importance du choix seuil de binarisation ainsi que la signification des autres opérations morphologiques qui constituent un « traitement d'image » et qui vont permettre d'obtenir une image dont on peut extraire des informations quantitatives, sont expliquées en Annexe 5.

L'un des intérêts de l'analyse d'images, ou plus exactement de la microscopie quantitative, est d'accéder à des paramètres définis sur  $R^3$  à partir de mesures effectuées sur  $R^2$ ,  $R^1$  ou  $R^0$ , grâce aux relations stéréologiques – ou de Crofton – entre des paramètres définis sur ces différents espaces. En effet, réaliser des mesures en volume n'est pas aisé : la tomographie est peu répandue dans le domaine des matériaux, et l'approche par « coupes sériées » est délicate à mettre en œuvre et fastidieuse. Les relations stéréologiques peuvent être classées en 3 groupes suivant la nature de l'ensemble X sur lequel portent les mesures :

- si  $X$  est un ensemble de volume (grains ...) :

$$(1) \quad V_V(X) = A_A(X) = L_L(X) = N_P(X)$$

$$(2) \quad S_V(X) = 4/\pi L_A(X) = 4 N_L(X)$$

$$(3) \quad M_V(X) = 2\pi N_A(X)$$

- si  $X$  est un ensemble de surfaces (joints de grains ...) :

$$(4) \quad S_V(X) = 4/\pi L_A(X) = 2 P_L(X)$$

- si  $X$  est un ensemble de lignes (dislocations...)

$$(5) \quad L_V(X) = 2 P_A(X)$$

avec :

-  $V_V(X)$  : fraction volumique de phase  $X$ ,

-  $A_A(X)$  : fraction surfacique de phase  $X$ ,

-  $L_L(X)$  : fraction linéique de phase  $X$ ,

-  $N_P(X)$  : proportion de points dans  $X$

-  $S_V(X)$  : surface de  $X$  par unité de volume,

-  $L_A(X)$  : longueur du périmètre de  $X$  par unité de surface,

-  $N_L(X)$  : nombre de segments dans  $X$  (nombre d'intercepts) par unité de longueur (nombre de connexité par unité de longueur),

-  $M_V(X)$  : intégrale de courbure moyenne de  $X$  par unité de volume,

-  $N_A(X)$  : nombre de connexité de  $X$  par unité de surface,

-  $P_L(X)$  : nombre d'intercepts par unité de longueur,

-  $L_V(X)$  : longueur des lignes par unité de volume,

-  $P_A(X)$  : nombre de lignes coupées par la surface, par unité de surface.

Toutes ces relations sont vraies *en moyenne*.

Ces relations peuvent être appliquées par exemple, suite à un comptage manuel, effectué en utilisant des grilles, soit permettant de compter des « points » et ainsi de déterminer  $N_P$  puis de remonter à  $V_V$ , par la relation (1), soit permettant de compter des intercepts, et dans ce cas d'accéder à  $S_V$  via  $P_L$  par la relation (4).

Certaines de ces relations ou leurs dérivées ont été employées dans des travaux cités dans le paragraphe suivant, appliqués à l'étude du Zircaloy-4 hydruré.

### Quantification de l'anisotropie

Plusieurs méthodes sont recensées dans la littérature pour caractériser l'anisotropie dans  $R^2$  [Coster 1989] et une brève description va en être donnée ci-après.

① Tout d'abord, dans le cas où il existe *une* orientation privilégiée, celle-ci peut être recherchée grâce au tracé de la **rose des intercepts**, qui correspond à l'évolution en coordonnées polaires de la variation diamétrale  $D_A(X, \alpha)$  en fonction de  $\alpha$ . Or,  $D_A(X, \alpha)$  est égal au nombre de connexité par unité de longueur  $N_L(X)$ . Dans le cas d'une structure parfaitement isotrope, la rose des intercepts est un cercle, dans celui d'une structure parfaitement anisotrope, elle est constituée de deux cercles égaux et accolés (Figure 10). Cette méthode peut être mise en œuvre manuellement ou automatiquement, avec un appareil permettant de programmer la rotation de l'image.

② Dans le cas d'une structure possédant plusieurs orientations préférentielles, l'anisotropie peut être représentée par la **rose des directions**, outil lié mathématiquement à la rose des intercepts par des formules détaillées dans [Coster 1989]. La rose des directions est la fonction de  $\alpha$ ,  $L_A(X, \alpha)$  – longueur du périmètre de  $X$  – traduite en coordonnées polaires. Chaque orientation préférentielle est traduite par un pic en coordonnées polaires, l'amplitude de ces pics étant proportionnelle à l'importance de l'orientation préférentielle considérée. Avec une table de digitalisation, la rose des directions est obtenue immédiatement. Le contour d'un ensemble  $X$  correspond à l'ensemble des segments définis par des coordonnées successives, chaque segment peut donc être caractérisé par son module et son orientation. La rose des directions est la distribution obtenue en sommant pour chaque classe d'orientation les modules des segments de cette classe.

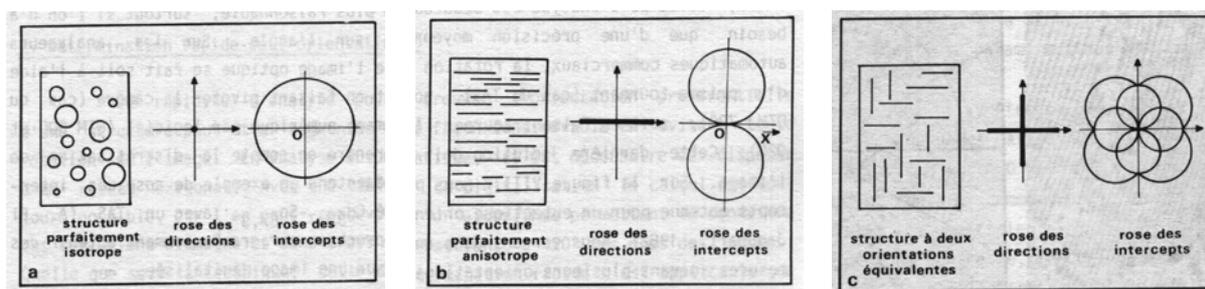


Figure 10 : Rose des directions et rose des intercepts dans différents cas : structure isotrope, structure anisotrope, structure présentant deux orientations équivalentes à  $\pi/2$  l'une de l'autre [Coster 1989].

③ L'anisotropie dans  $R^2$  peut aussi être caractérisé plus rapidement, en évitant toute rotation de l'image, lorsqu'une orientation préférentielle est prépondérante par rapport aux autres. On peut alors, en connaissant les variations diamétrales dans trois directions à  $120^\circ$  les unes des autres, appliquer à la structure anisotrope un modèle elliptique (tel que celui de Serra, [Coster 1989]). L'identification des paramètres permet de connaître d'une part, l'orientation principale de la structure et de caractériser l'importance de cette orientation grâce à un des paramètres identifiés, l'excentricité.

④ Un autre paramètre d'anisotropie a été proposé par Saltykov (1968),  $\Omega_{1,2}$ , qui vaut 0 pour une structure équiaxe et 1 pour une structure totalement orientée. Pour le déterminer, il faut calculer, par la mesure des intercepts, les nombres de connexité par unité de longueur,  $N_L(X)$ , dans la direction principale ( $N_L(X, //)$ : contribution des lignes isotropes) et dans la direction perpendiculaire ( $N_L(X, \perp)$ : contribution des lignes isotropes et des lignes orientées). La formule établie par Saltykov est :

$$\Omega = \frac{2[N_L(X, \perp) - N_L(X, //)]}{2[N_L(X, \perp) + (\pi - 2)N_L(X, //)]}$$

Dans le paragraphe suivant, lors de la description des méthodes d'analyse d'images appliquées au Zircaloy hydruré, des allusions aux divers outils décrits ci-dessus seront souvent faites, même si aucun n'a été repris directement.

## 2.2.2 EXEMPLES DE CERTAINS PARAMETRES « MORPHOLOGIQUES » RETENUS POUR DES ANALYSES MECANIQUES

Avant de présenter des études récentes ayant utilisé les paramètres d'analyse d'image tels qu'expliqués précédemment, voici des exemples de certains paramètres morphologiques, élaborés dans le but de relier morphologie / quantité d'hydrures aux propriétés mécaniques du matériau. Ces critères sont cités dans l'ordre chronologique de leur publication.

### Concentration en hydrogène effective

[Marshall 1963] a mis en évidence par des tests de traction réalisés à température ambiante, sur du Zircaloy-2, que lorsque les plaquettes d'hydrures sont orientées perpendiculairement à la contrainte, la résistance et la ductilité du matériau diminuent fortement. Il a donc introduit la notion de « teneur effective en hydrogène » pour pouvoir comparer les propriétés mécaniques de traction (limite d'élasticité et résistance mécanique d'éprouvettes hydrurées avec différentes distributions d'hydrures.

$$H_{eff} = H_t \cdot f_N, \text{ avec :}$$

$H_{eff}$ : teneur effective en hydrogène ;

$H_t$ : teneur totale en hydrogène mesurée par extraction sous vide ;

$$f_N = \frac{N_R}{N_T}$$

$N_T$ : nombre total de plaquettes

$N_R$ : nombre de plaquettes dont l'angle par rapport à la direction de sollicitation est compris entre 50 et 90°.

Des teneurs en hydrogène inférieures à 40 ppm contribuent à accroître la résistance mécanique et diminuer la ductilité du Zircaloy ; alors que pour des teneurs supérieures, à la fois la résistance et la ductilité diminuent. Pour des teneurs effectives supérieures à 50 ppm, les éprouvettes n'ont aucune ductilité macroscopique (la rupture se produit pour 345 MPa).

### ESPACEMENT INTER-HYDRURE

[Coleman 1966], suite à des essais de flexion trois points réalisés à différentes vitesses de déformation et diverses températures, concluent que l'accroissement de la vitesse de déformation ou de la teneur en hydrogène a pour effet de déplacer la température de transition ductile-fragile vers les températures plus élevées, mais qu'il faut aussi tenir compte de la distribution réelle des hydrures. Ils ont pour cela introduit le paramètre « Inter-hydrure spacing » (espacement inter-hydrure). Cet espacement inter-hydrure moyen est estimé grâce à un comptage des particules par la **méthode des intercepts**, sur des sections métallographiques. La dispersion s'élève à 15%.

Pour faire varier ce paramètre, un traitement thermique a été appliqué pour obtenir différentes tailles de grain, puis le matériau a été hydruré à 100 ppm. Il en résulte différentes distributions homogènes d'hydrures intergranulaires. D'après les auteurs, si la taille et la forme des hydrures varient peu, l'espacement inter-hydrure est un paramètre raisonnable pour représenter les distributions. La valeur de ce paramètre correspond à la distance qu'une fissure devrait parcourir entre deux hydrures. D'après

les résultats des essais, si ce paramètre est inférieur à 160  $\mu\text{m}$ , toutes les éprouvettes rompent de manière fragile.

### COEFFICIENT DE CONTINUITÉ DES HYDRURES

[Bell 1975] souhaitait introduire un paramètre reliant les hydrures aux propriétés mécaniques. Pour cela, il considère la section transversale d'un composant tubulaire, et plus précisément une bande étroite positionnée autour d'un rayon. Il projette sur ce rayon les hydrures contenus dans la bande considérée. Le coefficient de continuité des hydrures est la fraction de la longueur totale de la bande qui présente une continuité d'hydrures. Une faible valeur de ce coefficient favoriserait une bonne résistance mécanique. En effet, ce coefficient traduit la distance existant entre hydrures adjacents dans la direction radiale et reflète donc de combien les hydrures réduisent le chemin de rupture dans l'épaisseur du métal non-hydruré. Il faut retenir que ce paramètre n'est pas indépendant de la teneur en hydrogène.

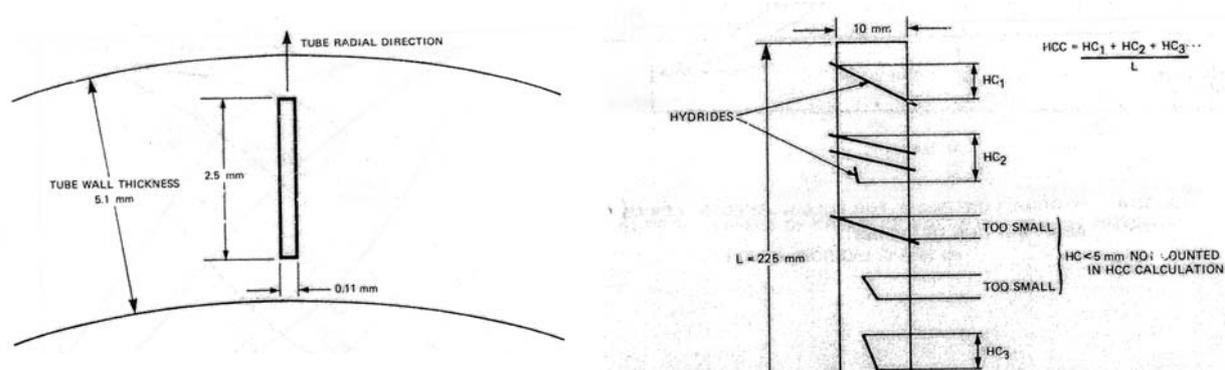


Figure 11 : A gauche, représentation de la section transversale d'un tube et du positionnement de bande utilisée pour calculer le coefficient de continuité des hydrures ; à droite, représentation de la bande et des hydrures contenus, expliquant comment la valeur de l'HCC (hydride continuity coefficient) est déterminée [Bell 1975].

### LONGUEUR DES PLAQUETTES D'HYDRURES

[Puls 1988] a utilisé 3 types d'alliage de Zr (Excel, Zy-2 et Zr-2,5 % Nb). Les teneurs en hydrogène varient de 0,18 à 0,90 % at. (soit 20 à 100 ppm), et les longueurs d'hydrures de 5 à 400  $\mu\text{m}$ . La majorité des plaquettes ont leur normale parallèle à l'axe de la direction de traction.

D'après les résultats des essais de traction, sur des éprouvettes lisses ou entaillées, dans ces alliages de Zr, la rupture des hydrures sous une contrainte appliquée dépend de :

- la longueur des hydrures ;
- la déformation plastique de la matrice ;
- l'état de contrainte.

La quantité de déformation plastique nécessaire pour entraîner la rupture diminue lorsque la longueur des hydrures augmente et la multi-axialité des contraintes augmente.

La longueur seuil des hydrures semble se situer autour de 50-100  $\mu\text{m}$  : si les hydrures sont plus longs, une déformation plastique très faible semble suffisante pour initier la rupture des hydrures et les

contraintes à rupture sont imprévisibles : elles peuvent être soit très supérieures ou très inférieures à la moyenne, selon que l'arrangement de ces longs hydrures renforce le matériau ou constitue un chemin de fissuration facile. Les conclusions de l'auteur peuvent être résumées dans un modèle supposant que la rupture des hydrures requiert une contrainte critique interne, issue de l'hétérogénéité de déformation entre la matrice ductile et les hydrures moins ductiles.

### 2.2.3 TECHNIQUES D'ANALYSE D'IMAGES APPLIQUEES A L'ETUDE DES HYDRURES DANS LE ZIRCALOY

Dans le cadre d'études de l'état d'hydruration d'alliages de zirconium, l'analyse d'images a été employée pour évaluer la quantité d'hydrogène contenu dans le matériau. En effet, cet outil présente certains avantages sur la technique d'extraction à chaud sous vide, employée usuellement pour mesurer la quantité globale d'hydrogène contenue dans un échantillon. Tout d'abord, comme la limite de solubilité de l'hydrogène dans le zirconium à température ambiante est très faible (< 1 ppm), l'identification des *hydrures* par analyse d'images peut permettre d'évaluer la quantité d'*hydrogène* présent dans l'échantillon. De plus, elle est non-destructive et permet d'une part de reproduire la mesure, et d'autre part, de réutiliser l'échantillon pour d'autres usages. Elle permet en outre de réaliser des mesures locales, ce qui est particulièrement intéressant sur les échantillons hydrurés et irradiés présentant une couche d'oxyde externe et/ou un rim d'hydrures, et donc un gradient radial de distribution d'hydrogène.

#### Exemples d'application de l'analyse d'images à la caractérisation d'alliages de zirconium hydrurés

##### ① Caractérisation de la fraction volumique d'hydrures

[Schrire 1994] a utilisé la microscopie électronique à balayage, dans le but de déterminer la fraction volumique locale d'hydrures. Sur des échantillons irradiés ou non, en Zy-2 ou Zy-4 et, soit polis mécaniquement avec une suspension de silice colloïdale, soit attaqués chimiquement, il a pris des images en électrons rétro-diffusés de 512 x 512 pixels, couvrant des surfaces de 70 x 80 μm. Si l'aire analysée est bien représentative de l'échantillon (quel que soit le plan de polissage), d'après la relation stéréologique (1) citée dans le paragraphe 2.2.1, la fraction surfacique des hydrures interceptés est équivalente à leur fraction volumique. La fraction surfacique d'hydrures permet ensuite d'évaluer la teneur en hydrogène à partir de la formule suivante :

$$W_{iH} = W_{i\delta} F \frac{\rho_{\delta}}{(1-F)\rho_{Zr} + F\rho_{\delta}}$$

avec :  $W_{iH}$  : teneur en ppm d'hydrogène,

$W_{i\delta}$  : teneur en ppm d'hydrogène dans la phase d'hydrure  $\delta$  (17500 ppm),

$F$  : fraction surfacique d'hydrures mesurée (équivalente à la fraction volumique),

$\rho_{\delta}$  : densité de la phase d'hydrure  $\delta$  (5,65 g/cm<sup>3</sup> à température ambiante),

$\rho_{Zr}$  : densité de la phase de zirconium  $\alpha$  (6,54 g/cm<sup>3</sup> à température ambiante).

$(1-F)\rho_{Zr} + F\rho_{\delta}$  : densité moyenne de l'alliage hydruré

$$F \frac{\rho_{\delta}}{(1-F)\rho_{Zr} + F\rho_{\delta}} : \text{fraction massique d'hydrures.}$$

Ceci s'applique si les hypothèses suivantes sont validées :

- l'hydrogène se trouve majoritairement sous forme d'hydrures et non en solution solide (obtenu avec une vitesse de refroidissement suffisamment faible) ;
- tous les hydrures sont de phase  $\delta$ .

La comparaison des résultats obtenus avec ce calcul ou par extraction à chaud est satisfaisante. Les auteurs signalent cependant que, à cause des différences de morphologie des hydrures pour les teneurs en hydrogène élevées ou faibles, il est nécessaire de faire l'analyse sur un plus grand nombre d'images dans le cas de la faible teneur.

### ② Caractérisation de la fraction volumique d'hydrures et de l'orientation des hydrures

Au CEA, des études ont été réalisées sur du Zy-4, détendu ou recristallisé, irradié ou non, afin de déterminer une méthodologie permettant de corréliser la teneur globale en hydrogène d'un échantillon à des paramètres déterminés par analyse d'images.

La démarche établie et validée par [Barcelo 1991 et 1993] consiste à utiliser des images de microscopie optique, à faible grandissement, d'échantillons polis mécaniquement jusqu'à une finition diamant. Les paramètres identifiés, suivant une procédure d'analyse d'images décrite précisément dans [Barcelo 1991 et 1993], sont :

- $L_h/S$  : longueur totale des hydrures squelettisés par unité de surface ;
- $d_n$  : mesure de la distance moyenne entre particules, dans une direction fixe donnée, associée à une rotation de l'image de  $360^\circ/n$ .

$$d = \frac{L_t - L_h}{N_c} \text{ avec :}$$

- $N_c$  : nombre de corde (nombre de segments interceptés) ;
- $L_t$  : longueur de référence (somme des longueurs des lignes de référence) ;
- $L_h$  : longueur de corde (somme des longueurs interceptées).

Pour  $n$  rotations  $\alpha$ , effectuées automatiquement par le logiciel employé, la distance  $d_n$  est évaluée dans la direction de mesure DM. L'orientation préférentielle est lue sur le graphe  $d_n = f(\alpha)$ , elle est donnée par la valeur de  $\alpha$  correspondant à la distance moyenne maximale. Ceci est observé lorsque la direction de mesure DM est confondue avec l'orientation préférentielle des hydrures (cas du 3<sup>ème</sup> cercle de la Figure 12). Cette méthode semble assez proche de celle consistant à déterminer la rose des intercepts, mais elle concerne la distance entre particules et non pas l'évolution d'un paramètre des particules, ce qui la rapproche aussi de la méthode de détermination du paramètre  $\Omega$ .

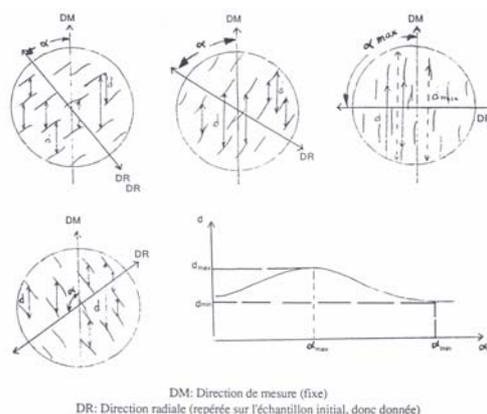


Figure 12 : Mesure de  $d_n$ , distance moyenne entre les hydrures [Zhang 1993].

Pour chaque état métallurgique, recristallisé ou détendu, une corrélation, valable jusqu'à des teneurs de 500 ppm environ, a été établie entre la teneur en hydrogène mesurée par fusion et le paramètre  $L_h/S$ . L'épaisseur des hydrures n'est pas prise en compte. Or, à partir de 400-500 ppm, il se produit des empilements d'hydrures, observés au MET, non pris en compte lors de l'analyse de l'image squelettisée. Cela explique certainement la saturation observée sur les courbes pour des teneurs supérieures à 500 ppm. L'auteur recommande d'effectuer des observations au MEB en électrons-rétrodiffusés pour obtenir une meilleure description des hydrures.

La première étude réalisée sur du Zy-4 détendu non-irradié par [Barcelo 1991] a été comparée à celle de [Froment 1990] sur du matériau irradié. La méthode de [Froment 1990] est différente sur les points suivants : l'échantillon a été attaqué chimiquement, et l'orientation des hydrures est déterminée par le paramètre  $F_N$ , défini comme étant le rapport entre le nombre d'hydrures faisant un angle inférieur à  $45^\circ$  avec l'axe radial et le nombre total d'hydrures. Ce facteur, traditionnellement utilisé en métallurgie pour définir les orientations de texture, présente l'inconvénient de devoir définir « l'objet hydrure ». Les hydrures ont donc été « coupés » en un certain nombre de segments, ayant chacun leur orientation. L'angle entre chacun de ces segments et la direction radiale a ensuite été déterminé. Quant à la teneur en hydrogène, elle a été évaluée en définissant le taux d'occupation des hydrures, égal au rapport entre le nombre de pixels du squelette sur le nombre total de pixels de l'image. L'analyse a été effectuée sur les mêmes échantillons que la première étude réalisée sur du matériau non-irradié [Barcelo 1991], mais avec des systèmes et des logiciels de traitement d'image différents. Les résultats d'évaluation de la teneur en hydrogène, obtenus pour un grandissement donné, dans les deux cas sont comparables.

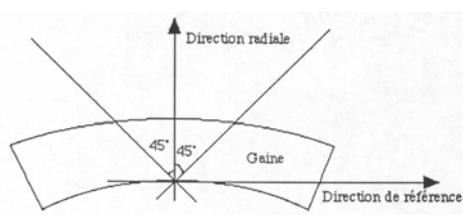


Figure 13 : Schéma d'une partie d'une section transversale d'un tube. Définition des directions de référence et radiale, permettant d'accéder au facteur  $F_N$  [Froment 1990].

[Zhang 1993] s'est intéressé aux hétérogénéités de distribution radiale dans l'épaisseur de la gaine, sur des échantillons irradiés et hydrurés à plus de 600 ppm. A partir d'images prises au microscope optique, à des grossissements de 250 ou 1000, sur des échantillons polis mécaniquement et attaqués chimiquement, il a choisi de déterminer, sur deux plans d'observation, la coupe transversale et celle longitudinale, les valeurs de deux paramètres morphologiques :

$S_V$  : surface spécifique des hydrures = surface des hydrures / volume total de l'échantillon ;

$\Omega$  : niveau d'orientation des hydrures.

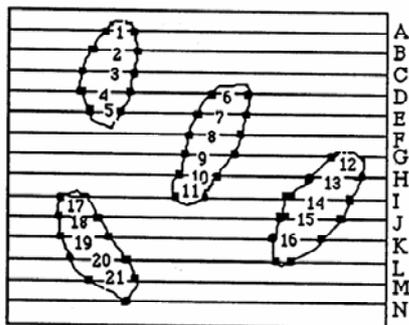
Comme la densité des hydrures est constante à une même température, et dans l'hypothèse où le rapport volume d'hydrures contenus dans l'échantillon / surface des hydrures observés est constant pour tous les hydrures, le paramètre  $S_V$  devrait être lié à la teneur en hydrogène contenu dans l'échantillon.

Pour obtenir ces deux paramètres,  $S_V$  et  $\Omega$ , les formules utilisées sont celles établies par [Underwood 1970] et adaptées à un système anisotrope. Elles correspondent à une analyse linéaire (Figure 14), effectuée sur des images en niveaux de gris de 512 x 512 pixels, prise au microscope optique, après binarisation des images et squelettisation des hydrures. Les 512 lignes du système de référence sont d'abord placées perpendiculairement, pour obtenir  $(P_L)_1$ , puis l'image est tournée de 90° pour obtenir  $(P_L)_2$ . Les différents paramètres évoqués sont déterminés par les formules suivantes :

$$P_L = \frac{N_i}{L_t}, S_V = (P_L)_1 + (P_L)_2, \Omega = \frac{(P_L)_2 - (P_L)_1}{(P_L)_2 + (P_L)_1}$$

avec  $N_i$  : nombre de points d'intersection entre les particules et les lignes du système de référence,

$L_t$  : longueur totale des lignes d'analyse.



$L_t$  : longueur des lignes de référence = A + B + ... + N.  
 $L$  : longueur des cordes interceptées = 1 + 2 + ... + 21  
 $N$  : nombre de cordes interceptées = 21  
 $N_i$  : nombre de points interceptés = 42

Figure 14 : Représentation schématique de l'application de l'analyse linéaire et définitions des notions employées..

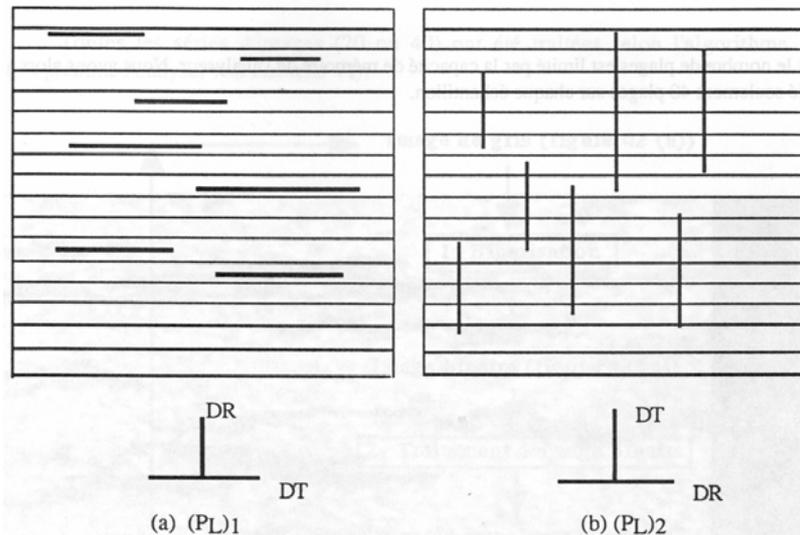


Figure 15 : Application de l'analyse linéaire à des particules orientées dans la direction circonférentielle.

Les conclusions de cette étude sont les suivantes :

- $S_V$  n'est pas indépendant du grandissement, à cause de paramètres propres à la précipitation des hydrures : à faible grandissement, certains empilements de plaquettes sont vus comme un seul hydrure, alors qu'à fort grandissement, les plaquettes sont distinctes.
- $S_V$  augmente linéairement avec la teneur en hydrogène, mais à partir de 600 ppm pour un grandissement de 250 et à partir de 1100 ppm pour un grandissement de 1000, la relation n'est plus linéaire et le paramètre  $S_V$  présente une saturation.
- les valeurs de  $\Omega$  confirment que dans le plan transversal, la distribution des hydrures est circonférentielle dans le cas détendu ( $\Omega = 0,3$ ) et plus isotrope dans le cas recristallisé ( $\Omega = 0$ ), et dans le plan longitudinal, l'orientation est plus marquée que dans le plan transversal pour les deux matériaux.

D'après ses résultats, [Zhang 1993] conclut d'une part, que  $S_V$  peut être utilisé pour déterminer la teneur en hydrogène, pour des teneurs supérieures à 40 ppm jusqu'à 600 ou 1100 ppm, pour des grandissements respectifs de 250 et 1000, d'autre part que  $\Omega$  peut permettre de caractériser l'orientation des hydrures, car les valeurs calculées lui semblent cohérentes avec les observations. Cette technique est applicable lorsque la teneur en hydrogène n'est pas trop élevée et lorsque les hétérogénéités de répartition des hydrures dans la direction radiale ne sont pas trop importantes.

Dans le tableau suivant sont récapitulés les paramètres cités précédemment. Ils sont difficilement comparables, car bien qu'ils aient tous été déterminés à partir « d'analyses d'images », ils ont été établis à partir de méthodes très différentes. Ainsi, le paramètre  $\Omega$  caractérisé par Zhang est une adaptation de la formule établie par Saltykov pour quantifier l'anisotropie ; concernant l'évaluation de la teneur en hydrogène / proportion d'hydrures, elle est soit réalisée par un comptage de pixels noirs, soit par un rapport entre nombre d'intercepts et longueur des lignes d'analyse. De plus, chacun des auteurs semble relativement satisfait de sa méthode, sauf [Froment 1991] qui émet des réserves sur la validité du paramètre  $F_N$  pour caractériser l'orientation des hydrures. En outre, la majorité de ces études a été réalisée à partir d'images optiques, alors que nous souhaitons utiliser des images MEB.

Enfin, concernant, l'étude de l'orientation des hydrures, on retient que [Barcelo 1991] a déterminé un paramètre donnant des indications sur le degré d'orientation des hydrures, et [Zhang 1993] sur le degré d'anisotropie.

Source bibliographique	Mode d'imagerie	Evaluation de la teneur en hydrogène globale	Evaluation de l'orientation / de l'anisotropie des hydrures
[Barcelo 1991]	Microscopie optique	$\frac{L_h}{S}$	$d = \frac{L_t - L_h}{N_c}$
[Froment 1991]	Microscopie optique	$Y = \frac{L_{Sq}(\text{pixels})}{L_{Tot}(\text{pixels})}$	$F_N = \frac{\text{nombre} \cdot \text{hydrures} \cdot (\text{angle} \leq 45^\circ)}{\text{nombre} \cdot \text{total} \cdot \text{d'hydrures}} \times 100$
[Zhang 1993]	Microscopie optique	$S_V = (P_L)_1 + (P_L)_2$	$\Omega = \frac{(P_L)_2 - (P_L)_1}{(P_L)_2 + (P_L)_1}, 0 \leq \Omega \leq 1$
[Schrire 1994]	MEB	$W_{iH} = W_{i\delta} F \frac{\rho_\delta}{(1-F)\rho_{Zr} + F\rho}$	

Tableau 5 : Récapitulatif de différents paramètres recensés dans la littérature et appliqués à l'étude de l'analyse d'images du Zircaloy hydruré.

### Limites de la méthode d'analyse d'images

Qu'elle soit réalisée à partir de microscopie optique ou électronique, la méthode d'analyse d'images présente des limites [Schrire 1994]. Une partie des erreurs est liée à la préparation de l'échantillon : ainsi, si une attaque chimique est nécessaire pour l'observation des hydrures (par exemple, dans le cas d'une observation au microscope optique), les résultats issus de l'analyse d'images vont être liés à la qualité de la reproductibilité de l'attaque, qui dépend de la quantité de produit appliqué, de la température, de la durée et du mode d'application ... La qualité de l'état de surface de l'échantillon est aussi primordiale : la présence de rayures, de saletés peut persister malgré le traitement de l'image et induire un léger biais.

Outre ces artefacts, un biais dû aux conditions d'acquisition des images (valeurs de brillance et de contraste, état du filament du MEB ...), et au traitement de l'image lui-même est à prendre en compte. Par exemple, selon la quantité d'hydrures, présents sous la surface, détectés, la fraction surfacique d'hydrures va être plus ou moins surestimée, et cela empêche d'appliquer les relations stéréologiques. Pour les électrons rétro-diffusés, la profondeur des informations est liée à la tension d'accélération. Réduire cette tension permet de réduire l'erreur commise, mais cela va aussi dégrader la résolution de l'image : un compromis doit donc être trouvé. D'autre part, certaines opérations, comme le seuillage, sont très liées à l'opérateur ; cependant, l'évaluation de la fraction surfacique d'hydrures dépend fortement de cette étape du traitement.

## 2.2.4 CARACTERISATION DE LA DISTRIBUTION STATISTIQUE DES HYDRURES : METHODE 1

### Objectifs

L'objectif de notre étude est de déterminer l'influence de l'orientation des hydrures sur le comportement mécanique du Zy-4 et, de corrélérer cette « orientation » à un ou plusieurs paramètres mécaniques. Ce dernier pourrait, par exemple, être la déformation à rupture, globale ou locale (cela sera précisé au chapitre 5). En revanche, la notion d'orientation est plus difficile à déterminer. Initialement, nous avons choisi de nous intéresser à la distribution des orientations des hydrures, puisque notre matériau avait la particularité d'avoir subi un traitement de réorientation et de présenter différentes distributions d'orientations d'hydrures. En effet, dans le cas, où il n'y a pas une seule orientation qui prédomine, comme on le suppose pour la distribution mixte, la notion d'orientation « moyenne » a peu de sens physique.

Dans cette partie, nous allons donc d'abord décrire la méthode d'analyse d'images adoptée et les détails pratiques de sa mise en œuvre, puis les résultats qu'elle permet d'obtenir et enfin les différents moyens de représenter cette information statistique.

### Méthode d'analyse d'images

- Préparation des surfaces

Pour éviter tout artefact provoqué par une attaque chimique, les surfaces à étudier (principalement surfaces planes correspondant à une coupe transversale) sont préparées comme pour une simple observation au MEB : polissage mécanique jusqu'au papier de granulométrie 4000, puis polissage avec une solution de silice colloïdale (OPS). De plus, l'absence d'attaque chimique évite de s'interroger sur la reproductibilité de l'attaque : la comparaison entre les différents échantillons est ainsi facilitée.

- Acquisition des images

Les images sont acquises avec le système IMIX PGT, sur lequel on ajuste les paramètres de contraste, de brillance et ceux de numérisation : taille et qualité de l'image. Le but n'est pas d'obtenir une « image équilibrée », mais une image très contrastée, pour faciliter ensuite l'extraction de la phase hydrure lors du traitement d'image. Pour permettre la comparaison des images entre elles, et pour pouvoir appliquer les mêmes opérations lors du traitement d'images, les conditions d'acquisition sont identiques pour tous les cas (Tableau 6). Certains paramètres, par exemple la durée d'utilisation du filament, ne sont cependant pas choisis et donc ne sont pas modifiables.

<i>Localisation des zones d'intérêt</i>	Images toujours prises au pôle nord ou sud : la direction circonférentielle correspond à l'axe horizontal de l'image.
<i>Taille des images</i>	4096 x 3062 pixels
<i>Formation des images</i>	contraste chimique, électrons rétro-diffusés
<i>Distance de travail (distance objet – détecteur)</i>	10 mm
<i>Codage</i>	256 niveaux de gris
<i>Grandissement (microscope)</i>	x 300
<i>Tension</i>	20 kV
<i>Courant de sonde</i>	5 (valeur sans unité sur ce MEB)
<i>Dimensions de la zone observée correspondant à</i>	environ 300 x 400 $\mu\text{m}$ (10 pixels correspondent

<i>l'image</i>	environ à 1 $\mu\text{m}$ )
« Averaging » ( <i>temps passé par le faisceau sur 1 pixel</i> )	« 1024 », nombre sans unité, qui correspond approximativement à 40-50 $\mu\text{s}$ /point

Tableau 6 : Caractéristiques des images haute résolution acquises avec le MEB Philips XL40.

- Traitement des images

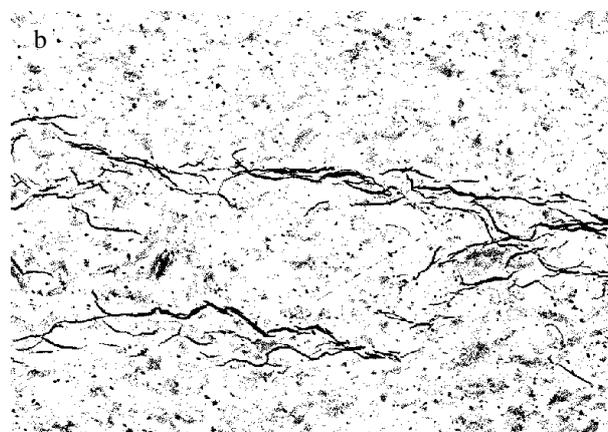
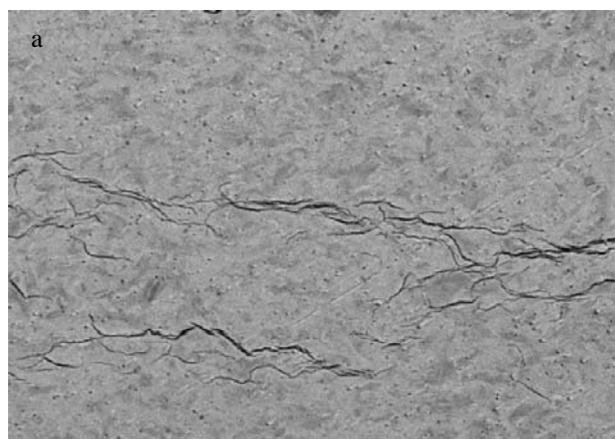
Après l'étape d'acquisition, différentes opérations sont appliquées à l'image pour identifier facilement la phase de l'image qui nous intéresse, afin ensuite, d'extraire des données quantitatives sur cette phase, en l'occurrence, les hydrures. C'est le logiciel Image J (dans ses versions 1.29 et 1.30), développé par the National Institute of Health américain, disponible sur Internet, qui a été utilisé pour traiter les images et les analyser.

On souhaiterait obtenir une image binaire, dans laquelle les pixels noirs représenteraient les hydrures, et les pixels blancs, la matrice. Pour cela, le traitement idéal serait de supprimer toutes les petites taches ou rayures parasites sans supprimer trop de pixels définissant les hydrures. Cela est difficile à obtenir et nécessiterait un traitement adapté à chaque image. Or, les images ont toutes été traitées avec la même séquence d'opérations pour pouvoir mieux les comparer et pour définir une méthode utilisable ultérieurement.

La séquence de traitement d'images qui a été retenue est la suivante (Annexe 5 pour précisions sur les termes employés) :

- image avant traitement (Figure 16a)),
- seuillage 0 – 125 (Figure 16b),
- ouverture (Figure 16c),
- despeckle deux fois (Figure 16d),
- squelettisation (Figure 16e),
- dilatation (Figure 16f),
- despeckle quatre fois (Figure 16g),
- squelettisation (Figure 16h).

Pour illustrer la nature de chacune de ces opérations, une partie d'une image est représentée pour chacune de ces étapes (Figure 16).



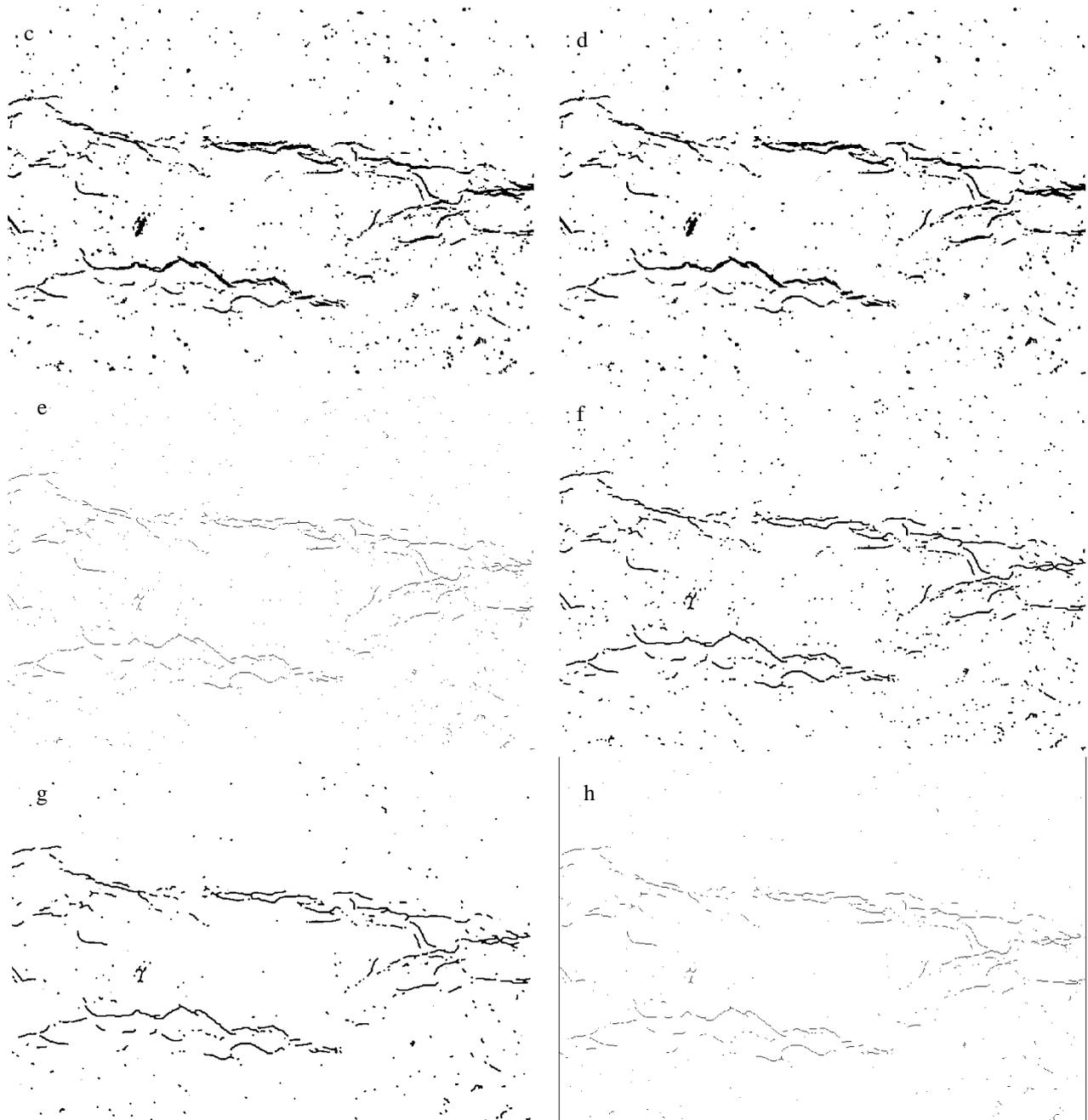


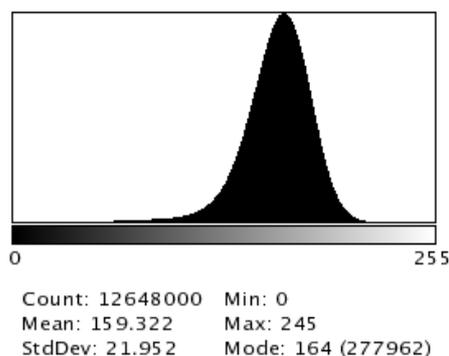
Figure 16 : Partie d'une image avant traitement (a) et après chaque opération de traitement d'image (b à g). Configuration 200C. Taille de cette portion d'image : 790 x 560 pixels. Cela correspond à une zone d'environ 79 x 56  $\mu\text{m}$ .

Cette séquence d'opérations n'a pas été établie dès la première analyse d'images réalisée. Beaucoup de tâtonnements ont précédé sa mise au point. En effet, il est difficile de trouver un protocole qui s'applique à toutes les images, surtout en ce qui concerne les valeurs imposées pour le seuillage, car parmi toutes les images, les niveaux de gris ne sont pas répartis de manière identique. L'opération « despeckle », qui consiste à supprimer de l'image des petites particules assimilables à des taches, ou à des parasites, peut contribuer elle aussi à faire disparaître des informations concernant les hydrures, en particulier des particules d'hydrures isolées. De plus, l'ordre dans lequel ces opérations sont réalisées a aussi une importance. Mais, toutes les combinaisons d'opérations ne peuvent pas être testées. Cette séquence a donc été choisie, car elle permettait d'obtenir des images avec des particules squelettisées assez fidèles à l'image initiale en un petit nombre d'opérations.

Une évaluation objective de la qualité du traitement d'image est difficile à réaliser. On peut néanmoins évaluer et comparer le nombre de pixels noirs (ceux censés représenter les hydrures) contenus dans des images obtenues à l'issue de différents traitements. Mais, pour comparer ces valeurs à la valeur exacte de pixels ne représentant que des hydrures, un traitement manuel, consistant à sélectionner les hydrures en les surlignant par exemple serait nécessaire.

Les difficultés rencontrées au cours du traitement d'image sont « classiques » et couramment évoquées dans la littérature : présence de rayures dues au polissage ou de taches, variation diffuse des niveaux de gris de la matrice non-attribuable à des hydrures, gradient de luminosité entre des bords opposés de l'image.

Histogramme de l'image entière (4096 x 3062 pixels)



Cet histogramme n'est pas idéal, car il n'est pas tout à fait centré, et tous les niveaux de gris ne sont pas représentés, cependant il ne présente pas de saturation dans le blanc ou le noir, et le pic est assez bien proportionné.

### Analyses réalisées

Sur les images obtenues après traitement, les hydrures sont représentés par des particules noires sur fond blanc, d'épaisseur 1 pixel. Ces particules n'ont pas de signification réelle : chaque entité ne correspond pas à un hydrure macroscopique ou à une plaquette le constituant. En effet, lors du traitement d'image, des particules peuvent être scindées en plusieurs parties : soit, le seuillage élimine des pixels clairs définissant des parties d'hydrures, soit la squelettisation, amincit et supprime des pixels d'hydrures.

D'autre part, de même qu'il est difficile de définir l'entité hydrure, il est difficile de déterminer d'une manière objective, reproductible et rapide, les limites physiques des hydrures ; les informations issues de l'analyse d'images sont les meilleures que l'on ait obtenues, même si elles sont critiquables. Le surlignage manuel des hydrures (à l'aide du logiciel Gimp) avait été entrepris sur une image d'un échantillon hydruré à 500 ppm : cela était long, fastidieux et très dépendant de l'opérateur et n'a donc pas été renouvelé.

Cependant, à l'issue du traitement, on dispose d'une image constituée d'une multitude de « particules ». Lors de l'analyse, le logiciel Image J identifie pour chacune d'elles, une ellipse de même surface. La méthode de définition de cette ellipse repose sur le principe qu'en statistique, une mesure utilisée pour caractériser une représentation en deux dimensions de points donnés est l'*ellipse de concentration*. Les caractéristiques géométriques de cette ellipse sont connues, notamment :

- le centroïde (point central de la sélection),
- le centre de masse (centroïde pondéré par les niveaux de gris),
- la circularité =  $4\pi$  (aire/périmètre<sup>2</sup>). Une valeur de 1 indique un cercle parfait,
- concernant le plus petit rectangle dans lequel la particule est inscrite, on peut connaître :

les coordonnées du point en haut à gauche ( $BX$  et  $BY$ ), sa largeur  $W$  et sa hauteur  $H$ ,

- le diamètre de Féret (caliper length) : la plus longue distance entre deux points quelconques de la particule, calculé comme suit :

$Féret = \sqrt{(W^2 \times pw^2 + H^2 \times ph^2)}$  avec  $W$  et  $H$ , respectivement la largeur et la longueur du rectangle contenant la particule,  $pw$  et  $ph$  des facteurs de calibration sur les pixels dans la largeur et la hauteur,

- le périmètre, défini par :  $Périmètre = 2 \times W \times pw + 2 \times H \times ph$
- concernant l'ellipse adaptée à la particule : son petit axe, son grand axe, l'angle entre le grand axe et l'axe horizontal de l'image.

La définition de ces paramètres et leur évaluation sont intrinsèques au logiciel Image J. Les programmes des routines implantées ne sont pas tous accessibles : par exemple, on ne connaît pas la forme de l'élément structurant utilisé par défaut au cours de l'analyse d'images, ni le fonctionnement de la fonction de « nettoyage » appelée « despeckle ».

L'analyse est effectuée sur des particules de taille supérieures ou égales à 20 pixels. Ce tri permet de ne pas prendre en compte les petites taches qui n'ont pas été éliminées par le traitement d'images.

Les données sur les particules à quantifier sont leur orientation et leur longueur.

- L'orientation est donnée par la valeur de l'angle entre le grand axe et l'axe horizontal de l'image. Cette valeur est en général pertinente.
- Quant à la longueur, elle a d'abord été évaluée par le paramètre « diamètre de Féret ». Mais, après différents tests sur des figures géométriques simples, il est apparu que le demi-périmètre convenait mieux pour évaluer la longueur des particules.

### Différentes représentation des informations statistiques fournies par l'analyse d'images

Tout d'abord, les images utilisées pour le traitement et l'analyse figurent en Annexe 6. Ce sont les données issues de leur analyse qui ont été utilisées comme informations statistiques. Ces données, principalement la longueur et l'orientation des « particules » supposées représenter les hydrures, entièrement ou partiellement, peuvent être représentées différemment selon l'objectif fixé.

#### ① Distribution cumulée des orientations des hydrures et fonction de répartition des orientations

Les premières informations statistiques que nous pouvons obtenir avec les données longueur et orientation des particules, sont la distribution cumulée - ou fonction de répartition - des orientations (Figure 17 gauche) et sa dérivée (Figure 17 droite). Dans la première, la valeur  $F(x)$  indique la proportion de particules dont l'orientation est inférieure ou égale à  $x$ . On constate sur ces courbes, que le 200R a vraiment une courbe atypique par rapport aux autres : l'absence de plateau indique que les orientations des particules sont réparties dans l'intervalle  $[0 ; 180^\circ]$ , et cela est représenté de manière plus évidente dans la figure de droite. D'ailleurs, dans cette figure, on constate que les classes d'orientation dominantes sont celles entre  $50$  et  $150^\circ$ . Dans les autres cas, les distributions cumulées présentent un plateau, qui est très marqué pour le 200C et le 500C, et moins pour le 500M, 500R et 200M. Les distributions correspondantes mettent en évidence que dans le cas circonferentiel indépendamment de la teneur, les classes d'orientation dominantes sont  $[0 ; 25^\circ]$  et  $[160 ; 180^\circ]$ . Dans

les autres cas, ces classes proches de 0 ou 180° sont moins marquées et les classes « centrales » sont plus représentées, mais moins que dans le cas 200R.

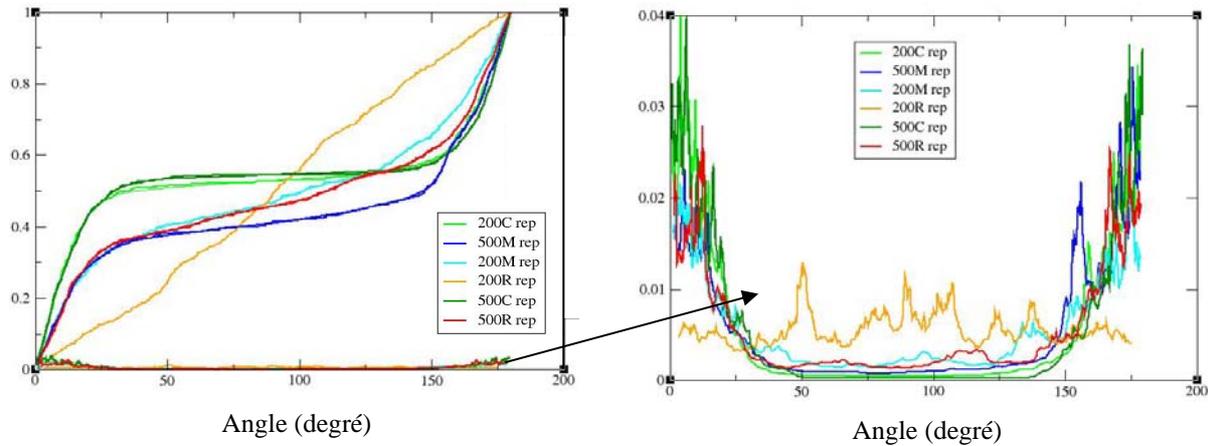


Figure 17 : A gauche : distribution cumulée (ou fonction de répartition) des orientations des hydrures (courbe initiale, courbe après lissage et courbe dérivée). A droite : répartition des orientations des hydrures : courbes dérivées des fonctions de distribution cumulée.

## ② Diagrammes d'orientation moyenne et graphes de distribution des orientations

Les données longueur et orientation sont utilisées comme données d'entrée de programmes, adaptés de ceux élaborés par [Bilger 2003]. Le premier permet de tracer pour chaque image un graphe, de forme elliptique ou circulaire, caractérisant pour chaque image l'orientation moyenne des particules et ses fluctuations. Dans le cas d'une ellipse, l'orientation moyenne est donnée par l'angle entre le grand axe et l'axe des abscisses, la fluctuation est proportionnelle à la dimension du petit axe. Dans le cas d'un cercle, la distribution est isotrope, il n'y a donc pas d'orientation privilégiée.

Pour obtenir ce graphe, les particules sont identifiées par leur orientation  $\theta_i$  et leur longueur  $l_i$ . Elles sont d'abord classées par ordre croissant de la donnée « orientation ». Ensuite, à partir de l'origine du graphe, on reporte successivement les coordonnées de l'extrémité de chacun de ces segments. La partie symétrique de ce graphe est ensuite construite en procédant de la même manière mais en utilisant l'angle  $\theta_i + \pi$ . Sur les axes du graphe, on peut reporter les projections des segments auxquels les particules sont assimilées :  $l_i \cos \theta_i$  sur l'axe des abscisses et  $l_i \sin \theta_i$  sur l'axe des ordonnées.

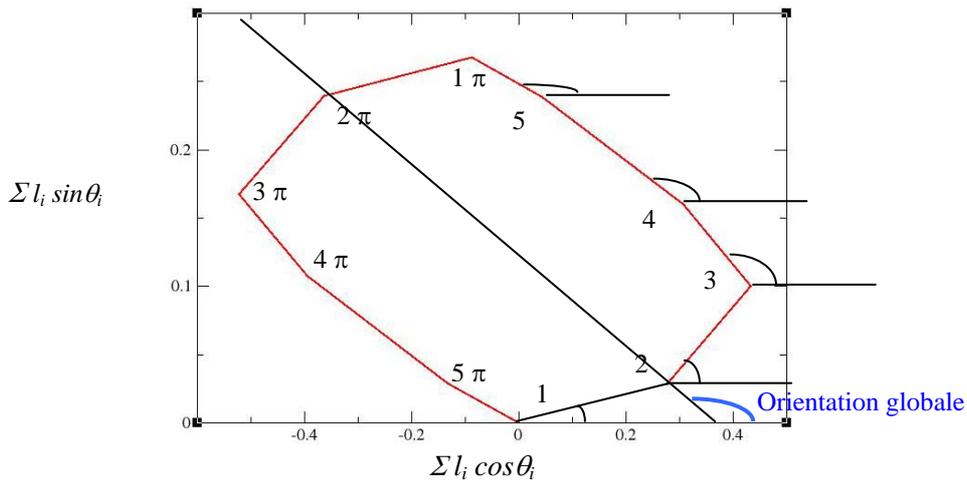


Figure 18 : Diagramme d'orientation moyenne pour 5 particules. Les numéros de 1 à 5 sont placés à côté de l'origine de chaque segment. Ces segments ont la longueur  $l_i$  et l'orientation  $\theta_i$  de particules identifiées comme des hydrures. Dans ce cas la longueur de chaque particule est normalisée par la somme des longueurs des 5 particules. Les indications  $1+\pi \dots$  sont placées à côté des origines des segments représentant les particules 1 ... orientées avec l'angle  $\theta_i + \pi$ .

Pour vérifier la validité de cette représentation, des microstructures ont été simulées, soit avec une orientation aléatoire, soit avec une orientation privilégiée (détails Annexe 9).

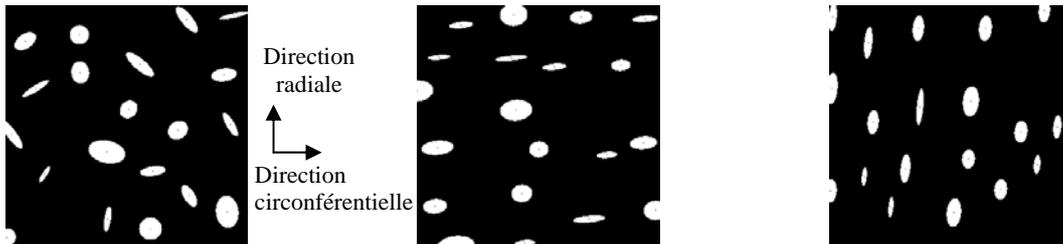


Figure 19 : Microstructures simulées représentatives d'une distribution d'hydrures « aléatoire », « circonférentielle » et « radiale ». Simulation réalisée avec 20 particules.

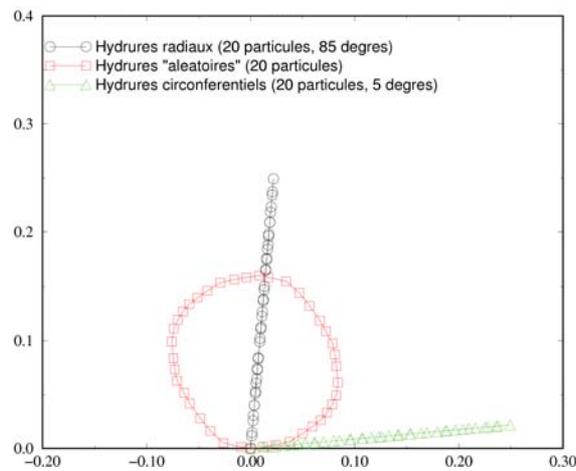


Figure 20 : Diagrammes d'orientation moyenne des trois microstructures simulées présentées précédemment et traduisant les cas limites.

Le diagramme correspondant à l'orientation isotrope est plutôt circulaire (Figure 20), celui caractérisant l'orientation moyenne circonférentielle (respectivement radiale) est représenté par une ellipse très allongée et dont le grand axe est presque parallèle à l'axe des abscisses (respectivement axe des ordonnées).

L'application du traitement d'images et de l'exploitation des données issues de l'analyse, telle qu'expliquée précédemment, aux cas étudiés (200C, 200M, 200R, 500C, 500M, 500R), conduit aux diagrammes superposés dans la figure suivante :

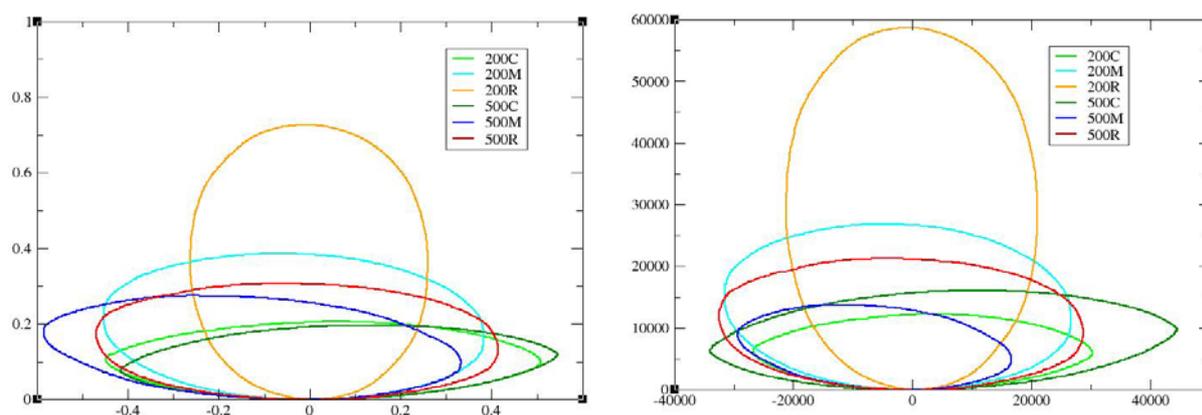


Figure 21 : Diagrammes d'orientation moyenne des six configurations étudiées. A gauche : pour pouvoir comparer et superposer les diagrammes dans un même repère orthonormé, la longueur des particules est rapportée à la longueur totale. A droite : représentation sans division par la longueur totale au préalable.

La superposition de ces diagrammes met en évidence :

- pour la plus faible teneur, 200 ppm, les ellipses obtenues sont cohérentes avec la dénomination des différentes configurations. Le cas « 200C » est représenté par une ellipse très allongée et parallèle à l'axe des abscisses, le cas « 200R » par une ellipse moins élancée mais parallèle à l'axe des ordonnées, et le cas « 200M » par une ellipse intermédiaire entre les deux.
- pour la teneur la plus élevée, 500 ppm, les trois ellipses sont parallèles à l'axe des abscisses, donc traduisent une orientation majoritairement circonférentielle. Le cas « 500R » contiendrait un peu plus d'hydrures radiaux que le « 500M » et le « 500C » respectivement.

La représentation des distributions des orientations où les longueurs des particules ne sont pas rapportées à la longueur totale, traduit les différences en terme de longueur de particules identifiées. La représentation en terme de longueur « normée » permet de s'affranchir un peu plus des différences entre les images dues notamment au traitement d'image. On peut toutefois remarquer que l'interprétation des deux types de graphes en terme d'orientation dominante est la même. Il est aussi nécessaire de souligner que ces statistiques ont été réalisées sur les longueurs et non sur les quantités de particules. En effet, suite au traitement d'images, des hydrures ont été morcelés et sont représentés par plusieurs particules. Cela n'est pas critique, car même un opérateur pourvu de sens critique ne peut pas aisément définir les limites d'un hydrure. Il faut juste avoir conscience que les données en longueur représentent les longueurs de parties d'hydrures, et par conséquent, les données en nombre ne nous informent pas sur une quantité d'hydrures.

Evaluation d'un paramètre quantitatif

L'information statistique issue de l'analyse d'images peut donc être représentée de plusieurs façons, comme les graphes du paragraphe précédent le prouvent. Cependant, d'après la littérature et les premières expériences réalisées, ce sont les hydrures orientés perpendiculairement à la contrainte – appelés ici hydrures radiaux – qui fragilisent le matériau, entraînant une perte de ductilité drastique [Marshall 1963], [Bai 1991], [Yagnik 2004]. Donc, nous avons souhaité quantifier la proportion de ce type d'hydrures présents dans les échantillons, en terme de longueur, pour pouvoir caractériser les différentes configurations de notre matériau plus richement que par une simple appellation « 200C » ... mais suffisamment simplement, par un seul scalaire, pour pouvoir corrélérer simplement ce paramètre à d'autres issus des essais mécaniques (cf Chapitre 5).

Les hydrures radiaux ont été définis comme suit : ce sont les hydrures orientés à 90° de la direction circonférentielle, à plus ou moins 45°. Ce critère de tri est très large, mais est proche de ceux utilisés dans la littérature [Froment 1990]. Les longueurs de ces particules sont ensuite sommées et normalisées par la somme des longueurs de toutes les particules.

$$HR\% = \frac{\sum_i^n l_i(45^\circ \leq \theta \leq 135^\circ)}{\sum_i^n l_i}$$

Ces quantités sont comparables, car les images ont toutes été acquises au même grandissement, à la même distance objet-détecteur et représentent une surface équivalente. Les résultats obtenus sont récapitulés dans le tableau suivant :

<i>Configuration</i>	<b>200C</b>	<b>200M</b>	<b>200R</b>	<b>500C</b>	<b>500M</b>	<b>500R</b>
<i>Proportion d'hydrures radiaux en terme de longueur (%)</i>	2,8	18,3	64,2	1,2	9,8	12,3

Si l'on veut que cette proportion tienne aussi compte de la teneur en hydrogène de l'échantillon, on peut multiplier la proportion d'hydrures radiaux par la quantité d'hydrogène : ainsi, on peut comparer tous les échantillons entre eux.

<i>Configuration</i>	<b>200C</b>	<b>200M</b>	<b>200R</b>	<b>500C</b>	<b>500M</b>	<b>500R</b>
<i>Proportion d'hydrures radiaux en terme de longueur multipliée par la teneur en hydrogène</i>	6	42	157	6	55	69

## 2.2.5 CARACTERISATION DE LA DISTRIBUTION STATISTIQUE DES HYDRURES : METHODE 2

### Objectifs

Une deuxième méthode d'analyse d'images a été mise au point afin de s'affranchir de la phase de traitement des images, qui semblait pouvoir introduire un biais dans la phase d'analyse des particules. La comparaison des résultats obtenus par les deux méthodes serait utilisée soit pour justifier notre démarche, dans le cas favorable où les valeurs issues de l'analyse seraient similaires, soit pour améliorer notre démarche.

### Principe

Il s'agit de remplacer la phase de traitement de l'image avec le logiciel Image J (seuillage, nettoyage, dilatation ...). Pour cela un programme a été établi permettant d'extraire la phase hydrure, phase qui apparaît plus sombre que la matrice, à partir de paramètres choisis par l'opérateur selon les propriétés de l'image. Ces paramètres sont :

- longueur de segment : à choisir de la dimension approximative des plus petits hydrures, mais plus longs que la majorité des taches que l'on veut éviter de sélectionner,
- niveau de gris moyen : correspondant au niveau de gris des hydrures, varie d'une image à l'autre selon qu'elle est plus ou moins claire ;
- niveau de gris maximum : dans certaines images (notamment celles à 500 ppm), les hydrures sont fins et clairs, ce niveau peut donc être assez élevé ;
- écart-type sur le niveau de gris : cela permet de tenir compte des hétérogénéités des fluctuations de niveaux de gris dans les hydrures.

Pour extraire la phase hydrure, un segment de longueur choisie parcourt l'image : si les pixels que le segment « recouvre » satisfont les critères en terme de niveaux de gris, alors ces pixels sont sélectionnés et sont attribués à la phase hydrure. Le segment parcourt toutes les images et balaie un certain nombre d'orientations, comprises entre 0 et  $\pi$ , avec un incrément d'angle égal à  $\Delta\theta = \pi / \text{nombre de classes}$ , où le nombre de classes équivaut à la longueur en pixels du segment.

A l'issue de ce traitement, on obtient une image comparable à la superposition fictive d'une certaine quantité d'images superposées, chacune ayant été traitée avec un élément structurant rectangulaire de la taille du segment utilisé. La quantité d'images superposées correspondrait au nombre d'orientations testées.

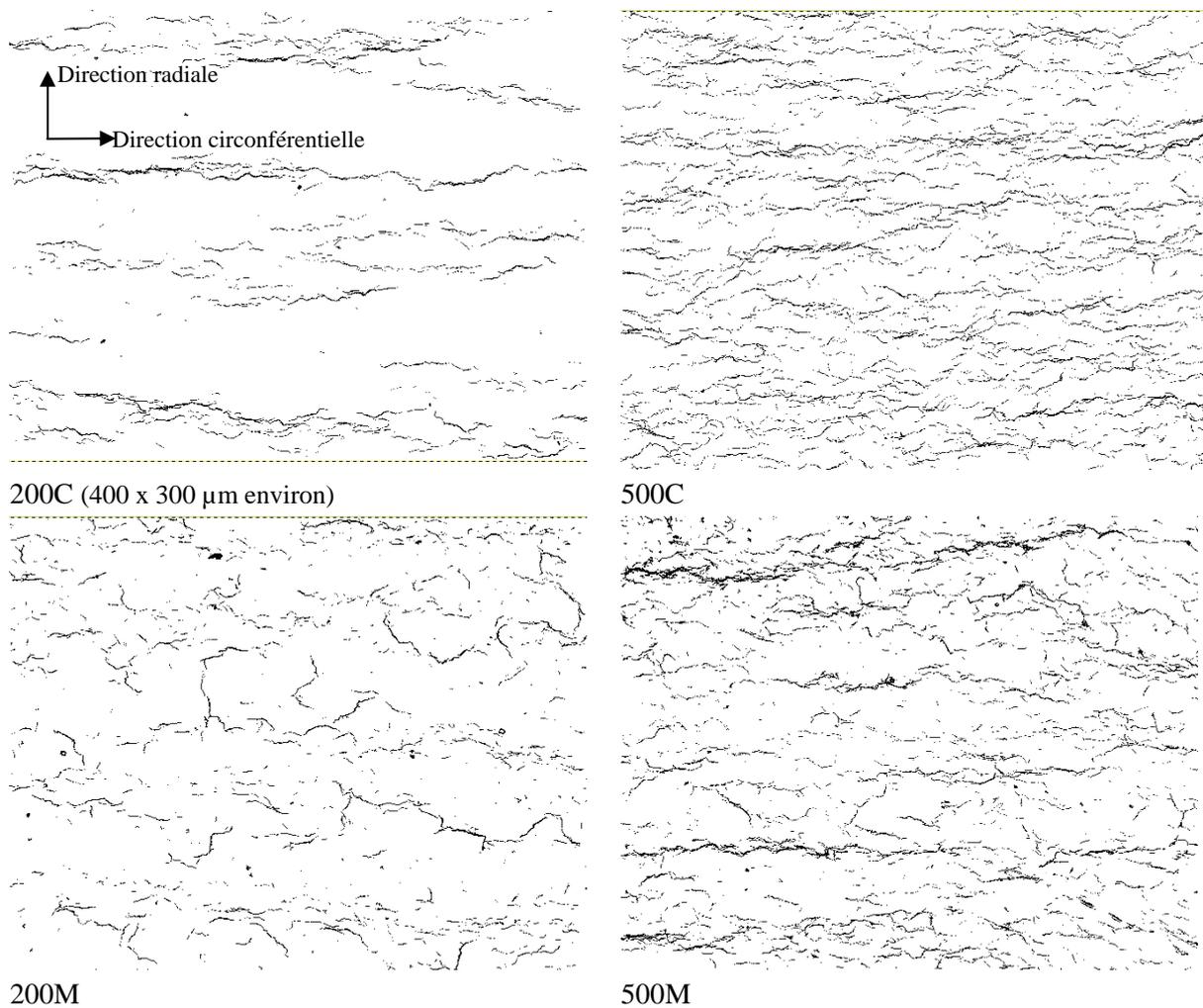
Cette méthode a l'avantage d'être plus adaptée à la qualité de chaque image (luminosité) et aux variations morphologiques des hydrures en fonction de la teneur ou au sein d'un même échantillon. Par exemple, dans les éprouvettes hydrurées à 500 ppm, beaucoup d'hydrures sont très fins et très courts, et apparaissent donc beaucoup plus clairs que la majorité des hydrures qui sont longs et un peu plus épais. Cependant, il faut essayer d'extraire tous ces hydrures.

Après le traitement d'extraction, on obtient l'équivalent d'une image seuillée : les particules extraites (hydrures et parfois taches) apparaissent en noir sur un fond blanc. On a ensuite traité ces images avec le logiciel Image J pour réaliser les opérations suivantes : dilatation, érosion, squeletisation.

Puis, l'analyse des particules a été effectuée avec le logiciel Image J, en sélectionnant toutes les particules de taille supérieure à 25 pixels. Les résultats de cette analyse ont ensuite été traités de manière identique aux données obtenues avec la méthode 1.

*Résultats obtenus et comparaison des deux méthodes*

Voici les images obtenues, après le traitement d'extraction et avant les opérations de dilatation, érosion et squelettisation (on ne présente pas les images après ces étapes, car à cette échelle, les hydrures ne seraient presque pas visibles). On peut ainsi comparer les orientations dominantes des hydrures pour les deux teneurs étudiées. Les images initiales sont en Annexe 6.



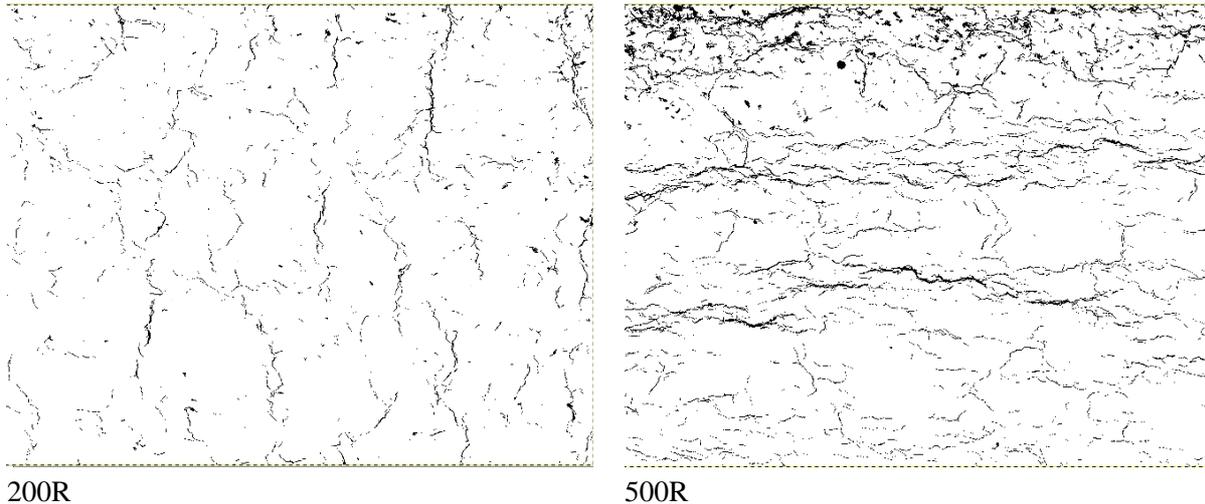


Figure 22 : Images utilisées pour l'analyse des particules et la détermination de la proportion de longueurs d'hydrures radiaux, après extraction des hydrures et avant la seconde phase de traitement avec Ij. A gauche, éprouvettes hydrurées à 200 ppm, à droite, celles à 500 ppm. Le repère est le même pour tous les échantillons. Ces images correspondent à des zones de 400 x 300  $\mu\text{m}$  environ.

Les résultats de l'analyse des particules donne les résultats suivants en terme de proportion de longueurs d'hydrures radiaux :

Configuration	200C	200M	200R	500C	500M	500R
Proportion d'hydrures radiaux en terme de longueur (%) METHODE 1	2,8	18,3	64,2	1,2	9,8	12,3
Proportion d'hydrures radiaux en terme de longueur (%) METHODE 2	3,3	16,3	66,5	7,3	10,8	14,53

Les résultats obtenus sont donc très proches, sauf pour le 500C. Ceci est peut être expliqué par la morphologie des hydrures dans ce cas : les petits hydrures sont très nombreux et il sont souvent en « zig-zag » : leur orientation individuelle peut donc être proche de 45° par rapport à la direction circonférentielle. Dans ce cas, ils sont considérés comme des hydrures radiaux d'après la définition de notre critère de radialité. Or l'orientation générale de l'ensemble de ces petits hydrures serait circonférentielle. La différence avec la méthode 1 s'expliquerait par le fait que ces petits hydrures étant assez clairs (niveau de gris proche de celui de la matrice), ils n'auraient pas été pris en compte lors du seuillage.

Les résultats de l'analyse en terme de quantité de particules identifiées et de fraction surfacique (ration de pixels noirs sur pixels blancs) à l'issue de l'utilisation du programme pour extraire les hydrures, et ensuite à l'issue du traitement réalisé avec Image J sont présentés dans le tableau suivant. Ces deux analyses de particules ont été réalisées avec Image J.

	<i>Après extraction</i>		<i>Après traitement avec Image J (dilatation, érosion, squeletisation)</i>	
	<i>Nombre total de particules</i>	<i>Fraction surfacique (% de pixels noirs »)</i>	<i>Nombre total de particules</i>	<i>Fraction surfacique (% de pixels noirs »)</i>
<b>200C</b>	659	2,1	532	0,5
<b>200M</b>	1002	2,6	771	0,5
<b>200R</b>	950	1,9	665	0,5
<b>500C</b>	1792	5,2	1372	1,6
<b>500M</b>	1580	5,4	1174	1,6
<b>500R</b>	1698	5,8	1259	1,8

Ces données obtenues avec cette méthode 2 peuvent également être représentées de manière graphique.

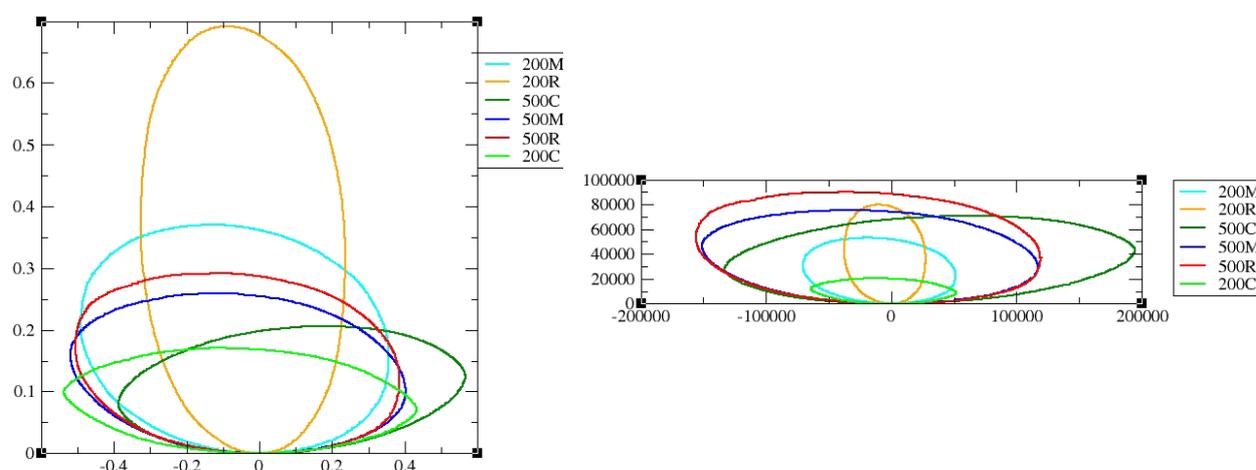


Figure 23 : Diagrammes d'orientation moyenne des six configurations étudiées. A gauche : pour pouvoir comparer et superposer les diagrammes dans un même repère orthonormé, la longueur des particules est normée par la longueur totale. A droite : représentation sans normalisation par la longueur totale au préalable.

Dans les images de la Figure 22, on remarque que pour les configurations comportant une partie d'hydrures radiaux (200M, 500M, 500R), il existe de petites zones dépourvues d'hydrures réorientés. Pour estimer quel est le VER approximatif sur lequel la répartition des hydrures est significative, on a réitéré l'analyse d'images sur de plus petites zones extraites de ces images. Les résultats sont résumés dans le tableau ci-dessous.

<i>Image</i>	<i>Taille du domaine (pixels)</i>	<i>Positionnement dans l'image</i>	<i>Nombre de particules</i>	<i>Proportion de longueurs d'hydrures radiaux</i>
<b>200M</b>	4000 x 3162	Image entière	771	16,3
<b>200M</b>	2000 x 1581 (1/4)	Bas gauche	152	15,4
<b>200M</b>	2000 x 1581 (1/4)	Milieu droit	167	16,1
<b>200M</b>	1636 x 1513	Milieu droit	130	7,8
<b>500R</b>	4000 x 3162	Image entière	1259	14,5
<b>500R</b>	1998 x 1578 (1/4)	Bas gauche	258	11,1
<b>500R</b>	1674 x 1517 (<1/4)	Bas milieu	239	8,1

D'après nos résultats, les zones quatre fois plus petites (environ 200 x 150  $\mu\text{m}$ ) que les zones analysées sont encore représentatives dans le cas du 200M, mais moins dans celui du 500R. Les zones de taille inférieure à un quart de la surface initiale (environ 150 x 150  $\mu\text{m}$ ) peuvent ne plus être représentatives de la distribution d'hydrures. En effet, de par la morphologie des hydrures (leur longueur) et leur distribution (les hydrures sont espacés entre eux d'une certaine distance), leur répartition sur une zone petite par rapport à ces longueurs ou distances caractéristiques n'est pas homogène par rapport au reste de l'échantillon.

*En conclusion, non seulement l'observation des hydrures est conditionnée par l'échelle et le mode d'observation choisis, mais aussi les informations quantitatives fournies lors de l'analyse d'images sont très dépendantes du traitement préalable. C'est pourquoi les données issues de cette analyse n'ont pas de signification intrinsèque, mais peuvent seulement être utilisées à des fins de comparaison quantitative. Les graphes obtenus et les résultats quantitatifs sont cohérents : alors qu'à 200 ppm, le procédé de réorientation a été efficace et a en effet permis d'obtenir des distributions d'orientation des hydrures différentes, la quantité d'hydrures réorientés croissant avec la contrainte appliquée ; à 500 ppm, peu d'hydrures ont été réorientés. Cela s'explique par le fait qu'à la température à laquelle le traitement est réalisé, 400 °C, environ 200 ppm sont en solution solide. Donc, on peut émettre l'hypothèse que seulement cette quantité d'hydrures peut se réorienter, ce qui correspond à 40 % de la quantité totale. Mais, on constate que la quantité d'hydrures réellement réorientés est plus faible dans le cas 500R que 200R. Ceci n'est pas encore expliqué. Peut-être aurait-il été nécessaire de réitérer le procédé de réorientation, afin de réorienter à chaque fois une petite quantité d'hydrures. Ou bien il aurait fallu le réaliser à une température supérieure, mais la microstructure aurait pu être modifiée.*

*Quoiqu'il en soit, nous avons établi pour chaque configuration que nous devons caractériser d'un point de vue « mécanique » en terme de modes de déformation, d'endommagement et de rupture, un paramètre, issu de l'analyse d'images, et qui sera utilisé pour interpréter les essais réalisés et dans l'approche de modélisation proposée dans le dernier chapitre.*

## CHAPITRE 2 : RESUME

*Ce chapitre nous a permis de présenter le matériau de l'étude ainsi que les techniques utilisées pour le caractériser. Il s'agit donc de tubes de gainage en Zircaloy-4 détendu, dans leur finition industrielle, fournis et hydrurés par CEZUS, ayant subi un traitement de réorientation des hydrures au CEA Saclay.*

*Pour chacune des teneurs en hydrogène, 200 et 500 ppm environ, le traitement de réorientation a été réalisé de façon à obtenir trois orientations majoritaires d'hydrures différentes :*

- *circonférentielle (orientation « naturelle » ne nécessitant pas de réorientation) : « 200C » et « 500C » ;*
- *mixte « 200M » et « 500M » ;*
- *radiale « 200R » et « 500R ».*

*La comparaison de l'effet de différentes orientations d'hydrures pour une même teneur constitue l'originalité de la thèse, puisque beaucoup de travaux précédents se sont principalement intéressés à l'influence de la teneur en hydrogène.*

*Les outils d'analyse d'images mettent en évidence que pour la teneur la plus élevée, le traitement de réorientation n'a pas permis de réorienter complètement tous les hydrures. Cela devra être pris en compte dans l'interprétation des résultats mécaniques présentés au chapitre 4.*

*Concernant la morphologie des hydrures, des observations ont été réalisées sur les plans transversaux et sur des coupes longitudinales d'anneaux. L'évaluation précise des longueurs des hydrures est délicate à réaliser. A partir des images MEB, on peut cependant affirmer que, à 200 ppm, les hydrures circonférentiels sont plus longs ( $> 100 \mu\text{m}$ ) que les hydrures radiaux ( $\approx 50 \mu\text{m}$ ), dans le plan transversal. Les hydrures circonférentiels sont rassemblés en clusters de 10 à 20  $\mu\text{m}$  d'épaisseur, constitués de 2 ou 3 hydrures juxtaposés. Chaque cluster est distant du suivant d'environ 50  $\mu\text{m}$  dans la direction radiale. Dans la coupe longitudinale, les hydrures – circonférentiels, car ce sont principalement eux qui sont interceptés par ce plan de coupe – apparaissent plus rectilignes que dans le plan transversal. Qu'ils soient circonférentiels ou radiaux, à 200 ou 500 ppm, les hydrures sont des précipités dont les limites physiques sont difficiles à définir, à cause de leur morphologie fibrillaire. De plus, nos outils d'observation ne nous permettent de les observer en 2D seulement, alors que ce sont des plaquettes en 3D, qui mériteraient une caractérisation dans un tel espace. Une observation avec un MEB FIB (Focused Ion Beam) a cependant pu être réalisée sur une éprouvette pour illustrer la morphologie de plaquette des hydrures.*

*Toutefois, à partir d'images planes, réalisées au MEB en électrons-rétro-diffusés, une méthodologie a été établie pour caractériser chacune des configurations en termes de longueur et d'orientations.*





---

CHAPITRE 3 :  
TECHNIQUES EXPERIMENTALES  
(SUIVI DE MARQUEURS, CORRELATION D'IMAGES),  
DEROULEMENT DES ESSAIS MACROSCOPIQUES ET IN-SITU,  
EVALUATION DES INCERTITUDES SUR LES MESURES OPTIQUES

---

Ce chapitre est consacré à la description des techniques expérimentales utilisées, dont le choix fut conditionné à la fois par les objectifs à atteindre et par la géométrie de l'éprouvette. La température de réalisation des essais, 20°C, n'imposa pas de contraintes particulières. Des essais à 150°C, prévus initialement, n'ont pas été réalisés pour des raisons explicitées au cours de ce chapitre.

Les tubes de gainage, objets de l'application de cette étude, sont principalement soumis, en conditions normales de fonctionnement ou lors de l'aval du cycle, à une sollicitation due à une différence de pression entre l'intérieur et l'extérieur de la gaine, ou à une déformation provenant de la pastille (phénomène d'interaction pastille-gaine) : la contrainte circonférentielle est donc prépondérante. C'est pourquoi on a choisi de réaliser des essais de traction sur anneaux, avec un montage adapté, par rapport à celui déjà utilisé au CEA. Quant aux objectifs initiaux, il s'agissait d'étudier le mode d'endommagement des hydrures et de déterminer si les hydrures avaient une influence sur les champs de déformation locaux. L'échelle pertinente étant celle des hydrures et de la microstructure, nous avons donc réalisé des essais in-situ sous MEB. Pour répondre au besoin de quantification des champs de déformation à cette échelle d'observation (du  $\mu\text{m}$  à la centaine de  $\mu\text{m}$ ), c'est la technique de micro-électrolithographie associée à celle de corrélation d'images numériques qui est la plus adaptée. Cette dernière, la corrélation d'images, a aussi été employée pour caractériser les modes de déformation à une échelle plus macroscopique. Quant à la réponse globale du matériau dans ses différentes configurations (teneur et orientation d'hydrures), c'est par la technique de suivi de marqueurs, dérivée de la précédente, qu'elle a été obtenue.

*Remarque :*

Le terme d'essai « macroscopique » employé dans ce chapitre désigne des essais de traction réalisés sur des machines d'essai de traction « classiques » par opposition aux essais in-situ sous MEB.

### 3.1 PRESENTATION DE L'ESSAI DE TRACTION SUR ANNEAU

#### 3.1.1 GEOMETRIE DE L'ÉPROUVETTE ET MONTAGE

Les essais de traction sur anneau sont généralement effectués sur des anneaux prélevés dans des tubes de gainage, et dans lesquels une zone utile est usinée. Les dimensions des anneaux, des entailles et le type de montage employé sont variables. Au CEA, les anneaux classiques mesurent 5 mm dans le sens axial, les dimensions du diamètre sont celles des tubes de gainage. La présence de zones utiles (Figure 2, droite) permet de calculer des déformations conventionnelles, bien que la localisation de la déformation se produise aussi avec ce type d'éprouvettes (Figure 1). Les données des essais sont exploitées de façon à s'affranchir de la contrainte géométrique et à accéder au comportement du matériau.



Figure 1 : Eprouvette de type anneau avec zone utile présentant néanmoins une localisation de la déformation.

Pour cette étude, les anneaux utilisés sont lisses, sans zone utile (Figure 2, gauche) contrairement à ce qui est habituellement réalisé, afin de faciliter l'observation de ces éprouvettes lors des essais in-situ sous MEB, puisque cette face est normale au plan des plaquettes. En effet, c'est sur la face plane des anneaux que les hydrures, quelle que soit leur orientation, sont les plus visibles. Les éprouvettes utilisées sont donc des anneaux prélevés dans des tubes de gainage de finition industrielle, de longueur axiale 5 mm, d'épaisseur 0,57 mm et de diamètre externe 9,5 mm (Figure 2).

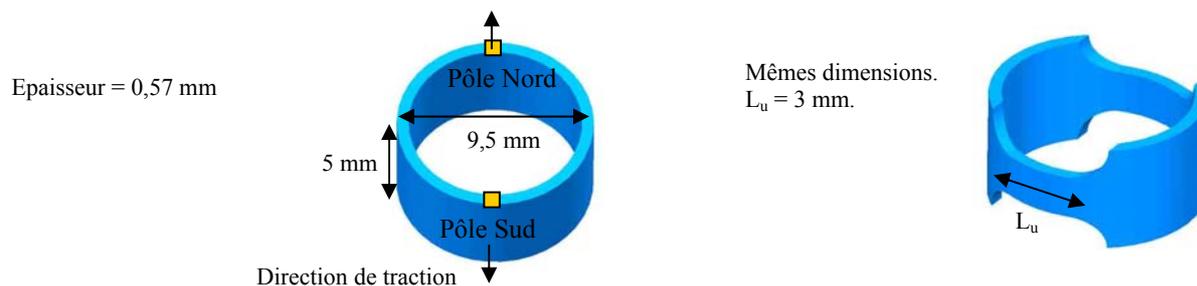


Figure 2 : Schéma d'une éprouvette de type anneau lisse utilisée pour les essais mécaniques de cette étude, et d'une éprouvette avec zone utile utilisée au CEA.

Ces éprouvettes sont placées sur un montage (Figure 3), constitué de deux parties parallélépipédiques, symétriques, solidaires par des goupilles. Sur chacune de ces parties est usiné un demi-cylindre. Lorsque les deux parties sont rapprochées, ces deux demi-cylindres (« double-D insert ») forment un cylindre et sont en contact avec la face interne de l'anneau placé autour d'eux. Au cours de l'essai, ils s'écartent progressivement, exerçant principalement une contrainte circonférentielle sur l'anneau. Le

montage est tel que les plans de symétrie de l'anneau et du montage sont confondus et, le jeu est minimisé pour limiter la flexion [Arsène 1997] auquel l'anneau est soumis en début d'essai. Le diamètre interne moyen des tubes de gainage étant de 8,35 mm et le cylindre usiné sur le montage mesurant 8,28 mm de diamètre, on peut évaluer le jeu à 70  $\mu\text{m}$ .



Figure 3 : Représentation du montage utilisé pour les essais de traction (l'anneau positionné sur le montage a été déformé). Les mors utilisés avec cette machine sont autobloquants.

### 3.1.2 CONDITIONS EXPERIMENTALES

Le montage est fabriqué dans un matériau non magnétique, l'Inconel 718, pour pouvoir être employé dans le MEB. Les essais sont réalisés à température ambiante, sans lubrifiant, sur différentes machines.

Pour les essais macroscopiques qui ont permis d'obtenir la réponse globale du matériau dans ses différentes configurations, une machine MTS servohydraulique, de capacité 50 kN a été employée. Ceux destinés à l'étude des champs de déformation globaux ont été réalisés sur une machine électromécanique INSTRON, de capacité 100 kN, mais avec une cellule de force de 5 kN pour la majorité des essais. Pour ces deux catégories, la vitesse de déplacement de traverse imposée est de 1  $\mu\text{m/s}$ .

La machine de traction utilisée pour les essais in-situ sous MEB a une capacité de 5 kN et est pilotée en vitesse de déplacement de 2  $\mu\text{m/s}$ . Cette vitesse, plus élevée que celle des essais macroscopiques, compense en partie la différence de souplesse entre la machine in-situ et les machines macroscopiques utilisées. D'autre part, l'écart entre ces deux vitesses n'est pas suffisant pour entraîner des variations de comportement. A la fin des essais, lorsque la rupture se propage, la vitesse a parfois été ralentie pour permettre une meilleure observation. Le capteur de force est de type résistif. Il est possible de faire pivoter l'échantillon sous charge autour de l'axe de traction.

Initialement, il était prévu de réaliser des essais à 150°C, autre température retenue pour les essais effectués dans le cadre du programme PRECCI. Concernant les essais in-situ, un système de chauffage par contact existe et aurait pu être utilisé si des éprouvettes plates avaient été disponibles. Mais, pour des anneaux, ce mode de chauffage n'aurait pas permis une répartition homogène de la température. Pour les essais macroscopiques, il aurait été difficile de faire des essais en température et d'acquérir des images simultanément. C'est pour cela que les essais ont été réalisés seulement à température ambiante.

### 3.1.3 CARACTERISTIQUES MACROSCOPIQUES DE LA REPONSE DES ECHANTILLONS

Lors des essais présentés plus en détail dans la suite du chapitre, les paramètres mesurés sont la force appliquée et l'allongement de l'éprouvette anneau. Afin de comparer les essais entre eux, les données mesurées sont normalisées par la géométrie des éprouvettes. La réponse mécanique globale des anneaux est donc présentée en terme de force normalisée par la section en fonction soit du déplacement de traverse (essais in-situ sous MEB), soit en fonction de l'allongement normalisé par le diamètre extérieur – déformation conventionnelle – (essais macroscopiques avec suivi de marqueurs). Les courbes « Ingénieur » Contrainte conventionnelle – Déformation conventionnelle des essais macroscopiques sont ainsi comparables entre elles.

En revanche, entre les essais macro et ceux in-situ, on ne compare que les niveaux de sollicitation atteints, car d'une part, on n'a pas accès à la déformation conventionnelle de l'éprouvette au cours de l'essai in-situ, et d'autre part, la machine d'essai in-situ étant beaucoup moins rigide que les machines « conventionnelles », les réponses globales en terme de Contrainte – Déplacement de traverse ne sont pas superposables. De plus, les contraintes intrinsèques aux essais in-situ (interruption des essais pour acquérir des images de haute résolution) ne permettent pas de réaliser des essais mécaniques aussi « propres » que ne le sont les essais macroscopiques.

## 3.2 DESCRIPTION DES TECHNIQUES EXPERIMENTALES EMPLOYEES

### 3.2.1 TECHNIQUE DE SUIVI DE MARQUEURS : DETERMINATION DE LA REPONSE GLOBALE

Pour obtenir la réponse globale du matériau soumis aux essais de traction, différents moyens ont été envisagés. Les jauges de déformation ne nous ont pas donné de résultats satisfaisants. En effet, les informations fournies par la jauge sont limitées à l'aire sur laquelle celle-ci est collée et les jauges disponibles n'avaient pas l'amplitude de déformation nécessaire pour suivre entièrement les déformations des éprouvettes étudiées.

Un extensomètre à couteaux de base de mesure 14 mm, utilisé pour un essai in-situ, ne convenait pas non plus : sa fixation, avec des élastiques était délicate et il pouvait bouger en cours d'essai. De plus, l'extensomètre était fixé sur le montage et non sur l'éprouvette, cela ne nous permettait pas d'accéder à la réponse de l'anneau (jeu potentiel entre anneau et montage, déformation du montage).

Une autre solution a été employée pour la plupart des essais macroscopiques, qui consiste à acquérir les données sur le déplacement de traverse de la machine de traction, grâce à un comparateur positionné sur celle-ci (Figure 13 Droite). Cette solution présente elle aussi des inconvénients : elle ne nous permet pas de connaître la réponse de l'anneau et est très dépendante de la précision avec laquelle le comparateur est positionné sur la traverse (notamment de sa perpendicularité par rapport à la traverse) et de son étalonnage. De plus, ce système ne permet pas d'éliminer la déformation du montage. Des incohérences dans les données sur le déplacement de traverse ont été relevées plusieurs fois. Il faut donc utiliser d'autres moyens.

#### Principe

Grâce à des essais préliminaires réalisés avec suivi optique par caméra CCD et grâce aux résultats issus de la modélisation de la réponse de l'anneau soumis à un essai de traction, on sait que la déformation dans l'anneau est fortement hétérogène, mais que les parties de l'anneau désignées par pôle nord et pôle sud (Figure 2), ne se déforment pas. Donc, la solution la plus simple pour obtenir des données sur la déformation globale de l'anneau consiste à suivre au cours de l'essai le déplacement de repères situés sur la surface plane dans ces deux zones. C'est ce que la corrélation d'images et en particulier le suivi de marqueurs, une des techniques qui en est dérivée, permettent de faire.

L'avantage de la technique de suivi de marqueurs est sa simplicité et sa rapidité de mise en œuvre. Elle consiste à déposer des couples de repères (des marqueurs) dans les zones d'intérêt, puis à acquérir des images par caméra CCD au cours du chargement (Figure 4). Le calcul des déplacements et des déformations est réalisé en temps réel. Le logiciel utilisé a été développé par Vincent De Greef (LMS) sous Labview. Les déformations conventionnelles sont calculées, par projection des marqueurs sur un axe horizontal ou vertical, et par le calcul du rapport de l'allongement sur la distance initiale en pixels entre les marqueurs.

Plusieurs couples de marqueurs ont été déposés (Figure 5). Mais, seul le couple « Nord-Sud » a pu être suivi pendant tous les essais sans difficulté et nous permettait d'accéder à la réponse de l'anneau. En effet, les autres couples de marqueurs n'étaient pas tous placés exactement au même endroit, car déposer de très fines marques sur de si petits échantillons requiert beaucoup de minutie. La base de mesure et donc les déformations fournies par ces marqueurs ne sont pas tous comparables. De plus, les marqueurs autres que le couple Nord-Sud se situent plus ou moins à la limite des zones où la déformation est localisée de celles ne se déformant pas. La comparaison, pour une configuration

donnée, des réponses obtenues pour les différents couples est cependant intéressante. Ces réponses peuvent aussi être comparées aux résultats donnés par l'extensomètre, placé sur le montage, dont les lames sont en butée contre des parties solidaires du montage, ce qui garantit la stabilité de la fixation (Figure 5 Droite). Cette comparaison peut être effectuée sous l'hypothèse que la déformation du montage est négligeable et après que les jeux entre l'anneau et les demi-cylindres ont été rattrapés.



Figure 4 : Photo du montage utilisé pour l'essai avec « Suivi de marqueurs ».

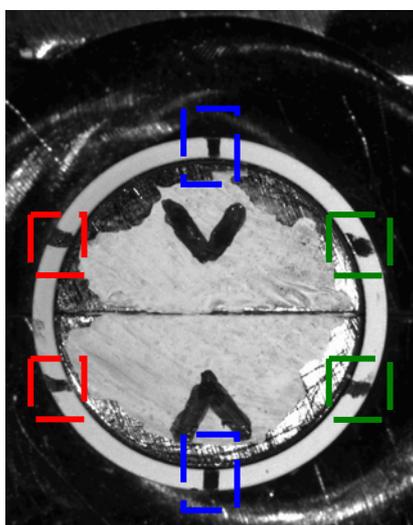


Figure 5 : A gauche : photo d'une éprouvette avec les 3 couples de marqueurs (le couple Nord-Sud, en bleu, utilisé pour accéder à la déformation conventionnelle, le couple Est, en rouge, et le couple Ouest, en vert). A droite : photo de l'extensomètre utilisé et positionné sur le montage (dépourvu d'anneau sur cette illustration).

Comme la déformation est calculée par le rapport entre l'allongement et la distance entre le centre des marqueurs, on recalcule cet allongement en le normalisant par rapport au diamètre extérieur de chaque éprouvette. Les courbes obtenues seront donc : force divisée par la section initiale en fonction de l'allongement rapporté au diamètre extérieur. Cette technique nous permet donc d'obtenir à l'issue de chaque essai une courbe « Ingénieur » de la contrainte conventionnelle (rapport de la force normalisée

par la section initiale :  $\sigma = \frac{F}{2 \cdot h \cdot e}$ , avec  $e$  l'épaisseur de l'anneau, environ 570  $\mu\text{m}$ , et  $h$  sa hauteur, environ 5 mm) en fonction de la déformation conventionnelle (rapport de l'allongement sur le diamètre extérieur). Ce sont ces courbes qui seront présentées pour caractériser la réponse mécanique de l'anneau. Ces courbes peuvent être comparées entre elles du fait de l'identité géométrique de tous les anneaux et peuvent donc être considérées comme caractéristiques du comportement du matériau.

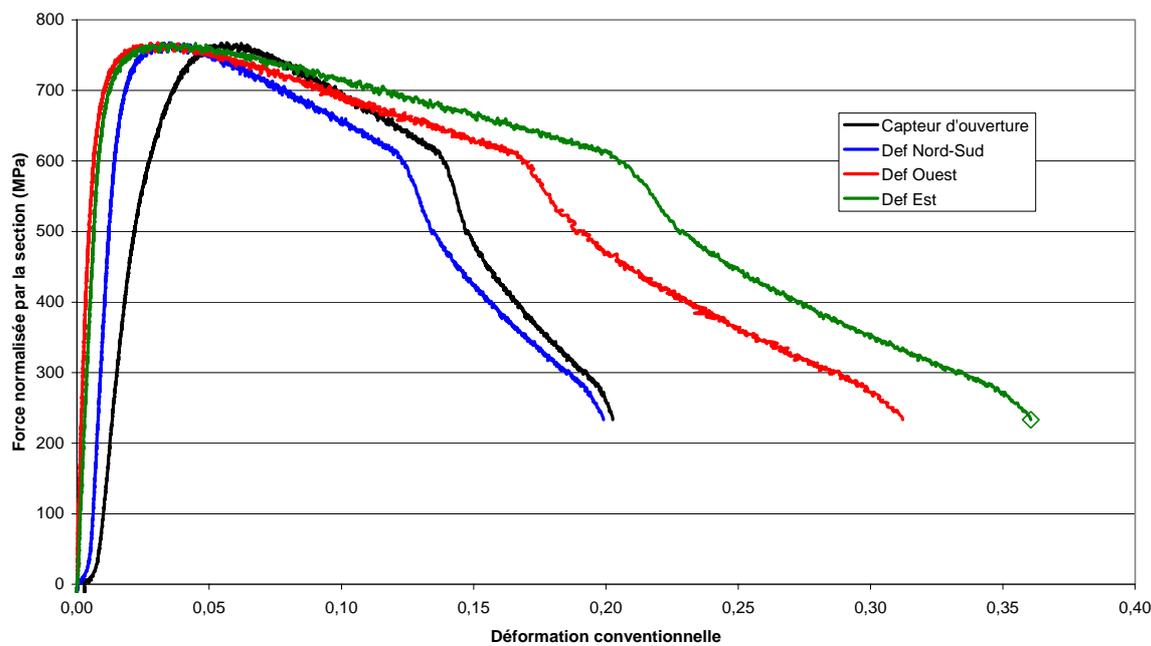


Figure 6 : Exemples de courbes conventionnelles obtenues avec : le capteur d'ouverture, les différents couples de marqueurs. La rupture est intervenue côté « Est ».

### Evaluation des incertitudes

L'incertitude sur la mesure des contraintes peut être évaluée par le bruit électronique visible sur les courbes. Pour ces essais, les courbes sont très lisses et le bruit est très faible.

Les incertitudes sur la mesure de la déformation ont plusieurs origines :

- le repérage des marqueurs dans l'image. Cette incertitude est du même ordre de grandeur que celle de la technique de corrélation d'images et sera détaillée à la fin du chapitre ;
- le calcul du ratio  $\Delta l/l_0$ , avec  $l_0$  distance entre marqueurs, utilisé pour se ramener à  $\Delta l/D_{\text{ext ini}}$ , suppose que la taille des pixels dans toutes les images est la même, alors qu'elle peut différer à cause de la variation du grandissement. Ceci sera aussi détaillé à la fin du chapitre.

### Préparation des Eprouvettes

Elle est la plus simple parmi toutes les préparations utilisées pour les autres essais et consistait à déposer des couples de repères – sur la surface plane uniquement – : un couple Nord-Sud, un couple Est et un autre Ouest. Pour les couples Est et Ouest, on disposait les repères en haut et en bas d'une zone utile fictive, dans laquelle la déformation était principalement concentrée. Ces marques étaient distantes d'environ 3,5 mm. Pour que le contraste soit suffisant et éviter les réflexions parasites, cette surface a été recouverte d'une fine couche de peinture blanche mate (encre acrylique) à l'aide d'un aérographe. Puis, une fois la surface sèche, on y a déposé des repères à l'aide d'un feutre noir, fin et indélébile.

### Matériel optique et acquisition des images

Pour des raisons de compatibilité avec le logiciel développé, on a choisi la caméra Basler, munie d'un CCD de 1030 x 1300 pixels, équipée d'un objectif Schneider-Kreuznach 4,5 / 90 mm, et de tubes d'extension de 6,5 + 8 + 10 + 25 + 75 mm, soit 124,5 mm d'allonge. Avec ce montage, la distance objet – extrémité du montage optique est de 200 mm environ. Les caractéristiques optiques de la caméra sont résumées dans le Tableau 1.

On vérifie que l'axe optique est normal au montage, en veillant à ce que les faces bombées ne soient pas visibles, on vérifie également l'horizontalité de la ligne entre les deux demi-cylindres.

Pour l'éclairage, on utilise deux fibres optiques que l'on centre sur la surface plane de l'anneau à observer. Le diaphragme est en position intermédiaire entre l'ouverture minimale et maximale, de façon à avoir un compromis satisfaisant entre la profondeur de champ et la luminosité.

L'acquisition des images s'effectuait sur un PC à une fréquence d'une image toutes les 10 secondes. Des « fenêtres » encadrant chaque repère, mesurant environ 80 x 80 pixels, sont définies avant le démarrage de l'essai. Ces fenêtres sont attachées au repère et se déplacent avec lui. Les « couples » de repère sont définis et on choisit le mode de calcul de la déformation. Pour nos essais, la déformation conventionnelle,  $\Delta l/l_0$  ( $l_0$  distance entre le centre des marqueurs) est calculée à partir de la projection des points sur un axe vertical, axe correspondant au sens de déplacement de traverse. Comme pour tous les essais « macroscopiques » effectués, la vitesse de déplacement était de 1  $\mu$ m/s. Au fur et à mesure de l'avancement de l'essai et de l'acquisition des images, on peut suivre en temps réel la courbe force – déformation de chacun des couples de marqueurs définis et de la comparer à celle de l'extensomètre.

## 3.2.2 TECHNIQUE DE CORRELATION D'IMAGES NUMERIQUES : DETERMINATION DES CHAMPS GLOBAUX ET LOCAUX

### Principe de la corrélation d'images numériques : détermination de champs de déplacements

La corrélation d'images numériques, sur laquelle la technique de suivi de marqueurs décrite précédemment s'appuie, est une technique de mesure optique, sans contact. Elle permet d'accéder aux champs de déplacements et de déformation d'une structure, et est adaptable à différentes échelles d'observation, y compris à une très fine échelle comme celle des hydrures.

Elle consiste à comparer différentes images numériques, l'une étant la configuration de référence, la (ou les) autres étant les configurations déformées de la structure observée. Plus précisément, le but est de retrouver dans les configurations déformées un petit domaine de pixels le plus semblable au

domaine défini initialement dans la configuration de référence. La ressemblance est évaluée à partir des niveaux de gris des pixels du domaine et est quantifiée par le coefficient de corrélation. Ce coefficient est un nombre compris entre 0 et 1 (dans la formulation retenue ici), dont le minimum permet de déterminer le petit domaine dans la configuration déformée homologue du petit domaine défini dans la configuration de référence et, qui caractérise la transformation matérielle liant les deux domaines (sous l'hypothèse de transport matériel de flot optique).

La transformation  $\phi$  caractérisant le mouvement du solide déformable observé [Doumalin 2000] est exprimée par :

$$\underline{x}_i = \phi(\underline{X}_i)$$

$\phi$  : transformation matérielle correspondant à la déformation du matériau ;

$X_i$  : coordonnées des pixels de l'image de référence ;

$x_i$  : coordonnées des pixels de l'image déformée.

Les images sont caractérisées par leur niveau de gris en tout point, donné par les fonctions  $f(\underline{X}_i)$ ,  $g(\underline{x}_i)$ , respectivement niveau de gris dans l'image de référence et dans l'image déformée.

Comme la transformation  $\phi$  est inconnue, on recherche une approximation  $\phi_0$  de  $\phi$  qui minimise le coefficient de corrélation.  $\phi$  est approchée en supposant que la transformation est soit une translation pure, soit une translation combinée avec une rotation et une déformation homogène dont le gradient est égal au gradient macroscopique. En effet, le coefficient de corrélation est minimum lorsque l'estimation de la transformation réelle est la meilleure. L'expression « statistique » utilisée dans Correlmanuv pour calculer ce coefficient est insensible aux variations *globales* de luminosité et de brillance sur le domaine de corrélation entre les deux configurations. Seul le contraste *local* doit être conservé. L'expression du coefficient de corrélation retenue par [Doumalin 2000] est :

$$C = 1 - \frac{\sum_{i \in D} (f(\underline{X}_i) - \overline{f_D}) \cdot (g(\underline{x}_i) - \overline{g_D})}{\sqrt{\sum_{i \in D} (f(\underline{X}_i) - \overline{f_D})^2} \cdot \sqrt{\sum_{i \in D} (g(\underline{x}_i) - \overline{g_D})^2}}$$

avec :

- $\underline{X}_i, \underline{x}_i$  les coordonnées des pixels dans les images de référence et déformée
- $f(\underline{X}_i), g(\underline{x}_i)$  les niveaux de gris dans les images de référence et déformée
- $D$  le domaine de corrélation
- $\overline{f_D}, \overline{g_D}$  les moyennes des niveaux de gris sur  $D$ .

La minimisation du coefficient de corrélation peut être résolue au pixel près ou pour une fraction de pixel (dans ce dernier cas, on parle de corrélation « subpixel »). On obtient ainsi la valeur des composantes planes du déplacement pour chaque point de mesure défini initialement.

Une fois que les domaines homologues sont appariés, la position de leurs centres respectifs est connue (coordonnées en pixels), les champs de déplacement peuvent être calculés.

### Marquage des surfaces

Pour que l'appariement des domaines homologues puisse être réalisé, il faut que la surface offre un contraste naturel suffisant. Sinon, il faut en créer un, par exemple en déposant des micro-grilles par micro-électrolithographie (Figure 7) ou un mouchetis. La nature du contraste dépend du moyen de formation des images : ainsi, pour un essai in-situ sous MEB, le marquage doit présenter un contraste chimique avec la microstructure ; pour un suivi optique, un mouchetis (mélange de peinture noire et blanche – mates, pour éviter toute réflexion de l'éclairage sur la surface métallique brillante –) suffit. La taille caractéristique des éléments constitutifs du marquage (pas de grille ou diamètre des tailles du mouchetis) doit être définie en fonction de ce que l'on souhaite mesurer, par exemple en fonction des dimensions caractéristiques de la microstructure si on s'intéresse à la distribution des champs locaux à cette échelle.

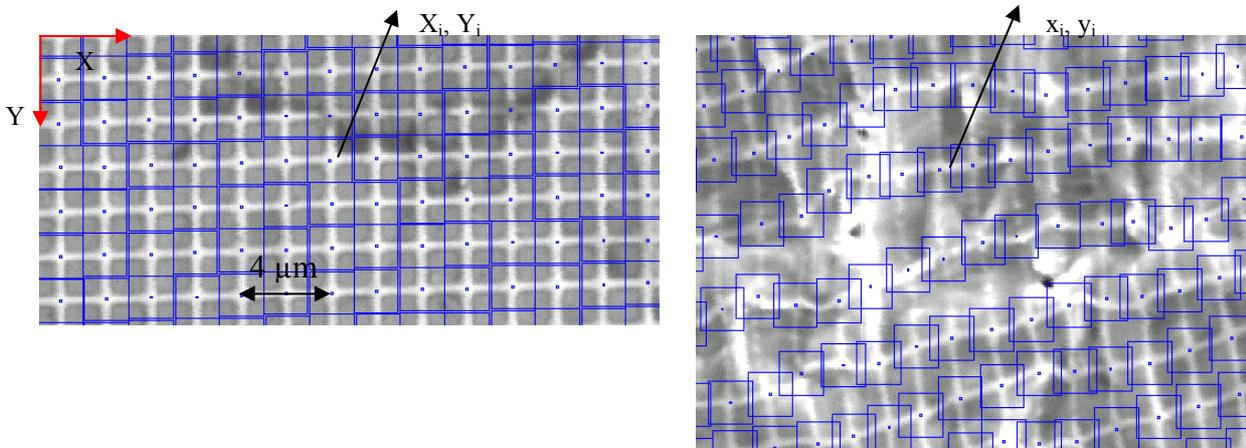


Figure 7 : Images de micro-grilles à l'état de référence, non-déformé (gauche) et dans un état déformé (droite). Exemples de coordonnées d'un couple de points homologues.

### Calcul des déformations

Les composantes du champ de déplacement sont calculées à partir des coordonnées des points de référence et des points homologues.

A partir de la mesure du champ local de déplacement, les déformations locales sont déterminées. La déformation en un point est calculée à partir de la moyenne du gradient de transformation sur un petit voisinage délimité par la position des intersections de grille voisines. Elle est calculée par une intégrale de contour, sous une hypothèse de linéarité du déplacement entre deux points de mesure.

Quatre schémas d'intégration peuvent être utilisés pour ce calcul. Selon le choix de ce schéma et donc la taille du contour, on privilégie soit la localité soit la précision du résultat et les valeurs obtenues peuvent légèrement varier (Figure 8). Les mesures sont effectuées dans le plan de l'image numérique.

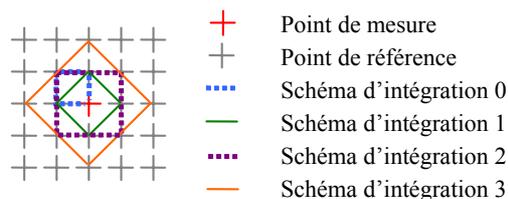


Figure 8 : Schémas d'intégration

La déformation moyenne sur une zone est calculée à l'aide de l'intégrale de contour sur tout le domaine analysé. On peut définir plusieurs phases dans la zone étudiée, c'est-à-dire des ensembles de points, et accéder ensuite aux déformations moyennes de chacune de ces phases.

Pour résumer, quatre étapes sont nécessaires pour appliquer cette technique d'investigation, à la fois quantitative et qualitative.

1. l'acquisition d'images, à partir d'un MEB ou de caméras CCD par exemple, de surfaces qui offrent un contraste suffisant, naturel ou non, à différents niveaux de déformation ; ce contraste doit accompagner le mouvement matériel ;
2. la définition de points de repère dans la configuration de référence ;
3. l'appariement des points homologues dans la (ou les configurations) déformées ;
4. la détermination du champ de déplacement et le calcul numérique des déformations dans le plan de l'image.

Les étapes 2 à 4 ont été réalisées avec le logiciel Correlmanuv développé par Michel Bornert et Pascal Doumalin au LMS.

#### Etape 1

L'acquisition des images dépend du mode d'imagerie employée (caméras optiques ou MEB) et sera détaillée par la suite. Remarquons cependant que concernant l'observation de la face bombée, les images acquises constituent une projection plane en 2D d'un objet en 3D.

#### Etape 2

La définition du quadrillage de référence consiste à sélectionner la zone d'analyse pertinente sur la configuration non-déformée, son nombre de lignes et son nombre de colonnes. Les coordonnées des points de référence sont alors générées automatiquement au pixel près. Dans le cas des essais in-situ, il est nécessaire de vérifier que ces points de référence sont bien centrés sur les intersections de grille. En effet, un décalage peut survenir et s'expliquer soit par une erreur de l'opérateur sur l'évaluation du nombre de lignes ou de colonnes, ou par un défaut dans le dépôt de grilles, ou bien dans l'acquisition d'images (décalage en x et en y).

Les caractéristiques du quadrillage de référence (espacement entre les points) sont liées en amont aux dimensions du marquage, avec lequel elles doivent être compatibles, en aval à l'échelle à laquelle on souhaite déterminer les champs locaux de déformation.

Ainsi, le domaine de corrélation doit comporter au moins une intersection de grille ou une tache, en fonction du type de marquage.

#### Etape 3

Une fois le quadrillage de référence défini, la recherche des points homologues peut être lancée et se dérouler automatiquement, point par point et ligne par ligne, au moins dans les premières étapes. Il est nécessaire de placer le premier point lors du passage d'une étape à l'autre.

#### Etape 4

Concernant le calcul numérique des déformations, les essais réalisés dans le cadre de cette thèse ont tous été dépouillés avec le schéma d'intégration 2 (Figure 8). La déformation au point de mesure est donc calculée à partir de la moyenne du gradient de transformation sur le voisinage délimité par la

position des intersections de grille des 8 premiers voisins. Ce schéma a été choisi car il est centré sur le point de mesure, donc symétrique et, il répond à un bon compromis précision / « localité » du résultat pour cette étude. Ainsi, pour les essais in-situ, le pas de la grille étant en général de 2  $\mu\text{m}$ , la base de mesure ou longueur de jauge est de 4  $\mu\text{m}$ .

De plus, la composante hors-plan (axe normal au plan de l'image) du tenseur de déformation peut être évaluée de différentes façons. Nous avons choisi l'hypothèse d'incompressibilité (déformation isochore), qui correspond le mieux à notre cas (peu d'endommagement).

Une fois les champs de déformation déterminés, il est possible de représenter les hétérogénéités de déformation éventuellement présentes dans le matériau étudié dans des *cartes de déformation*, et de superposer celles-ci à la microstructure. Sur ces cartes de déformation, est représentée en chaque point de mesure une croix, dont :

- la couleur (et éventuellement la taille) indiquent la valeur d'une composante de déformation locale ou sont liées à l'intensité de déformation équivalente de von Misès (qui caractérise la distorsion dans le plan d'observation) ;
- le grand axe – dans le cas de la représentation de la déformation équivalente de von Misès – indique la première direction propre de la déformation locale (associée à la valeur propre la plus grande en valeur algébrique).

---

## « ESSAIS MACROSCOPIQUES »

### Préparation des Eprouvettes

Chronologiquement, ces essais ont été effectués avant ceux utilisant la technique de suivi de marqueurs. On envisageait initialement de réaliser le mouchetis avec la méthode traditionnellement utilisée dans notre laboratoire, qui consiste à déposer une couche de peinture blanche par exemple, à l'aide d'une bombe de peinture pour carrosserie automobile, puis de vaporiser de la peinture noire, avec le même type de peinture, afin d'obtenir de fines taches contrastant par rapport au support blanc uniforme. Cependant, cette méthode présente deux inconvénients majeurs :

- la taille et la dispersion des taches est difficilement contrôlable et reproductible, même en prenant soin de se mettre dans les mêmes conditions en terme de distance objet – bombe de peinture, car la façon dont on appuie sur le déclencheur, la propreté de la buse de la bombe ... sont eux difficilement maîtrisables ;
- le mouchetis obtenu est souvent trop grossier par rapport au gradient de déformation que l'on cherche à résoudre spatialement (Figure 10) ;
- la peinture ne tient pas sur la face bombée des éprouvettes lorsque celles-ci se déforment beaucoup et elle se décolle dans les zones où la déformation est localisée, rendant la corrélation d'images, et donc l'exploitation des essais en terme de connaissance des champs de déformation impossible à partir de ce moment. Dès que cette difficulté est apparue, d'autres solutions ont été recherchées. Il fallait trouver un moyen de déposer un contraste fin et durable sur la face bombée des anneaux, seule cette surface nous intéressant initialement.

Au CEA, de la poudre de ressuage, blanche et fine, contenue dans des bombes, est déposée directement sur des éprouvettes par vaporisation. L'inconvénient est que ce dépôt n'est pas permanent

et peut être enlevé par simple contact. Comme nos éprouvettes sont petites et qu'on les dispose manuellement sur le montage, cela ne convenait pas.

J'ai essayé d'utiliser de la poudre de toner (de photocopieuse) et de la déposer, sur une surface initialement recouverte de peinture blanche, à travers un tamis très fin. Les taches étaient très fines et cela donnait des résultats convenables sur éprouvettes plates. Mais, aucun essai n'a été réalisé et peut-être que le support, la peinture blanche, aurait craqué. De plus, en tombant sur les éprouvettes anneaux, la poudre laissait des traces à cause de la non-planéité de la surface : les taches n'étaient donc pas nettement définies, cela ne nous convenait pas non plus.

Une autre solution, finalement, était d'utiliser la méthode traditionnelle, en recherchant une peinture qui supporte mieux les déformations de son support. Ainsi une peinture avec la mention « spéciale pare-chocs » a été testée, mais sans succès. J'ai aussi tenté d'appliquer des peintures utilisées dans le modélisme, que l'on pouvait diluer et rendre très liquides, avec des petits vaporisateurs de parfum ... ou même avec des brosses à dents ... Heureusement, après ces multiples tentatives réellement infructueuses, quelque peu frustrantes, et fort peu scientifiques, la solution a été trouvée : l'utilisation d'un aérographe.

L'aérographe est un petit pistolet de peinture utilisé en modélisme. Il permet de dessiner sur de grandes surfaces et avec précision. Il doit être alimenté en air comprimé et en peinture. Si on choisit de relier l'aérographe à une bouteille d'air comprimé munie d'un manomètre, on peut régler la pression et choisir toujours la même valeur pour obtenir un résultat reproductible. Il nous permet de déposer d'abord une fine couche de peinture blanche, une encre acrylique très fine et très souple, et ensuite de projeter un mouchetis du même type de peinture mais noire. Cette peinture est soluble à l'eau, ce qui permet de nettoyer la surface et de recommencer si nécessaire. Le séchage est très rapide. La finesse du mouchetis dépend de la pression appliquée, du diamètre de la buse choisie (0,2 ou 0,4 mm), et de la durée d'appui sur le bouton-pressoir. A priori, l'ordre d'application des peintures en fonction de leur couleur n'a pas d'importance, mais il est préférable d'appliquer la peinture blanche d'abord, pour vérifier ainsi aisément que toute la surface est peinte. Cela est en effet nécessaire, car lors de l'essai, la surface est éclairée, et les surfaces non peintes réfléchiraient trop de lumière et apparaîtraient trop brillantes, ce qui perturberaient la corrélation d'images.

Comme l'aérographe permet de réaliser un mouchetis suffisamment fin (Figure 9), on a choisi d'en déposer aussi sur la surface plane de l'anneau.

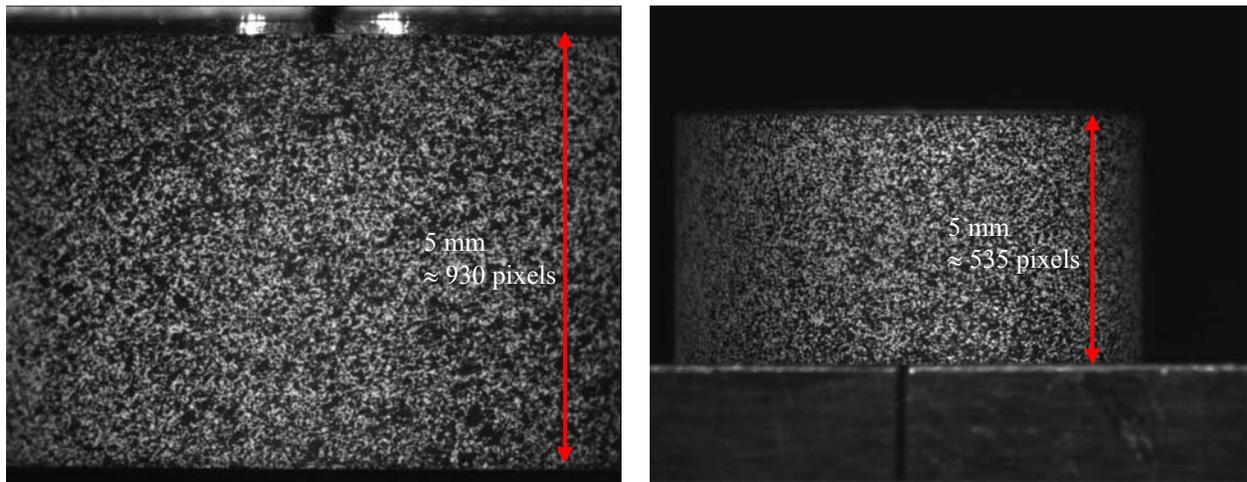


Figure 9 : A gauche, mouchetis réalisé avec un aérographe (buse de 0,2 mm), image acquise dans les conditions décrites Tableau 2, ligne 3. A droite, mouchetis réalisé avec un aérographe (buse de 0,4 mm), image acquise dans les conditions décrites Tableau 2, ligne 2.

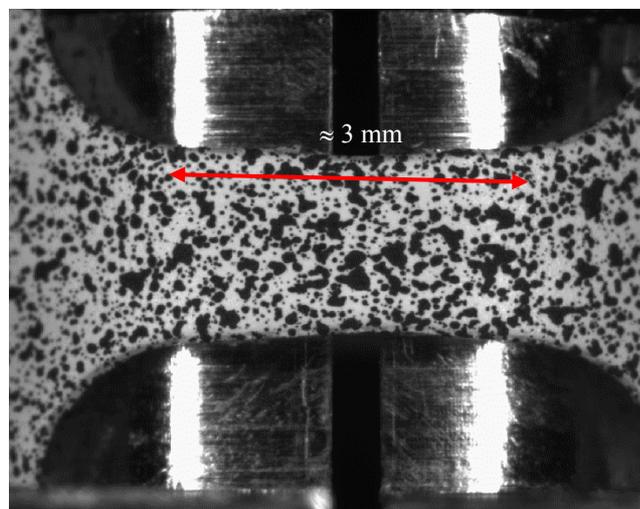


Figure 10 : Mouchetis réalisé avec une bombe de peinture pour carrosserie automobile (même grandissement qu'en Figure 9, image de gauche).

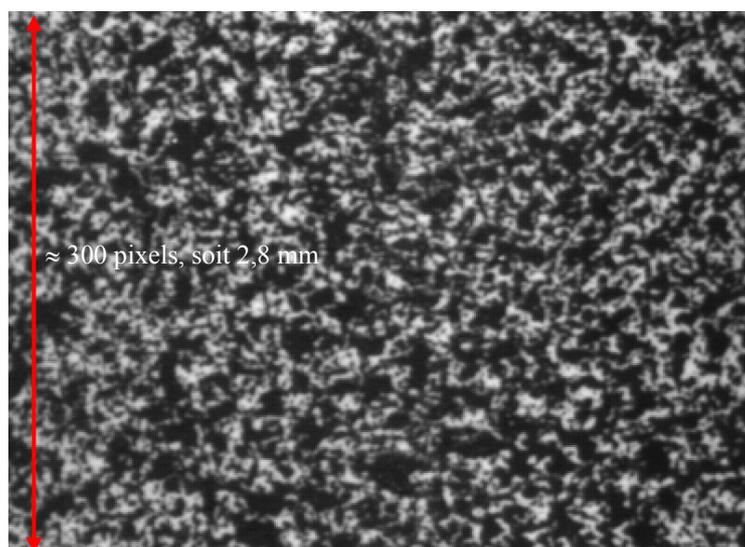


Figure 11 : Agrandissement de l'image de la Figure 9, image de droite.

Le mouchetis n'est pas constitué d'un ensemble de taches rondes ou de géométrie bien définie et l'évaluation de la taille des taches n'est pas évidente. Cependant, dans l'image de gauche de la Figure 9, les plus petites taches mesurent 4 pixels ( $22\ \mu\text{m}$ ), la majorité mesure 10 pixels ( $54\ \mu\text{m}$ ), les plus grosses 30 pixels ( $162\ \mu\text{m}$ ). Dans l'image de droite (ou celle de la Figure 11), la majorité des taches mesurent dans leur plus petite dimension environ 5 pixels, soit un peu moins de  $50\ \mu\text{m}$ .

#### Matériel optique et acquisition des images

Au cours de ces essais macroscopiques, on cherche à caractériser les champs globaux de déformation, à la fois sur la surface plane et sur la surface bombée. On doit donc utiliser deux caméras, l'axe de chacune d'elle étant normal à la surface à observer. Pour pouvoir positionner ces deux caméras, elles-mêmes placées sur des pieds assez encombrants, il a fallu insérer un montage (Figure 13) qui permette de disposer les mors à  $45^\circ$  par rapport au plan vertical de la machine. L'inconvénient est que ce montage intermédiaire a introduit des jeux supplémentaires et qu'il était nécessaire d'imposer une précharge assez importante (100 à 200 N) pour les rattraper.

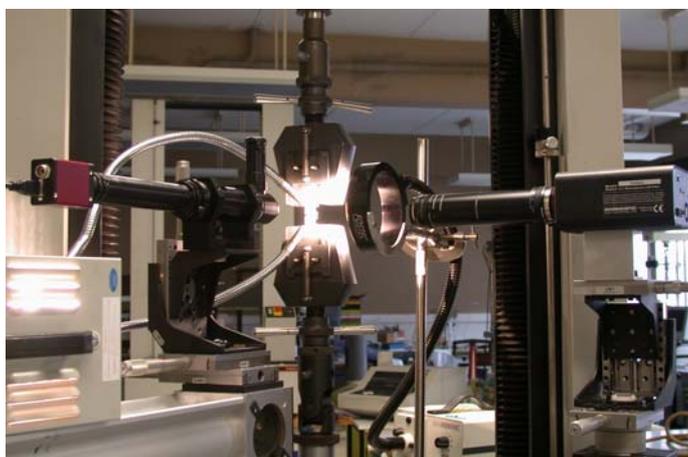


Figure 12 : Montage utilisé pour les essais macroscopiques visant à étudier les champs de déformation globaux sur la face bombée et sur la face lisse de l'anneau.

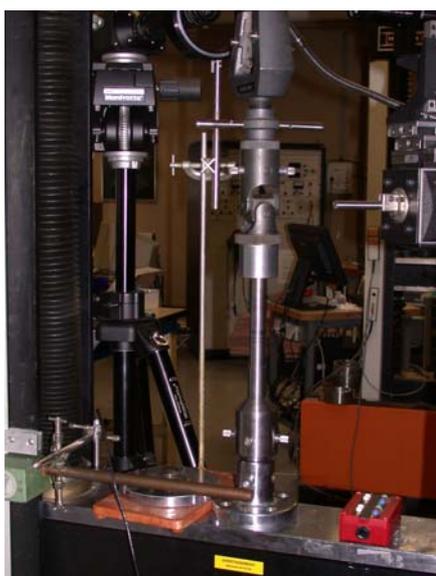


Figure 13 : A gauche : photo du montage utilisé pour que les mors soient dans un plan à  $45^\circ$  par rapport à celui de la machine. A droite : photo du dispositif (comparateur) utilisé pour avoir accès au déplacement de la traverse mobile de la machine de traction.

Le positionnement des caméras (Figure 14) était long et assez délicat. Tout d'abord, il fallait trouver la place nécessaire pour caler les 3 pieds de chacune d'elles. Pour les premiers essais, le pied de l'une des caméras n'était pas équipé d'une platine de déplacement en x (axe compris dans un plan horizontal) : on devait donc déplacer la caméra manuellement et adapter nos réglages. La normalité entre l'axe des caméras et la surface observée devait être bien respectée : on ne devait voir sur l'image que la surface bombée ou plane, et non les surfaces latérales du montage ou de l'anneau. Il fallait aussi veiller à l'horizontalité des caméras (au moyen de niveaux).

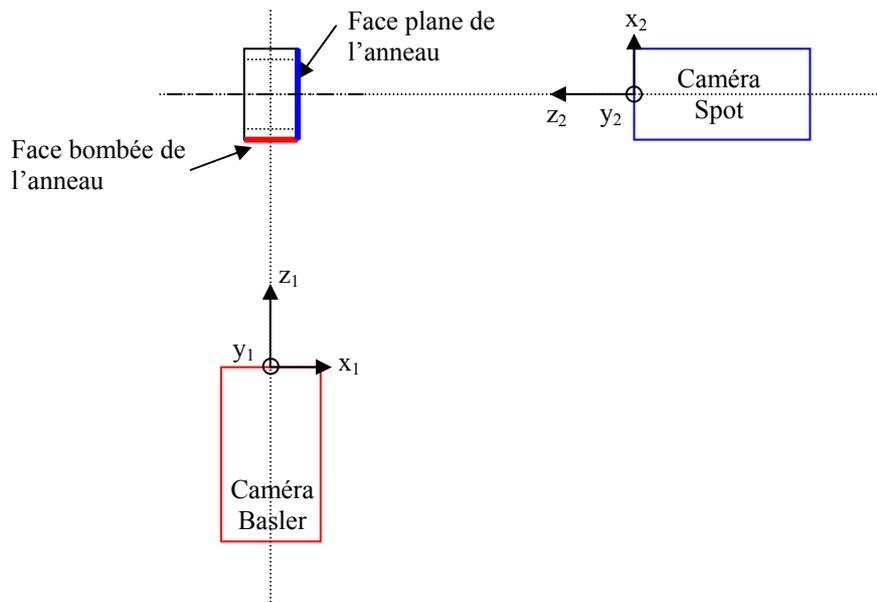


Figure 14 : Vue de dessus schématique du positionnement des 2 caméras par rapport à l'anneau.

Concernant la surface bombée, on ne pouvait pas faire une mise au point nette sur toute l'image à cause de la non planéité de la surface (variation de la profondeur de champ avec le grandissement). Les bords de l'image correspondant aux extrémités de la face bombée de l'anneau (pôles nord et sud) sont donc flous. On cherchait à résoudre au mieux l'image de la partie utile où la déformation allait se localiser, c'est-à-dire avoir le plus de pixels possibles dans cette zone. On faisait le cadrage initial de telle sorte que la zone utile reste dans le champ de la caméra tout au long de l'essai.

D'autre part, pour réaliser la mise au point sur la face bombée, on se plaçait sur une valeur de diaphragme intermédiaire entre le minimum, qui donne une image trop sombre et le maximum, qui donne une image sans profondeur de champ et où tous les contrastes sont écrasés. Ensuite, on modifiait la mise au point de façon à faire la netteté de l'image soit au centre, soit sur les bords. On notait à quelles valeurs ces deux mises au point correspondaient sur le vernier, et on se plaçait à la valeur intermédiaire. On vérifiait que la profondeur de champ était suffisante.

Il fallait aussi prévoir de combien allait se déplacer le mors, et dans quelle direction, afin d'anticiper ce mouvement et de maintenir la zone d'intérêt (la zone centrale) dans le champ de la caméra pendant tout l'essai. Comme tous les essais étaient réalisés sur des éprouvettes différentes, ayant leur propre comportement mécanique, ces réglages étaient intuitifs et approximatifs.

Concernant la face plane, il faut donc prévoir le déplacement de l'anneau vers le bas de l'image (sens de déplacement de la traverse mobile), lorsque l'on procède au cadrage. Avec l'objectif et les allonges utilisés, le cadrage était assez large pour visualiser l'anneau en entier du début à la fin de l'essai. Des problèmes sont cependant survenus au cours des premiers essais.

En effet, un mouvement, autre que le mouvement vertical de l'objet, n'avait pas été prévu : à cause d'une part, du montage intermédiaire utilisé pour orienter les mors à 45° et d'autre part d'un centrage approximatif du montage dans les mors, l'alignement de l'échantillon par rapport à l'axe de traction de la machine se fait progressivement au début de la mise en charge et engendre un mouvement horizontal de l'objet. En effet, au cours des premiers essais réalisés avec les deux caméras, on a constaté que pendant l'essai, la face plane sortait du champ (donc les images étaient moins intéressantes car on ne voyait plus l'anneau en entier), et ce mouvement s'accompagnait bien sûr d'une dégradation nette de la mise au point sur la face bombée et une variation importante de grandissement. Pour éviter cela lors des essais suivants, on surveillait le mouvement des images de la surface plane en prenant un repère, et lorsque l'image se décalait par rapport à ce repère, on rattrapait le mouvement sur les deux caméras, en déplaçant les butées micrométriques de la même quantité. Pour placer un repère sur les images, on utilisait tout simplement le curseur de la souris, que l'on positionnait sur une extrémité de l'anneau au début de l'acquisition des images. Lorsque l'on voyait qu'il y avait un décalage, on le rattrapait comme décrit précédemment. Ce décalage est d'environ 150 µm. Afin d'évaluer les incertitudes commises, une procédure est à réaliser en début d'essai, elle sera décrite dans la troisième partie.

Pour améliorer la précision de la mesure de déformation, on veille lors de l'acquisition des images, à ce que les vibrations environnantes pouvant perturber le signal acquis par les caméras, soient les plus faibles possibles. Ces vibrations peuvent être dues :

- à la machine d'essai elle-même,
- au porte-à-faux d'un pied supportant une des caméras,
- à celles retransmises par l'un des éclairages, dont l'alimentation était posée sur le pied, pour des raisons pratiques.

On cherche aussi à obtenir une résolution optimale avec les équipements optiques disponibles. Pour choisir ces optiques, on utilise des abaques, sur lesquels on peut lire la distance objet-image et la distance bague-image en fonction du grandissement souhaité et pour un objectif. On en déduit quels sont les tubes d'extension à utiliser, quel montage réaliser et à quelle distance placer la caméra par rapport à l'éprouvette.

Dans les tableaux suivants (Tableau 3, Tableau 5) sont récapitulées les caractéristiques de chaque essai : caméra utilisée, objectif et bagues allonges, taille approximative de la zone observée, taille en pixels et en µm de la surface de l'éprouvette dans l'image. Tous les essais n'ont pas été effectués avec les mêmes caméras ou les mêmes montages optiques, pour diverses raisons (panne, utilisation de matériel nouveau ...). La Marlin a remplacé la Basler quand celle-ci était en panne.

<i>Nom de la caméra</i>	<b>Basler</b>	<b>Marlin</b>	<b>Spot</b>
<i>Surface observée</i>	bombée	bombée	plane
<i>Taille des images (pixels)</i>	1300 x 1030	1280 x 1024	2048 x 2048
<i>Taille des capteurs</i>	≈ 6,9 x 8,7 mm, largeur d'1 pixel du capteur = 6,7 μm	≈ 6,9 x 8,6 mm, largeur d'1 pixel du capteur = 6,7 μm	15,15 x 15,15 mm, largeur d'1 pixel du capteur = 7,4 μm
<i>Codage</i>	8 bits (256 niveaux de gris)	8 bits (256 niveaux de gris)	12 bits mais images converties ensuite en 256 niveaux de gris
<i>Fréquence d'acquisition des images</i>	1/seconde	1/seconde	1/3 secondes
<i>Type d'éclairage</i>	Fibres optiques	Fibres optiques	Annulaire
<i>Logiciel utilisé pour le réglage des paramètres contraste, brillance ...</i>	Coriander	Coriander	Spot basic
<i>Logiciel d'acquisition des images</i>	Dcamaqx	Dcamaqx	Spot basic

Tableau 1 : Récapitulatif des caractéristiques des différentes caméras utilisées

<i>Face bombée</i>	<i>Caméra numérique</i>	<i>Objectif + Allonges</i>	<i>Taille de l'image (pixels et mm<sup>2</sup>)</i>
<i>A4 (NH), C4 (200M)</i>	Basler (1300 x 1030 pixels x 8 bits), camera IEEE 1394 2/3 pouce	Zoom Optem 125 XL (réglage x1), tube TV x1, lentille-objectif x0,75.	1300 x 1030 pixels ≈ 11,6 x 9,2 mm <sup>2</sup> 1 pixel = 8,93 μm
<i>B23 (500C), B1 (500M), B3 (500R)</i>	Martin (1280 x 1024 pixels) 2/3 pouce	Zoom Optem 125 XL (réglage x1), tube TV x1, lentille-objectif x0,75.	1280 x 1024 pixels ≈ 11,6 x 9,2 mm <sup>2</sup> 1 pixel = 8,93 μm
<i>C13 (200C), C9 (200R)</i>	Basler (1300 x 1030 pixels x 8 bits) 2/3 pouce	Lentille-objectif de 4,5/90 mm ; allonges de 2 x 75, 25, 10 = 185 mm.	1300 x 1030 pixels ≈ 5 x 6,5 mm <sup>2</sup> , 1 pixel ≈ 5,4 μm

Tableau 2 : Récapitulatif des caractéristiques des essais macroscopiques concernant la face bombée des anneaux. Pour les essais à 500 ppm, ne figurent que les données sur la deuxième série d'essais effectués.

<i>Face plane</i>	<i>Caméra</i>	<i>Lentille-Objectif</i>	<i>Allonge</i>	<i>Taille de la zone de l'éprouvette observée (pixels et mm<sup>2</sup>)</i>
<i>A4 (NH), C13 (200C), C9 (200R), C4 (200M), B23 (500C), B1 (500M), B3 (500R).</i>	Spot Insight 2048 x 2048 x 12 bits	Lentille-Objectif 4,5 / 90 mm ; Adaptateur + Makro unifoc 12 Optique Macro Schneider-Kreuznach	Allonge totale de 141 mm : Tubes de 6, 10, 50, 75 mm (+ bague de mise au point)	2048 x 2048 pixels ≈ 13 x 13 mm <sup>2</sup> , 1 pixel ≈ 6 μm

Tableau 3 : Récapitulatif des caractéristiques des essais macroscopiques concernant la face plane des anneaux.

Chacune des caméras est reliée à un PC (interface IEEE 1394) sur laquelle des fichiers d'image sont enregistrées, au format .raw ou .tif. Les images sont digitalisées en 256 niveaux de gris. Le démarrage de l'essai et les acquisitions d'images avec les deux caméras sont synchronisés de façon à pouvoir comparer les diverses informations. L'acquisition est ensuite réalisée automatiquement à la fréquence imposée. Avant de lancer l'acquisition, on vérifie la qualité des images des surfaces étudiées en traçant leurs histogrammes de niveaux de gris.

Le réglage du contraste et de la luminosité des images est effectué de sorte à utiliser au mieux l'ensemble des niveaux de gris possible sans saturation. L'affichage de l'histogramme des niveaux de gris sur la zone d'intérêt facilite ce réglage.

### Caractéristiques du dépouillement

Le dépouillement des essais macroscopiques n'est pas très différent de celui des essais in-situ, excepté que le nombre d'images acquises est beaucoup plus important (de 240 à 2000 images selon les essais). Cependant, d'une part, le traitement est partiellement automatique, d'autre part, il peut être réalisé seulement sur une partie des images acquises (1 sur 5, 1 sur 50 ... l'intervalle entre deux images à traiter est à fixer par l'utilisateur dans le fichier .isq). Ce fichier .isq (Image SeQUENCE) regroupe toutes les images d'une même zone dans l'ordre chronologique de leur acquisition.

De plus, comme la qualité des images optiques est beaucoup plus constante que celles des images MEB, et que les mécanismes locaux altèrent peu le contraste local, le dépouillement est tout de même *relativement* rapide.

Dans la zone la plus grande possible sur laquelle la mise au point est correcte, on choisit la zone à étudier et le quadrillage de référence. Son pas dépend de la taille du mouchetis et des optiques utilisées. Comme les essais ont été réalisés sur une longue période (un an), les conditions d'acquisition et de dépouillement n'ont pas toujours été reproduites à l'identiques.

Concernant le dépouillement en lui-même, on utilise le schéma d'intégration 2, l'hypothèse d'incompressibilité pour le calcul des composantes 33 (composantes non-planes du tenseur de déformation) et les valeurs de déformation de Green-Lagrange, comme pour les essais in-situ.

### « ESSAIS IN-SITU SOUS MEB »

#### Préparation des Eprouvettes

La technique de micro-électrolithographie, couramment employée dans l'équipe micromécanique du LMS est un des savoir-faire du laboratoire, mais elle n'est habituellement pas appliquée pour de si petites surfaces. Elle consiste à déposer des micro-grilles d'or (ou d'un autre métal très ductile présentant un contraste chimique suffisant) sur la surface du matériau dont on veut étudier les modes de déformation. L'avantage est que ce marquage fin ne masque pas la microstructure et permet en particulier l'observation de l'endommagement. La micro-électrolithographie permet donc d'exploiter les essais in-situ de manière qualitative et quantitative.

Avant le dépôt des micro-grilles, la surface doit être la plus propre possible de façon à ce que son observation au MEB soit de bonne qualité. Dans notre cas, la préparation de surface pour les essais in-situ sous MEB est la même que celle pour l'analyse d'images :

- polissage mécanique au papier SiC de granulométrie 1200, 2400, 4000 ;
- polissage mécanique avec une suspension de silice colloïdale (OPS).

Les micro-grilles sont ensuite déposées, au cours des étapes suivantes :

- un film de résine électro-sensible (PMMA, polyméthacrylate de méthyle) est déposé sur la surface polie par centrifugation pour obtenir une couche uniforme d'épaisseur approximative 500 nm ;
- l'éprouvette est placée dans un four à 130°C pendant quelques minutes afin de permettre la polymérisation ;
- puis, à l'aide du faisceau du MEB, piloté automatiquement pour effectuer un balayage croisé à 90°, la résine est irradiée par les électrons incidents et rétro-diffusés, suivant un motif de grilles, dont les paramètres ont été fixés auparavant : le pas, les dimensions, le nombre de grilles. La taille du faisceau – ou courant de sonde –, la durée imposée au faisceau pour parcourir une ligne sont des réglages influençant notamment l'épaisseur des barreaux de grille. Ce dernier paramètre dépend de la quantité d'électrons absorbés par l'échantillon (quantité contrôlable à l'aide d'un pico-ampèremètre), qui détermine la poire d'émission ou volume d'interaction faisceau-matière. Celui-ci varie suivant le matériau étudié. Si trop d'électrons irradient la résine, une trop grande surface est dégradée, au contraire, si peu d'électrons irradient la résine, la surface du matériau n'est pas mise à nu, et ne pourra pas être recouverte d'or.
- par dissolution sélective dans une solution de méthyl-éthyl-acétone et de propanone-2, la résine irradiée, dont le poids moléculaire a été diminué par rupture des chaînes de polymères lors de l'irradiation, disparaît,
- de l'or est déposé successivement par pulvérisation cathodique et par évaporation sous vide, sur une épaisseur de 200 Å environ à la surface de l'éprouvette ;
- la résine restante est dissoute dans de l'acétone ou de l'éthyl-acétate.

Sur les anneaux utilisés, environ 13 micro-grilles étaient déposées de chaque côté, « est » et « ouest », sur la section transverse, comme indiqué sur la figure suivante (Figure 15). Chacune couvrait une surface d'environ 500 x 500  $\mu\text{m}^2$ , leur pas était de 2  $\mu\text{m}$  et l'épaisseur des barreaux de 0,3  $\mu\text{m}$  environ. Un pas très fin avait été choisi en rapport avec la petite taille des grains et la finesse des hydrures. Par ailleurs, le pas de grille doit aussi être adapté à l'échelle des informations que l'on veut obtenir sur les champs de déplacement, comme cela sera explicité dans la dernière partie du chapitre. La surface réelle recouverte par les micro-grilles était en réalité inférieure à 500 x 500  $\mu\text{m}^2$ , car à cause de la très faible épaisseur des échantillons (0,57 mm), l'épaisseur de résine n'était pas uniforme sur la section transverse. Le faisceau du MEB n'avait donc pas irradié d'une manière homogène toute la surface de résine (Figure 16).

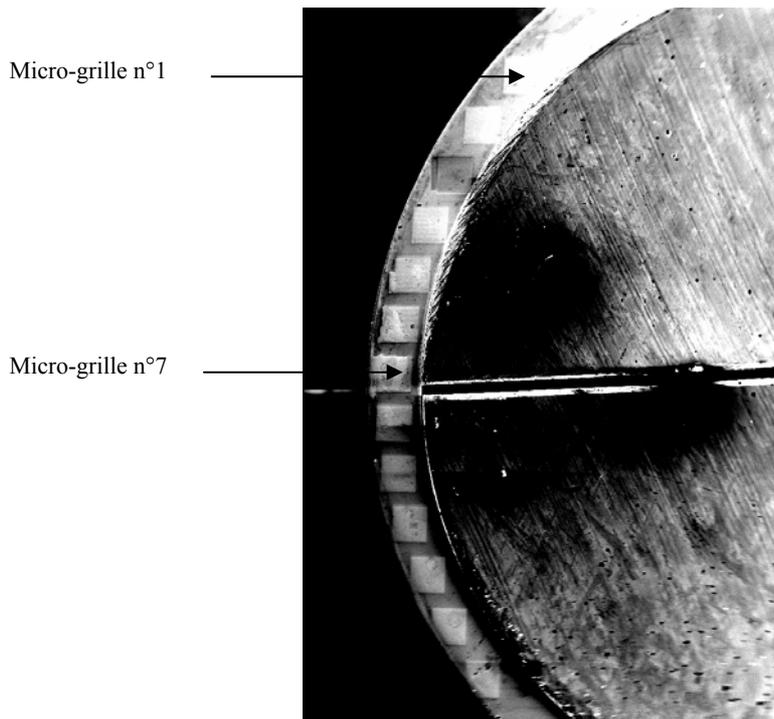
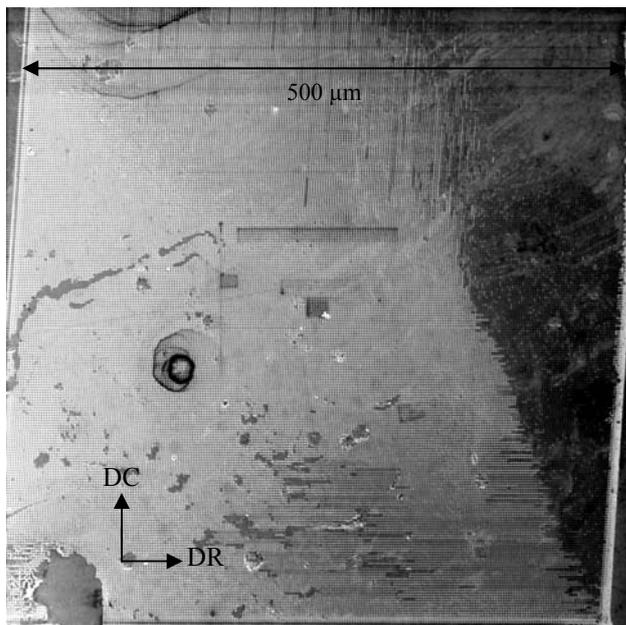
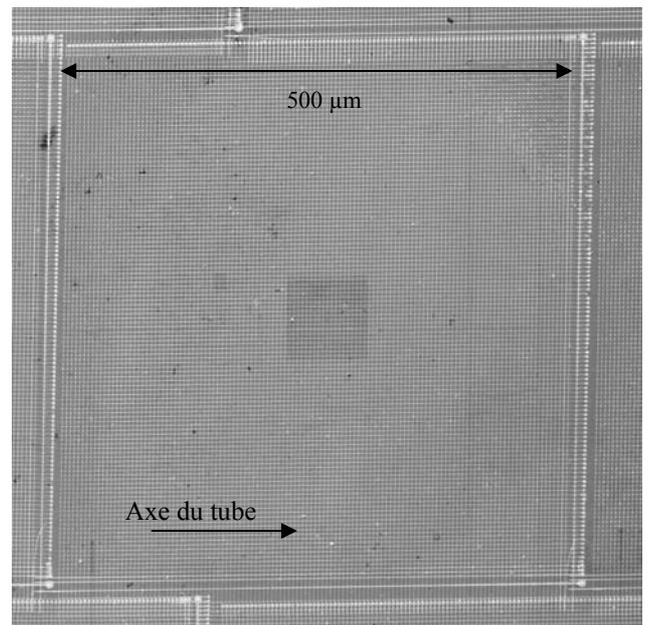


Figure 15 : Représentation schématique de la répartition des micro-grilles sur la section transverse d'un anneau lisse, dans le cas idéal.



Grille de pas  $2\ \mu\text{m}$ , déposée sur la surface plane d'un anneau (section transverse – radiale-circonférentielle).



Grille de pas  $4\ \mu\text{m}$  déposée sur la surface bombée d'un anneau lisse.

Figure 16 : Image d'une micro-grille avec défaut et d'une sans défaut.

Au cours de ces essais, c'est principalement la surface plane (ou section transverse) qui était étudiée, et pour laquelle on cherchait à déterminer les champs de déformation. Comme l'axe de la machine peut pivoter sur lui-même, les surfaces bombées de l'éprouvette pouvaient aussi être observées, mais sans quantification possible. Pour pallier cet inconvénient, un essai a été réalisé au cours duquel c'est une partie de la surface bombée qui était l'objet d'investigations quantitatives. Trois rangées d'environ

9 micro-grilles ont été déposées sur la surface bombée d'une éprouvette chacune de ces rangées correspondant à une génératrice du tube ; dans ce cas, chaque grille couvrait une surface de  $500 \times 500 \mu\text{m}^2$ , leur pas était de  $4 \mu\text{m}$ .

#### Acquisition des images

Le but de ces essais était d'observer les mécanismes d'endommagement du Zy-4 hydruré et de répondre à différentes questions parmi lesquelles : quand, où et comment apparaissait l'endommagement dans les hydrures ? A quel niveau de déformation local cet endommagement apparaît-il ? La présence des hydrures modifie-t-elle les hétérogénéités locales de déformation ? Y-a-t-il déformation et/ou allongement des hydrures ?

Avec la préparation de surface utilisée, les hydrures sont visibles en électrons rétro-diffusés (BSE) seulement. Donc, pour l'interprétation des essais, il est nécessaire d'utiliser ce mode d'imagerie. Cependant, pour optimiser le dépouillement par corrélation d'images, le rapport signal sur bruit doit être le plus élevé possible, et à cause de la distance de travail imposée lors des essais in-situ (30 mm environ entre la pièce polaire et l'éprouvette), cela implique d'acquérir des images en électrons secondaires (SE). Donc, les images sont acquises simultanément en SE et en BSE, et les premières sont utilisées pour le dépouillement, les secondes pour l'observation des hydrures.

Les différents réglages du MEB pour les essais in-situ sont récapitulés dans le tableau ci-dessous (Tableau 4).

Le courant de sonde est lié à la taille de sonde : cette expression désigne la taille de la zone sur laquelle l'information réémise est mesurée. La taille de sonde est supérieure à la taille du faisceau d'électrons. De la finesse du faisceau, dépendent celle de la taille de sonde et donc la résolution spatiale de l'image.

La taille de sonde influence la qualité du rapport signal/bruit : ce dernier augmente avec la taille de sonde : en effet, plus la taille de sonde est élevée, plus l'image contient d'informations sur les repères et meilleure sera la précision sur la détermination du déplacement [Doumalin 2000].

La distance de travail est imposée par la machine in-situ. La tension et le diaphragme sont ceux choisis habituellement pour travailler sur ce matériau et dans des conditions assez proches.

MEB	Jéol JSM 845
Numérisation	4096 x 4096 pixels, 8 bits (Point electronic)
Tension	20 keV
Diaphragme	2
Courant de sonde	3 nA
Grandissement	300
Nature des électrons utilisés	SE et BSE
Distance de travail	30 mm

Tableau 4 : Récapitulatif des réglages / paramètres employés lors des essais in-situ sous MEB.

Le système de numérisation des images pilote le faisceau d'électrons et numérise les signaux analogiques SE et BSE en codant l'information sur 8 bits (256 niveaux de gris). Il autorise des résolutions jusqu'à  $4096 \times 4096$  pixels, celle employée pour les images à exploiter par corrélation. Cette haute résolution permet d'acquérir en une seule fois des images qui recouvrent une zone d'observation assez grande et dont la qualité est suffisante pour la corrélation. La carte de pilotage et de numérisation intègre un pilotage du faisceau indépendant des possibilités de balayage du MEB. En

ajustant le temps par pixel, c'est-à-dire la vitesse de balayage, on peut améliorer la qualité des images et particulièrement le rapport signal sur bruit. Pour cette étude, on a choisi une vitesse de balayage de 20  $\mu\text{s}/\text{pixel}$ , ce qui correspond à une durée d'acquisition des images d'environ 12 mn. Avant d'acquérir l'image « définitive », on vérifie sur une image de résolution similaire mais de plus petite taille, la qualité de l'image en traçant l'histogramme correspondant : les conditions de contraste et de brillance doivent être les meilleures possibles pour un appariement optimal des points homologues. L'allure de l'histogramme obtenu permet de corriger éventuellement les réglages de contraste et de brillance, notamment en cas de saturation de l'image dans le blanc ou le noir.

Les images sont prises à un grandissement de 300. Le grandissement est défini comme le rapport entre la taille réelle d'un objet et sa dimension dans l'image numérique imprimée sur un support de taille donnée, en général un Polaroid standard (11 x 9 cm). A ce grandissement, les images couvrent une zone d'environ 330 x 330  $\mu\text{m}$ , la résolution est donc d'environ 80 nm /pixel.

Le grandissement, dont dépend la résolution, répond à un compromis, car il doit être :

- suffisamment faible pour couvrir entièrement la zone d'intérêt (sur une image si possible) et permettre d'obtenir des informations sur les phénomènes locaux qui soient statistiquement représentatives du matériau,
- mais suffisamment élevé pour que la précision soit acceptable.

Lors de l'acquisition d'une image 4096 x 4096 pixels, on veille par exemple à ce qu'un barreau de grille dont l'épaisseur est plus ou moins 0,3  $\mu\text{m}$ , soit défini par environ 4 pixels.

Selon les résultats issus des essais macroscopiques réalisés au préalable, on choisit de privilégier l'observation de certaines zones (celles où la déformation se localise et où on s'attend à observer de l'endommagement dans les hydrures). En effet, on ne peut matériellement pas envisager d'acquérir des images de toutes les grilles à toutes les étapes de déformation ; dans ces conditions, un essai dure entre deux jours pour les éprouvettes fragiles (3 étapes de déformation) et deux semaines pour les plus ductiles (10 étapes de déformation) ...

Un essai se déroule donc de la manière suivante :

- tout d'abord, il faut positionner l'éprouvette sur le montage, de façon à ce que la septième grille (en général) du côté gauche et la septième du côté droit soient toutes les deux alignées le mieux possible avec l'axe de symétrie du montage normal à l'axe de traction (Figure 15) ;
- une fois l'éprouvette positionnée sur le montage, on fait l'acquisition numérique de toutes les grilles à l'état non-déformé ; chaque acquisition est précédée d'un test pour vérifier que l'histogramme de niveaux de gris de l'image est correct ;
- ensuite, on commence à solliciter l'éprouvette. On arrête la sollicitation à certaines étapes pour pouvoir acquérir des images haute résolution des zones sélectionnées. Avant l'acquisition, on décharge légèrement la sollicitation (environ 200 N), pour éviter toute relaxation trop importante du matériau qui perturberait la qualité des images et qui modifierait la nature de la sollicitation imposée au matériau. Les étapes de déformation sont choisies à partir de l'allure de la réponse obtenue lors des essais macro. Mais, comme les essais sont réalisés sur des machines différentes (différentes notamment par leur rigidité), on ne peut pas comparer les données sur le déplacement de traverse. On se base donc sur celles correspondant à la contrainte conventionnelle pour situer approximativement l'étape de l'essai in-situ par rapport à l'essai global. On observe aussi l'échantillon qualitativement pour voir les éventuels mécanismes de déformation et d'endommagement ;
- on poursuit l'essai jusqu'à rupture.

### Caractéristiques du dépouillement

Le dépouillement est généralement effectué sur toutes les images qui ont été acquises pendant l'essai. Chaque fichier contient deux images et doit être séparé en deux : l'image en électrons secondaires utilisée pour le dépouillement, doit être convertie en niveaux de gris et celle en rétro-diffusés est utilisée pour l'interprétation des résultats. Un fichier .isq (Image SeQuence) est ensuite construit afin de regrouper toutes les images d'une même zone dans l'ordre chronologique correspondant aux états de déformation successifs.

Avec le logiciel correlmanuv, on ouvre le fichier .isq et on accède à l'image de référence et aux images déformées. La première étape du dépouillement consiste alors à choisir le quadrillage des points de référence. Il doit être le plus grand possible en fonction d'une part, de la qualité de la micro-grille telle qu'elle apparaît sur l'image de référence et sur les suivantes, et d'autre part en fonction de la taille maximale de la zone de référence que l'on retrouve dans la zone la plus déformée. De plus, au cours de l'acquisition des images d'une même zone, il y a parfois un certain décalage, il faut donc veiller soigneusement au choix initial du quadrillage des points de référence, si on ne veut pas être bloqué en cours de dépouillement et devoir tout recommencer ...

La taille de la zone analysée variait donc d'une grille à l'autre et d'un essai à l'autre. Le nombre de points de mesure de chaque zone sera précisé lors de la présentation des résultats (chapitre suivant). Cela peut varier de 130 x 200  $\mu\text{m}$  à 300 x 300  $\mu\text{m}$  selon la qualité des grilles.

La représentation des cartes de déformation peut se faire soit avec Matlab, soit directement avec Correlmanuv. L'avantage de cette deuxième possibilité est que l'on peut choisir de représenter les champs superposés à la microstructure, visible en BSE, directement, sans opération intermédiaire et donc sans erreur, puisque les pixels en électrons secondaires et rétro-diffusés se correspondent exactement (en ouvrant un fichier .isq contenant le nom des images en BSE). Cela est très avantageux, car les hydrures étant très fins, un léger décalage de la carte de déformation par rapport à la microstructure pourrait conduire à une mauvaise interprétation de la corrélation champ / microstructure.

Lors du choix des paramètres de représentation des cartes de déformation, on peut définir l'échelle de couleur. L'idéal serait de choisir la même échelle pour toutes les cartes pour pouvoir les comparer, cependant, comme cela sera expliqué dans le prochain chapitre, un tel choix ne permettrait pas de bien rendre visible les hétérogénéités de déformation à toutes les étapes de déformation.

### 3.3 EVALUATION DES INCERTITUDES

Dans cette dernière partie, nous allons présenter pour les deux types d'imagerie utilisés :

- l'origine des erreurs sur la mesure de déplacement ;
- leurs conséquences sur la mesure de déformation ;
- l'évaluation des erreurs sur les mesures de déplacement et de déformation dans nos essais, in-situ sous MEB ou avec caméra optique.

#### 3.3.1 ORIGINE DES ERREURS SUR LA MESURE DE DEPLACEMENT

La corrélation d'images permet d'accéder à une mesure locale de déplacement. Des erreurs sont induites par :

- la qualité de l'acquisition des images et celle du marquage ;
- des défauts géométriques.

##### Erreurs liées au type de marquage et à la technique de corrélation

La qualité du traitement des images par corrélation dépend du contraste des images. D'après la littérature, pour des images acquises en 8 bits d'une surface recouverte de mouchetis, l'incertitude sur la mesure de déplacement est d'environ  $1/100^{\text{ème}}$  de pixel. Une surface avec des micro-grilles offre un contraste beaucoup moins optimal et l'incertitude est plus élevée d'un facteur 2 à 3 [Doumalin 2000].

Le niveau de bruit numérique est aussi à prendre en compte : la dynamique effective des images (quantité de niveaux de gris effectifs) est meilleure lorsque le rapport signal sur bruit est élevé.

Le marquage doit être bien résolu : au moins 3-4 pixels par barreau de grille ou par tache de mouchetis. Cela dépend de la taille de spot choisi sur le MEB. Avec les caméras CCD, l'équivalent, le « fill factor » ou taux de remplissage, défini comme le rapport de la surface sensible à la surface totale du CCD est proche de 100%.

##### Erreurs géométriques

Des distorsions optiques affectent les images, principalement dans les coins et pour de faibles grossissements : le positionnement spatial du faisceau n'est pas rigoureusement exact. Elles induisent un gradient variant lentement à travers l'image. Les imperfections de la colonne du MEB engendrent une évolution temporelle du balayage (notamment une dérive de faisceau). L'acquisition des images de haute résolution étant lente (environ 15 minutes), il y a un certain décalage entre le haut et le bas de l'image. Il faut aussi tenir compte des défauts électroniques dus à la carte de pilotage et de numérisation (erreur sur le positionnement en début de ligne ou sur l'espacement entre deux lignes successives de balayage). Enfin, pour les images MEB ou optiques, le grossissement varie au cours des essais.

### 3.3.2 ERREURS SUR LA MESURE DE DEFORMATION

A partir de la mesure du champ de déplacement, on accède au gradient de la transformation,  $F$ , à partir duquel les composantes de la déformation sont déterminées.

#### Erreur sur la mesure du gradient de transformation $F$ à partir de la mesure du déplacement

L'incertitude sur  $F$  est liée à la base de mesure, donc au schéma d'intégration choisie à l'issue de la corrélation. Une version simplifiée de l'évaluation de cette erreur exprimée ci-dessous, avec :

- $X_1, X_2$  les coordonnées des points dans la configuration initiale,
- $x_1, x_2$  les coordonnées des points dans la configuration déformée,
- $F_{xx}$  le gradient de la transformation,
- $L$  la base de mesure (deux fois le pas de grille).

$$F_{xx} = \frac{x_1 - x_2}{X_1 - X_2}$$

$$\text{Erreur} F_{xx} = \frac{\text{erreur}(x_1 - x_2)}{X_1 - X_2}$$

$$\text{Variance}(F_{xx}) = \frac{\text{Variance}(x_1 - x_2)}{(X_1 - X_2)^2} = 2 \frac{\text{Variance}(x)}{(X_1 - X_2)^2}$$

$$\sigma_{F_{xx}} = \frac{\sqrt{2} \cdot \sigma_x}{L}$$

Avec le schéma d'intégration 2, cette formule devient [Doumalin 2000] :

$$\sigma_{F_{xx}} = \frac{\sqrt{3}}{4} \frac{\sigma_x}{a}, \text{ avec } a, \text{ pas de la grille.}$$

Dans le cas du calcul d'une déformation globale sur une zone comportant  $N$  lignes, et pour laquelle la première et la dernière colonne sont espacées d'une distance  $L$ ,

$$F_{xx} = \frac{1}{N} \frac{x_j - x_i}{X_j - X_i}$$

$$\text{Variance}(F_{xx}) = \frac{1}{N^2} \frac{2N \cdot \text{var}(x)}{L^2}$$

$$\sigma_{F_{xx}} = \sqrt{\frac{2}{N}} \frac{\sigma_x}{L}$$

On peut accéder aux valeurs de  $\sigma_{F_{xx}}$  à l'issue du traitement de corrélation, et ainsi évaluer  $\sigma_x$ .

Si  $\sigma_{F_{xx}}$  vaut  $10^{-4}$ ,  $N$ , le nombre de lignes est de 150 et la largeur de la zone de 3000 pixels environ,  $\sigma_x$  vaut alors 1,8 pixel.

L'incertitude due aux variations de grandissement sur le gradient de transformation peut être évaluée comme suit.

Soit  $g$  le grandissement,

- $X, Y$ , les coordonnées exactes des points dans la configuration initiale,
- $x, y$ , les coordonnées exactes des points dans la configuration déformée,
- $X_i, Y_i$ , les coordonnées « expérimentales » après variation de grandissement des points dans la configuration initiale,
- $x_i, y_i$ , les coordonnées « expérimentales » après variation de grandissement des points dans la configuration déformée,

$$\begin{pmatrix} X_i \\ Y_i \end{pmatrix} = g \begin{pmatrix} X \\ Y \end{pmatrix} \text{ et } \begin{pmatrix} x_i \\ y_i \end{pmatrix} = g' \begin{pmatrix} x \\ y \end{pmatrix}$$

$$F_{xx} = \frac{\partial x_i}{\partial X_i} = \frac{\partial g'(x)}{\partial g(x)} = \frac{g'}{g} \frac{\partial x}{\partial X} = \left(1 + \frac{\Delta g}{g}\right) \frac{\partial x}{\partial X}$$

Il faudrait aussi tenir compte des erreurs dues aux distorsions, mais si les points sont proches, ces erreurs sur chaque point se compensent et deviennent négligeables.

#### Erreur sur la mesure de déformation à partir du gradient de transformation $F$

La technique de corrélation permet de mesurer la projection des déplacements dans le plan d'observation et ne permet pas d'évaluer la composante hors-plan. Donc le gradient de la transformation est déterminé partiellement.

$$\underline{u} = \begin{pmatrix} u_1 \\ u_2 \\ ? \end{pmatrix} \Rightarrow F = \frac{\partial \underline{u}}{\partial \underline{x}} = \begin{pmatrix} F_{11} & F_{12} & ? \\ F_{21} & F_{22} & ? \\ ? & ? & ? \end{pmatrix}$$

Pour déterminer le tenseur des déformations de Green-Lagrange, il est nécessaire de formuler des hypothèses. On suppose que l'axe 3 est normal au plan de l'image et que  $u_z$  est constant dans le plan et on obtient l'expression du tenseur linéarisé de Green-Lagrange :

$$\varepsilon = \begin{pmatrix} \varepsilon_{11} & \varepsilon_{12} & 0 \\ \varepsilon_{12} & \varepsilon_{22} & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{33} \end{pmatrix}$$

La composante  $\varepsilon_{33}$  peut être calculée de trois façons différentes selon des hypothèses de :

- déformation axisymétrique ;
- déformation isochore ;
- déformation plane.

On choisit la deuxième hypothèse dans notre cas. Le calcul de la déformation équivalente dépend donc sensiblement du choix de l'hypothèse pour le calcul de  $\varepsilon_{33}$ .

### 3.3.3 APPLICATION : INCERTITUDES SUR LES MESURES REALISEES LORS DES ESSAIS IN-SITU SOUS MEB

#### Hypothèse de conservation du contraste local entre images d'une même zone mais dans des états de déformation successifs

Une des hypothèses fortes de la technique de corrélation d'images employée est la conservation *locale* du contraste – soit de la répartition des niveaux de gris – entre l'image de référence et celle de la configuration déformée et son transport par la transformation matérielle. La forme du coefficient de corrélation autorise cependant quelques fluctuations de contraste et de brillance sur le domaine de corrélation et tant que la longueur d'onde de ces variations est inférieure à la taille du domaine.

En effet, les fluctuations de contraste et de brillance sont liées au fonctionnement du MEB et à ses instabilités électroniques, elles sont donc inévitables, même si les conditions d'acquisition (grandissement, réglages de contraste, brillance ...) restent identiques. De plus, au cours des irradiations successives, la surface du matériau balayée s'assombrit, il est donc nécessaire de modifier les réglages. Il arrive aussi qu'au cours de l'essai, le filament du MEB se rompt, les réglages avec le nouveau filament sont donc tout à fait différents et évoluent au cours de son utilisation.

Des modifications du contraste de plus forte amplitude peuvent survenir au cours de l'essai, engendrées par les mécanismes de déformation : apparition de cavités ou de surfaces hors plan (relief), glissement, maclage ... Dans ce cas, le dépouillement doit être manuel, car le niveau de ressemblance entre la configuration de référence et celle déformée est trop faible : cela est possible grâce à la présence de la grille, qui constitue des repères visibles et facilement reconnaissables par l'opérateur.

Pour les éprouvettes les plus ductiles, les images correspondant aux zones les plus déformées et aux dernières étapes de déformation n'ont pas pu être dépouillées systématiquement (Figure 17, gauche) tellement la surface présente d'évolution du contraste du fait de l'apparition de relief (plan de glissement). Dans ces cas-là, le dépouillement est rendu difficile non seulement à cause de la dégradation du contraste des grilles, mais aussi par la mauvaise qualité de l'image : en effet, on ne peut pas faire une mise au point nette sur toute l'image, car la section transverse, du fait de la striction, n'est plus plane (Figure 17, droite). Les images des micro-grilles ne sont donc pas entièrement nettes.

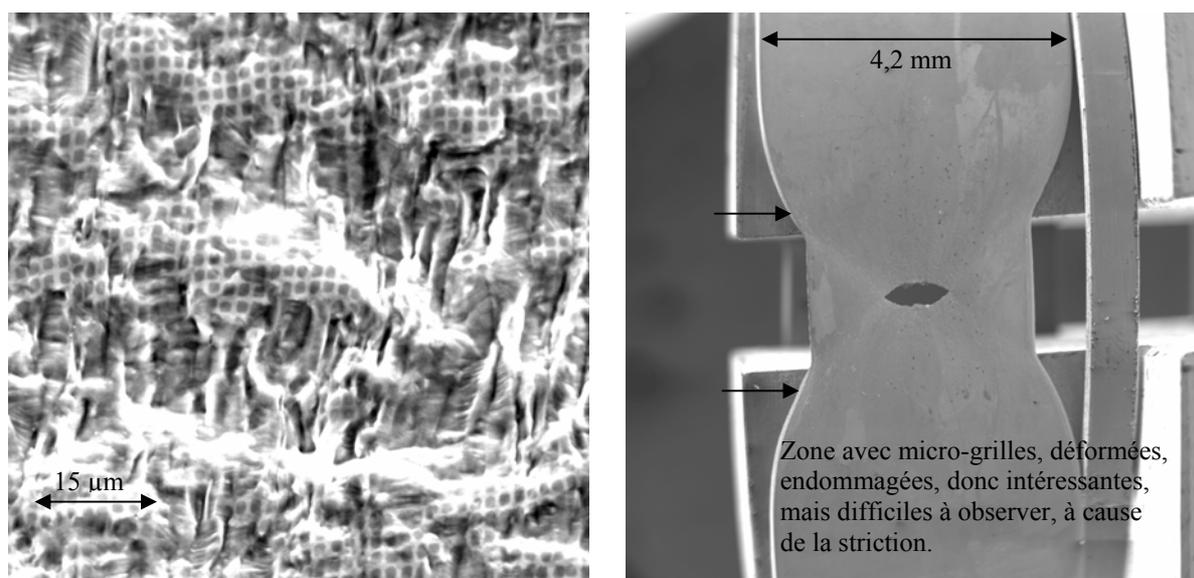


Figure 17 : A gauche : image d'une micro-grille d'une zone très déformée, éprouvette non-hydrurée, zone sous l'équateur, étape 7 (rupture survenue à l'étape 10), illustrant les difficultés de la corrélation. A droite : Image de l'éprouvette anneau lisse non-hydruré tiltée à 90°, à l'étape précédant la rupture, mettant en évidence la striction, donc l'inclinaison de certaines zones de la section transversale et la difficulté de faire une mise au point correcte lors de l'acquisition d'images de grilles..

#### Evaluation des incertitudes sur les mesures de déformation locales issues de la corrélation d'images MEB (essais in-situ)

Ce sont les lieux de contraste maximum qui sont choisis pour effectuer la corrélation. Dans le cas de grilles, ce sont donc les intersections des barreaux. Le pas de la grille, en général identique au pas du quadrillage de points de référence, ou un de ses multiples, définit donc la résolution spatiale de la méthode de corrélation, et la base de mesure de déformation.

Des travaux de thèse récents aident à mieux évaluer les incertitudes des mesures réalisées sur des images MEB ([Doumalin 2000], [Cornille 2005]). Par exemple, [Doumalin 2000] suggère, pour estimer l'erreur réalisée sur la mesure de déformation, d'effectuer trois tests en début d'essai, sur la configuration non-déformée, qui correspondent à :

- l'absence de transformation : la même zone est balayée deux fois de suite, tous les paramètres étant identiques, sauf les conditions de balayage qui sont indépendantes de l'opérateur ;
- la translation en x puis en y sur des distances comparables à celle qui serait observée au cours d'un essai in-situ réel (quelques centaines de pixels) ;
- la combinaison d'une translation et d'une rotation à 90°.

Ces trois déplacements ne résultent pas de translation ou de rotation du faisceau, mais sont des mouvements de la platine, comparables aux déplacements induits par une déformation.

Lors de nos essais, ces tests n'ont pas été réalisés systématiquement. Cependant, les résultats des deux premiers tests réalisés pour un essai in-situ « classique » et pour l'essai in-situ concernant l'observation d'une génératrice d'un anneau sont présentés ci-après. Ils sont obtenus dans les mêmes conditions de dépouillement que celles utilisées pour le reste des images.

Le dépouillement de ces séries d'image se fait de la façon suivante :

- détermination de la grille de référence dans l'image initiale et obtention des points dans les configurations « déformées » (sans transformation ou « déplacées ») ;
- pour chaque configuration « déformée », tracé des cartes des différentes composantes de déformation et de leur fonction de distribution ;
- pour la configuration « déformée » sans transformation : obtention de la moyenne de la translation locale, son écart-type et les écarts maximaux par rapport à la moyenne (Commande « Stattranslat » de correlmanuv). Ces données permettent d'évaluer la précision de la mesure sur la déformation globale à partir d'un mouvement de translation pure si il y a peu de distorsion, peu de dérive et peu de variation en z ;
- pour les configurations « déformée » translattées en x et en y : obtention de l'écart-type de la différence entre le déplacement mesuré et celui qui serait associé à une transformation homogène d'intensité la déformation moyenne. Ces informations statistiques nous permettent d'évaluer l'incertitude sur la mesure de déplacement, incluant les imperfections de balayage liées à la colonne du MEB et ceux dus à la carte de pilotage (Commande « Statranshom » de correlmanuv) ;
- les fonctions de distributions, tracées pour chaque composante de la déformation, nous renseignent aussi sur les incertitudes à l'échelle locale ;
- les déformations macroscopiques.

Incertitudes sur les mesures de déformations globales :

<b>Analyse en translation pure</b>	<i>Absence de translation</i>	<i>Translation en X<sup>1</sup></i>	<i>Translation en Y</i>
<i>Translation moyenne en X des 22644 points analysés (pixels) (référence : image initiale)</i>	-1,86	133,13	-105,18
<i>Translation moyenne en Y des 22644 points analysés (pixels) (référence : image initiale)</i>	4,54	3,28	229,22
<i>Ecart-type (x,y)</i>	(0,28 ; 0,94)	(0,32 ; 0,43)	(0,34 ; 0,56)
<i>Ecart maximum (x,y)</i>	(1,23 ; 2,35)	(1,31 ; 1,55)	(1,4 ; 1,87)

<b>Analyse en déformation homogène</b>	<i>Absence de translation</i>	<i>Translation en X</i>	<i>Translation en Y</i>
<i>Ecart-type de la fluctuation / transformation homogène</i>	(0,28 ; 0,94)	(0,36 ; 0,40)	(0,34 ; 0,29)
<i>Valeurs de déformation globale (E22 : direction de traction)</i>	E11 = 7,49 10 <sup>-5</sup> E22 = 1,03 10 <sup>-3</sup> E12 = -2,27 10 <sup>-4</sup>	E11 = 2,05 10 <sup>-4</sup> E22 = 3,73 10 <sup>-4</sup> E12 = 2,40 10 <sup>-5</sup>	E11 = -8,04 10 <sup>-6</sup> E22 = -2,11 10 <sup>-4</sup> E12 = -2,11 10 <sup>-4</sup>

Incertitudes sur les mesures de déformations locales :

Rappelons que, d'après [Doumalin 2000], la précision sur chaque composante du gradient de transformation local peut être évaluée, pour le schéma d'intégration 2, par la formule :

$$\sigma_{F_{xx}} = \frac{\sqrt{3} \cdot \sigma_u}{4a}$$

<sup>1</sup> La direction X est appelée 1 et la direction Y est appelée 2.

avec :

$\sigma_u$  : précision en pixel de la mesure du déplacement ;

$a$  : pas de la grille.

Intéressons-nous aux informations fournies par les cartes de déformations et par les informations statistiques sur les répartitions des déformations obtenues sur les images sans translation, et après translation en  $x$  ou en  $y$ .

#### - Absence de translation

Bien qu'aucun déplacement de la platine n'ait été imposé, une translation moyenne de -1,9 pixel en  $x$  et 4,5 pixel en  $y$  par rapport à l'image de référence s'est produite. Ce décalage est attribuable à la dérive du faisceau du MEB lors du balayage d'une image. Cet effet augmente avec la durée d'acquisition. Cette fluctuation dans le temps de la position du faisceau du MEB pour une position commandée est certainement due à des phénomènes d'hystérésis des lentilles électromagnétiques [Doumalin 2000].

- Composante E11 :

Par le calcul, la précision sur E11 pourrait être estimée à :

$$\sigma_{F_{xx}} = \frac{\sqrt{3} \cdot \sigma_u}{4a} = \frac{\sqrt{3} \cdot 0,28}{4 \cdot 21} = 0,58\%$$

Cette valeur de l'approximation est à comparer avec celle que l'on peut déterminer à partir de la largeur du pic de l'histogramme de déformation  $\approx 0,25\%$  (Figure 19). Cet écart peut être dû à des erreurs systématiques qui se compensent à l'échelle des points du schéma d'intégration utilisé pour le calcul de la déformation locale.

- Composante E22 : La carte de déformation et la fonction de distribution indiquent qu'il y a plus d'erreurs que pour la composante E11.

- Composante EEq : c'est une fonction non-linéaire des composantes de déformation, donc il est normal que la fonction de distribution de Eeq n'ait pas une allure de gaussienne.

#### - Translation en $x$

On remarque sur ces cartes des doublets de bandes verticales, dues au balayage du MEB. La première correspond à un saut de balayage dans l'image de référence, l'autre dans l'image déformée. La distance entre ces deux bandes vaut environ 130 pixels, c'est-à-dire la valeur de la translation en  $x$ . La bande la plus intense, très visible sur la carte E11 correspond juste au milieu de l'image. Pour la composante E22, les erreurs sont moins marquées. Les sauts de balayage responsables de ces bandes sont systématiques : le balayage saute une fraction suffisamment élevée de pixel pour que cela soit visible sur les cartes.

En effet, [Doumalin 2000] explique que les aberrations de pilotage de la carte de numérisation engendrent des erreurs globales et locales. Les premières se traduisent par une distorsion de l'image sur les bords (peu visibles dans nos cartes). Les secondes sont dues à l'imprécision sur la commande de position du faisceau d'électrons, qui est de  $\pm 0,3$  bit (donnée constructeur) et qui entraîne une imprécision de  $\pm 0,3$  pixel. Cette valeur correspond à l'écart-type local pour une translation. De plus, cela se traduit dans les cartes de déformation par un schéma de bandes, dont la répartition n'est pas aléatoire. D'après [Doumalin 2000], les bandes verticales sont les plus marquées. Leur période est

d'environ 350 pixels, ce qui correspond à une période de 2V (pour une image 4096 x 4096 pixels correspondant à un pilotage en tension de  $\pm 10$  V). La bande centrale, plus intense doit être due à l'inversion des signes de pilotage. Ce phénomène se traduit par une erreur de l'ordre de 1%.

**- Translation en x et y**

Comme dans le cas précédent, des bandes régulièrement espacées sont notables : la carte E22 met particulièrement en évidence les bandes horizontales. L'écart entre les bandes horizontales au centre de l'image correspondent à la valeur de translation en y.

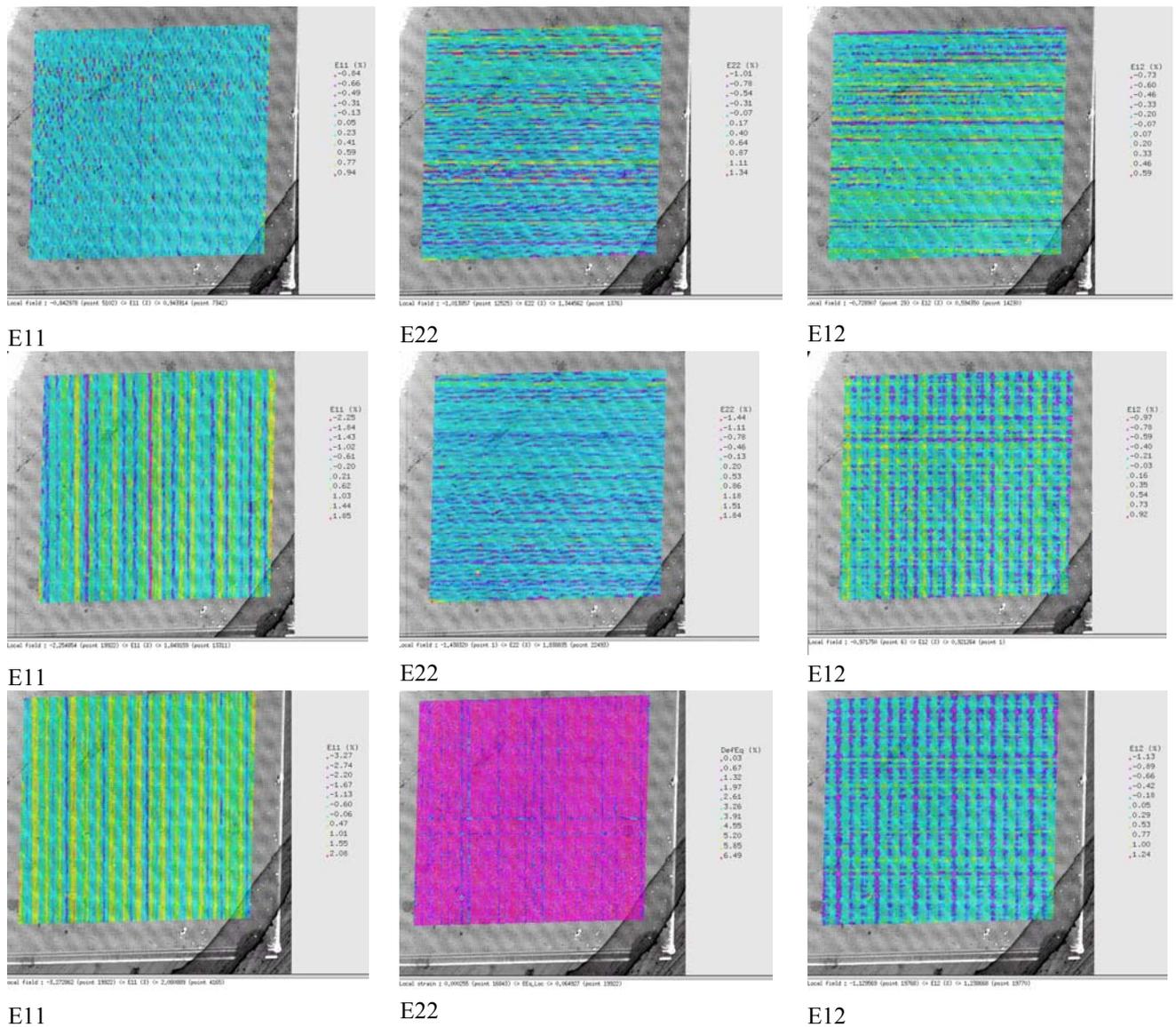


Figure 18 : Cartes de déformation de l'éprouvette B3 avant le début de l'essai, représentées dans la configuration « déformée », par rapport à l'état de référence. La première ligne correspond aux cartes de déformation des différentes composantes en l'absence de translation ; la deuxième ligne correspond aux cartes obtenues après translation en X ; la troisième après translation en Y (effectuée après la translation précédente en X).

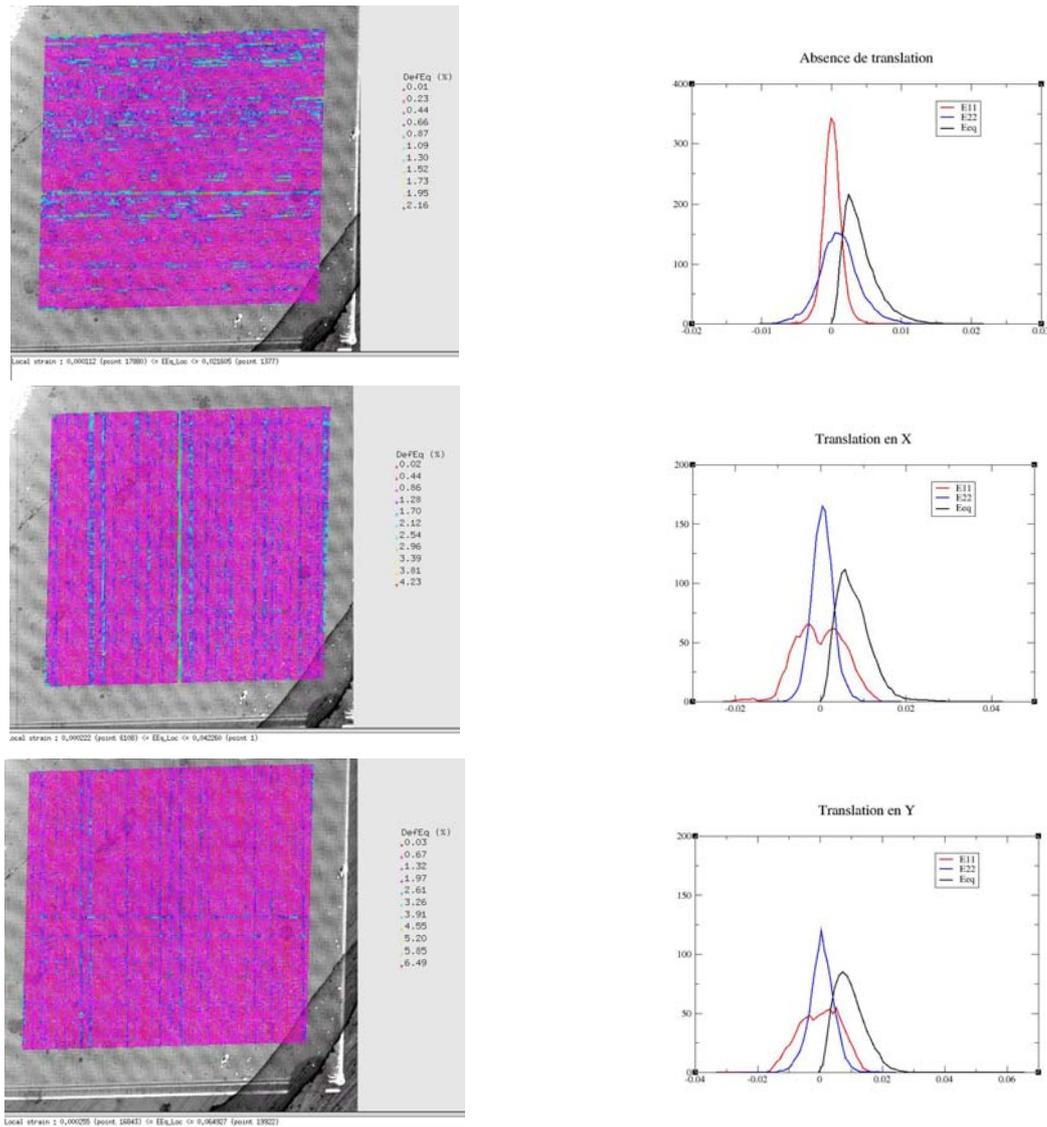


Figure 19 : Cartes de déformation équivalente (von Misès) et fonctions de distribution des déformations. 1<sup>ère</sup> ligne : absence de translation ; 2<sup>ème</sup> ligne : translation en X ; 3<sup>ème</sup> ligne : translation en X et Y.

Les incertitudes liées aux variations en  $z$  (altitude réelle de la surface de l'objet par rapport au centre de la lentille de focalisation) existent et ont été évaluées par [Doumalin 2000].

$\Delta g = \frac{\Delta z}{z}$ , avec  $g$  le grandissement et  $\Delta g$ , la variation de grandissement,  $z$ , l'altitude et  $\Delta z$ , la variation d'altitude. Pour une distance entre la surface de l'objet et le centre de la lentille de focalisation de 30 mm (cas des essais in-situ), une variation d'altitude de 0,5 mm correspond à une variation de grandissement de 1,6%.

Dans la situation réelle d'un essai mécanique in-situ, les incertitudes liées aux variations en  $z$  sont dues à la déformation de l'éprouvette et à celle de la machine d'essai (sous charge) : la distance surface observée – lentille de focalisation varie. La mise au point doit être refaite pour presque toutes les images à chaque étape de déformation, pour conserver une bonne netteté et définition de l'objet observée : donc le grandissement réel est modifié à chaque nouveau réglage. De plus, chaque variation de grandissement s'accompagne d'une légère rotation de l'image (à cause de la trajectoire des

électrons, qui est en forme d'hélice autour des lentilles). La mesure du champ local de déformation est faiblement altérée par ce phénomène, mais cette altération est d'autant plus importante que les déformations à mesurer sont très faibles.

Lors de nos essais, des variations d'altitudes plus ou moins importantes se produisent : au début de la traction, lorsque l'éprouvette se « met en place », elle a tendance à glisser vers le bas : la comparaison entre les images de l'étape 1 et celle de référence met quelquefois en évidence une très légère contraction, alors que l'éprouvette ne s'est pas déformée puisque cette première étape est encore dans la phase élastique. Ensuite, lorsque l'éprouvette est très déformée et que la striction est importante, la focalisation doit impérativement être refaite : la surface initialement plane de l'éprouvette a « reculé » par rapport au détecteur (Figure 17, droite). D'après l'évaluation de la striction sur l'éprouvette la plus déformée, la variation en z est d'environ 0,6 mm, soit la variation de grandissement est de  $0,6/30 \times 100 = 2\%$ .

D'après [Doumalin 2000], l'ensemble des défauts géométriques (dans le cas du MEB) peut être résumé par les formules suivantes :

$$\underline{U}_m = \underline{U} + \underline{U}_{dg} + \underline{U}_{balayage} + \underline{U}_{MEB}$$

Ces termes représentant respectivement :

- le champ de déplacement mesuré ;
- le champ de déplacement réel ;
- les erreurs dues aux variations de grandissement ;
- les erreurs de balayage ;
- les erreurs de dérive du MEB.

Les erreurs de balayage se décomposent elles-mêmes en trois termes :

- les erreurs dues aux défauts géométriques (rapport de forme des pixels...);
- les erreurs dues aux non-linéarités de balayage et les erreurs locales de pilotage (sauts de ligne systématiques) : cela entraîne une erreur sur le champ de déplacement de 0,3 pixel, la répartition de l'erreur n'est pas aléatoire, d'après les cartes de déformation. L'incertitude sur la mesure de déformation ne peut donc pas être évaluée par la formule présentée précédemment,  $\sigma_{F_{xx}} = \frac{\sqrt{3} \cdot \sigma_u}{4a}$ , où  $\sigma_u$  est l'écart-type des erreurs de déplacement sur toute l'image. Mais l'erreur est de l'ordre du %.

Les erreurs de dérive du MEB se décomposent en :

- leurs évolutions moyennes : l'erreur sur le champ de déplacement est d'environ 2 pixels et l'erreur sur la mesure de la déformation de l'ordre de 0,05 %;
- leurs fluctuations locales : elles sont négligeables, de plus, à cause du caractère aléatoire de leur évolution, on ne peut pas envisager de les corriger.

*En conclusion, les mesures réalisées à partir d'images MEB doivent être données avec une incertitude, car des erreurs sont commises sur l'évaluation des mesures locale et globale de déplacement. Les erreurs les plus importantes sont celles sur les mesures des points se trouvant dans les bandes horizontales ou verticales, dues aux sauts de balayage du faisceau. A cause de ces incertitudes, les mesures des faibles déformations (autour du %) sont bruitées et ne peuvent pas être exploitées. Pour les fortes déformations, comme celles qui sont mesurées en fin d'essai, d'autres*

*paramètres, comme la variation d'altitude et son influence sur la variation de grandissement sont à prendre en compte : les mesures doivent alors être considérées plutôt qualitativement.*

### 3.3.4 APPLICATION : INCERTITUDES SUR LES MESURES REALISEES LORS DES ESSAIS AVEC CAMERAS NUMERIQUES

#### *Hypothèse de conservation du contraste local entre images d'une même zone mais dans des états de déformation successifs*

Dans les images obtenues avec les caméras optiques, l'hypothèse de conservation du contraste local est davantage respectée que dans les essais in-situ : ni le fonctionnement intrinsèque des caméras, ni les mécanismes d'endommagement locaux, peu visibles à l'échelle employée, ne provoquent de fluctuations notables dans la répartition des niveaux de gris. Celle-ci peut être perturbée par les variations d'éclairage et surtout par le décollement de la peinture, ce qui est survenu au cours des premiers essais sur une éprouvette très ductile, qui a modifié complètement la répartition des niveaux de gris et a empêché toute corrélation sur cette zone.

#### *Evaluation des incertitudes sur les mesures de déformation issues de la corrélation d'images appliquées aux images des essais macroscopiques*

La précision théorique obtenue lors de la corrélation utilisée avec un contraste de type mouchetis est meilleure que celle appliquée aux micro-grilles. En effet, le contraste est moins brusque, les formes moins régulières. Le contraste local existe en tout point : la mesure est possible en n'importe quel point – à condition que le motif du mouchetis soit suffisamment fin par rapport à la taille du domaine de corrélation –. La résolution sur le déplacement est meilleure (de l'ordre du centième de pixel), mais la résolution spatiale est inférieure : la distance entre deux points de mesure est souvent de l'ordre de la centaine de  $\mu\text{m}$ .

Comme nous l'avons évoqué précédemment, les incertitudes sur les mesures de déformation sont dues :

- au traitement d'image lui-même ;
- à des erreurs géométriques (projection de l'image d'une surface bombée sur une surface plane ; recul progressif de l'anneau qui se redresse et s'ovalise dans le sens de la traction).

#### *Incetitudes sur les mesures de déformation globales liées au traitement d'images :*

Pour évaluer les incertitudes dues au traitement d'images, on procède comme pour les images MEB : il faut traiter des images prises successivement sans mouvement de la caméra, puis des images translattées l'une par rapport à l'autre.

<b>Analyse en translation pure</b>	<i>Absence de translation</i>	<i>Translation en X</i>	<i>Translation en Y</i>
<i>Translation moyenne en X des 2340 points analysés (pixels) (référence : image initiale)</i>	-0,01	-46,78	-47,11
<i>Translation moyenne en Y des 2340 points analysés (pixels) (référence : image initiale)</i>	-0,13	-1,47	32,36
<i>Ecart-type (x,y)</i>	(0,011 ; 0,016)	(0,051 ; 0,041)	(0,057 ; 0,048)
<i>Ecart maximum (x,y)</i>	(0,056 ; 0,123)	(0,178 ; 0,168)	(0,264 ; 1,466)

<b>Analyse en déformation homogène</b>	<i>Absence de translation</i>	<i>Translation en X</i>	<i>Translation en Y</i>
<i>Ecart-type de la fluctuation / transformation homogène</i>	(0,011 ; 0,014)	(0,052 ; 0,040)	(0,056 ; 0,039)
<i>Valeurs de déformation globale (E22 : direction de traction)</i>	E11 = 4,17 10 <sup>-6</sup> E22 = -2,9 10 <sup>-5</sup> E12 = -2,9 10 <sup>-5</sup>	E11 = -2,23 10 <sup>-6</sup> E22 = -3,19 10 <sup>-5</sup> E12 = -1,16 10 <sup>-5</sup>	E11 = -1,23 10 <sup>-4</sup> E22 = -7,56 10 <sup>-5</sup> E12 = -6,96 10 <sup>-6</sup>

La comparaison des ces tableaux avec ceux obtenus pour les essais in-situ met nettement en évidence la plus faible incertitude sur les mesures réalisées avec des caméras CCD : les écart-types sont de l'ordre du centième et quelque fois du dixième de pixel, alors qu'avec les images MEB, ces valeurs sont environ 10 fois plus élevées : de l'ordre du pixel et quelques fois du dixième de pixel.

De même, sur les cartes de déformation présentées dans la Figure 20, on constate qu'il y a peu d'hétérogénéités de déformation : dans le cas de la translation en X ou en X et Y, les plus fortes hétérogénéités se situent au niveau des premiers points de corrélation (points en haut à droite), d'autres sont dispersées sur le bord droit ou gauche. Ceci s'explique par le fait que sur les bords, la surface est moins bien éclairée et l'histogramme des niveaux de gris est beaucoup moins optimal qu'au centre de l'image, un cinquième seulement des niveaux de gris sont représentés.

D'après l'histogramme de la troisième carte présentée ci-dessous (translation en X et en Y), l'erreur sur la déformation est centrée sur 0,1% avec un écart-type d'environ 0,1%. Comme la base de mesure est de 13 pixels, l'incertitude sur le déplacement est d'environ :

$$\sigma_u = \frac{4a \cdot \sigma_{F_{xx}}}{\sqrt{3}} = \frac{4 \times 13 \times 0,001}{\sqrt{3}} = 0,03 \text{ pixel}$$

Cette valeur est plus élevée que celle à laquelle on pourrait s'attendre, mais cela s'explique par la finesse du quadrillage de points de référence.

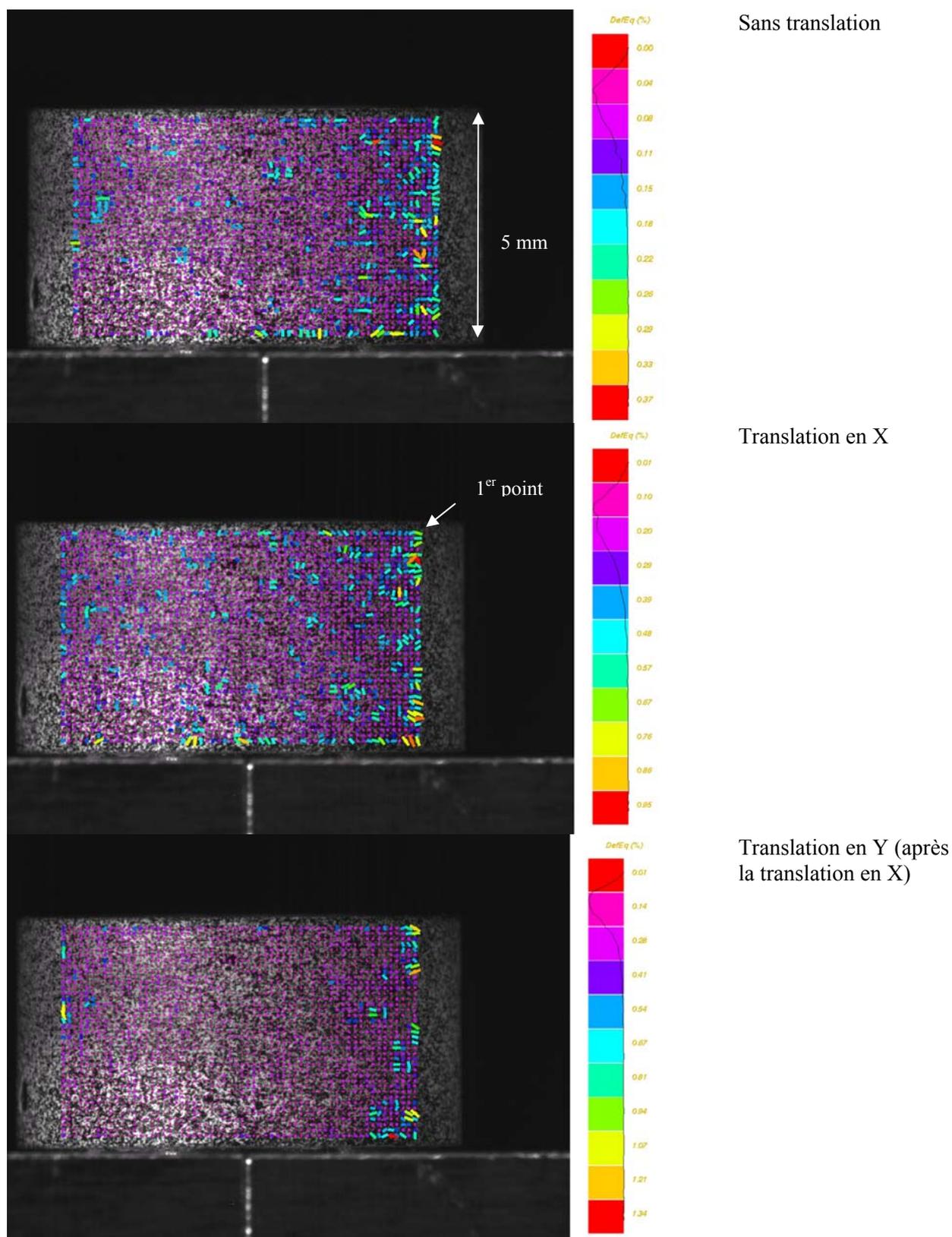


Figure 20 : Cartes de déformation de l'éprouvette B3 avant essai macroscopique. Composante de la déformation équivalente. La fonction de distribution de cette composante figure dans la légende.

Erreurs géométriques

En ce qui concerne l'erreur due à la projection, a priori, le calcul de la déformation n'est pas affecté par le fait que le plan sur laquelle elle est effectuée n'est pas perpendiculaire à l'axe optique, puisque la déformation est une mesure relative. Ceci est vrai seulement si il n'y a pas de déplacement hors plan et si la mesure est bien effectuée dans le plan tangent à la zone où on veut mesurer la déformation. Mais si il y a un déplacement hors plan, le rapport des variations des longueurs contient une erreur. Lors de nos essais, les éprouvettes les plus ductiles présentent une striction intense et donc un déplacement hors plan dans ces zones : l'épaisseur de l'éprouvette diminue. Les zones strictionnées sont à environ 20° du plan médian de l'éprouvette.

Pour évaluer l'incertitude globale liée au mouvement en  $z$  (Figure 14), qui peut être dû à la déformation de l'anneau au fur et à mesure où la sollicitation tend à le rendre ovale, ou bien à un réajustement de l'alignement du montage, on a acquis une série d'images dans les conditions de l'essai macroscopique, en faisant varier la distance objet - caméra de 5/100<sup>ème</sup> de mm. Chaque image a été dépouillée, puis on a tracé la variation de grandissement ( $F_{xx} - 1$  ou  $F_{yy} - 1$ ) en fonction de l'altitude  $z$ , distance entre la caméra et la surface bombée de l'anneau.

D'après ces graphes dont un est présenté en Figure 21, le grandissement varie de 0,06% pour une variation en  $z$  de 1 mm. Or, grâce à l'enregistrement simultané d'images de la face plane et de la face bombée et grâce à la méthode décrite précédemment pour corriger le mouvement latéral de l'objet dans le plan radial-circconférentiel, on peut évaluer la valeur de ce déplacement latéral en mesurant le décalage en pixels sur les images de la face plane, puis en le convertissant en  $\mu\text{m}$ . Ce décalage valait environ 150 pixels, soit 945  $\mu\text{m}$  avec la résolution de la caméra utilisée (caméra SPOT). La variation de grandissement qui a lieu au cours des essais est donc négligeable.

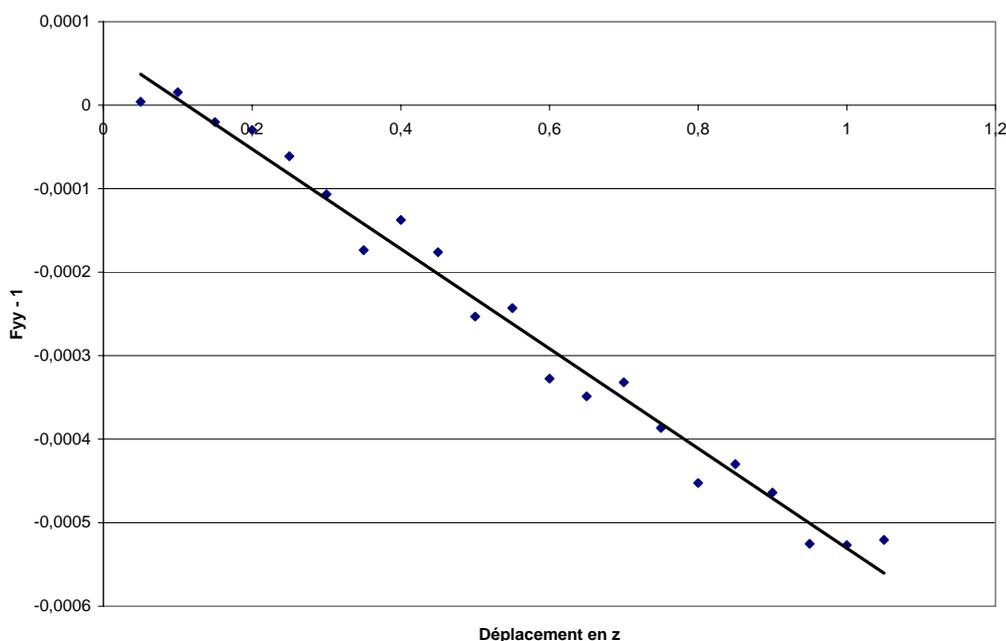


Figure 21 : Variation de grandissement en fonction du déplacement en  $z$  (distance objet - caméra).

## 3.3.5 SYNTHÈSE

	ESSAI MACROSCOPIQUE FACE BOMBÉE	ESSAI MACROSCOPIQUE FACE PLANE	ESSAI IN-SITU
<b>PARAMETRES DU SYSTEME D'ACQUISITION</b>			
<i>Outil de formation des images</i>	Caméra CCD, CCD : 6x8 mm, 1 pixel = 6,15 $\mu\text{m}$ .	Caméra CCD, CCD : 15,15x15,15 mm, 1 pixel = 7,4 $\mu\text{m}$ .	MEB
<i>Contraste</i>	Mouchetis	Mouchetis	Micro-grilles d'or
<i>Surface observée</i>	Face bombée	Face plane	Face bombée
<i>Fréquence d'acquisition des images</i>	1/s	1/3s	manuelle
<i>Taille des images</i>	1300 x 1030 pixels	2048 x 2048 pixels	4096 x 4096 pixels
<i>Nombre de zones observées et taille</i>	1 zone de 5x8 mm <sup>2</sup>	1 zone de 12x12 mm <sup>2</sup>	Environ 10 zones de 300x300 $\mu\text{m}^2$ (données variables d'un essai à l'autre)
<i>Nombre d'images par zone d'intérêt (ou nombre d'états de déformation)</i>	De 240 à 2500	Jusqu'à 840	De 3 à 10
<i>Temps d'obturation / Temps d'acquisition par pixel</i>	Variable, autour de 2,3 ms		20 $\mu\text{s}$ / point
<i>Résolution (nombre de pixels par unité de longueur)</i>	$\approx 0,106$ pixel / $\mu\text{m}$ ou 1 pixel représente $\approx 9,4$ $\mu\text{m}$ (B3)	$\approx 0,158$ pixel / $\mu\text{m}$ ou 1 pixel représente $\approx 6,3$ $\mu\text{m}$ (B3)	$\approx 10$ pixels/ $\mu\text{m}$ ou 1 pixel représente $\approx 0,1$ $\mu\text{m}$ (B3)
<b>PARAMETRES RELATIFS AU DEPOUILLEMENT NUMERIQUE</b>			
<i>Taille du domaine de corrélation</i>	13 x 13 pixels, soit 122 x 122 $\mu\text{m}$	17 x 17 pixels, soit 107 x 107 $\mu\text{m}$	21 x 21 pixels
<i>Nombre de points de mesure</i>	$\approx 2300$	$\approx 1100$	Variable suivant la qualité de la grille (23 000 au maximum)
<i>Base de mesure de déformation globale</i>	—	—	200 – 300 $\mu\text{m}$ (suivant la dimension de la grille)
<i>Type de schéma d'intégration (ou de « dérivation discrète »)</i>	2 (8 plus proches voisins)	2 (8 plus proches voisins)	2 (8 plus proches voisins)
<i>Nature de l'interpolation des niveaux de gris de l'image déformée</i>	Subpixel (interpolation bilinéaire des niveaux de gris)	Subpixel	Subpixel
<i>Base de mesure de déformation locale</i>	26 pixels, soit 244 $\mu\text{m}$ (on arrondit à 250 $\mu\text{m}$ )	34 pixels, soit $\approx 215$ $\mu\text{m}$	42 pixels, soit $\approx 4$ $\mu\text{m}$
<i>Résolution (déplacement)</i>	0,03 pixel		0,3 pixel
<i>Résolution spatiale (distance entre deux points de mesure)</i>	250 $\mu\text{m}$ environ	$\approx 215$ $\mu\text{m}$	$\approx 4$ $\mu\text{m}$
<i>Résolution de la mesure de déformation (résolution / base de mesure)</i>	0,11 %		0,71 %

Tableau 5 : Recensement de différents paramètres relatifs au système d'acquisition d'images ou au dépouillement numérique, concernant les deux types d'essai pour lesquels la corrélation d'image a été utilisée.

### CHAPITRE 3 : RESUME

*Au cours de ce chapitre, ont été présentés les objectifs expérimentaux ainsi que les techniques employées pour les atteindre. Des essais de traction sont donc réalisés sur des anneaux lisses, issus de tubes de gaine REP à température ambiante. La réponse globale de l'anneau, caractérisant le comportement du matériau dans la configuration étudiée, est donnée en terme de contrainte conventionnelle en fonction de la déformation conventionnelle, cette dernière étant mesurée au cours d'essais macroscopiques, avec la technique de suivi de marqueurs. La contrainte conventionnelle correspond simplement à la force normalisée par la section initiale de l'éprouvette. Ces courbes « Ingénieur » permettront de comparer les essais entre eux et de déterminer si le comportement du matériau est affecté par l'hydruration (influence de la teneur en H), tous les auteurs de la littérature n'étant pas tout à fait d'accord sur ce point. Ensuite, les champs de déformation à l'échelle globale seront étudiés à partir d'images acquises au cours d'essais macroscopiques, images de la surface bombée, d'une part et de la surface plane (section transversale) d'autre part. Ces surfaces ont auparavant été recouvertes de mouchetis, déposé grâce à un aérographe. Les taches de peinture mesurent en moyenne 50  $\mu\text{m}$ , mais leurs tailles varient entre 20 et 150  $\mu\text{m}$ . La précision sur la mesure de déformation obtenue au cours de ces essais est autour du dixième de pourcent environ. Enfin, ces investigations sont complétées par des essais in-situ sous MEB, permettant l'étude des champs locaux de déformation, des mécanismes d'endommagement et de rupture. Pour ces essais, des micro-grilles d'or, de pas 2  $\mu\text{m}$ , sont déposées sur la surface plane (ou bombée, pour un essai) des anneaux. En utilisant ensuite la technique de corrélation d'images, comme précédemment, on obtient des cartes de déformation, que l'on peut superposer à la microstructure visible en électrons rétro-diffusés. Ainsi, on pourra conclure quant à l'éventuelle interaction entre la présence d'hydrures et les modes de déformation à l'échelle locale. La précision sur les mesures de déformation fournies par cette technique est de l'ordre du %. Elle est un peu moins élevée que pour les essais macroscopiques, à cause des différences de fonctionnement intrinsèques entre un MEB et une caméra CCD, et à cause du mode de réalisation des essais eux-mêmes (échelle, durée, type de contraste ...).*





---

## CHAPITRE 4 :

### ESSAIS DE TRACTION SUR ANNEAUX MACROSCOPIQUES ET IN-SITU :

### RESULTATS

---

Au cours de ce chapitre, seront présentés les résultats des essais de traction sur anneaux, provenant de tubes de gainage de finition industrielle, en Zircaloy-4 détendu, hydruré artificiellement par voie gazeuse à 200 et 500 ppm, et ayant subi un traitement de « réorientation », afin d'obtenir différentes distributions d'orientations des hydrures. Deux types d'essais ont été entrepris : d'une part, des essais in-situ sous MEB, afin d'observer les modes locaux de déformation et les micro-mécanismes d'endommagement et de rupture et l'influence des hydrures sur ces mécanismes à l'échelle de la microstructure, et d'autre part, des essais macroscopiques, pour accéder à la réponse mécanique du matériau et à ses modes de déformation à l'échelle globale. Tous les essais ont été réalisés à température ambiante, qui, dans le contexte de l'entreposage, est considérée comme une « température de reprise » (ainsi que 150°C) : en effet, l'entreposage étant par définition provisoire, des études sont réalisées pour connaître le comportement mécanique des assemblages à différentes températures, auxquelles les assemblages seront susceptibles d'être « repris » si une solution de traitement de ces « déchets » est trouvée.

Les résultats expérimentaux obtenus aux différentes échelles sont complémentaires et leur interprétation conduit à définir trois catégories de comportement en déformation et à rupture, en fonction de la teneur en hydrogène et de l'orientation des hydrures.

Remarque :

Dans un tableau présenté en Annexe 1, les caractéristiques des différentes éprouvettes utilisées sont rappelées : tube à partir duquel elles ont été découpées, teneur en hydrogène moyenne de ce tube, utilisation de l'éprouvette : caractérisation mécanique ou observation.

## 4.1 REPONSE MECANIQUE GLOBALE

### 4.1.1 COURBES DES ESSAIS EFFECTUES A LA FOIS AVEC SUIVI DE MARQUEURS ET AVEC EXTENSOMETRE

Les essais réalisés avec suivi de marqueurs nous permettent, comme décrit dans le Chapitre précédent, d'accéder à la réponse mécanique du matériau en terme de force divisée par la section initiale en fonction de la déformation conventionnelle (allongement ramené au diamètre externe initial). Les résultats de ces essais sont présentés ci-après sous différentes formes :

- courbe contrainte conventionnelle – déplacement du montage mesuré par l'extensomètre positionné sur le montage (Figure 1) ;
- courbe « ingénieur » contrainte conventionnelle – déformation conventionnelle (Figure 2) ;
- contrainte maximale et déformation conventionnelle à rupture en fonction de la teneur et de l'orientation des hydrures (Figure 3).

L'extensomètre est fixé sur le montage et donne donc le déplacement de celui-ci, alors que les marqueurs sont des repères déposés sur l'anneau : le suivi de marqueurs présente donc l'intérêt de donner la réponse mécanique du matériau étudié.

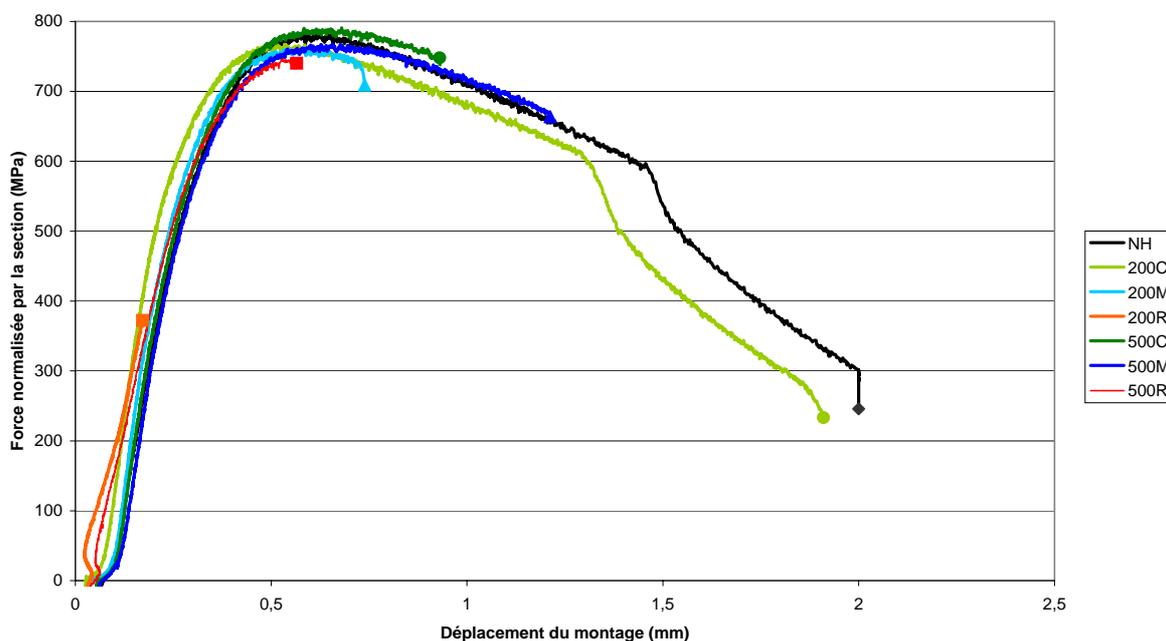


Figure 1 : Contrainte conventionnelle en fonction du déplacement du montage donné par l'extensomètre. Données acquises au cours des essais avec suivi de marqueurs (cf Figure 5 droite du Chapitre 3).

Sur la Figure 2, le début de la courbe (point A) correspond à la phase de mise en place de l'anneau, au cours de laquelle les jeux entre l'anneau et le montage sont rattrapés. La rupture de pente, remarquable dans les cas NH et 200C (point B) s'explique par la déchirure de la matière à l'intersection de bandes de cisaillement comme cela sera expliqué dans les paragraphes suivants.

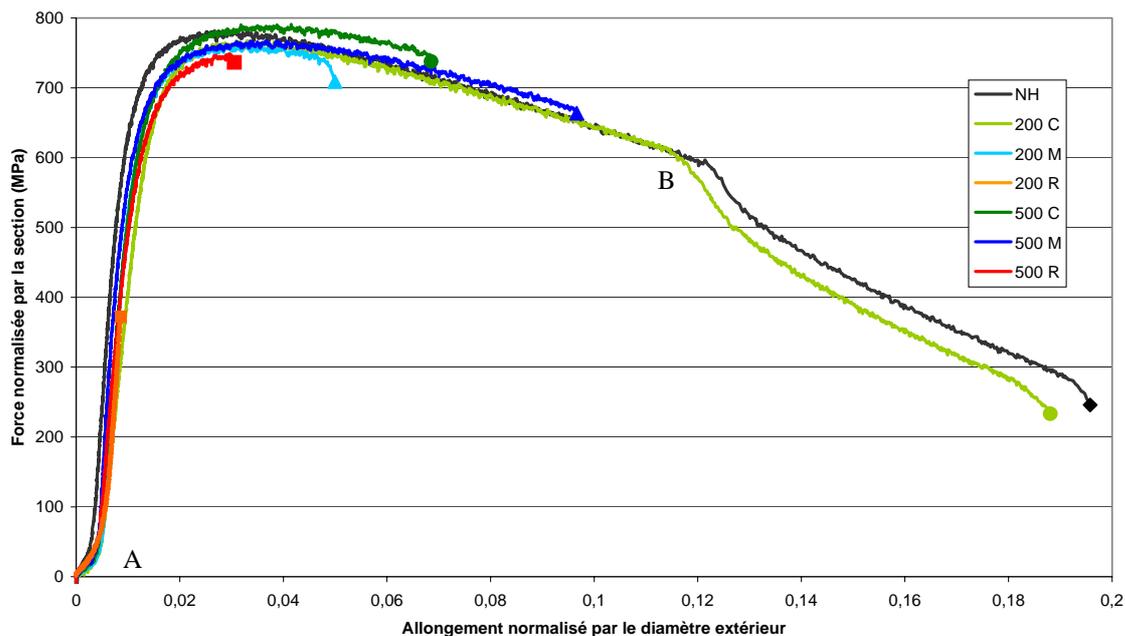


Figure 2 : Contrainte conventionnelle en fonction de la déformation conventionnelle (allongement normalisé par le diamètre externe). L'allongement est calculé à partir du déplacement des repères « Nord-Sud ».

Dans les deux figures précédentes, la superposition des courbes n'est pas parfaite, cependant on ne peut pas corréliser ces légères fluctuations à la teneur en hydrogène ou à l'orientation des hydrures : aucune tendance nette ne se dégage. L'origine des décalages observés concerne certainement les différences de diamètre interne entre deux anneaux et donc les différences de frottement anneau-montage pour les différentes configurations, cela peut aussi s'expliquer par le positionnement de l'anneau sur les deux demi-cylindres, qui n'était peut-être pas rigoureusement identique dans tous les cas (anneau plus ou moins enfoncé).

Sur la Figure 3, sont récapitulées pour la plupart des essais réalisés, qu'ils soient macroscopiques (avec marqueurs ou avec mouchetis) ou in-situ, deux valeurs caractéristiques : la contrainte conventionnelle maximale et l'allongement à rupture. La dispersion de ces valeurs n'est pas très élevée, surtout pour les valeurs de contrainte, même dans le cas 200R où la rupture est de type fragile comme cela sera expliqué ultérieurement. L'écart entre les valeurs d'allongement à rupture est plus élevé dans trois cas : 200M, 500M et 500R, c'est-à-dire quand le matériau est supposé contenir *une partie* d'hydrures radiaux. Le caractère aléatoire de la rupture fragile n'est donc pas vérifié lorsque le matériau contient presque que des hydrures radiaux (200R), puisque dans ce cas, la contrainte varie peu ; en revanche, lorsque les hydrures radiaux sont plus dispersés dans la matrice et que leur répartition est très hétérogène (elle est difficile à caractériser), alors le chemin de rupture est certainement moins prévisible et variable dans chacune de nos éprouvettes (S'agit-il d'une question de Volume Élémentaire Représentatif ? Ce point sera abordé à la fin du chapitre 5).

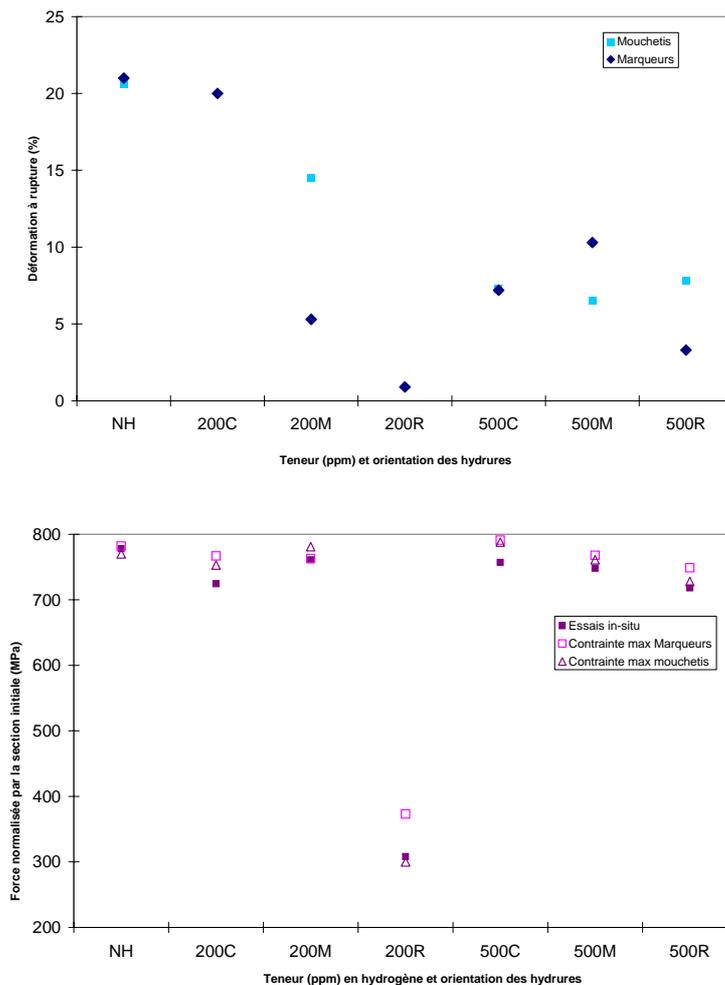


Figure 3 : Graphe où est représentée en abscisses chaque configuration teneur / orientation, et en ordonnées, la contrainte conventionnelle maximale sur la gauche et la déformation à rupture sur la droite.

#### 4.1.2 PREMIERES INTERPRETATIONS QUANT A L'INFLUENCE DE LA TENEUR EN HYDROGENE ET DE L'ORIENTATION DE HYDRURES

La superposition des courbes conventionnelles met clairement en évidence la similarité du comportement mécanique des sept configurations étudiées : parmi toutes les réponses mécaniques, sauf celle de la 200R, la limite d'élasticité varie peu (environ 650 MPa), la contrainte maximale est aussi approximativement identique (766 MPa +/- 20 pour les essais avec suivis de marqueurs). Il est à noter que le matériau 200C a un comportement (déformation et rupture) presque identique à celui non-hydruré.

Ces résultats sont en accord avec une partie de ceux rapportés dans la littérature : des teneurs en hydrogène faibles ou moyennes comme celles de notre étude, n'influencent pas ou très peu les grandeurs mécaniques. Cette similitude est à nuancer : certaines études mettent en effet en évidence un renforcement du matériau de base par les hydrures [Huang 1994].

En revanche, la déformation à rupture et la contrainte à rupture, dépendent fortement des paramètres teneur en hydrogène et orientation des hydrures. Ceci est synthétisé sur le graphe de la Figure 3. On constate que l'allongement à rupture pour le 200C est de 20%, soit quasiment identique à celui du

matériau non-hydruré (seulement 1% de moins). Mais, pour les autres configurations (200M, 500C, 500M, 500R), il varie entre 3,3 et 10,3%, et il est quasiment nul pour le 200R (0,9%).

Les résultats pour le 200C et le 200R sont assez facilement comparables à ceux de [Hong 2005], qui a réalisé des essais sur des anneaux de 4 mm de long, en Zy-4 détendu hydruré à environ 220 ppm, et ayant subi différents traitements de réorientation. Dans son cas aussi, le matériau avec hydrures circonférentiels se comporte presque comme le matériau non-hydruré : l'allongement est légèrement plus faible (3 % de moins) et la contrainte maximale légèrement plus élevée (20 MPa environ). En revanche, le matériau sur lequel le traitement de réorientation a produit le plus d'hydrures radiaux rompt lui dans la phase élastique, pour une contrainte comparable à celle de nos éprouvettes (380 MPa) et avec une ductilité quasi-nulle.

Pour la plus forte teneur, 500 ppm, nos résultats ne concordent pas avec ceux obtenus par [Arsène 1997], selon qui, à 20°C, le Zy-4 détendu subit une transition ductile-fragile autour de 1500 ppm. Pour les teneurs inférieures, la striction est élevée (entre 40 et 60%) et la déformation à rupture aussi (entre 60 et 85%). Mais, aucun de ses essais n'a été réalisé pour des teneurs inférieures à 700 ppm environ (à part sur du non-hydruré).

On peut aussi ajouter que [Bai 1991] observe une transition ductile-fragile pour des teneurs plus faibles qu'[Arsène 1997], mais qu'entre 200 et 500 ppm, à 20°C, il ne distingue aucune différence en termes de contrainte de rupture, de limite d'élasticité, de coefficient de striction ou d'allongement.

*En résumé, les essais réalisés sur notre matériau à température ambiante, mettent en évidence une influence nette de l'orientation des hydrures pour la plus faible teneur étudiée ici (200 ppm) à la fois sur la contrainte maximale et sur l'allongement à rupture, et une influence sensible de la teneur en hydrogène pour l'orientation circonférentielle. Pour les autres orientations, l'augmentation de teneur augmente la ductilité, mais cette contradiction apparente est à moduler par rapport à la morphologie réelle des hydrures, telle que révélée par l'analyse d'images.*

Les réponses mécaniques globales sont à mettre en parallèle avec les résultats d'analyse d'images présentés précédemment au cours du Chapitre 2. En effet, l'éprouvette contenant la plus grande quantité absolue d'hydrures radiaux, en terme de longueur cumulée par unité de surface, est celle dont le comportement macroscopique est le plus fortement modifié. Quant aux éprouvettes chargées à 500 ppm, qui présentent peu de différences en terme de distribution d'hydrures (la proportion de longueurs d'hydrures « radiaux » varie entre 1 et 12%), elles présentent les valeurs de contrainte maximale ou de ductilité à rupture les moins dispersées. Ces premiers résultats mécaniques sont donc qualitativement cohérents avec les résultats d'analyse d'images.

Ces essais mécaniques étant menés jusqu'à rupture, on peut comparer grossièrement les modes de rupture des différentes éprouvettes. Les surfaces de rupture des éprouvettes peuvent être classées en deux catégories : soit, la surface est inclinée à environ 45° de l'axe de traction, soit elle est perpendiculaire à cet axe. Dans la première catégorie, on ne trouve que les éprouvettes non-hydrurées ou 200C, alors que dans la seconde, on retrouve toutes les autres, bien que, d'après les courbes de traction, certaines sont entrées en plasticité. Il s'avère donc nécessaire de connaître les champs de déformation globaux, afin de pouvoir caractériser plus précisément l'influence de la teneur en hydrogène et de l'orientation des hydrures à la fois sur les modes de déformation et sur les modes de rupture.

## 4.2 MODES DE DEFORMATION

### 4.2.1 CHAMPS DE DEFORMATION GLOBAUX

L'étude des champs de déformation globaux est basée sur l'analyse de cartes des niveaux de déformation de la face plane ou de la face bombée. Avant de comparer les résultats obtenus pour les matériaux hydrurés, présentons ceux du matériau non-hydruré.

#### MATERIAU NON-HYDRURE

Précisons que le dépouillement de tous les essais a été réalisé dans les mêmes conditions et avec les mêmes hypothèses :

- dépouillement subpixel ;
- calcul du tenseur des déformations de Green-Lagrange avec l'hypothèse d'incompressibilité pour le calcul de E33.

En plus du pas des différentes grilles qui est d'environ 2  $\mu\text{m}$  pour toutes, le quadrillage de points de référence a été choisi le plus semblable possible d'un essai à l'autre en termes de nombre de points, de domaine de corrélation, de schéma d'intégration. Les différents résultats sont donc comparables, puisque la base de mesure est approximativement la même (environ 250  $\mu\text{m}$ ).

La réponse mécanique du matériau sain, non-hydruré est représentée ci-dessous (Figure 4) accompagnée de cartes de déformation illustrant l'évolution des champs de déformation au cours de la sollicitation (Figure 5). Ces cartes sont représentées dans le repère initial, non-déformé. Au cours de la première partie de l'essai, l'anneau tend à s'ovaliser dans le sens de la traction. La face bombée est alors en flexion : la face interne est en traction et la face externe est en compression relative. Les déformations restent faibles jusqu'à ce que le maximum de la contrainte conventionnelle soit atteint. Au sommet de la courbe, la plasticité apparaît : la déformation est grossièrement localisée dans des bandes encore mal définies. Puis, une fois ce maximum franchi, la localisation de la déformation dans les bandes va devenir de plus en plus intense : entre l'étape 5 et 6, la déformation dans le sens de traction double quasiment, les bandes deviennent beaucoup plus nettes, alors que l'incrément de déplacement n'est pas très élevé. Ce phénomène de localisation s'accompagne d'une forte striction et se poursuit jusqu'à rupture.

La cavité a été repérée en surface, du côté observé, pour une étape légèrement ultérieure à l'étape 9. Mais on a choisi de représenter la carte de l'étape 8 qui correspond à une chute de charge remarquable. Il est probable que dans le volume de l'éprouvette, à l'intersection des bandes macroscopiques, une cavité centrale soit apparue au début de la chute de charge sans que ce soit visible en surface, de ce côté-ci ou de l'autre, non observé (avec aucune des deux caméras, pour un problème de décalage).

Comme une cavité centrale est apparue du côté observé, la déformation est très élevée à l'intersection des bandes, là où la matière est déchirée. L'échelle a arbitrairement été limitée à une valeur de 100% pour mieux comparer les cartes des étapes ultimes. On constate que la déformation augmente plus dans la bande qui relie le quart haut-gauche au quart bas-droit de l'anneau. Cependant, la rupture de l'anneau ne s'est pas produite le long de cette bande-ci, mais du côté non-observé.

L'orientation des bandes évolue peu au cours de la sollicitation (Figure 5, étapes 6 à 10). L'angle entre l'axe de sollicitation et une des bandes est d'environ 60° (angle mesuré dans la configuration non-déformée).

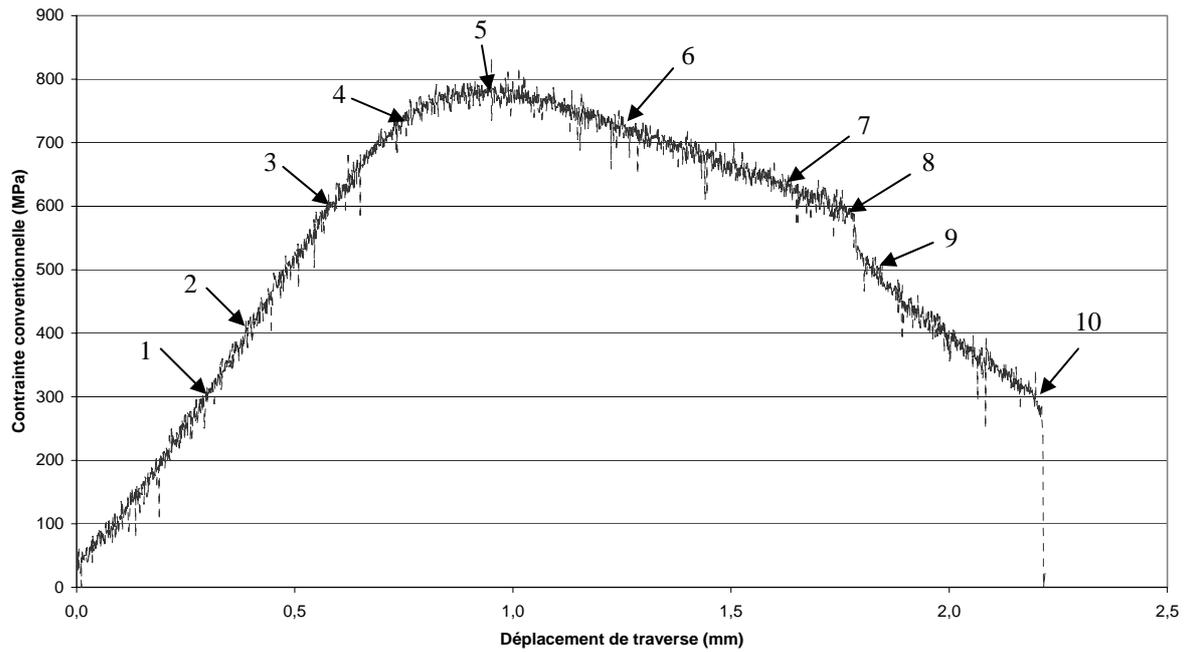
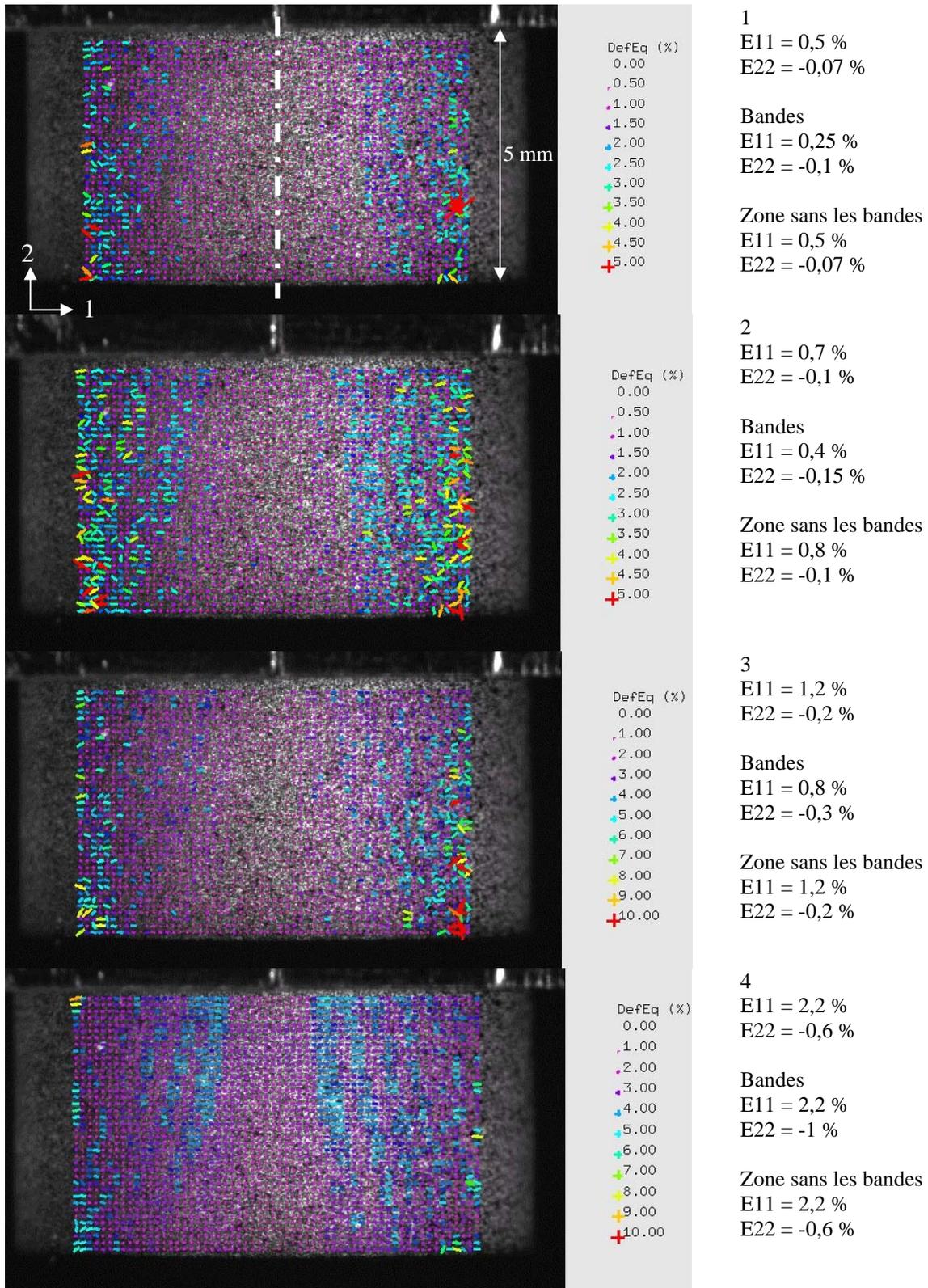


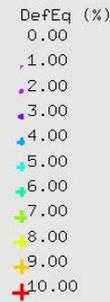
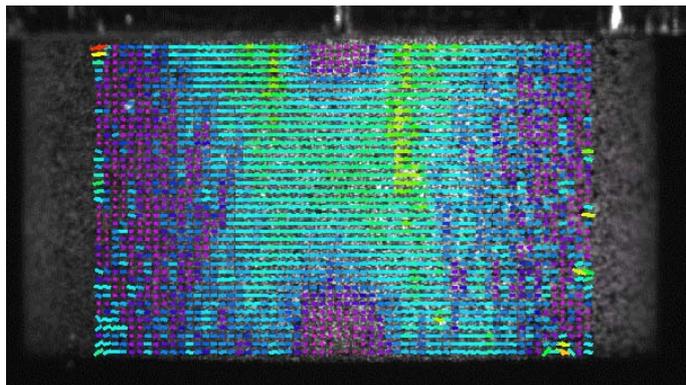
Figure 4 : Réponse mécanique du matériau non-hydruré, essai avec mouchetis. Les numéros renvoient aux cartes de déformation présentées ci-dessous.

Les cartes sont accompagnées de données quantitatives sur les composantes de la déformation E11 et E22 calculées :

- soit sur l'ensemble des points de la zone rectangulaire définie initialement (2340 points) ;
- soit sur les points correspondant à la zone où les bandes apparaissent (426 points) ;
- soit sur la zone égale à la première moins la deuxième définies précédemment (1914 points).

Ces données sont reportées sur le graphe de la Figure 6, afin de quantifier l'écart de niveau de déformation dans les bandes et dans le reste de la zone étudiée, autrement qu'en se référant à l'échelle de couleur. Au début des essais, à cause du phénomène de flexion, de faibles hétérogénéités sont mises en évidence sur les bords verticaux de la zone de corrélation : le matériau semble se déformer plus sur les bords qu'au centre de l'éprouvette. Assez tardivement, vers l'étape 4, les niveaux de déformation semblent homogènes. Puis, la déformation se localise dans les bandes, comme expliqué précédemment, et l'écart entre les niveaux de déformation dans les bandes et ailleurs ne va cesser de s'amplifier : l'écart est de six fois à la fin de l'essai pour la composante E11 entre les valeurs de déformation sur les deux zones complémentaires étudiées.

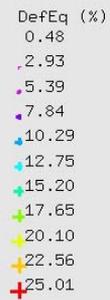
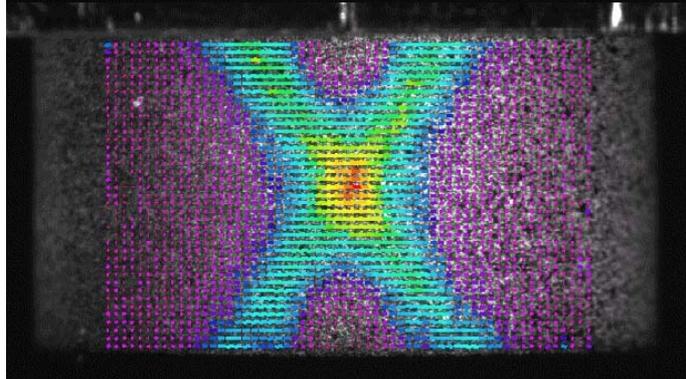




5  
 E11 = 3,7 %  
 E22 = -1,5 %

Bandes  
 E11 = 5 %  
 E22 = -2,8 %

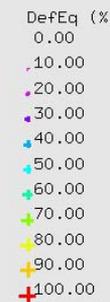
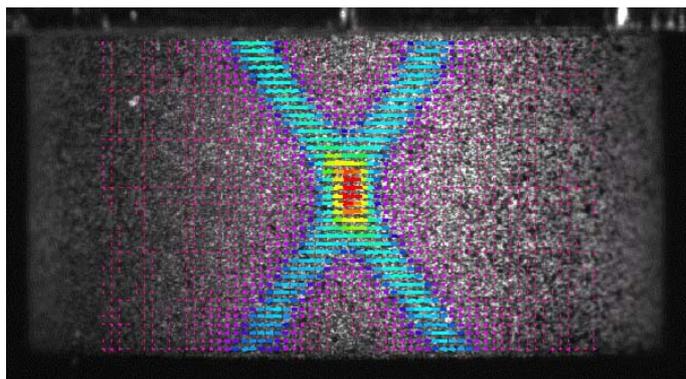
Zone sans les bandes  
 E11 = 3,5 %  
 E22 = -1,2 %



6  
 Zone entière  
 E11 = 7 %  
 E22 = -3,3 %

Bandes  
 E11 = 14 %  
 E22 = -8 %

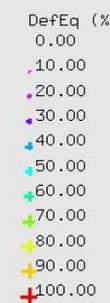
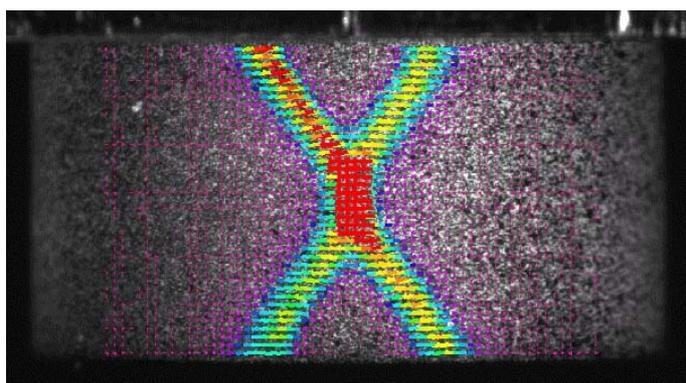
Zone sans les bandes  
 E11 = 5,6 %  
 E22 = -2,3 %



7  
 Zone entière  
 E11 = 13,5 %  
 E22 = -6,7 %

Bandes  
 E11 = 41,4 %  
 E22 = -19,5 %

Zone sans les bandes  
 E11 = 8,2 %  
 E22 = -3,7 %



8  
 E11 = 17,4 %  
 E22 = -25 %

Bandes  
 E11 = 60,5 %  
 E22 = -19,5 %

Zone sans les bandes  
 E11 = 9,5 %  
 E22 = -4,5 %

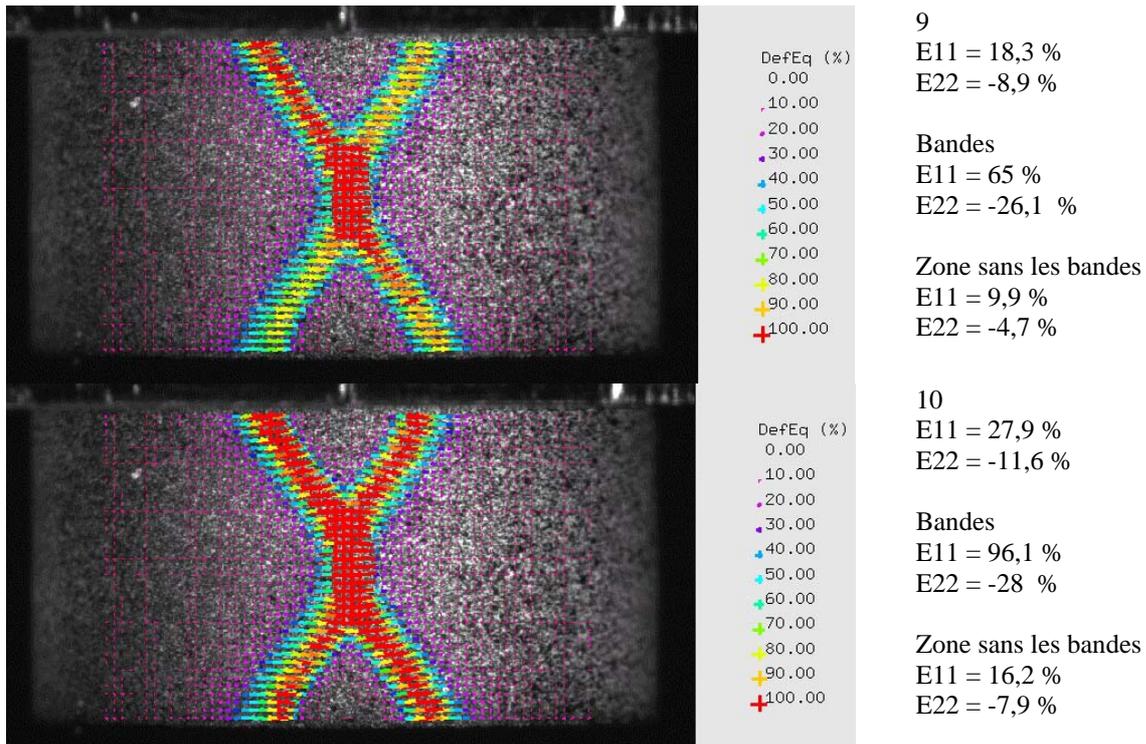


Figure 5 : Cartes de déformation du NH pour quelques instants particuliers numérotés sur la courbe de la Figure 4. Evolution des champs de déformation (déformation équivalente au sens de von Mises). Les échelles des cartes sont différentes ce qui ne facilite pas leur comparaison, mais cela est indispensable pour visualiser les champs de déformation dans toutes les configurations présentées. Ces cartes sont présentées dans la configuration initiale (non-déformée).

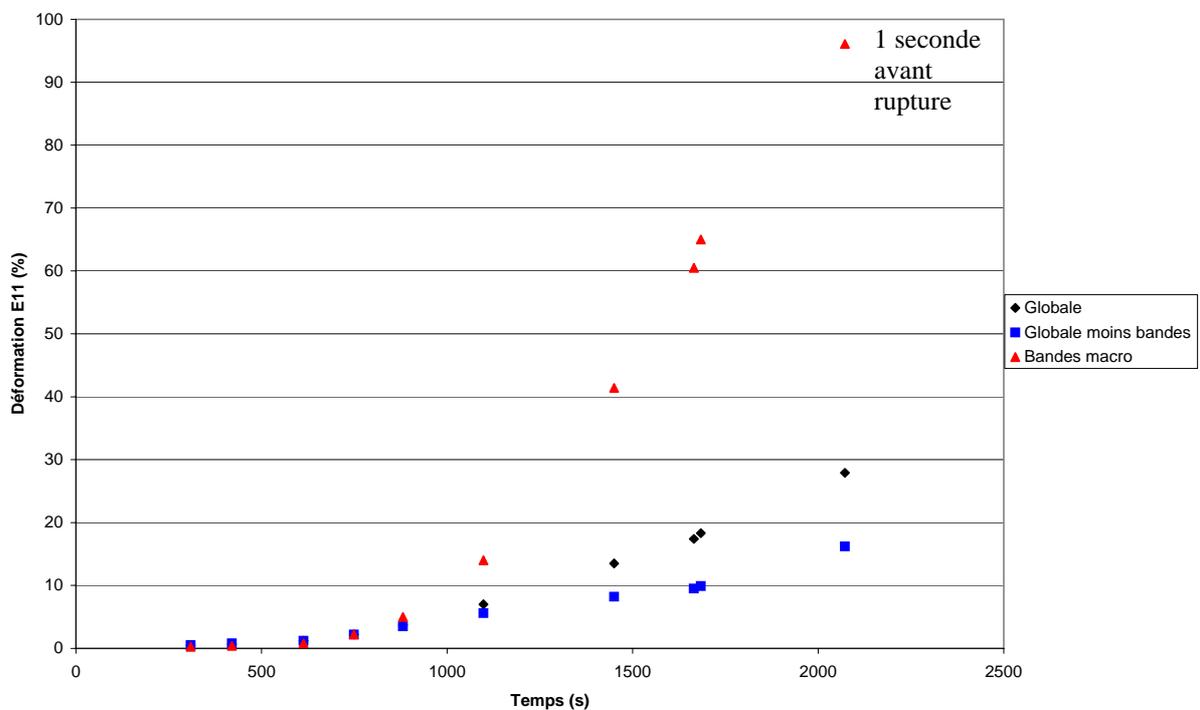


Figure 6 : Matériau NH. Valeurs de la composante globale E11 en fonction du temps, pour les différentes phases étudiées : zone globale comme indiqué sur les cartes, zone correspondant aux bandes macroscopiques, zone globale sans les bandes.

MATERIAU HYDRURE

Les cartes de déformation de la face bombée de différentes éprouvettes juste avant leur rupture sont présentées ci-dessous (Figure 7). A partir des informations qualitatives et quantitatives fournies, ces cartes nous permettent de déterminer pour les sept configurations, deux classes de modes de déformation macroscopiques : celles pour lesquelles des bandes macroscopiques de cisaillement se développent, et celle qui ne présente pas une telle localisation de la déformation (configuration 200R exclusivement).

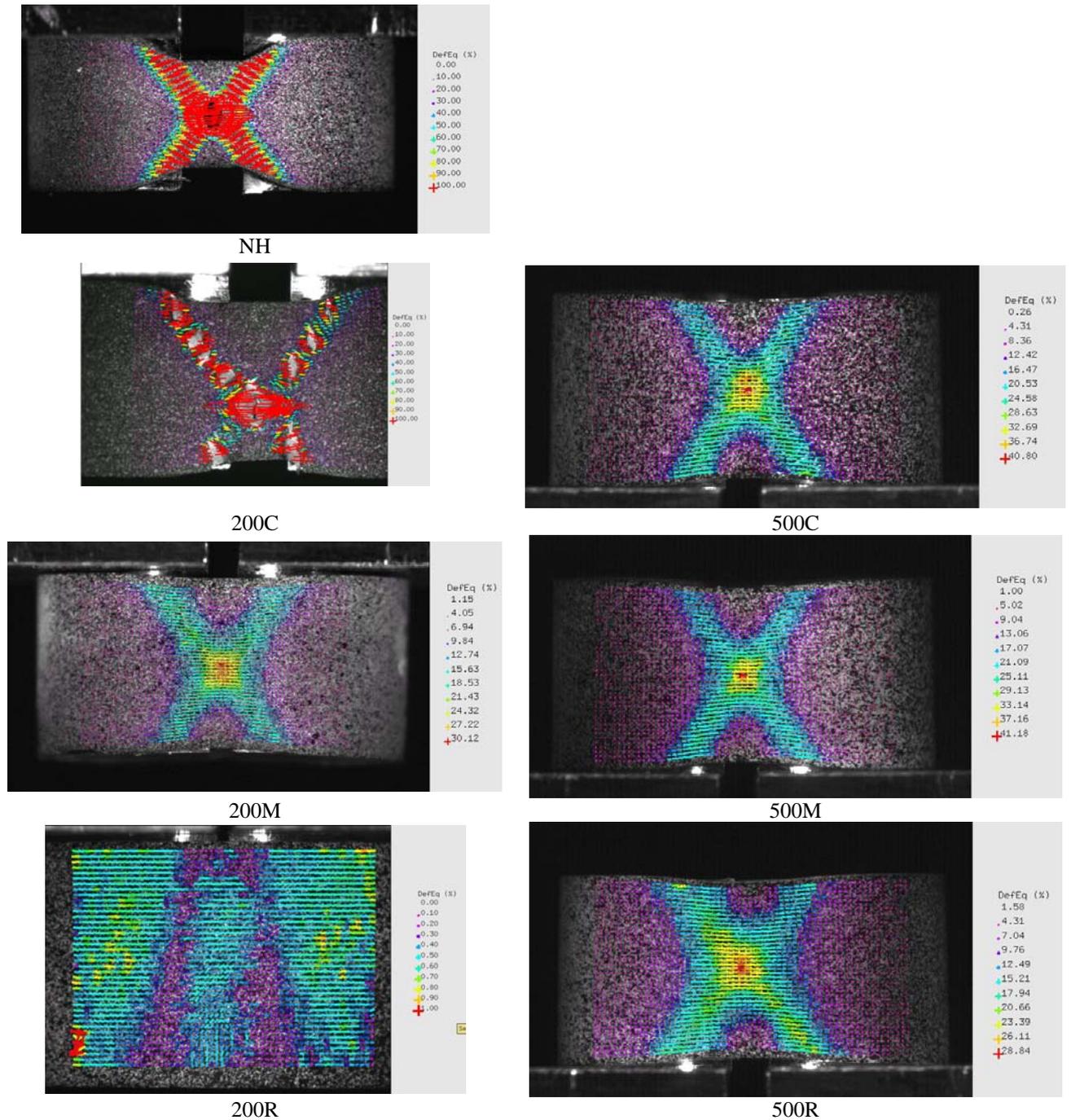


Figure 7 : Cartes de déformation des faces bombées des éprouvettes avant rupture.

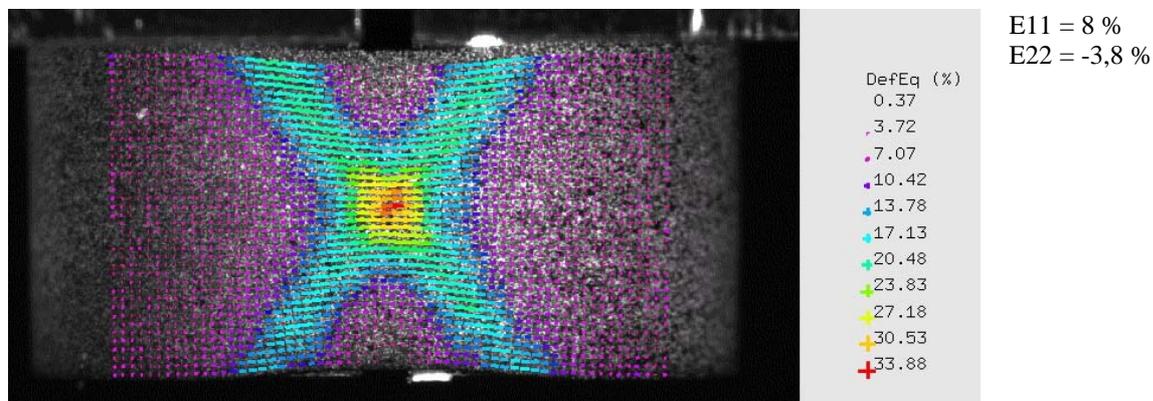
	$\Delta l/l_0$ (%)	$E11$ (%)	$E22$ (%)	$E12$ (%)
NH	20,6	28	-11,6	0,55
200C*	--	29,0	-13,4	0,52
200M	6	8,1	-3,8	-0,12
200R*	--	0,2	-0,01	-0,22
500C	7,2	9,2	-4,2	0,16
500M	5,9	8,7	-4,0	0,13
500R	7,8	9,1	-4,2	0,12

Tableau 1 : Valeurs des composantes planes du tenseur des déformations (de Green-Lagrange) juste avant rupture, exprimées en %, par rapport à la configuration de référence (état initial non-déformé). Dans la 1<sup>ère</sup> colonne est exprimé l'allongement pour les essais réalisés avec deux caméras, mesuré sur la face plane de l'anneau, grâce à un couple de points positionné dans la partie Nord et dans la partie Sud de l'éprouvette. Pour les deux essais marqués par des astérisques, l'acquisition d'images a été réalisée dans des conditions différentes de celles des autres essais. Les zones étudiées par corrélation sont plus petites et ceci contribue à expliquer le fait que pour le NH la valeur moyenne globale est plus faible que pour le 200C.

### Présence de déformation macroscopique

Dans tous les cas où la plasticité se développe, que le matériau soit hydruré ou non, la déformation se localise dans les bandes macroscopiques. Cette tendance à la localisation est connue et caractéristique du matériau : ces bandes sont visibles à l'œil nu sur le matériau non-hydruré (Figure 1 du Chapitre 3). [Arsène 1997] a elle aussi observé le développement de bandes sur ses anneaux et [Grange 1998] sur ses éprouvettes plates. Dans le cas des essais sur anneaux, elle est la conséquence à la fois du comportement du matériau et du mode complexe de sollicitation.

L'analyse de l'histoire complète du champ de déformation connue grâce à l'enregistrement en continu des images révèle que ces bandes apparaissent nettement lorsque la contrainte conventionnelle est maximale, puis le niveau de déformation dans ces bandes ne fait qu'augmenter. Ceci a été illustré pour le matériau non-hydruré. Pour les autres configurations, le niveau de déformation global et le niveau de déformation dans les bandes varient selon l'état d'hydruration. Mais, de même que le comportement mécanique de toutes ses configurations est identique, de même les modes de déformation macroscopique sont similaires : à chaque instant et jusqu'à rupture, les champs de déformation d'un matériau hydruré sont comparables à ceux du non-hydruré pour une valeur de contrainte conventionnelle et de déformation moyenne équivalentes (Figure 8 et Figure 9).



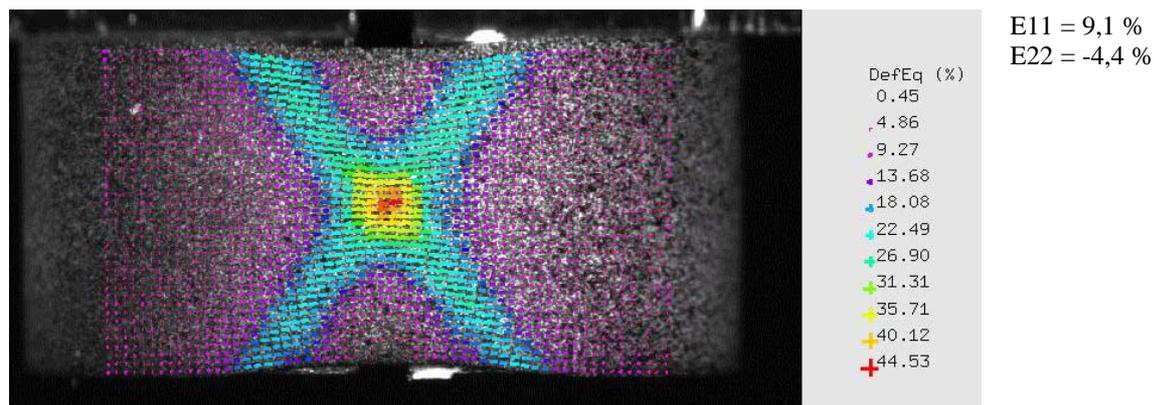


Figure 8 : Cartes de déformation du matériau non-hydruré à des niveaux de déformation équivalente comparables à ceux atteints avant la rupture par les matériaux 200M, 500C, 500M, 500R.

Sur la Figure 9 est présentée l'évolution de la déformation en fonction du temps pour le matériau non-hydruré et le matériau 200M. Nous avons choisi de superposer différentes courbes, représentant chacune l'évolution de la déformation d'une zone spécifique, afin d'une part de mettre en évidence la localisation de la déformation d'une autre façon, et d'autre part afin de pouvoir comparer l'évolution de la déformation pour deux matériaux différents, le non-hydruré et le 200M.

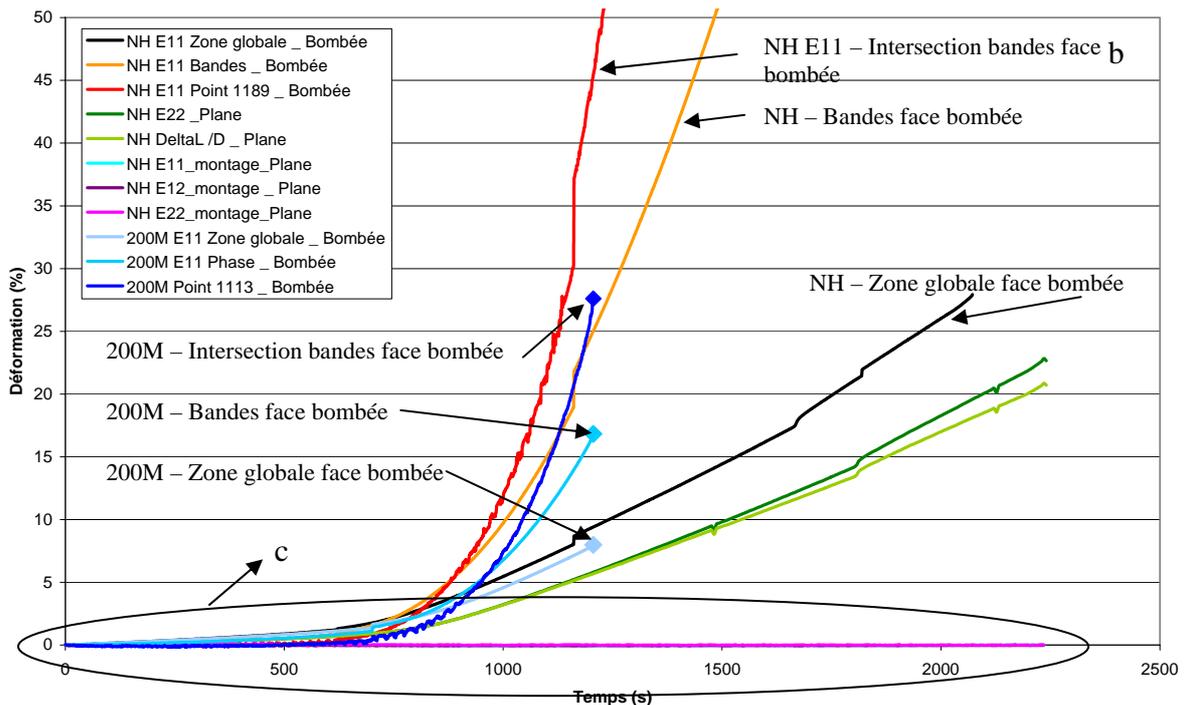
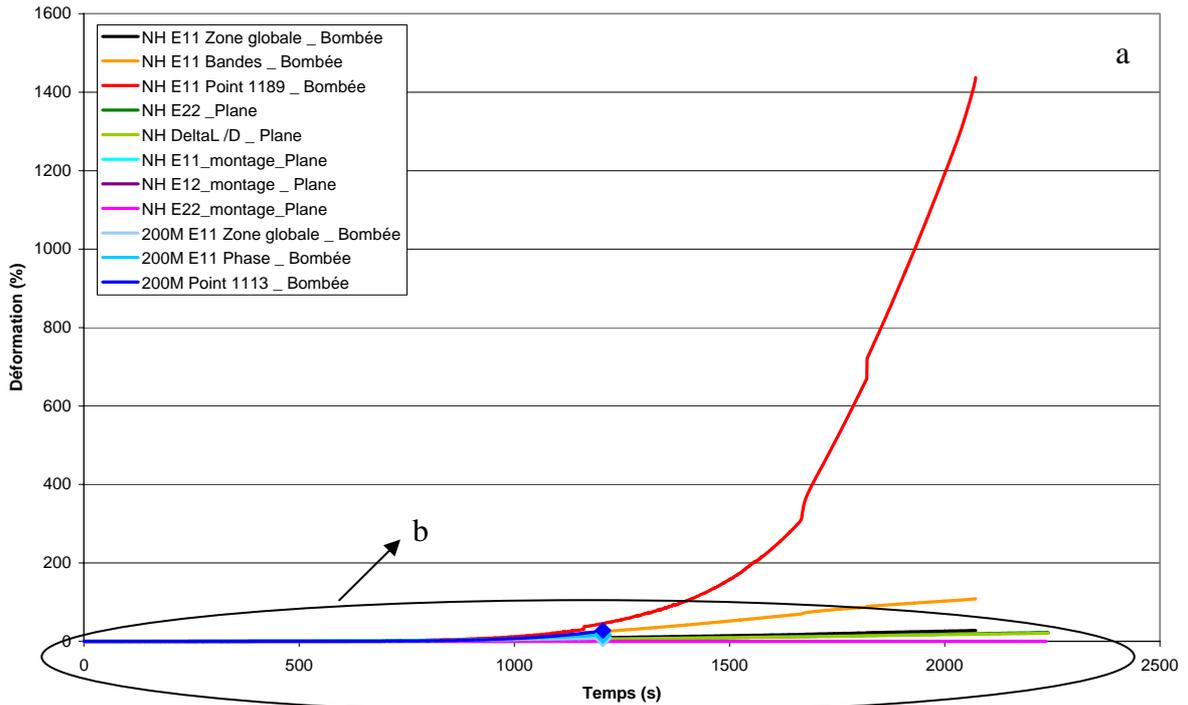
Sur le premier graphe, deux courbes seulement se distinguent : la déformation dans le sens de traction (E11) pour le NH dans les bandes (courbe orange) et surtout en un point choisi à l'intersection des bandes (courbe rouge). La première atteint la valeur de 108% en fin d'essai, la seconde 1437%. Cette dernière valeur n'a pas de signification intrinsèque, mais cela confirme tout de même la très forte localisation à l'intersection des bandes.

Sur le second graphe (qui est un agrandissement du précédent), six autres courbes apparaissent distinctement : trois concernent le matériau NH et trois autres le 200M. Les courbes du NH sont celles de la déformation E11 pour la zone globale d'analyse (zone rectangulaire sur la face bombée, courbe noire), la déformation E22 de la face plane (E22 correspond au sens de traction pour cette face, courbe vert foncé) et l'allongement mesuré à partir de quelques points placés sur la face plane, comme des marqueurs, et rapporté au diamètre extérieur (courbe vert clair). Ces trois courbes sont à peu près superposées et suivant la même pente. Leur valeur à rupture est respectivement de : 27,9%, 22,6% et 20,7%. Il est normal que la déformation E11 de la face bombée soit plus élevée que les deux dernières déformations présentées, car E11 correspond à une surface sur la zone bombée ne prenant pas en compte les extrémités (trop floues) qui ne se déforment pas.

Les trois autres courbes sont celles de 200M. Elles s'arrêtent plus tôt, puisque le matériau est moins ductile, et se différencient les unes des autres par la zone qu'elles représentent : celle qui atteint la déformation la plus élevée correspond à la déformation en un point à l'intersection des bandes (courbe bleu foncé), l'autre correspond à la déformation dans les bandes (courbe bleu intermédiaire) et la dernière à la déformation sur l'ensemble de la zone étudiée (courbe bleu ciel). Les déformations maximales atteintes à rupture sont respectivement : 27,6%, 16,8 % et 8 %. Elles sont légèrement inférieures aux déformations sur des zones analogues du matériau non-hydruré. Cet écart est faible sur la mesure de la zone globale : 9,4% pour le NH et 8% pour le 200M, mais s'accroît lorsque l'on compare les valeurs dans les bandes (26% contre 16,8%) ou à l'intersection des bandes (45,4% contre 27,6%).

Sur le dernier graphe, qui est aussi un agrandissement du premier, trois autres courbes (violette, rose et bleue) semblent confondues avec l'axe des abscisses : il s'agit de la mesure de la déformation suivant

différentes composantes (E11, E22 = sens de traction, E12) de points appartenant au montage (plus exactement aux demi-cylindres du montage autour desquels les anneaux sont positionnés). Ces mesures sont censées être nulles. On constate qu'au début de la sollicitation, les valeurs oscillent autour de  $0,05\% \pm 0,05\%$ . Cette valeur est cohérente avec l'estimation des incertitudes sur les mesures macroscopiques. Cette oscillation s'explique par la phase de mise en place du montage et de rattrapage des jeux, qui est longue à cause du montage intermédiaire utilisé pour tourner les mors à  $45^\circ$ . A partir d'un certain temps (700 s environ), les valeurs de ces déformations oscillent beaucoup moins et sont très proches de zéro (les extrema à la fin de l'essai sont d'environ :  $-0,017\%$  ou  $0,028\%$ ).



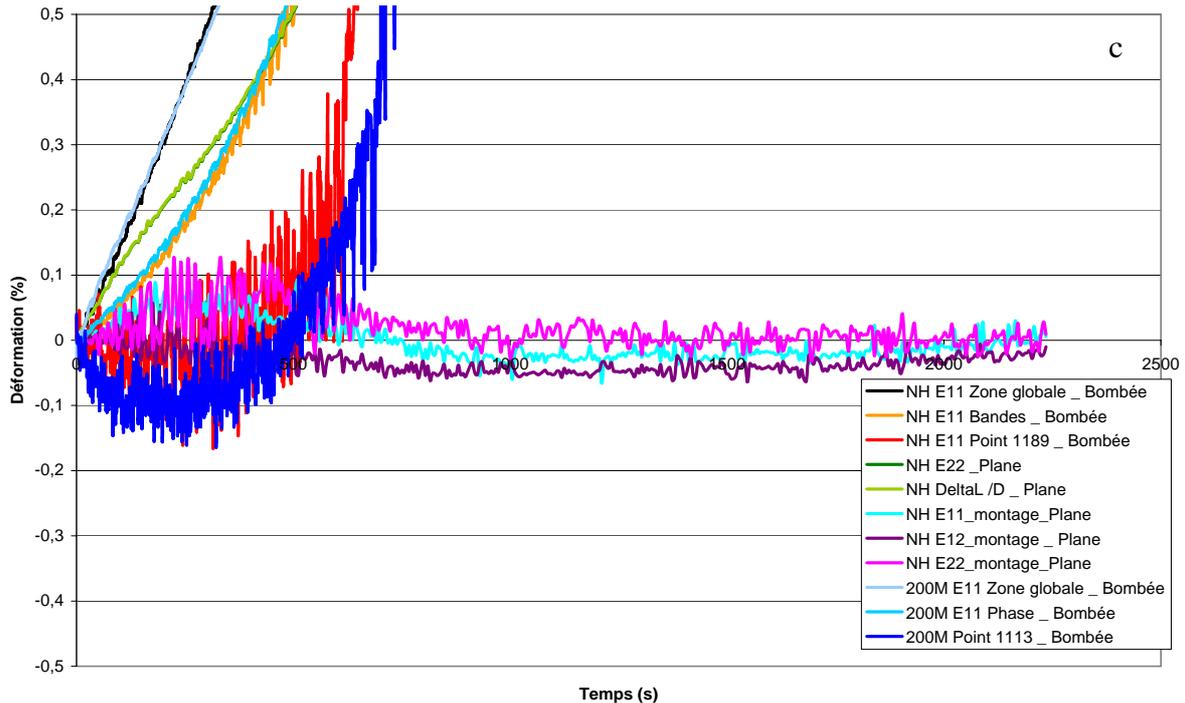


Figure 9 : Evolution de la déformation en fonction du temps pour le matériau non-hydruré et le matériau 200 ppm. Comparaison de l'évolution de différentes composantes, ou de la même composante mais sur différentes zones. Les graphes sont présentés à différentes échelles pour pouvoir mieux cerner les détails. Le graphe b est un détail du graphe a, et le c un détail du b.

#### Absence de déformation macroscopique

Dans le cas du 200R, aucune bande n'est visible sur la carte, même si les champs de déformation représentés sur la carte ne sont pas homogènes. L'absence de bandes, ajoutée à la faible contrainte à rupture systématiquement observée pour cette configuration (entre 300 et 370 MPa), à l'absence de striction et à la quasi-absence de ductilité confirme que cette éprouvette rompt avant d'entrer en plasticité, de manière fragile, vraisemblablement à cause de l'orientation des hydrures. Il faut remarquer que malgré le caractère fragile de cette rupture, les différentes éprouvettes de cette configuration ont toutes rompues pour des valeurs de contrainte conventionnelle comparables.

Sur la face bombée (Figure 10), les champs de déformation de la composante E11 (composante de la déformation dans le sens de traction) sont hétérogènes, mais symétriques par rapport à l'axe de l'anneau (axe de symétrie du montage, perpendiculaire à l'axe de traction). La partie correspondant au plan médian de l'anneau est en compression (valeurs de E11 faiblement négatives, jusqu'à -0,31%), tandis que les parties adjacentes de l'anneau sont légèrement en traction (jusqu'à 0,60% environ). Ceci correspond à une sollicitation de flexion au niveau de l'équateur – même si l'amplitude des déformations est faible –, qui s'explique par la géométrie de l'éprouvette : au début de l'essai, l'anneau « se redresse » et s'allonge dans le sens de la sollicitation. Les faces bombées de l'anneau tendent donc à s'aplanir ce qui d'une part, engendre une configuration de flexion, d'autre part, provoque un recul de la partie médiane de l'anneau par rapport à la caméra, mais ce dernier point est

négligeable. C'est principalement le premier facteur qui permet d'interpréter les champs de déformation atypiques du 200R.

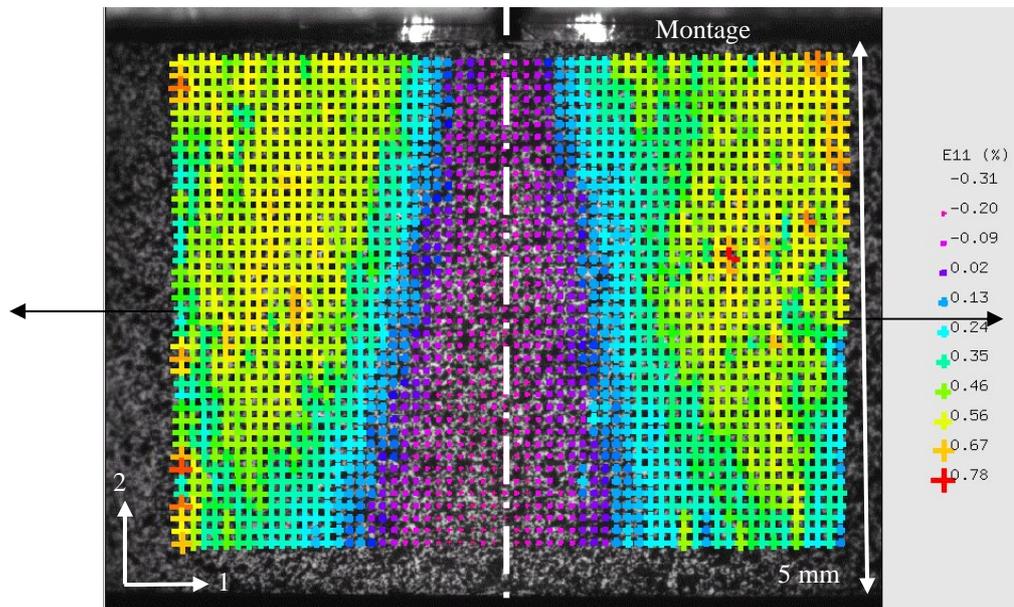


Figure 10 : Configuration 200R. Carte de déformation de la face bombée, juste avant rupture (étape 236). Composante de la déformation dans le sens de traction E11.

La dissymétrie des champs entre le haut et le bas de la carte, qui correspondent respectivement à la partie de l'anneau contre le montage et celle libre, doit être due au fait que l'anneau n'était pas suffisamment enfoncé sur les deux demi-cylindres. Ceux-ci pouvaient s'écarter davantage vers le montage que vers leur extrémité libre en début d'essai, ce qui explique que la partie en compression est plus large vers les bords libres que vers le montage.

D'ailleurs, on retrouve ces deux caractéristiques (dissymétrie entre les deux bords de l'anneau et champ de déformation caractéristique de la flexion) dans la configuration non-hydrurée à une étape de déformation comparable (étape 250) (Figure 11). Les valeurs de déformation dans la partie en compression sont approximativement de -0,22 %, et celles dans la partie en traction de 0,70-0,80 %. Ces valeurs sont donc du même ordre de grandeur que celles de la configuration 200R.

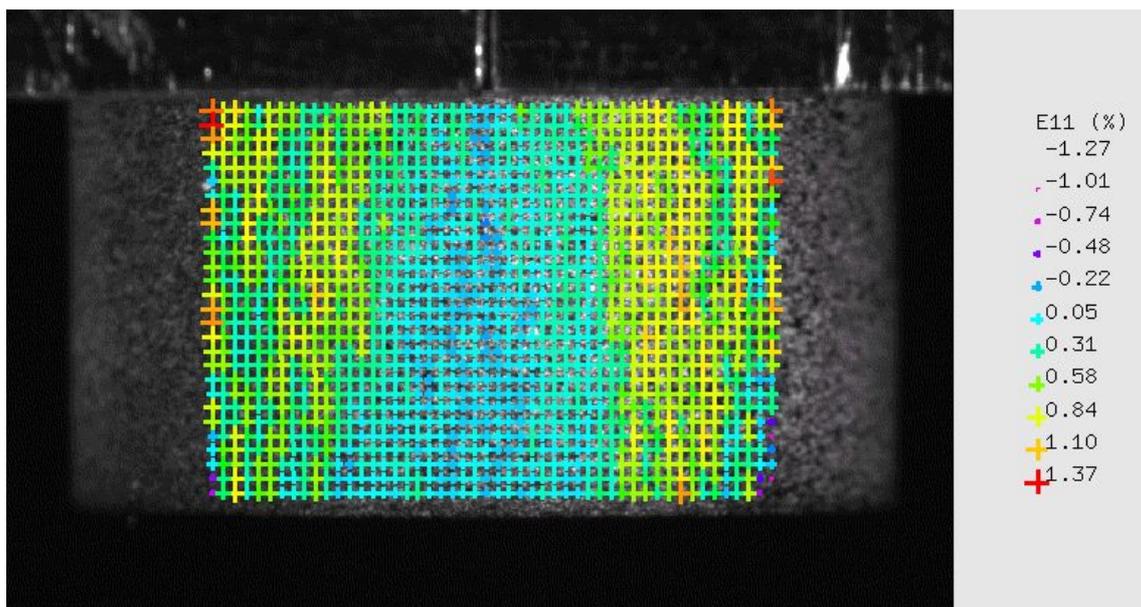


Figure 11 : Configuration NH. Carte de déformation de la face bombée à une étape comparable à celle de la configuration 200R (étape 250).  $E11 = 3,77 \cdot 10^{-3}$  ;  $E22 = -7,43 \cdot 10^{-4}$  ;  $E12 = -2,81 \cdot 10^{-5}$ . Cette carte est issue d'un dépouillement par corrélation différent en terme de nombre total de points et de taille de domaine de corrélation des cartes de la Figure 5 mieux adapté pour les faibles déformations.

*Conclusion : les cartes de déformation, nous permettent d'accéder aux champs de déformation des éprouvettes testées, sur leur face plane et leur face bombée, tout au long de l'essai. La comparaison des cartes met d'abord en évidence, à l'échelle globale (de l'anneau), la similitude des champs de déformation pour les différentes configurations de matériau, qu'il soit hydruré ou non. Ces champs de déformation évoluent au cours de la sollicitation de manière quasi identique pour les sept cas étudiés. Les cartes permettent également de quantifier la forte localisation de la déformation, qui s'explique à la fois par la tendance du matériau à localiser et par la géométrie de l'éprouvette. Cet état de sollicitation complexe empêche l'existence d'une zone assez grande où la déformation atteint un niveau élevé et est homogène et où l'endommagement est facile à observer. C'est d'ailleurs pour cela que des essais sur éprouvettes plates ont été envisagés. Ils n'ont pas pu être réalisés pour des raisons techniques concernant l'hydruration des tôles.*

*Cependant, la similitude du schéma de localisation pour toutes les configurations n'engendre pas la similitude des comportements à rupture : seuls les cas NH et 200C rompent d'une manière ductile, le long d'une des bandes de localisation macroscopique de la déformation. Une étude plus approfondie des modes de déformation à l'échelle de la microstructure d'une part, et d'autre part des faciès de rupture est donc nécessaire pour comprendre comment se produit la rupture.*

## 4.2.2 CHAMPS DE DEFORMATION LOCAUX

L'étude des champs de déformation globaux, réalisée à l'échelle de l'anneau, indique que ceux-ci ne sont pas perturbés par la présence d'hydrures, bien que les hydrures aient une influence sur le mode de rupture. Il est donc nécessaire d'effectuer une étude à l'échelle des hydrures, l'échelle « locale », pour comparer qualitativement et quantitativement les champs locaux de déformation. Nous présenterons d'abord les courbes en termes de « Contrainte conventionnelle – Déplacement du mors mobile » pour les sept essais in-situ réalisés, puis nous commenterons l'évolution des champs locaux de déformation à partir de cartes issues d'analyse d'images.

### Courbes des essais de traction in-situ

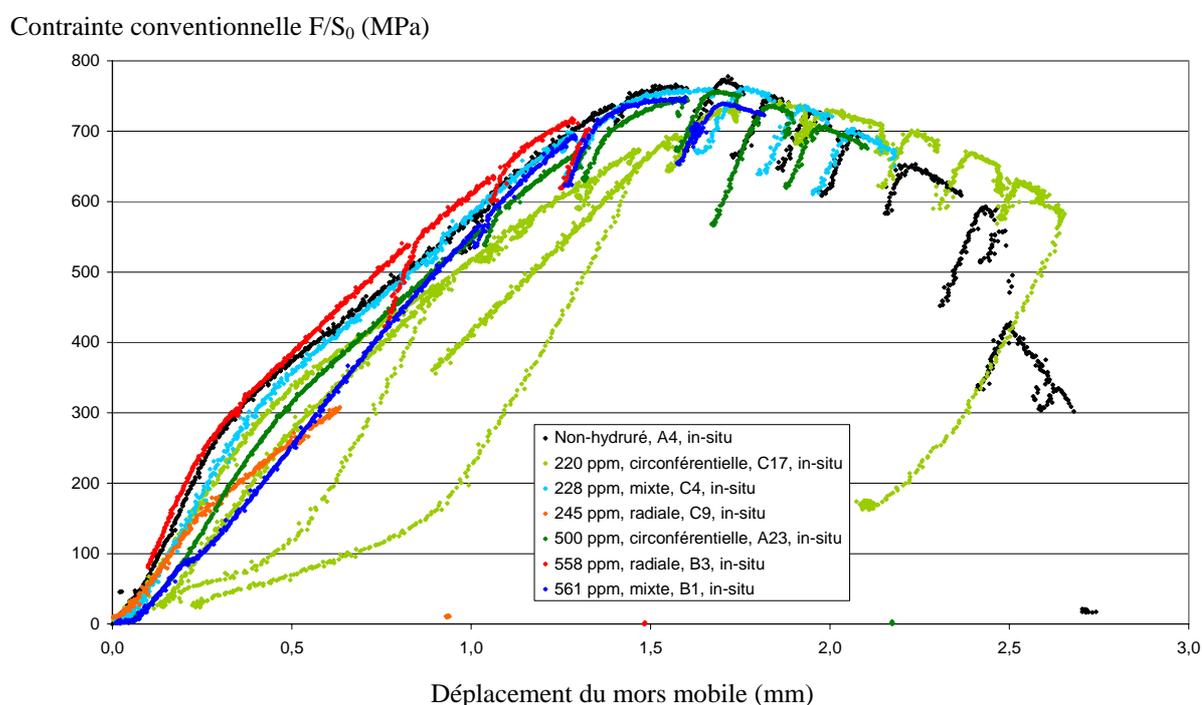


Figure 12 : Réponses mécaniques obtenues lors des essais in-situ. Force normalisée par la section en fonction du déplacement de traverse.

Comme à l'issue des essais macroscopiques, les courbes obtenues se superposent assez bien : l'allure des réponses mécaniques est très proche, la principale différence porte sur la ductilité et l'apparition de la rupture.

Les différences de pente entre les différents types d'essai (macroscopiques et in-situ) s'expliquent par la différence de rigidité entre les machines utilisées, la machine d'essai in-situ étant plus souple que les machines macroscopiques utilisées (pour les essais avec mouchetis ou les essais avec suivi de marqueurs). Dans la partie élastique des courbes des essais in-situ elles-mêmes, on note un changement de pente de la courbe, qui doit être dû au montage et à ses imperfections (glissement dans les mors), ainsi qu'à la machine utilisée.

La comparaison de ces courbes avec celles obtenues lors des essais macroscopiques peut être réalisée en terme de contrainte conventionnelle, mais pas en terme de déplacement : il n'était pas possible de

fixer un extensomètre sur le montage, nous disposons donc du déplacement de traverse de la machine seulement.

De plus, on distingue sur ces courbes les remontées en charge effectuées à chaque étape de déformation : afin d'éviter une relaxation excessive du matériau pendant l'acquisition de la série d'images (durée de 15 mn par image et acquisition d'au moins 4 images à chaque étape), on décharge légèrement le matériau. Les décharges ont été enregistrées pour le premier essai seulement, pour les autres seules les remontées en charge sont visibles et matérialisent ainsi les étapes de déformation.

Dans ces essais, la réponse mécanique doit être interprétée davantage de manière qualitative que quantitative. En effet, l'essai de traction n'est pas réalisé avec la rigueur nécessaire à l'obtention de données mécaniques sûres : l'essai est interrompu de nombreuses fois, alors que le matériau peut relaxer, et l'essai peut durer longtemps. Le principal objectif de ces essais est de permettre l'étude des modes de déformation et d'endommagement, d'une part grâce à l'observation des éprouvettes et des hydrures au cours de la sollicitation, et d'autre part grâce à l'analyse des cartes de déformation et la détermination de l'influence éventuelle des hydrures sur les champs de déformation. D'un point de vue quantitatif, les cartes rendent possible l'évaluation des niveaux de déformation locaux associés à l'activation des mécanismes d'endommagement, si il y a lieu.

Remarque :

Les surfaces planes sur lesquelles les micro-grilles sont déposées sont polies sans être attaquées chimiquement : les hydrures sont donc plus difficiles à observer (visibles seulement en BSE), mais cela permet d'obtenir des cartes de déformation sans artefact. En effet, l'attaque creuse les hydrures et peut conduire à de mauvaises interprétations, comme sur la carte ci-dessous, où la concentration des isovaleurs autour des hydrures avait d'abord été interprétée comme une déformation plus importante au niveau des hydrures, alors qu'en réalité l'hydrure a été dissout en surface.

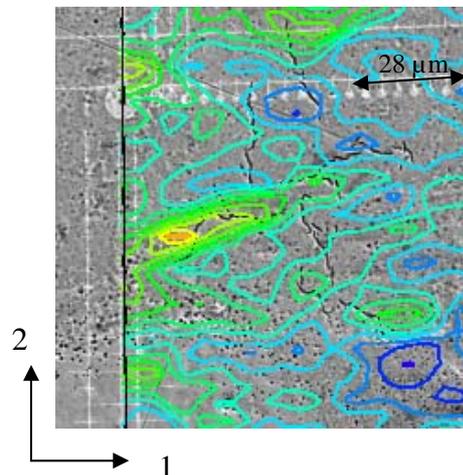


Figure 13 : Isovaleurs de la composante de la déformation E22 (dans le sens de sollicitation) concentrées autour d'un hydrure radial, révélé par attaque chimique (pas de la grille 4 μm).

### *Etude des bandes de déformation à l'échelle de la microstructure*

On constate que dans toutes les configurations dans lesquelles la plasticité s'est développée au niveau macroscopique (tous les cas sauf 200R), les champs de déformation locaux présentent des hétérogénéités : sur les cartes présentées dans les Figure 14 et Figure 16, on remarque que la déformation est localisée dans des bandes pour les niveaux de déformation les plus élevées.

Premières étapes de déformation : les cartes correspondant aux premières étapes de déformation présentent des hétérogénéités : la déformation semble être localisée dans des bandes horizontales et verticales régulièrement espacées (1<sup>ère</sup> carte de la Figure 14). Mais celles-ci sont liées à des artefacts d'imagerie. Ces bandes sont observées jusqu'à une déformation globale sur la zone étudiée de 3% environ, mais à ce niveau les bandes de localisation de la déformation commencent elles aussi à apparaître.

Etapes de déformation suivantes : dès que le niveau de déformation est suffisamment élevé (environ 5%), les bandes dues au « bruit » de l'acquisition, ne sont plus visibles ; en revanche, des hétérogénéités de déformation dues aux mécanismes de plasticité du matériau sont mises en évidence. L'intensité de la déformation locale dans ces bandes varie suivant le niveau de déformation global dans la zone étudiée. D'une manière générale, la déformation globale moyenne est plus élevée où les bandes de cisaillement macroscopique débouchent. Ces bandes apparaissent à la fois dans le matériau non-hydruré et dans le matériau hydruré.

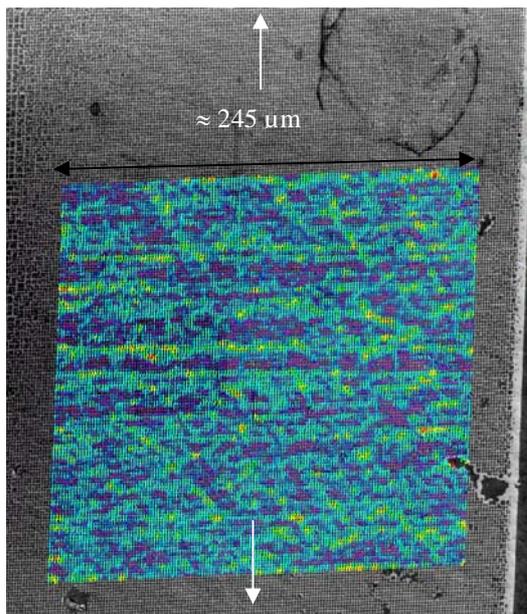
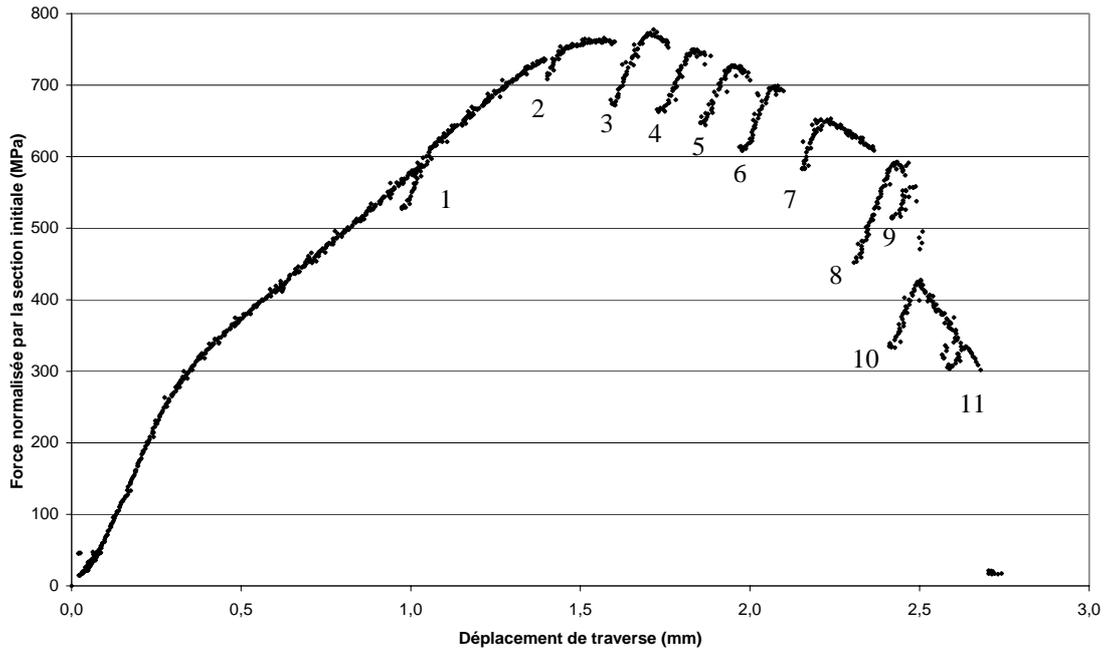
#### CARTES DE DEFORMATION DU MATERIAU NON-HYDRURE

Dans les figures suivantes (Figure 14 et Figure 15), sont représentées les cartes de déformation pour le matériau non-hydruré. La zone choisie est située sur le côté droit de l'éprouvette au-dessous de l'équateur, là où les bandes de cisaillement macroscopique débouchent (zone D09). Bien que la rupture soit survenue à l'étape 11 dans la zone D05 (située au-dessus de l'équateur mais approximativement symétrique de la D09 par rapport à l'équateur), le dépouillement dans la zone D09 n'a pas pu être entrepris au-delà de l'étape de déformation 6, parce que le relief de la surface est important et rend très difficile voire empêche la corrélation. Ces différentes cartes permettent d'observer l'évolution de la formation des bandes. Dans la première série de cartes, présentées dans l'état déformé, on peut visualiser la déformation de l'ensemble dans la zone étudiée, dans la deuxième série de cartes, présentées toutes dans la configuration initiale, on peut davantage étudier le développement des bandes. Peu de nouvelles bandes sont créées au fur et à mesure que la déformation globale augmente, mais l'intensité de la déformation au sein de ces bandes s'accroît.

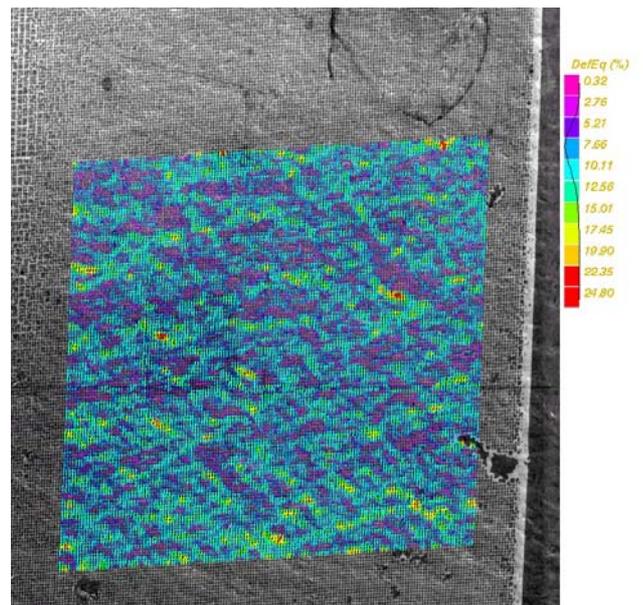
La géométrie des bandes est difficile à caractériser pour différentes raisons :

- d'une part, la sollicitation n'est pas homogène à l'échelle de l'anneau : la géométrie circulaire induit un gradient entre la face interne et la face externe pour certains niveaux de déformation, la première étant en traction, la seconde en compression ;
- d'autre part, la tendance à la localisation de ce matériau renforcée par cette géométrie engendre la création de bandes macroscopiques de déformation : si la zone avec micro-grille est située là où une de ces bandes débouche, sur la surface plane, la déformation va être élevée, sinon, elle sera plus faible. Si la bande macroscopique traverse en partie la zone avec micro-grille, alors la déformation dans celle-ci sera très hétérogène.

De plus, on remarque que le schéma de ces bandes est différent de celui habituellement observé dans les alliages de zirconium, mais ceci s'explique sans doute par la différence de plan d'observation. Nos observations concernent principalement le plan radial-circonférentiel, afin d'observer les hydrures, alors qu'habituellement c'est le plan de laminage (long-travers) qui correspond au plan axial-circonférentiel des anneaux, qui est étudié. En effet, dans le Zr grade 702 observé par [Doumalin 2000], des bandes à  $\pm 48^\circ$  par rapport à la direction de sollicitation ont été mises en évidence par les cartes de déformation. Elles apparaissent très tôt (déformation globale inférieure à 1%) et leur schéma n'évolue plus [Doumalin 2000].



$E11 = -1,75\%$ ,  $E22 = 3,37\%$ ,  $E12 = 1,36\%$



$E11 = -2,49\%$ ,  $E22 = 6,68\%$ ,  $E12 = 2,59\%$

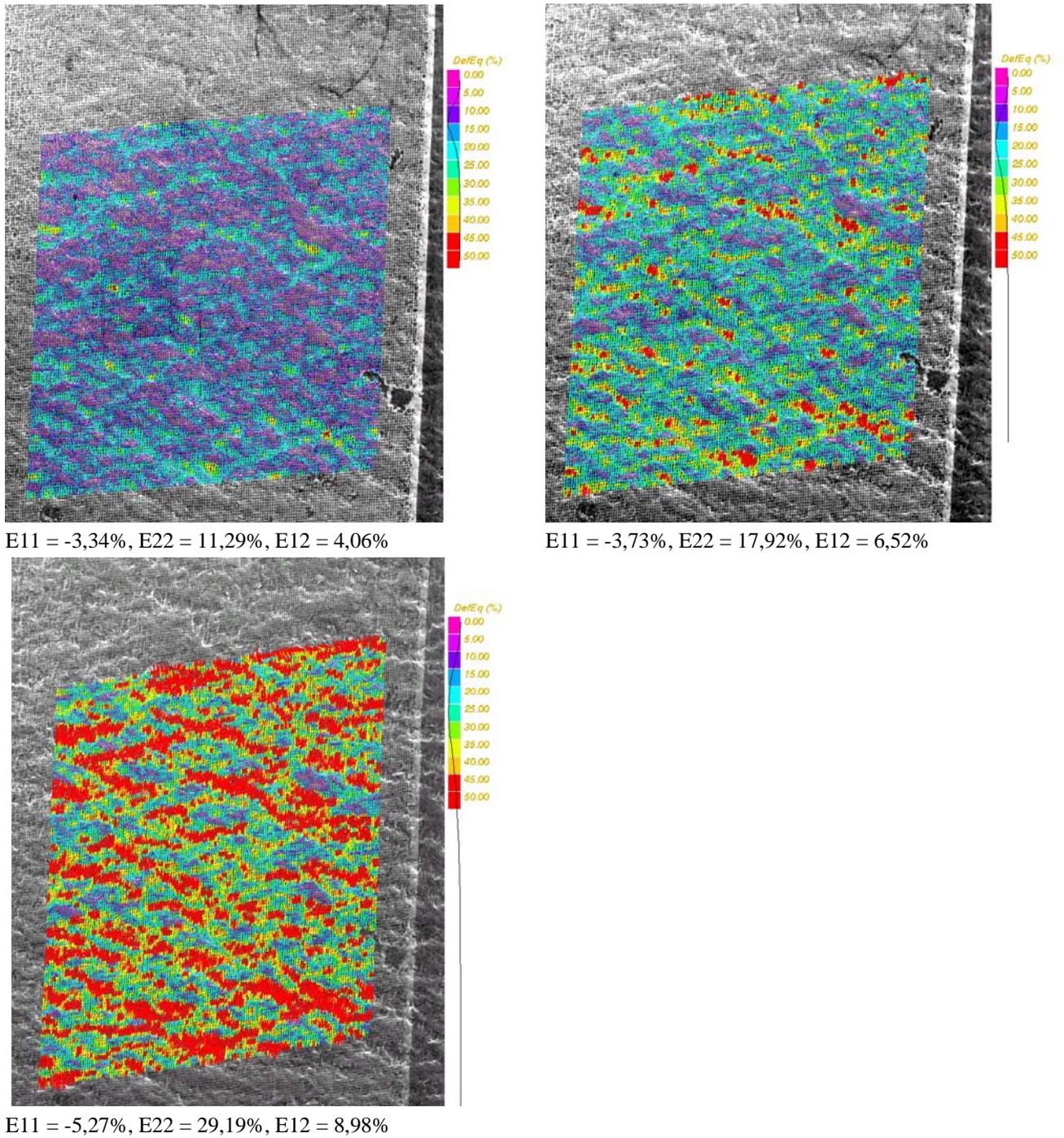
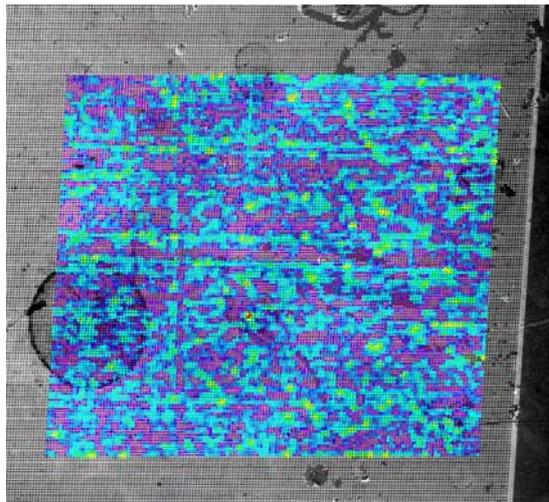
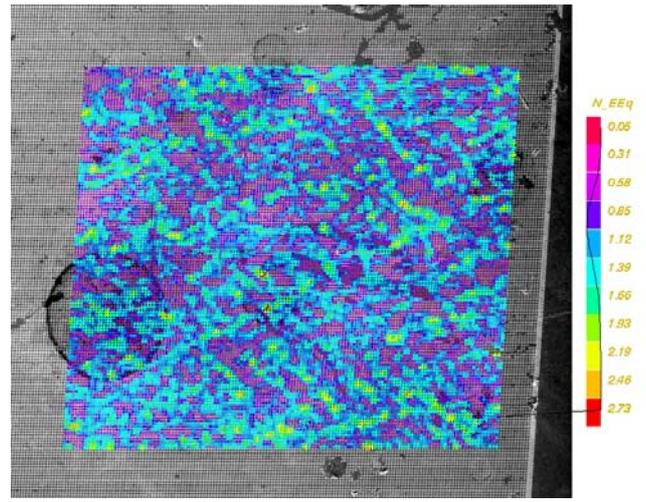


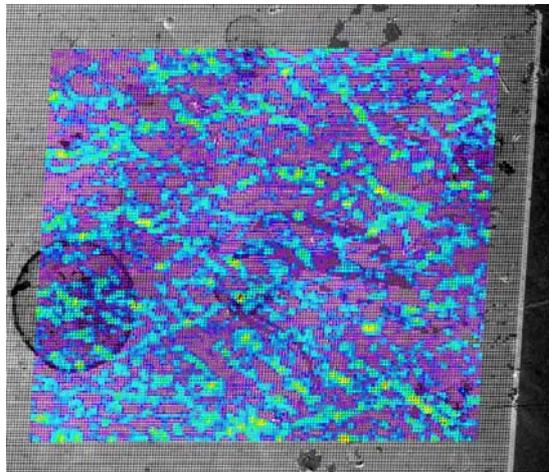
Figure 14 : NH, illustration de l'évolution du schéma de bandes. Cartes de déformation dans la configuration déformée, de la zone D09 (zone n°9 du côté droit de l'éprouvette), aux étapes de déformation 2, 3, 4, 5 et 6. Composante de la déformation équivalente. Les flèches verticales sur la première carte indiquent la direction de la sollicitation.



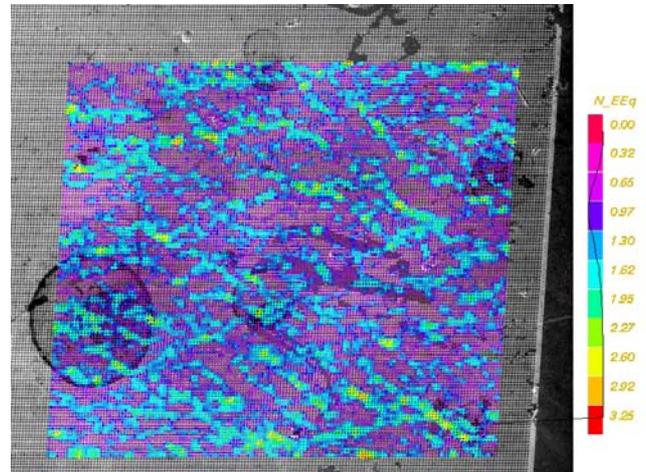
Etape 2,  $-14^\circ$



Etape 3,  $-14,7^\circ$



Etape 4,  $-14,5^\circ$



Etape 5,  $-15,5^\circ$



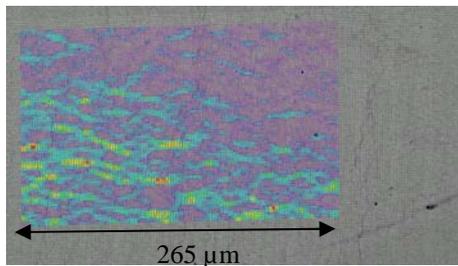
Etape 6,  $-13,8^\circ$

Figure 15 : NH, illustration de l'évolution du schéma de bandes. Cartes de déformation dans la configuration initiale non-déformée, de la zone D09, aux étapes de déformation 2, 3, 4, 5 et 6. Composante de la déformation équivalente normalisée. La désorientation de la traction simple par rapport à l'axe y est indiquée sous chaque image.

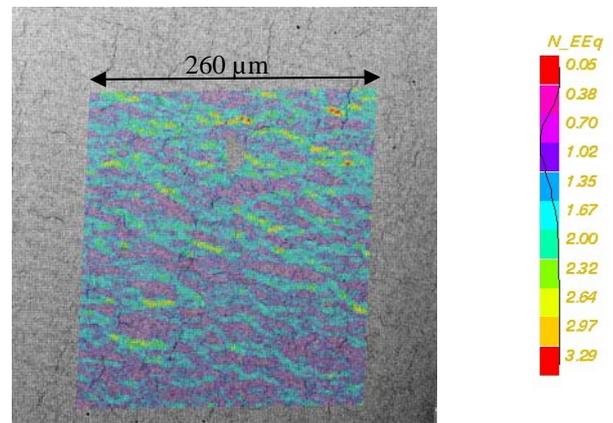
CARTES DE DEFORMATION DES MATERIAUX HYDRURES

Dans la Figure 16 est représentée pour chaque cas dans lesquels de la plasticité, aux échelles locales et globales s'est développée (200C, 200M, 500C, 500M, 500R), une carte de déformation d'une zone ayant un niveau de déformation suffisamment élevé. Comme les images des surfaces couvertes par les micro-grilles ont été acquises à la fois en électrons secondaires et en électrons rétrodiffusés, on peut utiliser les images du deuxième type, lors de la phase de post-traitement des essais par corrélation, afin de superposer exactement les cartes de déformation à la microstructure et à ses hydrures. Sur les cartes de déformation, on constate que dans ces cinq configurations, ces bandes sont présentes. Leur répartition semble être similaire à celle du NH.

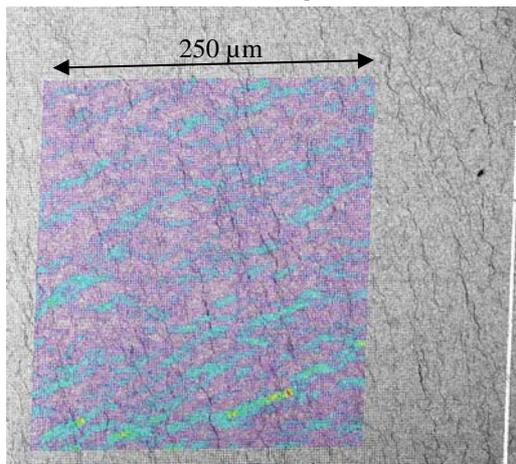
Elles mesurent environ entre 50 et 80  $\mu\text{m}$  de long, mais cela est assez variable. Elles semblent être orientées perpendiculairement aux hydrures circonférentiels, qui sont un bon indicateur du repère local. Cela est assez bien visible dans les cas 500C et 200M. D'ailleurs, dans ces deux cas, les bandes sont orientées symétriquement par rapport à un axe horizontal, ce qui s'explique par le fait que ces zones sont respectivement au-dessus et au-dessous de l'équateur.



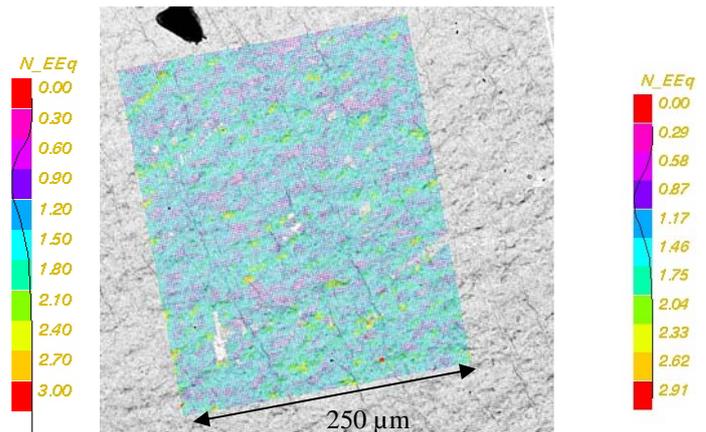
200C, zone D08, df08,  $E_{11} = -11,6\%$ ,  $E_{22} = 39,62\%$ ,  $E_{12} = 2,8\%$  (configuration de référence)



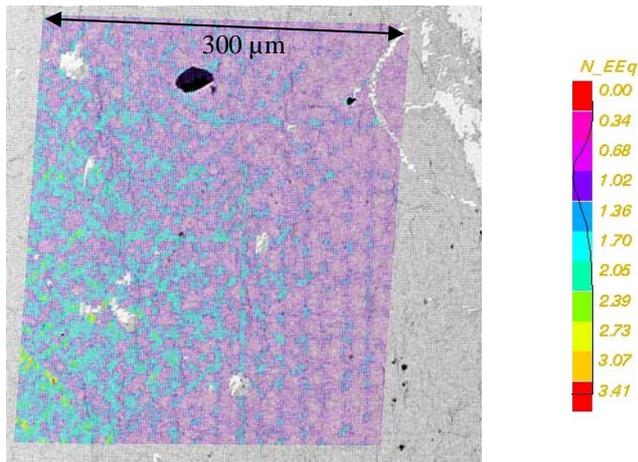
200M, zone D09, df06,  $E_{11} = -3,7\%$ ,  $E_{22} = 24,1\%$ ,  $E_{12} = 6,67\%$



500C, zone D04, df06,  $E_{11} = -2,5\%$ ,  $E_{22} = 21,6\%$ ,  $E_{12} = 7,4\%$  (configuration de référence)

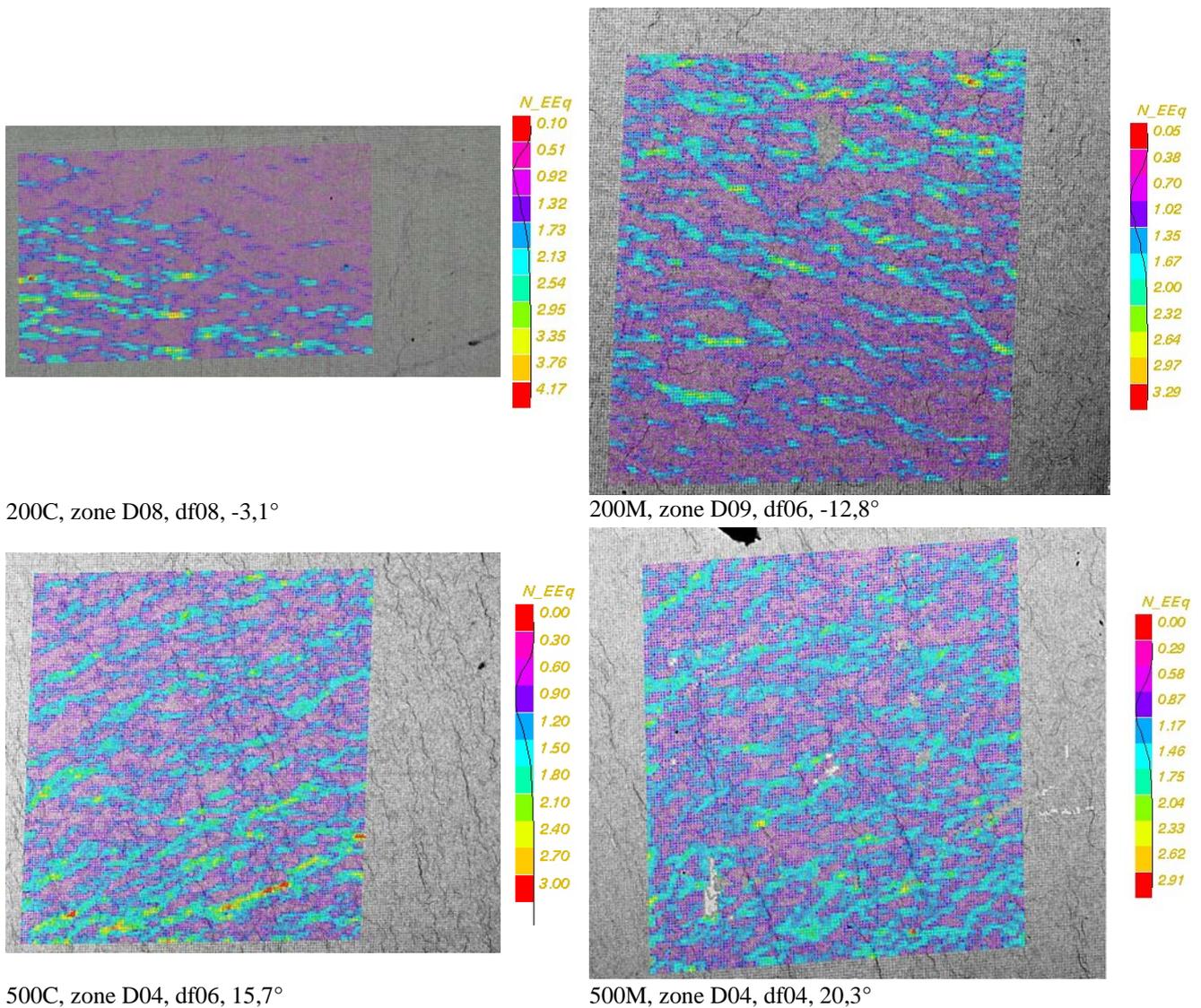


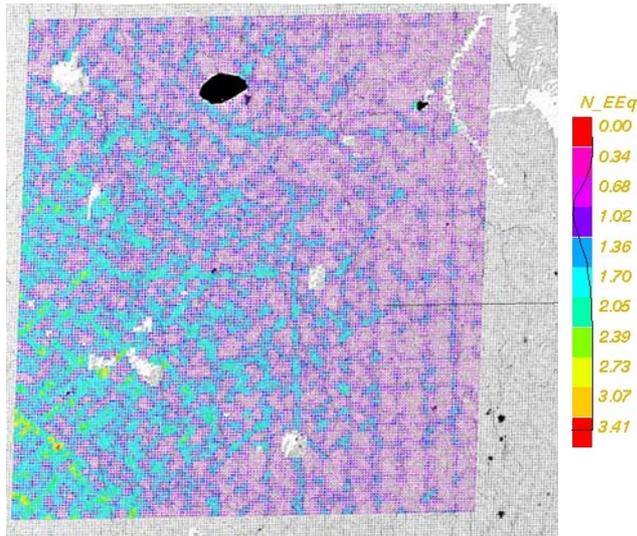
500M, zone D04, df04,  $E_{11} = 0,086\%$ ,  $E_{22} = 7,4\%$ ,  $E_{12} = -3,1\%$



500R, zone D06, df04,  $E_{11} = -2,36\%$ ,  $E_{22} = 2,39\%$ ,  $E_{12} = -0,07\%$

Figure 16 : Cartes de déformation des différentes configurations dans l'une des zones les plus déformées de ces éprouvettes. Comparaison de la répartition des bandes. Pour une meilleure visibilité, certaines cartes sont représentées dans la configuration de référence. Les images de la microstructure ont été acquises avec les électrons rétrodiffusés.





500R, zone D06, df04, 8,4°

Figure 17 : Mêmes cartes de déformation que précédemment, mais présentées dans la configuration de référence, en terme de déformation équivalente normalisée. La désorientation de la traction simple par rapport à l'axe y est indiquée pour chaque image.

#### CORRELATION AVEC LA MICROSTRUCTURE

Ce phénomène de bandes est-il dépendant de la microstructure du Zircaloy-4 ? La microstructure se caractérise par la forme des grains, leur orientation cristalline, la morphologie et l'orientation des hydrures. Les deux premiers paramètres sont identiques dans toutes les configurations, puisque ils ne sont pas influencés par la présence d'hydrures. Les deux derniers varient, et spécialement le paramètre orientation pour la plus basse teneur (200 ppm).

Ces bandes dans lesquelles la déformation est plus élevée que dans le reste de la matrice sont supposées être positionnées là où le matériau est le moins résistant. Mais, nous n'avons pas pu caractériser la texture du matériau par EBSD, car pour cela il est nécessaire de révéler les grains du matériau par un polissage approprié, et cela est très difficile sur le matériau détendu. Nous n'avons donc pas pu corréler les champs de déformation aux champs d'orientation cristalline. Mais notre objectif était principalement d'essayer de déterminer si les hydrures exerçaient une influence sur les champs de déformation locaux. On repère sur quelques cartes, que certaines bandes semblent être arrêtées par des hydrures (Figure 18).

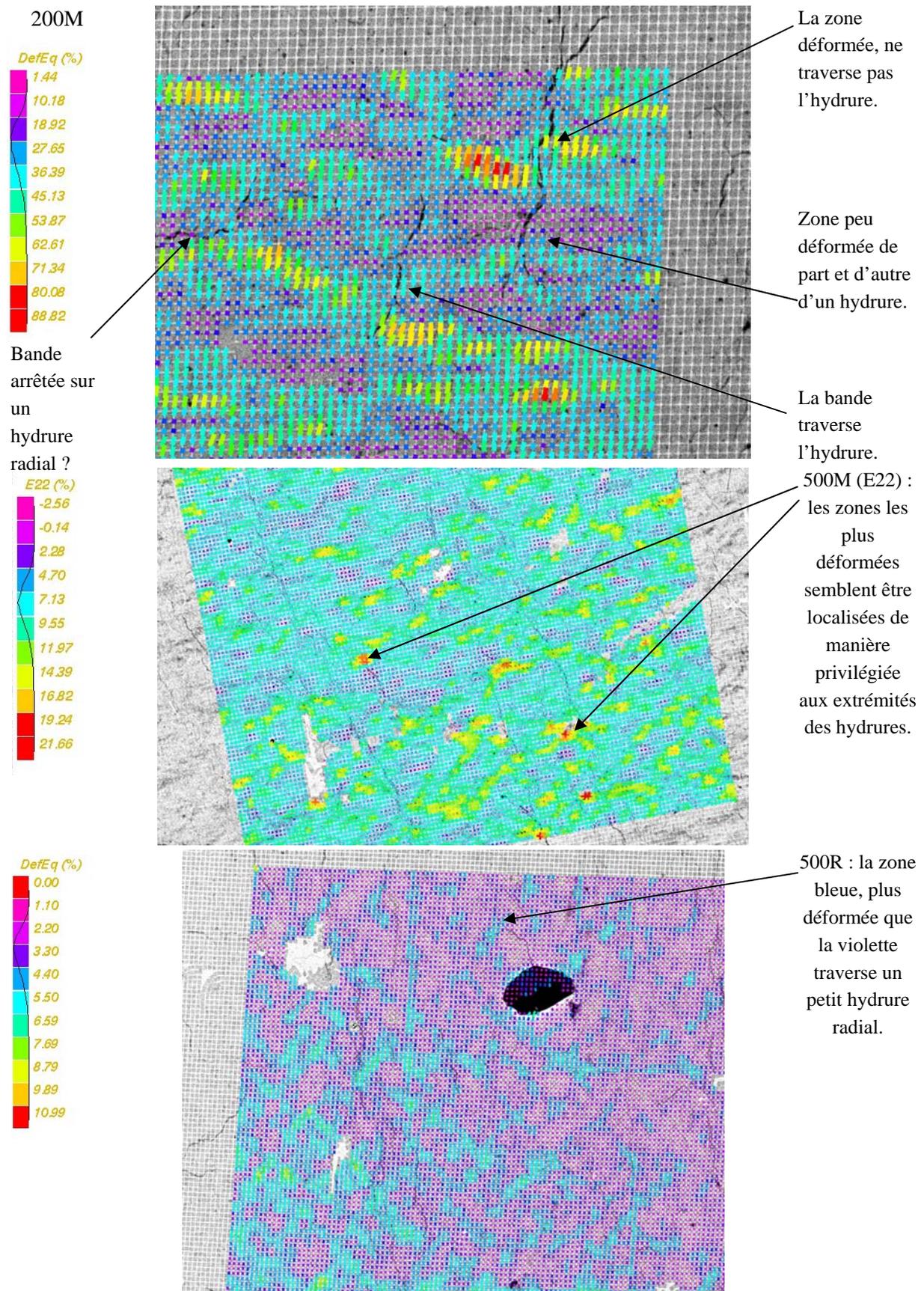


Figure 18 : Détails de certaines cartes de la figure précédentes (les zones, états de déformation et donc les échelles des images sont les mêmes). Echelle : pas de grille de 2  $\mu\text{m}$  sur toutes les cartes (base de mesure de la déformation = 4  $\mu\text{m}$ ).

D'après ces cartes, les hydrures semblent supporter la déformation : certains sont traversés par des bandes de déformation. Cependant, il est difficile d'établir, à partir de ces observations, l'existence d'une interaction entre les hydrures et les bandes : si un effet des hydrures existe, il n'est pas prépondérant et il ne se traduit pas par un passage d'une localisation polycristalline à une localisation de matériau composite. Pour essayer d'apporter des informations plus objectives, un traitement statistique objectif est donc nécessaire. Pour cela, deux outils ont été utilisés :

- la définition de « phases » hydrure radial, hydrures circonférentiels et matrice, et l'obtention de la déformation pour chacune de ces phases ;
- des histogrammes de déformation.

#### *Analyse des cartes de déformation avec différentes phases*

La configuration 200M a été choisie, car c'est la seule qui comporte à la fois des hydrures radiaux (suffisamment) et circonférentiels, et qui atteint un certain niveau de déformation. En effet, dans la configuration 200R, les cartes de déformations ne sont pas exploitables, dans les autres configurations autres que 200M il y a peu d'hydrures radiaux.

Dans la zone D09 de l'éprouvette 200M, trois phases ont donc été définies. Le critère d'orientation choisi pour sélectionner la phase « hydrures radiaux » est la même que celui utilisé en analyse d'images : les hydrures radiaux sont à  $90^\circ$  de la direction circonférentielle, plus ou moins  $45^\circ$ . On peut ainsi accéder aux valeurs des composantes de déformation sur la zone couverte par la micro-grille pour chacune des phases et pour l'ensemble.

On obtient les résultats suivants, à l'étape de déformation n°6 (cf. carte de la Figure 17) :

	<b>E11 (%)</b>	<b>E22 (%)</b> (axe de la sollicitation)
<i>Zone globale</i>	-3,7	24,1
<i>Phase hydrures circonférentiels</i>	-3,7	23,6
<i>Phases hydrures radiaux</i>	-3	20,2
<i>Phase matrice</i>	-3,7	24,1

On constate que les hydrures ne modifient pas la déformation à l'échelle locale notablement. Cependant, si la quantité d'hydrures de chaque orientation était plus importante, ces données seraient plus fiables.

#### *Histogrammes de déformation*

Il s'agit de superposer sur un même graphe les fonctions de distribution d'une composante de la déformation, ici la déformation équivalente normalisée<sup>1</sup>, pour les différentes configurations que l'on souhaite comparer. L'axe des ordonnées représente une intensité, les valeurs sur l'axe des abscisses correspondent à un multiple de la déformation équivalente normalisée.

Ces fonctions de distribution sont tracées à différentes étapes de déformation, dans les figures suivantes.

<sup>1</sup> Déformation équivalente normalisée = rapport entre la déformation équivalente locale et la déformation équivalente macroscopique.

Dans la Figure 19, sont représentées pour le matériau non-hydruré les fonctions de distribution de la déformation équivalente normalisée, de la zone D09 (la plus déformée à l'étape 6 jusqu'où le dépouillement a pu être entrepris) à différents états de déformation (df02 à df06). On remarque que les courbes ont tendance à se décaler vers la gauche, perdre de la symétrie et s'élargir au fur et à mesure que la déformation augmente. Le décalage du pic (vers la gauche) par rapport à la valeur de la déformation équivalente normalisée traduit une localisation macroscopique de la déformation, ce qui est confirmé par la striction croissante de l'éprouvette.

Dans la Figure 20, sont représentées pour les différents cas où la plasticité s'est développée, les fonctions de distribution de la déformation équivalente normalisée, de la zone la plus déformée pour chaque cas, dans son état le plus déformé (ou bien dans l'état le plus déformé où le dépouillement a pu être réalisé, cas NH et 200C). Pour le cas non-hydruré, deux courbes sont représentées : pour un niveau de déformation globale sur la zone faible et l'autre pour un niveau élevé. On remarque que les courbes des cas hydrurés se trouvent entre ces deux courbes limites. Le matériau à 500 ppm, quelle que soit l'orientation, se situe plutôt vers la courbe indiquant la limite « basse » de l'hétérogénéité de déformation, les courbes sont étroites et assez symétriques. La courbe du 200M est comparable à ces cas-là. En revanche, le 200C, se rapproche de la limite « haute » de l'hétérogénéité de déformation. L'évolution d'une courbe à l'autre semble toutefois principalement gouvernée par le niveau de déformation macroscopique atteint.

La superposition de ces courbes, ou plus exactement le fait que les fonctions de distribution du matériau hydruré au niveau de déformation le plus élevé, dépendent de l'état d'hydruration mais sont comparables, selon le niveau de déformation de la zone étudiée, à celles du non-hydruré à niveau de déformation globale comparable, nous permet de conclure que la présence d'hydrure n'affecte quasiment pas la distribution des hétérogénéités de déformation. La présence de ces bandes de déformation à l'échelle locale est donc intrinsèque au matériau et n'est pas ou peu perturbée par la présence d'hydrures (circonférentiels en majorité dans les cas étudiés ici).

Si les hydrures jouaient un rôle de renfort, on aurait attendu une hétérogénéité de déformation plus importante du fait du contraste supérieur des propriétés mécaniques des constituants. Or, au contraire, les fonctions de distribution des matériaux avec ou sans hydrures sont quasiment les mêmes, voire plus étroites avec des teneurs en hydrogène plus élevées : les hétérogénéités de déformation seraient donc moins importantes dans le matériau hydruré ? Une des explications possibles concerne l'effet du traitement d'hydruration : comme ce traitement est réalisé à 400°C pendant une durée proportionnelle à la teneur en hydrogène qui doit être absorbé, on peut légitimement supposer que ce traitement a induit une certaine restauration du matériau, elle aussi proportionnelle à la durée du traitement. Dans le matériau restauré, qui s'écrouit davantage, on s'attend à ce que la localisation soit moins intense.

Donc, la comparaison des fonctions de distribution entre matériaux hydruré et non-hydruré nous laisse supposer que le matériau de base, l'alliage de Zr, a été modifié par le traitement d'hydruration. L'existence des bandes de déformation n'est pas affectée, puisqu'elle s'explique par la nature polycristalline du matériau. Mais l'intensité de la localisation dans les bandes est liée à sa capacité d'écrouissage : on comprend ainsi pourquoi la déformation localise moins dans les matériaux hydrurés que dans le matériau non-hydruré, les premiers ayant subi un traitement qui a induit une restauration du matériau de base. L'influence de la teneur est liée à la durée du traitement de réorientation.

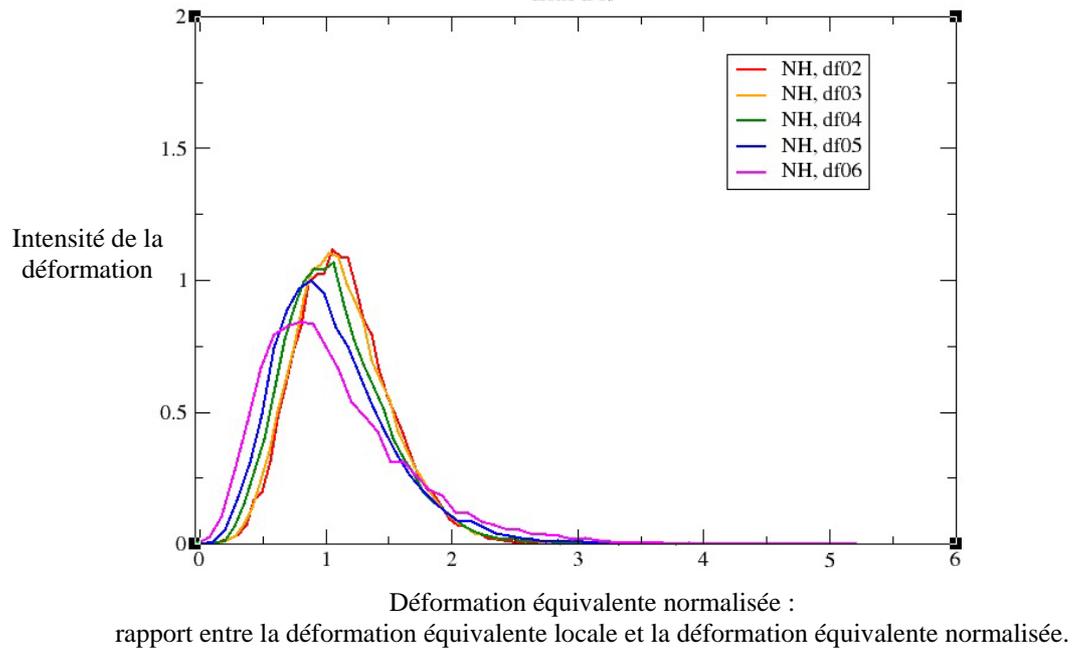


Figure 19 : Graphe sur lequel sont superposées les fonctions de distribution de la déformation équivalente normalisée, pour le matériau non-hydruré (zone D09) à différentes étapes de déformation indiquées dans la légende. Les cartes de déformation correspondantes sont celles de la Figure 14. Le décalage du pic et l'élargissement de la distribution sont liés à l'apparition progressive d'une hétérogénéité macroscopique dans la zone analysée.

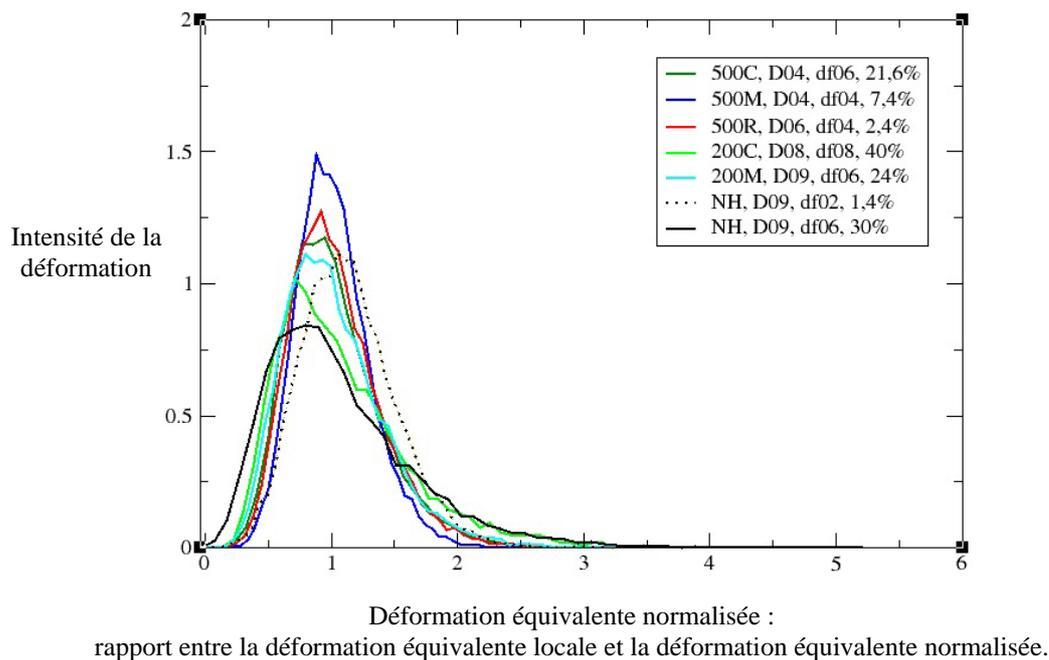


Figure 20 : Graphe sur lequel sont superposées les fonctions de distribution de la déformation équivalente normalisée, pour différents matériaux (NH, 200C, 200M, 500C, 500M, 500R), pour la zone la plus déformée du dernier état de déformation atteint (concernant le dépouillement). Le matériau, la zone et l'état de déformation sont précisés dans la légende. Pour le matériau non-hydruré, deux courbes sont représentées : celle pour un état où la déformation E22 globale était faible, et une où elle était plus élevée. Ce sont les valeurs de E22 globale sur la zone qui sont indiquées dans la légende.

*Cas 200R : absence de bandes de déformation.*

Le matériau hydruré à 200 ppm avec des hydrures radiaux a rompu sans que la plasticité macroscopique n'ait pu se développer : cela est nettement visible sur les courbes de réponse macroscopique, puisque selon les essais, ces éprouvettes ont rompu pour une contrainte conventionnelle maximale comprise entre 300 et 370 MPa, ce qui vaut environ la moitié de la limite d'élasticité. Il n'est donc pas surprenant de constater qu'au niveau de la microstructure non plus, la plasticité ne s'est pas développée. Les seules hétérogénéités visibles sont dues aux erreurs géométriques de numérisation des images (Figure 21). Les valeurs de déformation moyenne sur les zones étudiées sont comprises entre 1 et 2 %, mais sont fortement entachées d'incertitudes du fait des possibles variations de grandissement (de l'ordre de quelque 0,1%).

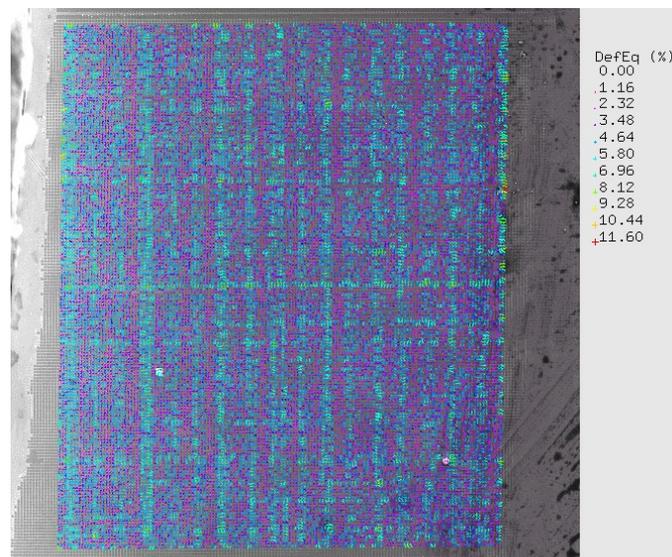


Figure 21 : 200R. Carte de déformation équivalente de la zone D06, à l'étape de déformation 2 (3= rupture). Cette zone est à l'équateur et c'est à travers elle que se propagea la fissure conduisant à la rupture.  
 $E11 = 1,62 \%$  ;  $E22 = 1,87 \%$  ;  $E12 = -0,03 \%$ .

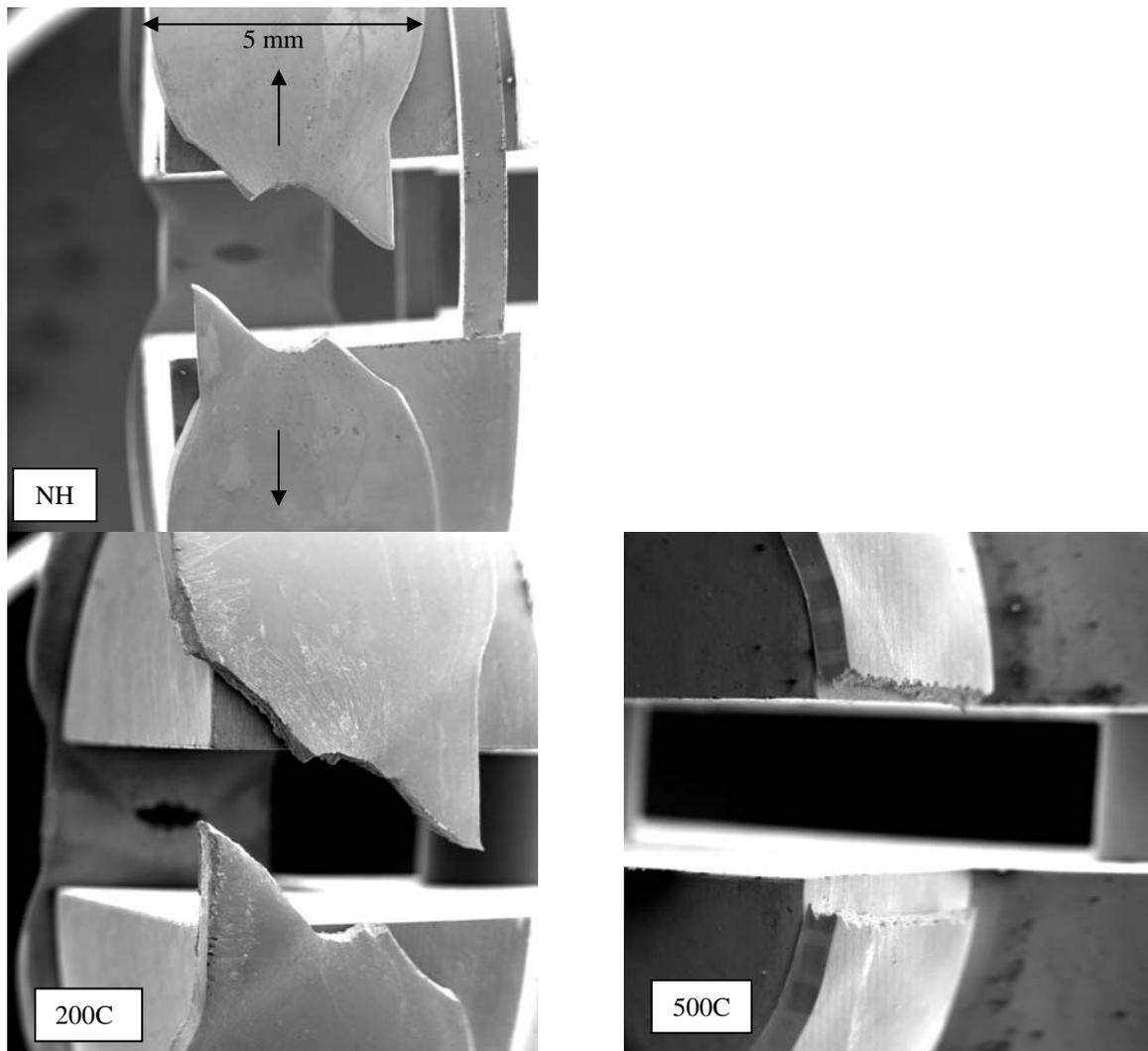
*Conclusion :*

Les essais *in-situ*, initialement entrepris avec pour objectif principal l'observation de l'endommagement, ont surtout permis, grâce aux micro-grilles déposées sur la surface observée et à la technique de corrélation d'images numériques, d'obtenir des cartes de déformation à différentes étapes des essais. Ces cartes couvrent une zone d'environ 200-300  $\mu\text{m}$  x 200-300  $\mu\text{m}$ , et mettent en évidence la présence de bandes de localisation de la déformation, dont les caractéristiques géométriques ont pu être approximativement déterminées. Ces bandes existent dans toutes les configurations, sauf pour le cas 200R qui n'entre pas en plasticité macroscopique. Elles apparaissent même pour de faibles niveaux de déformation moyens à l'échelle locale (cas 500R,  $E22 = 2,4\%$ ), et dès que la plasticité macroscopique est atteinte. Concernant la corrélation avec la microstructure, la présence de bandes n'a pu être reliée ni à la forme des grains/joints de grains ou à leur orientation cristalline, la révélation de ceux-ci étant difficile, ni à la présence d'hydrures : ceux-ci visibles sur les images MEB en électrons-rétrodiffusés ne semblent pas perturber de manière significative

*l'hétérogénéité de déformation locale, ni le schéma de localisation en bandes de déformation qui présente qualitativement la même allure que le matériau soit hydruré ou non, à niveau de déformation global et position dans l'anneau identique. On observe quelques hydrures semblant arrêter des bandes de déformation, d'autres en revanche sont localisés dans ces bandes. Aucune conclusion nette sur l'effet des hydrures à cette échelle ne peut être mis en évidence, qualitativement ou quantitativement.*

### 4.3 MODES D'ENDOMMAGEMENT ET DE RUPTURE ; OBSERVATION DES SURFACES ET DES FACIES DE RUPTURE

Voici ci-dessous (Figure 22) quelques images d'éprouvettes rompues, acquises à la fin des essais in-situ, permettant d'apprécier les différences et les points communs entre les configurations étudiées. Celles-ci seront classées en trois catégories, chacune étant caractérisée par un scénario de ruine, établi à partir de l'interprétation de la réponse mécanique, des modes de déformation à l'échelle globale ou locale et de l'observation des faciès de rupture.



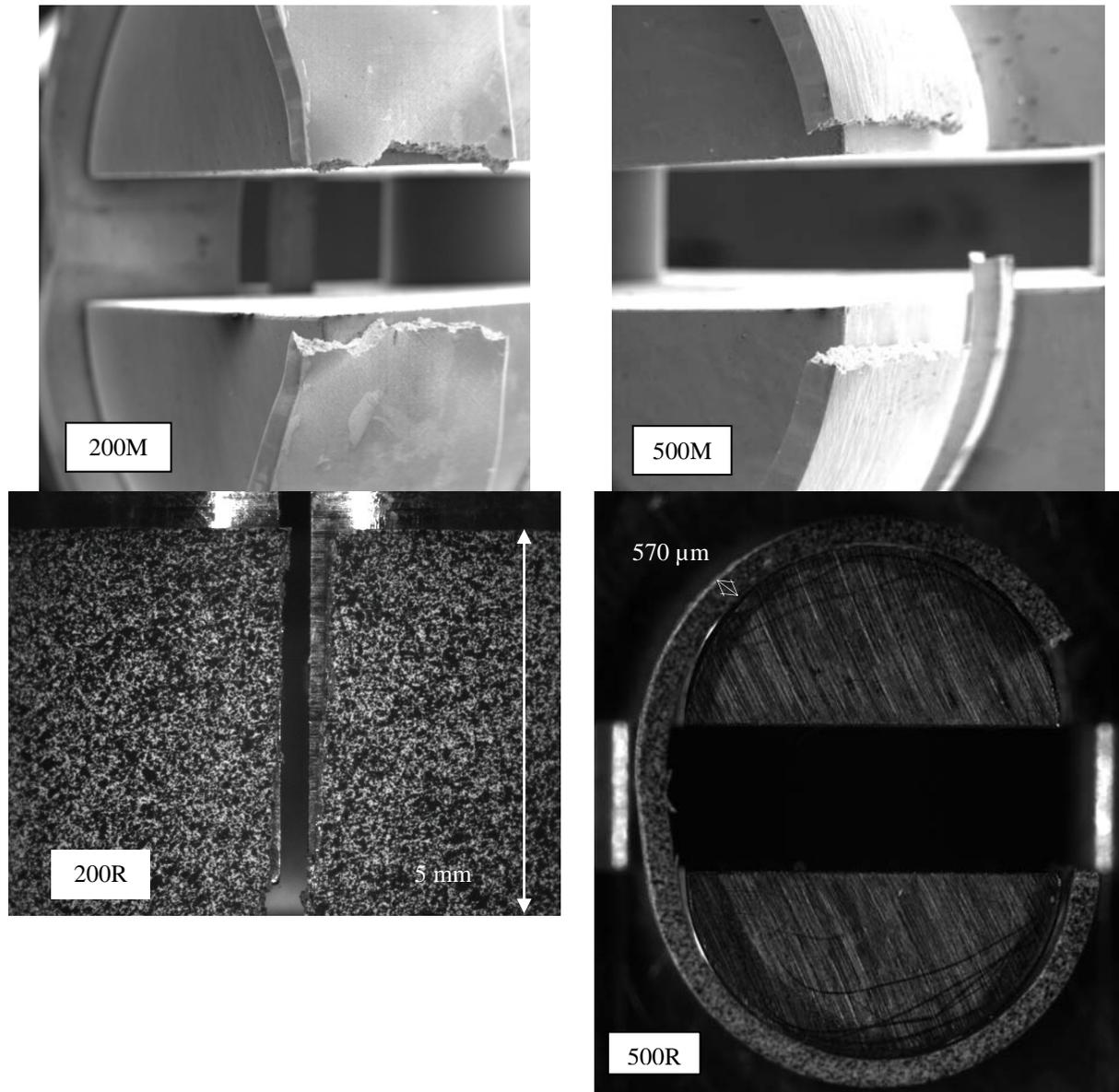


Figure 22 : Eprouvettes de chaque configuration après rupture. Dans les cas 200R et 500R, on ne dispose pas d'images des éprouvettes rompues à l'issue des essais in-situ. Il s'agit donc d'une image de la face bombée pour le 200R et une image de la face plane pour le 500R.

#### 4.3.1 MODE DUCTILE : NH, 200C

Dans ces deux configurations, la réponse mécanique et le mode de rupture sont presque identiques. Seul le faciès de rupture diffère quelque peu, à cause de la présence d'hydrures dans un des deux cas. En effet, ces deux types d'éprouvette rompent par cisaillement suivant une des bandes macroscopiques de localisation de la déformation, par déchirement ductile. Sur la face bombée après rupture, on distingue nettement la cavité centrale formée à l'intersection des bandes (Figure 22) et le plan de rupture incliné à environ  $30^\circ$  par rapport à l'axe de traction ou par rapport à la face initialement plane de l'éprouvette (ceci est davantage visible sur les cartes des essais macroscopiques dans la configuration déformée (Figure 7).

Le scénario de rupture est donc le suivant : au fur et à mesure que la plasticité se développe, la déformation se localise dans des bandes. A l'intersection de ces bandes, la déformation est maximale et une cavité va se former, lorsque le niveau de déformation (E11) atteint environ 18 % (Figure 5). Cette cavité se forme assez tardivement, d'abord sur une face puis symétriquement sur l'autre face, ce qui entraîne aussitôt une importante chute de charge. Ensuite, la cavité grossit et la fissure se propage sur l'une des faces bombées, le long d'une des bandes, en mode de cisaillement, comme en témoigne les faciès de rupture, presque lisses et dépourvus de cupules. Sur les figures suivantes, on peut observer, dans le cas non-hydruré :

- le faciès de rupture de la partie centrale de l'éprouvette, où la cavité s'est formée à l'intersection des deux bandes de cisaillement (Figure 23 b) ;
- celui d'un des plans de cisaillement (Figure 23 d).

Le faciès de rupture du matériau hydruré présente la même structure (cavité centrale puis cisaillement), mais comporte en plus de longues fissures secondaires (le terme de la littérature anglophone est « secondary cracks »), de dimensions équivalentes à celles des hydrures (de 50 à 300  $\mu\text{m}$  environ, Figure 24 a et b). Ces fissures longitudinales sont visibles dans le plan axial-radial, qui est perpendiculaire à celui contenant les hydrures circonférentiels. Leur longueur est cohérente avec celle de l'ensemble formé par les hydrures alignés les uns à la suite des autres dans la direction circonférentielle. Le reste de la surface, dans la zone centrale, est couverte de micro-cavités, comme dans le cas NH : ces cavités témoignent du caractère ductile de la rupture. Elles mesurent environ moins de 5  $\mu\text{m}$  de diamètre (Figure 24 d). Des cavités sont aussi présentes proches des bords, dans la zone que la fissure a parcouru après le plan de cisaillement et juste avant d'atteindre les surfaces libres (les sections transverses).

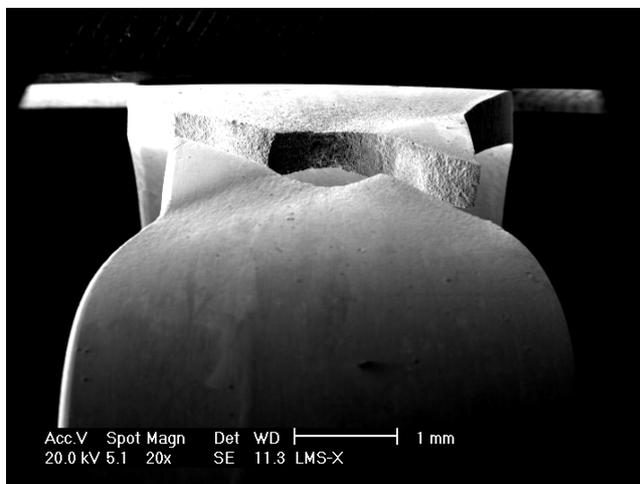


Figure 23 a : vue d'ensemble de l'éprouvette NH.

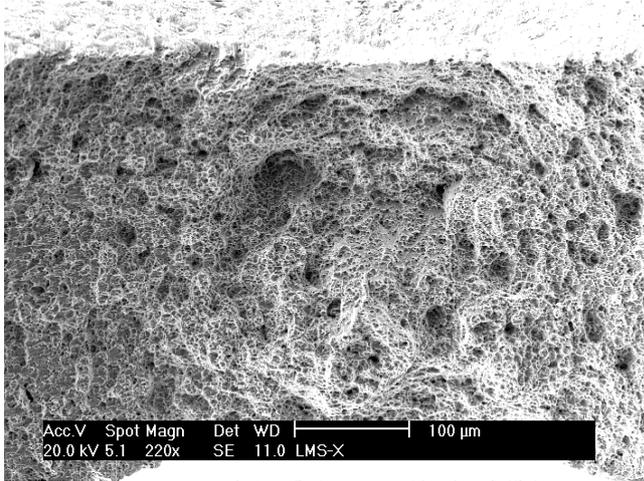


Figure 23 b : cavité centrale : faciès typiquement ductile.

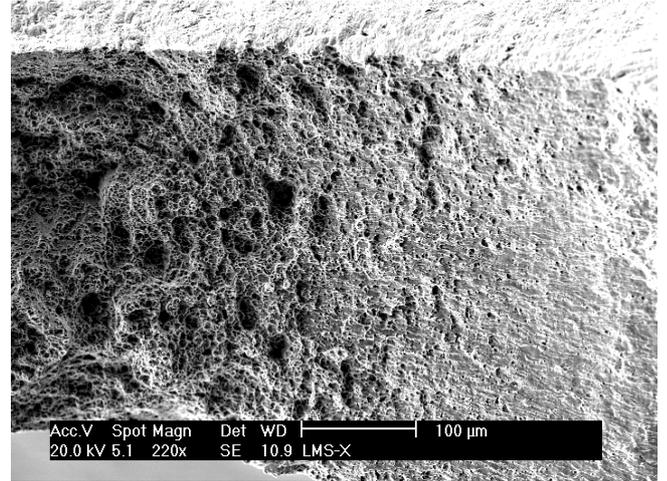


Figure 23 c : transition entre le centre de l'éprouvette (cavité centrale) et les bords libres. Plan presque lisse.

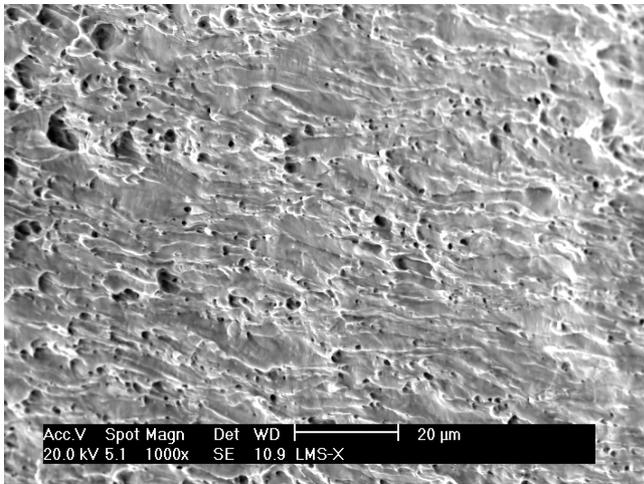


Figure 23 d : agrandissement du plan de cisaillement.

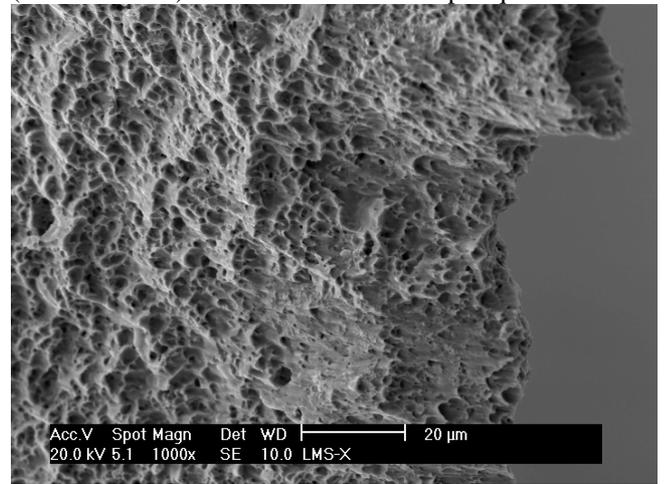


Figure 23 e : présence de ductilité près des bords libres.

Figure 23 : NH, éprouvette après essai in-situ. Vue globale du faciès de rupture, puis vue détaillée à partir du centre de l'éprouvette jusqu'à un des bords (vers la section transversale).

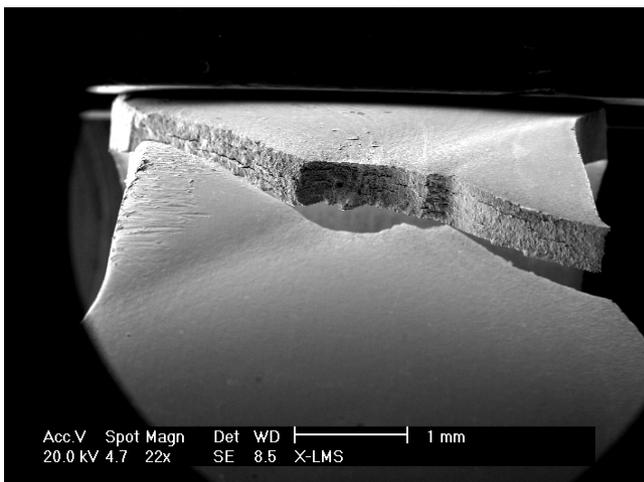


Figure 24 a : vue d'ensemble. Les fissures secondaires sont visibles même à cette échelle.

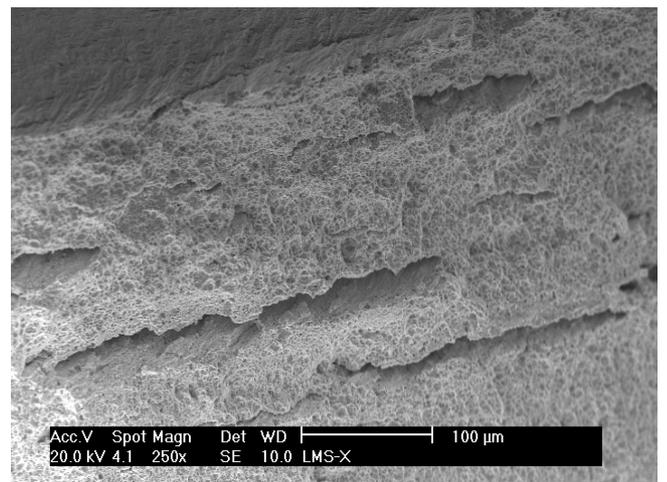


Figure 24 b : fissures secondaires parmi une zone ductile.

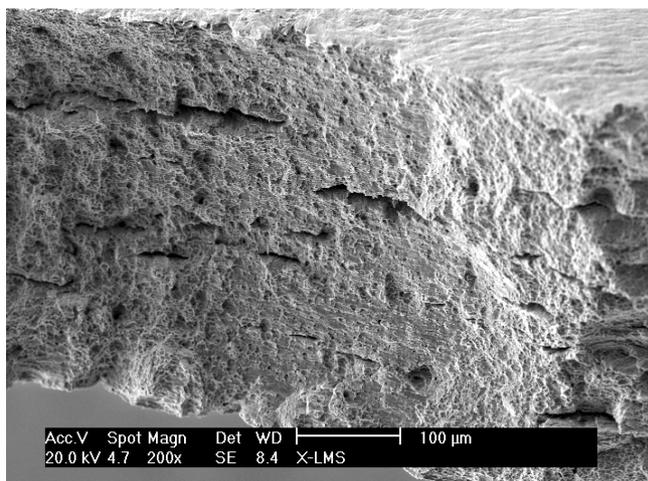


Figure 24 c : fissures secondaires dans le plan de cisaillement.

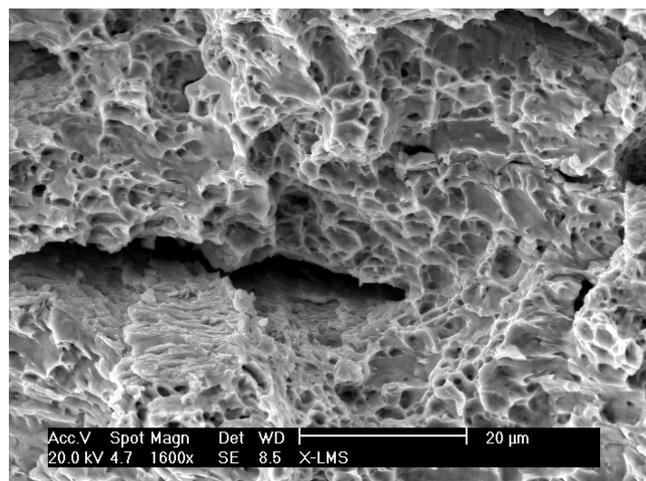


Figure 24 d : petite fissure secondaire au milieu d'une zone très ductile.

Figure 24 : a, c, d : 200C, faciès de l'éprouvette B17 après essai in-situ ; b : éprouvette C13 après essai macroscopique.

Ces observations attestent de la ductilité existante à l'intersection des bandes macroscopiques, là où se forme la cavité centrale. Comme la naissance et la croissance des cavités typiques de la rupture ductile ont été peu observées lors des essais in-situ, et comme l'observation du faciès prouve qu'un tel phénomène se produit à l'intersection des bandes macroscopiques, un essai in-situ sous MEB complémentaire a été entrepris pour observer la naissance de ce processus, sur la face bombée d'un anneau, même si les hydrures (circonférentiels) y sont peu visibles. Les résultats obtenus seront détaillés dans la partie suivante intitulée « Champs locaux de déformation sur la face bombée ».

#### 4.3.2 MODE PUREMENT FRAGILE : 200R

Dans ce cas, la surface de rupture est perpendiculaire à l'axe de traction. La rupture est franche. Le faciès contient des « marches » : des faces planes, de forme rectangulaire et à différentes altitudes sont observables dans le plan axial-radial (Figure 25 a). Ce plan d'observation correspond à celui contenant les hydrures radiaux. Donc, il est probable que ces « marches » de surfaces planes fragiles correspondent à des plaquettes d'hydrures radiaux rompues dans le sens de leur plus grande dimension, par opposition aux hydrures circonférentiels de la configuration 200C rompus dans leur épaisseur.

De plus, si l'on se place dans le plan perpendiculaire au faciès de rupture, plan radial-circonférentiel, la comparaison de la section transversale avant le début de l'essai in-situ et du profil de cette section après rupture, met en évidence que la rupture s'est propagée d'hydrure radial en hydrure radial, dans le plan médian de l'éprouvette, où la sollicitation en contrainte est la plus élevée (Figure 26). Autour des hydrures par lesquels la rupture s'est propagée, aucune déformation n'est décelable. La seule zone déformée plastiquement est celle dépourvue d'hydrures et correspond fort probablement à la déchirure ductile des derniers ligaments. Ceci s'est produit sur toutes les éprouvettes de cette configuration utilisées pour des essais in-situ (réalisés au cours du stage de DEA et de la thèse). La zone comprenant tous les hydrures par lesquels la fissure s'est propagée mesure environ 115 μm dans la direction circonférentielle. Cette valeur est du même ordre de grandeur de ce que l'on a observé dans d'autres essais in-situ (réalisés en stage de DEA). Cette dimension permet d'évaluer la distance d'interaction

entre hydrures et pourrait être utilisée en vue de l'élaboration d'un critère similaire à celui de Bell [Bell 1975].

Il n'est pas possible de déterminer si la fissure s'est propagée à l'interface matrice-hydrure ou à l'intérieur d'un hydrure. En effet, d'une part, sur la section transverse, les hydrures sont observés dans leur épaisseur, qui est très fine, grâce aux électrons rétrodiffusés du MEB. Lorsque l'éprouvette est rompue à travers ces hydrures, à cause de la finesse des hydrures et du contraste topographique, on ne peut dire si on retrouve sur les deux parties de l'éprouvette ou seulement sur l'une d'elle les hydrures. Quant au faciès de rupture, il est trop mouvementé pour pouvoir être observé au MEB avec les électrons rétrodiffusés, et l'on ne peut pas détecter la présence d'hydrogène avec un système EDS (Spectre en dispersion d'énergie), celui-ci étant un élément trop léger pour être analysé. Très peu de cavités, donc de ductilité, ont été repérées (Figure 25 c). Elles sont concentrées dans ce qui constitue fort certainement les ultimes ligaments ductiles et n'interviennent pas dans l'initiation de la rupture.

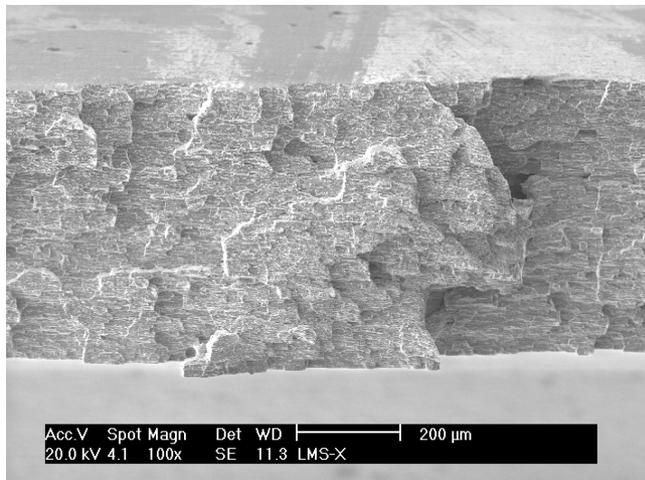


Figure 25 a

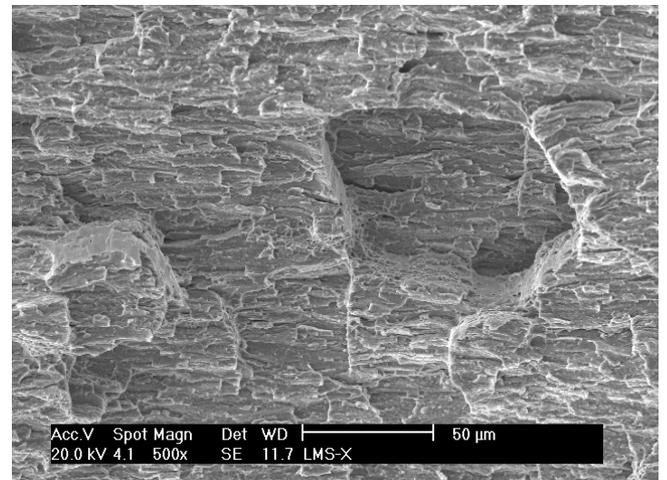


Figure 25 b

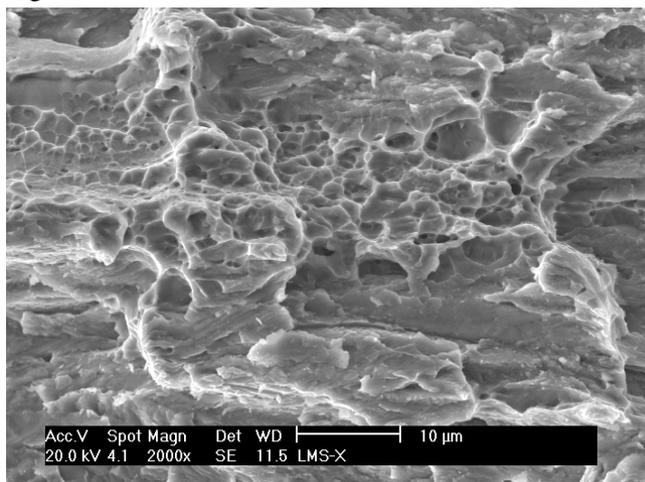


Figure 25 c

Figure 25 : 200R, éprouvette C9 après essai in-situ.

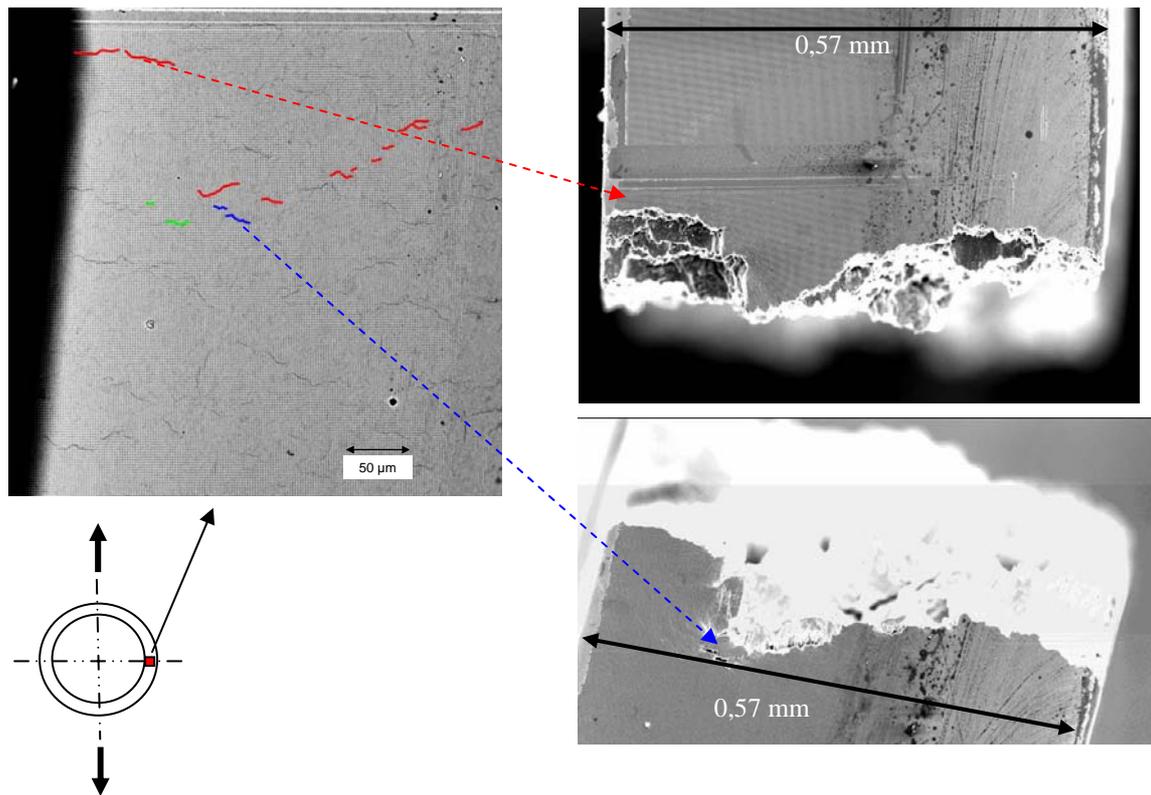


Figure 26 : 200R, éprouvette C9, avant et après rupture. Les hydrides par lesquels la fissure conduisant à la rupture s'est propagée sont surlignés en rouge.

#### 4.3.3 MODE FRAGILE APRES DEFORMATION DUCTILE (ET ENDOMMAGEMENT) : 200M, 500C, 500M, 500R

Les éprouvettes de cette configuration présentent toutes les points communs suivants :

- des bandes de déformation macroscopiques se sont développées,
- le niveau de ductilité à rupture atteint est du même ordre de grandeur pour ces quatre cas, il est largement inférieur à celui du matériau non-hydruré mais non-négligeable comme dans le cas 200R ;
- la rupture a eu lieu dans le plan médian de l'éprouvette, là où la sollicitation en contrainte est la plus élevée.

Cependant, malgré ces points communs, on doit distinguer les particularités suivantes :

- le faciès de rupture du 200M n'est pas aussi plan que celui des trois autres cas (matériau hydruré à 500 ppm) ;
- les configurations à 500 ppm, sont les seules dans lesquelles de l'endommagement, sous forme de germination de cavités dans les hydrides, a été observé sur la section transverse de l'anneau.

Revenons plus en détail sur ces particularités.

##### 200M

Sur le faciès de rupture du 200M (Figure 27), on remarque sur la zone centrale, qui correspond à l'intersection des bandes de cisaillement, de nombreuses micro-cavités, témoignant de l'initiation d'une rupture ductile.

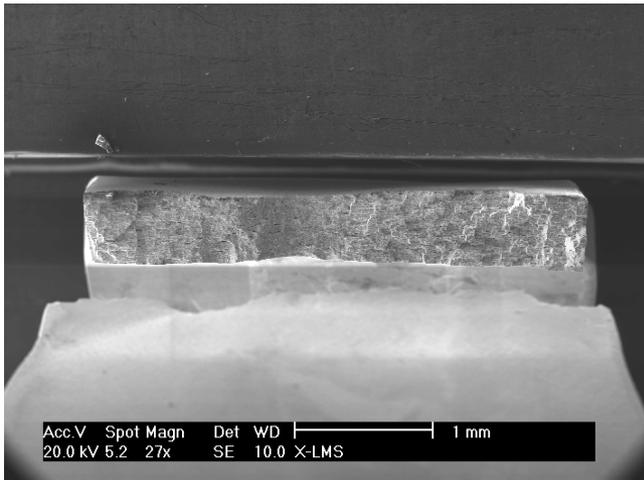


Figure 27 a : vue d'ensemble, avec au centre une zone plus creuse.

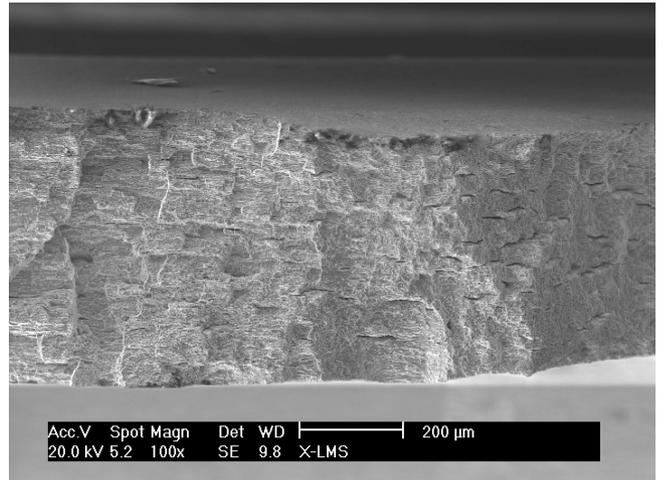


Figure 27 b : à gauche, faciès fragile en marches d'escalier ; à droite, faciès ductile avec cavités et fissures secondaires.

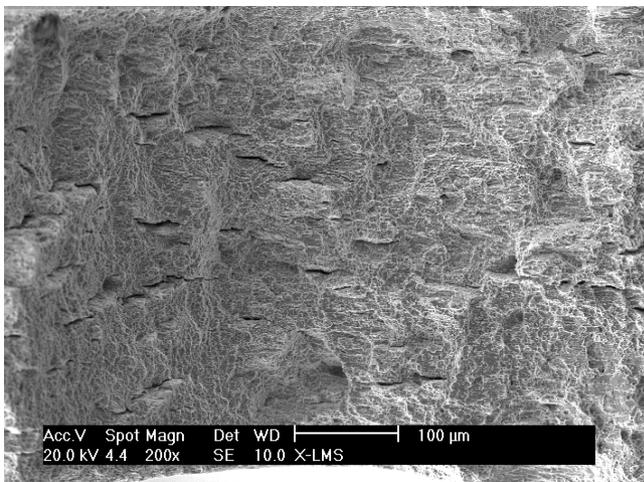


Figure 27 c : faciès ductile avec cavités et fissures secondaires.

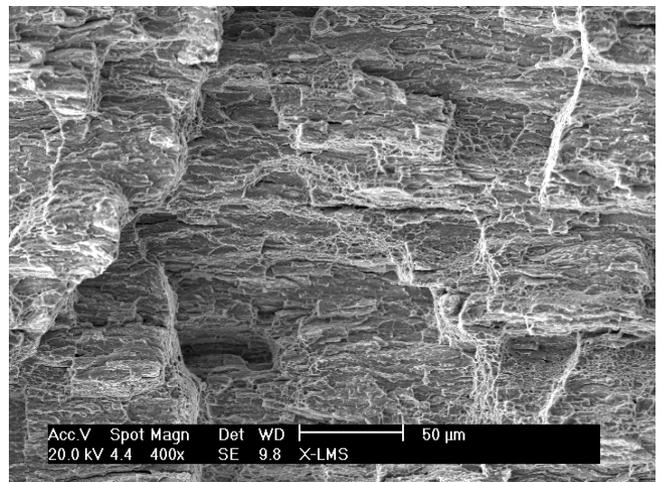


Figure 27 d : faciès fragile en marches d'escalier.

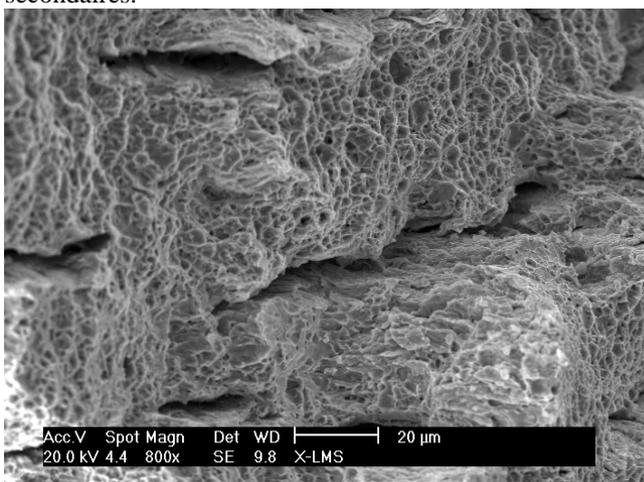


Figure 27 e : agrandissement d'une partie ductile avec fissures secondaires, assez courtes (par rapport au 200C).

Figure 27 : 200M, éprouvette C4, faciès de rupture après essai in-situ. a : vue générale ; b : vue de la transition, entre la zone ductile au centre et la zone plus fragile sur le côté, un plan de cisaillement incliné faisant la transition entre ces deux zones ; c : zone ductile avec les fissures secondaires courtes ; d : zone fragile ; e : détail de la zone centrale ductile.

Parmi ces cavités, des fissures correspondent à la rupture d'hydrures circonférentiels. Ces fissures secondaires (Figure 27 et c) sont plus courtes que celles présentes dans le 200C (inférieures à 100  $\mu\text{m}$ , et souvent autour de 50  $\mu\text{m}$ ), ce qui est cohérent avec les observations des hydrures réalisées sur la section transverse.

Cependant, la présence d'hydrures radiaux a dû provoquer des instabilités, et la rupture initialement ductile s'est poursuivie de manière fragile en se propageant de manière quasi-rectiligne sur le plan perpendiculaire à l'axe de traction. Ceci est corroboré par la présence de surfaces planes fragiles de part et d'autre de la zone ductile (Figure 27 d).

#### *500 ppm*

Dans les matériaux hydrurés à 500 ppm, on n'observe pas une telle mixité sur le faciès de rupture. Ces derniers sont assez semblables dans les trois cas : présence de surfaces planes, fragiles, peu de signes de ductilité. La ressemblance entre ces trois cas se justifie assez facilement, puisque bien que le 500M et le 500R aient subi un traitement de réorientation, peu d'hydrures ont été réellement réorientés pour devenir radiaux. Donc, ce n'est sans doute pas la décohérence de tels hydrures qui explique la forme de ce faciès, mais la morphologie des hydrures, majoritairement circonférentiels : en effet, ceux-ci sont regroupés en amas, séparés les uns des autres d'environ 30  $\mu\text{m}$  (dimension mesurée sur la section radiale-circonférentielle). La distance entre ces amas est beaucoup plus faible que dans le cas du 200C, à cause de la teneur en hydrogène qui est plus élevée. On remarque la présence de fissures secondaires, assez courtes, entre 20 et 70  $\mu\text{m}$ , et plus rares que dans pour les éprouvettes plus faiblement hydrurées. Elles doivent correspondre à la rupture d'hydrures circonférentiels « isolés ».

Cependant, si peu de ductilité est observée sur les faciès de rupture, les sections transverses, sur lesquelles des micro-grilles sont déposées, présentent elles, des signes visibles d'endommagement. En effet, dans les trois cas, des cavités ont été nucléées dans les hydrures, dans la zone autour du lieu de rupture finale. Ces cavités sont apparues très soudainement et n'ont pu être observées qu'après la rupture. Ce sont les hydrures, fissurés dans leur largeur, souvent à plusieurs endroits, qui ont donné naissance à ces cavités.

La zone de rupture fragile du 200M et l'ensemble des faciès de rupture des éprouvettes à 500 ppm ont donc des caractéristiques communes : profil en « marches d'escalier », fissures secondaires dans le plan circonférentiel-axial. Les tailles caractéristiques de ces marches, la quantité et la taille des fissures secondaires semblent varier d'une éprouvette à l'autre : il est cependant difficile de tirer des conclusions à partir de quelques images.

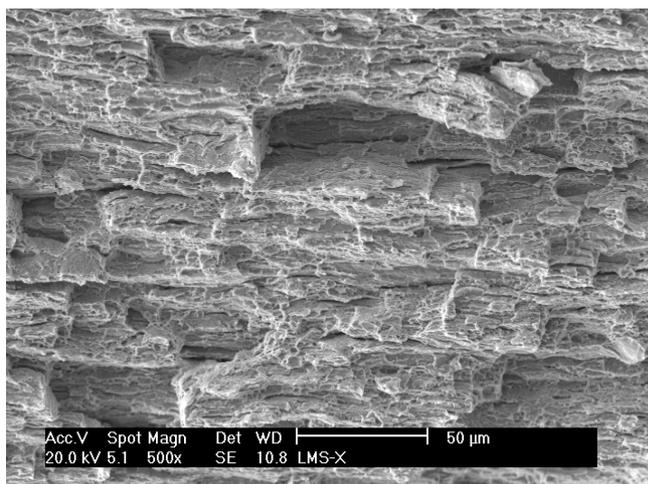


Figure 28 a : faciès en marches d'escalier.

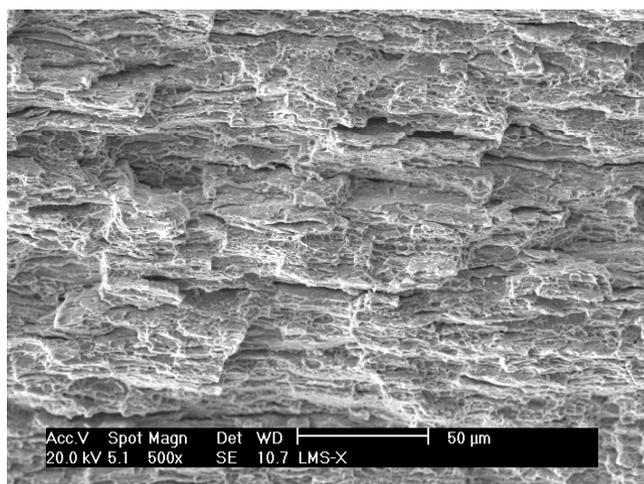


Figure 28 b

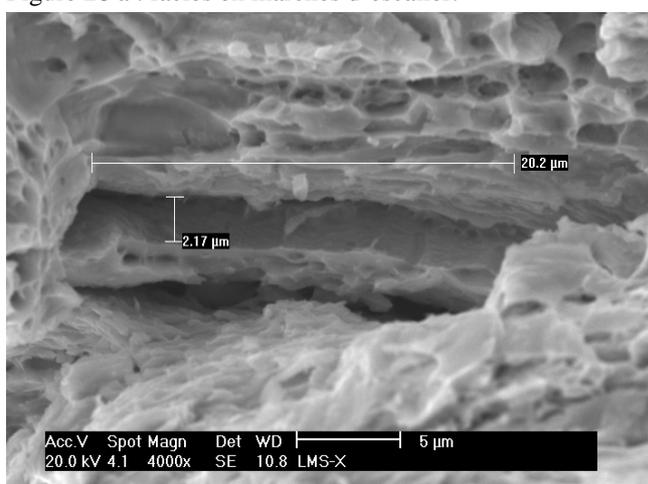


Figure 28 c : décohéation d'un hydrure ?

Figure 28 : 500C, éprouvette A23 après essai in-situ.

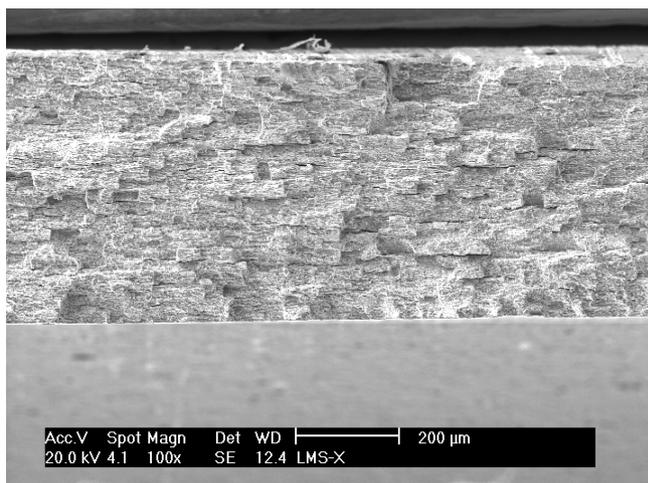


Figure 29 a : faciès fragile en marches d'escalier

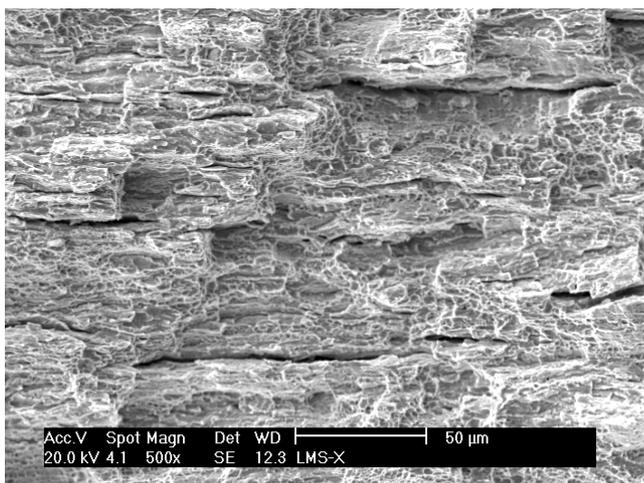


Figure 29 b : fissures secondaires.

Figure 29 : 500M, éprouvette B1 après essai in-situ.

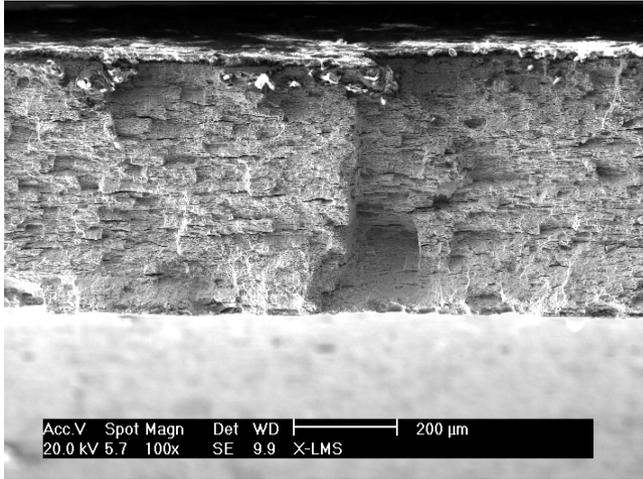


Figure 30 a : faciès fragile en marches d'escalier.

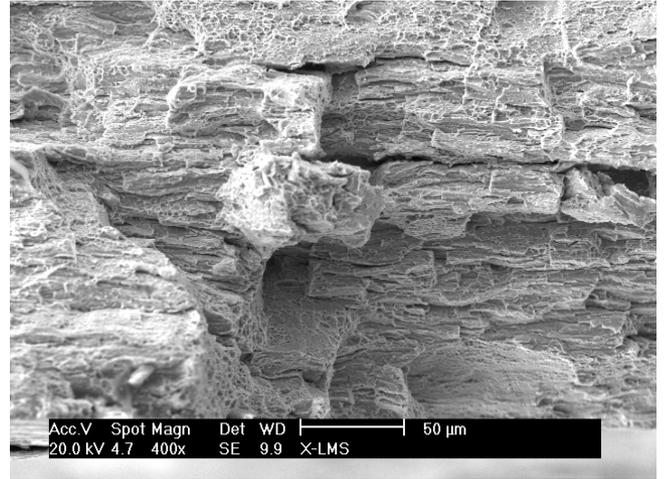


Figure 30 b : fissures secondaires et marches d'escalier.

Figure 30 : 500M, éprouvette B1 après essai macro.

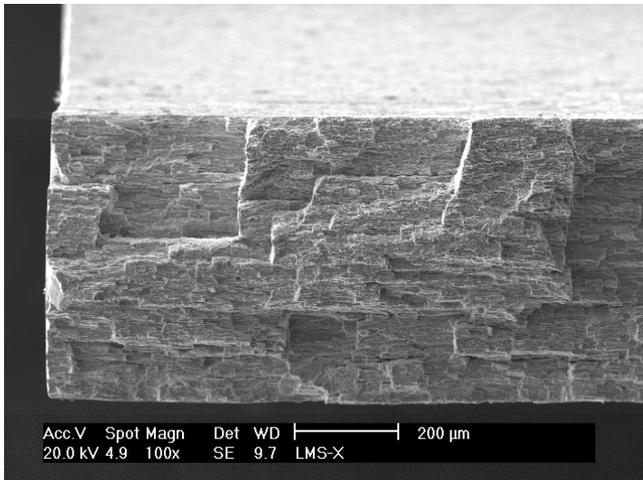


Figure 31 a : faciès fragile en marches d'escalier, qui sont très nettes. Les plans de ces marches sont perpendiculaires les un aux autres.

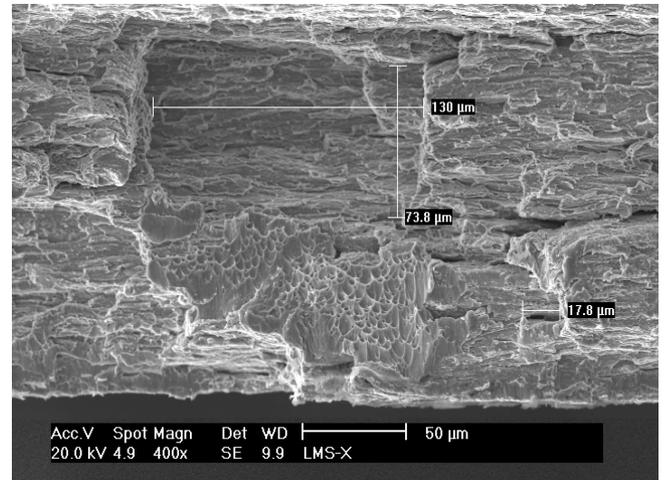


Figure 31 b : marche « en creux », assez large, et présence d'un peu de ductilité.

Figure 31 : 500R, éprouvette B3 après essai in-situ.

#### 4.4 ENDOMMAGEMENT DES HYDRURES ?

Concernant l'endommagement dans les hydrures, nous distinguons deux cas, selon la teneur. En effet, de l'endommagement, au sens de germination de cavités, a été observé seulement dans le matériau hydruré à 500 ppm. Dans les autres configurations hydrurées à 200 ppm, les images illustrent les quelques hydrures rompus dans leur largeur (hydrures circonférentiels) ou dans leur longueur (hydrures radiaux) qui ont été observés.

Dans les éprouvettes hydrurées à 200 ppm, les cavités ont été très difficiles à déceler. Dans les images suivantes (200C), prises à fort grandissement au voisinage de la surface de rupture, on constate d'une part qu'il n'est pas toujours aisé de remarquer les hydrures tellement ils sont fins, particulièrement en électrons secondaires (images de gauche des Figure 32 c et e), et d'autre part qu'ils sont peu endommagés (une ou deux cavités par hydrure) ou pas du tout (Figure 32 b). Très peu d'endommagement a été observé avant rupture sur la face radial-circonférentielle, car les niveaux de déformation élevés sont atteints là où les bandes macroscopiques débouchent en surface. Or ces bandes de cisaillement ne contribuent pas à la croissance de cavités, de par leur nature (la sollicitation dans ces bandes est de cisaillement).

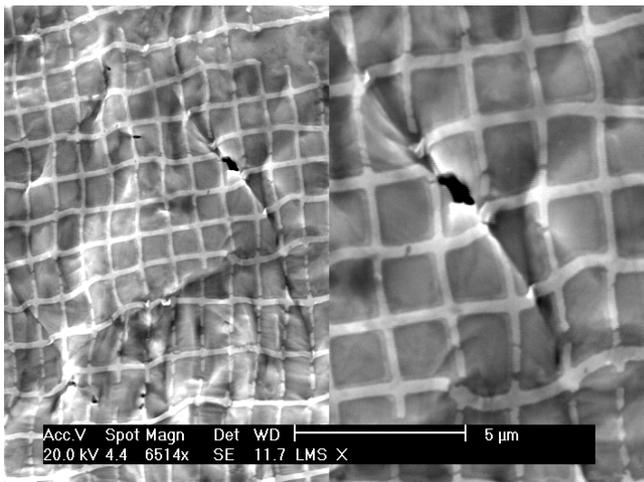


Figure 32 a : hydrure ? ou pli de la matière ?

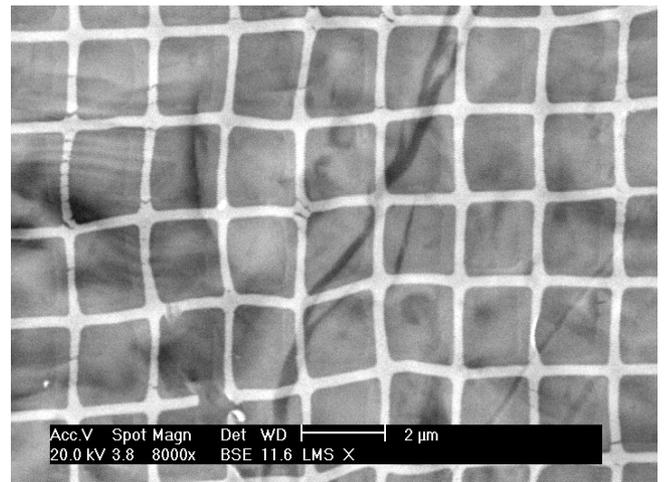


Figure 32 b : pas de cavité dans cet hydrure

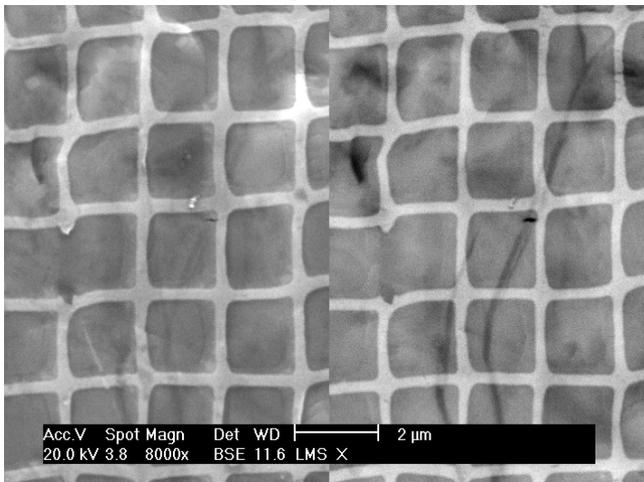


Figure 32 c : cavité dans un hydrure, à peine visible en SE (gauche), plus nette en BSE (droite)

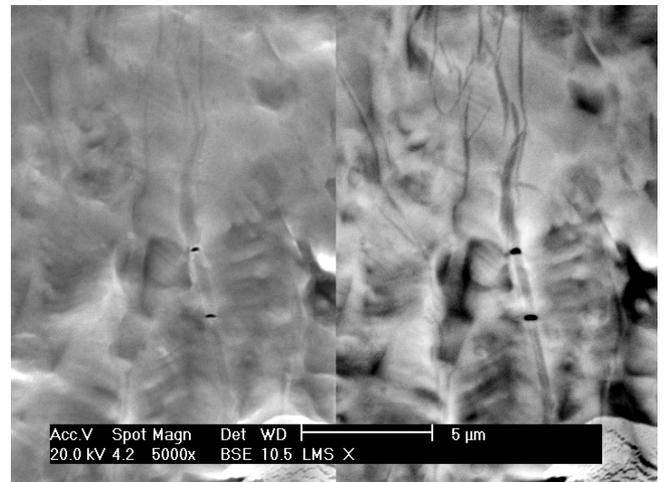


Figure 32 d : cavités dans un hydrure (le plus épais dans cette zone)

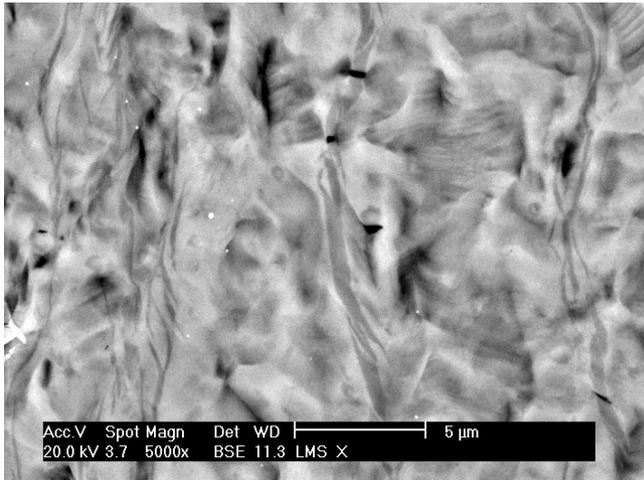


Figure 32 e : cavités dans un hydrure (le plus épais parmi ceux présents dans cette zone)

*Figure 32 : 200C, C17, essai in-situ, observation de la section transverse après rupture. Quelques cavités sont observées à proximité de la zone rompue. L'axe de la sollicitation correspond à la verticale des images.*

Dans les images suivantes (200R), prises également à proximité de la surface de rupture, on remarque que cette fois les hydrures sont fissurés dans leur longueur. Dans les Figure 33 a et b, la fissure semble passer au milieu de l'hydrure, mais elle semble être davantage à la limite de la matrice dans la Figure 33c. Ces observations ont été délicates et peu fructueuses : seulement quelques signes d'endommagement ont été décelés.

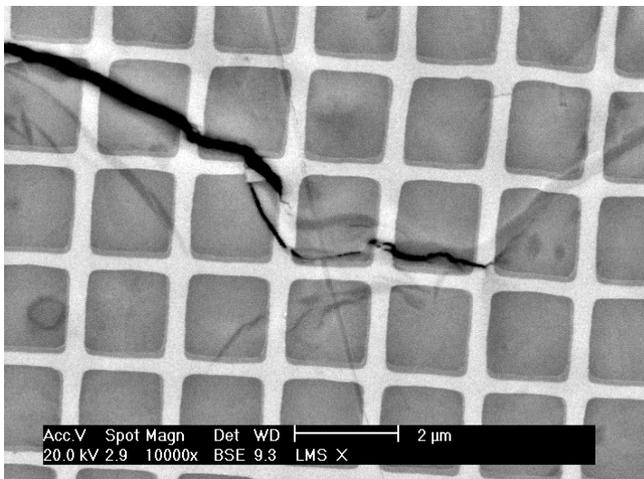


Figure 33 a

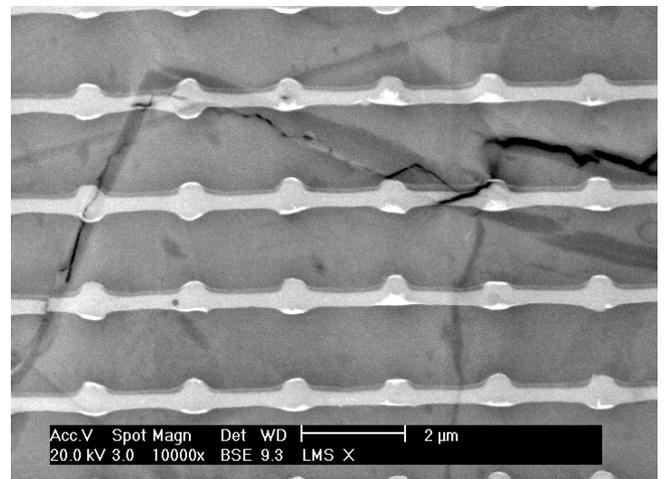


Figure 33 b

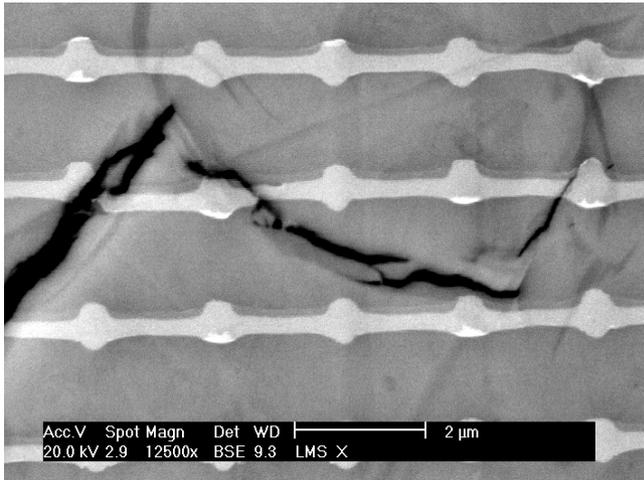


Figure 33 c

*Figure 33 : 200R, C9, observation du plan radial-circonférentiel après rupture à proximité de la zone rompue. Quelques fissures sont observées dans la longueur des hydrures. L'axe de la sollicitation correspond à la verticale des images.*

Concernant les 500ppm, juste avant la rupture, des cavités sont apparues dans les hydrures dans la zone où la rupture se propage, c'est-à-dire à l'équateur, juste au-dessus et au-dessous de la rupture. La zone contenant des cavités ne dépasse pas  $500 \times 500 \mu\text{m}$ . Cette germination s'est produit de manière quasi concomitante avec la rupture et n'a été décelée que post-mortem. La largeur de ces cavités est au minimum celle des hydrures environ (moins de  $0,3 \mu\text{m}$ ), mais parfois elle est beaucoup plus élevée (environ un pas de grille soit  $2 \mu\text{m}$ ).

Les champs de déformation n'ont pas pu être déterminés puisque, une fois les éprouvettes rompues (et sortie du montage pour le 500R), la corrélation d'images entre l'état déformé et l'état de référence n'est pas possible (ou difficile) : les éprouvettes se sont déplacées et ne sont plus orientées dans les mêmes axes. Cependant, on remarque qualitativement que les carrés des micro-grilles sont peu déformés. Sur les images de la figure 35, prise dans un MEB différent de celui des essais in-situ et avec lequel il est possible d'avoir une barre d'échelle sur les images, on peut évaluer la déformation dans le sens de traction, approximativement. Ainsi, dans la première image, la distance mesurée sur l'image étant quantifiable grâce à la barre d'échelle, le pas initial de la grille et donc la mesure initiale d'un certain nombre de carrés étant connue, on peut évaluer la déformation à environ 13,6%

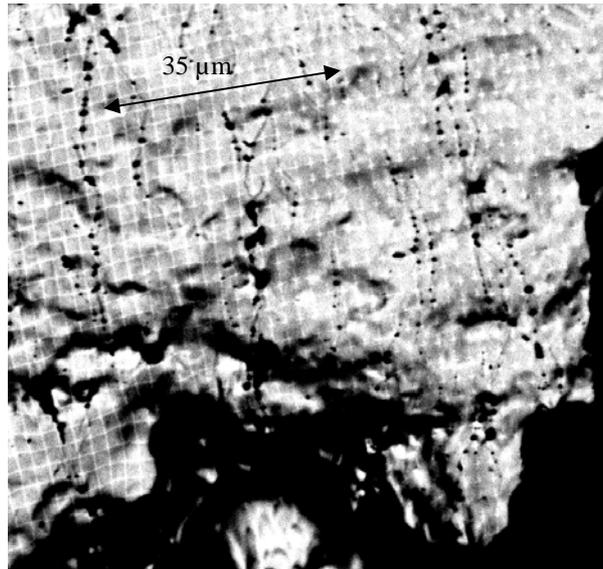


Figure 34 : 500C, A23, observation de la surface après rupture. De nombreuses cavités se sont formées dans la largeur des hydrures (Image MEB BSE).

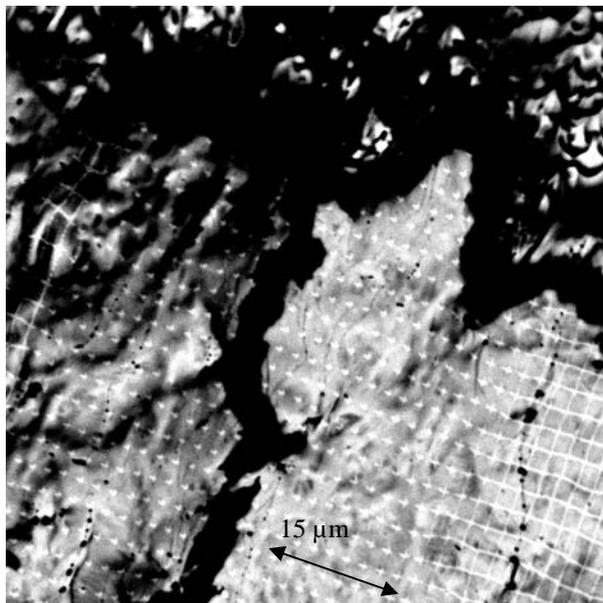


Figure 35 : 500M, B1, observation de la surface après rupture.

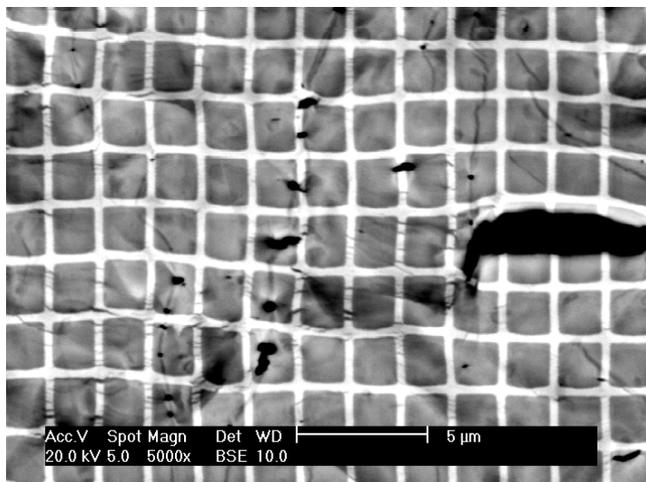


Figure 36 a

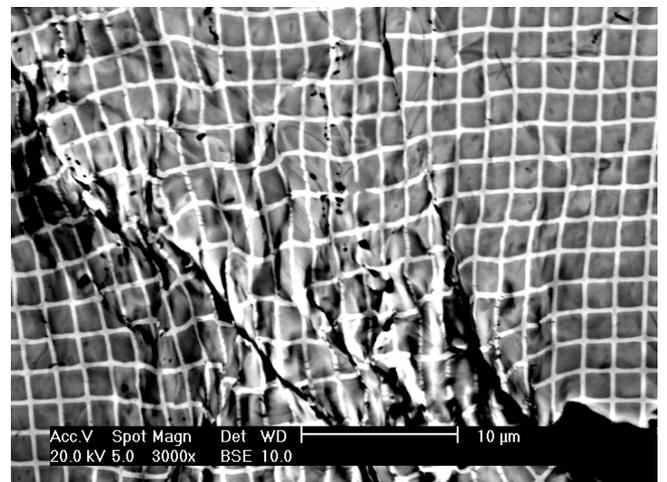


Figure 36 b

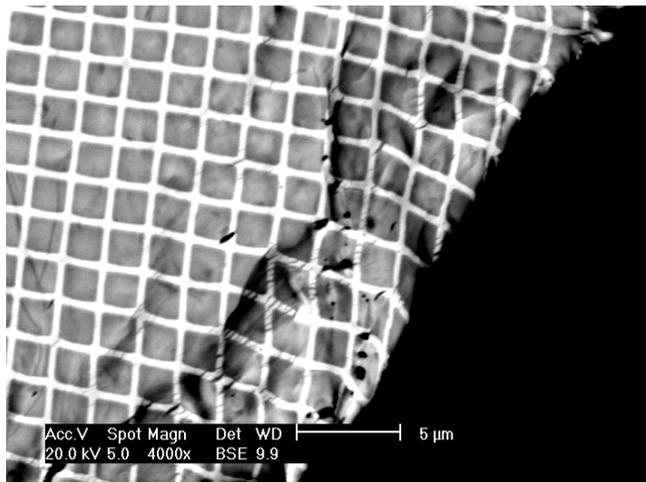


Figure 36 c

Figure 36 : 500R, B3. L'éprouvette ayant rompu brutalement des deux côtés, les deux morceaux de l'éprouvette ont été replacés face à face et observés dans un MEB différent de celui utilisé pour l'essai in-situ. Première ligne : rupture côté gauche, dernière ligne : rupture côté droit.

#### Champs locaux de déformation sur la face bombée

Comme cela a été décrit précédemment, à l'intersection des bandes de localisation macroscopique de la déformation, une cavité est créée par déchirement ductile. Afin d'une part d'observer la naissance et le développement de ces bandes macroscopiques et l'endommagement supposé y être associé, et d'autre part, d'accéder à des valeurs plus locales de la déformation (base de mesure de 8 μm environ), là où les bandes de cisaillement macroscopiques se développent, des micro-grilles ont été déposées sur la face bombée d'un anneau, et un essai in-situ a été réalisé.

L'échantillon choisi est hydruré à 245-250 ppm environ et ses hydrures sont orientés circonférentiellement. Trois rangées d'environ neuf micro-grilles d'un pas de 4 μm ont été déposées autour d'une génératrice. Les images des zones ont été prises au grandissement 200, au cours de 13 étapes de déformation.

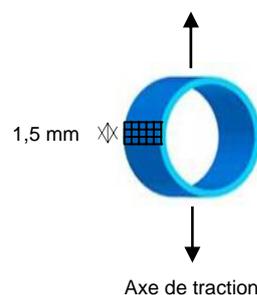


Figure 37 : Représentation schématique des 3 rangées de micro-grilles disposées autour d'une génératrice.

Nous savions que les hydrures sont difficiles à observer sur cette face. Néanmoins, la face bombée est celle qui est le plus comparable au plan L-T des tôles, plan dans lequel les éprouvettes plates sont prélevées en général, pour étudier le comportement des alliages de zirconium [Doumalin 2000].

Entre l'étape 9 et 10, une cavité est apparue à l'intersection des bandes de cisaillement du côté observé, puis entre l'étape 10 et 11, une cavité est apparue symétriquement sur le côté dépourvu de micro-grilles, et non-observé systématiquement. Dès l'apparition de ces cavités, la striction s'accélère et la rupture finale se produit rapidement, le long d'une des bandes de cisaillement, par déchirement ductile. La rupture est survenue à l'étape 13, du côté non-observé. L'apparition de la cavité sur l'une des faces correspond à une importante chute de charge.

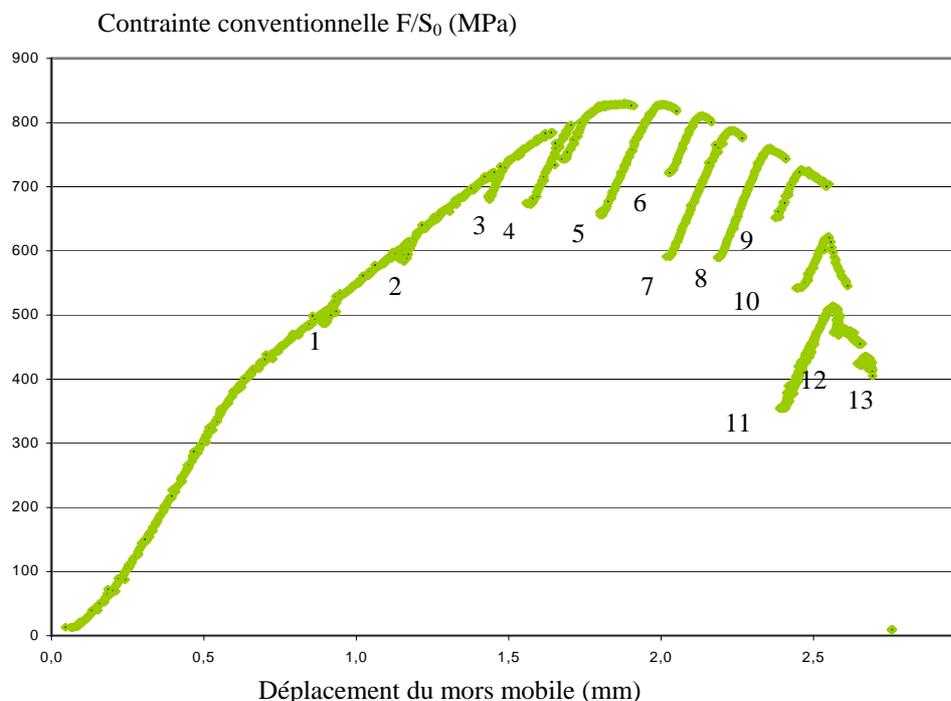


Figure 38 : Courbe de traction de l'essai in-situ réalisée sur l'éprouvette B17. Les étapes de déformation sont numérotées de 1 à 13 (rupture).

Par comparaison avec les essais macroscopiques réalisés, et en particulier avec celui sur le matériau non-hydruré, ces deux cas semblent très similaires. En effet, dans cet essai sur lequel du mouchetis avait été déposé, la naissance de la cavité à l'intersection des bandes a été repérée sur la face observée au temps 1840s. A cet instant, les données mécaniques dont nous disposons sont les suivantes :  $E_{11} = 21\%$  ;  $E_{22} = -10\%$  ; la contrainte conventionnelle valant environ 510 MPa. Il est possible que la cavité soit apparue avant mais n'ait pas été décelée, ou bien qu'elle soit apparue de l'autre côté, non-observé. Il est en effet probable, que la cavité soit apparue dès le début de la chute de charge, pour une contrainte d'environ 600 MPa.

L'observation de la surface au MEB met clairement en évidence la forte localisation de la déformation en bandes (Figure 39 et Figure 40) : autour de la pointe de la cavité, le matériau est très déformé seulement dans la direction des bandes et sur une largeur d'environ  $50 \mu\text{m}$ .

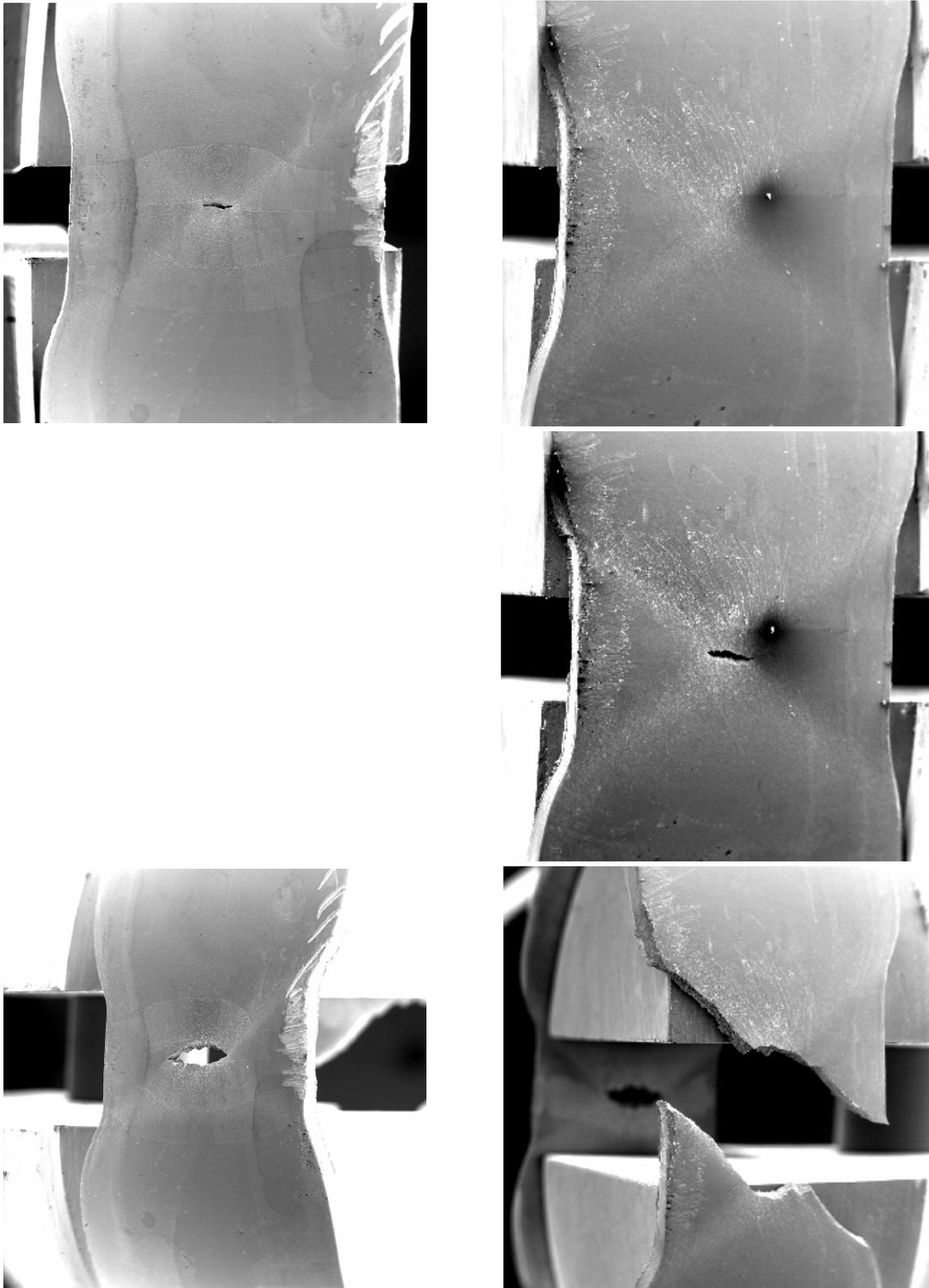


Figure 39 : Naissance de la cavité et striction de l'éprouvette : 1<sup>ère</sup> ligne, étape 10, 2<sup>ème</sup>, étape 11, 3<sup>ème</sup>, étape 13. A gauche, côté gauche de l'éprouvette, suivi des micro-grilles ; à droite, côté droit, observé ponctuellement.

Comme on l'a expliqué, la cavité étant apparue entre deux micro-grilles, on ne dispose pas d'images de référence de la zone où elle s'est formée. On ne peut donc pas accéder aux champs locaux de déformation à cet endroit.

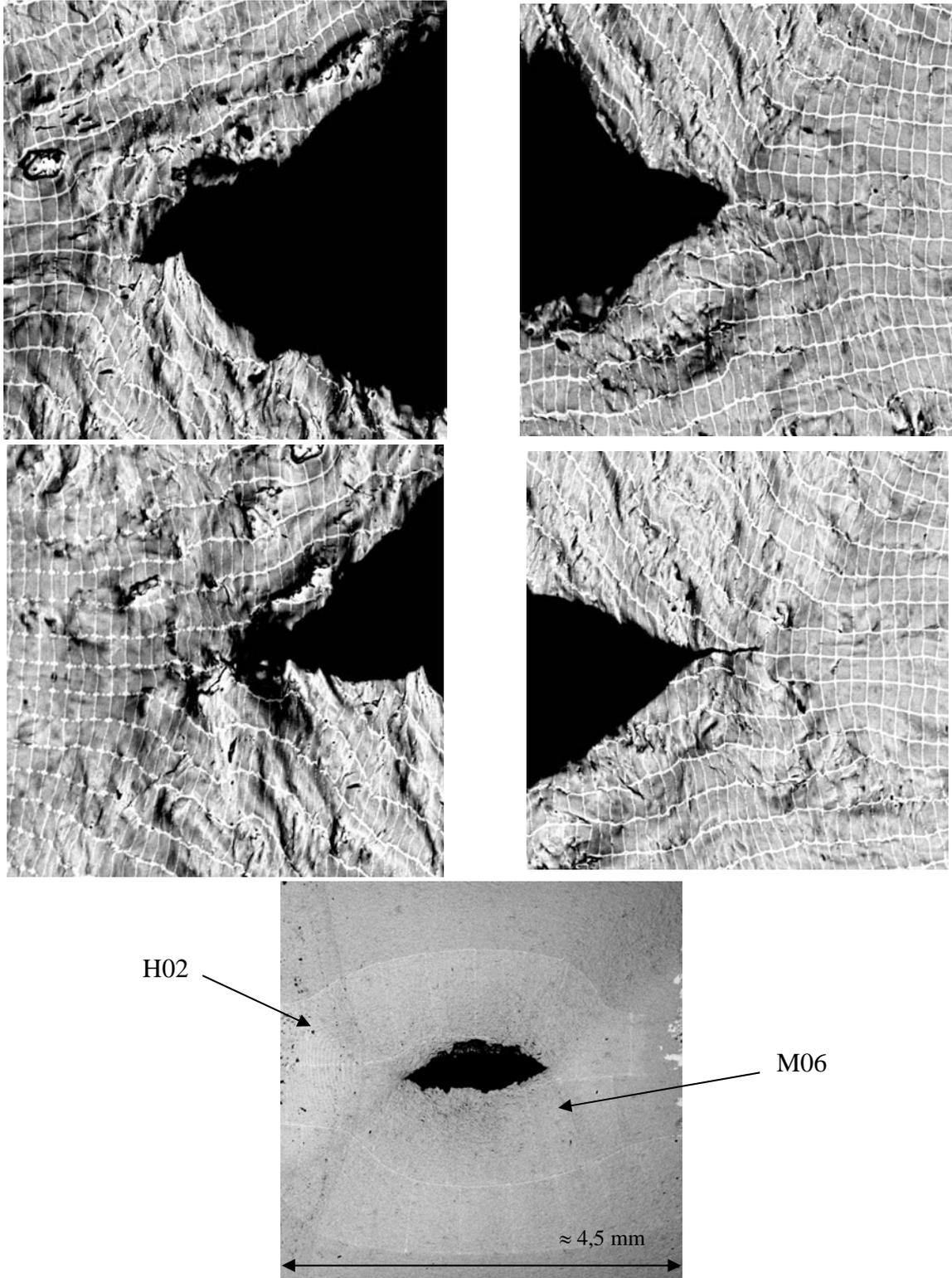
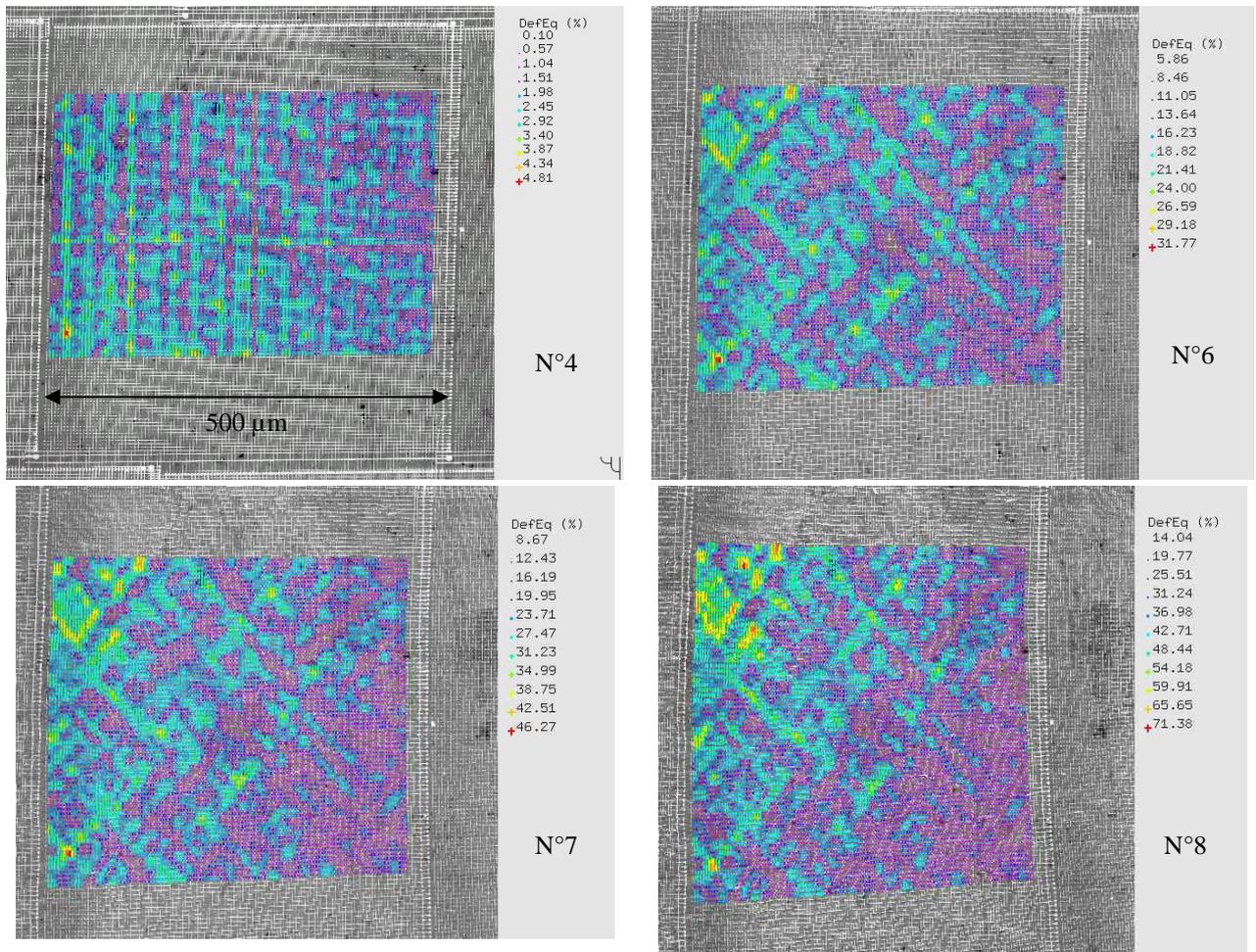


Figure 40 : Croissance de la cavité. 1<sup>ère</sup> ligne : avancée de la cavité, à gauche et à droite, à l'étape 12, 2<sup>ème</sup> ligne : idem à l'étape 13 (rupture) ; 3<sup>ème</sup> ligne : vue d'ensemble. Il est difficile de donner une échelle pour les 4 premières images : le pas de la grille était 4  $\mu$ m initialement.

Sur les cartes de déformation (Figure 41 et Figure 42), la déformation est localisée en fines bandes principalement dans les zones autour de la cavité centrale. Ces bandes sont longues : de 100 à 400  $\mu\text{m}$ . L'angle entre les bandes est d'environ  $85^\circ$ , c'est-à-dire environ  $40\text{-}45^\circ$  entre l'axe de traction et les bandes (à l'étape 8, sur la zone M06, adjacente à la cavité). Au fur et à mesure que la striction s'accroît, l'éprouvette s'allonge dans le sens de traction, et l'angle entre les bandes, mesuré dans la direction de traction, diminue : il est d'environ  $75^\circ$  à l'étape 10.

La répartition de ces hétérogénéités ressemble davantage à ce qui est couramment observé sur les alliages de zirconium [Doumalin 2000]. Les bandes sont assez rectilignes, longues et orientées à  $40\text{-}45^\circ$  de la sollicitation. D'autre part, elles apparaissent tôt, pour de faibles déformations, puis leur répartition bande n'évolue plus. Seule l'intensité de la déformation est modifiée : la déformation se localise de plus en plus dans ces hétérogénéités.



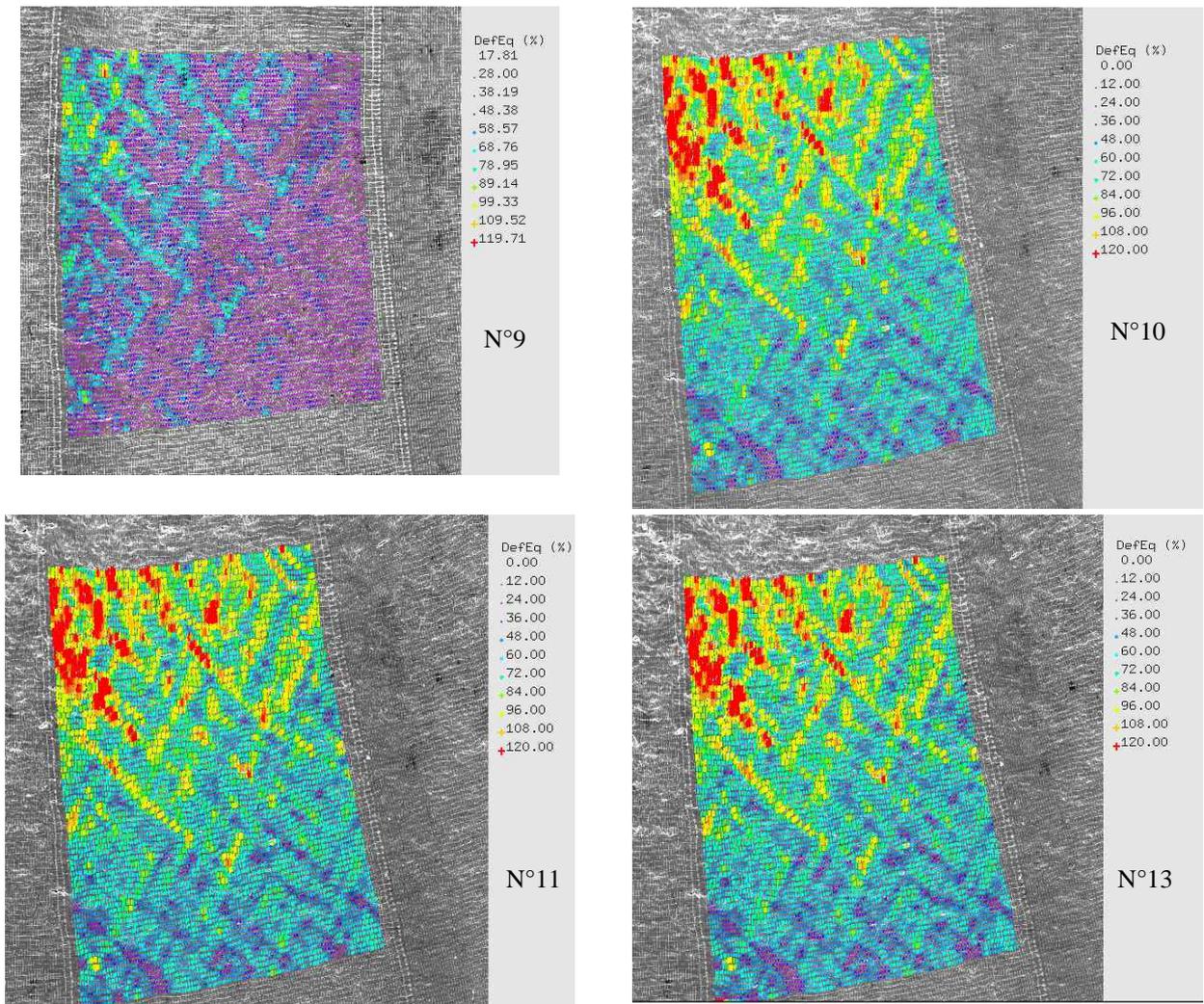


Figure 41 : Cartes de déformation de la zone M06 (rangée du milieu, 6<sup>ème</sup> carte) de la face bombée. Représentation dans la configuration déformée des cartes des étapes 4 à 13. La cavité apparaît à partir de l'étape 10 en haut à gauche et cette zone.

Etape n°	<i>E11</i>	<i>E22</i>	<i>E12</i>
4	-1,76	1,01	0,053
6	-9,2	12,5	-0,17
7	-11,62	19,55	-0,15
8	-16,22	31,08	-0,43
9	-20,49	44,46	-0,49
10	-24,73	71,78	0,48
11	-24,61	73,57	0,54
13	-24,40	70,61	-0,028

Tableau 2 : Valeurs des composantes planes du tenseur de déformation aux étapes de déformation correspondant aux cartes présentées ci-dessus.

Les deux échelles d'hétérogénéités observées au cours des essais sur anneaux sont bien mises en évidence sur la figure suivante (Figure 42). La carte est partagée en deux dans le sens de la diagonale à cause des hétérogénéités macroscopiques : une des bandes de localisation macroscopique (visible aussi

avec les caméras optiques) passe en effet dans le coin haut droit de la carte. C'est dans cette partie, la plus déformée des deux, que sont également visibles les hétérogénéités de déformation à l'échelle locale : la déformation est localisée dans des fines bandes comme décrites dans les cartes présentées dans la Figure 41.

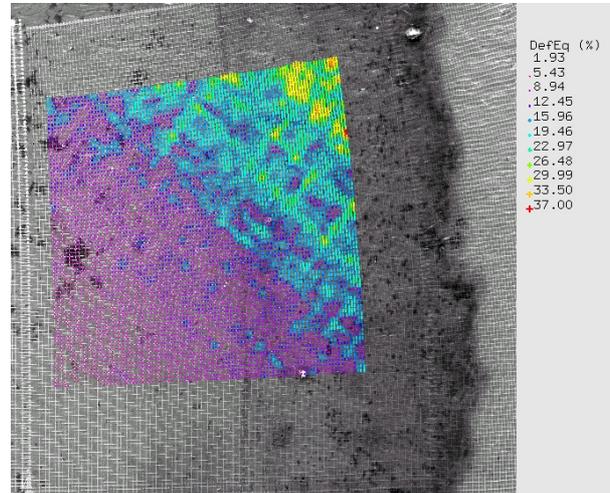


Figure 42 : Carte de déformation de la zone H02 de la face bombée (1<sup>ère</sup> rangée, 2<sup>ème</sup> image en partant de la gauche, située à environ 500  $\mu\text{m}$  de la face plane de l'éprouvette), étape 10. Représentation dans la configuration déformée. Nette partition de la carte : en haut à droite : passage de la bande, zone très déformée ; en bas à gauche : zone en-dehors de la localisation, déformation peu élevée.  $E11 = -8,03\%$  ;  $E22 = 10,33\%$  ;  $E12 = 0,49\%$ .

Cet essai a donc confirmé que l'endommagement ductile apparaissait tardivement à l'intersection des bandes macroscopiques de localisation de la déformation. Les champs de déformation autour de la cavité centrale n'ont pas pu être évalués précisément, car la cavité s'est formée entre deux micro-grilles. Cependant, cet essai permet de vérifier que l'état de sollicitation à l'intersection des bandes, au niveau de la cavité centrale, est relativement homogène.

## CHAPITRE 4 : RESUME

*Au cours de ce chapitre, nous avons présenté les résultats des essais de traction sur anneau lisse, réalisés sur du Zircaloy-4 détendu, hydruré à 200 et 500 ppm avec différentes distributions d'orientation d'hydrures. Les essais avec suivi de marqueurs mettent en évidence la similitude de la réponse mécanique pour toutes les configurations étudiées : l'hydruration n'influence pas le comportement mécanique macroscopique, mais la ductilité à rupture, qui chute lorsque la teneur en hydrogène augmente et surtout lorsque les hydrures sont perpendiculaires à la sollicitation.*

*Les essais macroscopiques permettent d'étudier la répartition des champs de déformation à l'échelle globale : dans toutes les configurations d'hydruration pour lesquelles la plasticité se développe (tous les cas sauf 200R), la déformation se localise dans des bandes de cisaillement, orientées à environ 60° par rapport à l'axe de sollicitation, visibles sur la face bombée des éprouvettes. Ce phénomène de bandes, lié au matériau et à la géométrie de l'éprouvette, s'accompagne d'une striction, intense dans les matériaux très ductiles (NH, 200C) et moins marquée, voire absente dans les autres cas selon la ductilité atteinte.*

*Quant aux essais in-situ, difficiles à préparer à cause de l'étroitesse de la section radiale-circumférentielle sur laquelle les micro-grilles ont été déposées, longs à réaliser à cause du nombre d'étapes de déformation et du nombre d'images haute résolution à acquérir, clé de voûte supposée de cette étude, ils n'ont pas apporté autant d'informations que l'on espérait. En effet, d'une part, les hydrures sont difficiles à observer au MEB, et à cause des artefacts causés par les attaques chimiques, nous avons choisi de ne pas les révéler. Seule l'observation avec les électrons rétro-diffusés (BSE) était donc possible. D'autre part, à cause de la géométrie anneau et de la tendance de ce matériau à ce que la déformation se localise fortement, les zones dans lesquelles le niveau de déformation moyen est élevé sont peu nombreuses : donc, cela restreignait les zones où l'apparition de l'endommagement, soumise à une déformation assez élevée (15-20 % d'après [Grange 1997]), était visible. Enfin, à cause de la difficulté à mettre en œuvre des observations locales à cause du mode global de déformation et de la faible teneur en hydrogène, très peu d'endommagement a été décelé dans les éprouvettes hydrurées à 200 ppm (les zones les plus intéressantes, sont si déformées qu'elles ne sont pas observables, et elles ne présentent pas de cavités, car elles se trouvent là où les bandes de cisaillement débouchent). En revanche, un endommagement beaucoup plus dense est apparu dans les éprouvettes à 500 ppm, mais concentré dans une zone, à l'équateur, là où la rupture s'est produite, et presque simultanément avec la rupture : dans tous les cas, il n'a donc pas été possible d'observer l'étape de nucléation de cavité dans les hydrures. Dans le cas 200R, pour lequel la rupture se produit dans la phase élastique, en se propageant d'hydrure radial en hydrure radial, rien non plus n'a pu être observé, tant la rupture fut brutale et sans signe avant-coureur. Les essais in-situ, moyens privilégiés pour étudier les micro-mécanismes d'endommagement, n'ont donc pas pu être exploités pleinement. Malgré ces difficultés, inhérentes au matériau et à la géométrie des éprouvettes, les essais in-situ ont tout de même permis d'accéder à la répartition des champs locaux de déformation : en effet, une des questions à laquelle ce travail de thèse avait pour objectif de répondre, était la suivante : les hydrures, que ce soit leur quantité et/ou leur orientation, perturbent-ils les modes locaux de déformation par un*

*effet composite ? Il semble que la réponse soit négative. En effet, dans toutes les configurations dans lesquelles de la plasticité macroscopique s'est développée, la déformation se localise dans des bandes à l'échelle locale. La répartition en bandes apparaît au début de l'essai, puis elle ne va pas changer, seule la déformation va se localiser de plus en plus intensément. Les niveaux de déformation locaux atteints, comme pour la déformation macroscopique globale, dépendent de la configuration étudiée. Cependant, peu voire pas d'interaction entre les bandes locales et les hydrures n'est mise en évidence, que ce soit par une observation qualitative des cartes de déformation superposées à la microstructure ou par une étude plus statistique de la distribution de la déformation.*

*L'étude de ces bandes à l'échelle locale a été réalisée sur deux plans : sur la face plane (plan radial-circonférentiel) pour toutes les configurations et sur la face bombée pour le cas 200C. La morphologie des bandes est différente : celles de la face bombée ressemblent à celles observées classiquement sur éprouvettes plates prélevées dans le plan de la tôle.*

*D'autres informations intéressantes permettant de progresser dans la compréhension des mécanismes de rupture ont été fournies par l'observation des faciès de rupture. A partir de ces observations et des interprétations des essais, on a classé les sept configurations en trois classes : celles ductiles, celle fragile et celles dont la rupture est fragile après une déformation ductile. Pour le 200M par exemple, la présence d'un faciès mixte, ductile au centre et fragile sur les bords, a permis de comprendre pourquoi, malgré l'apparition des bandes de plasticité, la rupture s'était produite perpendiculairement à la sollicitation : les hydrures radiaux ont causé l'instabilité de la rupture et ont conduit la fissure à se propager à travers eux, plutôt que le long d'une bande de cisaillement.*

*D'une manière générale, l'étude des faciès de rupture met en évidence l'influence de la teneur en hydrogène et de l'orientation des hydrures : pour le premier paramètre, on compare le 200C et le 500C, pour le second, ce sont 200C et 200R qui sont à mettre en parallèle. On conclut donc que la hausse de la teneur réduit la ductilité, certainement parce que les hydrures, dont les longues bandes assez rapprochées forment des amas, ont rompu formant in fine un réseau de fissures secondaires, avant que le cisaillement le long des bandes macroscopiques ne se produise. Concernant le second paramètre, l'orientation, son influence est plus drastique : la plasticité n'a pas pu se développer, les hydrures radiaux, perpendiculaires à la sollicitation fournissant un chemin privilégié pour le passage d'une fissure pour une faible valeur de la contrainte. En revanche, le 200C et le matériau non-hydruré présentent des réponses mécaniques et des faciès très proches, excepté les fissures secondaires dues à la rupture des hydrures que l'on observe sur le faciès du 200C.*

*Il faut souligner qu'au cours des essais in-situ sous MEB, une attention particulière a été portée à l'observation d'une possible déformation des hydrures : cependant, ceci n'est pas aisé, car dans les zones les plus déformées, le relief est si perturbé à la fin de l'essai, que les hydrures, initialement visibles en électrons rétro-diffusés, ne le sont plus, à cause du contraste lié au relief qui perturbe la qualité de l'image. Ailleurs, aucune déformation des hydrures n'a été remarquée. Les cartes confirment toutefois que des hydrures non rompus peuvent être traversés par des bandes de déformation. D'autre part, l'observation du faciès de rupture semble confirmer que les hydrures sont nettement moins ductiles que la matrice, puisque selon leur orientation et la teneur, leur rupture semble être visible soit grâce à la présence de fissures secondaires, soit par des surfaces planes et fragiles, provenant certainement de la décohérence de plaquettes d'hydrures.*





---

## CHAPITRE 5 : MODELISATION NUMERIQUE DE L'ESSAI SUR ANNEAU

---

Dans ce dernier chapitre, nous décrivons la démarche adoptée afin d'élaborer un critère de rupture prenant en compte la teneur en hydrogène et l'orientation des hydrures. Cette démarche s'appuie sur la relation existant entre les proportions de longueurs d'hydrures radiaux issues de l'analyse d'image et les valeurs de mesures de champ obtenues par corrélation d'images. A partir de cette relation, une modélisation par la mécanique de l'endommagement anisotrope issue des matériaux micro-fissurés, a permis de prendre en compte les différentes orientations d'hydrures. Les résultats obtenus par calcul aux éléments finis sur anneaux et par l'expérience (résultats de corrélation d'images) sont confrontés et commentés. Une formulation  $\dot{D}$  séparant la teneur en hydrure et l'orientation a été proposée. Des perspectives sont ensuite dégagées concernant le chemin critique de fissuration afin de mieux décrire la transition ductile-fragile observée avec la variation de l'orientation et de la teneur. La configuration particulière aux matériaux hydrurés à 500 ppm combinant hydrures circonférentiels et radiaux, suite au traitement de réorientation, demanderait à être mieux décrite.

## 5.1 PREAMBULE

### 5.1.1 OBJECTIFS

L'objectif principal était d'établir un critère de rupture pour le Zircaloy-4 hydruré, qui prenne en compte les paramètres teneur en hydrogène et orientation des hydrures. Les observations réalisées pendant les essais in-situ sous MEB, ainsi que le dépouillement de ces essais n'ont pas apporté les informations attendues concernant l'apparition de l'endommagement, au sens de germination et croissance de cavités. En effet, l'endommagement est difficile à observer sur le plan radial-circumférentiel (très peu de cavités ont été observé sur le matériau à 200 ppm, et sur le matériau à 500 ppm elles apparaissent tardivement et trop brutalement pour que des informations puissent en être tirées), d'autre part, sur la face bombée, à l'intersection des bandes de cisaillement macroscopiques, là où la rupture est initiée, les hydrures sont peu visibles.

Il a donc été décidé d'exploiter davantage les mesures de champ de déformation macroscopiques et les résultats d'analyse d'images, pour définir une modélisation de type endommagement permettant de reproduire les réponses mécaniques obtenues pour des éprouvettes de type anneaux lisses, à 20°C, et pour des teneurs et des distribution d'orientation d'hydrures comparables à celles de notre étude expérimentale.

### 5.1.2 BREF RAPPEL : MODELE DEVELOPPE PAR [GRANGE 1998]

[Grange 1998] a choisi d'utiliser la mécanique des milieux poreux pour représenter la rupture du Zircaloy-4 hydruré. D'après ses observations expérimentales, la rupture de son matériau (Zircaloy-4 recristallisé) suit un mécanisme de rupture ductile jusqu'à 1200 ppm. Elle s'est donc appuyée sur une caractérisation quantitative de la germination de cavités par rupture d'hydrures, afin d'accéder à une loi d'évolution de la porosité effective en fonction de la teneur en hydrogène et de la déformation plastique équivalente.

Elle a choisi le potentiel de Gurson-Tvergaard-Needleman pour représenter le comportement et la rupture du Zircaloy-4 hydruré pour des teneurs allant de 274 ppm environ à 1310 ppm. Elle a utilisé la contrainte équivalente au sens de Hill afin d'introduire l'anisotropie de comportement et de reproduire l'évolution des déformations au cours de la rupture. Son modèle permet de représenter la propagation de fissures (à l'échelle globale) et de prédire la rupture de structures (2D) sollicitées sous chargement monotone.

### 5.1.3 CHOIX D'UN MODELE NON-COUPLE

Deux différences principales existent avec l'étude de [Grange 1998] : d'une part, la notion d'orientation devait être introduite dans le modèle, d'autre part, très peu d'endommagement a été observé. De plus, les résultats des essais macroscopiques soulignent que ni l'allure de la réponse  $\sigma - \Delta l/D_{\text{ext ini}}$ , ni les champs de déformation globaux ne sont fortement modifiés par la présence d'hydrures : toutes les courbes  $\sigma - \Delta l/D_{\text{ext ini}}$  se superposent à celle du matériau non-hydruré et la principale différence à cette échelle est le moment de la rupture, et donc la ductilité finale.

Les modes de déformation à l'échelle locale ne semblent pas non plus être différents entre le matériau non-hydruré et les configurations hydrurées, d'après les cartes de déformation que l'on obtient. Les

informations statistiques sur la répartition de la déformation à cette échelle ne permettent pas non plus de conclure à une corrélation entre la présence d'hydrures et les modes de déformation locaux. L'utilisation d'un modèle non-couplé, c'est-à-dire sans couplage entre comportement et endommagement, est donc parfaitement légitime. Le critère de rupture est donc appliqué en post-traitement de calculs.

## 5.2 MODELISATION NUMERIQUE DE L'ESSAI SUR ANNEAU ET CONFRONTATION AVEC LA MESURE PAR CORRELATION NUMERIQUE

La première étape de notre démarche concerne donc exclusivement la modélisation de l'essai sur anneau avec le matériau non-hydruré.

### 5.2.1 AJUSTEMENT DES PARAMETRES DU MODELE NUMERIQUE DE L'ESSAI SUR ANNEAU

#### LOI DE COMPORTEMENT DE LA GAINÉ

Il s'agit d'une loi élasto-plastique à écrouissage isotrope (de type von Mises) identifiée sur du Zircaloy-4 détendu non-irradié à 20°C (sur anneau). La loi est entrée dans le code sous forme de couples de points ( $\sigma, \epsilon$ ) rationnels et extrapolés par une loi puissance pour les grandes déformations. L'anisotropie de comportement du Zircaloy-4 est négligée.

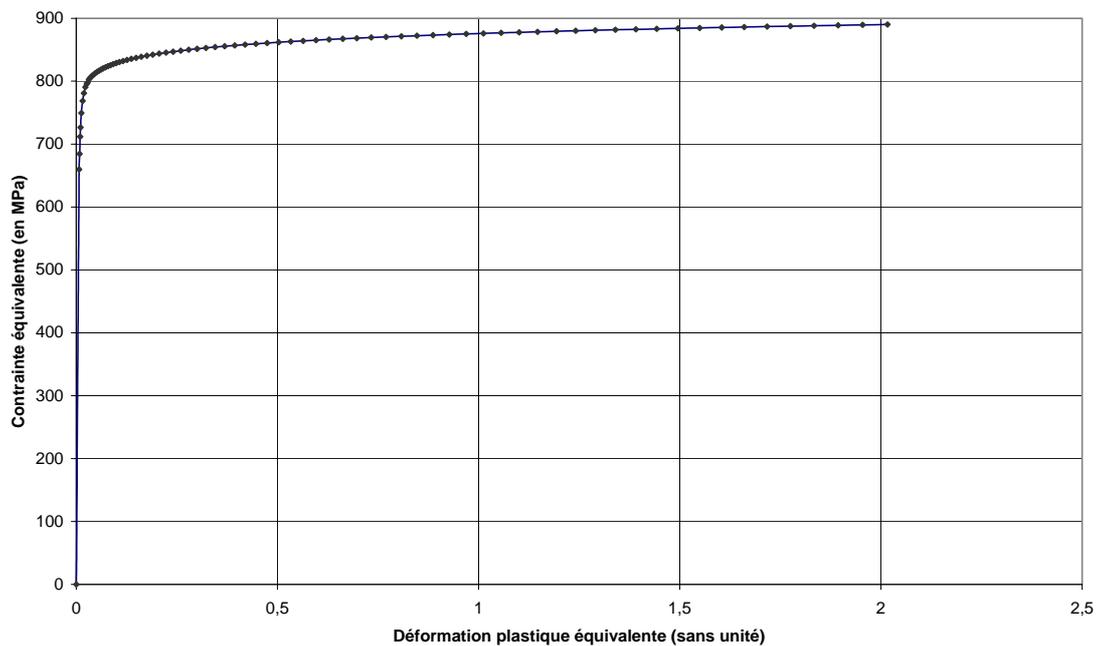


Figure 1 : Courbe de traction du Zircaloy-4 détendu à 20°C. Expression de la contrainte équivalente au sens de von Mises en fonction de la déformation plastique équivalente.

## MAILLAGE

Pour l'anneau, la taille des mailles dans la zone où il est intéressant d'étudier la localisation (c'est-à-dire là où le champ est le plus hétérogène à cause de la présence de bandes macroscopiques de déformation) à l'équateur est la suivante : 100  $\mu\text{m}$  dans la direction radiale (épaisseur de la gaine), 100 ou 200  $\mu\text{m}$  dans la direction tangentielle (les deux cas ont été calculés) et 400  $\mu\text{m}$  dans la direction axiale. Comme, pour des raisons de symétrie, un huitième de l'éprouvette est maillée, cela conduit à avoir 5 éléments dans l'épaisseur de la gaine et 6 éléments dans le sens axial.

Le mandrin est considéré comme une coque rigide.

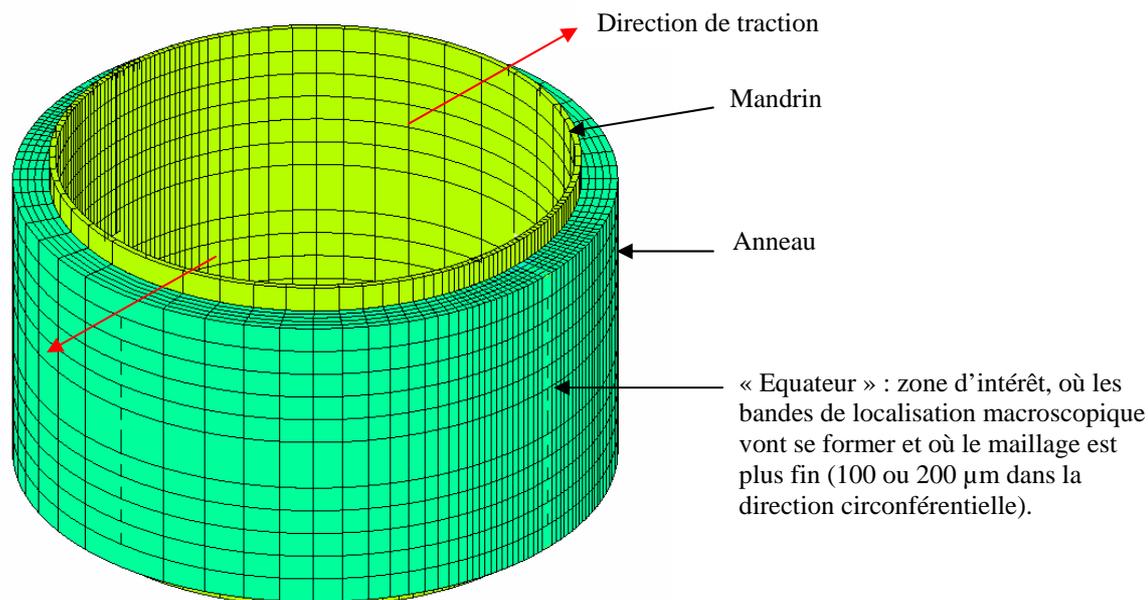


Figure 2 : Maillage de l'anneau et du mandrin. Ici la taille des mailles dans la zone d'intérêt est de 400  $\mu\text{m}$  dans la direction axiale, 100  $\mu\text{m}$  dans l'épaisseur de la gaine et 200  $\mu\text{m}$  dans la direction circonférentielle.

## JEU ENTRE L'ANNEAU ET LE MONTAGE

Le jeu entre l'anneau et le montage n'a pas été pris en compte, ce qui sera rappelé ultérieurement dans l'interprétation de certains résultats.

## COEFFICIENT DE FROTTEMENT GAIN-MANDRIN

D'après la comparaison d'essais et de calculs déjà réalisés au LCMI, le coefficient de frottement métal – métal non-lubrifié est compris entre 0,1 et 0,4. Plusieurs calculs ont été réalisés pour obtenir le meilleur accord avec les courbes expérimentales obtenues lors de nos essais. Il semble que le coefficient de 0,1 soit le plus adapté (Figure 3, Figure 4), car d'une part, la contrainte maximale atteinte et d'autre part, la chute progressive de charge qui succède au maximum sont plus proches de celles obtenues expérimentalement, quelle que soit la taille de maille. Le frottement est simulé via un modèle de type Coulomb sans seuil, s'exprimant comme suit :

$$F_{\text{tangential}} = f F_{\text{normal}}$$

où  $f$  est le coefficient de frottement,  $F_{\text{tangential}}$  l'effort tangential, et  $F_{\text{normal}}$  l'effort normal exercé sur les surfaces.

## 5.2.2 RESULTATS OBTENUS

Avec le maillage le plus fin et le coefficient de frottement le plus faible (courbe rouge de la Figure 3), la réponse calculée est très proche de celle obtenue expérimentalement.

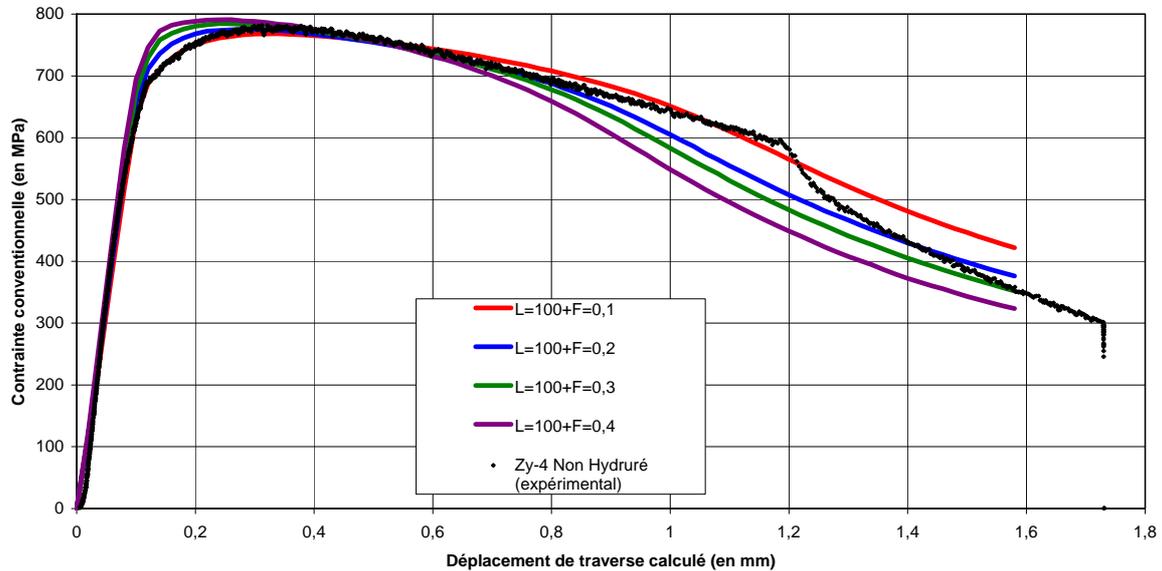


Figure 3 : Courbes « Contrainte conventionnelle – déplacement de traverse imposé dans les calculs éléments finis ». La courbe expérimentale est issue des données obtenues avec suivi de marqueurs. Sa pente a été modifiée pour  $p$  pouvoir mieux comparer les différentes réponses. Les autres courbes, en couleur, sont issues du calcul numérique. Conditions : maillage fin ( $100\ \mu\text{m}$  dans la direction circonférentielle) et différents coefficients de frottement  $F$ .

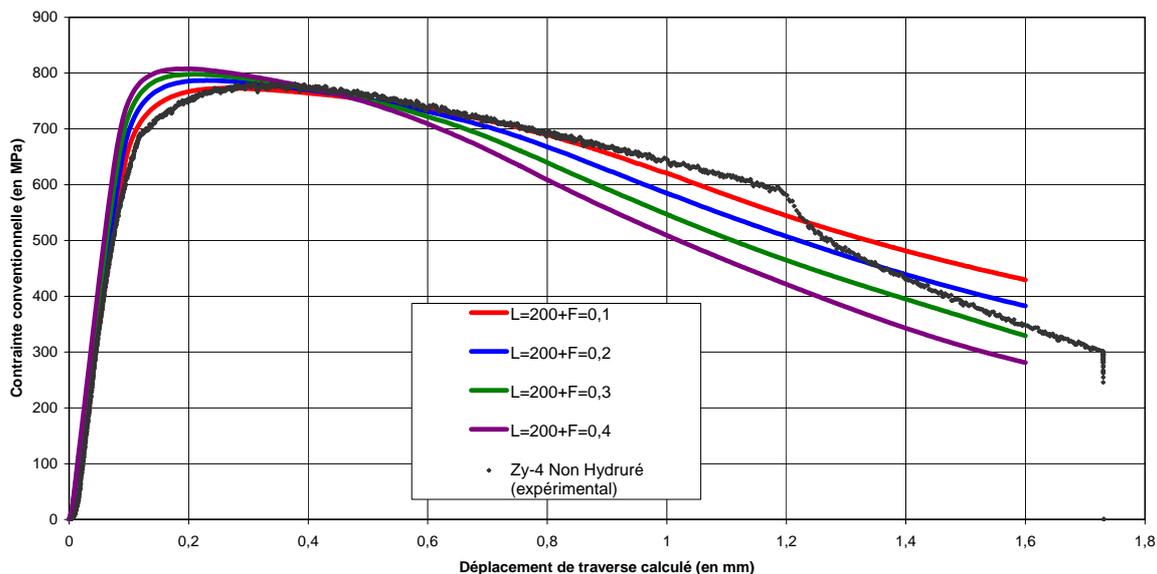


Figure 4 : Courbes « Contrainte conventionnelle – déplacement de traverse imposé dans les calculs éléments finis ». La courbe expérimentale est issue des données obtenues avec suivi de marqueurs. Sa pente a été modifiée pour  $p$  pouvoir mieux comparer les différentes réponses. Les autres courbes, en couleur, sont issues du calcul numérique. Conditions : maillage fin ( $200\ \mu\text{m}$  dans la direction circonférentielle) et différents coefficients de frottement  $F$ .

Sur les cartes de déformation ci-après, obtenues par le calcul avec la taille de maille la plus fine et le coefficient de frottement le plus faible, sont représentés les champs de déformation (composante de déformation irréversible axiale – Figure 5 – et circonférentielle – Figure 6 –) à l'étape ultime du calcul (déplacement calculé = 1,58 mm). Ces cartes sont à comparer avec celles présentées dans le Chapitre 4 pour le matériau non-hydruré avant rupture.

On constate que la localisation de la déformation dans des bandes macroscopiques est bien reproduite. On ne commente pas la largeur des bandes, qui est difficile à évaluer, aussi bien à partir des cartes issues de la corrélation ou de celles issues du calcul, car elle dépend beaucoup de la grille de référence et du calcul des déformations dans le premier cas, de la taille de maille dans le second. L'angle entre les bandes paraît en accord avec la réalité expérimentale. La striction est elle aussi nettement mise en évidence par le calcul. On remarque que là où les bandes débouchent, sur le plan radial-circonférentiel, la surface est inclinée. Entre les deux zones inclinées, il existe un plateau. Ceci a été observé lors des essais réalisés sur le NH et le 200C, comme en témoigne les photos des éprouvettes prises post-mortem (Chapitre 4). Ce phénomène est bien reproduit avec cette taille de maille et ce coefficient de frottement, mais l'est nettement moins avec les autres couples de paramètres : plus le coefficient de frottement est faible, plus la « pente » entre la surface de matériau sain et celle de matériau strictionné est important, plus la taille de maille diminue plus le plateau est remarquable. Ces résultats permettent de valider le calcul de la réponse de l'anneau.

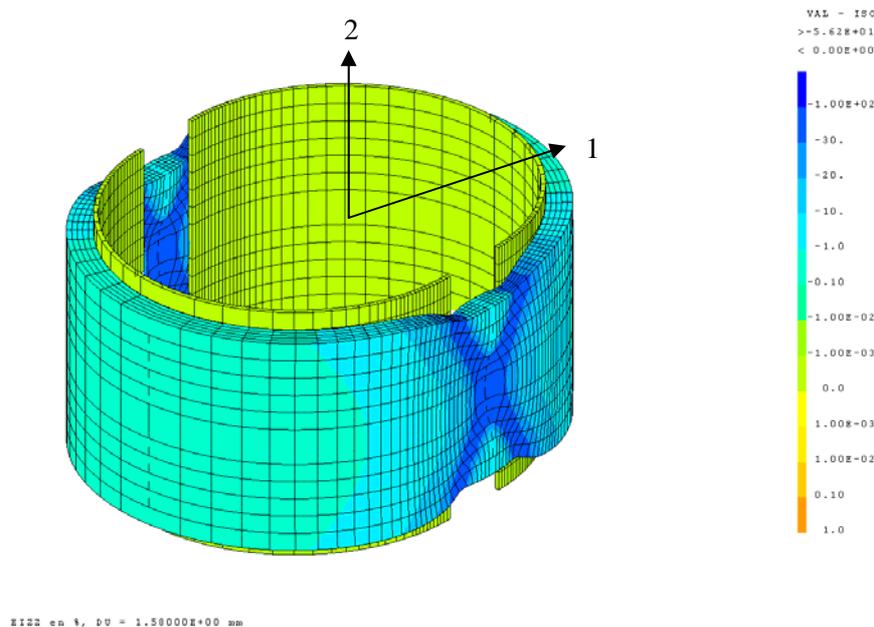


Figure 5 : Carte de déformation de la composante E22 du matériau non-hydruré, juste avant rupture : déplacement calculé = 1,5 mm. Taille de maille = 100  $\mu\text{m}$  ; coefficient de frottement = 0,1.

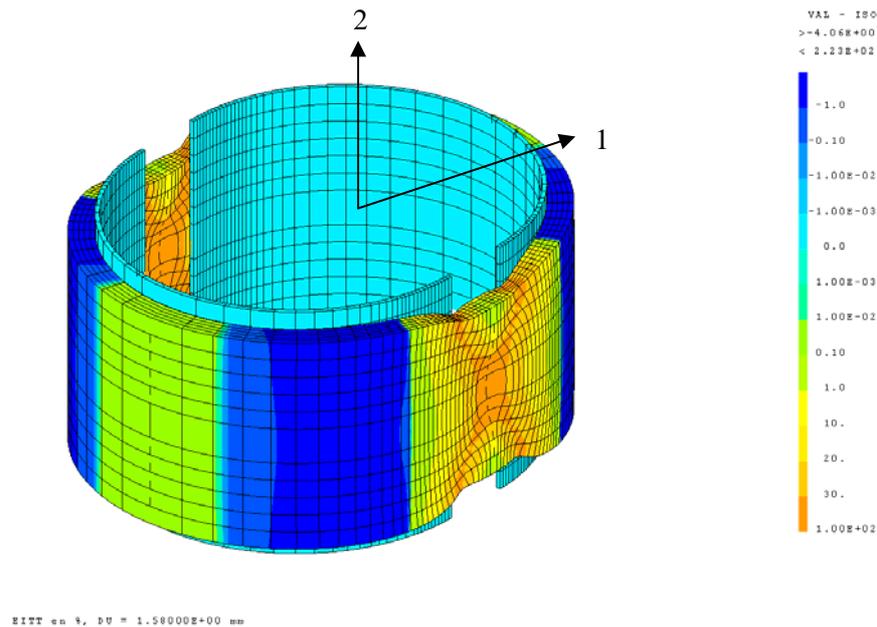


Figure 6 : Carte de déformation de la composante  $E11$  du matériau non-hydruré, juste avant rupture : déplacement calculé = 1,58 mm. Taille de maille = 100  $\mu\text{m}$  ; coefficient de frottement = 0,1.

### 5.3 PROPOSITION D'UN CRITERE DE RUPTURE ET MISE EN ŒUVRE

Pour élaborer ce premier modèle, on s'appuie sur les bases de la mécanique de l'endommagement, même si ce n'est pas nécessairement ce qui est le plus adapté au cas traité.

#### 5.3.1 MODELE DE TYPE ENDOMMAGEMENT

Les essais ont mis en évidence l'influence drastique de l'orientation des hydrures, en particulier pour la teneur de 200 ppm, sur le mode de rupture. On souhaite donc tenir compte de cette anisotropie « d'endommagement » et procéder par analogie avec la mécanique de l'endommagement des matériaux micro-fissurés [Lemaitre 1988]. Celle-ci s'applique aux matériaux comportant des discontinuités surfaciques (micro-fissures) ou volumiques (cavités) – auxquelles on peut assimiler les hydrures – et tente de décrire ce processus conduisant à la rupture, mais différent de la déformation, qu'est l'endommagement. Une variable interne est choisie pour représenter l'état de détérioration de la matière. Cette variable peut être déterminée de différentes façons. L'avantage de la mécanique de l'endommagement, est qu'elle peut être exprimée de manière tensorielle et traduire ainsi l'anisotropie des particules responsables de l'endommagement liées à leur géométrie ou à leur distribution (vides, fissures et ici, hydrures ...) [Lemaitre 1988].

*Bref rappel de mécanique de l'endommagement*

Soit un élément de volume d'un solide endommagé, de taille représentative. Considérons une section de cet élément. La mesure mécanique de l'endommagement local, relativement à une direction  $n$ , est définie par le rapport entre la section endommagée  $S_D$  (surface des fissures, cavités ...) et la section totale  $S$ .

$$D_n = \frac{S_D}{S}$$

$D_n$  vaut 0 pour un état non-endommagé, sain, et 1 lorsque la rupture s'est produite. Une valeur comprise entre 0 et 1 caractérise l'état d'endommagement du matériau. Lorsque l'endommagement est anisotrope,  $D_n$  est exprimée en fonction de l'orientation  $n$  par un tenseur, alors qu'en cas d'isotropie, la valeur de  $D_n$  ne dépend pas de l'orientation  $n$  et l'état de dommage est caractérisé par un scalaire.

La notion d'endommagement au sens d'une densité surfacique de discontinuités de la matière conduit à celle de contrainte effective : il s'agit de la contrainte rapportée à la section de matériau sain, qui résiste aux efforts.

$$\tilde{S} = S - S_D = S(1 - D)$$

avec  $\tilde{S}$  : section effective.

$$\text{D'où l'expression de la contrainte effective : } \tilde{\sigma} = \sigma \frac{S}{\tilde{S}} = \frac{\sigma}{1 - D}.$$

Dans le cas tridimensionnel d'un endommagement isotrope, le tenseur de contrainte effective s'exprime ainsi :

$$\underline{\underline{\tilde{\sigma}}} = \frac{\underline{\underline{\sigma}}}{1 - D} \quad [\text{Lemaitre 1988}].$$

Cette formulation, proposée par Kachanov en 1958, s'appliquait à une sollicitation uniaxiale. D'après [Yang 2005], le modèle de Kachanov-Rabotnov ne peut assurer l'existence, en général, des tenseurs de contrainte effective, et il propose de les remplacer par des vecteurs de contrainte effective.

$$\tilde{\sigma}_i = \frac{\sigma_i}{1 - \omega} = \frac{\sigma_{ij}}{1 - \omega(\underline{n})} n_j, \text{ où } \omega(\underline{n}) \text{ dépend de l'orientation.}$$

Dans d'autres travaux, la variable d'endommagement est représentée par un tenseur d'ordre 2 [Lemaitre 1999]. Si l'on utilise le principe de l'équivalence énergétique, à la place de l'équivalence en déformation, selon laquelle le tenseur de contrainte effectif  $\underline{\underline{\tilde{\sigma}}}$  est celui qu'il faudrait appliquer au matériau vierge pour obtenir le même tenseur de déformation élastique que celui produit par le tenseur  $\underline{\underline{\sigma}}$  sur le matériau endommagé, alors,  $\underline{\underline{\tilde{\sigma}}}$  peut s'exprimer comme suit :

$$\underline{\underline{\tilde{\sigma}}} = (\underline{1} - \underline{D})^{(1/2)} \cdot \underline{\underline{\sigma}} \cdot (\underline{1} - \underline{D})^{(1/2)} \quad [\text{Lemaitre 1988}]$$

Pour de nombreux matériaux métalliques dans lesquels l'endommagement se manifeste par le processus ductile de germination, croissance et coalescence de cavités, l'endommagement varie de manière monotone croissante avec la déformation lorsqu'ils sont sollicités en chargement uniaxial monotone croissant. [Lemaitre 1988] propose pour ces matériaux une loi linéaire du type :

$$D = D_c \left\langle \frac{\varepsilon_v - \varepsilon_{vD}}{\varepsilon_{vR} - \varepsilon_{vD}} \right\rangle$$

où  $\varepsilon_{vD}$  est la déformation vraie, seuil d'endommagement en deçà de laquelle l'endommagement est nul ou négligeable et  $\varepsilon_{vR}$  est la déformation vraie à rupture pour laquelle l'endommagement est égal à sa valeur critique  $D_c$ .

### 5.3.2 MODELE PROPOSE

Nous proposons de définir un critère de rupture formulé simplement et traduisant l'évolution de l'endommagement avec la déformation. Par analogie avec les modèles disponibles dans la littérature pour les matériaux micro-fissurés ou composites, nous définissons donc une variable d'endommagement anisotrope tensorielle,  $\underline{\underline{D}}$ , tenseur d'ordre deux, supposé diagonal selon les axes principaux de l'échantillon (radial, axial, circonférentiel).

$$[D_{r\theta z}] = \begin{pmatrix} D_{rr} & 0 & 0 \\ 0 & D_{\theta\theta} & 0 \\ 0 & 0 & D_{zz} \end{pmatrix}$$

L'évolution du dommage est gouvernée par des lois faisant intervenir certaines variables internes et l'évolution de celles-ci. Par exemple, une loi simple d'évolution du dommage pourrait traduire l'évolution de celui-ci avec la déformation, la vitesse de déformation.

$$\dot{D} = f(\varepsilon, \dot{\varepsilon} \dots), \text{ avec } \dot{D} \text{ positif.}$$

On choisit une loi d'évolution très simple pour le dommage que nous souhaitons représenter, qui relie l'évolution du dommage à la déformation macroscopique, qui expérimentalement semble gouverner l'endommagement, par un paramètre à ajuster,  $\underline{\underline{A}}$ . Cette relation s'exprime ainsi :

$$\dot{\underline{\underline{D}}} = \begin{pmatrix} A_r \langle \dot{\varepsilon}_{rr} \rangle & 0 & 0 \\ 0 & A_\theta \langle \dot{\varepsilon}_{\theta\theta} \rangle & 0 \\ 0 & 0 & A_z \langle \dot{\varepsilon}_{zz} \rangle \end{pmatrix}$$

On se limite aux cas où  $\dot{\varepsilon}$  est diagonal par rapport aux axes principaux de l'échantillon ( $r, \theta, z$ ). On ne considère aussi que la partie positive de  $\dot{\varepsilon}$ .

Pour simplifier cette expression, on ne va s'intéresser qu'au dommage tangentiel, qui est prépondérant dans les gaines et qui correspond le mieux à l'état de sollicitation classiquement observé dans celles-ci. De plus, les ruptures habituellement observées évoluent dans le plan radial-axial.

$D_{rr}$  et  $D_{zz}$  sont alors négligeables, et l'évolution du dommage  $\underline{\underline{D}}$  vaut alors :

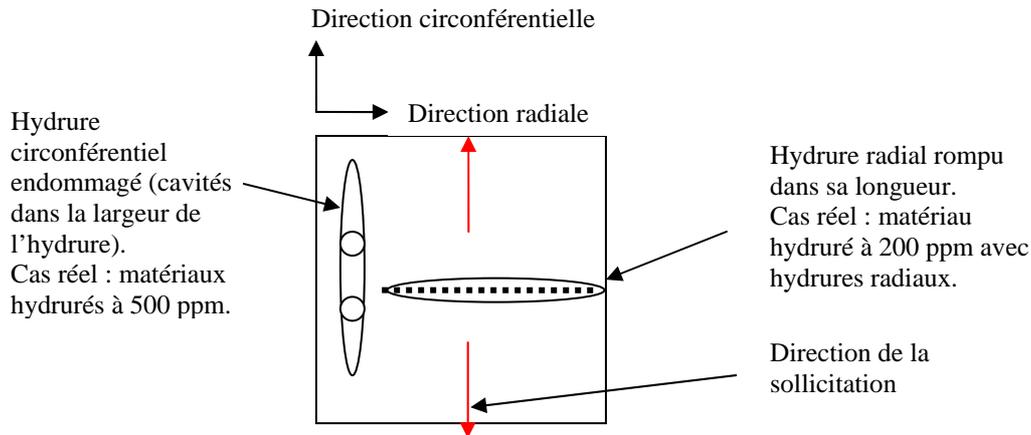
$$\dot{D}_\theta = \dot{D} = A_\theta \dot{\varepsilon}_{\theta\theta}$$

Quant au paramètre  $\underline{\underline{A}}$ , il se décompose en deux termes, représentant chacun les deux mécanismes de rupture d'hydrures conduisant à l'endommagement / rupture :

$$A_\theta = A_{\theta r} + A_{\theta\theta}$$

Le premier représente l'influence des hydrures circonférentiels sur le dommage : dans les matériaux à 500 ppm, des cavités apparaissent en effet dans les hydrures circonférentiels. Le second correspond au

dommage provoqué par les hydrures radiaux, qui se traduit par la rupture des ces derniers dans le sens de leur longueur.



Si l'on se place dans le cas d'un matériau hydruré à 200 ppm, pour lequel expérimentalement les distributions d'hydrures, soit circonférentielle, soit radiale sont bien reproduites, on peut dire que les hydrures circonférentiels ont une influence négligeable, alors que les radiaux ont au contraire une influence drastique sur la rupture. On néglige donc l'influence des hydrures circonférentiels sur le dommage, et on aboutit à :

$$\dot{D} = A_{\theta r} \dot{\varepsilon}_{\theta\theta} = A \dot{\varepsilon}_{\theta\theta}$$

On peut alors postuler différentes formes d'évolution du dommage.

$$D_{\theta} = A_{\theta r} \int_0^t \langle \dot{\varepsilon}_{\theta\theta} \rangle dt$$

On suppose que  $A_{\theta r}$  est indépendante de la déformation. On choisit de se placer dans le cas le plus simple d'une évolution monotone croissante du dommage. Ceci n'est pas cohérent avec notre hypothèse initiale de non-couplage entre le comportement en l'endommagement, sur lequel nous avons basé notre approche. En effet, dans le cas réel, l'endommagement n'est quasiment pas observé ou bien seulement à la fin de l'essai. L'endommagement ne croit donc pas dès le début de l'essai de manière monotone croissante. Cependant, ceci n'est qu'une première approche.

On aboutit à une formulation de la forme :

$$D_{\theta} = A_{\theta r} \varepsilon_{\theta\theta} \text{ et } D_C = A \varepsilon_{\theta\theta R} = 1$$

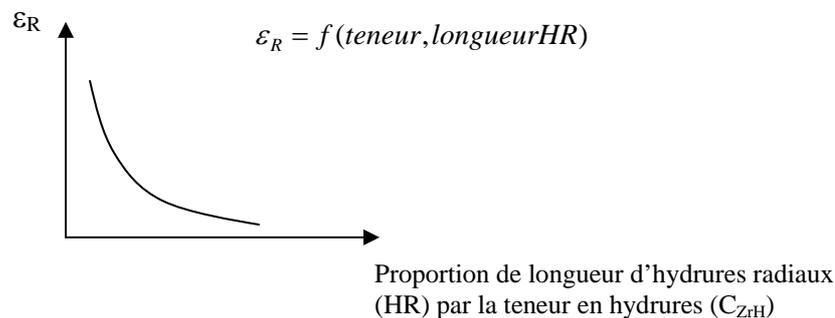
avec  $D_C$  : dommage critique ;  
 $\varepsilon_{\theta\theta R}$  : déformation à rupture.

On peut donc déterminer A à partir de cette dernière équation, à condition d'identifier la valeur de  $\varepsilon_R$ , déformation à rupture. Cette identification sur une valeur expérimentale de  $\varepsilon_R$  est possible grâce aux mesures de champ issues de la corrélation d'image, comme cela sera expliqué dans les paragraphes suivants.

Cette formulation pourrait être améliorée en introduisant une valeur seuil de la déformation, telle que A soit nulle pour une valeur de  $\varepsilon_{\theta\theta}$  inférieure à ce seuil. Le critère de rupture serait alors un critère de seuil d'endommagement.

### 5.3.3 PRISE EN COMPTE DE L'ORIENTATION DES HYDRURES

On cherche à établir une relation entre la valeur de la déformation  $\varepsilon_{\theta\theta}$  critique et la teneur et l'orientation des hydrures. Plus précisément, on ne va s'intéresser qu'à la proportion de longueurs d'hydrures radiaux, que l'on a estimée grâce au traitement d'images réalisé, par deux méthodes décrites dans le Chapitre 2 (« Méthode 1 » : traitement de l'image avec le logiciel Image J ; « Méthode 2 » : utilisation du programme d'extraction de la phase hydrure). On a donc choisi de représenter le paramètre de déformation à rupture en fonction de la proportion de longueurs d'hydrures radiaux, qui semblent être les plus nocifs. On représente schématiquement ci-dessous la relation liant ces deux paramètres.



$\varepsilon_R$  GLOBALE

Pour initier le processus d'identification numérique, on a d'abord utilisé des valeurs de déformation macroscopique à rupture, issues des essais macroscopiques sur anneaux donc les deux faces étaient « peintes » avec mouchetis (toutes les configurations sauf le 200C et 200R), et celles des essais avec suivi de marqueurs (toutes les configurations). Ceci permettait de savoir si on pouvait dégager une tendance, mais on ne pouvait pas utiliser cette relation pour élaborer un critère local. A cause de la forte localisation de la déformation, les valeurs de déformation macroscopiques ne sont pas représentatives de l'état local des éléments de volume du matériau dans l'anneau les plus sollicités.

Dans les graphes présentés ci-après, on a superposé les valeurs d'allongement à rupture que l'on pouvait obtenir pour le maximum d'essais, comme cela a été fait au début du chapitre 4. En abscisses de Figure 7, on a reporté la proportion de longueurs d'hydrures radiaux obtenue à partir de la méthode 1 de traitement d'images. Dans la figure suivante, les abscisses correspondent à la proportion de longueurs d'hydrures radiaux multipliée par la teneur en hydrogène de chaque échantillon. Cette dernière représentation est plus réaliste. Les commentaires sur ces graphes seront détaillés dans la discussion, car ils ont une portée générale.

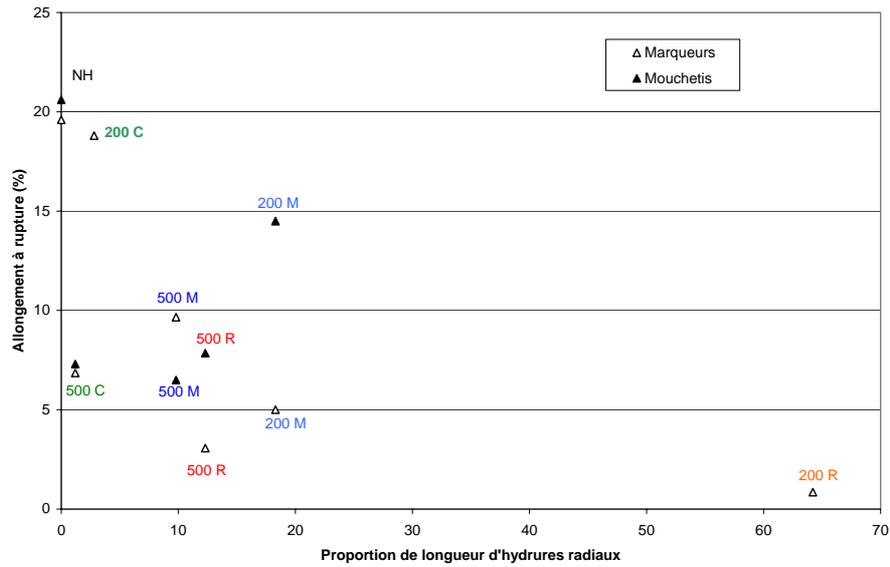


Figure 7 : Graphe représentant l'allongement à rupture en fonction de la proportion de longueurs d'hydrures radiaux déterminée par la méthode 1. Les valeurs d'allongement à rupture sont obtenues à partir de deux types d'essai: suivi de marqueurs et allongement calculé sur les images de la face plane avec mouchetis.

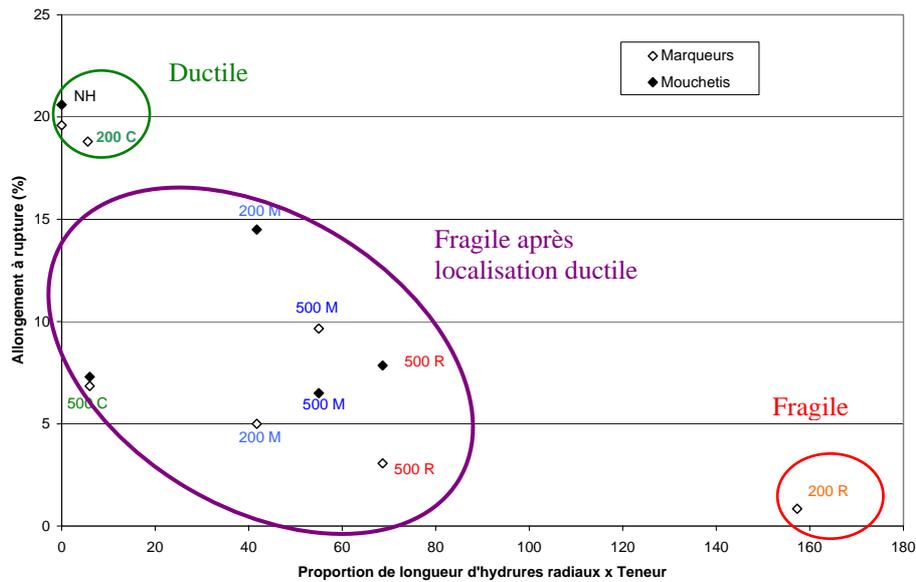


Figure 8 : Graphe représentant l'allongement à rupture en fonction de la proportion de longueurs d'hydrures radiaux (déterminée par la méthode 1) multipliée par la teneur en hydrogène (en ppm) de chaque échantillon. Les valeurs d'allongement à rupture sont obtenues à partir de deux types d'essai: suivi de marqueurs et allongement calculé sur les images de la face plane avec mouchetis.

### $\epsilon_R$ LOCALE

On a donc choisi d'exploiter les mesures de champ réalisées au cours des essais macroscopiques avec mouchetis, afin de déterminer une valeur de déformation locale. Comme la rupture est initiée à l'intersection des bandes macroscopiques de cisaillement, au moins dans tous les cas où la plasticité s'est développée, on détermine à partir de la mesure par corrélation d'images, les valeurs des composantes E11, E22, E12 et de déformation équivalente (au sens de von Mises) à l'intersection de

ces bandes, ce qui correspond à la valeur maximale sur la surface étudiée, comme on l'a expliqué au chapitre 4. Ces valeurs sont calculées sur une zone d'environ 250 x 250  $\mu\text{m}$ . La taille de ce domaine est ajustée en fonction des paramètres choisis au cours du dépouillement des images par corrélation : espacement des points de référence et choix du schéma de calcul des déformations (Chapitre 3). Dans le but de pouvoir comparer ensuite ces résultats au calcul, les déformations doivent être calculées sur des zones de dimension équivalentes, on a donc fixé la zone de calcul de la déformation en fonction du maillage que l'on envisageait d'utiliser. On a utilisé le schéma 2 qui présente l'avantage d'être carré et ressemble ainsi aux éléments finis.

Dans la Figure 9, on compare les résultats des deux méthodes d'analyse d'image ; dans la Figure 10, est représentée la déformation locale en fonction de la proportion de « pixels d'hydrures radiaux ». Cette dernière quantité a été établie de la façon suivante : avec la méthode 2, comme les fractions surfaciques des particules hydrures obtenues à l'issue du traitement (après « extraction » de la phase hydrure et après squelettisation) sont cohérentes entre elles, on considère que les quantités totales de pixels identifiés comme appartenant à la phase hydrure sont fiables. On multiplie ensuite cette valeur, pour chaque cas, par la proportion de longueurs d'hydrures radiaux. Cela permet d'estimer quelles éprouvettes contiennent le plus d'hydrures radiaux en absolu et éventuellement de corrélérer ceci à la déformation locale maximale. Comme précédemment, une discussion générale concernant notamment la description de ces graphes sera effectuée à la fin de ce chapitre.

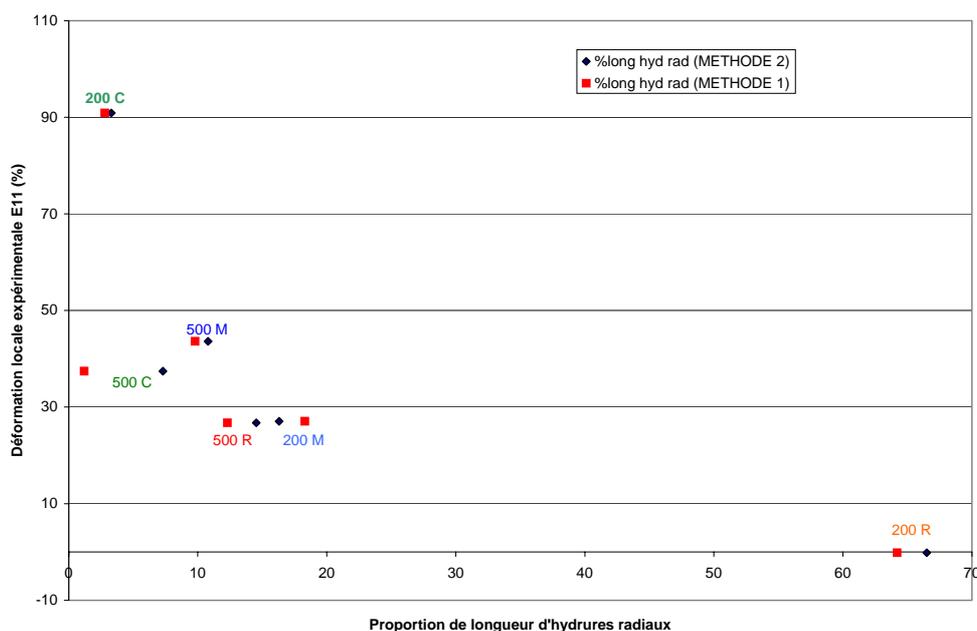


Figure 9 : Graphe représentant la déformation 11 locale maximale à l'intersection des bandes de cisaillement en fonction de la proportion de longueurs d'hydrures radiaux déterminée avec les méthodes 1 et 2 (Chapitre 2).

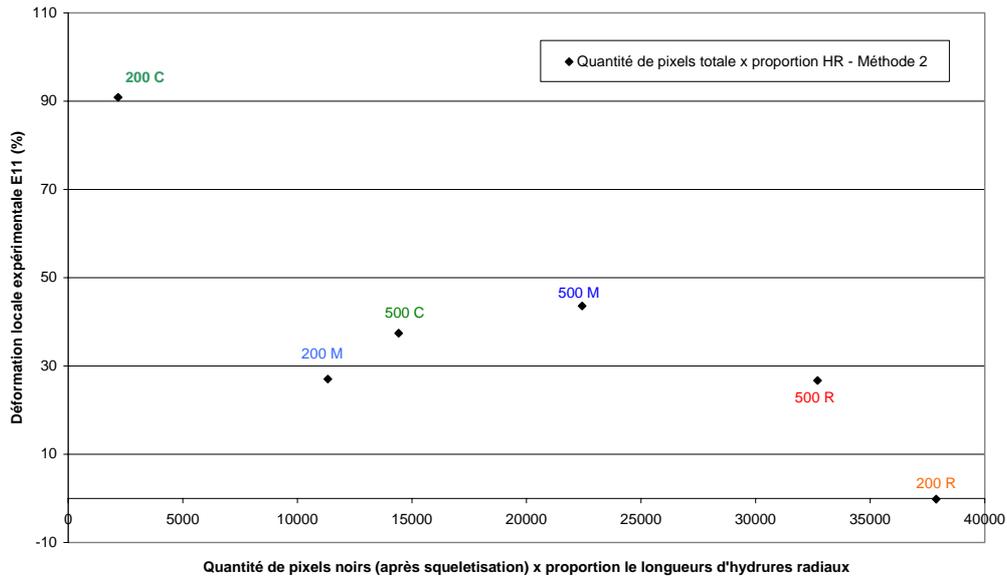


Figure 10 : Graphe représentant la déformation équivalente (au sens de von Misès) locale maximale à l'intersection des bandes de cisaillement en fonction de la proportion de longueurs d'hydrures radiaux déterminée avec la méthode 2 multipliée par la teneur en hydrogène en ppm (Chapitre 2).

#### 5.4 RESULTATS DU CALCUL ET COMPARAISON AVEC L'EXPERIENCE

On accède en post-traitement aux résultats concernant les différentes configurations d'hydrures. Pour chacune de ces configurations, on a déterminé le paramètre A à partir d'un graphe reliant la déformation locale à la proportion de longueurs d'hydrures radiaux. Ensuite, sachant que le paramètre de dommage vaut 1 à la rupture et que  $D_C = A \varepsilon_{\theta\theta_R} = 1$ , on accède ainsi au moment de la rupture calculé. Ensuite, on compare les réponses mécaniques expérimentales avec la courbe de chargement calculée et ses différents instants de rupture selon les configurations.

Les courbes de la réponse en termes de contrainte conventionnelle en fonction du déplacement calculé (déplacement imposé pour le calcul) sont présentées dans la Figure 11. Pour la teneur de 200 ppm, le calcul reproduit assez bien la réponse mécanique des différentes configurations 200C, 200R et 200M. Le moment de rupture du 200R est un peu plus précoce qu'expérimentalement, celui du 200M correspond assez bien à celui de l'expérience, mais il est aussi moins net, étant donné qu'il se situe dans le plateau après le maximum, celui du 200C correspond presque à l'apparition de la cavité observée au cours des essais.

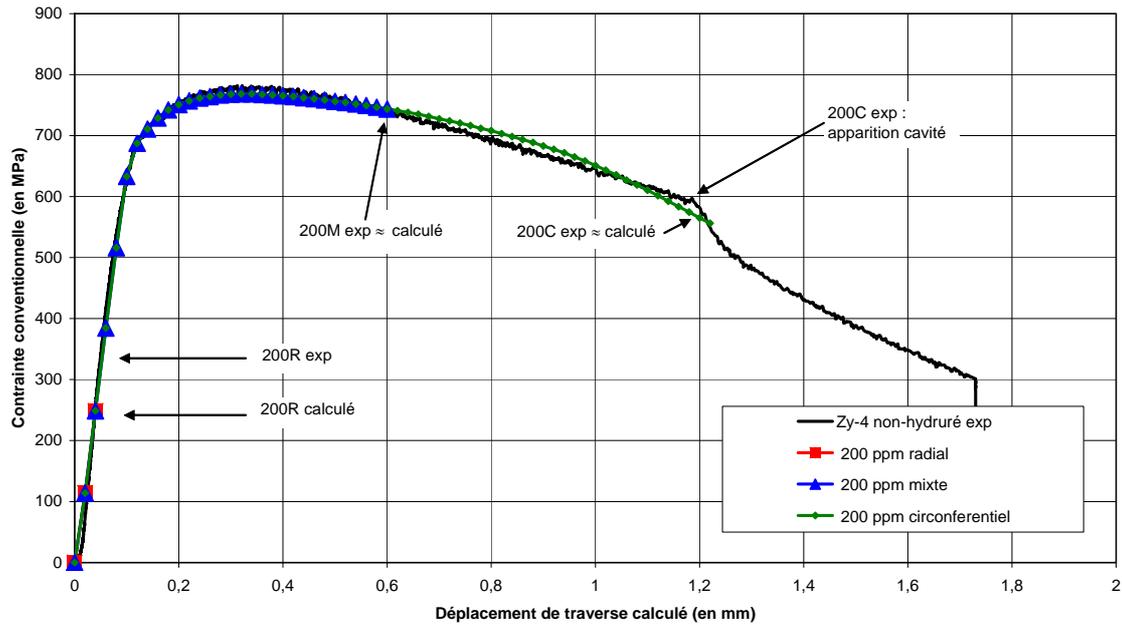


Figure 11 : Maillage fin, coefficient de frottement = 0,1. Courbe expérimentale « Contrainte conventionnelle en fonction du déplacement de traverse calculé » du matériau non-hydruré et courbes calculées pour le 200C, 200M, 200R.

On compare ensuite les cartes des champs de déformation issues du calcul pour les déplacements calculés correspondant à la rupture du 200C, 200M et 200R. Ces cartes sont données pour la composante de déformation irréversible tangentielle (notée E11 sur les cartes de déformation expérimentales).

On retrouve sur les cartes la tendance observée expérimentalement : les bandes et la striction sont bien apparentes pour le 200C, les bandes de localisation de la déformation commencent à se former pour le 200M, quant au 200R, très peu de plasticité est visible : aucune bande n'est décelable à ce stade, la déformation sur une zone centrale qui s'étend d'une surface libre de l'éprouvette à l'autre est moins déformée que les deux zones qui l'entourent. Le phénomène de flexion n'est pas réellement mis en évidence, cela doit être dû au fait que le jeu entre l'anneau et le montage n'a pas été pris en compte.

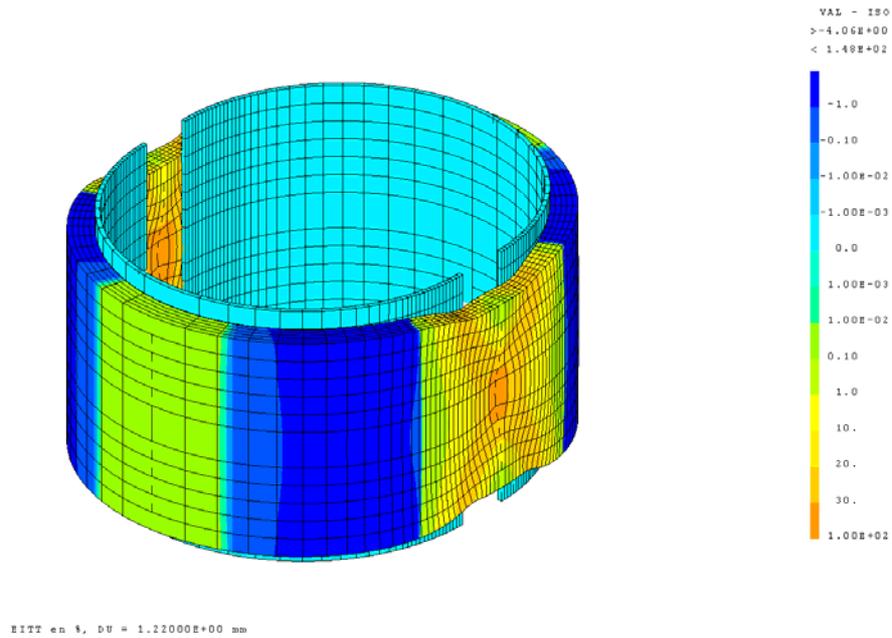


Figure 12 : Carte de déformation de la composante E11 du matériau dans la configuration 200C, juste avant la rupture « calculée » : déplacement calculé = 1,22 mm. Taille de maille = 100  $\mu$ m ; coefficient de frottement = 0,1.

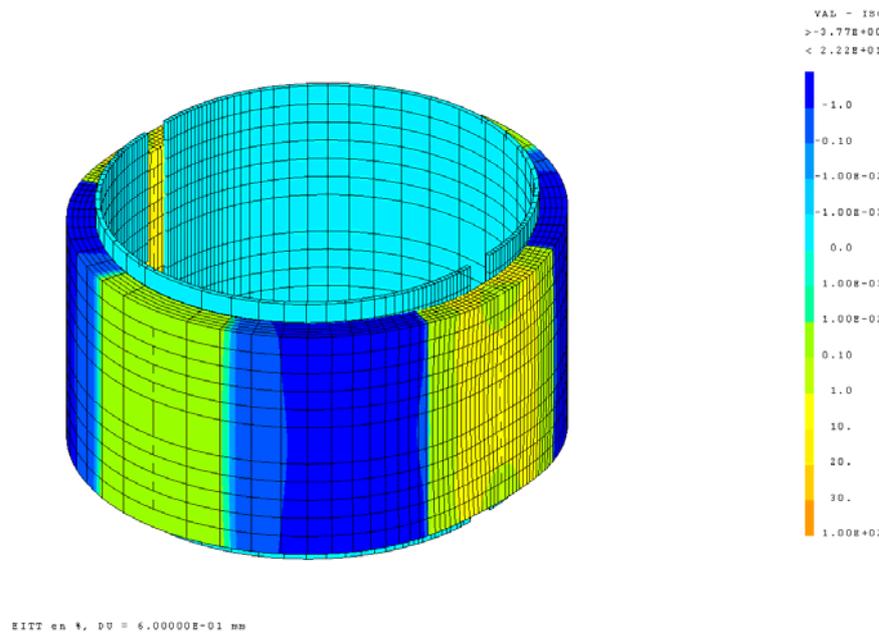


Figure 13 : Carte de déformation de la composante E11 du matériau dans la configuration 200M, juste avant la rupture « calculée » : déplacement calculé = 0,6 mm. Taille de maille = 100  $\mu$ m ; coefficient de frottement = 0,1.

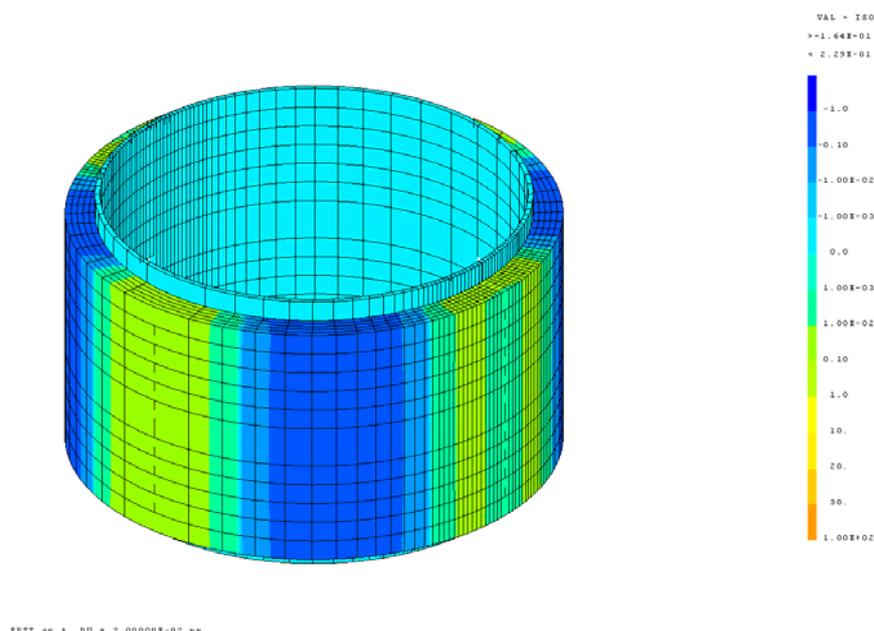


Figure 14 : Carte de déformation de la composante  $E_{11}$  du matériau dans la configuration 200R, juste avant la rupture « calculée » : déplacement calculé à la rupture = 0,04 mm, déplacement calculé pour cette carte = 0,02 mm (sur cette carte, la « flexion » est mieux représentée. Taille de maille = 100  $\mu\text{m}$  ; coefficient de frottement = 0,1.

On s'intéresse ensuite à l'évolution de la déformation locale en fonction du déplacement de traverse calculée. En effet, la déformation n'a pas pu être calculée dans des conditions comparables dans le calcul et dans l'expérience. Les valeurs du calcul sont soit nodales, soit moyennées sur un élément (donc en volume). Les valeurs expérimentales sont issues d'un calcul sur une zone surfacique. On a donc choisi de comparer des valeurs du calcul correspondant à différentes zones, plus ou moins locales, afin d'évaluer l'écart entre elles.

Sur les graphes suivants (Figure 15, Figure 16), l'ordonnée correspond successivement à la déformation totale circonférentielle et à la déformation plastique équivalente, calculée en différents points ou zones caractéristiques. PC2 correspond à un point situé sur la face externe, à l'intersection des bandes de localisation de la déformation, PC1 est son symétrique face interne. Les « PCx min » désignent un élément centré autour de PC1 ou PC2, les « PCx max » un ensemble de 4 éléments en surface par deux éléments dans l'épaisseur centrés autour de PC1 ou PC2. Les valeurs de déformation sont naturellement d'autant plus élevées qu'elles sont locales. Leur valeur s'intensifie dans la dernière partie de l'essai.

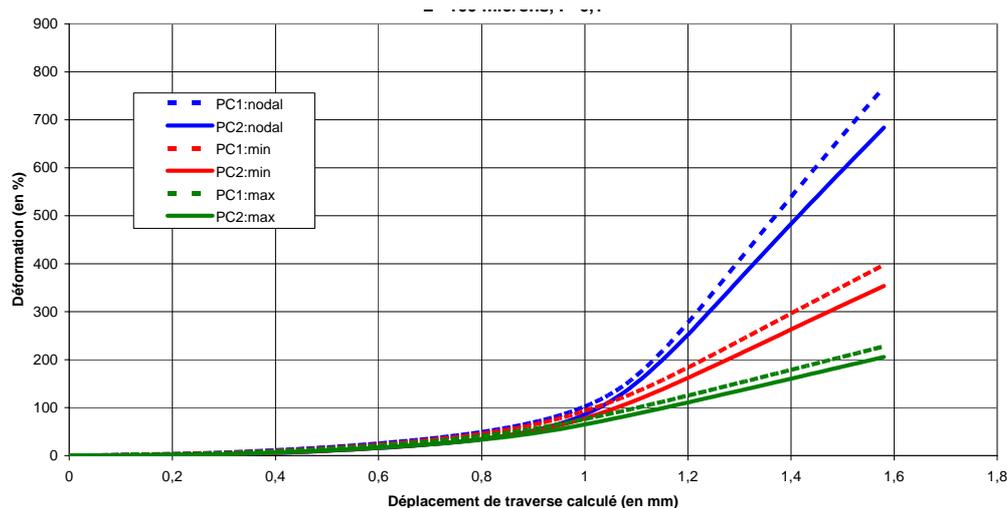


Figure 15 : Déformation totale circonférentielle calculée en fonction du déplacement de traverse calculé, pour différentes localisations : points caractéristiques à l'intersection des bandes en paroi interne (PC1), en paroi externe (PC2) ; ou valeur de la déformation moyennée sur une surface inscrite dans un carré de  $250\ \mu\text{m}$  ou englobant ce carré. Maillage fin ( $L = 100\ \mu\text{m}$ ), coefficient de frottement = 0,1.

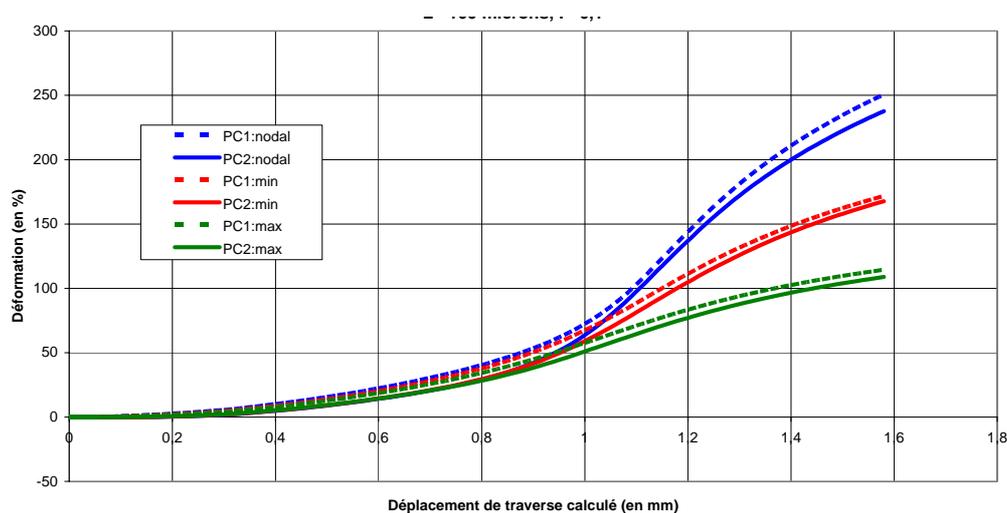


Figure 16 : Déformation plastique équivalente calculée en fonction du déplacement de traverse calculé, pour différentes localisations : points caractéristiques à l'intersection des bandes en paroi interne (PC1), en paroi externe (PC2) ; ou valeur de la déformation moyennée sur une surface inscrite dans un carré de  $250\ \mu\text{m}$  ou englobant ce carré. Maillage fin ( $L = 100\ \mu\text{m}$ ), coefficient de frottement = 0,1.

Comme les déformations obtenues par le calcul et celles obtenues expérimentalement par corrélation d'images n'ont pas été déterminées exactement sur des zones de même aire, il est difficile de comparer leurs valeurs. Voici néanmoins un tableau récapitulatif permettant de comparer les tendances.

Pour les matériaux les plus ductiles, NH et 200C, la comparaison est difficile à établir. Dans le cas du 200C, la peinture s'est décollée au cours de l'essai, la corrélation n'a donc pas été réalisée correctement dans la partie qui nous intéresse, les bandes de déformation macroscopiques. La valeur donnée est celle d'un point proche des bandes sur lequel le mouchetis avait été conservé tout au long de l'essai.

Pour le NH en revanche, les valeurs sont très élevées lorsque l'on utilise le schéma 2 pour le calcul de la déformation (comme dans les autres cas). Ce schéma est basé sur les 8 plus proches voisins, la base

de mesure est approximativement de 250  $\mu\text{m}$ . On a donc utilisé le schéma 3, basé sur les 16 plus proches voisins et qui implique une base de mesure de 500  $\mu\text{m}$ . L'écart entre les deux résultats est attendu, puisque les déformations ne sont pas calculées avec la même base de mesure. L'amplitude de cet écart souligne la forte localisation de la déformation.

	E11 exp locale (%)	E11 numérique nodale (%)	E22 exp locale (%)	E22 numérique nodale (%)	EEq exp locale (%)	EEq numérique nodale (%)
NH <sup>2</sup>	5575		-6		4438	
NH <sup>3</sup>	888	684	-6	-26	556	238
200C*	91	275	-26	-28	82,4	145
200M	27	15,7	-14	-8,5	29	14
200R	-0,17	0,07	-0,22	-0,08	0,42	0

*Tableau 1 : Récapitulatif des valeurs de déformation locales totales, avant rupture, à l'intersection des bandes de déformation, mesurées à partir de la corrélation d'images sur les anneaux avec mouchetis (essais macroscopiques) – colonnes grisées – ou bien issues du calcul et correspondant à la valeur au nœud d'un élément sur la paroi externe (PC2). \* : l'essai sur le 200C pose quelques problèmes de précision liés au décollement de la peinture dans les bandes macroscopiques. Pour le 200C et le NH, les déformations correspondent au moment précédent l'apparition de la cavité. Pour le NH, on a utilisé le schéma de déformation 2 (comme pour les autres mesures, NH<sup>2</sup>) et le schéma 3 (plus grand) afin de moyenner les valeurs sur une surface un peu plus grande (NH<sup>3</sup>)*

Grâce au calcul, nous pouvons accéder aux valeurs de la triaxialité, définie comme le rapport entre la trace (somme des composantes des contraintes principales) et de la contrainte équivalente au sens de von Mises.

$$\text{Triaxialité} = \frac{\sigma_H}{\sigma_{Eq}} = \frac{1}{3} \frac{\text{tr}(\sigma)}{\sigma_{Eq}}$$

avec  $\sigma_H$  : contrainte hydrostatique ;  $\sigma_{Eq}$  : contrainte équivalente ;  $\text{tr}(\sigma)$  : trace du tenseur des contraintes.

On constate que la triaxialité est plus élevée à l'intersection des bandes de cisaillement : cela est cohérent avec les observations expérimentales des faciès de rupture des matériaux NH, 200C et 200M, qui présentent à cet endroit d'abondantes cavités ; elle est plus faible dans les bandes de cisaillement, même si le calcul manque de précision et si les bandes ne sont pas nettement dessinées sur la carte. Ceci corrobore notre hypothèse concernant l'absence d'endommagement du matériau faiblement hydruré (200 ppm) ou non-hydruré : la plus faible triaxialité dans les zones les plus déformées (là où les bandes de cisaillement débouchent) nuit au développement de cavités, et explique pourquoi, lors des essais in-situ, très peu ont été observées.

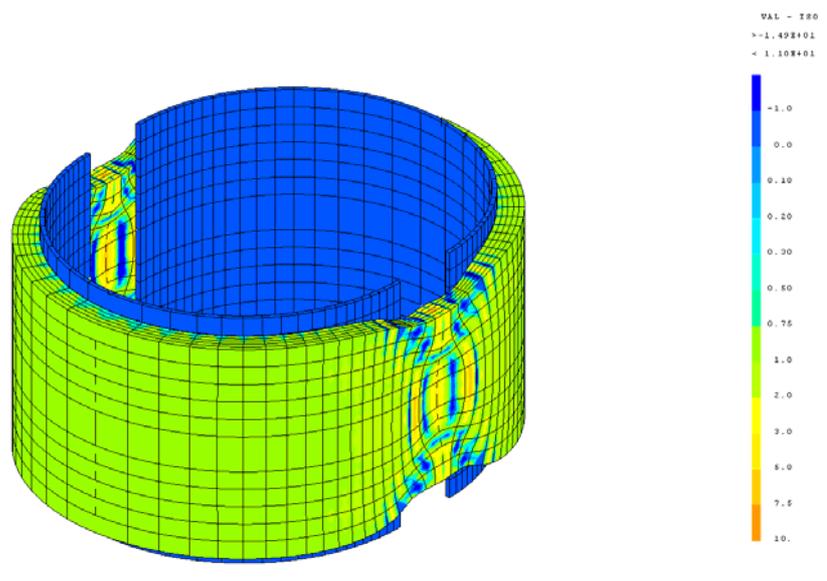


Figure 17 : Champ de triaxialité des contraintes avant rupture du matériau NH.

## 5.5 DISCUSSION

Revenons sur le graphe de la Figure 8, sur lequel sont reportées les valeurs d'allongement à rupture en fonction de la proportion de longueurs d'hydrures radiaux (multipliée par la teneur en hydrogène). Sur ce graphe, sont reportées pour 5 essais deux valeurs d'allongement à rupture, comme cela a été fait dans la Figure 3 du Chapitre 4. On distingue sur ce graphe les trois classes de comportement à rupture que nous avons décrites dans le Chapitre 4 : la rupture ductile (NH et 200C), la rupture fragile (200R) et la rupture fragile après localisation ductile (200M, 500C, 500M, 500R). Bien que l'on n'ait pas deux valeurs d'allongement à rupture dans le cas 200C et 200R, la comparaison en terme d'allure de courbe, de contrainte maximum et de contrainte à rupture (contrainte conventionnelle) nous permet d'affirmer que les comportements à rupture de ces matériaux sont reproductibles. Dans le premier cas, le volume élémentaire représentatif (VER) est la structure cristalline du matériau, puisque les hydrures ne semblent pas intervenir dans la déformation. L'anneau a donc une taille largement supérieure à celle d'un VER. Dans le deuxième cas (200R), l'anneau rompt en flexion, phase durant laquelle la zone sollicitée a pour dimension la largeur de l'anneau (5 mm) par une hauteur de 100  $\mu\text{m}$  environ, multipliée par l'épaisseur de l'anneau (570  $\mu\text{m}$  environ). D'après les résultats d'analyse d'images, la quantité d'hydrures radiaux dans ces éprouvettes est largement majoritaire et leur répartition est assez homogène. Ce volume de  $5 \times 0,1 \times 0,570 \text{ mm}^3$  peut donc être considéré comme un VER, ce qui explique pourquoi nos différents échantillons ont cassé pour des valeurs de contrainte conventionnelle proches.

En revanche, les éprouvettes de configurations 200M, 500M, 500R ont rompu pour des valeurs d'allongement à rupture assez dispersées. Le point commun de ces éprouvettes est de ne contenir qu'une petite partie d'hydrures radiaux (moins de 20 % en longueur d'hydrures). Ces hydrures sont donc peu nombreux et on a constaté soit au cours des essais in-situ soit sur les images utilisées pour l'analyse que les hydrures radiaux ne sont pas répartis de façon homogène dans l'espace. Or, la plasticité se développe et la déformation se localise en bandes macroscopiques, comme pour les cas ductiles. L'intersection des bandes, qui est la zone principalement sollicitée en plasticité, où la rupture

s'initie est une zone trop petite pour être considérée comme un VER avec de telles distributions d'hydrures. Les essais sur anneau présentent donc une difficulté supplémentaire : le VER varie d'un échantillon à l'autre suivant son hydruration (teneur et orientation). Ceci rend l'interprétation des ces essais encore plus délicate.

## CHAPITRE 5 : RESUME

*Ce critère présente l'intérêt de relier les résultats issus de l'analyse d'images, ceux des mesures de champ par corrélation d'images, et les techniques numériques de simulation de comportement mécanique. Cependant, le critère de rupture proposé ici a pour point de départ une formulation très simple : c'est une ébauche et il peut être perfectionné sur de nombreux points. Des perspectives d'amélioration sont les suivantes :*

*- il faudrait proposer une formulation du modèle prenant mieux en compte la concentration en hydrures en plus de la proportion en longueur. En effet, l'influence de la teneur n'est pas négligeable : l'allongement à rupture ou la déformation à locale avant rupture du matériau hydruré à 200C ou à 500C est très différente ;*

*- le modèle ne prend pas en compte les différences de mécanismes de rupture lorsque la teneur en hydrogène augmente ou lorsque l'orientation des hydrures varie. Dans le matériau contenant au moins une partie d'hydrures radiaux, le chemin de percolation le plus favorable pourrait être déterminé afin de prévoir la rupture.*

*De plus, il faut insister sur le fait que dans le matériau à 500 ppm, une faible proportion d'hydrures a été réorienté dans le cas mixte ou radial, puisque à la température du traitement de réorientation (400°C), les 500 ppm n'ont pas été totalement remis en solution (la solubilité à 400 °C est de 200 ppm).*

*Ce critère de rupture amélioré pourrait être étendu jusqu'à des températures de 150°C environ, pour les matériaux irradiés et pour des gainages avec les gradients de répartition d'hydrures à travers l'épaisseur. La combinaison avec un modèle de dissolution-précipitation des hydrures incluant des aspects morphologiques et statistiques pourrait ouvrir des perspectives intéressantes.*





---

## CONCLUSION

---

Le sujet de cette thèse avait pour cadre l'aval du cycle du combustible et son objectif était de contribuer à mieux connaître certaines propriétés mécaniques des tubes de gainage, dans le cas particulier où ceux-ci comportent des hydrures de différentes orientations. Un des intérêts de cette étude est d'avoir utilisé un alliage de zirconium dans sa finition industrielle, le Zircaloy-4 détendu, malgré les difficultés que la géométrie tubulaire d'une part, et la texture du matériau détendu d'autre part, impliquent.

Suite à sa fabrication, le matériau de l'étude a été hydruré par voie gazeuse à 200 et 500 ppm, puis une partie a subi un traitement de réorientation de façon à disposer d'échantillons avec des orientations d'hydrures différentes entre elles et différentes de l'orientation naturelle des hydrures observée, par exemple, en réacteurs. Cette orientation naturelle est liée à la texture du matériau, aux relations cristallographiques entre précipités et matrice.

Nous disposons donc de sept matériaux à analyser : le matériau non-hydruré, les matériaux hydrurés à 200 ou 500 ppm avec une distribution des orientations « circonférentielle » (ou « naturelle »), « radiale » ou « mixte ». Chacun de ces termes qualifie l'orientation des hydrures par rapport à la paroi des tubes, lorsque on observe les hydrures dans une section transversale d'un tube (définie comme le plan radial-circonférentiel).

La caractérisation de ces matériaux par analyse d'image a mis en évidence que le traitement de réorientation avait été efficace pour la plus faible teneur, mais n'avait pas permis d'obtenir des distributions d'orientation très différentes les unes des autres pour la plus forte teneur. Ceci s'explique par le fait que, à la température à laquelle le traitement de réorientation a été réalisé (400°C), les 500 ppm d'hydrures n'ont pas été redissous, car à cette température, la limite de solubilité est d'environ 200 ppm : or, la dissolution est une condition nécessaire à la réorientation.

De nombreuses observations au MEB ont permis une caractérisation qualitative de la morphologie des hydrures. Ceux-ci sont des objets complexes, en trois dimensions, présentant plusieurs échelles caractéristiques, difficiles à observer et à caractériser. Concernant la préparation des échantillons, nous avons choisi de ne pas révéler les hydrures par attaque chimique pour ne pas creuser la surface et perdre des informations sur l'épaisseur des hydrures. Quant à l'observation, elle a été effectuée au MEB, en électrons rétro-diffusés, sur les surfaces radiales-circonférentielles et radiales-axiales des anneaux, afin de mieux cerner la structure des objets « hydrures macroscopiques » en trois dimensions. Les images ont été acquises avec une résolution spatiale permettant de détecter des hydrures très fins, mais également avec une définition d'image permettant d'analyser des surfaces

suffisamment grandes pour assurer leur représentativité vis-à-vis de la répartition spatiale des hydrures. En effet, les hydrures sont à considérer non seulement en volume, mais aussi à plusieurs échelles, de par leur constitution : ils sont en effet formés, d'une part, d'après la littérature, par des agrégats de plaquettes de plus petite taille, visibles au MET, la dimension caractéristique de ces agrégats étant de l'ordre de la dizaine de micromètres. D'autre part ces agrégats se regroupent eux-mêmes en amas de taille caractéristique environ 10 fois plus élevée. Suite à l'observation des matériaux hydrurés avec différentes configurations (teneur et orientation), nous avons mis en évidence certaines différences morphologiques des hydrures « macroscopiques » : les hydrures radiaux sont ainsi plus courts que les hydrures circonférentiels et les hydrures des matériaux hydrurés à 500 ppm semblent plus fins que ceux hydrurés à 200 ppm. Dans le plan axial-radial, les hydrures circonférentiels sont en général très rectilignes et plus longs, pouvant atteindre 200  $\mu\text{m}$ .

Ces observations qualitatives ont été complétées par des caractérisations statistiques réalisées au moyen de techniques de traitement d'images, visant à quantifier les distributions des orientations des hydrures. Deux méthodes de traitement d'images ont été élaborées et appliquées sur les mêmes images MEB pour extraire les hydrures, cette opération étant assez délicate du fait de la structure complexe de ces objets et du faible contraste que présentent les hydrures les plus fins par rapport au contraste de l'alliage lui-même. Les images binaires obtenues ont ensuite été analysées pour extraire des informations sur les longueurs et orientations des particules contenues dans l'image ; une représentation graphique adéquate permet de visualiser simplement les distributions d'orientations. A partir de ces données, on a quantifié la proportion de longueurs d'hydrures radiaux présents dans chaque éprouvette. Les tailles caractéristiques des zones analysées statistiquement sont de l'ordre de 400 x 300  $\mu\text{m}$  ; une analyse sur des zones plus petites conduit à une fluctuation des résultats, révélant ainsi leur non représentativité statistique. Cette taille relativement importante d'un domaine statistiquement représentatif de la répartition des hydrures est liée à la présence des amas macroscopiques présentés plus haut.

Connaissant ainsi plus précisément les caractéristiques de nos matériaux en termes d'hydruration, nous avons ensuite cherché à déterminer leur comportement mécanique. Le premier objectif de la caractérisation mécanique était de comparer la réponse mécanique globale des anneaux dans les sept configurations de l'étude. Pour cela, la technique de suivi optique de marqueurs a été utilisée afin d'obtenir une réponse relativement précise en terme de contrainte conventionnelle par la déformation conventionnelle, malgré la complexité de la géométrie des éprouvettes qui empêche de réaliser un essai mécanique précis avec les moyens usuels d'extensométrie (capteur de déplacement, extensomètre, ou jauge). Les résultats des essais ont mis en évidence la similarité de la réponse mécanique de toutes les éprouvettes : toutes les courbes se superposent, seul l'instant de la rupture diffère. La teneur en hydrogène et l'orientation des hydrures affectent donc quasi exclusivement la ductilité à rupture. Cette influence est très sévère dans le cas d'une faible teneur (200 ppm) avec une forte proportion d'hydrures radiaux (configuration « 200R ») : dans ce cas, la rupture se produit dans le domaine élastique, pour une faible contrainte (environ 350 MPa). En revanche, la même teneur d'hydrures orientés circonférentiellement ne modifie pas la réponse de l'anneau par rapport au matériau non-hydruré. Quant aux matériaux hydrurés à 500 ppm, comportant majoritairement des hydrures circonférentiels, ils sont moins ductiles que le matériau non-hydruré, mais entrent tout de même en plasticité, tout comme le matériau hydruré à 200 ppm dans sa configuration mixte. On note une dispersion des résultats assez élevée pour les matériaux qui rompent peu après le passage du pic de contrainte, alors que les instants de ruine des matériaux 200R, 200C ou non hydrurés sont beaucoup plus reproductibles.

Afin de mieux connaître les champs de déformation à l'échelle de l'anneau, que l'on suppose complexes à cause de la géométrie particulière des éprouvettes, on utilise la technique de mesure de champs cinématiques par corrélation d'images. Pour exploiter le plus possible cette technique, nous avons enduit d'un mouchetis à la fois les faces plane et bombée des anneaux, qui étaient filmées simultanément par deux caméras numériques, à la fréquence d'une image par seconde environ. La finesse du mouchetis réalisé au moyen d'un aérographe (diamètre des taches de 30 à 100  $\mu\text{m}$ ) et la résolution spatiale des optiques utilisées (moins de 10  $\mu\text{m}$  par pixel) conduit à une résolution spatiale de la mesure de déplacement de l'ordre de 125  $\mu\text{m}$ , la résolution spatiale de la mesure de déformation étant elle d'environ 250  $\mu\text{m}$  pour le mode de calcul des déformations retenu. Les informations obtenues, en termes d'histoire de la déformation, de déformations moyennes sur les zones étudiées, de déformations plus locales ou de cartes de déformation, nous amènent à conclure également à la ressemblance des champs de déformation à l'échelle globale de l'anneau de chaque configuration hydrurée avec le matériau non-hydruré, à un même instant (ou même allongement). En effet, pour toutes les configurations, on observe une première phase de sollicitation dominée par un mode de flexion, la déformation circonférentielle mesurée en surface à l'équateur de l'anneau étant légèrement négative. Un état de traction relativement uniforme le long des génératrices du tube s'installe ensuite au fur et à mesure de l'augmentation de la charge, avec une éventuelle dissymétrie due à des problèmes d'alignement. Pour les configurations de matériaux entrant en plasticité (toutes sauf les échantillons à 200 ppm d'hydrures radiaux), la déformation se localise ensuite dans des bandes de déformation macroscopiques, orientées à  $\pm 60^\circ$  par rapport à l'axe de traction. Ces bandes apparaissent lorsque la contrainte conventionnelle atteint son maximum, puis la déformation y devient de plus en plus intense, alors que la déformation dans les autres zones de l'échantillon n'augmente quasiment plus. L'épaisseur de ces bandes diminue et tend à devenir inférieure à la résolution spatiale de la mesure de déformation. L'intersection de ces bandes est la zone la plus déformée de l'anneau. La plupart des échantillons rompent de manière fragile dans cette phase de chargement. Dans les échantillons les plus ductiles (configuration non hydrurée et celle avec 200ppm d'hydrures circonférentiels), une cavité apparaît à l'intersection des bandes, pour un niveau de déformation circonférentielle locale (base de mesure de 250 $\mu\text{m}$ ) de plusieurs centaines de pourcents. Cette cavité croît d'abord le long de l'équateur de l'échantillon, cette croissance s'accompagnant d'une progression des bandes de déformation tel que leurs intersections coïncident avec les deux fronts de fissure. La rupture finale s'opère en général par bifurcation de la fissure le long d'une de ces bandes.

Cette technique d'investigation de corrélation d'images, très adaptée à l'étude des hétérogénéités de champs de déformation, a aussi été utilisée à l'échelle de la microstructure, grâce à des micro-grilles déposées sur la section radiale-circonférentielle des anneaux. En effet, lors d'essais réalisés in-situ sous MEB, non seulement nous cherchions à observer qualitativement les mécanismes d'endommagement, mais aussi, à l'issue de ces essais, nous souhaitions déterminer si les hydrures avaient une influence sur les mécanismes de déformation à l'échelle de la microstructure par la technique de corrélation appliquée à des images de zones de 300 x 300  $\mu\text{m}$  environ, acquises à différents niveaux de déformation. Ces essais, bien que très lourds à réaliser, n'ont pas apporté autant d'informations que nous l'avions envisagé. En effet, de par la complexité de la sollicitation sur une éprouvette de géométrie anneau, les zones de la section radiale-circonférentielle les plus déformées sont celles où les bandes de déformation macroscopiques, qui se sont développées sur la surface bombée, débouchent. Or, lorsque ces bandes débouchent sur la surface plane, d'une part la surface devient très déformée et présente beaucoup de relief, ce qui rend difficile son observation et plus encore celle des hydrures. D'autre part, ces bandes macroscopiques cisailent la matière qu'elles traversent, et ce mode de sollicitation ne favorise pas le développement des cavités que nous espérions

voir apparaître dans les hydrures. Enfin, ces zones ne sont pas les plus sollicitées de l'échantillon, puisque la déformation, bien que très élevée, reste inférieure à celle observée à l'intersection des bandes. Un endommagement notable n'a pu être observé que pour la plus forte teneur, 500 ppm. Il se manifeste sous de forme de germination et croissance de chapelets de cavités dans les hydrures circonférentiels. Mais ces cavités sont apparues quasi simultanément à la rupture et n'ont pu être observées sur la face radiale circonférentielle que post-mortem.

Cependant, le dépouillement des nombreuses images acquises sur différentes zones de l'anneau, pour différents niveaux de déformation, a permis de constater que pour toutes les configurations d'hydruration, des bandes de localisation de la déformation se développaient, comme dans le cas non-hydruré. Aucune interaction nette entre la répartition de ces bandes et la présence d'hydrures n'a pu être mise en évidence et la morphologie de ces bandes est qualitativement très similaire dans tous les échantillons. Les fonctions de distribution statistique de la déformation ne révèlent pas non plus de différence sensible entre les diverses configurations hydrurées. L'hétérogénéité de déformation semble au contraire légèrement plus forte dans le matériau non hydruré, mais ceci pourrait être imputé à une légère évolution des propriétés mécaniques de la matrice lors du traitement de réorientation (effectué à 400°C), qui aurait été un peu restaurée. Mais elles ne permettent pas de conclure à un accroissement des hétérogénéités de déformation avec une teneur en hydrures plus élevée, au travers d'un éventuel « effet composite ». De plus, d'après les cartes de déformation, les hydrures peuvent être traversés par des bandes de localisation, les niveaux locaux de déformation mesurés par micro-extensométrie pouvant atteindre plusieurs dizaines de pourcents (environ 40 %) ; ils sont donc ductiles. Une analyse plus quantitative consistant à comparer les niveaux de déformations moyens au voisinage des hydrures, circonférentiels ou radiaux, à ceux dans des zones pauvres en hydrures fait apparaître un petit effet, les voisinages d'hydrures radiaux se déformant légèrement moins que les hydrures circonférentiels, eux mêmes moins déformés que l'alliage ; les écarts restent toutefois très faibles.

Cette analyse locale des déformations a également été menée par observation de la face circonférentielle-axiale, dans le but de caractériser les modes de déformation dans la zone la plus sollicitée de l'échantillon (à l'intersection des bandes) et de rechercher la présence éventuelle d'endommagement. La configuration à 200 ppm d'hydrures circonférentiels a été analysée. L'analyse des déformations révèle ici aussi un double mode de localisation en bandes : les bandes macroscopiques déjà révélées par la mesure optique globale, mais également un net réseau de bandes microscopiques orientées à  $\pm 45^\circ$  environ par rapport à l'axe de traction, similaire à celui observé par d'autres auteurs sur un matériau proche. La fissure étant apparue à l'interface entre deux grilles, il n'a pas été possible de quantifier précisément les niveaux de déformation locaux au moment de la fissuration. Il s'avère toutefois que l'endommagement, sous forme de microcavités, n'a pu être observé qu'au voisinage immédiat du front de fissure, pour des niveaux de déformation locaux (base de mesure de 4 $\mu$ m) supérieurs à 50%. Il est probable que sa localisation coïncide avec les intersections de bandes microscopiques. Les zones analysées quantitativement par extensométrie révèlent inversement des niveaux de déformation locaux supérieurs à 100%, sans endommagement. Ce mode d'observation latérale ne permet toutefois pas de voir les hydrures circonférentiels (qui sont à cœur) ; il s'agit donc ici d'endommagement de l'alliage lui-même. Il n'est pas exclu que des chapelets de cavités sur les hydrures tels que ceux observés post-mortem sur les échantillons à 500 ppm apparaissent également à cœur.

Si, d'après l'analyse des cartes de déformation, les hydrures radiaux ne semblent empêcher que très modérément la déformation de la matrice dans leur voisinage, lorsqu'ils sont en faible proportion, il est en revanche certains qu'ils gouvernent la rupture fragile lorsqu'ils sont en nombre suffisant. Dans

le cas du 200R par exemple, la rupture s'est en effet propagée de manière principalement fragile à travers les hydrures, qui se sont rompus dans le sens de la longueur, et elle ne s'est propagée de manière ductile que sur les petites zones de matrice où elle est passée. En effet, ces essais mécaniques, qu'ils soient macroscopiques ou in-situ sous MEB, permettaient d'observer, à différentes échelles, les mécanismes de rupture, notamment par l'analyse des faciès de rupture. Dans les cas « non-hydruré » ou 200C, les anneaux ont rompu par déchirement ductile le long d'une des bandes macroscopiques, après qu'une cavité se soit formée à l'intersection de ces bandes et que la striction ait considérablement réduit la section de l'éprouvette. La présence d'hydrures n'a semble-t-il pas créé de différence dans le mode de rupture.

Toutes les autres éprouvettes, hydrurées à 200M, 200R, 500C, 500M ou 500R avaient rompu à l'équateur perpendiculairement à la sollicitation, après une assez faible striction ou même sans striction. La rupture avait toujours été brutale mais avec plus ou moins de violence (éjection de l'anneau). Une analyse des faciès de rupture s'est révélée indispensable pour comprendre comment la rupture s'était effectivement produite. Elle nous conduit à distinguer trois classes : la rupture ductile, la rupture fragile, la rupture fragile après déformation plastique. La première concerne seulement le NH et le 200C. En effet, la seule différence entre ces deux matériaux est visible sur le faciès de rupture : le matériau hydruré comporte de longues fissures secondaires, traces des hydrures circonférentiels, probablement rompus par coalescence des « chapelets » de cavités évoqués plus haut. Sinon, ils présentent autant de ductilité, les mêmes plans de cisaillement, autant de cupules sur les faces de la cavité centrale et un même relief sur les faces rompues en cisaillement. La présence d'hydrure circonférentiels à 200ppm ne semble donc pas critique : c'est la ductilité de l'alliage lui-même qui gouverne la résistance du matériaux dans ce cas, les ruptures des hydrures ne faisant qu'accompagner ce mécanisme.

La deuxième classe est constituée uniquement du 200R : ce matériau est le seul à rompre sans plasticité aucune. Les hydrures radiaux jouent un rôle essentiel dans cette rupture, puisque d'après les essais in-situ, la rupture se propage d'hydrure radial en hydrure radial. Le faciès présente des « marches », très nettes, avec des plans perpendiculaires les uns aux autres. Aucune fissure secondaire n'est visible. Ces marches correspondent sans doute à des hydrures macroscopiques radiaux rompus dans leur plan, comme le suggère la similitude des dimensions caractéristiques de ce relief et de celles des hydrures (longueur et espacement). Il est certain que la surface spécifique d'hydrures radiaux est un paramètre important vis-à-vis de ce mécanisme. Leur morphologie, et plus précisément leur connectivité, doit probablement aussi jouer un rôle important.

Quant à la dernière classe, elle regroupe le plus de configurations (200M, 500C, 500M, 500R). Ces matériaux présentent la particularité de rentrer en plasticité (on atteint le maximum de contrainte et les bandes de déformation macroscopiques se développent), mais de rompre de manière fragile, à l'équateur. Le 200M est un peu particulier, puisque dans ce cas, la rupture s'est clairement initiée de manière ductile à l'intersection des bandes macroscopiques, mais s'est ensuite propagée de manière instable et fragile, perpendiculairement à la sollicitation. Les matériaux à 500 ppm présentent un faciès plus homogène et qui est similaire à celui du 200M sur les bords : on remarque des marches planes, probablement associés aux hydrures radiaux comme dans le 200R, des fissures secondaires, certainement liées aux hydrures circonférentiels, rompus comme dans le 200C, et quelques zones de rupture ductile de l'alliage constituant la matrice. La taille de ces marches varie d'un faciès à l'autre : elles semblent plus étroites dans le 500C et le 500M, ce qui serait cohérent avec le fait que les hydrures radiaux soient moins nombreux et plus petits dans ces configurations non réorientées. Pour tous ces matériaux, la densité d'hydrures radiaux semble aussi un paramètre important, mais un couplage entre le mécanisme fragile associé à ces hydrures et un mécanisme plus ductile impliquant

les hydrures circonférentiels, rompus par coalescence des chapelets de cavités observés, n'est pas exclue. La ductilité de la matrice ne semble pas critique, puisque la proportion de surface à cupules ductiles sur le faciès est faible (sauf éventuellement pour le 200M).

Toutes ces observations expérimentales nous conduisent donc à conclure que :

- les hydrures ont peu d'influence sur les modes de déformation à l'échelle de la microstructure ;
- la hausse de la teneur en hydrogène fragilise le matériau : même s'il entre en plasticité et si de l'endommagement apparaît dans les hydrures, le matériau à 500 ppm rompt de manière fragile, quelle que soit l'orientation;
- la présence d'hydrures radiaux en forte proportion (cas 200R) fragilise indiscutablement le matériau : sa contrainte à rupture très faible et son faciès presque dépourvu de trace de ductilité en témoignent. Cela était connu, mais la façon dont la rupture se propage d'hydrure radial en hydrure radial a été clairement mise en évidence ;
- la présence d'hydrures radiaux en plus faible proportion (cas 200M), conduit la rupture initiée de manière ductile à se propager de manière fragile.

Davantage de conclusions sont difficiles à formuler. En effet, nous ne disposons pas de matériaux hydrurés avec la même quantité d'hydrures radiaux mais différentes teneurs en hydrogène. Seuls les 200M et 200R en contenaient assez pour qu'ils aient un effet. Il eut été intéressant d'étudier le comportement d'un vrai 500M, c'est-à-dire d'un matériau hydruré à 500 ppm mais avec autant d'hydrures radiaux que circonférentiels, qui eut présenté une densité d'hydrures radiaux très proche de celle du 200R.

De plus, ces essais sur anneaux sont difficiles à interpréter à cause de la complexité des champs qu'ils induisent. Pour pallier cet inconvénient, des essais sur éprouvettes plates avaient été envisagés et devaient constituer une part importante du travail. Nous souhaitons nous placer dans une configuration la plus proche possible de celle des tubes, donc prélever des éprouvettes dans le plan travers-travers court, et leur faire subir un traitement de réorientation. Ainsi, on aurait pu observer sur la face plane de ces éprouvettes, les hydrures, qu'ils soient radiaux ou circonférentiels, tout en assurant une sollicitation locale relativement homogène et principalement uniaxiales dans un volume important de matière. Mais, la tôle en Zircaloy-4 détendu de 6 mm d'épaisseur n'a pas pu être hydrurée, malgré une triple tentative avec des partenaires différents, pour une raison qui reste obscure. Seuls les essais sur anneaux ont donc été entrepris, malgré les complications que cela posait pour la préparation des surfaces, le dépôt des micro-grilles ou du mouchetis, la réalisation d'un essai mécanique « correct » et son interprétation. Par exemple, pour les essais in-situ sous MEB, les cartes de déformation sont affectées par la géométrie anneau et présentent un fort gradient dans leur largeur. Dans chaque zone, la sollicitation n'est donc pas homogène, excepté dans celle se trouvant à l'équateur et pour laquelle l'axe de la sollicitation ne varie pas au cours de l'essai. Un volume (et surface) élémentaire représentatif est donc délicat à définir. Cependant, il a été vérifié au cours des observations au MEB dans les deux plans observés (radial-circonférentiel et radial-axial) que la répartition spatiale des hydrures est relativement homogène. A défaut d'être élémentaire vis-à-vis de la sollicitation appliquée à l'anneau, la surface observée est néanmoins représentative de la microstructure du matériau étudié, c'est-à-dire de la statistique de distribution spatiale des hydrures, tant pour le matériaux hydruré à 200 qu'à 500 ppm (ou non-hydruré pour lequel la taille caractéristique est gouvernée par la taille des grains beaucoup plus petite). La définition d'une surface représentative sur laquelle la sollicitation serait macro-homogène est donc nécessaire pour exploiter les résultats des essais mécaniques en vue de

l'élaboration d'un critère macroscopique de rupture applicable à l'échelle d'un volume élémentaire d'un calcul de structure.

Cette opération a été tentée. En effet, les résultats des essais mécaniques et particulièrement les mesures de champ, ainsi que les informations issues de l'analyse d'images, ont été utilisées pour ébaucher un critère de rupture prenant en compte la teneur et l'orientation des hydrures. Ce critère formulé très simplement, dans le cadre d'une première approche, n'est pas couplé au comportement, conformément aux observations expérimentales ne révélant quasiment pas de différence de réponse, globale, locale ou microstructurale entre les divers matériaux avant rupture, et peut être interprété dans le cadre de la mécanique de l'endommagement anisotrope. Il repose sur une relation entre la proportion de longueurs d'hydrures radiaux et la déformation locale macroscopique mesurée sur les faces bombées des anneaux, à l'intersection des bandes de déformation macroscopiques. En cette position, le niveau de déformation est le plus élevé. De plus, il semble assez clair pour les configurations 200M, 200C et NH, que la rupture est initiée à cet endroit (cavité ou zone ductile initiale en ce point). Pour le 200R, l'initiation ne se produit pas nécessairement en ce point mais quelque part sur l'équateur, où la sollicitation est la plus élevée. Mais comme l'état de sollicitation est homogène le long de cet axe, la valeur au centre est bien représentative de l'état local conduisant à la rupture. Pour les autres configurations, ce point est tout aussi clairement un point critique, puisque la rupture se produit après le maximum de contrainte, lorsque les bandes macroscopiques sont bien présentes et induisent un niveau de déformation plus élevé en ce point. La sollicitation n'est toutefois pas parfaitement homogène à l'échelle macroscopique en ce point, comme le révèlent les mesures globales de déformation pour méthodes optiques, où l'on constate que le maximum de sollicitation n'est atteint qu'en un seul point de mesure, ainsi que la mesure des champs microstructuraux au voisinage des bandes de localisation macroscopique qui révèlent un gradient de sollicitation. Pour pallier cette difficulté, on a considéré la déformation moyenne sur un domaine de taille constante, fixée à 250 x 250  $\mu\text{m}$  environ, centré sur le motif de bandes. La taille de ce domaine est choisie en cohérence avec la résolution spatiale de la mesure optique de déformation qui, grâce à l'enregistrement continu des images, donne bien accès au champ juste avant rupture. Elle est aussi cohérente avec l'estimation de la taille minimale d'un domaine statistiquement représentatif de la distribution spatiale des hydrures, suggérée par l'analyse d'images (tout au moins pour ce qui concerne la direction circumférentielle). Les premiers résultats appliqués aux sept échantillons pour lesquelles la mesure locale de champ est disponible, sont encourageants et montrent une nette corrélation entre densité d'hydrures radiaux. L'application du critère simple obtenu à une simulation numérique par élément fini de l'essai sur anneau est encourageante et reproduit bien la tendance observée expérimentalement, en tous cas pour le matériau à 200 ppm, pour lequel les tendances sont les plus nettes.

Plus généralement, une analyse statistique impliquant l'ensemble des échantillons testés, y compris ceux pour lesquels seule la réponse globale est connue, conduit toutefois à modérer la performance du critère. Cette analyse a été menée en se basant sur l'exploitation de la courbe liant réponse globale et déformation locale à l'intersection des bandes, supposée identique pour tous les échantillons sur la base de l'indépendance de la réponse en déformation par rapport à la teneur en hydrures. Elle révèle une forte fluctuation des réponses, qui peut éventuellement être associée aux défauts de la procédure utilisée pour évaluer la déformation locale, mais qui, plus fondamentalement, est très probablement aussi due à des questions de représentativité statistique de la zone fortement sollicitée à l'intersection des bandes. En effet, la déformation se localise dans des bandes très étroites, de largeur de l'ordre de quelques centaines de micromètres au plus, et au sein desquelles la déformation n'est pas homogène.

L'état local de déformation dans un volume statistiquement représentatif de la distribution des hydrures est donc hétérogène et ne peut être caractérisé par la seule valeur moyenne de déformation. Cette hétérogénéité est d'ailleurs confirmée par le calcul numérique qui montre des écarts très importants entre les valeurs locales de déformation calculée en ce point et les valeurs moyennes du champ dans des voisinages plus ou moins grands de ce point. Dans ces conditions, la rupture sera fortement influencée par la configuration très locale des hydrures dans la zone la plus sollicitée, qui peut varier d'un échantillon à l'autre d'une même famille, même si la répartition des hydrures est statistiquement homogène à l'échelle des dimensions globales de l'anneau. Le phénomène de localisation intense après le pic de contrainte explique ainsi les fluctuations très fortes des déformations à rupture, pour les échantillons pour lesquels les hydrures, notamment radiaux, jouent un rôle important dans la ruine : la résistance de la matière est sondée que dans un domaine notablement plus petit que l'anneau lui-même. Cette dispersion est beaucoup moins forte sur les échantillons pour lesquels la rupture est gouvernée par la ductilité de la matrice, le scénario de rupture ductile se jouant à une échelle bien plus fine (cas 200C et NH). Cet argument permet aussi d'expliquer la faible dispersion de la contrainte à rupture des éprouvettes 200R (et donc de leur déformation à rupture puisque ces anneaux restent dans le domaine élastique), alors qu'a priori un mécanisme totalement fragile eut pu induire une dispersion notable. En effet, dans cette phase de chargement, l'anneau est sollicité de manière quasi uniforme le long de son axe au niveau de l'équateur, et le volume de matière concerné est bien plus grand, et donc statistiquement représentatif de la distribution des hydrures.

Pour améliorer l'identification du critère de rupture, il serait donc utile de développer des approches complémentaires qui n'ont pas été abordées au cours de cette thèse, faute de temps et surtout de matériau. Principalement sur le plan expérimental, des essais sur éprouvettes plates seraient nécessaires pour identifier le critère macroscopique, étudier les champs de déformation à l'échelle locale et surtout leur structuration en bandes en liaison avec la répartition des hydrures. De telles éprouvettes, devraient permettre de solliciter des domaines de matières beaucoup plus grands qu'au sein des anneaux, et sous des modes plus faciles à contrôler. La propension du matériau à localiser se manifeste certes également sur des échantillons plats, mais une première analyse des champs de déformation sur des échantillons plats non hydrurés, laisse toutefois espérer que la sollicitation puisse être homogène jusqu'à des niveaux de déformation élevés sur des domaines d'une taille de plusieurs millimètres. D'autres géométries d'anneaux pourraient aussi être testées (notamment des anneaux plus larges), avec l'espoir d'y mobiliser une quantité plus grande de matière. L'observation fine des mécanismes d'endommagement restera toutefois délicate, les hydrures circonférentiels n'étant pas visibles dans la zone la plus sollicitée.

Pour obtenir des configurations d'orientations plus contrastées, notamment sur les matériaux à 500 ppm, on pourrait envisager un traitement de réorientation par cyclage thermique afin que davantage d'hydrures soient réorientés radialement. Des essais en température et/ou sur matériau irradié pourraient aussi apporter des informations intéressantes dans le contexte de l'étude, mais au prix des difficultés techniques associés à de tels essais. L'utilisation de mesures de champs macroscopiques sur des matériaux irradiés semble toutefois parfaitement envisageable.

Concernant les hydrures, il serait intéressant de mieux connaître leur structure en volume, grâce à des observations soit avec un MEB FIB, de manière plus systématique que ce qui a été fait dans le cadre de ce travail, soit par microtomographie. Une analyse des faciès de rupture avec un moyen pour

détecter la présence d'hydrogène en surface (EBSD ?) permettrait aussi de mieux comprendre quels mécanismes régissent leur rupture.

Une caractérisation plus poussée de la morphologie des hydrures pourrait aussi être tentée, notamment en sous la forme de la détection de chemins de fissuration facile, par une analyse de connexité, d'abord en surface, mais aussi en trois dimensions, si la répartition tridimensionnelle des hydrures peut être déterminée expérimentalement (ou simulée au moyen d'un modèle adéquat).

Par rapport au contexte de notre étude et à cause de la fragilisation possible par les hydrures radiaux, les enseignements issus de l'étude suggèrent de définir les procédures de telle sorte à ne jamais avoir de tube faiblement hydrurés (200 ppm) susceptibles d'une réorientation des hydrures, puisque c'est cette configuration qui est la plus fragile. Les concentrations plus élevée semble moins favorables à une réorientation massive des hydrures (pour une raison inconnue, mais qui peut-être liée au fait que seule une partie de l'hydrogène est dissous et qu'au moment de la précipitation, une partie de l'hydrogène précipite sur les hydrures circonférentiels non dissous). Par ailleurs, du fait des tailles caractéristiques assez grandes des configurations d'hydrures, les modes de sollicitation susceptibles d'induire une déformation très localisée, telle que celle observée sur les anneaux en traction, sont à proscrire, pour éviter de déclencher les mécanismes fragiles sur les configurations locales particulièrement défavorables.



---

## RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

---

ALLAIS L., BORNERT M., BRETHERAU T., CALDEMAISON D., *Experimental characterization of the local strain field in a heterogeneous material*, Acta metallurgica et materialia, **42** (11) : 3865 – 3880 (1994).

ARSENE S., *Effet de la microstructure sur la transition ductile-fragile des Zircaloy hydrurés*, Thèse de l'Ecole Centrale Paris (1997).

BAI J., *Nocivité des hydrures dans le Zircaloy-4*, Thèse de l'Ecole Centrale Paris (1991).

BARCELO F., *Quantification et caractérisation des hydrures dans le Zircaloy-4 par analyse d'images*, CEA Saclay, NT SRMA 91.1881 (1991).

BARCELO F., *Orientation des hydrures dans le Zircaloy-4 : effet de la contrainte*, CEA Saclay, NT SRMA 91.1922 (1991).

BARCELO F., *Morphologie et quantification des hydrures dans le Zircaloy-4 : courbes d'étalonnage de la teneur en hydrogène*, CEA Saclay, NT SRMA 93.2017 (1993).

BECHADE J-L., *Textures et écrouissage de tôles en Zircaloy-4 : Evolutions en fonctions des paramètres de laminage à froid ; influence sur le comportement élastique, la dilatation thermique et l'anisotropie plastique*, Thèse de l'Ecole Centrale de Nantes (1994).

BECK R.L., *Zirconium-Hydrogen phase system*, Transactions of the ASM, **55** : 542-555 (1962).

BELL L.G., DUNCAN R.G., *Hydride orientation in Zr-2,5% Nb ; how it is affected by stress, temperature and heat treatment*, rapport AECL-5110 (1975).

BERTOLINO G., *Effects of hydrogen content and temperature on fracture toughness of Zircaloy-4*, Journal of Nuclear Materials **320** : 272-279 (2003).

BILGER N., *Etude micromécanique de la présence d'amas d'inclusions sur la transition fragile-ductile des aciers de cuve*, Thèse de l'Ecole Polytechnique (2003).

BIRNBAUM H.K., *Mechanical properties of metal hydrides*, Journal of the less-common metals, **104** : 31-41 (1984).

BLAT M., *Hydruration des alliages de zirconium*, Cours de la formation « Métallurgie des alliages de zirconium pour le nucléaire », INSTN (9-12 décembre 2002).

BOUFFIOUX P., LEGRAS L., *Effect of hydriding on the residual cold work recovery and creep of Zircaloy-4 cladding tubes*, ANS International topic Meeting on light water Reactor Fuel Performance, park city, Utah, April 10-13 (2000).

CANN C.D., PULS M.P., SEXTON E.E., HUTCHINGS W.G., *The effect of metallurgical factors on hydride phases in zirconium*, Journal of Nuclear Materials **126** : 197-205 (1984).

CHOW C.K., SIMPSON L.A., *Analysis of the unstable fracture of a reactor pressure tube using fracture toughness mapping*, Case histories involving fatigue and fracture mechanics, ASTM STP 918 : 78-101 (1986).

CHUNG H.M., DAUM R.S., HILLER J.M., BILLONE M.C., *Characteristics of hydride precipitation in spent-fuel cladding*, Zirconium in the Nuclear Industry : 13th International Symposium, ASTM STP 1423 : 561-582 (2002).

COLEMAN C.E., HARDIE D., *The hydrogen embrittlement of zirconium in slow-bend tests*, Journal of Nuclear Materials, **19** : 1-8 (1966).

COLEMAN C.E., CHEADLE B.A., AMBLER J.F.R., LICHTENBERGER P.C., EADIE R.L., *Minimizing hydride cracking in zirconium alloys*, Canadian Metallurgical Quarterly, **24**, 3 : 245-250 (1985).

CORNILLE N., *Accurate 3D shape and displacement measurement using a scanning electron microscope*, Thèse de l'Ecole des Mines d'Albi-Carreaux et de l'Université de Caroline du Sud (2005).

COSTER M., CHERMANT J.L., *Précis d'analyse d'images*, Ed. Presses du CNRS (1989).

CREPIN J., *Etude des mécanismes de déformation et d'endommagement du Zirconium grade 702 traité  $\beta$ . Application aux cordons de soudure*, Thèse de l'Ecole Polytechnique (1995).

DOUMALIN P., *Microextensométrie locale par corrélation d'images numériques, Application aux études micromécaniques par microscopie électronique à balayage*, Thèse de l'Ecole Polytechnique (2000).

ELSTON J., *Hydrures*, Génie atomique (Tome IV, Volume II), Ed. F. Perrin (INSTN – PUF), 249-278 (1965).

EVANS W., PARRY G.W., *The deformation behaviour of Zircaloy-2 containing directionally oriented zirconium precipitates*, Electrochemical technology, Vol.4, N°5-6 (1966).

FANDEUR O., *Etude expérimentale et modélisation mécanique de la corrosion sous contrainte des gaines en Zircaloy-4*, Thèse de l'Ecole Centrale Paris (2001).

FERRER F., *Etude des mécanismes de déformation du zirconium entre 25 et 400°C. Influence d'une faible teneur en soufre*, Thèse de l'Ecole Polytechnique (2000).

FRANCOIS D., PINEAU A., ZAOUI A., *Comportement mécanique des matériaux, tome2, Viscoplasticité, endommagement, mécanique de la rupture, mécanique du contact*, Editions Hermès (1995).

FROMENT K., *Application de l'analyse d'images à l'étude des hydrures dans le Zircaloy*, CEA Saclay, NT SEMI n°670 (1990).

GRANGE M., *Fragilisation du Zircaloy-4 par l'hydrogène : comportement, mécanismes d'endommagement, interaction avec la couche d'oxyde, simulation numérique*, Thèse de l'Ecole des Mines de Paris (1998).

GRANGE M., BESSON J., MOLINS R., ANDRIEU E., DIZ J., *Damage and rupture of hydrided Zircaloy-4 sheets*, Trans. of the 14<sup>th</sup> International Conference on Structural Mechanics in reactor technology (SMIRT 14, Lyon), 149-156 (1997).

GRANGE M., BESSON J., ANDRIEU E., *Anisotropic behavior and rupture of hydrided Zircaloy-4 sheets*, Metallurgical and Materials transactions A, Vol. 31A : 679-690 (2000).

GUILLOT I., *Influence des contraintes et de la vitesse de refroidissement sur la précipitation des hydrures dans le Zircaloy-4 recristallisé*, Rapport final, UTC, ECP, EDF (2003).

HARDIE D., SHANAHAN M.W., *Stress orientation of hydrides in Zr-2,5% Nb*, Journal of Nuclear Materials, **55** : 1-13 (1975).

- HILLNER E., KASS J.N., KEARNS J.J., *Hydrogen supercharging during corrosion of Zircaloy*, Journal of Nuclear Materials, **45** : 175-178 (1972).
- HONG S.I., LEE K.W., KIM K.T., *Effect of the circumferential hydrides on the deformation and fracture of Zircaloy cladding tubes*, Journal of Nuclear Materials **303** : 169-176 (2002)
- HONG S.I., LEE K.W., *Stress-induced reorientation of hydrides and mechanical properties of Zircaloy-4 cladding tubes* **340** : 203-208 (2005)
- HUANG J.H., HUANG S.P., *Effect of hydrogen contents on the mechanical properties of Zircaloy-4*, Journal of Nuclear Materials **208** : 166-179 (1994).
- JENSEN J.A., BACKOFEN W.A., *Deformation and fracture of alpha zirconium alloys*, Canadian Metallurgy Quarterly, **11**, N°1 : 39-50 (1972).
- KAMMENZIND B.F., FRANKLIN D.G., PETERS R.H., DUFFIN W.J., *Hydrogen pick-up and redistribution in alpha-annealed Zircaloy-4*, Zirconium in the nuclear industry : 11<sup>th</sup> international symposium, ASTM 1295 (1996).
- KAUFMANN P.D., BAROCH E.F., *Potential for improvement of mechanical properties in Zircaloy cold-rolled strip and sheet*, ASTM STP 551, Zr in nuclear applications (1974).
- J.J. KEARNS, *Terminal solubility and partitioning of hydrogen in the alpha phase of Zirconium, Zircaloy-2 and Zircaloy-4*, Journal of Nuclear Materials **22** : 292-303 (1967).
- J.J. KEARNS, *Dissolution kinetics of hydride platelets in Zircaloy-4*, Journal of Nuclear Materials **27** : 64-72 (1968).
- LEE K.W., HONG S.I., *Zirconium hydrides and their effect on the circumferential mechanical properties of Zr-Sn-Fe-Nb tubes*, Journal of Alloys and Compounds **346** : 302-307 (2002).
- LEMAIGNAN C., NOEL D., *La corrosion des alliages de zirconium*, In : Endommagement des matériaux dans les centrales nucléaires à eau pressurisée, Ed Berge P., et Zacharie P., 91-104 (1998).
- LEMAITRE J., CHABOCHE J.L., *Mécanique des matériaux solides*, Editions Dunod (1988).
- LEMAITRE J., DESMORAT R., SAUZAY M., *Loi d'évolution de l'endommagement anisotrope*, Mécanique des solides et des structures, t. 327, série IIb, 1231-1236 (1999).
- LIBOWITZ G.G., *A pressure-composition-temperature study of the Zirconium-hydrogen system at high hydrogen contents*, Journal of Nuclear Materials, **5**, n°2 : 228-233 (1962).
- LIMON R., *Analyse des contraintes de pression dans un tube cylindrique, Application à l'interprétation des essais mécaniques*, NT SRMA 91.1903 (1991).
- LOUTHAN M.R. Jr, *Cleavage in hydrided Zircaloy-2*, Transactions of the ASM, **5** : 1004-1008 (1964).
- MAC INTEER W., BATY W.A., STEIN K.O., *The influence of tin content on the thermal creep of Zircaloy-4*, ASTM STP 1023, Zr in the nuclear industry : 8<sup>th</sup> international symposium (1989).
- MARINO G.P., *Hydrogen supercharging in Zircaloy*, Material Sciences Engineering, **7** : 335-341 (1971).
- MARSHALL R.P., LOUTHAN M.R. Jr., *Tensile properties with oriented hydrides*, Transactions of the ASM, **56** (1963).
- MARSHALL R.P., *Control of hydride orientation in Zircaloy by fabrication practice*, Journal of Nuclear Materials **24** : 49-59 (1967).
- MIQUET A., CHARQUET D., ALLIBERT C.H., *Solid state phase equilibria of Zircaloy-4 in the temperature range 750-1050°C*, Journal of Nuclear Materials **105** : 132-141 (1982).

- NORTHWOOD D.O., KOSASIH U., *Hydrides and delayed hydrogen cracking in zirconium and its alloys*, International Metal reviews, **28**, n°2 : 92-121 (1983).
- ONIMUS F., *Approche expérimentale et modélisation micromécanique du comportement des alliages de Zirconium irradiés*, Thèse de l'Ecole Centrale de Paris (2003).
- PEROVIC V., WEATHERLY G.C., SIMPSON C.J., *Hydride precipitation in  $\alpha/\beta$  zirconium alloys*, Acta metallurgica, **31**, N°9, 1381-1391 (1983).
- PEROVIC V., WEATHERLY G.C., Mac EVEN S.R., LEGER M., *The influence of prior deformation on hydride precipitation in Zircaloy*, Acta metallurgica & materialia, **40**, 2 : 363-372 (1992).
- PRAT F., *Etude et modélisation de l'effet de l'hydruration sur le comportement mécanique de composants de structure en Zircaloy-4*, Thèse de l'Ecole des Mines de Paris (1994).
- PRIOUL C., *Le vieillissement dynamique dans les alliages de zirconium, Conséquences sur les propriétés mécaniques*, Le zirconium, journées d'études "propriétés-microstructures", Ed. G. Cailletaud et P. Lemoine, les Editions de Physique (1995).
- PULS M.P., *The influence of hydride size and matrix strength on fracture initiation at hydrides in zirconium alloys*, Metallurgical transactions A, **19** A : 1507-1522 (1988)
- RABOUILLE Olivier, *Communication privée*, CEA Saclay, (2002).
- RACINE A., BORNERT M., SAINTE CATHERINE C., CALDEMAISON D., *Etude expérimentale des micro-mécanismes d'endommagement et de rupture des zircaloy hydrurés*, J. Phys. IV France 106 (2003).
- ROBERT-BERAT L., *Influence d'une couche de zircone sur le comportement mécanique des tubes en Zy-4*, Thèse de doctorat en Physique des matériaux de l'université de Clermont-Ferrand (2001).
- SOUCHIER Catherine, *Analyse d'images*, Techniques de l'ingénieur, P855 (1998).
- TENCKHOFF E., *Deformation mechanisms, texture, and anisotropy in zirconium and Zircaloy*, ASTM Special technical publication, STP 966 (1988).
- TRICOT R., *Métallurgie du zirconium, applications dans l'industrie chimique*, Journées d'études sur le zirconium, nouveau matériau pour les industries chimiques, SF2M (1990).
- URVOY Stéphane, *Communication privée*, CEA Saclay, (2003).
- WESTLAKE D.G., *The habit planes of zirconium hydride in zirconium and Zircaloy*, Journal of Nuclear Materials **26** : 208-216 (1968).
- WIPF H., *Hydrogen diffusion in titanium and zirconium hydrides*, Journal of Alloys and Compounds **310** : 190-195 (2000).
- YAGNIK S.K., KUO R.C., RASHID Y.R., MACHIELS A.J., YANG R.L., *Effect of hydrides on the mechanical properties of Zircaloy-4*, Proceedings of the 2004 International Meeting on LWR Fuel Performance, Orlando, Florida (2004).
- YAMANAKA S. et al, *Study on the hydrogen solubility in Zr alloys*, Journal of Nuclear Materials **247** : 315-321 (1997).
- YANG Q., Chen X., Zhou W.Y., *On the structure of anisotropic damage yield criteria*, Mechanics of materials, **37** : 1049-1058 (2005).
- ZHANG J-H, *Hydruration du Zircaloy-4 et étude de la distribution de l'hydrogène dans une gaine de combustible REP*, Thèse de l'Ecole Centrale Paris (1992).
- ZUZEK E., *H-Zr (Hydrogen – Zirconium)*, Binary alloy phase diagram, Ed. T. B. Massalski (ASTM International), **2** : 2078-2080 (1990).





---

## ANNEXES

---

<i>Annexe 1 : Tableau récapitulatif des observations et essais réalisés, ainsi que des éprouvettes utilisées (géométrie anneau)</i>	212
<i>Annexe 2 : Microscopie Electronique à Balayage</i>	214
<i>Annexe 3 : Micro-électrolithographie : illustration du procédé</i>	216
<i>Annexe 4 : Bref aperçu de différentes techniques de mesure optique</i>	217
<i>Annexe 5 : Opérations morphologiques de traitement d'images</i>	219
<i>Annexe 6 : Images caractérisant chaque configuration avant et après le traitement d'image par le programme d'extraction des hydrures</i>	221
<i>Annexe 7 : Cartes de déformation issues des essais macroscopiques : face plane</i>	228
<i>Annexe 8 : Matériau tôle, caractérisation microstructurale et mécanique</i>	233
<i>Annexe 9 : Détails du programme sur la simulation de microstructure</i>	246

ANNEXE 1 : TABLEAU RECAPITULATIF DES OBSERVATIONS ET ESSAIS REALISES, AINSI QUE DES EPROUVETTES UTILISEES (GEOMETRIE ANNEAU)

ANNEAUX LISSES

Configuration	Type d'essai/observation	Nom du tube dont provient l'anneau	Teneur en hydrogène du tube en ppm (moyenne et valeurs aux extrémités des tubes)	Remarques
NH	Analyse d'images	A4	0	
	Observation MEB*	A4	0	
	Analyse texture DRX (SRMA)	A4	0	
	In-situ	A4	0	
	Mouchetis	A4	0	
	Marqueurs (2 éprouvettes)	A4	0	
200C	Analyse d'images	C17	220 (185-235)	
	Observation MEB*	C26	213 (170-255)	
	Observation microscope optique SRMA	C20	210 (185-235)	
	Observation MEB FIB	C20	210 (185-235)	
	Analyse phase hydrures DRX SRMA	C12	278 (280-275)	
	In-situ face lisse	C17	220 (185-235)	Plots côté gauche, micro-grille côté droit.
	In-situ face bombée	B17	245 (250-240)	Observation d'une génératrice
	Mouchetis (1 seule caméra)	C13	228 (215-240)	Décollement peinture
	Marqueurs	C26	213 (170-255)	
	200M	Analyse d'images	C4	228 (175-280)
In-situ		C4	228 (175-280)	
Mouchetis		C4	228 (175-280)	
Marqueurs		C4	228 (175-280)	
200R		Analyse d'images	C9	245 (215-275)
	Observation MEB*	C9	245 (215-275)	
	Analyse texture DRX (SRMA)	C9	245 (215-275)	
	Analyse phase hydrures DRX SRMA	C9	245 (215-275)	
	In-situ	C9	245 (215-275)	
	Mouchetis (1 seule caméra)	C9	245 (215-275)	
	Marqueurs	C7	240 (190-290)	
500C	Analyse d'images	A23	500 (445-555)	
	Observation MEB*	A23	500 (445-555)	
	In-situ	A23	500 (445-555)	
	Mouchetis	A23	500 (445-555)	Décollement peinture (2003)
	Mouchetis	A23	500 (445-555)	Décalage anneau / <sup>rt</sup> caméra en cours d'essai
	Mouchetis	A23	500 (445-555)	
500M	Marqueurs	A23	500 (445-555)	
	Analyse d'images	B1	565 (570-560)	

	Observation MEB*	B1	565 (570-560)	
	In-situ	B1	565 (570-560)	
	Mouchetis	B1	565 (570-560)	Décalage anneau / <sup>rt</sup> caméra en cours d'essai
	Mouchetis	B1	565 (570-560)	
	Marqueurs	B1	565 (570-560)	
500R	Analyse d'images	B3	558 (605-510)	
	Observation MEB*	B3	558 (605-510)	
	Analyse phase hydrures DRX SRMA	E (anneau issu de tube étagé)	Environ 500 ppm	
	In-situ	B3	558 (605-510)	
	Mouchetis	B3	558 (605-510)	Décalage anneau / <sup>rt</sup> caméra en cours d'essai
	Mouchetis	B3	558 (605-510)	
	Marqueurs	B3	558 (605-510)	

*Tableau 1 : Tableau récapitulatif par configuration d'hydruration, des éprouvettes utilisées pour chaque observation ou essai. Dans la 4<sup>ème</sup> colonne, sont indiquées la valeur moyenne en ppm, et entre parenthèses, la valeur à une extrémité du tube et la valeur à l'autre extrémité.*

*« Observation MEB » désigne les observations réalisées au MEB en électrons rétro-diffusés sur des anneaux polis puis coupés en deux dans le sens axial, afin d'observer les plans radial-circonférentiel axial-radial.*

## ANNEXE 2 : MICROSCOPIE ELECTRONIQUE A BALAYAGE

Le microscope électronique à balayage a souvent été utilisé au cours de cette thèse, à des fins d'observation des hydrures, ou dans le but d'acquérir des images destinées ensuite à l'analyse, ou bien comme moyen de réalisation des essais in-situ. Il a aussi été employé pour identifier des éléments chimiques, par exemple ceux constituant les précipités de  $Zr(Fe, Cr)_2$ .

Le fonctionnement du MEB repose sur l'émission d'électrons produits par une cathode et la détection de signaux provenant de l'interaction des ces électrons avec l'échantillon. Ces signaux permettent de :

- former une image ; dans ce cas, l'intensité lumineuse est directement associée à l'intensité du signal ;
- déterminer la composition chimique de l'échantillon analysé.

*Fonctionnement*

Les électrons qui bombardent la surface de l'échantillon à analyser sont produits par émission thermique (produit par chauffage d'un filament en tungstène) dans le canon à électrons. Les électrons sont ensuite accélérés sous l'effet d'une différence de potentiel entre la cathode, placée près du filament et l'anode, située dans le bas de la colonne. La différence de potentiel peut être choisie entre 5 et 30 keV dans le MEB Jéol JSM 845. Le faisceau d'électrons traverse la « colonne optique » qui est constituée de divers éléments permettant d'ajuster grossièrement ou finement sa taille. Ces divers éléments sont : le diaphragme (plaque percée d'un trou), les condenseurs ou lentilles électromagnétiques (qui réduisent la dimension de la source apparente d'électrons si l'on réduit la valeur du courant les traversant). Ensuite, le faisceau est dévié par des lentilles électromagnétiques (ou bobines déflectrices) pour assurer le balayage de la surface à étudier par le faisceau. Le couplage de ce balayage à celui d'un écran cathodique permet d'obtenir une image. L'augmentation du grandissement correspond à une diminution de la surface de l'échantillon balayée par le faisceau.

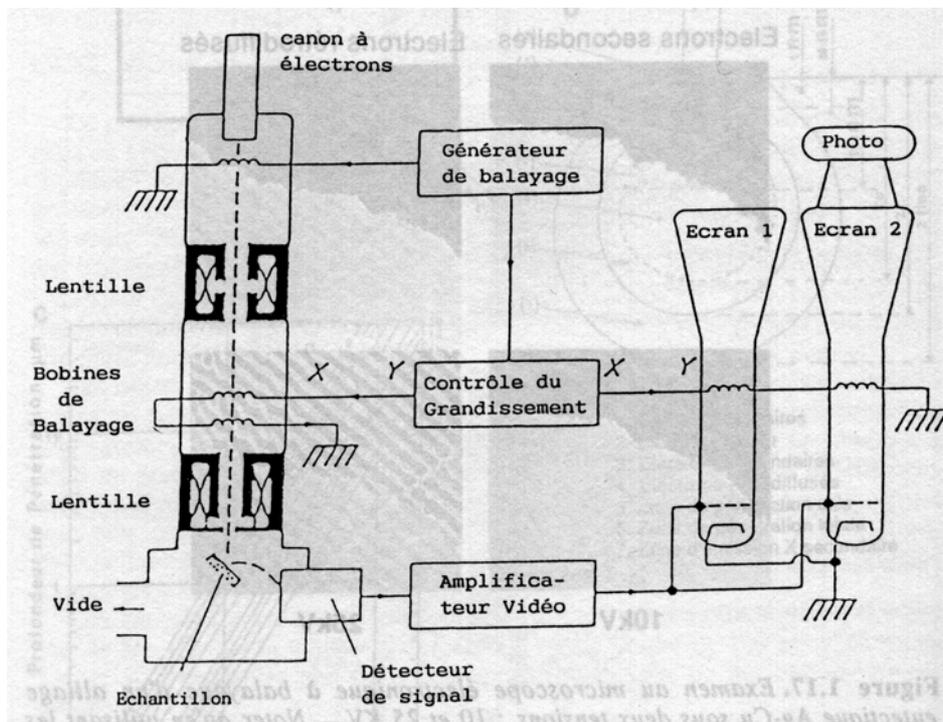


Figure 1 : Schéma de principe de fonctionnement du MEB [François 1995].

### Différents types de signaux réémis

Les signaux émis sous l'effet du bombardement par un faisceau d'électrons proviennent de profondeurs caractéristiques de la matière de l'échantillon analysé. On en distingue plusieurs types, parmi lesquels :

- les électrons secondaires ;
- les électrons rétro-diffusés.

Les premiers permettent d'analyser la topographie de l'échantillon. Ils sont produits par l'effet de répulsion des électrons incidents sur les électrons des couches électroniques des atomes de l'échantillon. L'énergie des électrons secondaires est faible, inférieure à 50 eV, c'est pour cela qu'ils ne peuvent être détectés seulement s'ils ont été produits près de la surface de l'échantillon.

Les seconds sont des électrons ayant réagi de façon élastique avec des noyaux d'atomes de l'échantillon. Ils sont dispersés dans toutes les directions avec une faible perte d'énergie, et leur énergie est donc comprise entre 5 et 50 keV, comme les électrons incidents. Ils peuvent provenir de couches de matière plus profondes que les électrons secondaires. L'intensité de l'émission de ces électrons rétro-diffusés dépend principalement du numéro atomique des éléments constituant l'échantillon : les éléments chimiques possédant un numéro atomique élevé produisent davantage d'électrons rétro-diffusés que ceux ayant un numéro atomique faible. Ils permettent donc essentiellement d'analyser le contraste de phase sur la surface d'un échantillon.

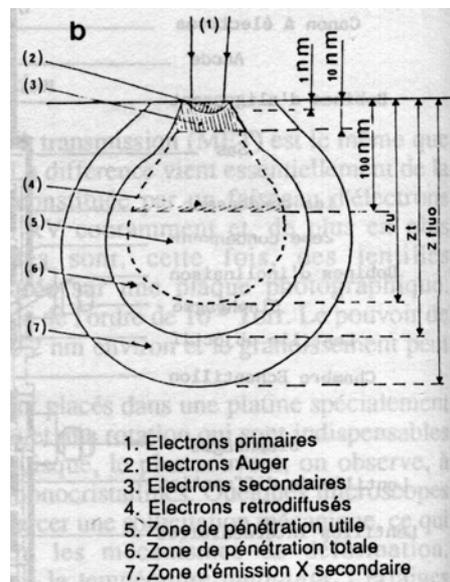


Figure 2 : Interactions entre le faisceau d'électrons et la surface de l'échantillon analysée [François 1995].

## ANNEXE 3 : MICRO-ELECTROLITHOGRAPHIE : ILLUSTRATION DU PROCÉDE

Voici une illustration issue de la thèse de [Doumalin 2000] représentant les différentes étapes de dépôt de micro-grilles.

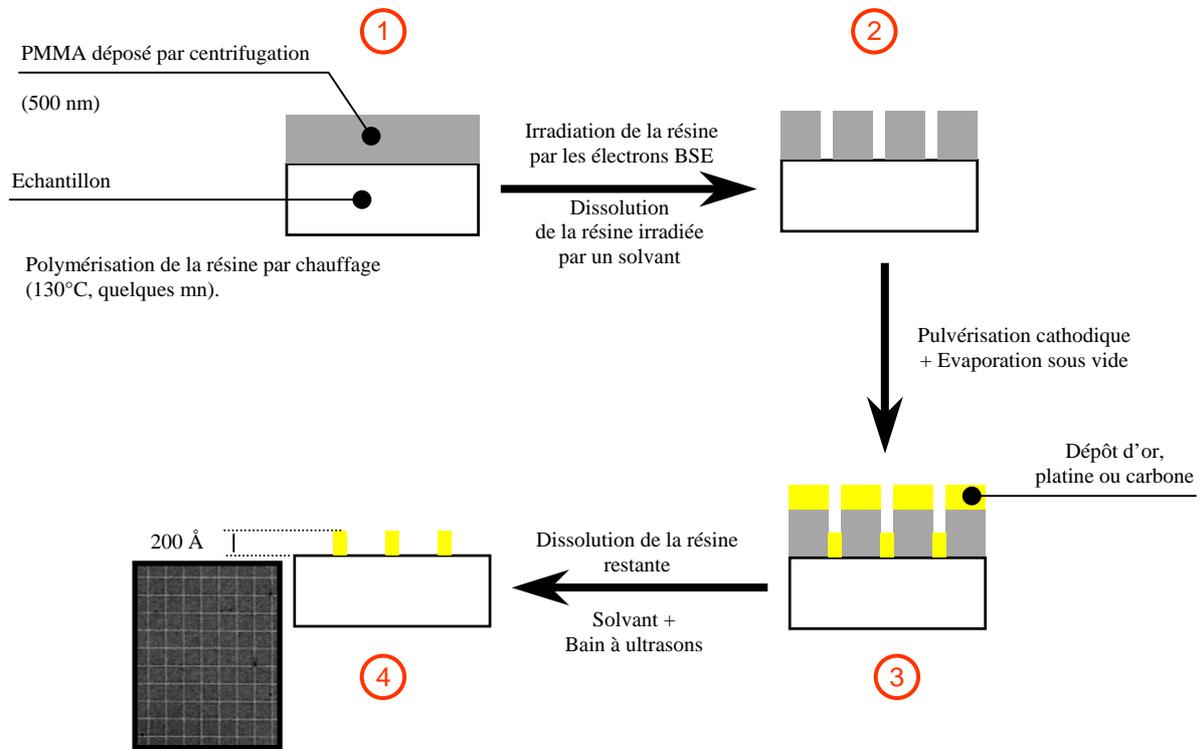


Figure 3 : Illustration du procédé de micro-électrolithographie d'après [Doumalin 2000].

## ANNEXE 4 : BREF APERÇU DE DIFFÉRENTES TECHNIQUES DE MESURE OPTIQUE

Au cours de cette thèse, la technique de micro-extensométrie par corrélation d'images numériques a été utilisée afin d'étudier les champs de déformation à différentes échelles de notre matériau. De nombreuses autres techniques de mesure optique existent. Nous en citons ici quelques unes.

En général, ces mesures présentent l'avantage d'être sans contact, de pouvoir être appliquées à l'échelle d'une structure, et ne pas perturber la réponse du matériau.

Le choix de la méthode dépend de la grandeur mécanique à mesurer (déplacement, déformation, contrainte), de la nature du matériau utilisé, de la taille de la zone à analyser, de la précision de la mesure exigée, des conditions expérimentales (température de l'essai, atmosphère ...).

### ◆ Extensométrie par revêtements

*Revêtements photoélastiques (technique de photo-élastimétrie ou photo-élasticité) :*

Cette technique est liée aux propriétés optiques de biréfringence de certains matériaux transparents (PMMA...) et est donc envisageable seulement si ces matériaux sont utilisés (par exemple sous forme de film photoélastique adhésif à coller sur la structure étudiée).

Elle permet de mesurer les champs locaux de déformation et de contraintes.

Elle est utilisable pour des échelles très variées : du cm à plusieurs dizaines de cm.

### *Revêtements à réseau de moiré*

Le phénomène de moiré est observé lorsque deux réseaux de pas voisins, formés de traits parallèles dont l'épaisseur est sensiblement égale à l'intervalle entre deux traits consécutifs sont superposés. Les déformations sont alors caractérisées par des « franges de moiré », qui apparaissent là où les traits de l'un des réseaux couvrent les intervalles de l'autre. Il est nécessaire de coller un revêtement.

### ◆ Interférométrie holographique et moirés de granulation

*Interférométrie holographique :*

Un hologramme de la surface S est un cliché de l'ensemble des réseaux d'interférence des différents points de la surface S. L'« holographie » est une photographie en relief.

La reconstitution par holographie d'une image virtuelle et tridimensionnelle d'une surface diffusante quelconque permet de réaliser la mesure interférométrique des déplacements et des déformations de cette surface.

Cette méthode globale permet l'analyse des déplacements et des déformations en chaque point de la surface observée (pas de préparation spéciale) et n'a aucune influence sur la surface. La condition de son application est la présence d'une source de lumière cohérente.

### *Moiré de granulation - Granularité ou speckle*

Cela consiste à utiliser l'aspect « granuleux » d'une surface éclairée par une onde cohérente. La densité et l'intensité des grains sont notamment liées aux déformations de la surface. La corrélation est utilisée pour comparer les « grains » avant et après déformation.

### ◆ Méthodes d'analyse d'images

*Méthodes de grilles*

Elles consistent en un suivi de repères entre deux configurations, l'une avant et l'autre après déformation (les positions des repères doivent être mesurées, les déplacements évalués par différence,

les déformations locales calculées par dérivation discrète). Les pixels des repères sont déterminés par seuillage.

Les inconvénients de cette méthode concernent le manque de fiabilité pour une utilisation automatique et une imprécision importante. Elle est aussi plus délicate à utiliser si le matériau est biphase (un double seuillage est nécessaire).

#### *Méthodes de corrélation*

Elles sont plus récentes que les techniques de grille. Un contraste (mouchetis, grilles, interférométrie laser ou lumière blanche) doit nécessairement être présent à la surface du matériau. Les points homologues sont appariés par maximisation d'une corrélation calculée sur un voisinage autour de ces points. Puis, la démarche à appliquer est identique à celle de la technique de grille.

#### *Méthode de flux optique*

Le flux optique est le champ de vitesse produit par le mouvement des objets présentant un contraste, observé à partir d'une séquence d'images. Il est nécessaire de formuler l'hypothèse de conservation de l'intensité lumineuse au cours du mouvement (le mouvement est la propagation de l'intensité lumineuse).

Cette méthode permet une évaluation rapide du déplacement en chaque pixel de l'image.

*Bien que le choix soit vaste, la technique de corrélation apparaît comme la plus adaptée à notre besoin. On souhaite utiliser une technique d'investigation qualitative et quantitative à l'échelle des hydrures, permettant (dans le cas des images MEB) l'observation de la surface au cours de l'essai. On souhaite aussi adapter cette technique à une échelle plus globale, qui correspond à une zone de quelques dizaines millimètres carrés. Le type de contraste et l'outil de formation des images numériques doivent être adaptés à l'échelle d'investigation.*

## ANNEXE 5 : OPERATIONS MORPHOLOGIQUES DE TRAITEMENT D'IMAGES

L'analyse d'images est employée soit pour la reconnaissance de formes, soit pour la description quantitative d'une image. C'est cette deuxième application qui nous a intéressés pour nos travaux.

L'analyse d'images est la troisième et dernière étape d'un processus qui consiste à :

- obtenir et acquérir une image ;
- traiter l'image : transformer l'image numérique en une nouvelle image pour faire ressortir une information précise par exemple ;
- analyser l'image : extraire de façon quantitative l'information contenue dans l'image.

Ensuite, on interprète ces résultats et on peut exploiter les données issues de l'analyse.

### ① L'acquisition d'images

On peut par exemple acquérir et numériser des images prises au MEB, ou bien numériser des images de microscopie optique au moyen de caméras numériques.

Lors de cette étape, on contrôle la qualité de l'image enregistrée d'après l'histogramme des niveaux de gris : celui-ci ne doit pas présenter de pic de saturation mais au contraire être bien étalé sur tous les niveaux de gris : cela signifie que (presque) tous les niveaux de gris sont présents sur l'image et que les pixels sont correctement « discernables ». On fait varier la forme de l'histogramme en changeant les valeurs de la brillance ou du contraste. La brillance (ou luminosité) représente le niveau moyen d'éclairage de l'image. Elle correspond à une translation de l'histogramme au niveau de l'axe des abscisses. Le contraste est lié à la différence entre le niveau de gris le plus élevé et le plus faible. Il correspond à une dilatation ou un rétrécissement de l'histogramme des niveaux de gris suivant l'axe des abscisses.

### ② La transformation d'images

#### LE SEUILLAGE

Le seuillage est une transformation point par point qui permet de passer d'une image numérique (en niveaux de gris) à une image binaire (en noir et blanc). Ainsi, ne sont retenus soit les points qui ont un niveau de gris supérieur ou inférieur à un certain seuil (points les plus clairs ou les plus sombres), soit ceux qui sont compris entre deux valeurs de gris (phase grise).

#### LES FILTRES LINEAIRES PAR CONVOLUTION

Une image est constituée de points affectés chacun d'un niveau de gris (valeur comprise entre 0 – noir – et 255 – blanc –). Chaque point a donc des voisins.

Une transformation **locale** consiste à construire une image dont la valeur d'un point est définie en fonction de sa valeur et de celle de ses voisins.

Une transformation **linéaire** consiste à créer une image, résultat du produit de convolution de l'image initiale par un filtre linéaire.

Il existe plusieurs sortes de filtres.

Les filtres passe-bas : Le plus simple, le filtre uniforme, consiste à remplacer la valeur de chaque point par la valeur moyenne effectuée avec ses voisins. Il élimine les petites fluctuations de l'image et réduit le bruit.

Les filtres passe-haut : Eux, en revanche, font ressortir les contours.

#### LES FILTRES DE MORPHOLOGIE MATHÉMATIQUE

Ils permettent de réaliser aussi des transformations locales, mais non-linéaires, d'origine ensembliste. Ces transformations font intervenir un **élément structurant**, défini par sa taille, sa forme, sa direction et son point d'origine.

On réalise par exemple l'**érosion** d'une image (binaire ou en niveaux de gris) par un élément structurant. Sur une image binaire, l'érodé d'un objet X est l'ensemble des points tels que l'élément structurant centré en ces points soit inclus dans X.

L'opération associée est la **dilatation**. Le dilaté d'une image binaire est l'ensemble des points tels que l'intersection entre l'élément structurant centré en ces points et l'image initiale soit non-nulle.

Une **ouverture** est définie par une érosion suivie d'une dilatation par le transposé de l'élément structurant initial. Sur une image binaire, elle fait disparaître les éléments de largeur inférieure à celle de l'élément structurant et nettoie l'image des points parasites.

Une **fermeture** est définie par une dilatation suivie d'une érosion par l'élément structurant initial transposé. Sur une image binaire, elle permet de combler les trous.

La **squelettisation** est une transformation consistant à obtenir l'axe médian des objets : le squelette est l'ensemble des points d'un objet qui se situent à égale distance des deux bords.

D'autres applications sont possibles : les transformations géodésiques, le chapeau haut de forme, la ligne de partage des eaux.

#### ③ L'analyse d'images

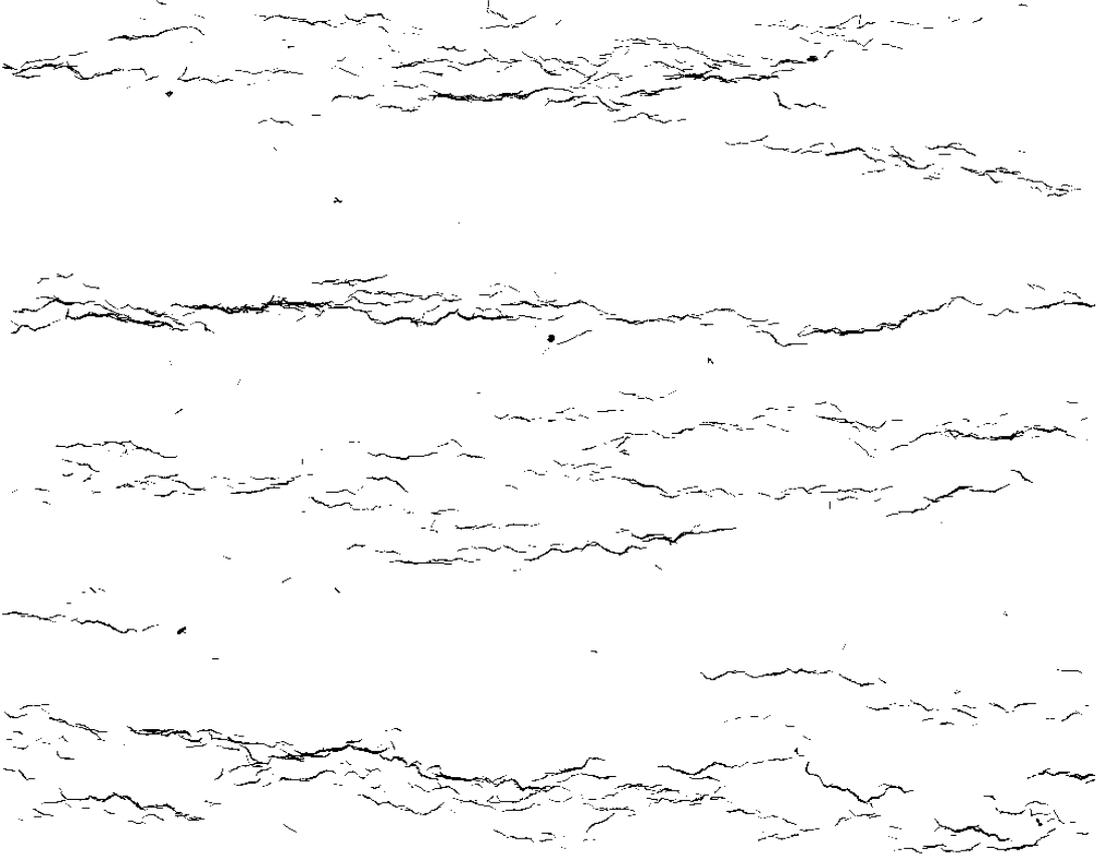
L'analyse d'images permet une acquisition de données qui feront ultérieurement l'objet de traitement. Ces données sont principalement des mesures. Elles peuvent correspondre à :

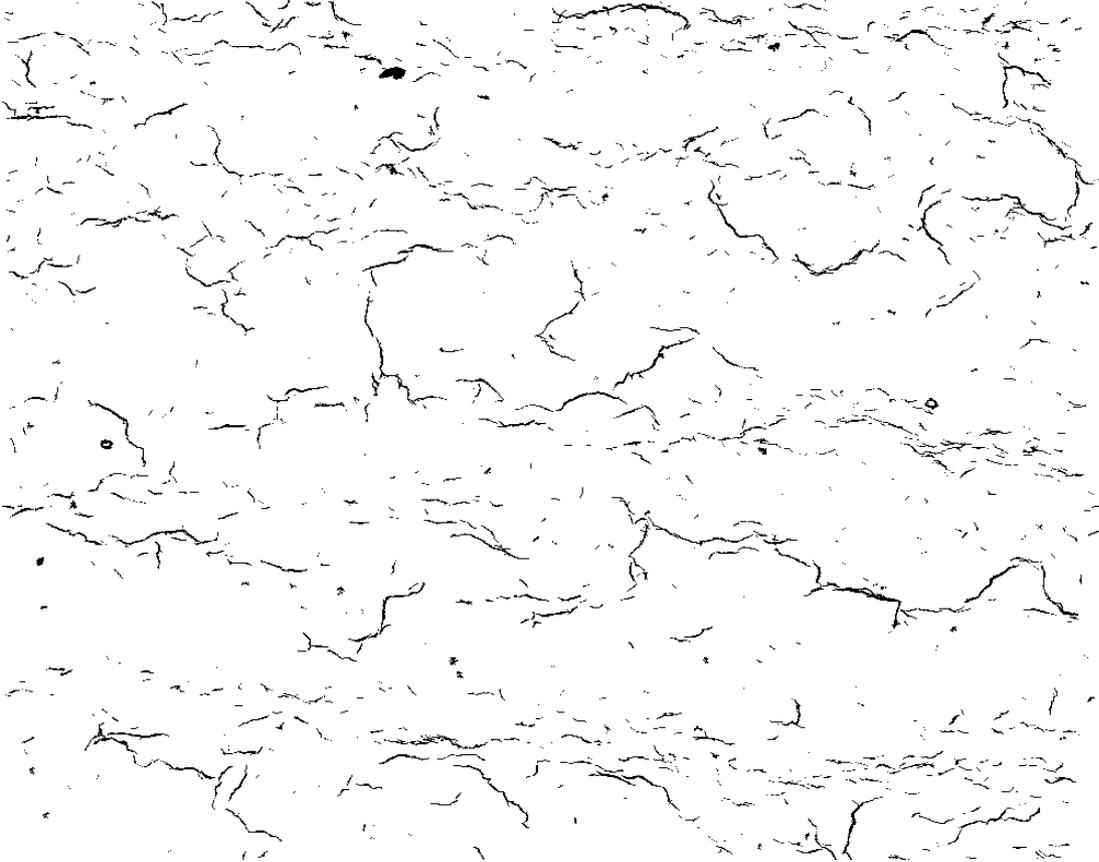
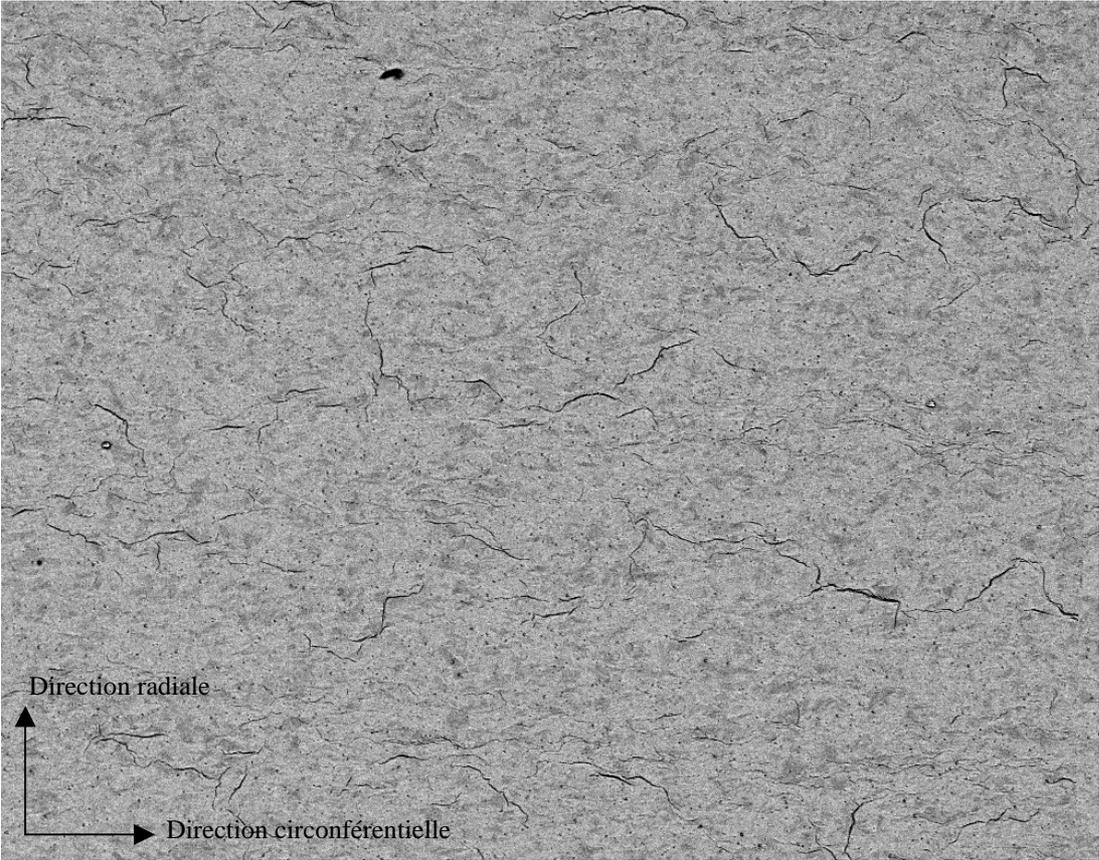
- du dénombrement ;
- des paramètres de taille ;
- des paramètres de forme ;
- des paramètres d'intensité (niveaux de gris) ;
- des paramètres de texture (étude de la distribution des différents niveaux de gris à l'intérieur d'une structure) ;
- des paramètres de répartition spatiale (rapports de contiguïté ou d'éloignement déduits des paramètres de position, covariogrammes établis à partir de transformations d'image par des éléments structurants (doublets de points), orientations préférentielles mises en évidence à partir des coordonnées des points ou des mesures de longueur –rose de direction-).

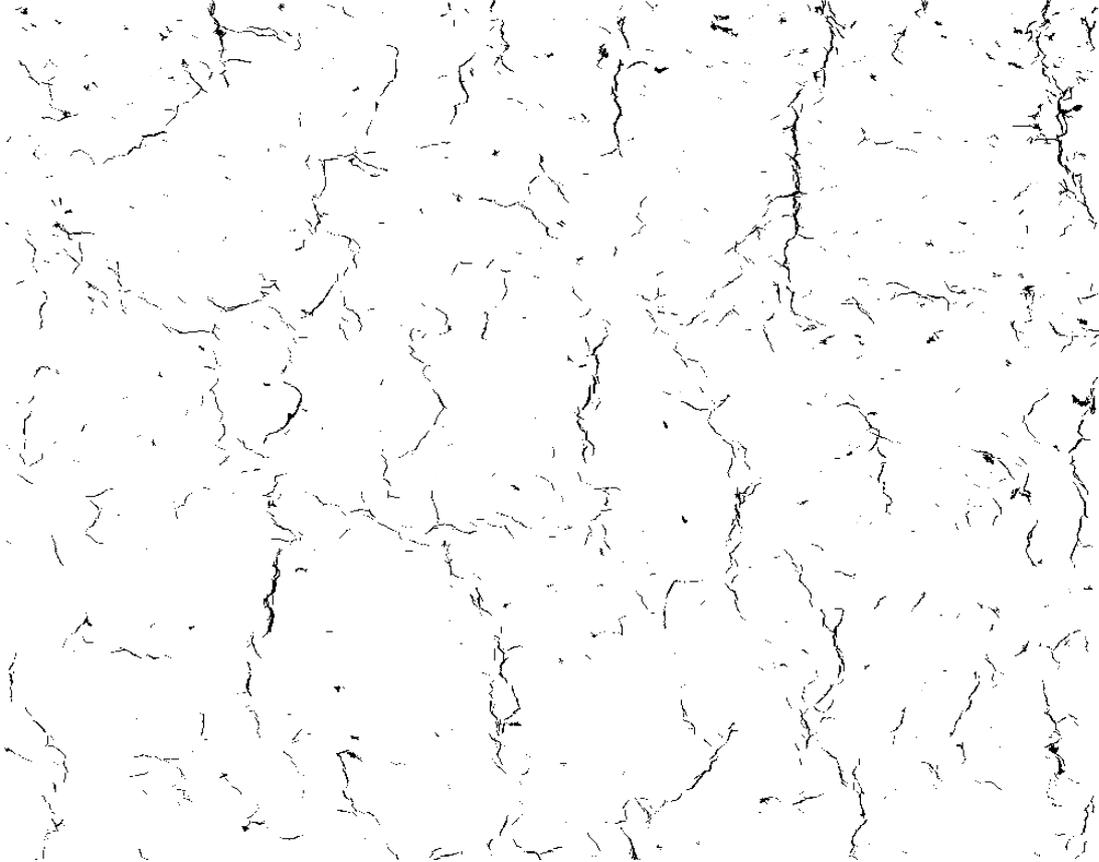
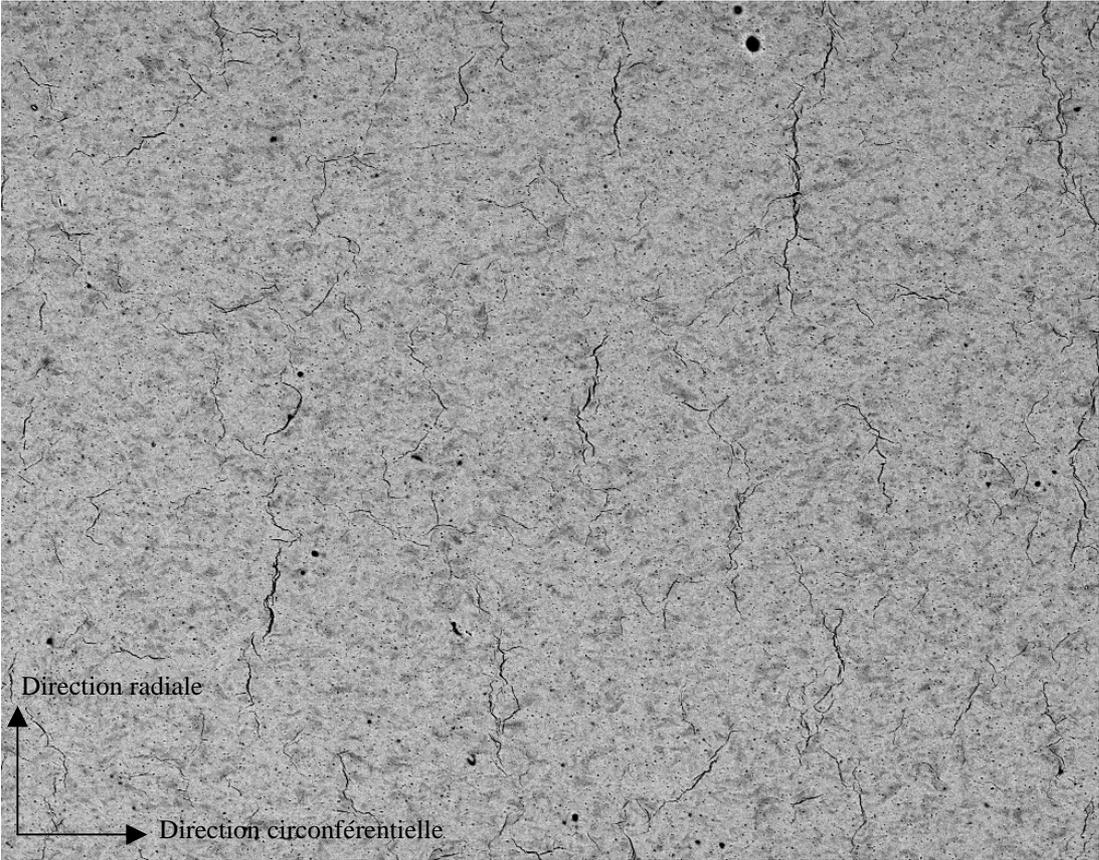
## ANNEXE 6 : IMAGES CARACTERISANT CHAQUE CONFIGURATION AVANT ET APRES LE TRAITEMENT D'IMAGE PAR LE PROGRAMME D'EXTRACTION DES HYDRURES

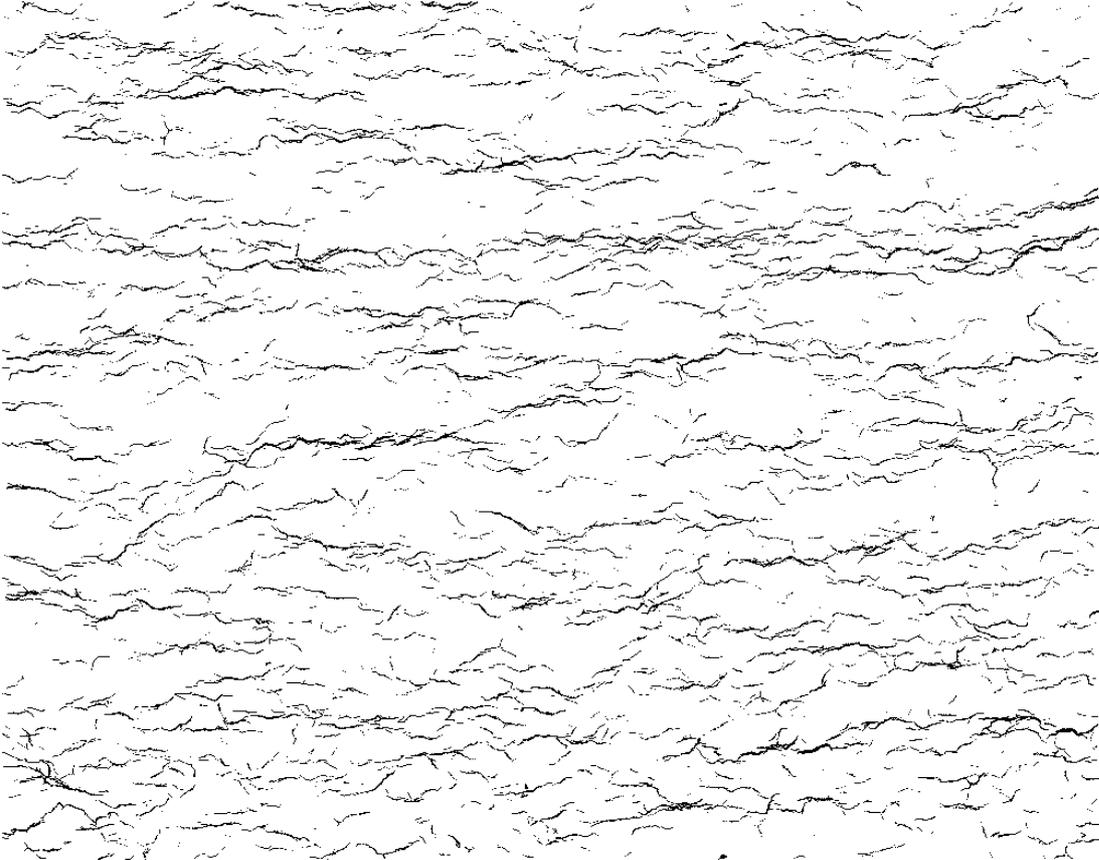
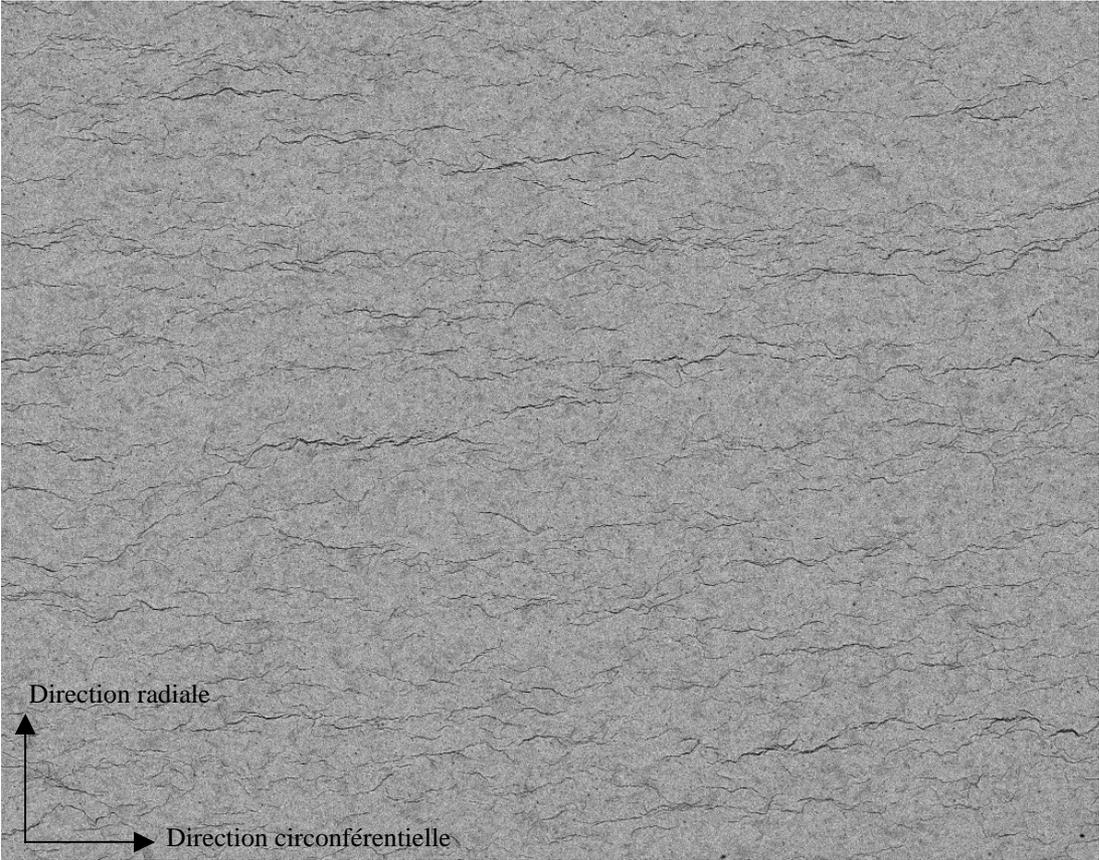
Dans la série d'images présentées ici,

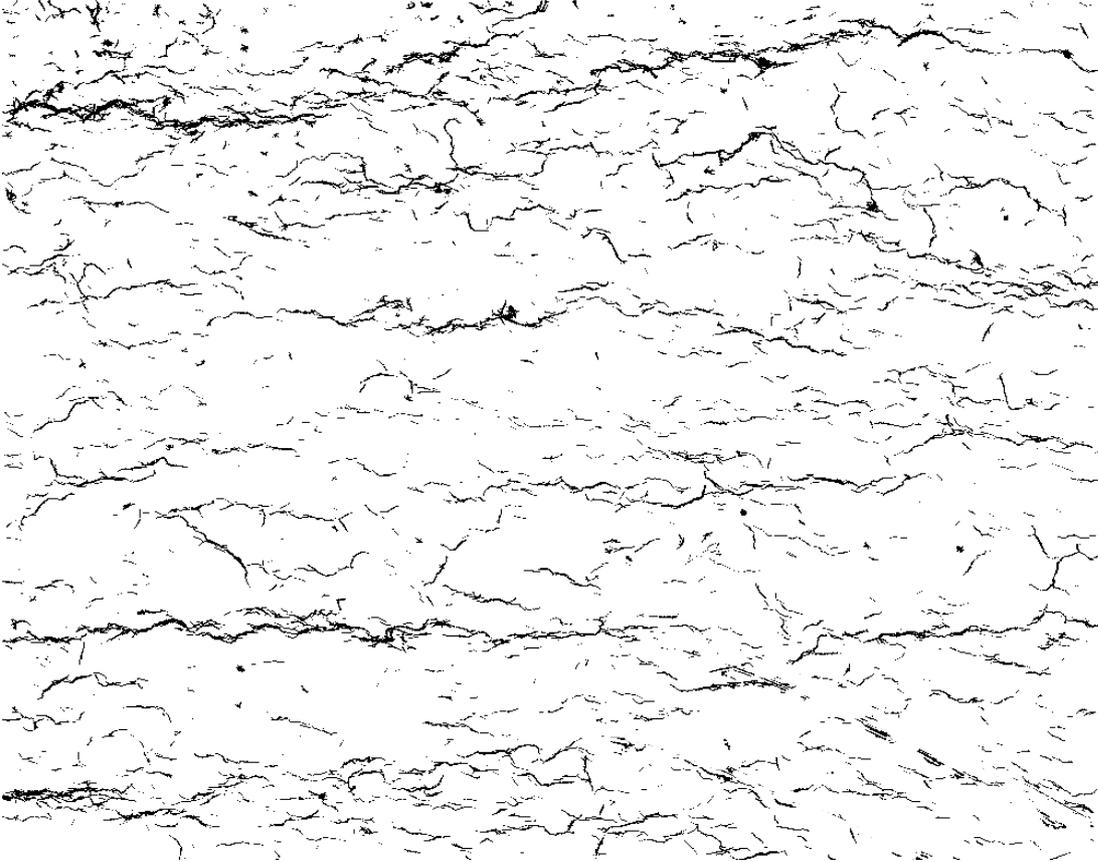
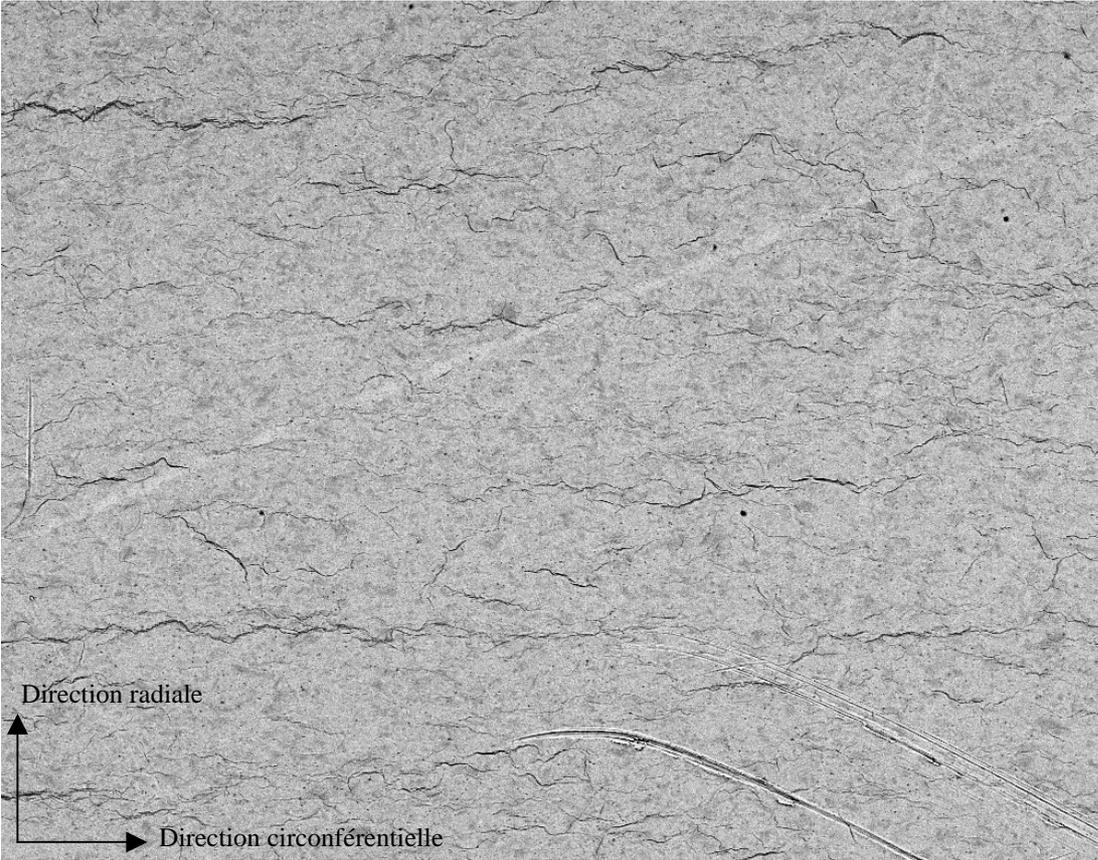
- la première est une image MEB de 4062 x 3096 pixels, acquise en électrons rétro-diffusés, correspondant au pôle nord ou sud d'un anneau poli et non-attaqué ; cette image couvre une zone de 400 x 300  $\mu\text{m}$  environ ;
- la seconde est issue du traitement d'extraction des hydrures (appelée « méthode 2 » d'analyse d'image). Ces images ont ensuite subi une opération de dilatation, d'érosion et de squelettisation avant d'être analysées. On ne présente pas ici l'image finale, car comme la squelettisation réduit l'épaisseur des particules à 1 pixel, les hydrures ne seraient pas visibles sur de si petites images.

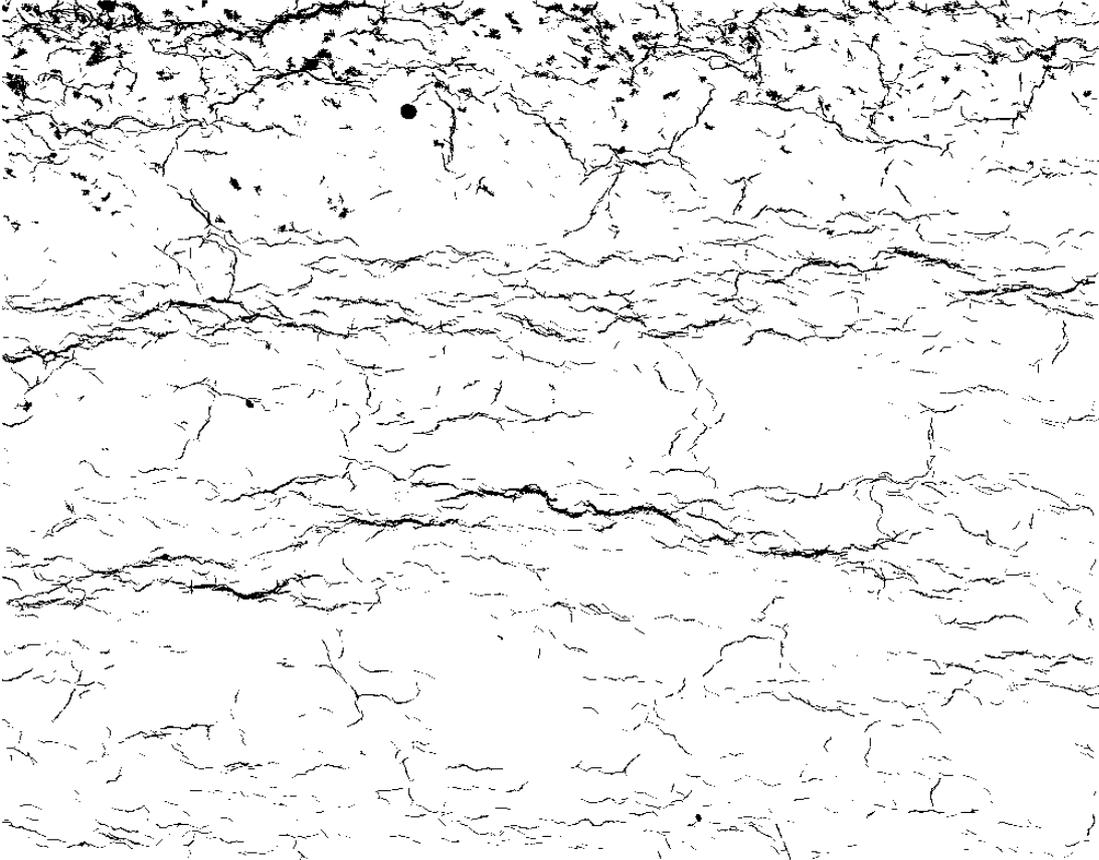
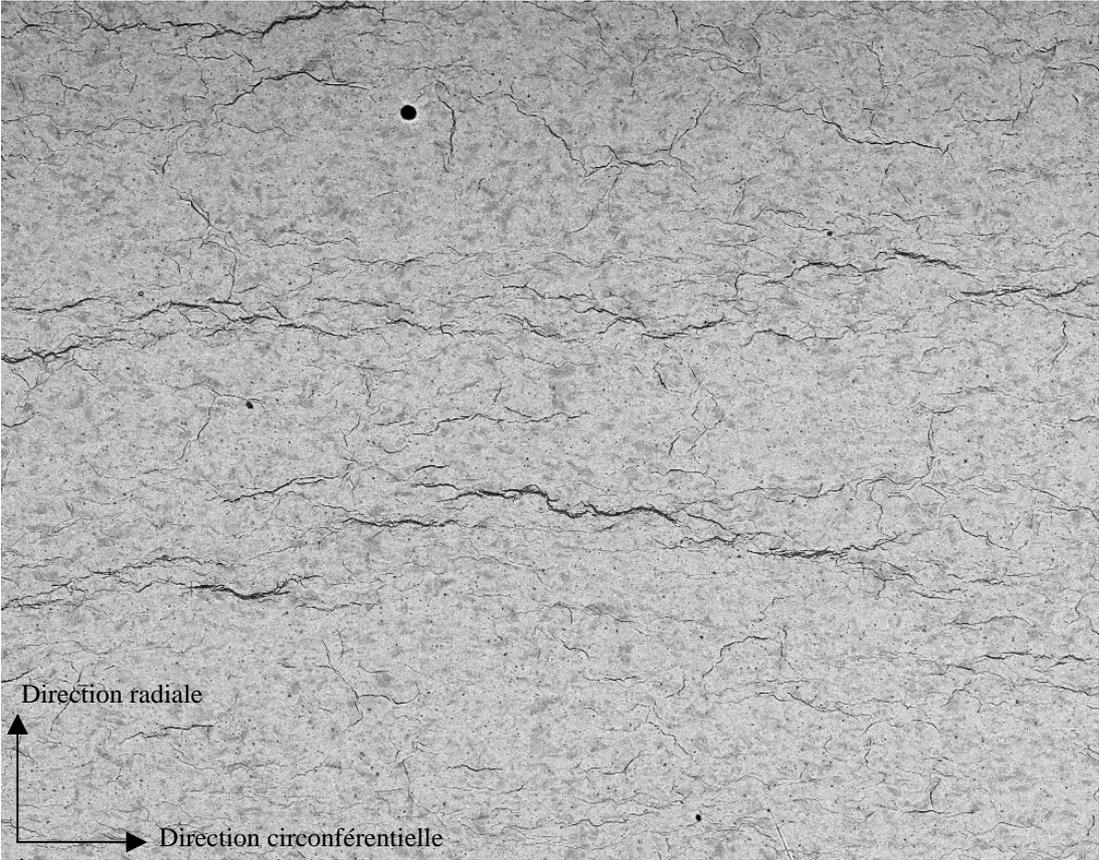












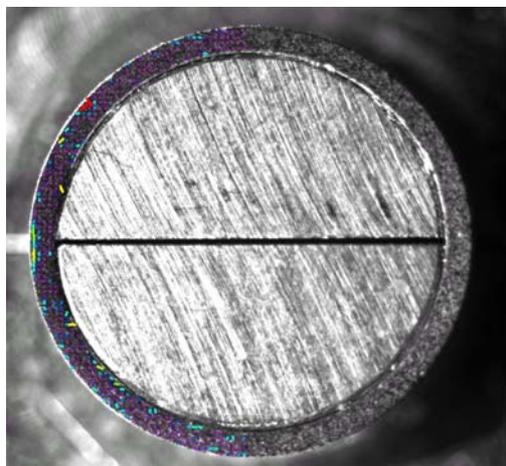
## ANNEXE 7 : CARTES DE DEFORMATION ISSUES DES ESSAIS MACROSCOPIQUES : FACE PLANE

On présente ici les cartes de déformation des faces planes pour les essais réalisés sur le matériau non-hydruré, le 200M (seul matériau hydruré à 200 ppm et pour lequel des images de la face plane ont été acquises), le 500C. En ce qui concerne le NH et le 200M, le montage et donc l'échantillon se sont déplacés latéralement au cours de l'essai, ce qui explique pourquoi l'anneau NH n'est plus entièrement visible dans l'image pour les derniers états de déformation. De plus, pour le NH, le matériau devient si endommagé dans les parties où débouchent les bandes de déformation macroscopique, que le contraste est très modifié par rapport à l'état initial. La corrélation n'a pas pu être réalisée pour les dernières images (la dernière carte correspond au temps 2170 s alors que l'image de la rupture correspond au temps 2244 s et à un allongement de 20,5%).

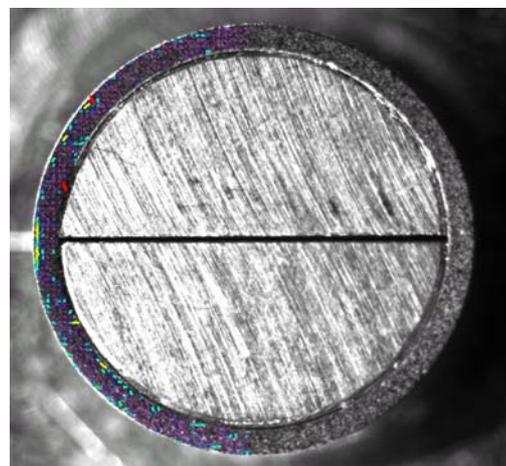
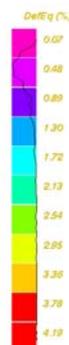
Pour le NH, on a choisi les cartes de déformation correspondant à celles présentées dans le Chapitre 4, Figure 5. Pour les autres matériaux, les cartes de déformation ont été choisies à des niveaux de contrainte comparables.

### NH, éprouvette A4

La déformation atteint des valeurs significatives (autour de 4% en terme de déformation équivalente de von Mises) dans la zone utile de l'éprouvette à partir d'un allongement de 3 % (5<sup>ème</sup> carte), ce qui est cohérent avec la carte 5 de la Figure 5 du Chapitre 4, où il est visible que la déformation commence à se localiser. Ces cartes nous permettent de visualiser l'état de déformation pour la contrainte conventionnelle maximale. Ensuite, la déformation se localise de plus en plus intensément, jusqu'à atteindre des valeurs locales très importantes (50-70%).

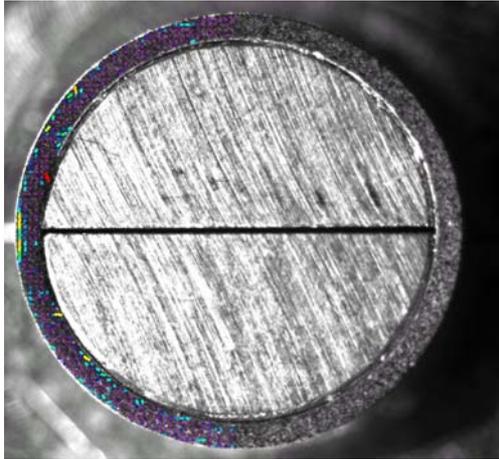


$\Delta l/l_0 = 0,29 \%$

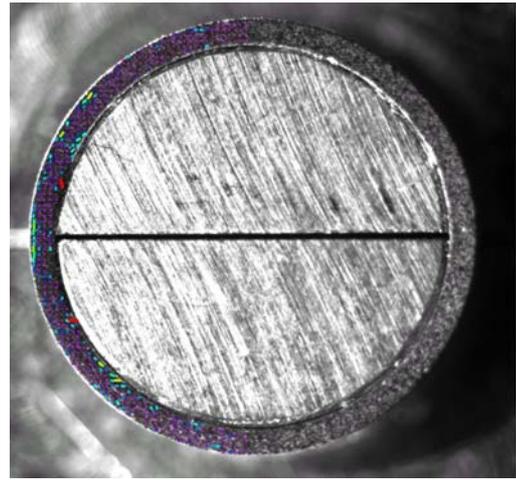


$\Delta l/l_0 = 0,36 \%$

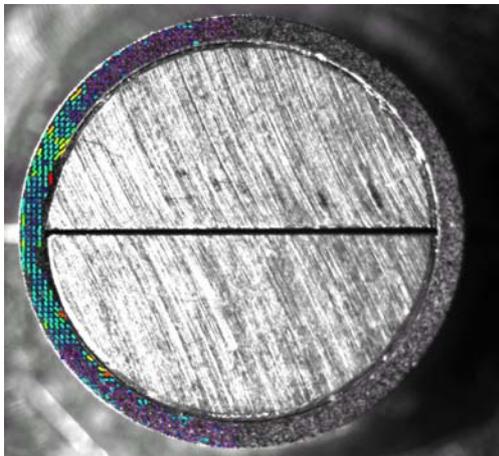




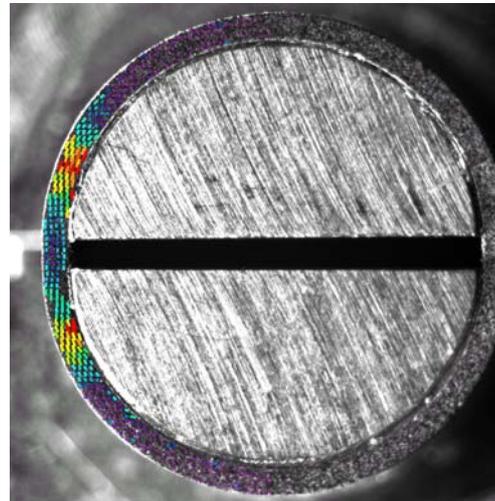
$\Delta l/l_0 = 0,72 \%$



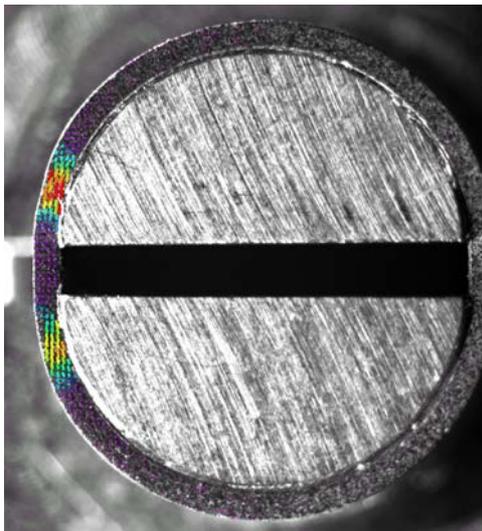
$\Delta l/l_0 = 1,66 \%$



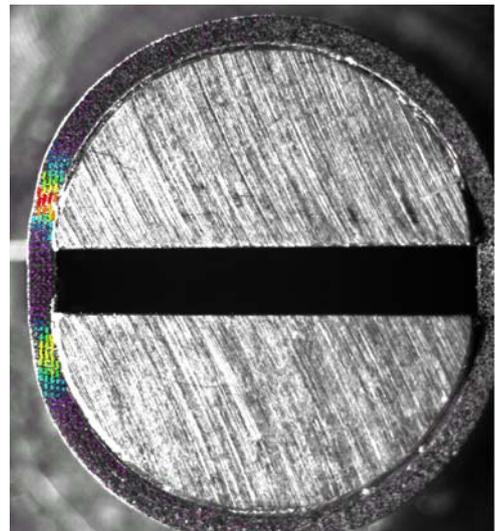
$\Delta l/l_0 = 3,04 \%$



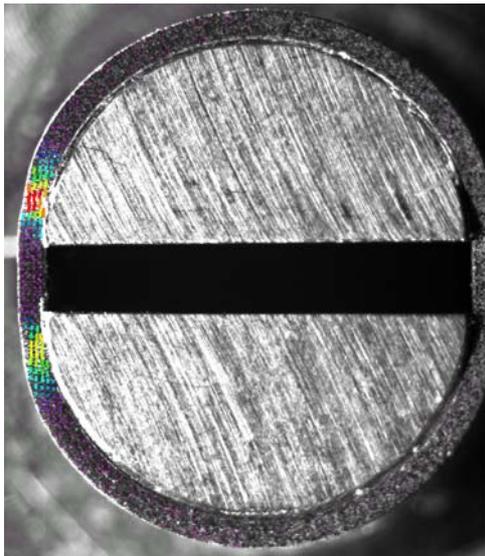
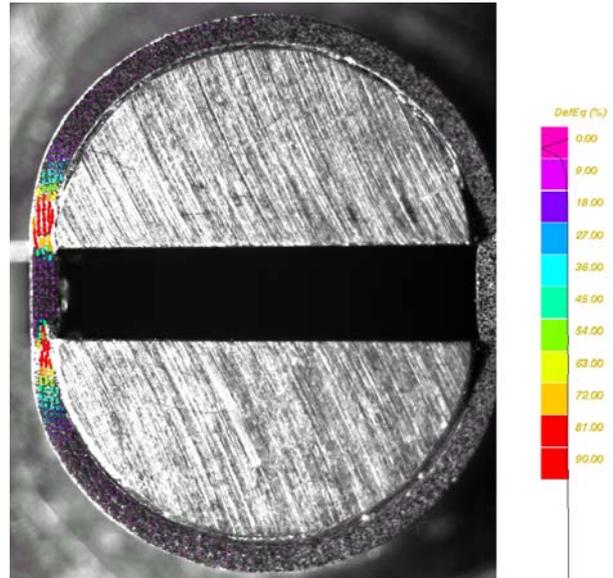
$\Delta l/l_0 = 5,57 \%$



$\Delta l/l_0 = 10,50 \%$

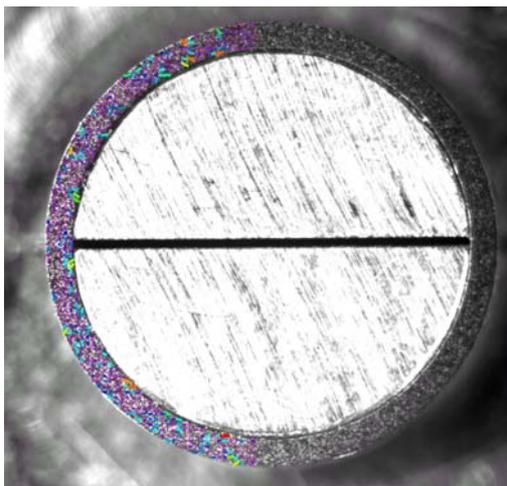
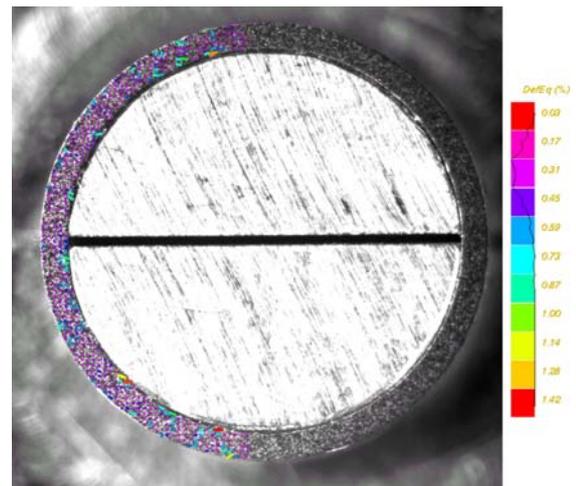


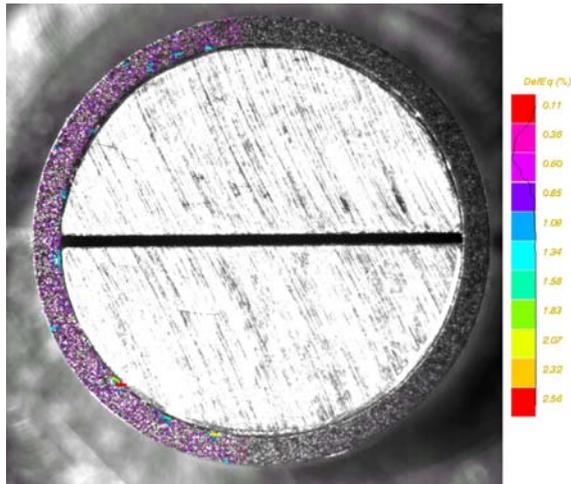
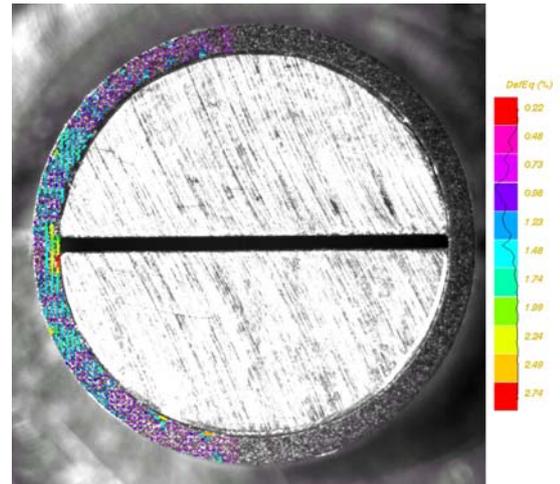
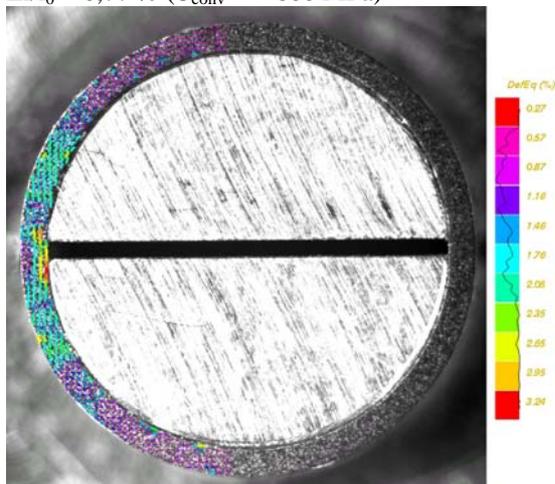
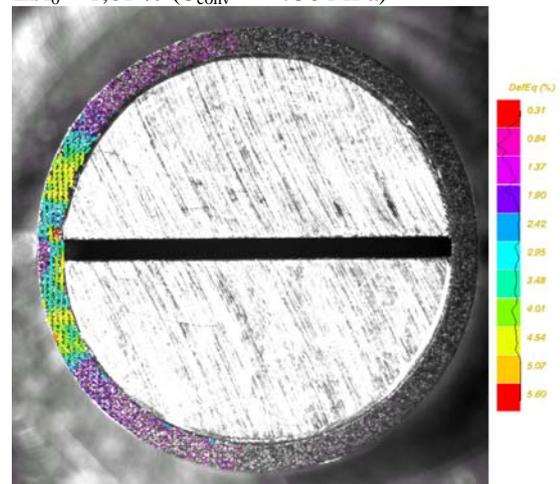
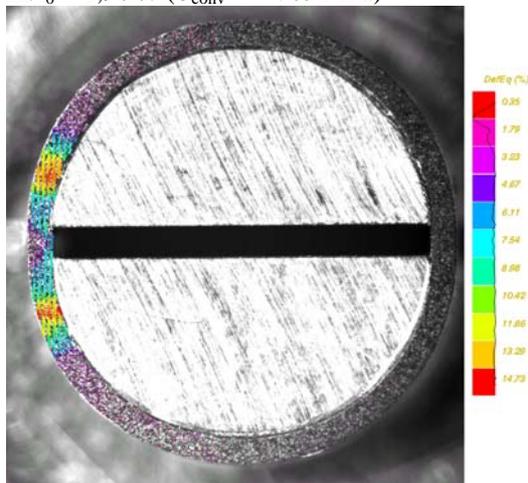
$\Delta l/l_0 = 13,61 \%$


 $\Delta l/l_0 = 13,83 \%$ 

 $\Delta l/l_0 = 19,33 \%$ 

### 200M, éprouvette C4

Sur ces cartes, on constate une localisation de la déformation un peu plus précoce (allongement compris entre 1,6 et 2%) et surtout on remarque qu'au niveau de l'équateur, la déformation est plus élevée vers la face interne de l'anneau. Pour des valeurs d'allongement comparables (environ 6%), les valeurs de déformation équivalente du matériau non-hydruré et du matériau 200M sont du même ordre de grandeur (entre 11 et 14%) et sont atteintes dans les mêmes zones. Les similitudes entre ces cartes confirment que les modes de déformation à l'échelle globale ne sont pas affectés par l'hydruration, pour cette teneur.

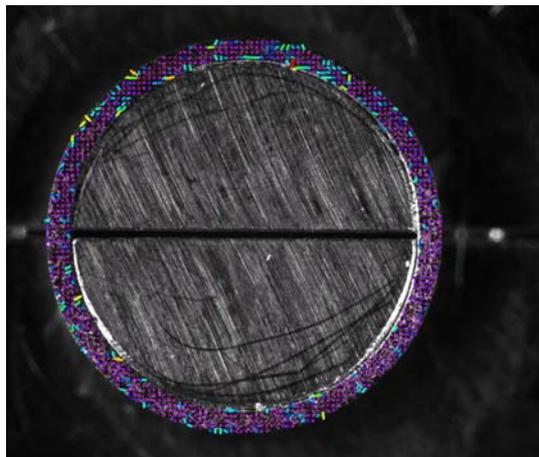

 $\Delta l/l_0 = 0,28 \%$  ( $\sigma_{\text{conv}} \approx 300 \text{ MPa}$ )

 $\Delta l/l_0 = 0,42 \%$  ( $\sigma_{\text{conv}} \approx 400 \text{ MPa}$ )


 $\Delta l/l_0 = 0,77 \%$  ( $\sigma_{\text{conv}} \approx 600 \text{ MPa}$ )

 $\Delta l/l_0 = 1,61 \%$  ( $\sigma_{\text{conv}} \approx 750 \text{ MPa}$ )

 $\Delta l/l_0 = 1,96 \%$  ( $\sigma_{\text{conv}} \approx 765 \text{ MPa}$ )

 $\Delta l/l_0 = 3,23 \%$  ( $\sigma_{\text{conv}} \approx 779 \text{ MPa}$ )

 $\Delta l/l_0 = 6,04 \%$  ( $\sigma_{\text{conv}} \approx 716 \text{ MPa}$ )

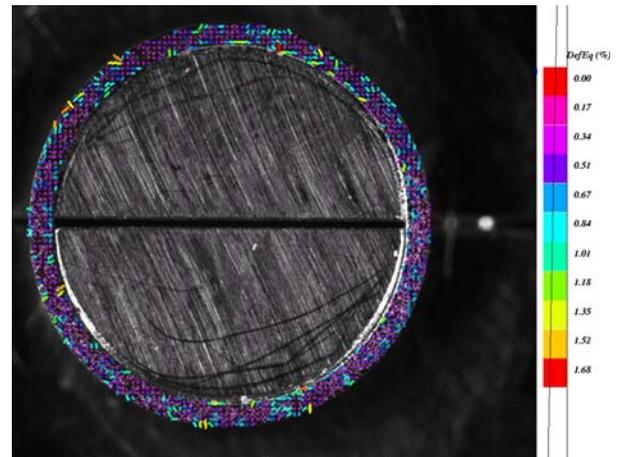
### 500C, éprouvette A23

Les cartes de déformation de cette éprouvette 500C sont tout à fait comparables à celles présentées ci-dessus pour le 200M. Les informations fournies sont complémentaires de celles obtenues à la lecture des cartes de la face bombée de la même éprouvette. On remarque que les champs de déformation sont

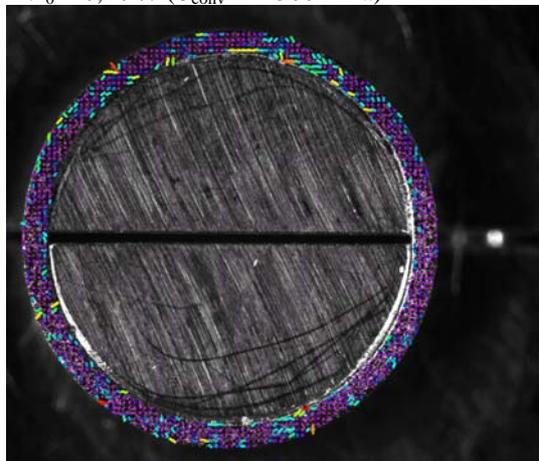
relativement bien symétriques lorsque la déformation est localisée (deux dernières cartes présentées ci-après).



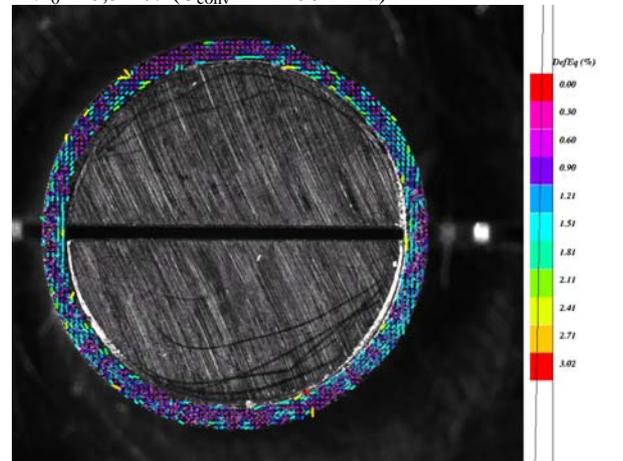
$\Delta l/l_0 = 0,46 \%$  ( $\sigma_{\text{conv}} \approx 300 \text{ MPa}$ )



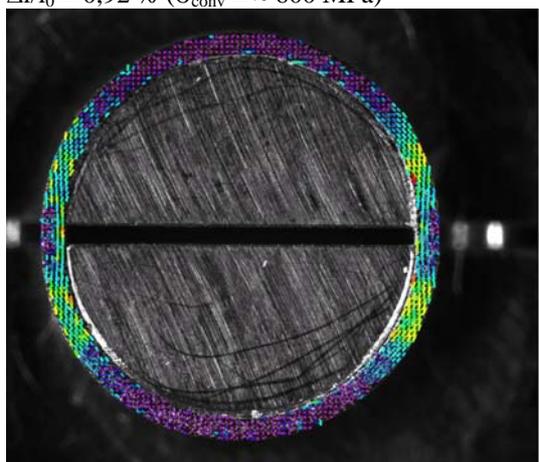
$\Delta l/l_0 = 0,54 \%$  ( $\sigma_{\text{conv}} \approx 400 \text{ MPa}$ )



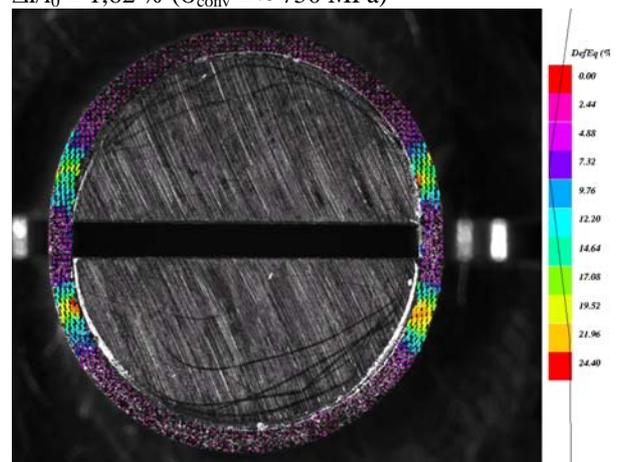
$\Delta l/l_0 = 0,92 \%$  ( $\sigma_{\text{conv}} \approx 600 \text{ MPa}$ )



$\Delta l/l_0 = 1,62 \%$  ( $\sigma_{\text{conv}} \approx 750 \text{ MPa}$ )



$\Delta l/l_0 = 3,08 \%$  ( $\sigma_{\text{conv}} \approx 787 \text{ MPa}$ )



$\Delta l/l_0 = 7,25 \%$  ( $\sigma_{\text{conv}} \approx 705 \text{ MPa}$ )

## ANNEXE 8 : MATERIAU TOLE, CARACTERISATION MICROSTRUCTURALE ET MECANIQUE

Il était initialement prévu de réaliser des essais sur des éprouvettes plates issues de plaques de Zircaloy-4 détendu pour s'affranchir des difficultés intrinsèques à la géométrie anneau. Pour se placer cependant dans une situation la plus comparable possible à celles des essais in-situ sous MEB sur anneaux lisses, et pour pouvoir observer les hydrures quelle que soit leur orientation (l'orientation « circonférentielle » correspondant à des hydrures dans le plan DL-DT, l'orientation radiale à des hydrures contenus dans le plan DL-DTC), nous envisagions de prélever les éprouvettes dans le plan DT-DTC de la tôle (Figure 4, configuration A) et d'observer la face plane appartenant à ce plan.

Une seule géométrie d'éprouvette avait été définie pour les essais macroscopiques et in-situ. La longueur de ces éprouvettes est de 54 mm, leur longueur utile de 20 mm, leur largeur utile de 3 mm et leur épaisseur de 1,5 mm.

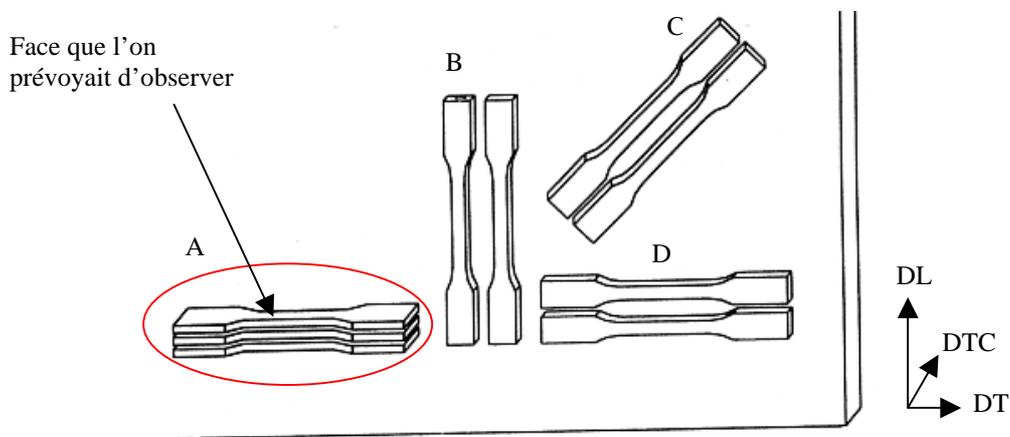


Figure 4 : Représentation schématique du prélèvement des éprouvettes plates dans les tôles. Les éprouvettes de type A auraient été utilisées pour une comparaison directe avec les essais sur anneaux.

## CARACTERISATION MICROSTRUCTURALE DU MATERIAU « PLAQUE » NON-HYDRURE : TEXTURE

Des plaques de Zircaloy-4 détendu de 300 x 210 x 6 mm ont été fabriquées par Cézus. Elles ont subi différentes passes de laminage, la dernière étant un laminage à froid afin d'éviter la recristallisation du matériau. Le schéma complet de laminage ne nous a pas été communiqué. Le traitement thermique final a été réalisé sous argon pendant 1h30 à 450-470°C.

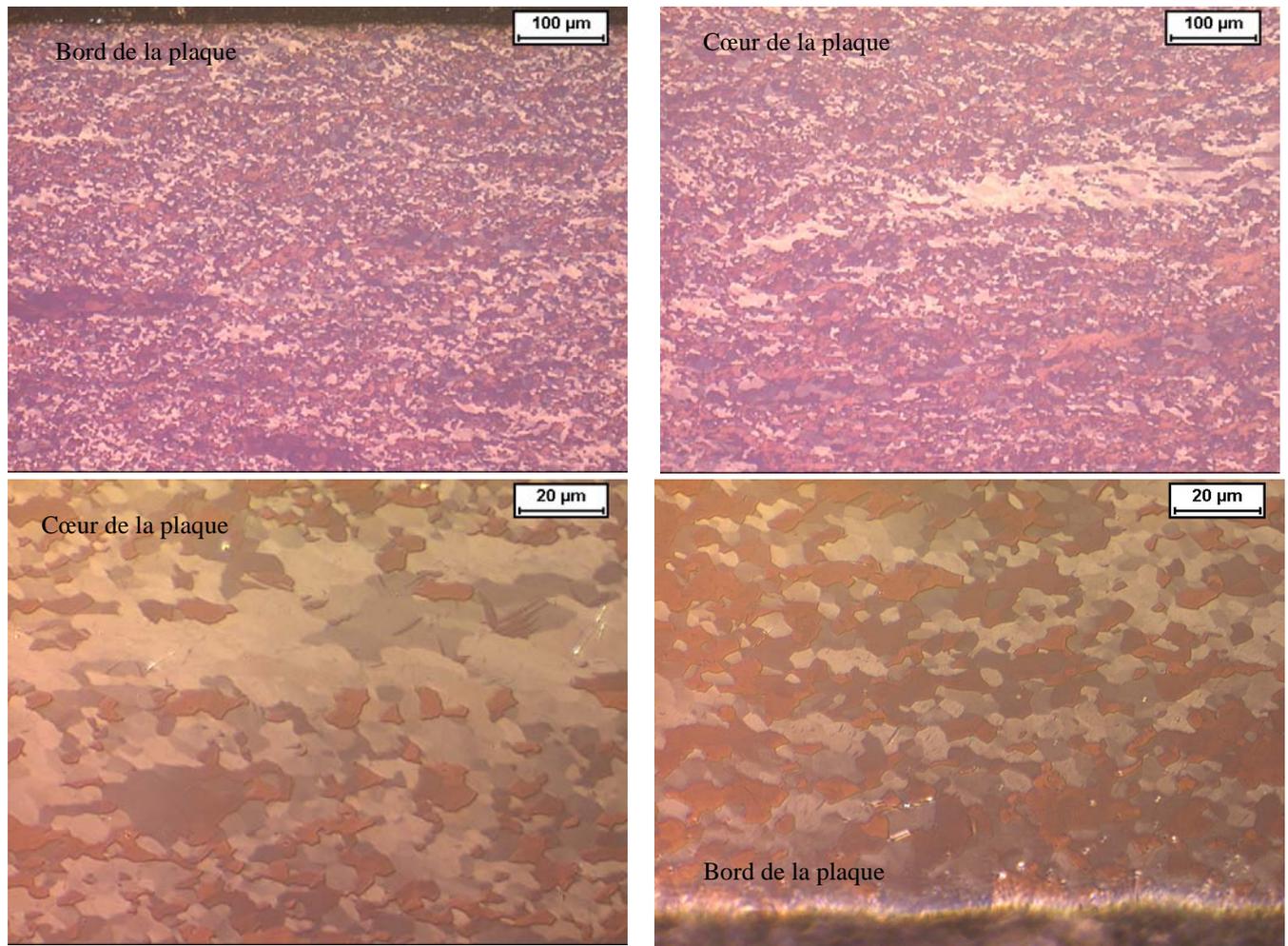
Dans le tableau suivant, est résumée la composition chimique pour la matière de géométrie tube et pour celle de géométrie plaque. Dans les deux cas, les compositions sont très voisines.

Elément (% massique)	Zr	Cr	Fe	Fe+Cr	Sn	O (ppm)
Tubes	Complément	0,10	0,21	0,31	1,25	1090
Plaques	Complément	0,11	0,21	0,33	1,43	1036

La microstructure résultante comporte à la fois des grains allongés et des grains équiaxes. La majorité des grains sont petits (moins de 20  $\mu\text{m}$  x 5  $\mu\text{m}$  pour les allongés, environ 5  $\mu\text{m}$  de diamètre pour les

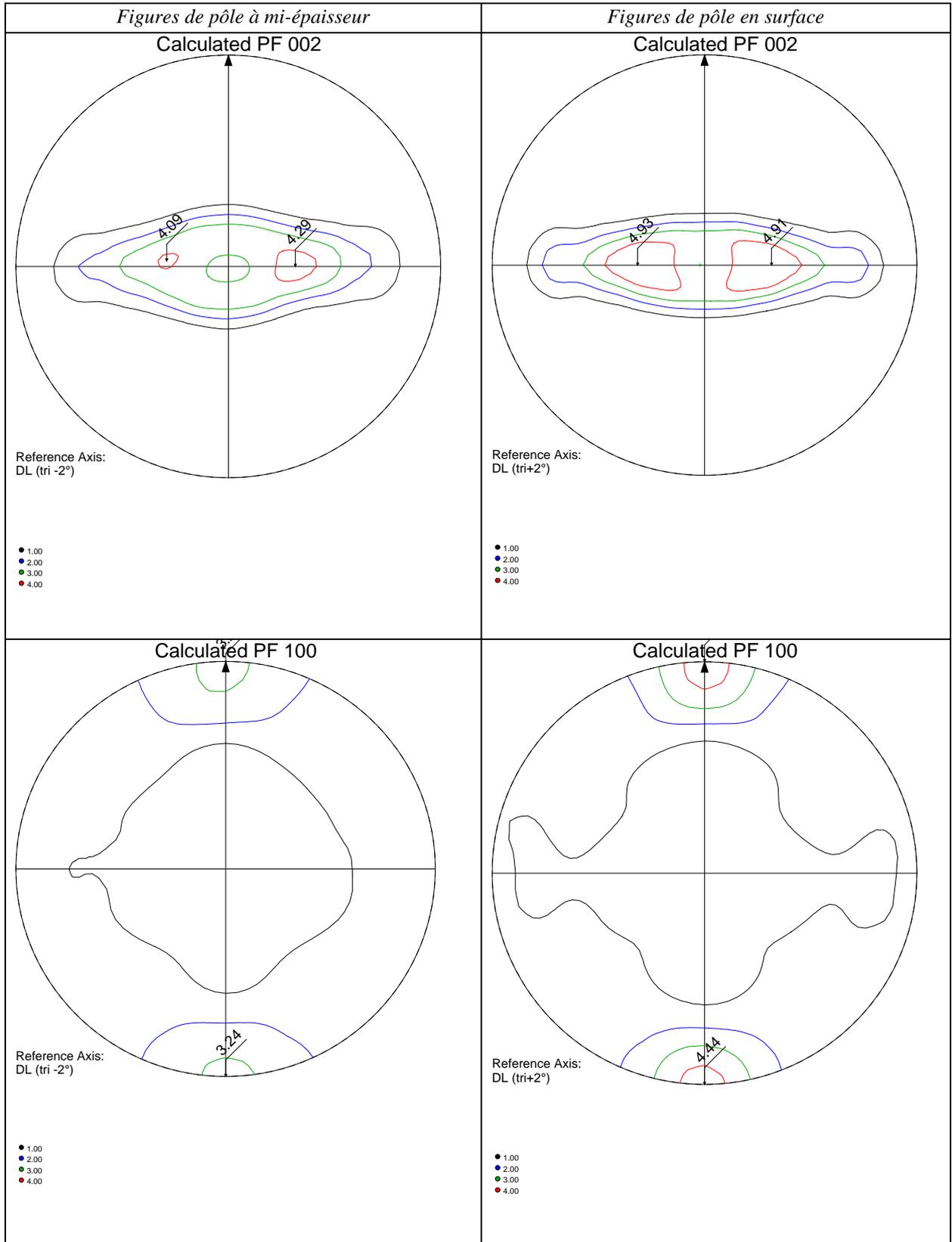
équiaxes), mais il existe des zones allongées dans la direction travers comportant de très gros grains allongés (environ 50  $\mu\text{m}$  de long).

La microstructure est donc celle d'une tôle imparfaitement détendue : la présence de grains approximativement équiaxes témoigne d'un début de recristallisation.



*Figure 5 : Microstructure d'une plaque de Zircaloy-4 détendue, non-hydrurée, dans le plan travers-travers court. Observation au microscope optique en lumière polarisée après un polissage mécanique et mécano-chimique.*

La texture cristalline de la plaque a été analysée au CEA/SRMA dans les mêmes conditions que la matière issue des tubes de gainage, en surface et à mi-épaisseur. Une couche superficielle de 0,1 mm a été retirée par polissage mécanique et décapage chimique avant l'analyse par diffraction des rayons X. La texture est celle d'une tôle laminée standard : les axes  $\langle c \rangle$  se situent principalement vers  $35^\circ$  de la normale au plan de laminage dans le plan travers – travers court. Les directions [10.0] et [11.0] sont orientées majoritairement suivant la direction de laminage, révélant une texture de détente dominante, mais imparfaite ; les coupes de l'espace d'Euler attestent d'une orientation majoritaire des directions [10.0] suivant la direction de laminage, donc d'une texture de matériau détendu. La texture est légèrement plus marquée en surface qu'au cœur de la tôle laminée, comme on pouvait s'y attendre.



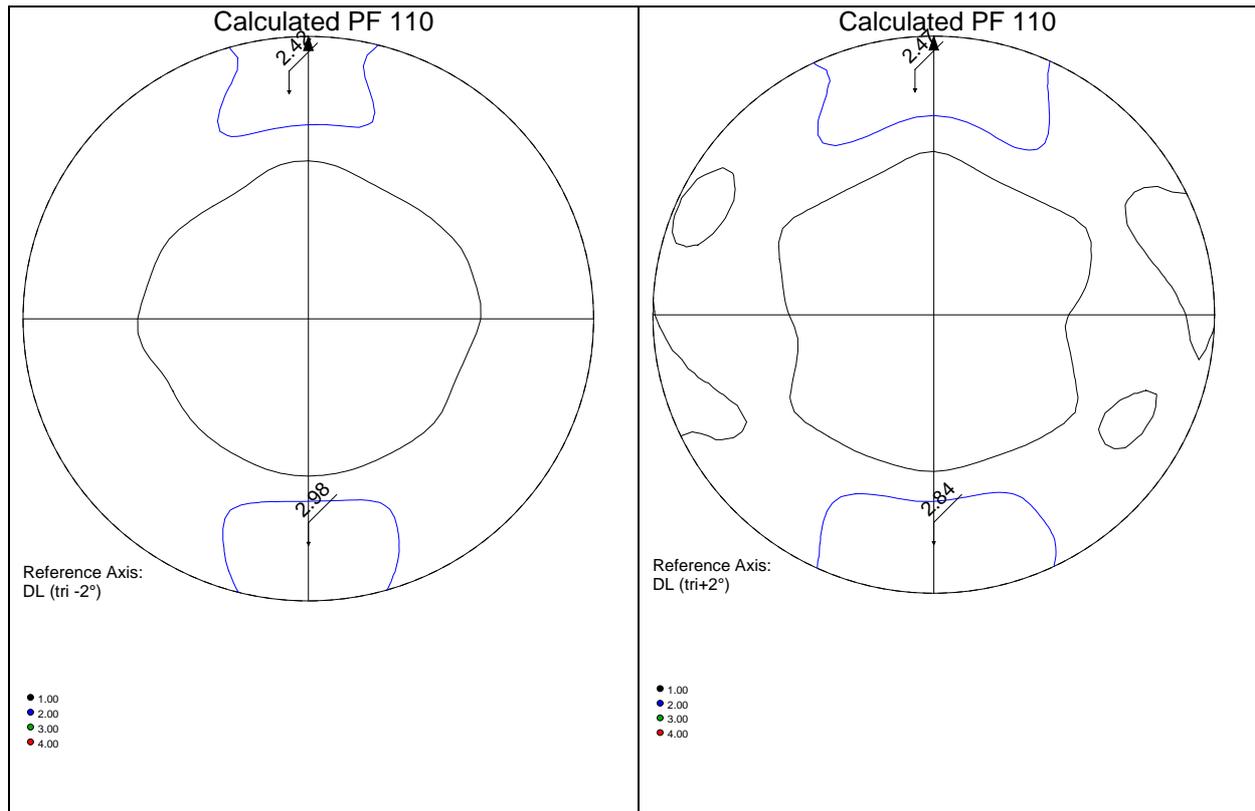


Figure 6 : Figures de pôles (00.2), (10.0) et (11.0) de la surface de la tôle 004-1, reconstruites par la FDOC (fonction de distribution des orientations cristallines). Dans la colonne de gauche, figures de pôles à mi-épaisseur et dans la colonne de droite, figures de pôles en surface.

#### CARACTERISATION MICROSTRUCTURALE DU MATERIAU « PLAQUE » NON-HYDRURE ET HYDRURE : OBSERVATIONS AU MEB

La tôle devait ensuite être hydrurée par voie gazeuse par Cézus. Cependant, des bandes de tôles de 30 x 210 x 6 mm ne parvenant pas à être hydrurées, l'opération a été réalisée sur des éprouvettes. Comme celles-ci étant beaucoup plus fines (1,7 mm), nous supposons que la prise d'hydrogène par le Zircaloy-4 en serait facilitée. Malgré cela, les hydrurations réalisées par Cézus étaient très variables et pas reproductibles pour les teneurs que nous souhaitions, 200 et 500 ppm. Des morceaux de plaque ont été envoyés dans d'autres laboratoires, en Argentine et à EDF, dans ce dernier l'hydruration par voie cathodique est couramment pratiquée. Mais, aucun procédé n'a permis d'hydrurer ce matériau de manière homogène à des teneurs faibles ou moyennes. Donc, aucun traitement de réorientation des hydrures n'a été réalisé et nous n'avons pas pu entreprendre les essais prévus.

Différentes éprouvettes hydrurées par Cézus nous ont cependant été envoyées et ont été observées. Mais ces éprouvettes n'avaient pas été prélevées dans le plan travers-travers court et les hydrures sont donc difficiles à examiner. Ce sont des éprouvettes prélevées selon le modèle B ou D de la Figure 4. Dans le tableau suivant sont récapitulés les caractéristiques de prélèvement de ces éprouvettes et les traitements appliqués à des fins d'observation.

Eprouvette	Plan de prélèvement	Orientation de l'éprouvette (Figure 4)	Hydrurée ?	Révélation des grains (1)	Révélation des précipités (2)	Révélation des hydrures (3)
D2	Plan de laminage (direction de laminage – direction travers)	Direction travers	Non	X (polissage électrolytique)	X (attaque chimique)	
D1	Plan de laminage	Direction travers	Oui	X (polissage électrolytique)	X (attaque chimique)	X (OPS)
B1	Plan de laminage	Direction de laminage	Oui			X (OPS)
B1i	Plan de laminage	Direction de laminage	Oui			X (OPS)

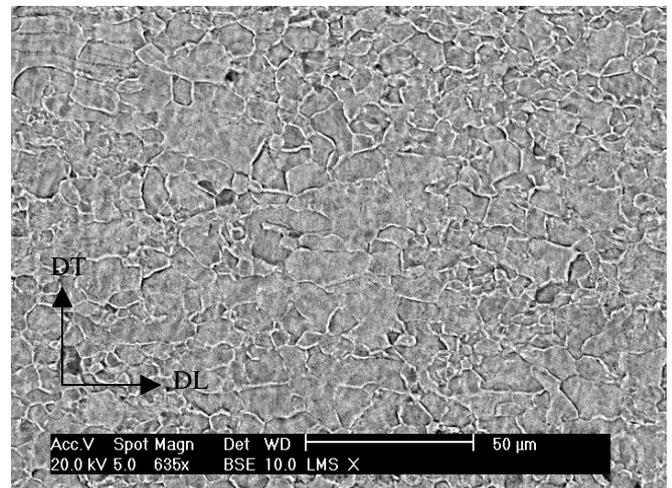
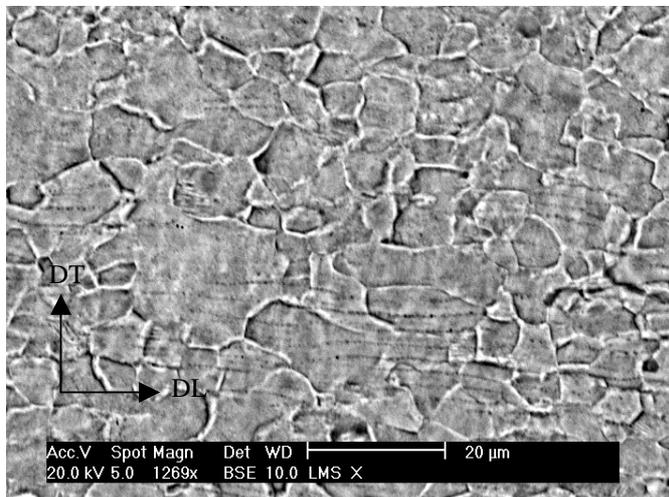
Tableau 2 : Récapitulatif pour les 4 éprouvettes plates utilisées.

	Teneur à une tête	Teneur à l'autre tête	Teneur au centre	Durée de l'hydruration
B1	105	145	165	4h
B1i	110-125	25-30	500-462	4h30
D1	55	191	Non mesurée	2h

Tableau 3 : Dans ce tableau, les teneurs en hydrogène ont été évaluées de la manière suivante : Cézus a prélevé un petit morceau de tôle au niveau de chaque tête et au centre de deux éprouvettes (B1 et B1i). Ensuite, la teneur en hydrogène dans ces morceaux a été mesurée par extraction à chaud. L'éprouvette D1 n'a pas été coupée en deux afin que l'on puisse l'utiliser pour un essai. La teneur en hydrogène au centre de l'éprouvette n'est donc pas connue.

### Révélation des grains

Ces observations au MEB, comme celles issues de la microscopie optique, mettent en évidence l'hétérogénéité des grains, en terme de taille et de forme.



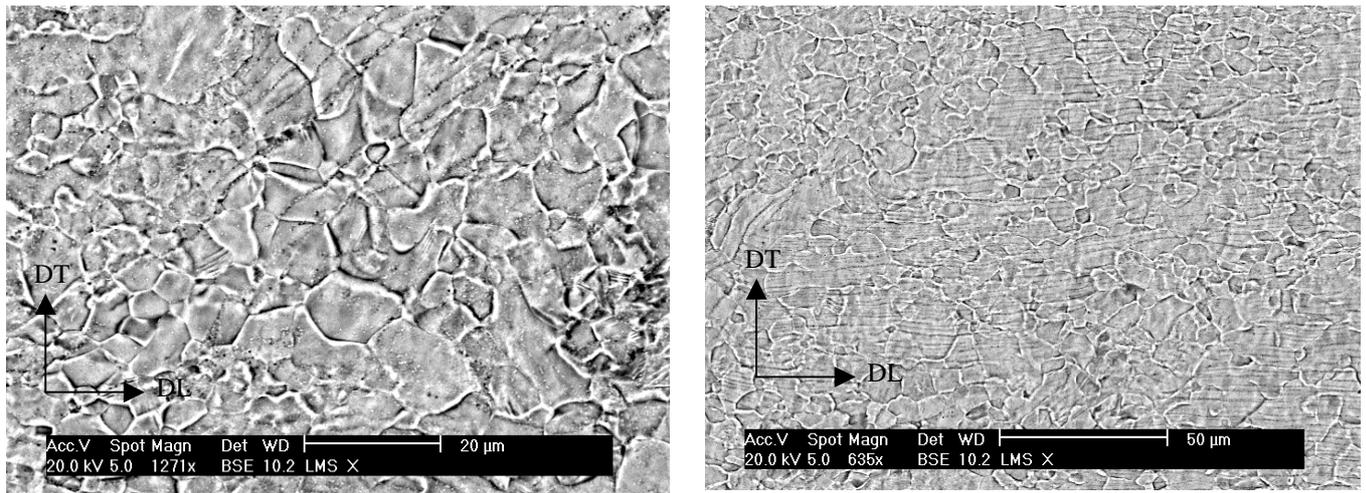


Figure 7 : Première ligne : matériau non-hydruré (épreuve D2), après polissage électrolytique pour révéler les grains (1). Des alignements de précipités sont visibles. Deuxième ligne : matériau hydruré (épreuve D1) dans les mêmes conditions. La direction de laminage est la même sur toutes ces figures. Les fines lignes sombres correspondent aux alignements de précipités.

### Révélation des précipités

Les précipités visibles en même temps que les grains ont été révélés avec une attaque chimique appropriée. Grâce au système d'analyse EDS, on a pu les identifier, bien que leur petite taille rende ces investigations délicates : il s'agit bien de précipités de  $Zr(Fe, Cr)_2$ . Ces précipités sont beaucoup plus abondants dans cette matière sous forme de plaque qu'ils ne l'étaient dans celle sous forme de tubes.

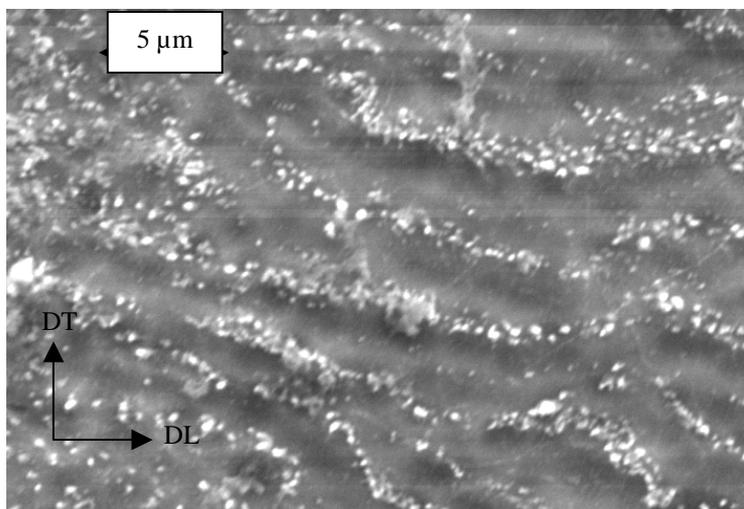


Figure 8 : Matériau non-hydruré (épreuve D2), après attaque chimique pour révéler les précipités (2).

### Révélation des hydrures

Suite au traitement d'hydruration, les plaquettes d'hydrures sont orientées dans le plan de laminage (DL-DT). Elles sont visibles dans une coupe de ce plan (DT-DTC), de la même façon que les hydrures circonférentiels sont observables dans le plan radial-circonférentiel. Cependant, comme nous n'avons pas obtenu d'éprouvettes hydrurées prélevées dans ce plan, nous avons entrepris des observations sur

des éprouvettes prélevées dans le plan de la tôle, donc orientées défavorablement pour l'observation des hydrures. Les figures suivantes illustrent néanmoins les hydrures observés sur des surfaces polies mécaniquement puis à l'OPS.

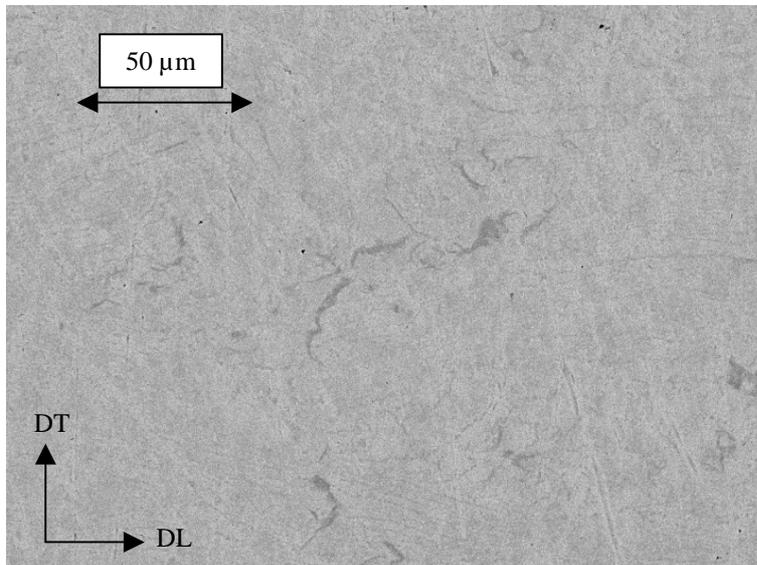


Figure 9 : Eprouvette D1 (800 ppm environ) : observation des hydrures.

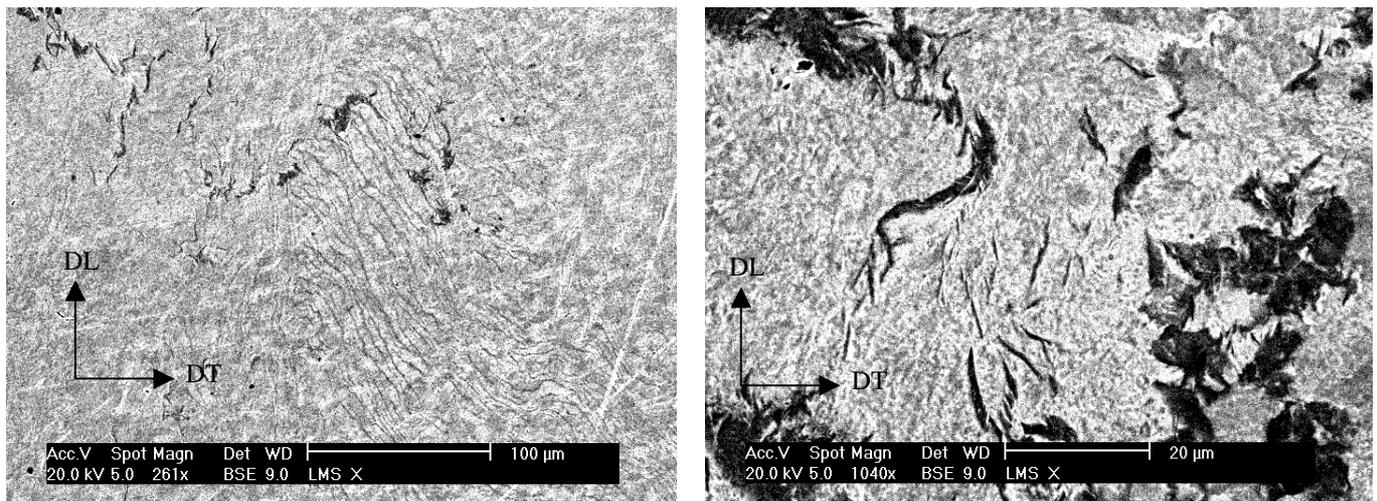


Figure 10 : Eprouvette B1i (500 ppm environ) : observation des hydrures. A gauche, des alignements de précipités sont visibles, ainsi que quelques plaquettes d'hydrures. A droite, des hydrures.

## CARACTERISATION MECANIQUE

Voici les résultats de deux essais macroscopiques réalisés sur une machine électromécanique INSTRON afin de caractériser la réponse mécanique du matériau non-hydruré – éprouvette D2 – et hydruré (teneur exacte inconnue, teneur aux têtes de 55 et à 191 ppm) avec des hydrures orientés « naturellement » parallèlement aux parois des plaques – éprouvette D1 –.

L'axe de sollicitation est dans la direction Travers (DT), c'est-à-dire perpendiculaire à la direction de laminage.

La courbe du matériau non-hydruré est beaucoup plus bruitée que l'autre, car la cellule de force employée était d'une capacité supérieure.

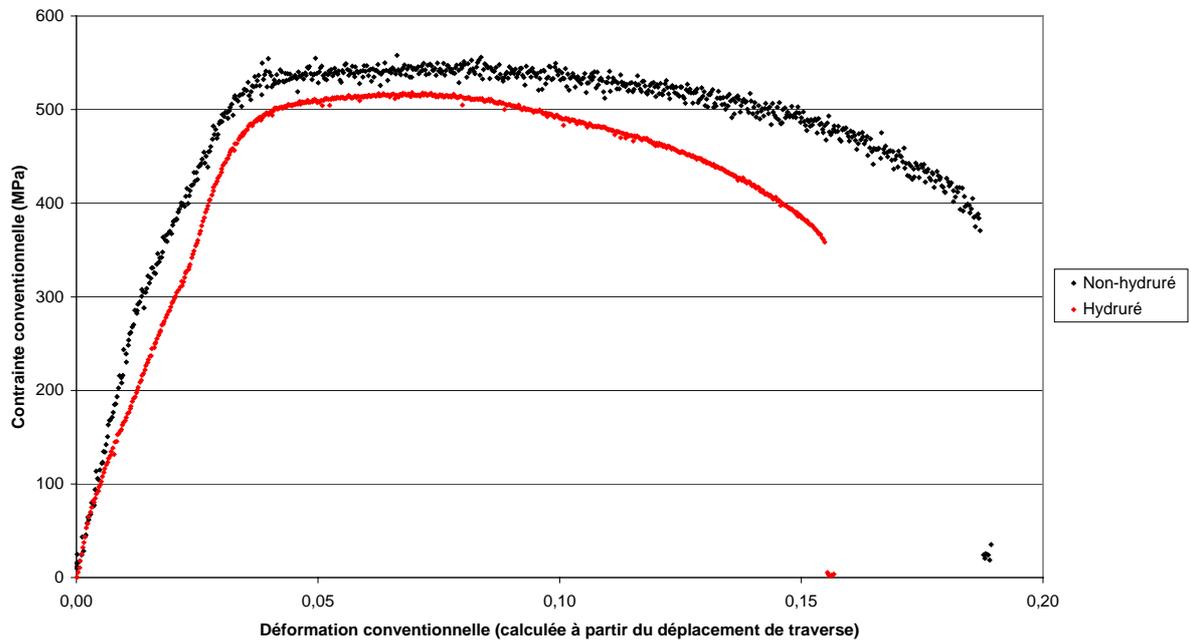


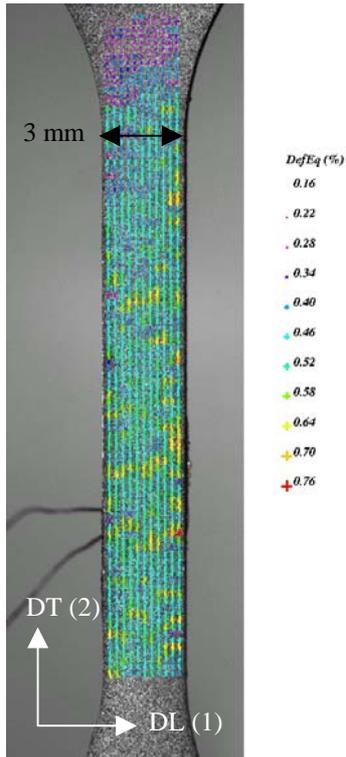
Figure 11 : Courbes de traction des deux éprouvettes plates testées : hydrurée et non-hydrurée, en terme de contrainte conventionnelle en fonction de la déformation conventionnelle.

On constate que ces courbes se superposent moins bien que celles obtenues pour le matériau de géométrie anneau. Mais ici, la teneur en hydrogène est supérieure, et la texture du matériau n'est pas tout à fait la même. D'autre part, le matériau hydruré semble très ductile par rapport au matériau de géométrie anneau hydruré à 500 ppm et contenant des hydrures circonférentiels.

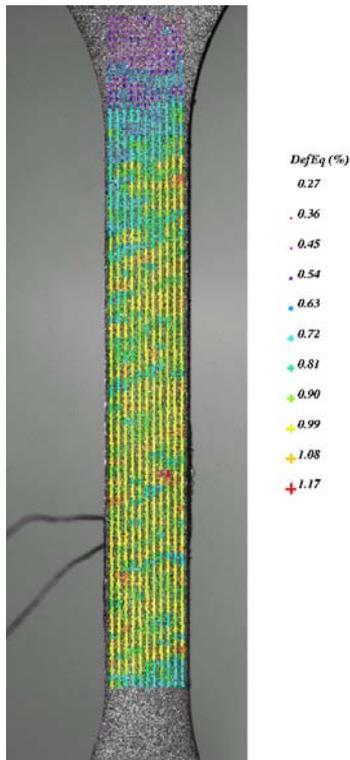
#### Champs de déformation à l'échelle globale

Sur ces éprouvettes plates, la déformation est aussi répartie de manière hétérogène. La localisation semble plus précoce dans le matériau hydruré, puisqu'à l'étape 275, la déformation est relativement homogène dans le matériau non-hydruré mais elle est déjà localisée dans le matériau hydruré.

Matériau non-hydruré (épreuve D2)

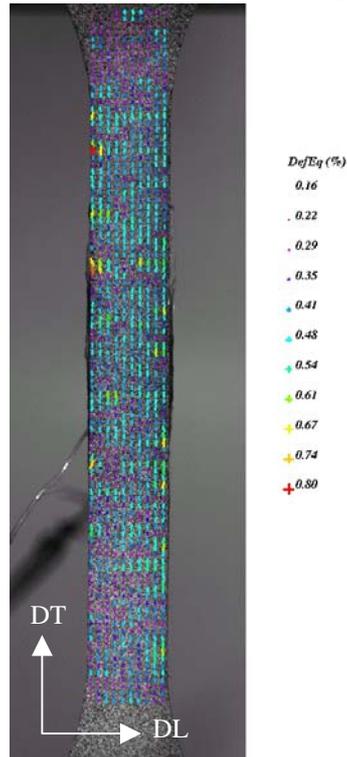


Etape 80

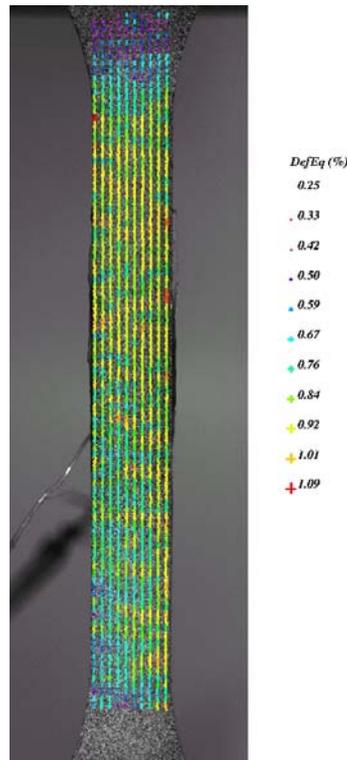


Etape 140

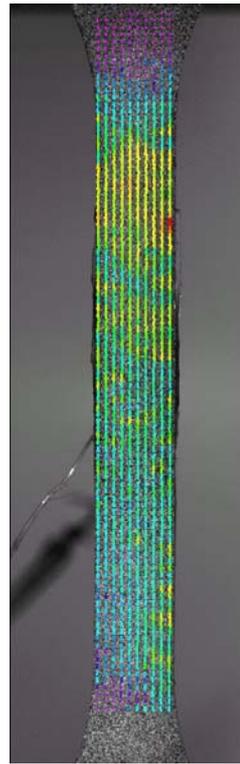
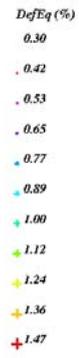
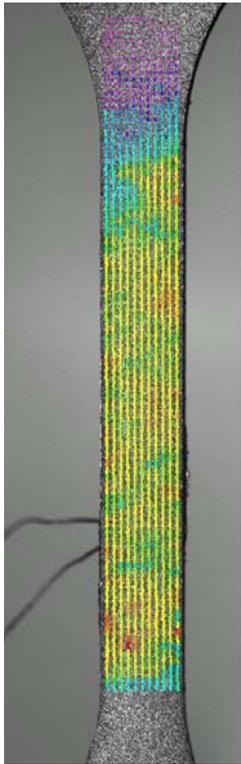
Matériau hydruré (épreuve D1)



Etape 80

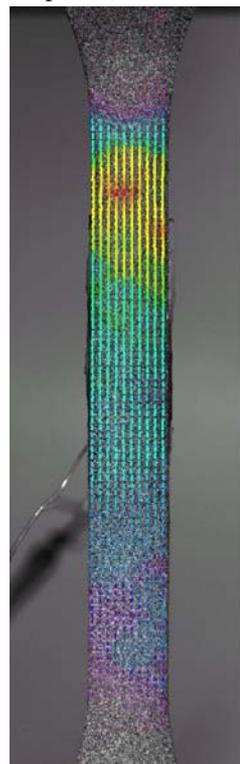
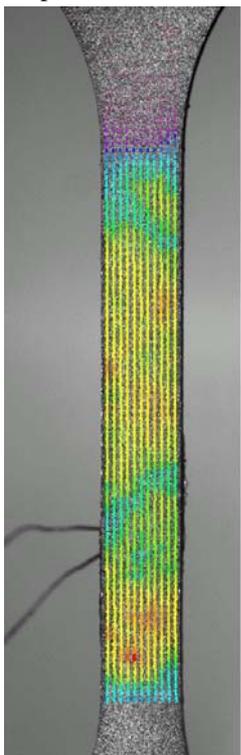


Etape 140



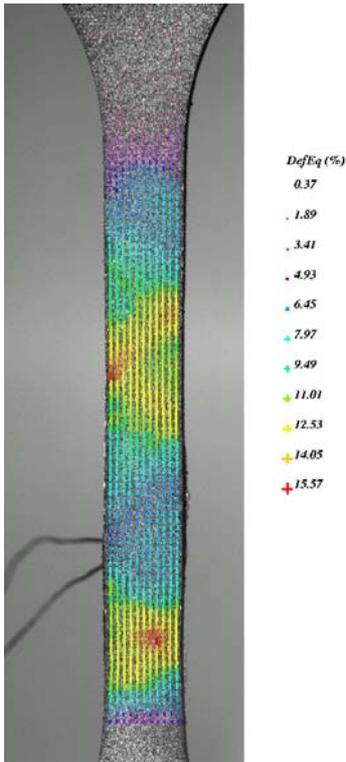
Etape 155

Etape 155

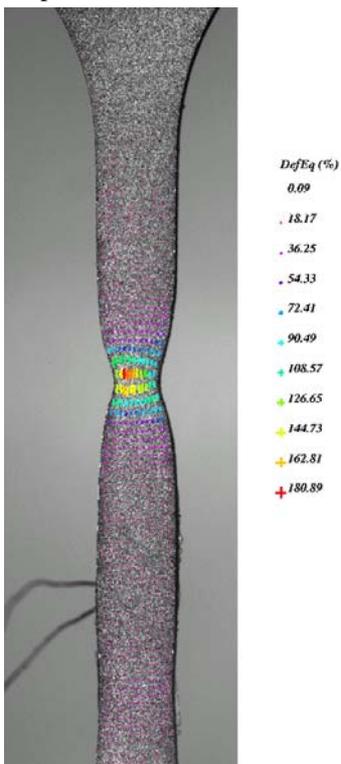


Etape 275

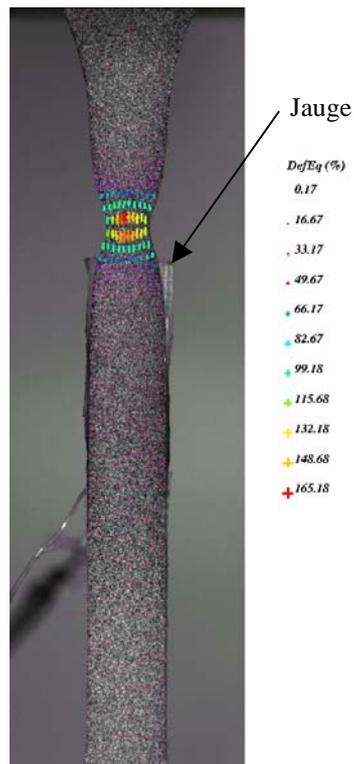
Etape 275



Etape 430



Etape 743 (avant rupture)



Etape 604 (avant rupture)

Tableau 4 : Cartes de déformation dans la configuration déformée du matériau non-hydruré (colonne de gauche) et du matériau hydruré (colonne de droite).

	Non-hydruré	Hydruré
Etape 80	E11 = $-8,69 \cdot 10^{-4}$ E22 = $3,99 \cdot 10^{-3}$ E12 = $3,13 \cdot 10^{-6}$	E11 = $-7,81 \cdot 10^{-4}$ E22 = $3,44 \cdot 10^{-3}$ E12 = $-2,13 \cdot 10^{-5}$
Etape 140	E11 = $-3,2 \cdot 10^{-3}$ E22 = $8,09 \cdot 10^{-3}$ E12 = $-2,99 \cdot 10^{-5}$	E11 = $-2,9 \cdot 10^{-3}$ E22 = $7,47 \cdot 10^{-3}$ E12 = $2,36 \cdot 10^{-5}$
Etape 155	E11 = $-5,13 \cdot 10^{-3}$ E22 = $1,94 \cdot 10^{-2}$ E12 = $-4,66 \cdot 10^{-5}$	E11 = $-4,39 \cdot 10^{-3}$ E22 = $9,39 \cdot 10^{-3}$ E12 = $5,44 \cdot 10^{-5}$
Etape 275	E11 = $-2,26 \cdot 10^{-2}$ E22 = $3,34 \cdot 10^{-2}$ E12 = $-1,43 \cdot 10^{-4}$	E11 = $-2,1 \cdot 10^{-2}$ E22 = $3,16 \cdot 10^{-2}$ E12 = $3,77 \cdot 10^{-4}$
Etape 430	E11 = $-4,54 \cdot 10^{-2}$ E22 = $6,64 \cdot 10^{-2}$ E12 = $-2,7 \cdot 10^{-4}$	
Etape avant rupture	Etape 743 E11 = $-7,8 \cdot 10^{-2}$ E22 = $1,4 \cdot 10^{-1}$ E12 = $-1,13 \cdot 10^{-3}$	Etape 604 E11 = $-5,54 \cdot 10^{-2}$ E22 = $1,01 \cdot 10^{-1}$ E12 = $1,39 \cdot 10^{-3}$

Tableau 5 : Valeurs des déformations calculées sur la zone (base de mesure de la déformation :  $507 \mu\text{m}$  pour l'éprouvette non-hydrurée,  $575 \mu\text{m}$  pour l'éprouvette hydrurée).

### Mode de rupture des éprouvettes

La rupture se produit dans les deux cas après une striction intense de l'éprouvette. La striction et donc la rupture sont survenues au centre de l'éprouvette dans le cas non-hydruré, mais dans l'autre cas, le lieu de rupture est plus dissymétrique, puisqu'il est situé davantage dans le haut de l'éprouvette. Cette différence peut être due aux hétérogénéités de répartition des hydrures dans l'éprouvette. Il est aussi à noter que la rupture s'est produite juste au-dessus de la jauge, qui était collée sur la face de l'éprouvette opposée à la caméra.

La surface de rupture est différente dans ces deux cas : pour le matériau non-hydruré, le plan de rupture est incliné à  $53^\circ$  environ de l'axe de traction. La rupture est franche. Pour le matériau hydruré, l'angle entre le plan de rupture et l'axe de traction est plus élevé :  $62^\circ$  environ, et le plan de rupture n'est pas rectiligne mais présente plusieurs décrochements.

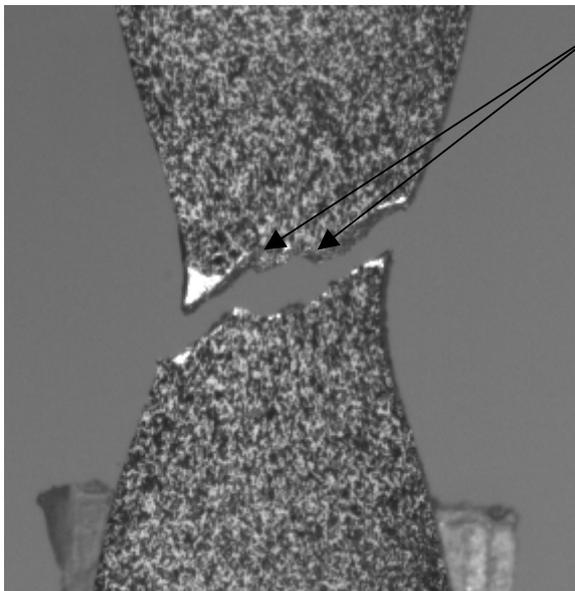
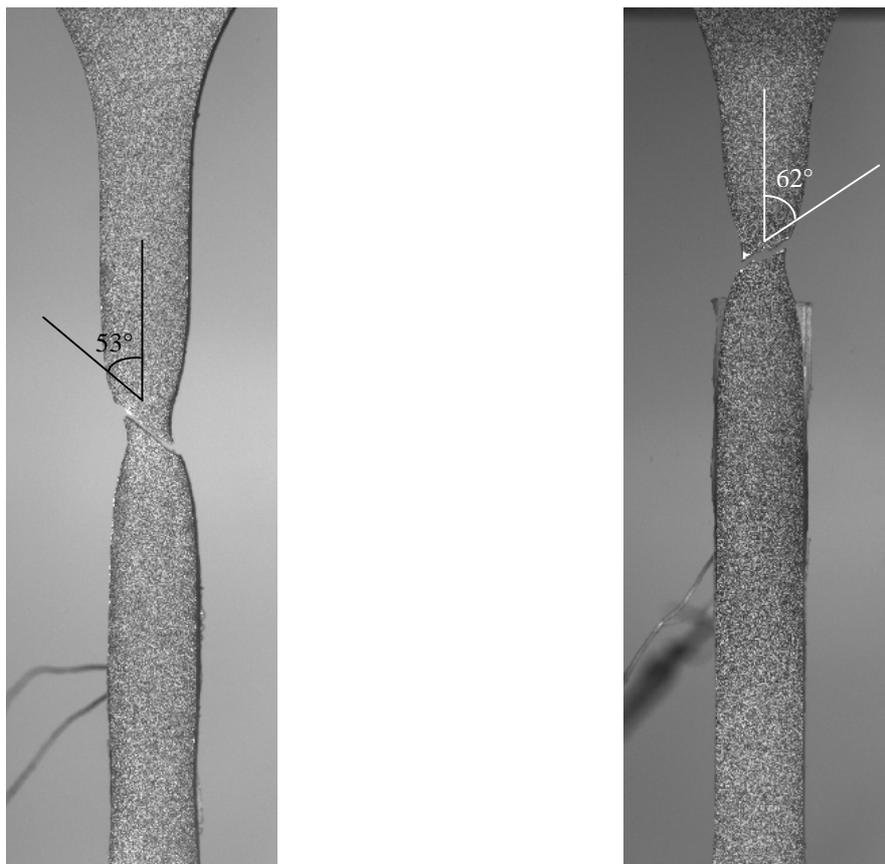


Figure 12 : Agrandissement de la zone de rupture de l'éprouvette hydrurée.



*Figure 13 : Eprouvettes après rupture : à gauche, éprouvette non-hydrurée, à droite, éprouvette hydrurée.*

## ANNEXE 9 : DETAILS DU PROGRAMME SUR LA SIMULATION DE MICROSTRUCTURE

Les premiers travaux de thèse ont été consacrés à l'utilisation de l'analyse d'images pour caractériser l'orientation moyenne des hydrures ainsi que leur distribution.

Afin de valider les programmes utilisés, un programme de [Bilger 2003] qui permet de simuler des ellipses a été utilisé. Ce programme fonctionne avec les données d'entrée suivantes :

- les dimensions de l'image en pixels ;
- le nombre d'ellipses ;
- le schéma de répartition (chevauchement autorisé ou non, contact possible ou non) ;
- les dimensions des ellipses ;
- leur orientation.

En sortie, on obtient :

- une image de la microstructure simulée ;
- un fichier avec le numéro de la particule, ses coordonnées (x, y), les paramètres de l'ellipse (grand axe et petit axe), son orientation.

La figure suivante présente trois microstructures simulées comportant chacune 20 particules : dans la première l'orientation est aléatoire, dans la seconde, l'orientation est majoritairement circonférentielle, et dans la troisième, majoritairement radiale, si l'on considère que ces images correspondent au pôle nord ou sud de l'anneau.

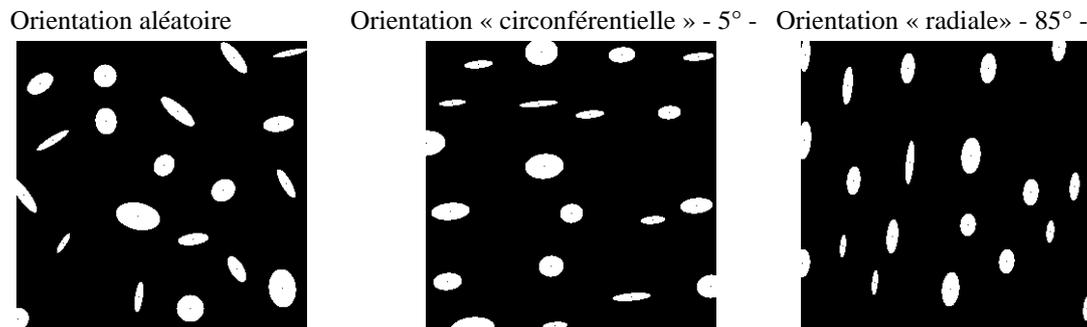


Figure 14 : Microstructures « simulées » représentatives d'une distribution d'hydrures « aléatoire », « circonférentielle » et « radiale ».

## INFLUENCE DE L'ORIENTATION DES HYDRURES SUR LES MODES DE DEFORMATION, D'ENDOMMAGEMENT ET DE RUPTURE DU ZIRCALOY-4 HYDRURE.

Le Zircaloy-4 est un alliage de zirconium utilisé dans la fabrication des tubes de gainage de combustible nucléaire. Durant la période de fonctionnement, l'oxydation des tubes par l'eau du circuit primaire engendre une diffusion d'hydrogène dans le Zircaloy qui peut ensuite précipiter sous forme d'hydrures de zirconium selon la limite de solubilité de l'hydrogène dans le zirconium à la température considérée. La fragilisation induite par la précipitation d'hydrures dépend de nombreux paramètres, notamment de la teneur en hydrogène et de l'orientation des hydrures par rapport à la sollicitation. Ce travail de thèse a consisté à étudier l'influence de la présence d'hydrures radiaux pour deux teneurs en hydrogène (200 et 500 ppm) à température ambiante, sur les modes de déformation, d'endommagement et de rupture du matériau dans sa finition industrielle, le Zircaloy-4 détendu. Pour cela, des essais de traction sur anneau ont été réalisés, au cours desquels la technique de corrélation d'images numériques a été utilisée pour accéder aux champs de déformation, à l'échelle globale (essais macroscopiques) ou à l'échelle locale (essais in-situ sous MEB). L'étude des champs de déformation macroscopique et des faciès de rupture nous permet de distinguer trois classes parmi les différentes configurations étudiées : d'abord, les échantillons dont la rupture est ductile, ceux pour lesquels elle est fragile et enfin ceux dont la rupture est fragile après déformation ductile. Les champs de déformation locaux en revanche ne sont pas notablement modifiés par la présence d'hydrures. Certaines informations issues des champs de déformation macroscopique ainsi que des données quantitatives sur la distribution d'orientation des hydrures obtenues par analyse d'images, ont permis de formuler un critère de rupture pour le matériau hydruré à 200 ppm. Ce critère basé sur la mécanique de l'endommagement non-couplé permet de reproduire les courbes de comportement obtenues expérimentalement pour les trois distributions d'orientation des hydrures étudiées.

## INFLUENCE OF HYDRIDES ORIENTATION ON STRAIN, DAMAGE AND FAILURE OF HYDRIDED ZIRCALOY-4.

In pressurized water reactors of nuclear power plants, fuel pellets are contained in cladding tubes, made of Zirconium alloy, for instance Zircaloy-4. During their life in the primary water of the reactor (155 bars, 300°C), cladding tubes are oxidized and consequently hydrided. A part of the hydrogen given off precipitates as Zirconium hydrides in the bulk material and embrittles the material. This embrittlement depends on many parameters, among which hydrogen content and orientation of hydrides with respect to the applied stress. This investigation is devoted to the influence of the orientation of hydrides with respect to the applied stress on strain, damage and failure mechanisms. Macroscopic and SEM in-situ ring tensile tests are performed on cladding tube material (unirradiated cold worked stress-relieved Zircaloy-4) hydrided with about 200 and 500wppm hydrogen, and with different main hydrides orientation: either parallel or perpendicular to the circumferential tensile direction. We get the mechanical response of the material as a function of hydride orientation and hydrogen content and we investigate the deformation, damage and failure mechanisms. In both cases, digital image correlation techniques are used to estimate local and global strain distributions. Neither the tensile stress-strain response nor the global and local strain modes are significantly affected by hydrogen content or hydride orientation, but the failure modes are strongly modified. Indeed, only 200wppm radial hydrides embrittle Zy-4 : sample fail in the elastic domain at about 350MPa before strain bands could develop; whereas in other cases sample reach at least 750MPa before necking and final failure, in ductile or brittle mode. To model this particular heterogeneous material behavior, a non-coupled damage approach which takes into account the anisotropic distribution of the hydrides is proposed. Its parameters are identified from the macroscopic strain field measurements and a quantitative characterization of hydrides orientation by means of images analysis. The results for the 200wppm-content are in agreement with experimental observations.