Comportement en fluage à haute température dans le domaine biphasé ($\alpha + \beta$) de l'alliage M5®

Gwenaël Trégo

▶ **To cite this version:**

Gwenaël Trégo. Comportement en fluage à haute température dans le domaine biphasé ($\alpha + \beta$) de l'alliage M5®. Matériaux. École Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2011. Français. NNT : 2011ENMP0084 . pastel-00688207

HAL Id: pastel-00688207

https://pastel.hal.science/pastel-00688207

Submitted on 17 Apr 2012

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.

ParisTech
INSTITUT DES SCIENCES ET TECHNOLOGIES
PARIS INSTITUTE OF TECHNOLOGY

MINES ParisTech

École doctorale n°432 : Sciences pour les Métiers de l'Ingénieur

Doctorat ParisTech

T H È S E

pour obtenir le grade de docteur délivré par

l'École nationale supérieure des mines de Paris

Spécialité « Sciences et génie des matériaux »

présentée et soutenue publiquement par

Gwenael TREGO

le 20 décembre 2011

Comportement en fluage à haute température dans le domaine biphasé $(\alpha + \beta)$ de l'alliage M5®

Directeurs de thèse : **Anne-Françoise GOURGUES-LORENZON**
et Samuel FOREST

Jury

M. René BILLARDON, Professeur, LMT-Cachan, UPMC	Président
M. Eric ANDRIEU, Professeur, CIRIMAT, ENSIACET	Rapporteur
M. Philippe PILVIN, Professeur, LIMATB, Université Bretagne-Sud	Rapporteur
Mme Elisabeth AEBY-GAUTIER, Directeur de recherche, LSG2M, Mines de Nancy	Examinateur
Mme Laurence PORTIER, Ingénieur de recherche, CEA	Examinateur
Mme Anne-Françoise GOURGUES-LORENZON, Professeur, Mines ParisTech	Examinateur
M. Samuel FOREST, Directeur de recherche, Centre des Matériaux, Mines ParisTech	Examinateur
M. Christian BERNAUDAT, Ingénieur, EDF-SEPTEN	Invité
M. Jean-Paul MARDON, Ingénieur, AREVA-NP	Invité

MINES ParisTech
Centre des Matériaux
CNRS UMR 7633, BP 87, F-91003 Evry Cedex, FRANCE

T H È S E

M5® est une marque déposée d'AREVA-NP

À mes parents

Table des matières

Table des matières **4**

Table des figures **9**

Liste des tableaux **19**

Remerciements **21**

1 Introduction de l'étude et présentation du matériau **23**
1.1 Contexte industriel de l'étude . . . 25
1.1.1 Gainage combustible des Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) . . . 25
1.1.2 Conditions nominales de fonctionnement . . . 27
1.1.3 Conditions accidentelles hypothétiques : Accident par Perte de Réfrigérant Primaire (APRP) . . . 28
1.2 Matériau d'étude : l'alliage M5® . . . 30
1.2.1 Généralités sur les alliages de zirconium . . . 30
1.2.1.1 Le zirconium pur . . . 30
1.2.1.2 Historique de développement du zirconium et ses alliages . . . 32
1.2.1.3 Elaboration des gaines ou tôles en alliages de zirconium . . . 34
1.2.2 L'alliage M5® . . . 35
1.2.2.1 Caractéristiques du matériau de l'étude . . . 35
1.2.2.2 Phases et transformations de phase . . . 37
1.2.2.3 Suivi expérimental des transformations de phases . . . 41
1.3 Problématique scientifique . . . 44
1.3.1 Modèle CEA métallurgique et thermo-mécanique EDGAR . . . 44
1.3.2 Caractère amont des conditions de l'étude . . . 46
1.3.3 Etudes antérieures et démarche de l'étude . . . 48

2 Comportement expérimental en fluage **53**
2.1 Domaines monophasés . . . 55
2.1.1 Domaine monophasé quasi-α . . . 55
2.1.1.1 Etude bibliographique . . . 57
2.1.1.2 Bilan des essais de fluage . . . 65
2.1.2 Domaine monophasé β . . . 69
2.1.2.1 Etude bibliographique . . . 69
2.1.2.2 Bilan des essais de fluage . . . 72
2.2 Domaine biphasé ($\alpha + \beta$) . . . 75
2.2.1 Etude bibliographique . . . 75
2.2.2 Bilan des essais de fluage . . . 78
2.3 Effet de la température . . . 82
2.3.1 Première modélisation du comportement du matériau biphasé . . . 82

2.3.2 Comparaison entre les différents domaines de températures, à basse contrainte (1-4MPa) . . . 83
2.3.3 Domaine quasi-β . . . 84
2.3.4 Bilan et problématique de l'étude . . . 87

3 Effets de la taille de grains et des éléments d'alliage sur le comportement en fluage 89
3.1 Effet de la taille de grains sur le comportement en fluage . . . 92
3.1.1 Etude bibliographique . . . 92
3.1.1.1 Domaine monophasé α . . . 92
3.1.1.2 Domaines biphasé $(\alpha+\beta)$, quasi-β . . . 95
3.1.1.3 Domaine monophasé β . . . 95
3.1.2 Mise en évidence des évolutions de tailles de grains . . . 95
3.1.3 Elaboration des matériaux modèles à taille de grains contrôlée . . . 98
3.1.3.1 Etude bibliographique . . . 98
3.1.3.2 Elaboration des matériaux modèles pour le domaine quasi-α . . . 105
3.1.3.3 Elaboration des matériaux modèles pour le domaine quasi-β . . . 110
3.1.4 Comportement en fluage des matériaux modèles . . . 111
3.1.4.1 Domaine quasi-α . . . 111
3.1.4.2 Domaine quasi-β . . . 113
3.1.5 Modélisation de l'effet de la taille de grains . . . 120
3.1.5.1 Domaine quasi-α . . . 120
3.1.5.2 Domaine quasi-β . . . 121
3.1.6 Bilan . . . 125
3.2 Effet de la composition chimique sur le comportement en fluage . . . 127
3.2.1 Etude bibliographique . . . 127
3.2.1.1 Domaine monophasé α . . . 127
3.2.1.2 Domaine monophasé β . . . 129
3.2.1.3 Domaines biphasé $(\alpha+\beta)$ et quasi-β . . . 130
3.2.2 Mise en évidence du contraste « micro-chimique » dans le domaine biphasé 130
3.2.3 Matériaux à teneur spécifique en niobium et oxygène . . . 136
3.2.3.1 Matériaux modèles représentatifs de chaque phase dans le domaine biphasé . . . 136
3.2.3.2 Autres matériaux complémentaires . . . 141
3.2.4 Comportement en fluage des matériaux à teneur spécifique en niobium et oxygène . . . 147
3.2.4.1 Domaine quasi-α . . . 147
3.2.4.2 Domaines quasi-β et β . . . 153
3.2.4.3 Domaine biphasé $(\alpha+\beta)$ . . . 160
3.2.5 Synthèse . . . 162

4 Simulation du comportement du matériau biphasé 165
4.1 Approche numérique en fluage par VES . . . 168
4.1.1 Généralités sur la méthode . . . 168
4.1.2 Génération des microstructures biphasées . . . 169
4.1.2.1 Modèle de génération de microstructures biphasées du M5® . . . 170
4.1.2.2 Modèles de génération de microstructures biphasées pour les autres morphologies . . . 173
4.1.3 Conditions aux limites dans le cas du fluage . . . 178
4.1.4 Estimation du comportement effectif et des tailles du VER et du VSR . . . 183
4.1.5 Discrétisations temporelle et spatiale . . . 184

4.1.5.1 Discrétisation temporelle . . . 184
4.1.5.2 Discrétisation spatiale . . . 185
4.2 Evaluation de l'effet morphologique sur le comportement en fluage . . . 186
4.2.1 Lois de comportement . . . 187
4.2.2 Modèles analytiques . . . 188
4.2.2.1 Modèles de Sachs et de Taylor . . . 188
4.2.2.2 Approches analytiques affines et au second-ordre . . . 189
4.2.3 Etude d'une microstructure de type polycristaux biphasés de Voronoï . . . 190
4.2.3.1 Résultats des simulations par éléments finis . . . 190
4.2.3.2 Comparaison avec les modèles analytiques . . . 191
4.2.3.3 Moyennes par phase, percolation . . . 192
4.2.4 Etude de la sensibilité à la morphologie . . . 194
4.3 Evaluation du comportement en fluage du M5® dans le domaine biphasé . . . 197
4.3.1 Evolution des lois de comportement et de la microstructure dans le domaine biphasé . . . 197
4.3.2 Modèles analytiques . . . 201
4.3.2.1 Modèles de Sachs et de Taylor . . . 201
4.3.2.2 Modèle auto-cohérent (approche au second-ordre) . . . 205
4.3.3 Simulation par éléments finis du comportement en fluage du M5® dans le domaine biphasé . . . 206
4.3.3.1 Analyse des résultats à 1MPa . . . 207
4.3.3.2 Analyse des résultats à 860°C . . . 210
4.4 Conclusion . . . 213

5 Conclusion générale et perspectives d'études 215
5.1 Conclusion générale . . . 216
5.2 Perspectives d'études . . . 219

A Essais de fluage sur tôle 221
A.1 Dispositif expérimental de fluage . . . 223
A.2 Déroulement des essais de fluage . . . 226
A.3 Dépouillement des essais de fluage . . . 228
A.3.1 Suivi de la transformation de phases . . . 229
A.3.1.1 Principe du suivi de résistance . . . 229
A.3.1.2 Validation de la technique sur tôle . . . 233
A.3.2 Suivi cinématique par mesure de résistance . . . 234
A.3.3 Suivi cinématique par extensométrie laser . . . 235
A.3.3.1 Modèle de comportement d.d.i. (deux déformations inélastiques) 236
A.3.3.2 Pré-dépouillement . . . 237
A.3.3.3 Identification inverse (couplage Cast3M - SiDoLo) . . . 239
A.3.4 Comparaison des deux méthodes de suivi cinématique . . . 240
A.4 Incertitudes expérimentales . . . 242
A.4.1 Grandeurs mesurées . . . 242
A.4.2 Grandeurs calculées . . . 244
A.5 Conclusion . . . 248

B Analyses métallographiques des tailles de grains 249
B.1 Préparation des échantillons . . . 251
B.1.1 Domaine quasi-α . . . 251
B.1.2 Domaines biphasé ($\alpha + \beta$), quasi-β et β . . . 251
B.2 Analyse des échantillons . . . 251

B.2.1 Domaine quasi-α . . . 251
B.2.2 Domaines biphasé ($\alpha + \beta$), quasi-β et β . . . 253

C Simulation du comportement du matériau biphasé 255
C.1 Approche numérique en fluage par VES : Discrétisations temporelle et spatiale . 257
C.1.1 Discrétisation temporelle . . . 257
C.1.2 Discrétisation spatiale . . . 265
C.2 Evaluation de l'effet morphologique sur le comportement en fluage . . . 274
C.2.1 Modèles analytiques . . . 274
C.2.1.1 Modèle de Berveiller-Zaoui . . . 274
C.2.1.2 Approche affine . . . 274
C.2.2 Etude d'une microstructure de type polycristaux biphasés de Voronoï . . 275
C.2.2.1 Résultats des simulations par éléments finis sur des VES de « petite » taille, périodiques ou non périodiques . . . 275
C.2.2.2 Comparaison avec les modèles analytiques . . . 278
C.2.3 Etude de la sensibilité à la morphologie . . . 279

Bibliographie 300

Table des figures

1.1 *Cœur d'un Réacteur à Eau Pressurisée (REP, d'après un schéma de la Commission de Régulation Nucléaire américaine (NRC))* . . . 25
1.2 *Assemblage combustible et détail d'un crayon combustible (d'après des schémas d'EDF)* . . . 26
1.3 *Transitoire schématique simplifié d'un Accident par Perte de Réfrigérant Primaire (APRP) de type « Grosse Brèche » (GB)* . . . 29
1.4 *Représentation schématique de la transition du zirconium de la maille β cubique centrée vers la maille α hexagonale selon le mécanisme de Burgers (1934)* . . . 32
1.5 *Métallographie optique (contraste de Nomarsky) du M5® à l'état initial de réception* . . . 36
1.6 *Figures de pôles (00.2), (10.0) et (11.0) recalculées, à mi-épaisseur, de la tôle de M5®* . . . 37
1.7 *Diagramme d'équilibre du système binaire Zr-O (Abriata et al. (1986))* . . . 38
1.8 *Diagramme d'équilibre du système binaire Zr-Nb (Abriata et Bolcich (1982))* . . . 39
1.9 *Diagramme d'équilibre correspondant à la partie riche en Zr du système binaire Zr-Nb (van Effenterre (1972))* . . . 40
1.10 *Micrographie électronique en transmission du M5® sous forme de gaine (Mardon et al. (2000))* . . . 41
1.11 *Fraction de phase β_{Zr} transformée au chauffage et au refroidissement évaluée par calorimétrie (vitesses de 10°C/min et demi-hystérésis) et par calcul thermodynamique (Thermocalc^{TM} + Zircobase Dupin et al. (1999))* . . . 42
1.12 *Fraction de phase β_{Zr} transformée évaluée par calorimétrie sur tôle et gaine en conditions de « quasi-équilibre » (demi-hystérésis avec l'hypothèse haute au chauffage) et par calcul thermodynamique (Thermocalc^{TM} + Zircobase Dupin et al. (1999))* . . . 43
1.13 *Schéma du dispositif EDGAR (Forgeron et al. (2000))* . . . 45
1.14 *Allongements totaux obtenus lors d'essais EDGAR de fluage pour l'alliage M5® (d'après Forgeron et al. (2000))* . . . 46
1.15 *Fraction de phase β en conditions de « quasi-équilibre » du M5®, extrapolées à partir d'essais de calorimétrie (Forgeron et al. (2000))* . . . 47
1.16 *Courbes isocontraintes des vitesses de fluage en fonction de la température (Kaddour et al. (2004))* . . . 48
1.17 *Variation de la dureté Vickers moyenne sous 5kg (HV5, réalisée sur 5 empreintes) en fonction de la teneur en oxygène dans des alliages Zr-1%Nb (Toffolon (2000))* . . . 50

2.1 *Micrographies électroniques en transmission (champ clair) du M5® sous forme de gaine après traitements thermiques dans le domaine quasi-α (Verhaeghe et Tupin (Service d'Etudes des Matériaux Irradiés, CEA, 2009))* . . . 56
2.2 *Micrographie électronique à balayage (électrons secondaires) du Zr-1%Nb-0 après un essai de fluage à 760°C dans le domaine quasi-α (Kaddour (2004))* . . . 57

2.3 *Carte contrainte-température des mécanismes du zirconium, par Sargent et Ashby (1982), ramenée à une taille de grains de* $100\mu m$ 60
2.4 *Vitesses de fluage (normalisées par un coefficient de diffusion, à la température considérée) en fonction de la contrainte (normalisée par le module de cisaillement, à la température considérée) pour différentes études de la bibliographie (Hayes et Kassner (2006) et références mentionnées tableaux 2.1 à 2.3)* 63
2.5 *Comportement expérimental en fluage du M5® dans le domaine quasi-α (un essai par température)* 65
2.6 *Comparaison entre les essais réalisés sur tôle (présente étude) et sur gaine (Kaddour (2004)) dans le domaine quasi-α* 66
2.7 *Micrographies optiques (contraste de Nomarsky) du M5® après essais de fluage dans le domaine quasi-α (zone utile des éprouvettes)* 67
2.8 *Identification des énergies d'activation des deux régimes de fluage du M5® dans le domaine quasi-α* 69
2.9 *Micrographie électronique à balayage (électrons secondaires) d'un fil de Zy-2 après un essai de fluage dans le domaine β (Burton et al. (1978))* 71
2.10 *Comportement expérimental en fluage du M5® dans le domaine β (au moins deux essais par température)* 72
2.11 *Micrographies optiques (lumière blanche) du M5® après essais de fluage dans le domaine β et refroidissement étagé (zone utile des éprouvettes)* 73
2.12 *Micrographie optique (lumière blanche) du M5® après essai de fluage dans le domaine β (1050°C) et refroidissement four coupé* 74
2.13 *Comparaison entre les essais réalisés sur tôle (présente étude) et sur gaine (Kaddour (2004)) dans le domaine β* 74
2.14 *Identification de l'énergie d'activation pour le fluage du M5® dans le domaine β* 75
2.15 *Micrographies électroniques à balayage (électrons secondaires) mettant en évidence du glissement aux joints de grains après un essai de traction sur du Zy-4 dans le domaine biphasé(Boček et al. (1977), Garde et al. (1978))* 77
2.16 *Comportement expérimental en fluage du M5® dans le domaine biphasé (α+β) (un essai par température)* 78
2.17 *Comparaison entre les essais réalisés sur tôle (présente étude) et sur gaine (Kaddour (2004)) dans le domaine biphasé (α + β)* 79
2.18 *Micrographies optiques (lumière blanche) du M5® après essais de fluage dans le domaine biphasé (α + β) et refroidissement four coupé (zone utile des éprouvettes)* 80
2.19 *Fraction de phase β transformée évaluée par mesure de résistance lors des essais de fluage en conditions de « quasi-équilibre » et par analyse métallographique post-essai* 81
2.20 *Modélisation du fluage du M5® à 860°C à partir de lois pour chacune des phases α et β extrapolées en température à partir des domaines monophasés quasi-α et β* 82
2.21 *Comportement expérimental en fluage du M5® aux faibles contraintes (courbes isocontraintes 1-4MPa)(à partir de 910°C, au moins deux essais par température)* 83
2.22 *Comportement expérimental en fluage du M5® dans le domaine quasi-β (à partir de 910°C, au moins deux essais par température)* 85
2.23 *Micrographies optiques (lumière blanche) du M5® après essais de fluage dans le bas du domaine β et refroidissement direct ou étagé (zone utile des éprouvettes)* 86
2.24 *Micrographies optiques (lumière blanche) du M5® après essais de fluage dans le domaine quasi-β et refroidissement four coupé* 87

3.1 *Carte des mécanismes de déformation du zirconium α à 700°C (et du titane, à 600°C) (Prasad et al. (1989, 1992), Rama Rao (1998))* 94

3.2 *Tailles des grains α et β du M5® obtenues par analyse métallographique après les essais de fluage isotherme* . . . 97
3.3 *Tailles de grains α du zirconium et du Zy-3 obtenues après un traitement thermomécanique, en fonction de la déformation plastique (par traction à 260°C, Bokros (1960))* . . . 103
3.4 *Micrographie optique (contraste de Nomarsky) du Zr702 après pliage 5T à froid puis recuit 800°C-1h, la fibre neutre de la tôle est la médiane verticale et* $\varepsilon_{critique} \approx 5\%$ *(Sarrail et al. (2007), Rodriguez et al. (2008))* . . . 104
3.5 *Taille des grains α (moyenne et écart-type) obtenues par analyse métallographique après les essais de traitements thermomécaniques sur le M5® (laminage à froid et recuit)* . . . 107
3.6 *Figures de pôles (00.2), (10.0) et (11.0), à mi-épaisseur, de la tôle de M5® relaminée à froid de 1,2 à 0,9mm puis recuite durant 16h à 700°C (sous vide secondaire)* . . . 108
3.7 *Figures de pôles (00.2), (10.0) et (11.0), à mi-épaisseur, de la tôle de M5® relaminée à froid de 1,2 à 0,6mm puis recuite durant 16h à 700°C (sous vide secondaire)* . . . 109
3.8 *Micrographies optiques (contraste de Nomarsky) du M5® et des matériaux modèles à taille de grains distincte après essais de fluage à 700°C (domaine quasi-α, zone utile des éprouvettes)* . . . 111
3.9 *Comportement expérimental en fluage à 700°C (domaine quasi-α) du M5® et des matériaux modèles à tailles de grains distinctes (un essai par matériau)* . . . 112
3.10 *Evolution des vitesses de fluage du M5® et des matériaux modèles en fonction de la taille de grains à 700°C (domaine quasi-α) et pour une contrainte de 1MPa (régime* $n_1 = 1$*). Comparaison avec les modèles de fluage diffusionnel de Coble et de Nabarro-Herring* . . . 113
3.11 *Cycle thermique appliqué aux éprouvettes de fluage pour étudier le comportement à 900°C (domaine quasi-β des matériaux modèles à taille de grains spécifique)* . . . 114
3.12 *Micrographies optiques (lumière blanche) du M5® et des matériaux modèles à taille de grains distincte après essais de fluage à 900°C (domaine quasi-β) et un refroidissement four coupé (zone utile des éprouvettes)* . . . 115
3.13 *Comportement expérimental en fluage à 900°C (domaine quasi-β) du M5® et des matériaux modèles à taille de grains distinctes, mentionnées sur les courbes (un essai par matériau). Les vitesses sont évaluées par suivi de résistance* . . . 117
3.14 *Evolution des vitesses de fluage du M5® et des matériaux modèles en fonction de la taille de grains à 900°C (domaine quasi-β) et pour une contrainte de 1MPa (régime* $n_1 = 1$*). Comparaison avec les modèles de fluage diffusionnel de Coble et de Nabarro-Herring* . . . 118
3.15 *Evolution des vitesses de fluage du M5® et des matériaux modèles en fonction de la taille de grains à 900°C (domaine quasi-β) et pour une contrainte de 10MPa (régime* $n_2 = 4$*). Comparaison avec un modèle de type Hall-Petch* . . . 119
3.16 *Identification des énergies d'activation des deux régimes de fluage du M5® dans le domaine quasi-α (après prise en compte de l'effet de taille de grains)* . . . 121
3.17 *Identification de l'énergie d'activation du régime de fluage diffusionnel du M5® dans le domaine quasi-β (après prise en compte de l'effet de taille de grains)* . . . 123
3.18 *Identification de l'énergie d'activation du régime de fluage dislocations du M5® dans les domaines quasi-β (après prise en compte de l'effet de taille de grains) et β* . . . 124
3.19 *Comportement expérimental et modélisé en fluage du M5® dans les domaines quasi-β et β* . . . 124

3.20 *Carte de déformation (isovitesses) pour le modèle de fluage du M5® pour une taille de grains α et β de 10µm, avec extrapolation dans le domaine biphasé* . . 126
3.21 *Diagramme pseudo-binaire Zr-Nb déterminé à partir des analyses microsonde d'un alliage Zr-2,5%Nb recuit dans le domaine biphasé (Bethune et Williams (1969))* 131
3.22 *Diagramme pseudo-binaire Zr-O déterminé à partir des analyses métallographiques et de résistivité de Zircaloys (Chung et al. (1975), Garde et al. (1978))* 132
3.23 *Cartographie X de concentration en Nb (microsonde, zones claires riches en Nb) et micrographies optiques (lumière blanche) du M5® après essais de fluage dans le domaine biphasé (α+β) et refroidissement four coupé (zone utile des éprouvettes)* 133
3.24 *Diagramme pseudo-binaire Zr-Nb (1400ppm O) déterminé par analyses microsonde et par microscopie électronique en transmission du M5® après essais de fluage et traitements thermiques dans le domaine biphasé (α + β) et par calcul thermodynamique (Thermocalc^{TM} + Zircobase Dupin et al. (1999))* 134
3.25 *Micrographie électronique en transmission (champ clair) du M5® après traitement thermique dans le domaine biphasé (α + β) à 830°C (refroidissement par trempe à l'hélium)* 135
3.26 *Diagramme pseudo-binaire Zr-O (1% de Nb) déterminé par calcul thermodynamique (Thermocalc^{TM} + Zircobase Dupin et al. (1999))* 136
3.27 *Matériaux modèles représentatifs de chaque phase dans le domaine biphasé en cours et fin d'élaboration (Laboratoire de Technologie des Matériaux Extrêmes, Service de Recherches Métallurgiques Appliquées, CEA)* 138
3.28 *Figures de pôles (00.2), (10.0) et (11.0), à mi-épaisseur, de la tôle de matériau modèle pseudo-M5* 140
3.29 *Figures de pôles (00.2), (10.0) et (11.0), à mi-épaisseur, de la tôle du matériau modèle représentatif-β* 141
3.30 *Figures de pôles (00.2), (10.0) et (11.0), à mi-épaisseur, de la tôle de Zr-0,14%Nb* 143
3.31 *Figures de pôles (00.2), (10.0) et (11.0), à mi-épaisseur, de la tôle de Zr-0,28%Nb* 144
3.32 *Figures de pôles (00.2), (10.0) et (11.0), à mi-épaisseur, de la tôle de Zr-0,55%Nb* 145
3.33 *Fraction de phase β_{Zr} transformée à l'équilibre évaluée par calcul thermodynamique (Thermocalc^{TM} + Zircobase Dupin et al. (1999)) pour les différents alliages à teneur spécifique en niobium et oxygène* 146
3.34 *Fraction de phase β_{Zr} transformée évaluée par calorimétrie en conditions de « quasi-équilibre » (demi-hystérésis) pour les différents alliages à teneur spécifique en niobium et oxygène* 147
3.35 *Micrographies optiques (contraste de Nomarsky) du M5® et des matériaux à faible teneur en Nb après essais de fluage à 700°C (domaine quasi-α, zone utile des éprouvettes)* 148
3.36 *Comportement expérimental en fluage à 700°C (domaine quasi-α) du M5® et des matériaux à faible teneur en Nb (un essai par matériau)* 149
3.37 *Micrographies optiques (contraste de Nomarsky) des matériaux Zr-0,14 et 0,28%Nb après essais de fluage à 850 et 840°C respectivement (domaine quasi-α, zone utile des éprouvettes)* 150
3.38 *Comportement expérimental en fluage à 840-850°C (domaine quasi-α) des matériaux Zr-0,14 et 0,28%Nb (un essai par matériau)* 150
3.39 *Evolution des vitesses de fluage en fonction de la teneur en niobium du M5® et des matériaux à faible teneur en Nb dans le domaine quasi-α pour une contrainte de 10MPa. Les vitesses de fluage sont ramenées à une température de 700°C et une taille de grains de 6,3µm via l'équation 3.5 (pour le régime de fluage diffusionnel de Coble $n_1 = 1$) et l'équation 3.7 (pour le régime de fluage dislocations $n_2 = 5$)* 151

3.40 *Micrographies optiques (lumière blanche) du M5®, des matériaux à faible teneur en Nb (Zr-0,14 et 0,28%Nb) et des matériaux modèles pseudo-M5 (Zr-0,94%Nb-0,16%O) et représentatif-β (Zr-2,25%Nb-0,043%O) après essais de fluage dans le domaine β à 960°C et refroidissement étagé (zone utile des éprouvettes)* . . . 154
3.41 *Comportement expérimental en fluage à 960°C (domaine β) du M5®, des matériaux à faible teneur en Nb (Zr-0,14 et 0,28%Nb) et des matériaux modèles pseudo-M5 (Zr-0,94%Nb-0,16%O) et représentatif-β (Zr-2,25%Nb-0,043%O). Un essai par matériau* . . . 155
3.42 *Micrographies optiques (lumière blanche) du M5®, des matériaux modèles pseudo-M5 (Zr-0,94%Nb-0,16%O) et représentatif-β (Zr-2,25%Nb-0,043%O), et des matériaux Zr-0,55%Nb-0,0125%O et Zr-2,5%Nb-0,011%O-0,1%Fe après essais de fluage dans le domaine quasi-β et refroidissement four coupé (zone utile des éprouvettes)* . . . 157
3.43 *Comportement expérimental en fluage dans le domaine quasi-β du M5®, des matériaux modèles pseudo-M5 (Zr-0,94%Nb-0,16%O) et représentatif-β (Zr-2,25%Nb-0,043%O), et des matériaux Zr-0,55%Nb-0,0125%O et Zr-2,5%Nb-0,011%O-0,1%Fe (un essai par matériau)* . . . 158
3.44 *Evolution des vitesses de fluage en fonction de la teneur en niobium du M5® et des matériaux à teneur spécifique en niobium et oxygène dans les domaines β et quasi-β, pour une contrainte de 10MPa. Les vitesses de fluage sont ramenées à une température de 920°C et une taille de grains de 20µm via l'équation 3.10 pour le régime de fluage diffusionnel de Coble $n_1 = 1$ et à une température de 960°C et une taille de grains de 90µm via l'équation 3.12 pour le régime de fluage dislocations $n_2 = 4$)* . . . 159
3.45 *Comportement expérimental en fluage à 840°C (domaine biphasé (α + β)) du M5®, du pseudo-M5 (Zr-0,94%Nb-0,16%O) et du représentatif-β (Zr-2,25%Nb-0,043%O) après prise en compte de l'effet de taille de grains. Comparaison avec la modélisation utilisant les lois pour chacune des phases α et β extrapolées en température et taille de grains à partir des domaines monophasés quasi-α et β)* . 161
3.46 *Micrographies optiques (lumière blanche) du M5® et du pseudo-M5 (Zr-0,94%Nb-0,16%O) après essais de fluage à 840°C (domaine biphasé (α + β)) et refroidissement four coupé (zone utile des éprouvettes)* . . . 162

4.1 *Exemple de microstructure initiale monophasée α (à gauche), modélisée par une tesselation de Voronoï, constituée de polyèdres (détail à droite)* . . . 170
4.2 *Exemple de maillage de quelques polyèdres de Voronoï (à gauche, n_g=1) et du champ C créé par les facettes de ces polyèdres (à droite, portée $d_0 = 0,05L_g$)* . . 172
4.3 *Fraction de phase β visée en fonction du critère de seuillage du champ C (portée $d_0 = 0,05L_g$), construite sur la base d'un grand nombre de simulations de VE (1000 VE de taille $n_g = 1$)* . . . 173
4.4 *Exemple de maillages modélisant la microstructure biphasée du M5® à partir d'une même tesselation de Voronoï (n_g=1) et cinq valeurs du critère de seuillage, s. Nota : les artefacts observés au voisinage des interfaces sont associés à la visualisation, sous Cast3M, sous forme continue, de champs discontinus* 174
4.5 *Exemple de maillage modélisant la microstructure d'un polycristal biphasé (à droite, $f_{v\beta visée} = 30\%$) à partir d'une tesselation de Voronoï (à gauche, $n_g = 125$)* 175
4.6 *Exemple de maillage modélisant la microstructure biphasée de sphères booléennes ($f_{v\beta visée} = 30\%$) à partir de 125 germes en moyenne* . . . 176
4.7 *Exemple de microstructures biphasées obtenues à partir d'environ 100 polyèdres de Voronoï et les modèles des arêtes (à gauche) et des facettes (à droite) de Voronoï (Arns et al. (2002))* . . . 177

4.8 *Exemple de maillage modélisant la microstructure biphasée (à droite, $f_{v\beta visée} = 30\%$ pour $d_2 \approx 0,175L_g$) obtenue par seuillage du champ distance (au milieu) par rapport aux arêtes des polyèdres de Voronoï (à gauche, n_g=1)* 177

4.9 *Exemple de maillage modélisant la microstructure biphasée (à droite, $f_{v\beta} \approx 30\%$ pour $d_3 \approx 0,12L_g$) obtenue par seuillage du champ distance (au milieu) par rapport aux facettes des polyèdres de Voronoï (à gauche, n_g=1)* 178

4.10 *Application de Conditions aux Limites en Déformation Homogène pilotées en Contrainte (CLDHC) à un VES cubique, relation cinématique liant les points M du contour S du VE. O, A_1, A_2, A_3 sont quatre sommets du VE* 180

4.11 *Application de Conditions aux Limites Périodiques pilotées en Contrainte (CLPC) à un VE, relation cinématique liant les paires de points (M,M') du contour S du VE* 181

4.12 *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la fraction volumique de phase β pour les modèles de Taylor et de Sachs (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)* 189

4.13 *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la fraction volumique de phase β évaluées par l'approche au second-ordre (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)* 190

4.14 *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la fraction volumique de phase β évaluées par approche numérique statistique sur des polycristaux biphasés de Voronoï de 27 germes (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)* . . 191

4.15 *Comparaison des évolutions des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la fraction volumique de phase β évaluées par approche numérique statistique sur des polycristaux biphasés de Voronoï de 27 germes et par approche analytique au second-ordre auto-cohérente (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)* . 192

4.16 *Evolution des contraintes de fluage moyenne et moyennes par phase en fonction de la fraction volumique de phase β évaluées par approche numérique statistique sur des polycristaux biphasés de Voronoï de 27 germes avec les conditions aux limites périodiques (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)* 193

4.17 *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) moyenne et moyennes par phase en fonction de la fraction volumique de phase β évaluées par approche numérique statistique sur des polycristaux biphasés de Voronoï de 27 germes avec les conditions aux limites périodiques (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)* 193

4.18 *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) en fonction des morphologies étudiées, pour les trois types de conditions aux limites et les VES de tailles maximales utilisées ($f_{v\beta} \approx 30\%$, paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)* 195

4.19 *Evolution des contraintes de fluage moyenne et moyennes par phase en fonction des morphologies étudiées ($f_{v\beta} \approx 30\%$), avec les conditions aux limites périodiques (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)* 196

4.20 *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) moyenne et moyennes par phase en fonction des morphologies étudiées ($f_{v\beta} \approx 30\%$), avec les conditions aux limites périodiques (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)* 196

4.21 *Vitesse de fluage à 1MPa pour chacune des phases α et β extrapolée en température et taille de grains à partir des domaines monophasés quasi-α et β et incertitudes liées à la taille de grains dans le domaine biphasé (paramètres du modèle détaillés dans le tableau 3.7)* 199

4.22 *Modélisation du fluage du M5® dans le domaine biphasé à partir de lois pour chacune des phases α et β (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.2)* . 200

4.23 *Illustration en échelle linéaire de la possibilité de croisement entre les modèles de Sachs et de Taylor (hypothèses de contrainte et déformation homogène respectivement) pour un matériau biphasé et des lois de comportement non-linéaires pour chacune des phases α et β* 202
4.24 *Modélisations de Taylor et de Sachs (hypothèses de déformation et contrainte homogène respectivement) du fluage du M5® dans le domaine biphasé à partir de lois pour chacune des phases α et β (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.2)* 203
4.25 *Modélisations de Taylor et de Sachs (hypothèses de déformation et contrainte homogène respectivement) du fluage du M5® à 1MPa dans le domaine biphasé à partir de lois pour chacune des phases α et β extrapolées en température et taille de grains à partir des domaines monophasés quasi-α et β et incertitudes liées à la taille de grains dans le domaine biphasé (paramètres matériau détaillés dans le tableau 3.7)* 204
4.26 *Modélisation auto-cohérente (approche au second ordre) du fluage du M5® à 860°C à partir de lois pour chacune des phases α et β (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.2). Les hétérogénéités intraphases, $\delta\sigma$ (équation 4.45) et $\delta\dot{\varepsilon}$ (équation 4.46), sont mentionnées sur le graphe* 206
4.27 *Modélisation par éléments finis du fluage du M5® pour une contrainte de 1MPa à partir de lois pour chacune des phases α et β (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.2)* 208
4.28 *Hétérogénéités par phase de contraintes et vitesses de fluage du M5® pour une contrainte de 1MPa simulées par éléments finis en conditions aux limites périodiques à partir de lois pour chacune des phases α et β (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.2). Les hétérogénéités intraphases, $\delta\sigma$ (équation 4.45) et $\delta\dot{\varepsilon}$ (équation 4.46), sont mentionnées sur le graphe* 209
4.29 *Modélisation par éléments finis du fluage à 1-4-10 et 20MPa du M5® à 860°C à partir de lois pour chacune des phases α et β (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.2). Les hétérogénéités intraphases, $\delta\sigma$ (équation 4.45) et $\delta\dot{\varepsilon}$ (équation 4.46), sont mentionnées sur le graphe* 210
4.30 *Hétérogénéités par phase de contraintes et vitesses de fluage à 1-4-10 et 20MPa du M5® à 860°C simulées par éléments finis en conditions aux limites périodiques à partir de lois pour chacune des phases α et β (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.2). Les hétérogénéités intraphases, $\delta\sigma$ (équation 4.45) et $\delta\dot{\varepsilon}$ (équation 4.46), sont mentionnées sur le graphe* 211

A.1 *Dispositif expérimental de fluage axial à haute température sous vide secondaire* 223
A.2 *Géomérie des éprouvettes de fluage* 224
A.3 *Montage expérimental des éprouvettes de fluage* 224
A.4 *Positionnement de l'extensomètre laser de part et d'autre de la machine de fluage* 225
A.5 *Cycle thermique appliqué aux éprouvettes de fluage* 226
A.6 *Cycle de chargement mécanique appliqué aux éprouvettes de fluage (ici, par exemple, 10 paliers de chargement)* 227
A.7 *Tension U mesurée lors d'un changement de phase, ici au chauffage à 10°C/min* 230
A.8 *Résistivité relative lors d'un changement de phase, ici au chauffage à 10°C/min* 231
A.9 *Fraction de phase β transformée évaluée par mesure de résistance lors d'un changement de phase, ici au chauffage à 10°C/min* 232
A.10 *Fraction de phase β transformée au chauffage et au refroidissement évaluée par calorimétrie (vitesses de 10°C/min et demi-hystérésis) et par mesure de résistance (vitesses de 10 et 50°C/min)* 233

A.11 *Fraction de phase β transformée évaluée par mesure de résistance lors des essais de fluage en conditions de « quasi-équilibre »* 234
A.12 *Schéma descriptif du dépouillement de l'essai de fluage* 236
A.13 *Données expérimentales macroscopiques après un essai de fluage à 700°C (ici, 16 paliers de chargement, les numéros correspondants à leur ordre d'application)* 237
A.14 *Prédépouillement de l'essai de fluage à 700°C (ici, 16 paliers de chargement, les numéros correspondant à leur ordre d'application)* 238
A.15 *Modélisation de l'essai de fluage* 239
A.16 *Courbe de fluage dépouillée de l'essai à 700°C (ici, 16 paliers de chargement, les numéros correspondant à leur ordre d'application)* 241
A.17 *Comparaison des deux techniques pour le suivi du fluage à 700°C (ici, 16 paliers de chargement, les numéros correspondant à leur ordre d'application)* 242
A.18 *Comparaison entre les incertitudes de mesures (vitesses de déformation et contraintes vraies) pour les prédépouillements et l'apport du dépouillement par analyse inverse pour l'essai à 700°C* 247

B.1 *Micrographie optique (contraste de Nomarsky) du M5® dans le domaine quasi-α à gauche. Analyse micrographique repérant automatiquement les joints de grains à droite (MatLab)* 252
B.2 *Micrographie optique (lumière blanche) du M5® dans le domaine quasi-β à gauche. Analyse micrographique manuelle repérant les joints de grains à droite* . 253

C.1 *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) moyenne et moyennes par phase en fonction de la discrétisation temporelle pour les microstructures maillées par des éléments cubiques linéaires monophasés (cub8), les paramètres matériau sont détaillés dans le tableau 4.1* 258
C.2 *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) moyenne et moyennes par phase en fonction de la discrétisation temporelle pour les microstructures maillées par des éléments cubiques linéaires polyphasés (cub8), les paramètres matériau sont détaillés dans le tableau 4.1* 259
C.3 *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) moyenne et moyennes par phase en fonction de la discrétisation temporelle pour les microstructures maillées par des éléments cubiques quadratiques monophasés (cu20), les paramètres matériau sont détaillés dans le tableau 4.1* 260
C.4 *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) moyenne et moyennes par phase en fonction de la discrétisation temporelle pour les microstructures maillées par des éléments cubiques quadratiques polyphasés (cu20), les paramètres matériau sont détaillés dans le tableau 4.1* 261
C.5 *Evolution des déformations de fluage (100MPa) moyenne et moyennes par phase en fonction du temps pour un découpage de la simulation en 160 pas de calcul et un maillage avec des éléments quadratiques polyphasés (cu20), les paramètres matériau sont détaillés dans le tableau 4.1* 263
C.6 *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) moyenne et moyennes par phase en fonction du temps pour un découpage de la simulation en 160 pas de calcul et un maillage avec des éléments quadratiques polyphasés (cu20), les paramètres matériau sont détaillés dans le tableau 4.1* 264
C.7 *Calcul du critère de détection du régime permanent (fin du régime transitoire)* . 265
C.8 *Evolution des différentes fractions de phase β en fonction de la discrétisation spatiale* 267

C.9 *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) moyenne et moyennes par phase en fonction de la discrétisation spatiale pour les microstructures maillées par des éléments cubiques linéaires monophasés (cub8), les paramètres matériau sont détaillés dans le tableau 4.1* 268

C.10 *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) moyenne et moyennes par phase en fonction de la discrétisation spatiale pour les microstructures maillées par des éléments cubiques linéaires polyphasés (cub8), les paramètres matériau sont détaillés dans le tableau 4.1* 269

C.11 *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) moyenne et moyennes par phase en fonction de la discrétisation spatiale pour les microstructures maillées par des éléments cubiques quadratiques monophasés (cu20), les paramètres matériau sont détaillés dans le tableau 4.1* 270

C.12 *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) moyenne et moyennes par phase en fonction de la discrétisation spatiale pour les microstructures maillées par des éléments cubiques quadratiques polyphasés (cu20), les paramètres matériau sont détaillés dans le tableau 4.1* 271

C.13 *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) moyenne et moyennes par phase en fonction de la discrétisation spatiale pour toutes les morphologies étudiées, pour les trois types de conditions aux limites ($f_{v\beta} \approx 30\%$)* 273

C.14 *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la fraction volumique de phase β, évaluées par le modèle de Berveiller et Zaoui (1979) (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)* 274

C.15 *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la fraction volumique de phase β évaluées par l'approche affine (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)* 275

C.16 *Comparaison des évolutions des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la fraction volumique de phase β évaluées par approche numérique statistique sur des polycristaux biphasés de Voronoï de 27 et 8 germes (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)* 276

C.17 *Comparaison des évolutions des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la fraction volumique de phase β évaluées par approche numérique statistique sur des polycristaux biphasés, périodiques ou non, de Voronoï de 8 germes (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)* 277

C.18 *Comparaison des évolutions des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la fraction volumique de phase β évaluées par approche numérique statistique sur des polycristaux biphasés, périodiques ou non, de Voronoï de 27 germes (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)* 277

C.19 *Comparaison des évolutions des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la fraction volumique de phase β évaluées par approche numérique statistique sur des polycristaux biphasés de Voronoï de 27 germes et par approche analytique affine (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)* 278

C.20 *Comparaison des évolutions des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la fraction volumique de phase β évaluées par approche numérique statistique sur des polycristaux biphasés de Voronoï de 27 germes et par le modèle analytique de Berveiller et Zaoui (1979) (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)* 279

C.21 *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la taille des VES évaluées par approche numérique statistique sur le modèle de microstructure des polycristaux biphasés ($f_{v\beta} \approx 30\%$, paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)* 280

C.22 *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la taille des VES évaluées par approche numérique statistique sur le modèle de microstructure des sphères booléennes ($f_{v\beta} \approx 30\%$, paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)* 280
C.23 *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la taille des VES évaluées par approche numérique statistique sur le modèle de microstructure des arêtes de Voronoï ($f_{v\beta} \approx 30\%$, paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)* 281
C.24 *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la taille des VES évaluées par approche numérique statistique sur le modèle de microstructure des facettes de Voronoï ($f_{v\beta} \approx 30\%$, paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)* 281
C.25 *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la taille des VES évaluées par approche numérique statistique sur le modèle de microstructure biphasées du M5® ($f_{v\beta} \approx 30\%$, paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)* . . 282

Liste des tableaux

2.1 *Bilan bibliographique sur le fluage du zirconium (non allié) à haute température en phase α : tailles de grain d_g, exposant n et énergies d'activation E_a de la loi puissance* 60
2.2 *Bilan bibliographique sur le fluage du Zy-2 à haute température en phase α : tailles de grain d_g, exposant n et énergies d'activation E_a de la loi puissance* . . 61
2.3 *Bilan bibliographique sur le fluage du Zy-4 à haute température en phase α : tailles de grain d_g, exposant n et énergies d'activation E_a de la loi puissance* . . 62
2.4 *Bilan bibliographique sur le fluage des alliages Zr-Sn-Nb à haute température en phase α : tailles de grain d_g, exposant n et énergies d'activation E_a de la loi puissance* 63
2.5 *Bilan bibliographique sur le fluage des alliages Zr-1%Nb à haute température en phase α : tailles de grain d_g, exposant n et énergies d'activation E_a de la loi puissance* 64
2.6 *Bilan bibliographique sur le fluage du zirconium et des alliages de zirconium à haute température en phase β : exposant n et énergie d'activation E_a de la loi puissance* 70
2.7 *Bilan bibliographique sur le fluage des alliages de zirconium à haute température dans le domaine biphasé (α + β) : exposant n et énergie d'activation E_a de la loi puissance* 76

3.1 *Bilan bibliographique sur l'influence de la taille de grains sur le comportement en fluage du zirconium et ses alliages dans le domaine α* 93
3.2 *Tailles moyennes des grains α et β du M5® obtenues par analyse métallographique après les essais de fluage isotherme du chapitre précédent 2* 96
3.3 *Bilan bibliographique sur les traitements thermiques effectués afin de modifier la taille des grains α du zirconium et ses alliages* 99
3.4 *Bilan bibliographique sur les traitements thermo-mécaniques effectués afin de modifier la taille des grains α du zirconium et ses alliages* 100
3.5 *Bilan bibliographique sur les traitements thermo-mécaniques effectués afin de modifier la taille des grains α du zirconium et ses alliages (suite)* 101
3.6 *Bilan bibliographique sur les traitements thermo-mécaniques effectués afin de modifier la taille des grains α du zirconium et ses alliages (suite et fin)* 102
3.7 *Paramètres du modèle de fluage du M5® décrit par les équations 3.3, 3.4, 3.5, 3.6, 3.7, 3.8, 3.9, 3.10, 3.11 et 3.12* 126
3.8 *Composition chimique en niobium et oxygène représentative de chaque phase dans le domaine biphasé à 860°C (pourcentages massiques)* 136
3.9 *Compositions chimiques visées et obtenues en principaux éléments d'alliage des matériaux modèles représentatifs de chaque phase dans le domaine biphasé (pourcentages massiques)* 139
3.10 *Composition chimique en principaux éléments d'alliage des matériaux complémentaires à teneurs spécifiques en Nb et O (pourcentages massiques)* 142

4.1 *Paramètres matériau choisis pour le modèle de Norton pour les phases α et β pour tester l'effet de morphologie* 187
4.2 *Paramètres du modèle de fluage M5® dans le domaine biphasé prenant en compte l'effet de la température et de la taille de grains pour les phases α et β* 198
4.3 *Fractions volumiques de phase β du M5® considérées dans le domaine biphasé, mesurées par suivi de résistance avant les essais de fluage* 201

B.1 *Composition de l'attaque chimique pour l'analyse métallographique des échanillons biphasés, quasi-β et β d'alliages Zr-Nb* 251

Remerciements

Cette thèse a été réalisée dans le cadre d'une collaboration entre le Centre des Matériaux des Mines ParisTech et le Service de Recherches Métallurgiques Appliquées du Commissariat à l'Energie Atomique. Elle a bénéficié également du soutien d'EDF-SEPTEN et d'AREVA-NP.

Je tiens tout d'abord à remercier mes directeurs Anne-Françoise Gourgues-Lorenzon et Samuel Forest pour leur constante disponibilité, la confiance qu'ils m'ont accordée et leurs conseils avisés durant ces années de recherche doctorale. Ma gratitude va également à ceux qui m'ont encadré, Laurence Portier, Jean-Christophe Brachet et Lionel Gélébart, sans oublier Valérie Vandenberghe : sans leur écoute attentive, leurs compétences sans faille, leurs encouragements répétés, leur patience à toute épreuve, cette thèse n'aurait sans doute jamais pu être menée à bien.

Mes remerciements s'adressent aussi aux membres du jury pour les remarques qu'ils m'ont faites : Mme Elisabeth Aeby-Gautier et MM. Eric Andrieu, Christian Bernaudat, René Billardon, Jean-Paul Mardon, Philippe Pilvin. René Billardon m'a fait l'amitié de présider le jury de thèse de son ancien étudiant à l'Ecole Normale Supérieure de Cachan.

J'ai aussi une pensée pour l'ensemble des chercheurs, techniciens, doctorants et stagiaires que j'ai cotoyés à la fois aux Mines de Paris et au CEA de Saclay, tout particulièrement pour Jean-Luc Béchade, Thomas Guilbert, Didier Hamon, Anne Laurent, Franck N'Guyen, Fabien Onimus, André Pineau, Nicolas Richard, Michel Rousselot, Caroline Toffolon, Stéphane Urvoy, Ludovic Vincent.

Je remercie enfin tous mes proches, parents et amis.

Chapitre 1

Introduction de l'étude et présentation du matériau

Ce chapitre introductif décrit tout d'abord le contexte industriel nucléaire du projet, même si l'étude en elle-même est située très en amont de ces conditions. Il s'agit de l'étude du comportement du gainage combustible des réacteurs à eau pressurisée, en conditions hypothétiques accidentelles (scénario d'Accident par Perte de Réfrigérant Primaire (APRP)). En particulier, le domaine d'intérêt est le tout début du transitoire accidentel consistant en une brusque élévation de la température par rapport aux conditions nominales de fonctionnement.

L'étude a porté exclusivement sur l'alliage de zirconium $M5^{TM}$, qui est ensuite présenté. Dans ces conditions hypothétiques accidentelles, à haute température, le matériau subit notamment une transformation de phases allotropique $\alpha \rightarrow \beta$, qui le modifie en profondeur.

Enfin, la problématique scientifique et la démarche de la thèse sont abordées. Comme l'ont montré les études antérieures (notamment Forgeron et al. (2000), Fréchinet (2001), Kaddour (2004)), cette transformation de phases influence directement le comportement mécanique du matériau. Si ce comportement peut-être modélisé macroscopiquement et phénoménologiquement de manière satisfaisante (Forgeron et al. (2000)), une compréhension plus fine du comportement du matériau dans le domaine biphasé (i.e. entre 800 et 960°C environ) nécessite des investigations supplémentaires en amont, qui sont l'objet de ce manuscrit.

Les conditions amont de l'étude, non représentatives des conditions en réacteur, sont également décrites.

Sommaire

1.1 Contexte industriel de l'étude 25
1.1.1 Gainage combustible des Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) 25
1.1.2 Conditions nominales de fonctionnement 27
1.1.3 Conditions accidentelles hypothétiques : Accident par Perte de Réfrigérant Primaire (APRP) 28
1.2 Matériau d'étude : l'alliage M5® 30
1.2.1 Généralités sur les alliages de zirconium 30
1.2.1.1 Le zirconium pur 30
1.2.1.2 Historique de développement du zirconium et ses alliages 32
1.2.1.3 Elaboration des gaines ou tôles en alliages de zirconium 34
1.2.2 L'alliage M5® 35
1.2.2.1 Caractéristiques du matériau de l'étude 35
1.2.2.2 Phases et transformations de phase 37
1.2.2.3 Suivi expérimental des transformations de phases 41
1.3 Problématique scientifique 44
1.3.1 Modèle CEA métallurgique et thermo-mécanique EDGAR 44
1.3.2 Caractère amont des conditions de l'étude 46
1.3.3 Etudes antérieures et démarche de l'étude 48

1.1 Contexte industriel de l'étude

1.1.1 Gainage combustible des Réacteurs à Eau Pressurisée (REP)

Cette étude s'inscrit dans un projet de soutien au nucléaire industriel, *i.e.* aux réacteurs nucléaires actuellement en service et concerne plus particulièrement la tenue du gainage combustible en alliage de zirconium $M5^{TM}$ des Réacteurs à Eau Pressurisée (REP). Ces réacteurs constituent l'essentiel du parc actuel (100% en France, environ 80% en Europe et environ 60% dans le monde) et font partie des réacteurs dits de deuxième génération (Lemaignan et Motta (1994), Bacher (2005), Boiron (2008)).

Dans cette technologie (REP), la chaleur est produite dans le cœur du réacteur (figure 1.1) par une réaction de fission du combustible nucléaire, constitué d'uranium enrichi (sous la forme d'oxyde d'uranium UO_2 ou de MOX). Le taux d'enrichissement du combustible en isotope U-235 peut varier de 3 à 5%, selon les pays et leur réglementation. Le combustible se présente sous la forme de pastilles empilées et confinées dans un gainage métallique, l'ensemble constituant un crayon (figure 1.2). Ces crayons combustibles sont regroupés parallèlement au sein d'assemblages par l'intermédiaire de grilles et de tubes guides (figure 1.2 : assemblage « 17x17 » de 264 crayons, 24 tubes guides et 1 tube d'instrumentation). Selon les cas, une cuve de REP est chargée avec 120 à 250 de ces assemblages combustibles, soit environ de 130 à plus de 260 km de gainage.

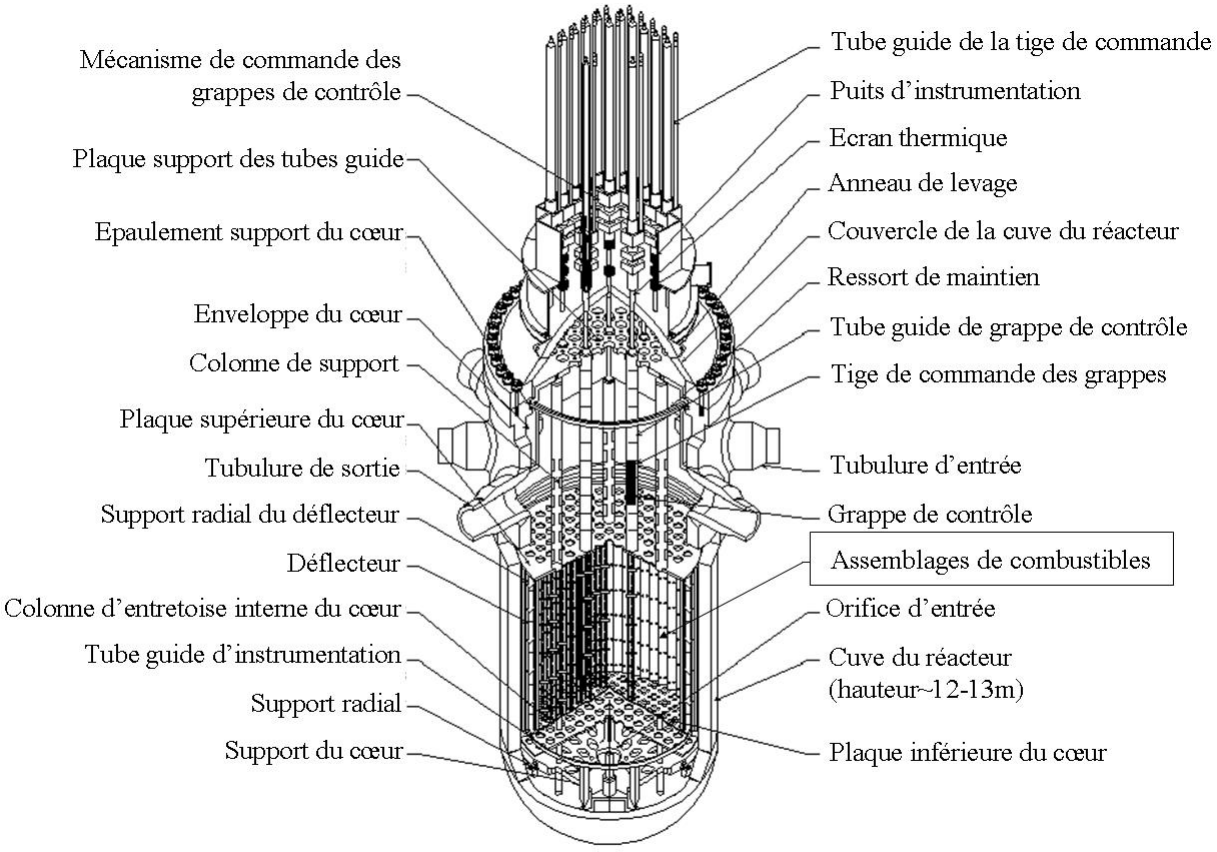


Figure 1.1 – *Cœur d'un Réacteur à Eau Pressurisée (REP, d'après un schéma de la Commission de Régulation Nucléaire américaine (NRC))*

Le fluide caloporteur utilisé dans les REP est principalement de l'eau (avec quelques additifs) : on la fait circuler sous pression (environ 155 bars) dans le circuit primaire et au sein des

assemblages de crayons afin d'extraire la chaleur produite par le cœur du fait de la réaction en chaîne de fission. La température de ce réfrigérant primaire est de l'ordre de 280°C à l'entrée du cœur, et atteint environ 320°C en sortie. Cette chaleur est ensuite transférée au circuit secondaire par l'intermédiaire de générateurs de vapeur d'eau, sous une pression d'environ 55 bars et à une température de 270°C. Cette vapeur entraîne un système de turbines reliées à des alternateurs producteurs d'électricité avant de se condenser, le surplus calorifique étant évacué par le circuit tertiaire de réfrigération.

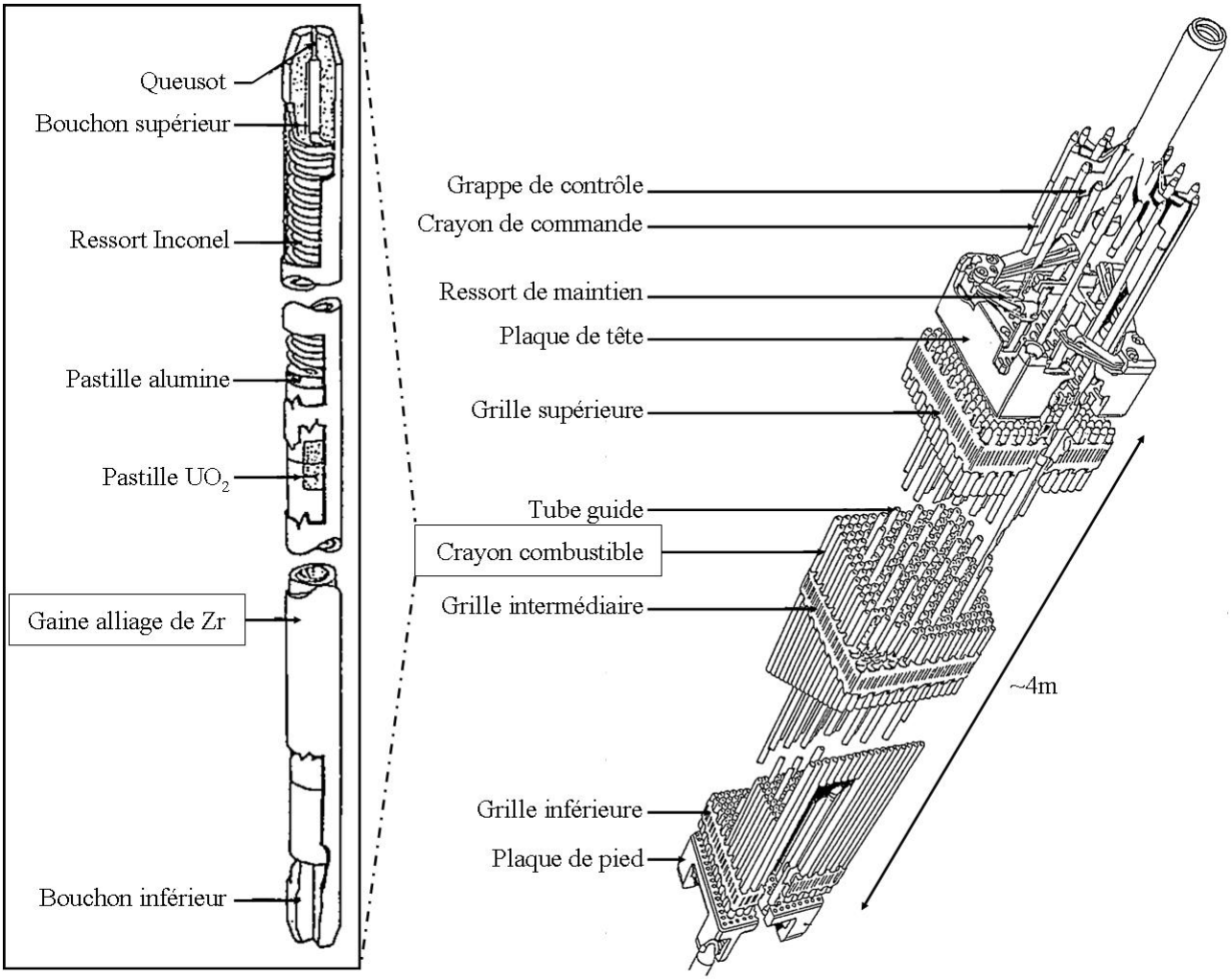


Figure 1.2 – *Assemblage combustible et détail d'un crayon combustible (d'après des schémas d'EDF)*

La réaction de fission est modérée à la fois par la hauteur d'insertion des crayons de commande (figure 1.2), qui contiennent des absorbants neutroniques et sont insérés dans les assemblages combustibles, et par l'eau du circuit primaire elle-même, en fonction de sa concentration en bore.

Afin de compenser en partie la pression de 155 bars exercée par l'eau sur le gainage combustible, de l'hélium est introduit sous pression (30 bars) dans le plénum des crayons. Par ailleurs, lors de la réaction de fission, les produits de réaction, notamment gazeux, restent confinés avec l'oxyde d'uranium à l'intérieur du crayon, ce qui accroît la pression interne qui agit sur la gaine.

La gaine constitue la première barrière de confinement du combustible nucléaire, les barrières suivantes étant le circuit primaire et l'enceinte de confinement du réacteur. En tant que

telle, une attention particulière est donc portée à son intégrité dans le cadre des études de sûreté. Cette triple barrière de confinement des matières radioactives fait partie du concept de « défense en profondeur » qui est appliqué pour la conception des réacteurs nucléaires.

1.1.2 Conditions nominales de fonctionnement

En conditions nominales, durant son séjour en réacteur, la gaine est soumise à des chargements sévères (Armand et al. (1977), Franklin et al. (1983), Decours (1989), Lemaignan et Motta (1994), Traccucci et Leclercq (1996), Barbu et Massoud (2008), Mardon (2008)) :

– chargement thermique :

La température de la gaine est voisine de la température de l'eau du circuit primaire (280-320°C). Néanmoins, étant en contact avec les pastilles de combustible en face interne, cette température peut localement être plus importante (de l'ordre de 360°C au pic de température) ;

– chargement mécanique :

En face externe, la gaine subit la pression du réfrigérant (155 bars) et en face interne la pression induite par l'hélium introduit initialement (30 bars) et par les gaz de fission créés au fur et à mesure de la fission du combustible. Il faut également noter que les pastilles ont tendance à gonfler et à induire des déformations radiales et axiales de la gaine (« Interaction Pastille-Gaine » ou IPG). En présence notamment d'iode, produit par la réaction de fission, la gaine peut ainsi subir de la corrosion sous contrainte en face interne ;

– oxydation et hydruration :

La face externe de la gaine est en contact avec l'eau du circuit primaire et une couche de zircone apparaît par oxydation du métal. Cette couche d'oxyde, dont l'épaisseur peut atteindre quelques dizaines de microns en fin de vie (Zircaloy-4), diminue la conductivité thermique, ce qui augmente le gradient de température dans l'épaisseur de la gaine et affecte la transmission de la chaleur au fluide. La réaction d'oxydation libère, par dissociation des molécules d'eau, de l'hydrogène, dont une partie (5 à 20% environ selon l'alliage) pénètre par diffusion dans la gaine. Son accumulation tend à fragiliser la gaine, notamment par la formation d'hydrures à basses températures.

Ces points sont importants car les phénomènes d'oxydation et d'hydruration sont limitants pour la durée de vie du combustible en réacteur (problématique haut « burn-up » ou taux de combustion) ;

– irradiation :

Le gainage combustible est traversé par un flux de neutrons émis par la réaction de fission. Une partie de ces neutrons interagit avec le matériau, entraînant des « déplacements d'atomes » et donc des « défauts d'irradiation », ce qui modifie ses propriétés. Le nombre de déplacements d'atomes subi dépend bien entendu des conditions spécifiques de chaque réacteur, mais on considère qu'au cours du séjour de trois ans en réacteur les atomes de la gaine subissent chacun en moyenne environ une vingtaine de déplacements (20 « déplacements par atome » ou dpa) par rapport à leur position d'équilibre dans le réseau cristallin.

Les effets de l'irradiation et de ces déplacements sont divers : augmentation de la concentration de boucles de dislocations qui entraîne un durcissement et une perte de ductilité, modifications dimensionnelles qui résultent de la croissance sous irradiation (création de lacunes) et du fluage d'irradiation (fluage spécifique aux conditions d'irradiation), dissolution, décomposition ou reprécipitation des phases intermétalliques, qui influencent notamment les propriétés de corrosion.

En fonctionnement normal, ainsi que lors des scénarios d'incidents de fonctionnement les plus probables (de l'ordre de 10^{-4} à 10^{-2} par réacteur et par an en termes de probabilité d'occurence), les critères de sûreté imposent que l'intégrité de la gaine soit préservée. Un grand nombre d'études concernent ainsi le comportement de la gaine en conditions nominales ou incidentelles. Ici, l'étude porte sur des conditions accidentelles.

1.1.3 Conditions accidentelles hypothétiques : Accident par Perte de Réfrigérant Primaire (APRP)

En cas d'accidents hypothétiques de classe IV (de l'ordre de 10^{-6} à 10^{-4} par réacteur et par an en termes de probabilité d'occurence), la rupture de la gaine est envisagée, mais le respect des critères de sûreté permet d'assurer la refroidissablité du cœur du réacteur à long terme.

L'Accident par Perte de Réfrigérant Primaire (APRP) est l'une de ces situations de référence utilisées dans les études de dimensionnement et de sûreté des REP. Ce scénario est envisagé dans le cas d'une rupture d'une branche du circuit primaire. En fonction de l'emplacement et de la taille de la brèche, le transitoire accidentel varie de manière très importante. Par exemple, si la brèche est située en amont du cœur (branche froide), ce dernier se retrouve privé d'une partie de son refroidissement, ce qui entraîne des conséquences plus graves qu'une brèche située en aval (branche chaude). De la même manière, la taille de la brèche influence le déroulement de l'accident. Il en résulte une grande variété de scénarii. D'autres paramètres entrent également en ligne de compte comme le type de réacteur (nombre de boucles, systèmes de secours et nombre d'assemblages) ou la gestion du combustible (type et enrichissement du combustible et cycles dans le réacteur).

Afin de prévoir les dommages éventuels, le comportement thermo-hydraulique du circuit primaire a été modélisé (par exemple avec les codes de calcul CATHARE et METEOR (Rousseau (1978), Pialla (2005), Herer et Gallori (2000))). Ces simulations fournissent un certain nombre d'informations, en particulier le transitoire température-pression que subit le gainage combustible. En fonction du type d'accident, la durée du transitoire peut varier d'une centaine de secondes à une trentaine de minutes et la température maximale atteinte est également très variable (de 700 à 1200°C maximum). Par ailleurs, pour un même accident, le transitoire vu par le gainage combustible dépend aussi de l'endroit dans le cœur et de la cote verticale considérés.

La figure 1.3 décrit de manière schématique un accident de type « Grosse Brèche » (GB). L'accident est ici supposé déclenché par une rupture dite guillotine doublement débattue (franche et complète) d'une branche froide du circuit primaire. Le milieu primaire s'écoule alors par les deux tronçons, en aval et en amont de la brèche. Dans ce scénario, les moyens d'injection d'eau, en particulier de secours, sont maintenus (le dénoyage permanent du cœur est donc évité). Les gaines de combustible sont néanmoins soumises à un transitoire les portant rapidement à haute température (700-1200°C), en présence de vapeur d'eau et avec une pression interne significative.

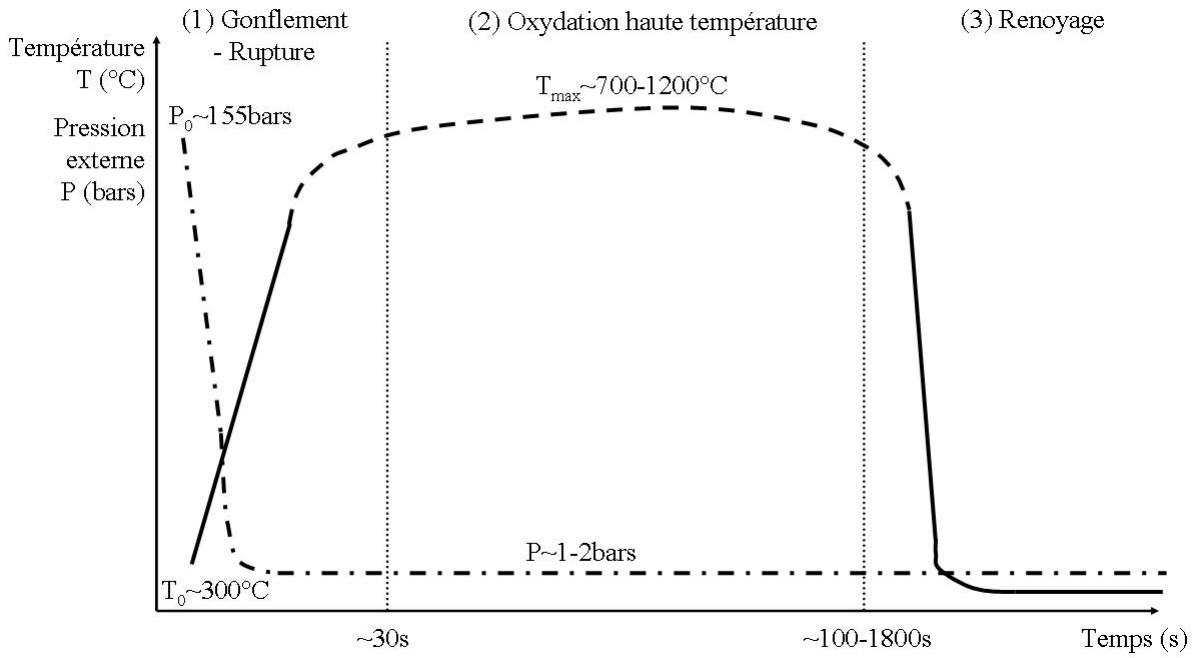


Figure 1.3 – *Transitoire schématique simplifié d'un Accident par Perte de Réfrigérant Primaire (APRP) de type « Grosse Brèche » (GB)*

Le transitoire APRP (figure 1.3) peut être décomposé en 3 étapes qui correspondent à des problématiques différentes concernant le comportement du gainage combustible :

1. Phase (1), gonflement - rupture :

   Dans un premier temps, la perte de réfrigérant entraîne une dépressurisation de 155 à quelques bars. La pression de saturation de vapeur est atteinte en un dixième de seconde environ, suivie par l'ébullition de l'eau. Les échanges thermiques entre gaine et réfrigérant étant alors amoindris, cela provoque une très forte élévation de la température. Soumises à une pression interne à haute température, les gaines fluent et gonflent. Ce gonflement peut se localiser (phénomène de ballonnement) jusqu'à une éventuelle rupture. La principale préoccupation à ce stade est que le gonflement des gaines risque de mener à l'obstruction des canaux de refroidissement (on parle alors de « bouchage »).

   Cette chute brutale de pression active dans la seconde un signal d'arrêt d'urgence conduisant à la chute des barres de commande afin de diminuer au maximum la puissance nucléaire produite dans le réacteur. Sous l'effet de la puissance thermique résiduelle, la température continue d'augmenter. Le signal d'arrêt d'urgence a également pour effet d'enclencher la décharge des accumulateurs. Bien qu'une partie de l'eau de ces accumulateurs soit perdue au niveau de la brèche, il en parvient suffisamment pour éviter le dénoyage permanent du cœur et stabiliser la température entre 700 et 1200°C. la pression atteint également une valeur stabilisée.

2. Phase (2), oxydation haute température :

   Ensuite, à cette température et en présence de vapeur, les gaines s'oxydent (réaction également exothermique), ce qui les fragilise. La chaleur est évacuée par la mise en action des différents injecteurs de secours. Ceux-ci débitent dans le circuit primaire afin de com-

penser la perte de masse par la brèche et améliorent le refroidissement des gaines.

3. Phase (3), renoyage :

   L'activation du renoyage par le bas peu après le déclenchement du signal d'arrêt d'urgence entraîne un remplissage progressif du cœur et provoque l'arrivée du front de trempe en regard du gainage. Ce renoyage, à condition que les canaux ne soient pas totalement bouchés, refroidit efficacement l'ensemble et trempe l'ensemble des assemblages combustible.

Afin de démontrer la capacité de refroidissabilité du cœur à long terme, les exigences de sûreté se traduisent par un certain nombre de critères portant sur la déformation et la fragilisation des gaines au cours du transitoire. La problématique de déformation est essentiellement associée à la première phase du transitoire tandis que la fragilisation résulte pour l'essentiel des deux phases suivantes. Dans une démarche enveloppe, chaque étape du transitoire fait donc l'objet d'études dans les conditions les plus pénalisantes, l'ensemble de ces conditions ne pouvant se rencontrer lors d'un même APRP (Grandjean (2005, 2006), Grandjean et Hache (2008)).

Ce travail de thèse s'inscrit plus particulièrement dans la première phase du transitoire APRP (gonflement - rupture).

1.2 Matériau d'étude : l'alliage M5®

1.2.1 Généralités sur les alliages de zirconium

1.2.1.1 Le zirconium pur

De numéro atomique 40 et de masse atomique 91,22g.mol^{-1}, l'élément zirconium compose avec l'hafnium et le titane la classe IV-A de la classification périodique des éléments. Certaines de leurs propriétés, liées à la structure électronique, sont donc assez proches. Le zirconium solide existe sous deux formes allotropiques stables en fonction de la température (Armand et al. (1977), Decours (1989), Charquet (1985a), Lemaignan et Motta (1994), Tricot (1994), Barberis (2009)) :

1. phase α, hexagonale, à basse température et jusqu'à 863°C.
   Cette structure hexagonale entraîne naturellement une anisotropie de certaines propriétés du matériau. Les principales propriétés physiques de cette phase à 20°C sont les suivantes (Couterne et Cizeron (1966, 1969), Terai et al. (1997), Paradis et Rhim (1999), Benites et al. (2000), Benites et Fernández Guillermet (2000), Rösner-Kuhn et al. (2001), Milošević et Maglić (2006)) :
   - paramètres de maille : a=0,323nm et c=0,515nm
     (soit un rapport $\frac{c}{a} = 1,593 < \sqrt{\frac{8}{3}}$ correspondant à la compacité idéale) ;
   - masse volumique : 6,5g.cm^{-3} ;
   - chaleur massique : 276J.kg^{-1}.K^{-1} ;
   - conductivité thermique : 21,1W.m^{-1}.K^{-1} ;
   - résistivité électrique : $0,44\mu\Omega.m$;
   - coefficients de dilatation thermique : selon l'axe a $\approx 5.10^{-6}$K^{-1},
     selon l'axe c $\approx 9,5.10^{-6}$K^{-1} ;

– modules d'Young : selon l'axe a 99GPa,
selon l'axe c 125GPa ;

2. phase β, cubique centrée, à haute température à partir de 863°C.

Cette structure est plus isotrope. Ses propriétés physiques principales à 900°C sont (Terai et al. (1997), Paradis et Rhim (1999), Benites et al. (2000), Benites et Fernández Guillermet (2000), Rösner-Kuhn et al. (2001), Milošević et Maglić (2006)) :

– paramètres de maille : a=0,362nm ;
– masse volumique : 6,48g.cm^{-3}
à la température de transition de phases, cette structure cristalline est plus dense que la structure α et la transformation $\alpha \rightarrow \beta$ se traduit donc par une contraction volumique ;
– chaleur massique : 325J.kg^{-1}.K^{-1} ;
– conductivité thermique : 29W.m^{-1}.K^{-1} ;
– résistivité électrique : 1,11$\mu\Omega.m$;
– coefficient de dilatation thermique : $\approx$ 5,5.10^{-6}K^{-1} ;
– module d'Young : 45GPa.

La température de fusion du zirconium est de 1854°C et sa température d'ébullition est de 3600°C sous pression atmosphérique (Matsuura et al. (1996), Milošević et Maglić (2006)).

L'enthalpie de formation de l'oxyde de zirconium est parmi les plus élevées pour les métaux (1093,1kJ.mol^{-1}), ce qui a pour conséquence une très grande réactivité vis-à-vis de l'oxygène, mais aussi une très grande stabilité de l'oxyde formé.

D'un point de vue cristallographique et comme pour le titane, Burgers (1934) propose un processus martensitique (figure 1.4) pour décrire la transformation de phases $\beta \rightarrow \alpha$ avec un mécanisme de cisaillement.

La phase mère et la phase fille obéissent alors aux relations d'orientations, dites de Burgers (1934) :

$$\{0001\}_\alpha \,//\, \{110\}_\beta \tag{1.1}$$

$$\langle 11\bar{2}0\rangle_\alpha \,//\, \langle 111\rangle_\beta \tag{1.2}$$

Ces relations d'orientation entraînent que lors de la transformation au chauffage $\alpha \rightarrow \beta$, un grain α génère six orientations possibles de grains β. *A contrario*, lors de la transformation au refroidissement $\beta \rightarrow \alpha$, douze orientations de grains α peuvent être créées à partir d'un grain β. Ces relations sont généralement bien vérifiées au refroidissement (Van Ginneken et Burgers (1952), Gaunt et Christian (1959), Langeron et Lehr (1959), Akhtar (1976a), Perovic et Weatherly (1989), Gey et al. (2002), Wenk et al. (2004), Stern (2007)), mis à part dans le cas d'une transformation de phases à partir de phase β brute de solidification (Akhtar (1976a)).

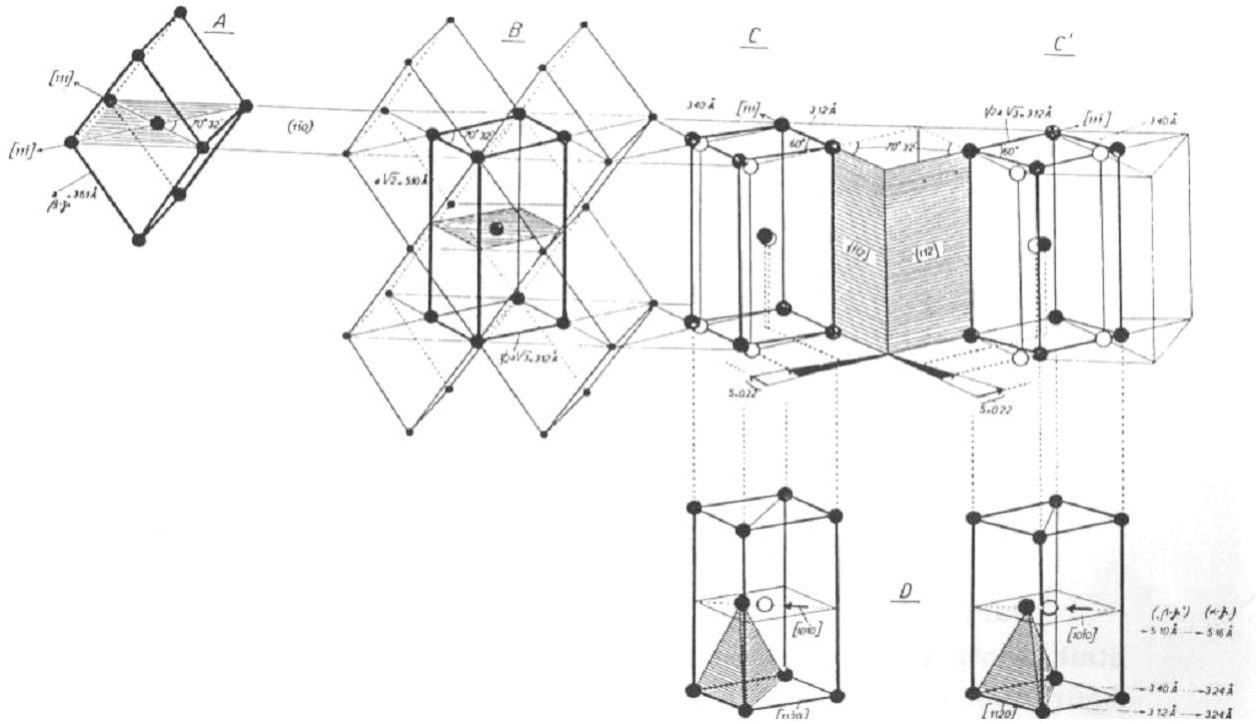


Figure 1.4 – *Représentation schématique de la transition du zirconium de la maille β cubique centrée vers la maille α hexagonale selon le mécanisme de Burgers (1934)*

1.2.1.2 Historique de développement du zirconium et ses alliages

Les alliages de zirconium sont utilisés comme matériau de gainage combustible, mais également pour la structure des assemblages combustibles (figure 1.2 : tubes guides, grilles). En effet, ceux-ci remplissent en particulier quatre critères de choix (Armand et al. (1977), Decours (1989), Tricot (1994), Lemaignan et Motta (1994), Mardon (2008)) :

- faible section de capture des neutrons afin d'optimiser le rendement de la réaction de fission ;
- résistance à la corrosion, ce qui permet de résister à l'eau du circuit primaire ;
- tenue mécanique suffisante aux températures nominales ;
- et relative stabilité de ces caractéristiques sous irradiation.

Même si l'essentiel des applications des alliages de zirconium concerne le domaine du nucléaire, leur grande résistance à la corrosion en milieu acide et également basique fait qu'ils sont aussi employés en génie chimique. D'autres applications existent mais sont plus marginales.

Le zirconium est un élément très répandu sur Terre (0,028% en masse de l'écorce terrestre). Il n'a pourtant été découvert qu'en 1789 par le chimiste allemand Klaproth sous forme de zircon ($ZrSiO_4$), contenant de la zircone (ZrO_2) et isolé sous forme métallique en 1824 par le chimiste suédois Berzélius. Etant encore très impur, ses propriétés (il est fragile et cassant) n'en font pas un matériau intéressant sous cette forme.

En 1925, Van Arkel et de Boer mettent au point un procédé de purification des métaux basé sur la dissociation de leurs iodures sur un filament chauffé à très haute température et à l'abri de l'air. Ils appliquent ce procédé au zirconium ainsi qu'au titane et à l'hafnium. Le zirconium alors obtenu se révèle relativement ductile et résistant à la corrosion.

En 1939, le Luxembourgeois Kroll développe pour la purification du titane une méthode de réduction des chlorures par le magnésium. Ce procédé est ensuite appliqué en 1945-48 au zirconium et sert ainsi de base à la fabrication industrielle d'éponge de zirconium.

En 1946, les Américains lancent leur programme de sous-marin nucléaire Nautilus qui doit être inauguré en 1955. A la recherche d'un matériau de gainage suffisamment transparent aux neutrons, résistant à la corrosion et mécaniquement, on s'est aperçu qu'en parvenant à éliminer la majeure partie des 2,5% d'hafnium contenus naturellement dans le zirconium (jusqu'à des teneurs inférieures à 100ppm), ce matériau présentait une faible section de capture des neutrons ($1{,}85.10^{-29}$m^2 pour des neurons thermiques de 25MeV à comparer à $1{,}15.10^{-26}$m^2 pour l'hafnium) et semblait répondre à ces critères.

C'est ainsi que s'est rapidement développée l'industrie métallurgique du zirconium. Par une étude systématique des effets des éléments d'alliage et des impuretés sur les propriétés des alliages de zirconium, le premier alliage de type Zircaloy, le Zircaloy-1, a d'abord été mis au point avec un ajout de 2,5% d'étain. Mais ses propriétés de résistance à la corrosion avaient tendance à se dégrader fortement au cours du temps. La pollution accidentelle par un acier austénitique contenant du chrome et du nickel a mené en 1952 à l'invention du Zircaloy-2 et de sa variante sans nickel, le Zircaloy-4.

L'utilisation industrielle des alliages de zirconium comme gainage combustible a donc débuté pour des applications nucléaires militaires dès 1955 aux Etats-Unis. Ce n'est qu'à partir des années 1970 que ces alliages ont remplacé les aciers inoxydables équipant les réacteurs civils depuis les années 1960, pour bénéficier en particulier de leur section de capture des neutrons trente fois moindre.

De nos jours, dans les réacteurs à eau légère, les gainages combustibles en service sont exclusivement en alliages de zirconium. Afin d'optimiser les propriétés en réacteur, de nombreux alliages et variantes de ces alliages ont été développés. Les deux principaux facteurs influents sont la composition chimique et le procédé de fabrication, qui améliorent ou détériorent selon les cas telle ou telle propriété. Les choix de conception des alliages résultent donc d'un compromis entre les différents facteurs en fonction des propriétés visées. On peut classer les alliages industriels utilisés comme gainage combustible selon trois grandes familles :

- les alliages Zircaloys : dans cette famille historique ont déjà été mentionnés le Zircaloy-2 qui est utilisé dans les réacteurs à eau bouillante (REB) et le Zircaloy-4 qui équipe les réacteurs à eau pressurisée (REP). Ces alliages contiennent essentiellement de l'étain (bénéfique pour les propriétés mécaniques mais moins en ce qui concerne la résistance à la corrosion), du fer, du chrome et de l'oxygène. Ces alliages sont encore très utilisés mais sont en cours de remplacement par les alliages suivants ;

- les alliages Zr-Nb : ils ont été initialement développés par les Russes, les Canadiens puis plus récemment par les Français dans l'optique d'améliorer les différentes propriétés par rapport aux alliages de type Zircaloy. Parmi les alliages utilisés actuellement, on peut citer : l'alliage Zr-2,5%Nb utilisé par les filières CANDU (CANada Deuterium Uranium, utilisant de l'eau lourde) et RBMK (Reaktor Bolshoy Moshchnosti Kanalniy, à eau bouillante et modérateur graphite) et également les alliages Zr-1%Nb dont celui utilisé par les réacteurs à eau pressurisée russes (VVER, Vodaa Vodiannee Energititscherski Reactor) et le matériau de notre étude, le M5®, destiné aux réacteurs à eau pressurisée (REP). Outre le Nb, les autres éléments d'alliage sont principalement l'oxygène et le fer, avec des teneurs encadrées strictement pour d'autres éléments mineurs comme le soufre ;

– les alliages quaternaires Zr-Sn-Fe-Nb : de développement plus récent, ces alliages visent à obtenir des proprietes mécaniques améliorées par l'ajout combiné de l'étain et de niobium. C'est la voie choisie par Westinghouse pour le « Zirlo^{TM} » et par AREVA (Chabretou et al. (2011)).

1.2.1.3 Elaboration des gaines ou tôles en alliages de zirconium

La première étape dans l'élaboration des gaines, tôles ou feuillards en alliages de zirconium est la fabrication d'éponge de zirconium à partir du minerai de zircon. La voie la plus couramment utilisée est la voie chimique : une attaque à base de chlore permet d'éliminer le silicium des chlorures de zirconium et d'hafnium ; ces derniers, chimiquement très proches, sont ensuite séparés, par exemple par distillation extractive ; par le procédé historique Kroll, les chlorures de zirconium sont réduits par du magnésium et on obtient, enfin, après distillation pour purifier le zirconium du magnésium résiduel, de l'éponge de zirconium (Armand et al. (1977), Decours (1989), Lemaignan et Motta (1994), Tricot (1994), Mardon (2008)).

La seconde étape est la fabrication de l'alliage sous forme de lingot. L'éponge de zirconium précédemment obtenue est compactée et mélangée à des alliages de zirconium recyclés. Les éléments d'alliage sont rajoutés lors de la constitution d'électrodes consommables lors de la fusion dans un four à arc, sous vide. Plusieurs fusions visent à homogénéiser la composition chimique du matériau.

La suite de l'élaboration diffère selon les alliages et la pièce à mettre en forme : ordre et répétition des opérations, température...

La troisième étape consiste en une succession de traitements thermo-mécaniques à chaud. Les lingots sont généralement mis en forme par forgeage dans le domaine β, au-delà de 1000°C et traités thermiquement à ces températures afin d'homogénéiser le matériau (dissolution des précipités). La mise en forme peut également être poursuivie dans le domaine biphasé ($\alpha + \beta$). Une ou plusieurs trempes permettent d'obtenir une répartition fine des précipités dans le matériau, ce qui est déterminant notamment pour la résistance finale à la corrosion. Dans la suite de l'élaboration, afin d'éviter de redissoudre les précipités, les températures ne dépasseront plus les 800°C.

La quatrième étape vise à ébaucher à chaud (entre 600 et 800°C) le produit. Dans le cas des gaines combustibles, le TREX (Tube Reduce EXtrusion) est ainsi réalisé par filage à chaud puis laminage et recuit. Dans le cas des produits plats, la méthode utilisée est le laminage.

Dans la cinquième étape, la mise en forme est achevée à froid par laminage. Pour les tubes de gainage, le laminoir utilisé est le laminoir à pas de pélerin (Montmitonnet et Aubin (2009)), et pour les tôles, un laminoir classique à rouleaux (Calmon et Cenac (1994), Biausser et al. (2000)). Plusieurs passes, dont le taux d'écrouissage atteint plusieurs dizaines de pourcents, sont réalisées, entrecoupées de recuits de recristallisation intermédiaires (entre 580 et 800°C selon les alliages et les procédés). Un recuit final est réalisé, selon les cas de détente (entre 400 et 500°C) ou de recristallisation (totale ou partielle, entre 500 et 700°C). Les taux d'écrouissage ainsi que les durées et températures des recuits sont déterminants pour la microstructure finale du matériau et par voie de conséquence pour les propriétés finales (Charquet (1985b), Mardon et al. (2000)). Notamment, les textures sont étroitement liées aux textures de déformation, et étant donnée l'anisotropie de la phase α hexagonale, influencent fortement le comportement du

produit.

Des opérations de finition (sablage, décapage...) et de contrôle (dimensions, défauts...) achèvent la fabrication des gaines et tôles.

1.2.2 L'alliage M5®

1.2.2.1 Caractéristiques du matériau de l'étude

Le matériau de l'étude est un alliage M5® se présentant sous forme de tôle de 1,18mm d'épaisseur, qui a été élaborée selon un procédé proche de celui décrit précédemment par la Compagnie Européenne du Zirconium Cézus, filiale d'AREVA NP. Appartenant à la famille des alliages Zr-Nb, le M5® peut être considéré à l'heure actuelle comme le matériau le plus optimisé du point de vue de sa composition chimique et de son procédé de fabrication vis-à-vis des propriétés en service, en particulier la tenue à la corrosion et la prise d'hydrogène (Mardon et al. (2000, 2005), Portier et al. (2005), Mardon (2008)).

Sa composition chimique nominale en principaux éléments d'alliage est la suivante (en pourcentage massique) :
- Nb : 1%,
- O : 0,14%,
- Fe : 0,035%,
- S : 0,0020-0,0025%.

Les autres éléments présents (C, Cr...) le sont en qualité d'impuretés, mais leur teneur est contrôlée.

La gamme finale de mise en forme est qualifiée de « basse température » (comparée aux autres procédés utilisés pour d'autres alliages) : les passes de laminage à froid sont alternées avec des recuits de recristallisation à 580°C de plusieurs heures. Grâce à un recuit final de recristallisation analogue, l'état métallurgique du matériau initial est recristallisé. Ainsi, la microstructure du matériau présentée figure 1.5. en microscopie optique est une fine microstructure de grains α équiaxes de taille relativement uniforme, de $6{,}3 \pm 0{,}5 \mu m$ de diamètre moyen équivalent (mesuré selon l'analyse métallographique décrite en annexe B).

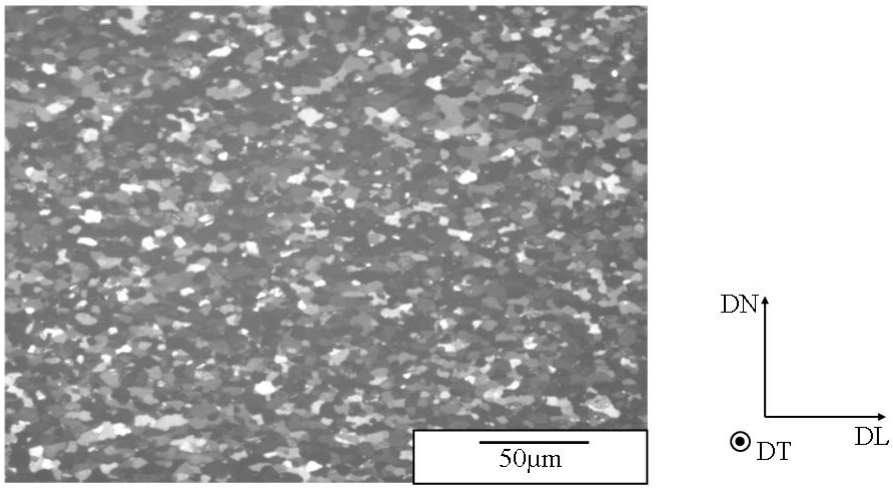


Figure 1.5 – *Métallographie optique (contraste de Nomarsky) du M5® à l'état initial de réception*

La texture à mi-épaisseur a été étudiée par la technique de diffraction des rayons X (figure 1.6). Les figures de pôles représentées sont les figures de pôles (00.2), (10.0) et (11.0) calculées à partir de la fonction de distribution des orientations cristallines pour un angle de basculement de 0 à 90°, en se basant sur les figures de pôles expérimentales, qui sont, elles, limitées à 75° (Bunge (1997)). Les repères des figures de pôles sont définis par les directions longitudinale ou de laminage (DL), normale (DN) et transverse (DT) à la tôle.

Le matériau est défini par :

- la figure de pôles (00.2) où les axes $\underline{c}$ sont étalés dans le plan (DN,DT) avec deux maxima, symétriquement situés de part et d'autre de DN, aux alentours de 24°, caractéristiques de produits plats laminés à froid suivant DL, dans le plan (DL,DT) ;
- la figure de pôles (10.0) un maximum suivant DL ;
- la figure de pôles (11.0) avec deux maxima vers 11° de DL.

Les plans prismatiques sont majoritairement orientés suivant DL de manière assez étalée. Il en ressort que les figures de pôles (10.0) et (11.0) sont caractéristiques de matériaux imparfaitement recristallisés.

Les facteurs de Kearns ont été calculés à partir de la figure de pôles (00.2) recalculée par la fonction de distribution des orientations cristallines (Kearns (2001)). Ce sont des facteurs d'anisotropie qui traduisent la distribution des axes $\underline{c}$ suivant les directions principales de l'échantillon : f_N pour la direction DN, f_L pour la direction DL et f_T pour la direction DT. Leur somme est égale à 1. Du fait de la présence des niveaux de densité les plus élevés à proximité de DN, le facteur f_N est le plus élevé.

En lien avec le procédé de mise en forme relativement voisin pour les gaines et les tôles, on peut remarquer que la texture finale de recristallisation observée ici dans le cas de la tôle s'avère être assez proche de celle observée par Kaddour (2004) dans le cas de la gaine.

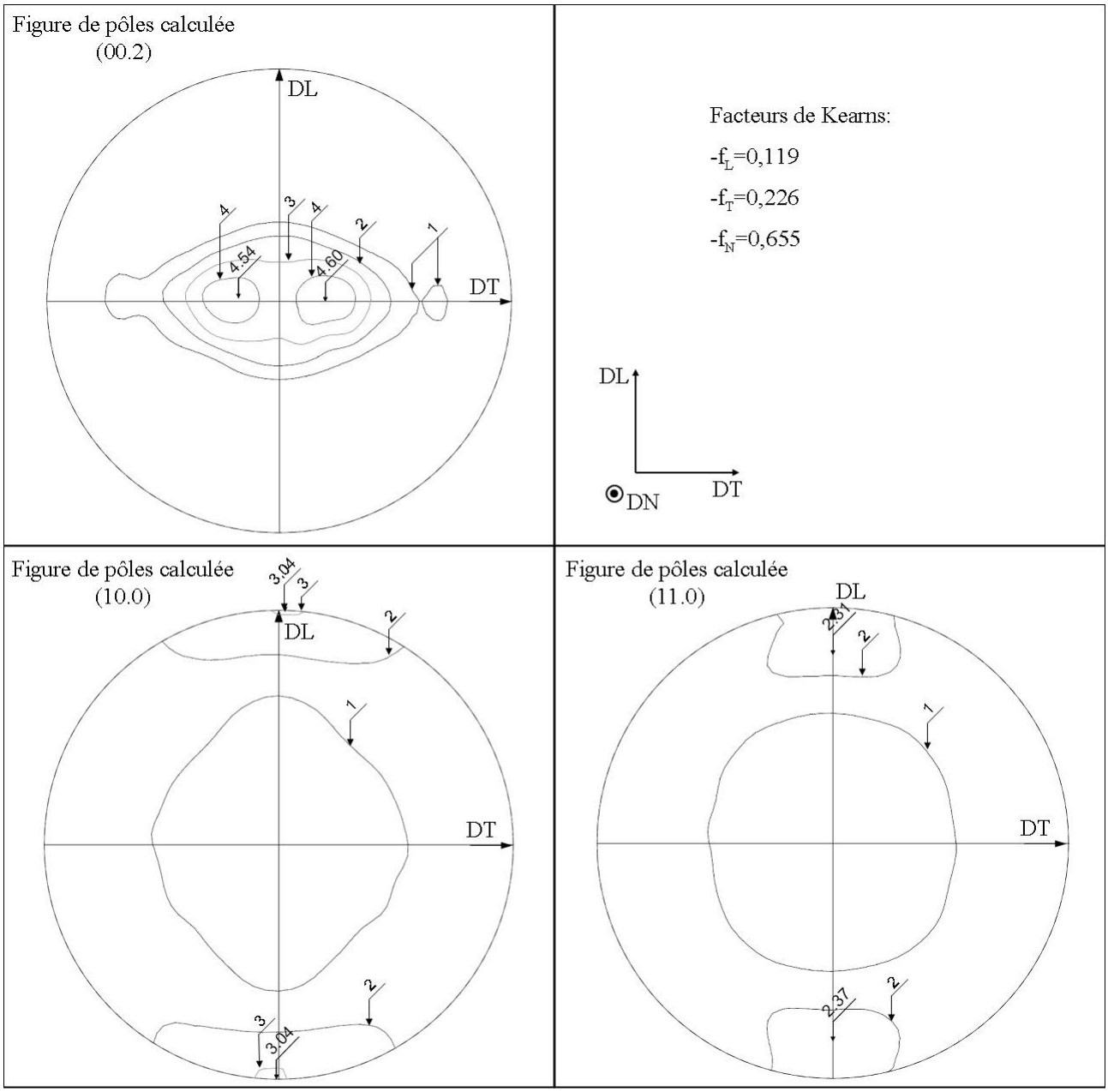


Figure 1.6 – *Figures de pôles (00.2), (10.0) et (11.0) recalculées, à mi-épaisseur, de la tôle de M5®*

1.2.2.2 Phases et transformations de phase

Les deux principaux éléments d'alliage du M5® sont le niobium et l'oxygène, mais aussi le soufre (pour le fluage) et le fer (pour la corrosion).

L'oxygène est un élément α-gène, *i.e.* étendant le domaine de température d'existence de la phase α et donc augmentant la température de transus $(\alpha + \beta) \rightarrow \beta$, (Hunt et Niessen (1970), Chung et Kassner (1979)). La figure 1.7 présente le diagramme d'équilibre du système binaire Zr-O. La limite de solubilité de la phase α se situe aux environs de 30% atomiques, quasiment indépendamment de la température. Dans notre cas, l'intégralité de l'oxygène est donc en solution solide en phase α. Le zirconium α possède deux types de sites interstitiels : tétraédriques et octaédriques. Les sites octaédriques sont les seuls suffisamment grands pour recevoir des atomes tels que l'oxygène.

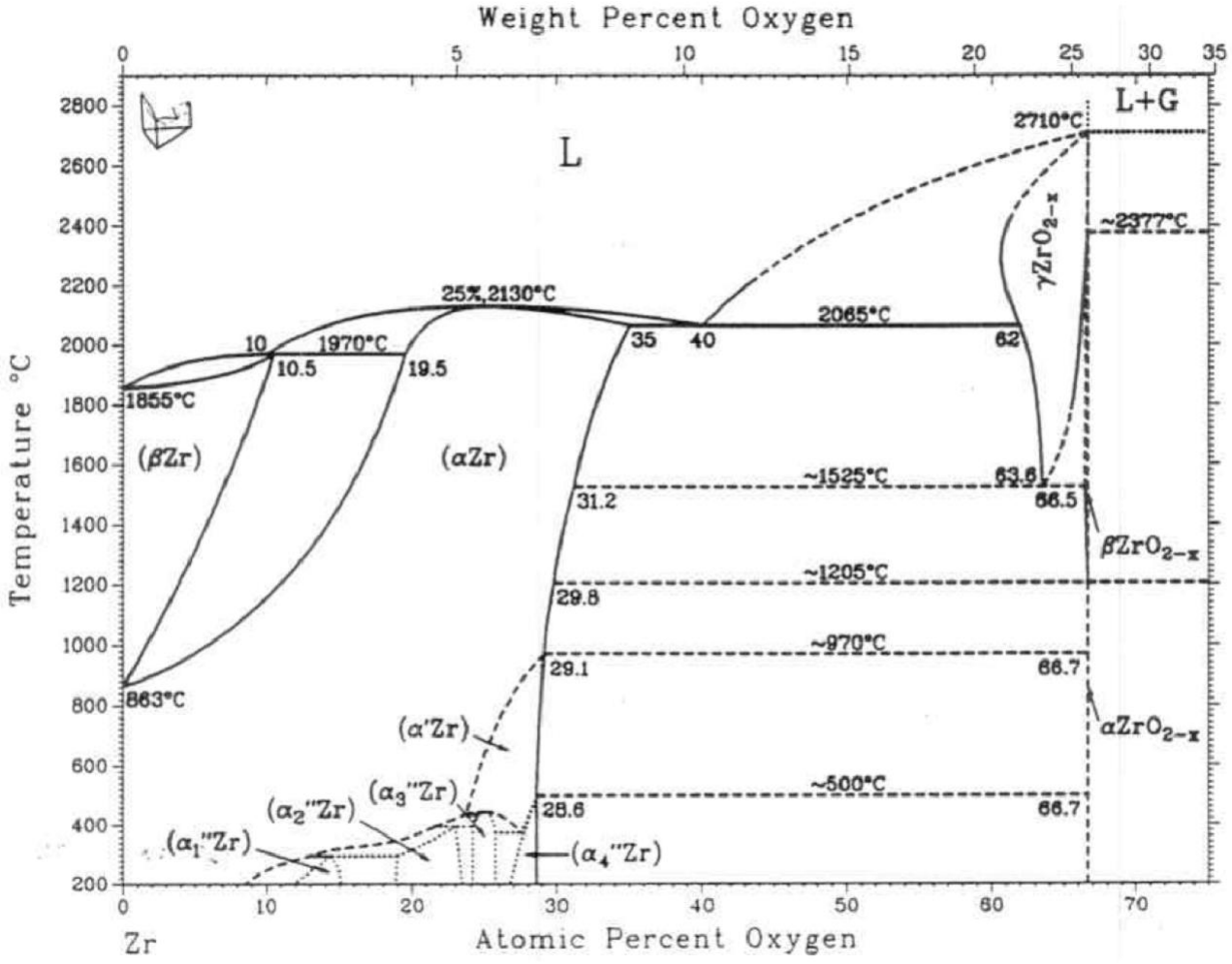


Figure 1.7 – *Diagramme d'équilibre du système binaire Zr-O (Abriata et al. (1986))*

Le niobium est un élément β-gène, *i.e.* étendant le domaine de température d'existence de la phase β et donc abaissant la température de transus ($\alpha \rightarrow \alpha + \beta$). La figure 1.8 présente le diagramme du système binaire Zr-Nb. Pour une fraction de niobium supérieure à environ 0,6% massiques, ce système présente vers 620°C une transformation monotectoïde :

$$\beta_{Nb} + \alpha_{Zr} \leftrightarrow \beta_{Zr} \tag{1.3}$$

En dessous du palier monotectoïde, pour une teneur en niobium de 1% massique, il existe donc un domaine biphasé $\beta_{Nb} + \alpha_{Zr}$ où α_{Zr} est une solution solide de zirconium α saturée en niobium et β_{Nb} est une solution solide cubique centrée riche en niobium (>85%).

La partie riche en zirconium du diagramme binaire Zr-Nb est présentée sur la figure 1.9. De nombreuses études ont proposé des valeurs de limite de solubilité du niobium dans la phase α du zirconium : Bethune et Williams (1969), Hunt et Niessen (1971), van Effenterre (1972), Vitikainen et Nenonen (1978), Nakai et al. (1981), Meng et Northwood (1989), Northwood et al. (1991), Lelievre (1998), Toffolon (2000), Kim et al. (2002), Woo et Griffiths (2009). Une grande variété de valeurs existe, les valeurs les plus convaincantes sont de l'ordre de 0,6% massiques, à 600-620°C, et nettement moins en dessous de 600°C, notamment au voisinage de la température de service (inférieure à 400°C), pour laquelle la solubilité ne serait plus que de 0,2-0,3%. Dès que l'on sort du cadre d'un système binaire, il faut bien sûr prendre en compte

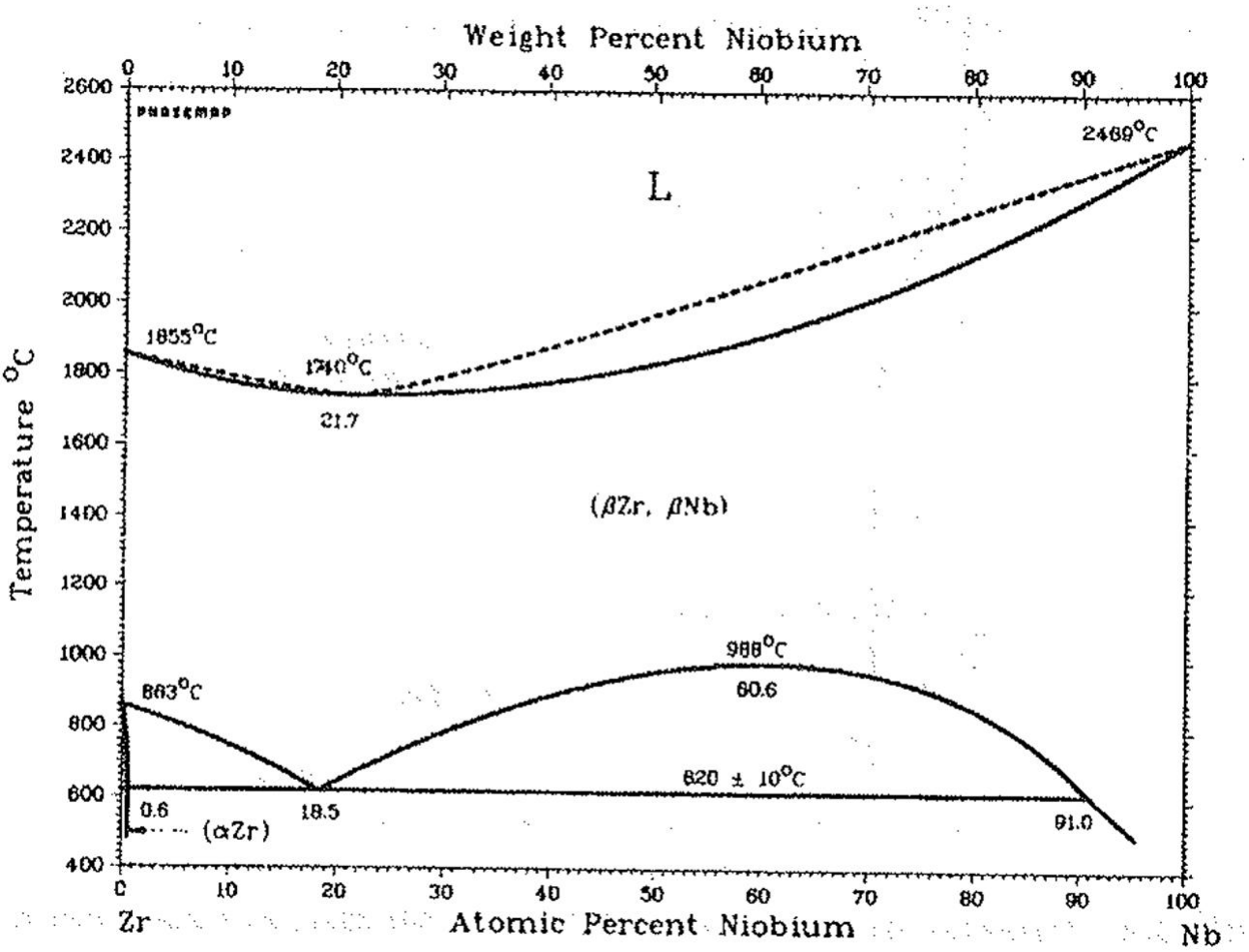


Figure 1.8 – *Diagramme d'équilibre du système binaire Zr-Nb (Abriata et Bolcich (1982))*

les effets des autres éléments d'alliage (ici, notamment l'oxygène et le fer).

Le niobium et le zirconium β sont mutuellement solubles. Par conséquent, dans le domaine β, le niobium est entièrement présent sous forme substitutionnelle dans la solution solide de zirconium β.

On peut donc considérer trois phases potentiellement à l'équilibre dans un alliage zirconium-niobium, dépendant de la tempéraure :
- α_{Zr} contenant du Nb en solution solide ;
- β_{Zr} contenant du Nb en solution solide ;
- β_{Nb} contenant du Zr en solution solide.

Du fait d'un coefficient de diffusion relativement faible du niobium dans le zirconium en dessous d'environ 700°C, au refroidissement, la phase β_{Zr} ne se retransforme que partiellement. Une phase métastable cubique centrée de zirconium β enrichie en niobium (jusqu'à environ 15-20%) peut ainsi être retenue à température ambiante.

Les diagrammes d'équilibre binaires Zr-O (figure 1.7) et Zr-Nb (figures 1.8 et 1.9) mettent en évidence que, dans le domaine de températures d'intérêt de la première phase du transitoire hypothétique APRP (300-1200°C (figure 1.3)), il se produit une transformation de phases $\alpha \rightarrow \beta$, partielle ou totale. Dans le cas d'un alliage de zirconium, les domaines α et β sont séparés par un domaine de coexistence des deux phases α et β. Dans ce domaine biphasé ($\alpha+\beta$), la fraction

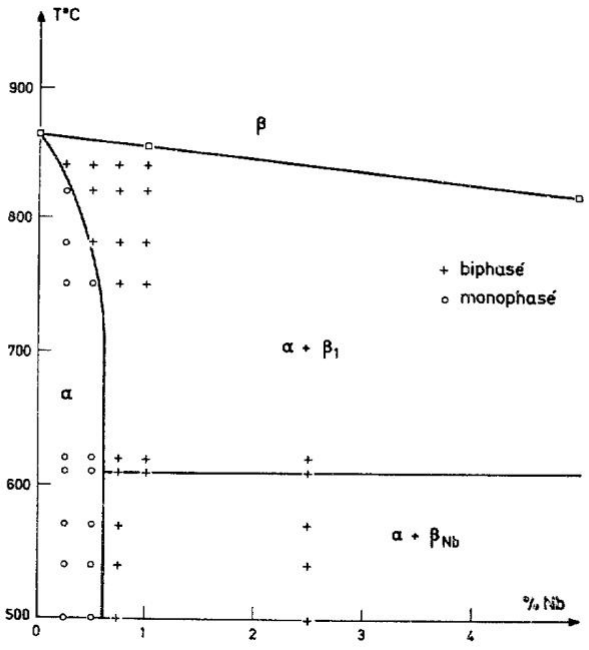


Figure 1.9 – *Diagramme d'équilibre correspondant à la partie riche en Zr du système binaire Zr-Nb (van Effenterre (1972))*

volumique de chaque phase à l'équilibre est fonction de la température ; de plus, toujours en fonction de la température, la composition chimique de chaque phase évolue par rapport à la composition moyenne : la phase α s'enrichit en O (et éléments α-gènes) au détriment de la phase β, qui est enrichie en Nb (et éléments β-gènes).

L'alliage M5® contient également du fer. Il s'agit, comme le niobium, d'un élément β-gène. En solution solide, le fer est placé en position interstitielle comme l'oxygène. Sa limite de solubilité étant très basse (<100ppm, Charquet et al. (1988), Hood et Schultz (1989), Dobromyslov et Kazantseva (1997)), une grande partie est présente sous forme d'intermétalliques dans le domaine α. Dans le domaine β, la limite de solubilité est bien plus élevée et le fer se trouve donc en solution solide.

La figure 1.10 présente la microstructure d'une gaine de M5® à l'état initial (de réception industrielle), observée par microscopie électronique en transmission, donc à une échelle bien plus fine que la figure 1.5. On peut observer de nouveau la microstructure fine de grains équiaxes α recristallisés, de taille relativement uniforme. Cette échelle permet de mettre en évidence la répartition uniforme de fins précipités. Ces précipités sont essentiellement de deux types : des précipités β_{Nb} riches en niobium (>85%) de taille environ 50nm ainsi que des précipités intermétalliques $Zr(Nb,Fe)_2$ (contenant éventuellement un peu de chrome), de taille sensiblement supérieure (>100nm), mais beaucoup moins nombreux.

Comme la distribution des précipités est déterminée par les étapes de mise en forme à chaud (notamment lors de la trempe), la présence de niobium au-delà de la limite de solubilité dans la phase α a amené le choix d'une gamme « basse température » lors des opérations de mise en forme (au dessous de la température monotectoïde), notamment pour éviter la persistance de phase β_{Zr} enrichie en Nb métastable (phase relativement grossière qui peut nuire aux propriétés du matériau).

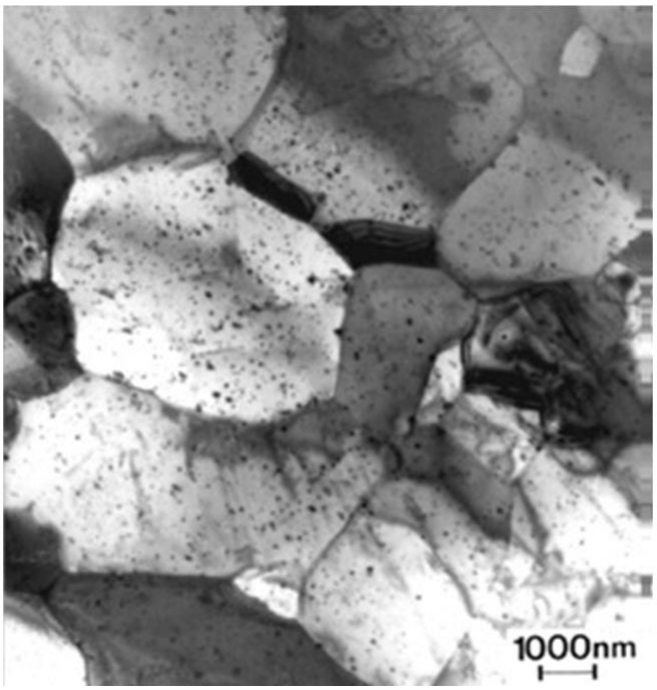


Figure 1.10 – *Micrographie électronique en transmission du M5® sous forme de gaine (Mardon et al. (2000))*

1.2.2.3 Suivi expérimental des transformations de phases

Comme le matériau M5® présente donc des transformations de phases (évolutions des proportions et compositions chimiques des phases) dans le domaine de température du scénario hypothétique APRP, et que ces transformations sont *a priori* susceptibles d'influencer le comportement thermo-mécanique du matériau, il est fondamental de les quantifier expérimentalement, puis, si possible, de les modéliser.

Dans cette étude, deux techniques ont été essentiellement utilisées : la calorimétrie différentielle à balayage (DSC) et le suivi de résistance (méthode présentée en détail en annexe A). L'étude métallographique peut également être employée afin d'évaluer par analyse d'images les phases en présence. Ces techniques expérimentales peuvent également être confrontées à des calculs thermodynamiques réalisés en raisonnant sur le système ternaire Zr-Nb-O (Thermocalc^{TM} + Zircobase (Dupin et al. (1999)[1]).

La technique de calorimétrie différentielle à balayage est particulièrement adaptée pour suivre les transformations de phase à de faibles vitesses de chauffage et de refroidissement (de quelques dixièmes de degré Celsius par minute à une dizaine de degrés par minute) et de se rapprocher ainsi des conditions d'équilibre (« quasi-équilibre »).

A cause du palier monotectoïde du niobium, l'interprétation de la transformation de phases est spécifique pour les alliages de zirconium contenant du niobium en sursaturation.

Au chauffage à partir de l'état initial ($\alpha+\beta_{Nb}$), deux transformations se déroulent quasiment successivement :

– $\beta_{Nb} + \alpha_{Zr} \rightarrow \beta_{Zr} + \alpha_{Zr}$ au palier monotectoïde (quelques pourcents de phase β_{Zr} sont

[1]Plus présisément, ces calculs ont été réalisés par Caroline Toffolon (Laboration d'Analyses Microstructurales des Matériaux, Service de Recherches Métallurgiques Appliquées, CEA) en se basant sur une évolution de Zircobase, dite version « Zircobase Optimisée » (ZO, version interne CEA, non publiée, 2006-9)

ainsi formés) ;
– puis la transformation allotropique proprement dite $\alpha_{Zr} \rightarrow \beta_{Zr}$ s'opère.

Ces deux transformations de phases sont détectées par calorimétrie et peuvent être déconvoluées. Si on considère globalement l'ensemble des deux transformations, on peut évaluer la fraction de phase β_{Zr} formée au chauffage selon une hypothèse « basse » (figure 1.11). Si on ne considère pas la réaction monotectoïde mais uniquement la réaction allotropique, on peut évaluer la fraction de phase β_{Zr} formée au chauffage selon une hypothèse « haute » (figure 1.11).

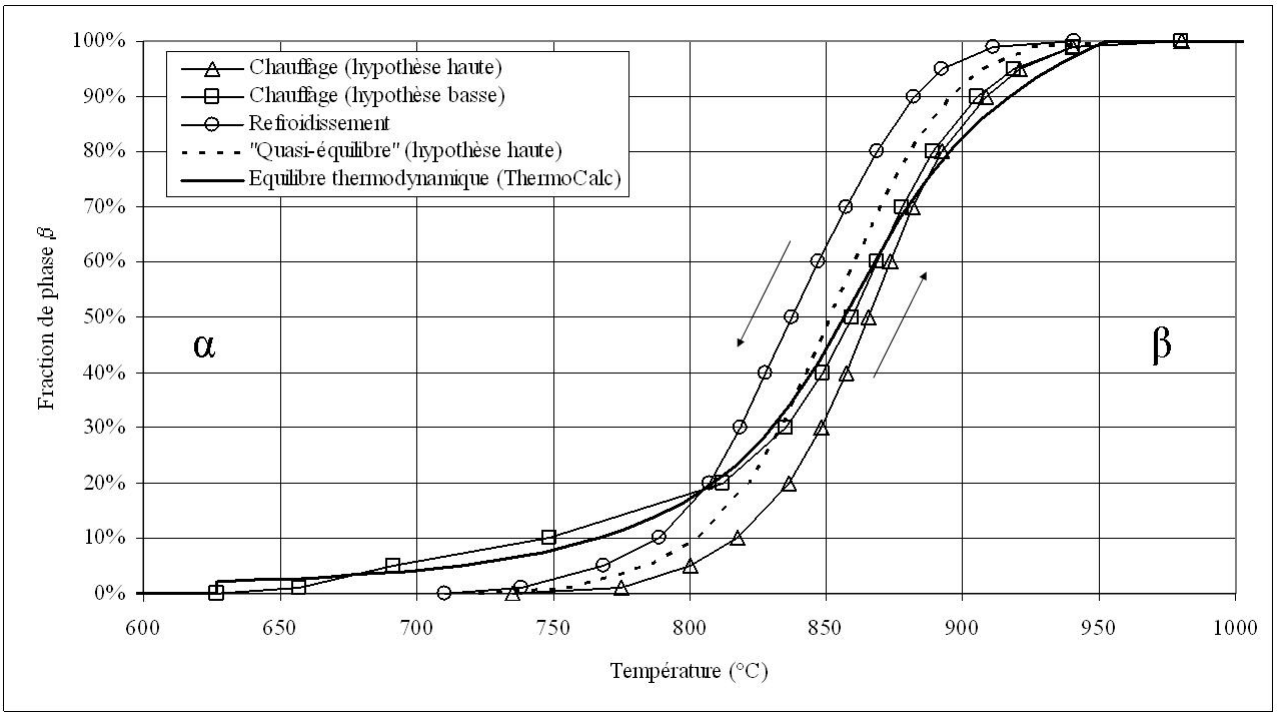


Figure 1.11 – *Fraction de phase β_{Zr} transformée au chauffage et au refroidissement évaluée par calorimétrie (vitesses de 10°C/min et demi-hystérésis) et par calcul thermodynamique (Thermocalc^{TM} + Zircobase Dupin et al. (1999))*

Ces deux courbes sont sensiblement différentes, en particulier, logiquement, au début de la transformation de phases. Parce qu'on néglige les premiers pourcents de phase β_{Zr} formés, par la suite, **on ne retiendra que l'hypothèse « haute » comme représentative des conditions de « quasi-équilibre »**.

De manière stricte, les fractions au chauffage doivent être inférieures aux fractions à l'équilibre, à l'incertitude de mesure près. Vers la fin de transformation, des fractions légèrement supérieures ont été mesurées. Ceci peut s'expliquer par les limites du modèle thermodynamique qui ne prennent pas en compte tous les éléments d'alliages et impuretés, qui influencent la transformation de phases (caractères α-gène ou β-gène).

Une hystérésis est observée classiquement entre le chauffage et le refroidissement. C'est bien le cas avec la courbe de calorimétrie dépouillée avec l'hypothèse haute. Par contre, au refroidissement, la courbe de calorimétrie croise à la fois la courbe au chauffage (hypothèse basse) et la courbe Thermocalc^{TM}. Ceci s'explique par le fait qu'à partir du domaine β_{Zr}, on considère pour dépouiller la courbe de calorimétrie que la retransformation est complète alors qu'une partie de la phase β_{Zr} (quelques pourcents) ne se retransforme pas en phase α_{Zr} et reste sous forme

métastable enrichie en niobium[2].

Si l'on considère que la courbe de calorimétrie au refroidissement tend vers 0[3], elle est plutôt à associer à la courbe au chauffage dépouillée avec l'hypothèse haute (quantité de phase transformée équivalente). Afin d'évaluer la fraction de phase β_{Zr} en fonction de la température dans des conditions de « quasi-équilibre », la demi-hystérésis des courbes au chauffage (hypothèse haute) et au refroidissement peut-être utilisée (moyenne des températures à fraction constante). Si on compare cette courbe de « quasi-équilibre » à la courbe Thermocalc^{TM}, aux faibles fractions volumiques, la courbe expérimentale sous-estime logiquement les fractions de phase à cause de l'hypothèse de non-prise en compte de la réaction monotectoïde. Pour des fractions plus élevées, aux incertitudes près, les courbes se rejoignent.

La figure 1.12 compare les résultats des essais de calorimétrie effectués sur tôle et sur gaine de M5® (donc à composition chimique identique). Les fractions dépouillées en conditions de « quasi-équilibre » (demi-hystérésis avec l'hypothèse haute au chauffage) sont quasiment identiques.

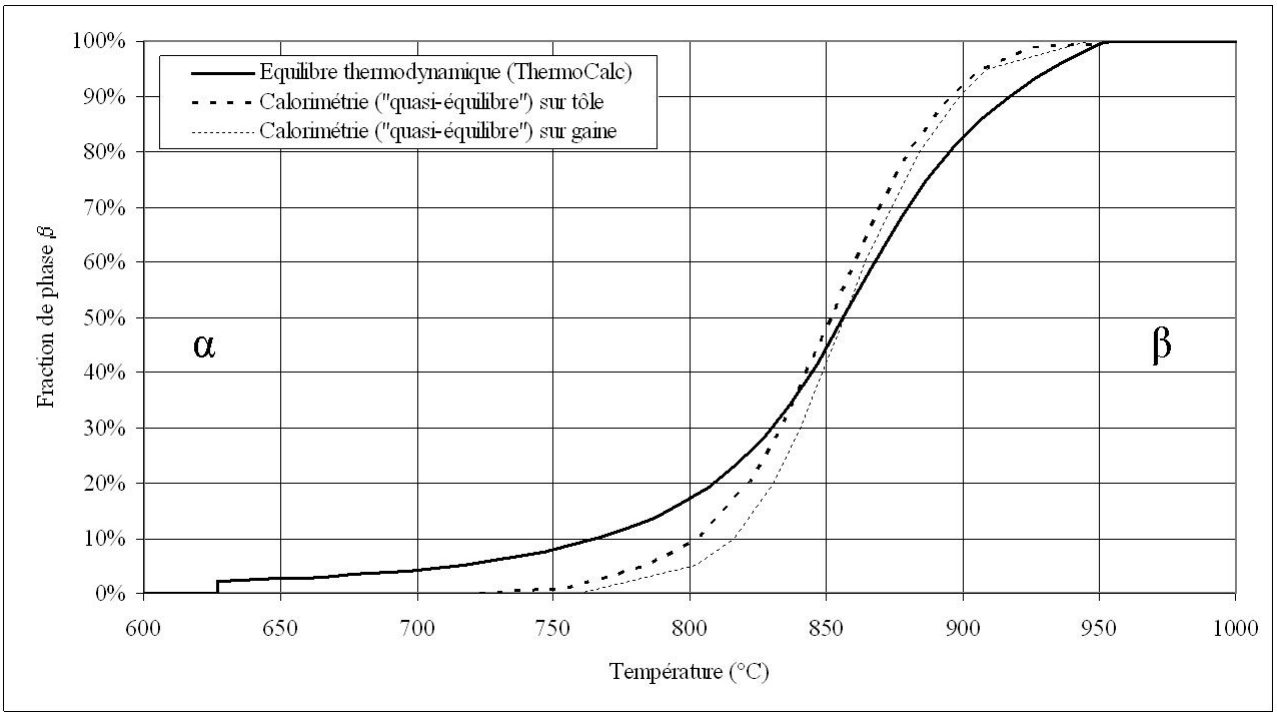


Figure 1.12 – *Fraction de phase β_{Zr} transformée évaluée par calorimétrie sur tôle et gaine en conditions de « quasi-équilibre » (demi-hystérésis avec l'hypothèse haute au chauffage) et par calcul thermodynamique (Thermocalc^{TM} + Zircobase Dupin et al. (1999))*

[2]mais pour des temps de recuit supérieurs à une dizaine d'heures, en-dessous du palier monotectoïde, le niobium en sursaturation reprécipite sous forme de β_{Nb} (Toffolon-Masclet et al. (2005))

[3]on néglige les quelques pourcents de phase β_{Zr} enrichie en Nb qui ne se retransforment pas en α_{Zr}

1.3 Problématique scientifique

1.3.1 Modèle CEA métallurgique et thermo-mécanique EDGAR

En amont des codes (par exemple Catacomb, Freta...(Réocreux et Scott de Martinville (1990))) et des essais globaux (par exemple Phébus (Duco et al. (1982), Réocreux et Scott de Martinville (1990))) de comportement des gainages combustibles en alliages de zirconium en conditions APRP, les études EDGAR (CEA) visent à caractériser de manière plus analytique le comportement de la gaine (Réocreux et Scott de Martinville (1990), Forgeron et al. (2000)), le plus souvent non irradiée. L'objectif de ce programme est de fournir des données et des modèles de comportement thermo-mécaniques des gaines (déformation et critère de rupture) au cours de la première phase du transitoire APRP, en adoptant la démarche la plus analytique et la plus physique possible.

Un dispositif expérimental spécifique (EDGAR) a donc été développé dès les années 1980 au CEA afin de tester un tronçon de gaine (environ 50cm) en le sollicitant en pression interne et aussi en température par chauffage direct par effet Joule (figure 1.13). Ce chargement peut être appliqué de manière statique (sollicitation de fluage isotherme) ou dynamique (rampes de températures ou de pression ou transitoire pression - température représentatifs APRP ou RIA[4]). De même, les conditions en réacteur sont reproduites par l'utilisation d'une atmosphère vapeur. L'effet de l'oxydation est donc aussi pris en compte.

Les effets de l'irradiation et de la prise d'hydrogène peuvent être pris en compte par l'utilisation de gaines respectivement préalablement irradiées ou hydrurées. La comparaison entre les essais effectués sur du matériau vierge, irradié ou hydruré, a montré une perte sensible de ductilité et une fragilisation due à l'hydrogène (Mardon et al. (2005), Portier et al. (2005)). L'effet de l'irradiation est moins important et diminue au fur et à mesure que les températures augmentent : les défauts d'irradiation sont rapidement recuits au cours du transitoire de température (Rose et Hindle (1977), Portier et al. (2005)). Pour des raisons pratiques, l'essentiel des études se fait donc sur du matériau non irradié (hydruré ou non).

Le transitoire de température APRP correspond pour l'essentiel au domaine de température où se produit la transformation de phases allotropique $\alpha \leftrightarrow \beta$ du matériau. Cette transformation de phases influence fortement le comportement thermo-mécanique des gaines (vitesses de déformation, contraintes à rupture, ductilité, cf. le pic de ductilité dans le domaine de transformation de phases ainsi que la forte dispersion des allongements totaux figure 1.14).

Le modèle EDGAR (Forgeron et al. (2000)) couple donc un modèle thermo-mécanique à un modèle métallurgique :

– modèle métallurgique :

  La transformation de phases a été modélisée dans des conditions de « quasi-équilibre » (ou équilibre expérimental) à partir d'essais de calorimétrie différentielle à balayage extrapolés aux très faibles vitesses par la méthode de Zhu et Devletian (1991) (figure 1.15).

  En conditions anisothermes, jusqu'à des vitesses représentatives du scénario APRP (jusqu'à 100°C/s), un modèle de Holt (1980), légèrement modifié (Brachet et al. (1998)), identifié sur des essais de dilatométrie permet de modéliser la cinétique de transformation

[4]RIA : Accident d'Injection de Réactivité, qui est un autre scénario hypothétique accidentel déclenché par l'éjection brutale d'une barre de commande sous l'effet de la pression

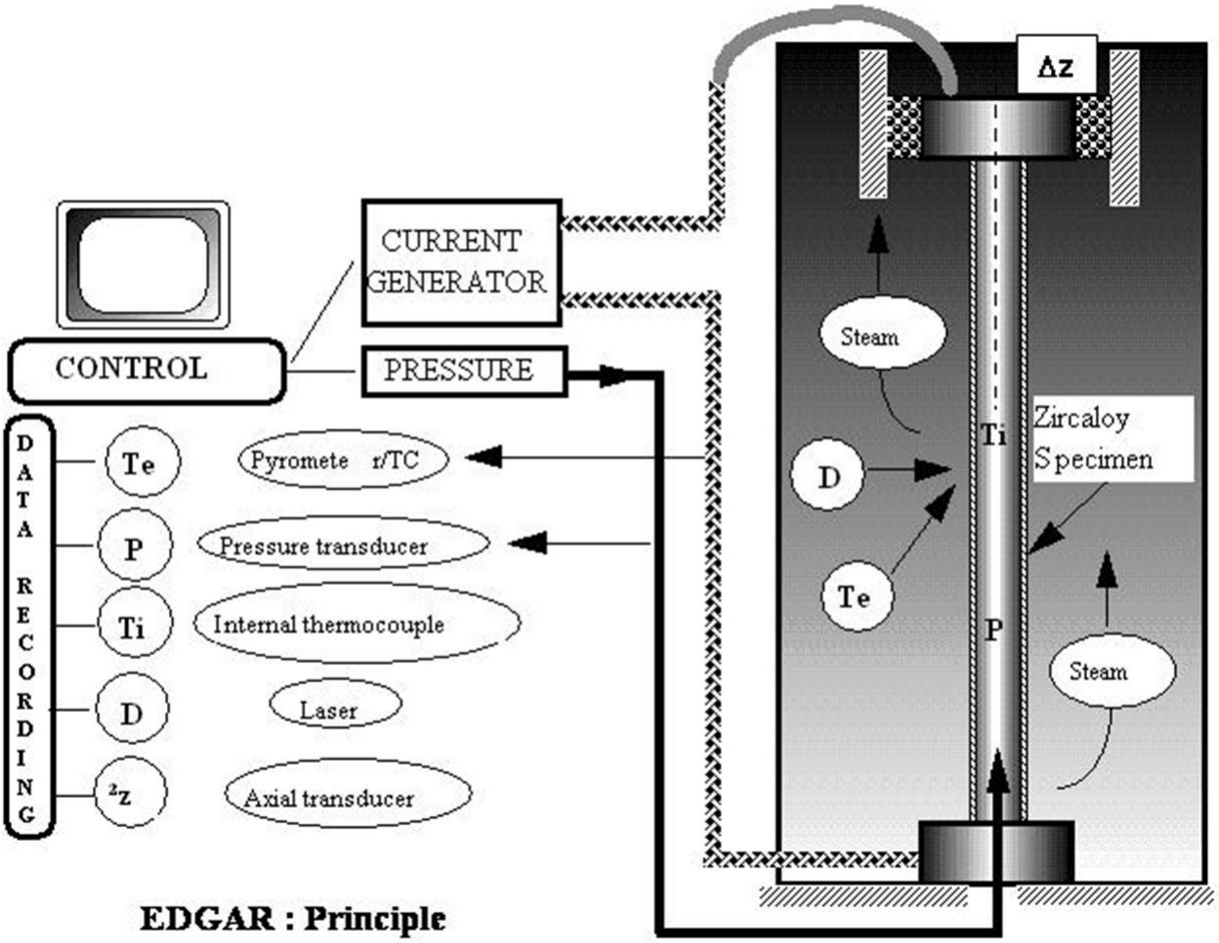


Figure 1.13 – *Schéma du dispositif EDGAR (Forgeron et al. (2000))*

de phases, les températures de début de transformation (au chauffage ou au refroidissement) étant données par une relation empirique.

– modèle thermo-mécanique :

Le comportement de la gaine en déformation - rupture est modélisé en fonction du domaine (monophasé quasi-α ou β ou biphasé) et de la fraction de phase β pour le domaine biphasé. Des lois de type Norton identifiées sur la base expérimentale permettent de simuler les déformations de la gaine. Un critère de rupture, identifié sur les contraintes à rupture déduites des allongements à rupture mesurés, prédit l'apparition d'une instabilité plastique éventuelle (ballonnement), précurseur de l'éclatement de la gaine.

Il s'agit donc d'un modèle macroscopique puisque le domaine biphasé est décrit de manière globale. Celui-ci s'appuie sur une base expérimentale relativement complexe faisant intervenir les phénomènes physiques avec leurs éventuels couplages (oxydation, changement de phases, effet de structure...).

Cette approche prédit le comportement de la gaine en déformation - rupture en conditions statiques (fluage isotherme) ou dynamiques (rampes de pression - température ou transitoires quelconques), de manière satisfaisante tant que l'on ne s'éloigne pas des conditions couvertes par la base expérimentale d'identification du modèle. Celui-ci nécessite donc une base expérimentale la plus exhaustive possible, sans que l'on puisse toutefois rigoureusement extrapoler le

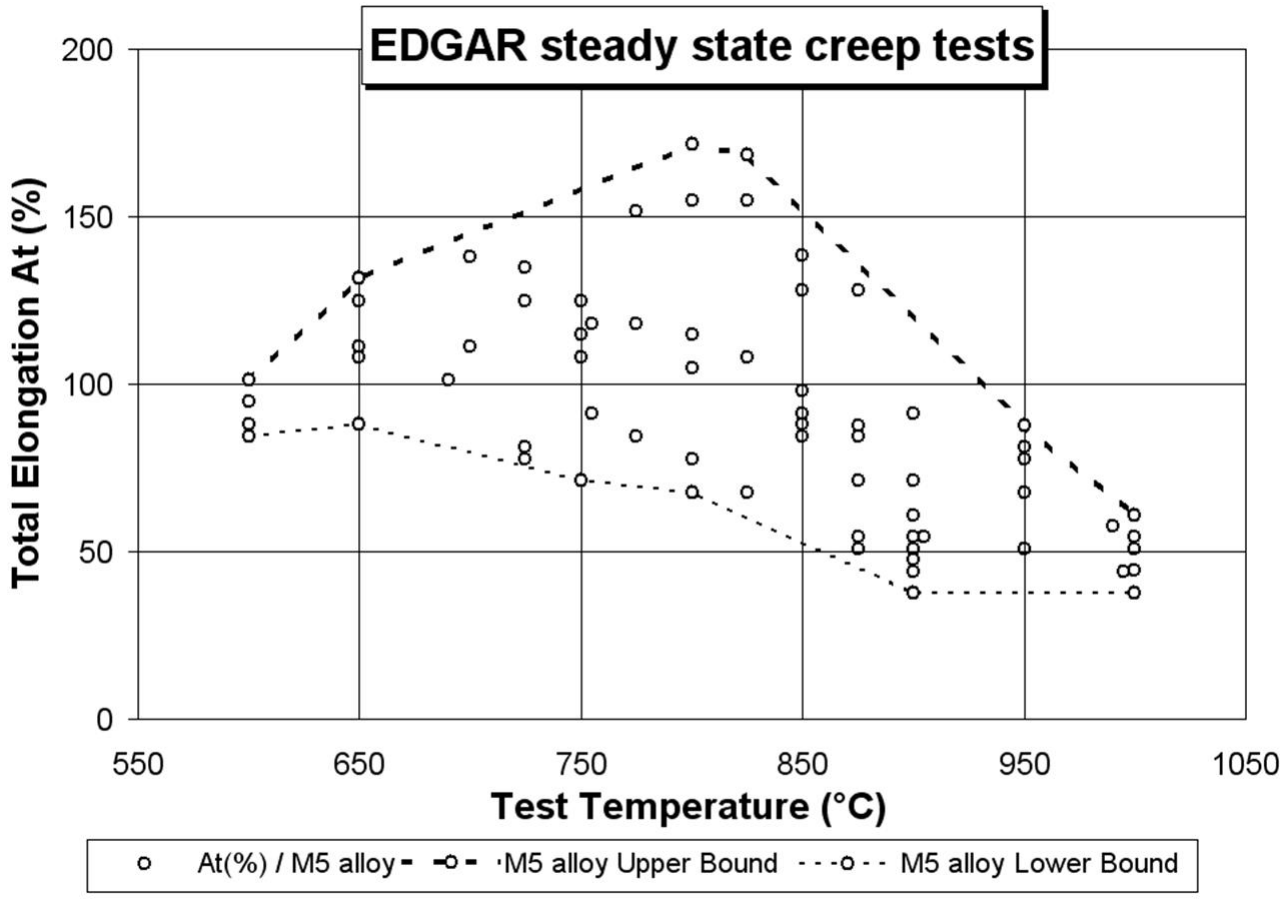


Figure 1.14 – *Allongements totaux obtenus lors d'essais EDGAR de fluage pour l'alliage M5® (d'après Forgeron et al. (2000))*

domaine de validité au-delà de la base.

Etant donnée la grande diversité des conditions accidentelles APRP, il semble donc judicieux de chercher à améliorer cette modélisation en essayant de comprendre plus finement le comportement du matériau à haute température.

1.3.2 Caractère amont des conditions de l'étude

Des études ont donc été lancées en amont de la modélisation EDGAR. Comme de nombreux phénomènes physiques interviennent de manière couplée, il convient de pousser plus en avant la démarche analytique et dans un premier temps de restreindre le champ d'investigation.

Il a donc été décidé de commencer par étudier le comportement du gainage en conditions statiques et non plus dynamiques en réalisant uniquement des **essais de fluage** (charge constante) **isothermes** (température constante).

La couche d'oxyde renforce le comportement du matériau (Rose et Hindle (1977), Fiala et al. (1991b), Hayes et Kassner (2006)), de manière non constante entre les essais (dispersion) et pendant l'essai (cinétique d'oxydation). Afin de s'affranchir de cet effet d'oxydation et de n'étudier que le comportement intrinsèque du matériau, les essais sont effectués **sous vide secondaire**, ce qui empêche la formation d'oxyde et la diffusion associée d'oxygène dans le

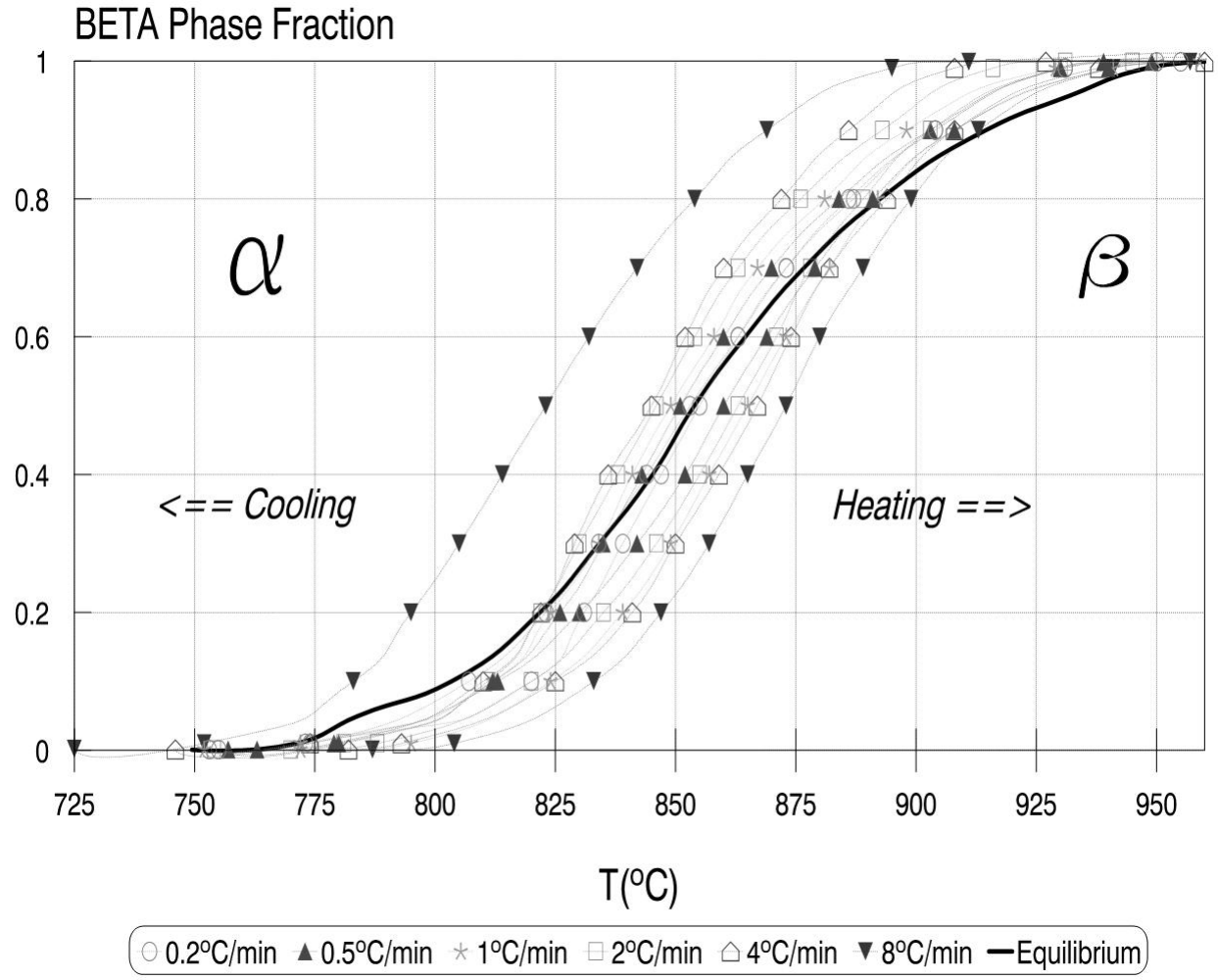


Figure 1.15 – *Fraction de phase β en conditions de « quasi-équilibre » du M5®, extrapolées à partir d'essais de calorimétrie (Forgeron et al. (2000))*

substrat métallique (phénomène durcissant).

Par ailleurs, au lieu de réaliser des essais en pression interne (qui font intervenir des effets de structure), la **sollicitation de fluage est appliquée axialement**. Cela permet également d'utiliser des produits plats (tôles laminées) à la place des gaines et donc d'élaborer sous cette forme des nuances « modèles ».

Même si la motivation initiale est reliée aux conditions accidentelles, les conditions amont de l'étude par rapport aux conditions APRP ne prennent pas en compte les effets :
- de l'irradiation (matériau vierge) ;
- de l'hydrogène (matériau vierge) ;
- de l'oxydation (vide secondaire) ;
- des conditions dynamiques (conditions isothermes et sollicitations de fluage) ;
- texture et structure différentes de celles d'une gaine en pression interne (sollicitation axiale dans la direction de laminage d'une tôle).

La base expérimentale ne peut donc pas être obtenue sur le dispositif EDGAR mais doit être construite à partir d'un dispositif expérimental spécifique (annexe A).

Ce cadre très restrictif étant posé, cela implique que l'ensemble des résultats et analyses de cette étude n'est valide que dans ce cadre et n'est donc pas directement extrapolable aux conditions EDGAR et *a fortiori* APRP.

1.3.3 Etudes antérieures et démarche de l'étude

Cette étude amont fait suite aux thèses de Stéphane Fréchinet (2001) consacrée au Zy-4 et Djillali Kaddour (2004) consacrée au Zr-1%Nb-O. Dans ces deux thèses, le même dispositif expérimental spécifique a été utilisé. Le matériau se présentait sous forme de gaines, sollicitées de manière axiale.

L'objectif de la thèse de Kaddour (2004) était d'étudier le fluage isotherme (et anisotherme) du Zr-1%Nb-O dans les domaines monophasés (quasi-α et β) et biphasé ($\alpha + \beta$). Le comportement en fluage isotherme des gaines a ainsi été étudié expérimentalement au chauffage entre 650 et 1100°C dans ces trois domaines. Comme dans le cadre des études EDGAR, un fort couplage entre la transformation de phases et le comportement mécanique est apparu. En particulier, aux faibles contraintes (figure 1.16), le domaine biphasé présente une rupture de comportement : le matériau flue plus vite à ces faibles contraintes dans le domaine biphasé par rapport à l'extrapolation qu'on pourrait faire à partir des domaines monophasés.

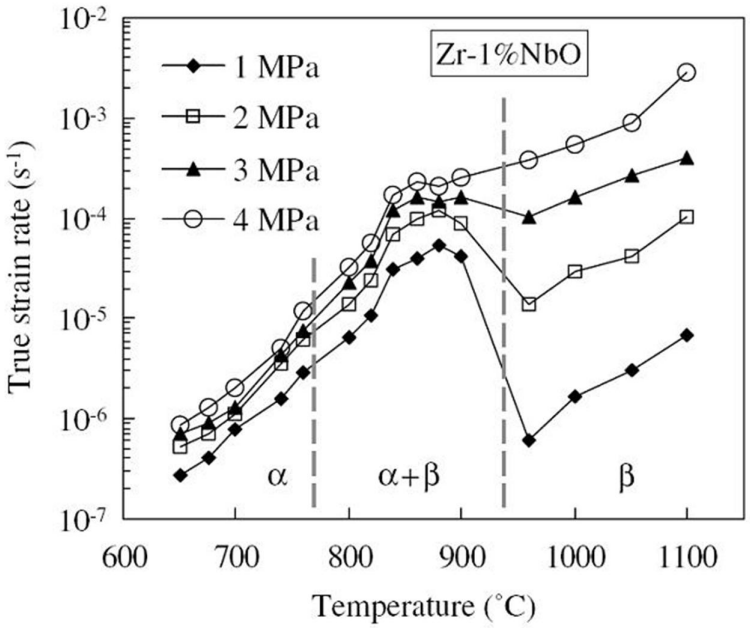


Figure 1.16 – *Courbes isocontraintes des vitesses de fluage en fonction de la température (Kaddour et al. (2004))*

L'effet de la microstructure a également été mis en évidence dans la thèse de Kaddour (2004) par des traitements thermiques préalables aux essais de fluage, dans le domaine biphasé ou dans le domaine β. Ces traitements renforcent sensiblement la résistance au fluage du matériau.

Contrairement au cas du Zircaloy-4, aucune plasticité de transformation n'a pu être mise en évidence dans l'alliage M5® dans le domaine des faibles contraintes (<5MPa) au travers d'essais de fluage en conditions anisothermes à 10 et 200°C/min, que ce soit au chauffage ou au refroidissement.

Afin de modéliser le comportement en fluage isotherme du matériau dans le domaine biphasé, un modèle de type micro-mécanique a été mis en place. Contrairement à la modélisation macroscopique EDGAR où le matériau est décrit de manière globale, même dans le domaine biphasé, chaque phase est ici considérée séparément. Des simulations par éléments finis ont été effectuées sur des microstructures biphasées de Voronoï en utilisant pour chacune des phases des lois de comportement identifiées dans les domaines monophasés respectifs et extrapolées dans le domaine biphasé en prenant en compte l'effet de la température. Si le modèle est en bon accord avec l'expérience concernant les essais effectués après traitement en phase β (fluage au refroidissement), il sous-estime fortement les vitesses de déformation au chauffage, surtout aux faibles contraintes. Des mécanismes de glissement aux interfaces interphases ont été soupçonnés.

L'objet de cette thèse est donc précisément d'améliorer la compréhension et la modélisation du comportement en fluage du M5® dans le domaine biphasé, en conditions isothermes. Une approche analogue, de type micro-mécanique est utilisée. Ce manuscrit comporte ainsi trois parties :

– $1^{ère}$ partie :

La première partie est consacrée au comportement expérimental en fluage au chauffage du matériau M5® dans le domaine de température 650-1050°C. La base expérimentale de Kaddour (2004) est ainsi enrichie dans les trois domaines : les domaines monophasés quasi-α et β et dans le domaine biphasé ($\alpha + \beta$). En particulier, dans le haut du domaine biphasé, on s'est attaché à mettre en évidence la rupture de comportement entre le domaine biphasé et le domaine monophasé β (figure 1.16).

Un mécanisme supplémentaire de fluage, de type diffusionnel, est proposé pour la phase β.

Cela a également permis de mettre en relief les limites de l'extrapolation uniquement en température des comportements de chaque phase identifiés dans les domaines monophasés.

– $2^{ème}$ partie :

L'objectif de la deuxième partie est d'améliorer cette extrapolation des comportements de chaque phase dans le domaine biphasé en essayant d'enrichir le modèle par la prise en compte des effets supplémentaires. Tout comme Kaddour (2004) qui a mis en évidence le fort couplage entre microstructure et comportement en fluage avec des essais au refroidissement, des aspects microstructuraux sont abordés. Les effets respectifs de la taille de grains et du contraste « micro-chimique » entre phases α et β sont ainsi les deux hypothèses explorées.

D'une part, il est classiquement reconnu (Nabarro (1948), Herring (1950), Coble (1963)) que la taille de grains est susceptible d'influencer très fortement le comportement en fluage. Ainsi, des matériaux modèles à taille de grains contrôlée ont été élaborés par traitement thermo-mécanique pour mettre en évidence et quantifier l'influence de la taille de grains sur le comportement de la phase α et de la phase β. Cette étude permet de conforter également l'introduction du mécanisme de fluage diffusionnel pour la phase β. Un modèle de comportement de chaque phase prenant en compte l'effet de taille de grains observé est proposé et identifié sur l'ensemble de la

base expérimentale.

D'autre part, le caractère α-gène ou β-gène des éléments d'alliage du matériau M5® fait que la composition de chaque phase dans le domaine biphasé diffère de la composition moyenne de l'alliage. Les éléments d'alliage ont une influence sur le comportement mécanique (observable par exemple au niveau de leur dureté sur la figure 1.17). Une fois mis expérimentalement en évidence ce contraste « micro-chimique » entre phases (en niobium en particulier), des alliages modèles dont la composition en niobium et oxygène est représentative de la phase α ou β telles qu'elles coexistent dans le domaine biphasé ont été élaborés. Des essais de fluage sur ces alliages ainsi que sur des alliages à teneurs en oxygène et/ou niobium différentes ont permis d'évaluer l'effet de la composition chimique sur le comportement en fluage de chaque phase.

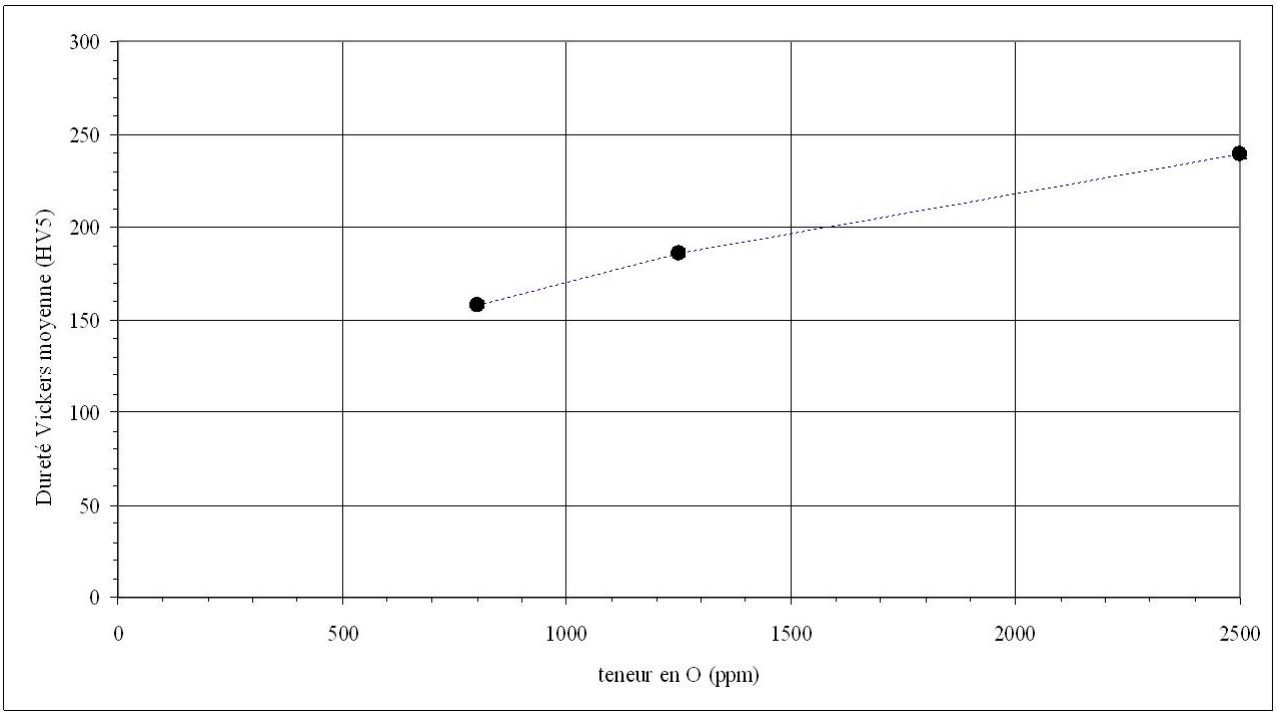


Figure 1.17 – *Variation de la dureté Vickers moyenne sous 5kg (HV5, réalisée sur 5 empreintes) en fonction de la teneur en oxygène dans des alliages Zr-1%Nb (Toffolon (2000))*

– $3^{ème}$ partie :

Cette dernière partie est consacrée à l'homogénéisation du modèle de comportement de chaque phase extrapolé au domaine biphasé. Etant donné le contraste entre les phases, une approche numérique par éléments finis est choisie. Elle permet de prendre en compte explicitement la morphologie de chaque phase.

Dans un premier temps, l'objectif est de mettre en évidence et de quantifier un éventuel effet de la morphologie expérimentale spécifique, relativement aux effets microstructuraux de taille de grains et de composition chimique. Une approche statistique appliquée au comportement viscoplastique est réalisée sur différents types de morphologies (morphologie expérimentale et différents cas de percolation : morphologies dans lesquelles une seule phase est percolée et morphologie bi-percolée). Les résultats sont également confrontés à des modèles analytiques.

Dans un second temps, cette approche est appliquée au modèle de comportement expérimental et à une morphologie représentative de la morphologie expérimentale. Les simulations sont confrontées aux résultats expérimentaux et montrent que le modèle mis en place est capable de reproduire qualitativement le comportement particulier du matériau dans le domaine biphasé $\alpha + \beta$.

Chapitre 2

Comportement expérimental en fluage

Ce chapitre a pour objet de poser plus en détail la problématique scientifique de la thèse et de dessiner les axes d'études abordés dans les chapitres suivants, afin de mieux comprendre et modéliser le comportement du matériau dans le domaine biphasé ($\alpha + \beta$).

Ce chapitre décrit donc le comportement expérimental en fluage isotherme du matériau M5® à haute température (650-1050°C), dans le domaine des faibles contraintes (1-100MPa), hors effet de l'environnement (vapeur oxydante). Le matériau utilisé, sous forme de tôles fines (feuillards), présenté dans le chapitre introductif, a été testé selon le protocole expérimental détaillé en annexe A. Ces essais viennent enrichir la base expérimentale obtenue par Kaddour (2004) dans le même domaine de contraintes et de températures mais dans ce dernier cas sur tubes de Zr-1%Nb-0.

L'intervalle de températures considéré couvre trois domaines : les domaines monophasés quasi-α et β encadrant le domaine biphasé ($\alpha + \beta$). Un bilan des régimes de fluage rencontrés dans chaque domaine est dressé, ainsi qu'une comparaison aux faibles contraintes (1-4MPa) entre les différents domaines. On observe en particulier une rupture de comportement entre le domaine biphasé et le domaine monophasé β. La partie « haute température » du domaine biphasé, en fait un domaine quasi-β, est étudiée en détail et permet de faire apparaître un régime supplémentaire de fluage pour la phase β, qui est masqué lorsqu'aucune phase α ne subsiste.

Sommaire

2.1 Domaines monophasés 55
2.1.1 Domaine monophasé quasi-α 55
2.1.1.1 Etude bibliographique 57
2.1.1.2 Bilan des essais de fluage 65
2.1.2 Domaine monophasé β 69
2.1.2.1 Etude bibliographique 69
2.1.2.2 Bilan des essais de fluage 72
2.2 Domaine biphasé ($\alpha + \beta$) 75
2.2.1 Etude bibliographique 75
2.2.2 Bilan des essais de fluage 78
2.3 Effet de la température 82
2.3.1 Première modélisation du comportement du matériau biphasé 82
2.3.2 Comparaison entre les différents domaines de températures, à basse contrainte (1-4MPa) 83
2.3.3 Domaine quasi-β 84
2.3.4 Bilan et problématique de l'étude 87

2.1 Domaines monophasés

2.1.1 Domaine monophasé quasi-α

Le domaine quasi-α désigne dans notre étude le domaine de température 650-760°C. A ces températures, le matériau n'est pas strictement monophasé α_{Zr} (avec des précipités β_{Nb} et intermétalliques) car on se trouve au dessus du palier monotectoïde et il existe une faible quantité de phase β_{Zr} (<10% à l'équilibre (figure 1.12)).

Des traitements thermiques dans ce domaine de températures ont été réalisés au Service d'Etudes des Matériaux Irradiés par Verhaeghe et Tupin (CEA, 2009), sous vide secondaire sur des morceaux de gaine de M5®) :

- 24h à 650°C,
- 2h à 700°C,
- 2h à 760°C.

Les observations effectuées sur ces échantillons à l'échelle du MET (figure 2.1) mettent en évidence cette transformation monotectoïde inverse. On peut ainsi relever la présence des phases β_{Zr} aux joints de grains α ainsi qu'au cœur des grains, sous forme de lamelles. A 650°C, quelques précipités (β_{Nb} et/ou $Zr(Nb,Fe)_2$) sont encore visibles. La phase β_{Zr} créée est riche en niobium et en fer (de l'ordre de 10-12% de niobium et 0,5-2% de fer), éléments β-gènes. Pour les températures plus élevées (700 et 760°C), la majorité des précipités sont dissous. On peut même remarquer, en périphérie du grain α, des zones vierges, appauvries en niobium, peu propices à l'existence de précipités.

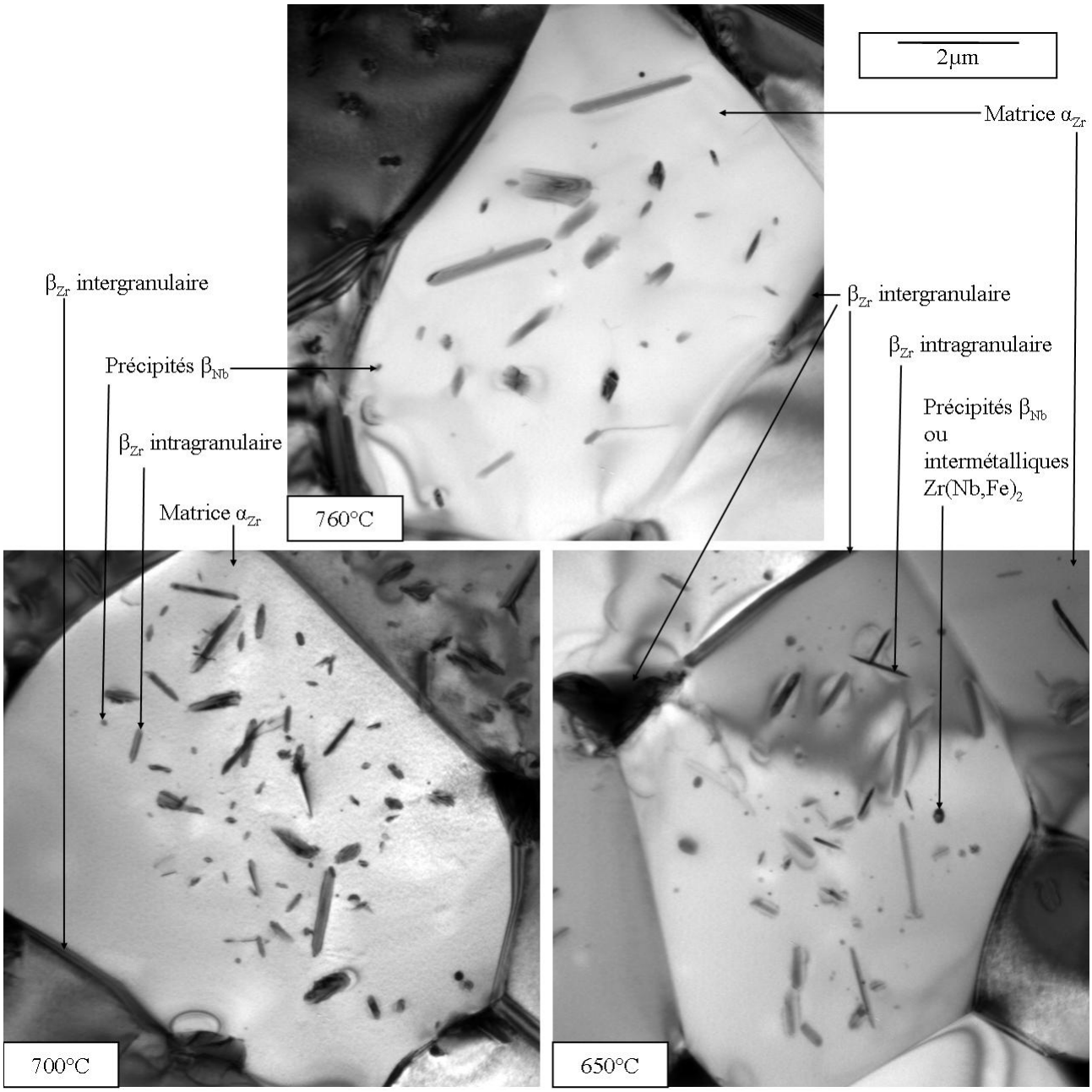


Figure 2.1 – *Micrographies électroniques en transmission (champ clair) du M5® sous forme de gaine après traitements thermiques dans le domaine quasi-α (Verhaeghe et Tupin (Service d'Etudes des Matériaux Irradiés, CEA, 2009))*

A une échelle un peu moins fine, les observations réalisées au microscope électronique à balayage par Kaddour (2004) après essais de fluage (figure 2.2) montrent une répartition semblable de la phase β_{Zr}, avec une localisation préférentielle aux joints triples α_{Zr}.

A un niveau macroscopique et dans les conditions expérimentales de « quasi-équilibre » (durée des essais de l'ordre de la dizaine d'heures), on considère qu'une faible quantité de phase β (<5%), non percolée n'influence pas de manière significative le comportement mécanique du matériau. Globalement **le terme « quasi-α » désigne donc un matériau constitué de phase α majoritaire avec éventuellement quelques pourcents de phase β, essentiellement aux joints de grains**.

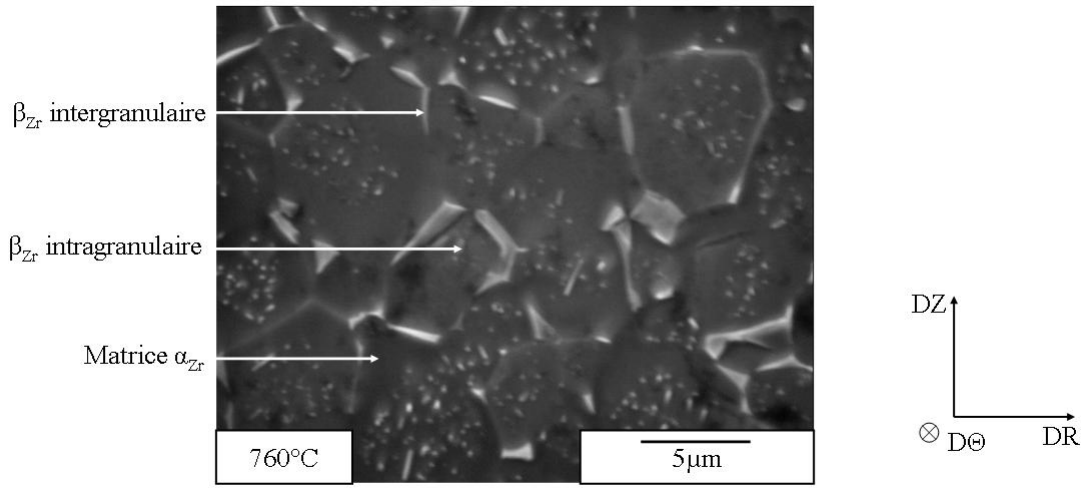


Figure 2.2 – *Micrographie électronique à balayage (électrons secondaires) du Zr-1%Nb-0 après un essai de fluage à 760°C dans le domaine quasi-α (Kaddour (2004))*

Par ailleurs, il convient de souligner que la méthode de suivi de la transformation de phases par mesure de résistance ne détecte pas spécifiquement la phase β_{Zr}, en deçà de quelques pourcents, dans le domaine quasi-α (*cf.* annexe A).

2.1.1.1 Etude bibliographique

Peu de données de fluage existent dans la littérature ouverte sur le fluage du M5®, *a fortiori* à haute température (>500°C). Par conséquent, cette étude bibliographique aborde dans un cadre plus large le comportement en fluage stationnaire du zirconium et de ses alliages, essentiellement des Zircaloys, pour des températures supérieures à 500°C.

Dans ce paragraphe, nous nous restreignons aux régimes de fluage observés expérimentalement pour la phase α ou quasi-α. Ceci s'appliquera également pour les paragraphes concernant les domaines β et biphasé ($\alpha + \beta$).

Nous avons uniquement considéré les études effectuées sur du matériau recristallisé, soit initialement, soit pendant l'essai de fluage afin de comparer les comportements de structures quasi-α équiaxes uniquement.

Quelques rares auteurs ont détecté une contrainte seuil de fluage (Novotny et al. (1985), Prasad et al. (1992), Rama Rao (1998)). A 500°C, elle serait de l'ordre de 0,17MPa pour du zirconium pur et diminuerait pour des températures croissantes, par exemple 0,07MPa à 850°C (Novotny et al. (1985)). Prasad et al. (1992) a observé une contrainte seuil à 600°C de 0,04MPa pour du zirconium et de 0,23MPa pour du Zircaloy-2. Prasad et al. (1992), Rama Rao (1998) avancent que des contraintes seuil plus importantes pour les alliages de zirconium seraient dues aux précipités et phases secondaires susceptibles d'être présents. Les faibles valeurs mesurées, bien inférieures aux contraintes minimales qui seront utilisées ici (1MPa), expliquent que la contrainte seuil est peu souvent prise en compte dans les modèles décrivant l'évolution des vitesses de fluage.

A l'opposé, pour des sollicitations importantes, aux limites du fluage, la vitesse de déformation tend à augmenter de manière exponentielle par rapport à la contrainte (Hayes et Kassner

(2006), Charit et Murty (2008)).

Pour des contraintes intermédiaires, la plupart des données de vitesse de fluage issues de la littérature peuvent, en fonction des régimes de fluage, s'exprimer sous la forme d'une loi de Norton ou d'une loi puissance sans seuil par rapport à la contrainte, comme repris par Frost et Ashby (1982) dans le cadre général de la plasticité des métaux à haute température. Cette équation peut être écrite sous une forme simplifiée et sous forme scalaire (équation 2.1) :

$$\dot{\varepsilon} = \frac{A\sigma^n}{T} \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right) \tag{2.1}$$

avec :
- n, coefficient de sensibilité à la contrainte, appelé exposant de Norton,
- E_a une énergie d'activation,
- R la constante des gaz parfaits,
- T la température (en K).

En fonction du matériau et de son état microstructural, de la sollicitation et de la température, des régimes de fluage présentant des énergies d'activation et des exposants de Norton particuliers peuvent être mis en évidence. Ces régimes de fluage sont à relier à un ou des mécanismes contrôlant la vitesse de déformation globale du matériau. Néanmoins, pour la plupart des auteurs, il y a coexistence de ces mécanismes et selon les régimes, un ou plusieurs mécanismes sont prépondérants par rapport aux autres.

Le tableau 2.1 regroupe de manière synthétique les principaux régimes de fluage observés pour le zirconium non allié à haute température. Sargent et Ashby (1982) ont regroupé un certain nombre de données expérimentales des études antérieures et proposent sous forme d'une carte de déformation (vitesse de déformation en fonction de la contrainte ou contrainte en fonction de la température Ashby (1972), Frost et Ashby (1982)) de distinguer deux régimes de fluage pour la phase α pour une taille de grains de $100\mu m$ (figure 2.3) :
- aux faibles contraintes, des régimes diffusionnels avec diffusion aux joints de grains aux plus faibles températures (Coble (1963)) ou au cœur des grains (Nabarro (1948), Herring (1950)) aux températures plus élevées,
- aux contraintes plus importantes, des régimes de fluage dislocations.

Il apparaît également que le régime de Coble s'étend par rapport aux autres régimes quand la taille de grains du matériau diminue. Par ailleurs, Hayes et Kassner (2002) proposent également aux faibles contraintes, pour les tailles de grains les plus élevées un régime supplémentaire de fluage dislocations de type Harper et Dorn (1957).

Par rapport aux exposants de Norton, une grande dispersion des valeurs des énergies d'activation peut être notée, sûrement due aux faibles intervalles de températures explorés. Ces valeurs d'énergies d'activation sont néanmoins comparées à des coefficients d'autodiffusion du zirconium : aux joints de grains pour le mécanisme de Coble ou dans le volume pour les mécanismes de Nabarro-Herring ou de déformation par glissement et montée de dislocations.

Référence	Conditions expérimentales	Comportement en fluage
Ardell et Sherby (1967)	660-845°C 6-37,2MPa $d_g \approx 300\mu m$, sous vide direction de laminage	$n \approx 5$ et $E_a \approx 209 kJ{\cdot}mol^{-1}$ glissement des dislocations
Bernstein (1967) Ardell (1964)	520-620°C 4,5-20,7MPa $d_g \approx 50$ et $300\mu m$ sous argon direction de laminage	$n = 1$ et $E_a \approx 112 kJ{\cdot}mol^{-1}$ Coble $n = 6-7$ et $E_a \approx 234 kJ{\cdot}mol^{-1}$ glissement des dislocations
Gilbert et al. (1969)	500-700°C 700-800°C 5,9-9,8MPa $d_g \approx 30\mu m$, sous hélium direction de laminage	$n = 6,3$ et $E_a \approx 276 kJ{\cdot}mol^{-1}$ $n = 5,2$ et $E_a \approx 418 kJ{\cdot}mol^{-1}$ glissement des dislocations
Luton (1971)	625-850°C 8-75MPa $d_g \approx 11\mu m$, compression	$n = 4,6$ et $E_a \approx 225 kJ{\cdot}mol^{-1}$ glissement des dislocations
Pahutová et Čadek (1973)	400-750°C 10-68,6MPa $d_g \approx 150\mu m$, sous argon direction de laminage	$n = 6,6$ et $E_a \approx 271 kJ{\cdot}mol^{-1}$ glissement des dislocations
Warda et al. (1973)	450-550°C 1-80MPa $d_g = 12$, 50 et $300\mu m$ sous vide direction de laminage	$n = 5,5$ glissement des dislocations
MacEwen et al. (1981)	600-700°C 5-20MPa $d_g \approx 30$ et $200\mu m$ sous vide trois directions	$n = 3-9$ $E_a \approx 364-270 kJ{\cdot}mol^{-1}$ glissement des dislocations
Malakondaiah et al. (1982)	570-630°C $d_g \approx 39$ et $56\mu m$ sous vide éprouvette hélicoïdale	$E_a \approx 181$ et $236 kJ{\cdot}mol^{-1}$ Nabarro-Herring
Fiala et Čadek (1985) Fiala et al. (1991b) Fiala et al. (1991a)	475-700°C 0,08-2,19MPa $d_g \approx 48-113\mu m$ sous argon éprouvette hélicoïdale	$n = 1$ et $E_a \approx 122 kJ{\cdot}mol^{-1}$ Coble
Novotny et al. (1985)	500-850°C 0,08-1.8MPa $d_g \approx 127-342\mu m$ sous argon éprouvette hélicoïdale	$n = 1$ et $E_a \approx 124 kJ{\cdot}mol^{-1}$ Harper-Dorn
Prasad et al. (1989) Prasad et al. (1992) Rama Rao (1998)	573-670°C $d_g \approx 50\mu m$ 540-600°C $d_g \approx 16\mu m$ 670-730°C $d_g \approx 50\mu m$ 630-700°C $d_g \approx 33\mu m$ 540-730°C 1-5,5MPa, sous argon éprouvette hélicoïdale	$n = 1$ et $E_a \approx 83,7 kJ{\cdot}mol^{-1}$ $n = 1$ et $E_a \approx 102,8 kJ{\cdot}mol^{-1}$ Coble $n = 1$ et $E_a \approx 225 kJ{\cdot}mol^{-1}$ Nabarro-Herring $n = 1$ et $E_a \approx 216,5 kJ{\cdot}mol^{-1}$ Coble/Nabarro-Herring $n = 7,2$ montée des dislocations

Référence	Conditions expérimentales	Comportement en fluage
bilan :		$n = 1,1-1,2$ $E_a \approx 90kJ{\cdot}mol^{-1}$
Hayes et Kassner (2002)	$d_g < 90\mu m$	Coble, Nabarro-Herring
Pérez-Prado et al. (2005)		et/ou Ashby-Verrall
Hayes et Kassner (2006)	$d_g > 90\mu m$	Harper-Dorn
Kassner et al. (2007)		$n = 6,4$ $E_a \approx 270kJ{\cdot}mol^{-1}$
	$\forall\ d_g$	montée des dislocations
	300-850°C 0,1-115MPa	

Tableau 2.1 – *Bilan bibliographique sur le fluage du zirconium (non allié) à haute température en phase α : tailles de grain d_g, exposant n et énergies d'activation E_a de la loi puissance*

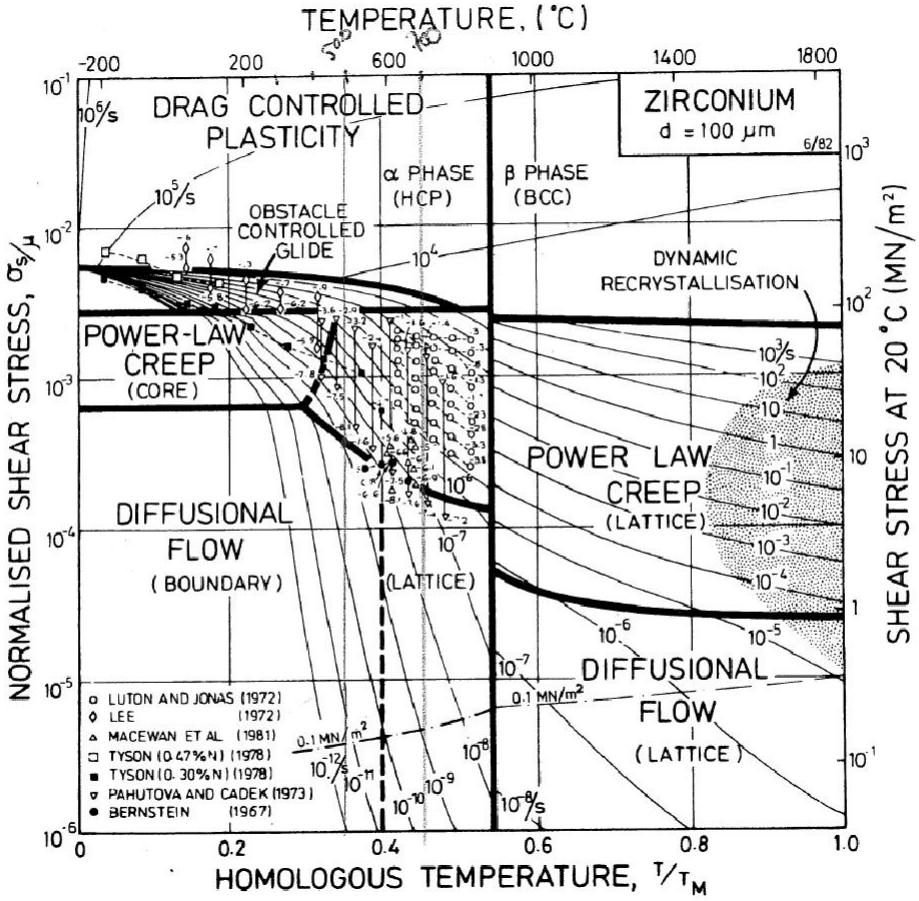


Figure 2.3 – *Carte contrainte-température des mécanismes du zirconium, par Sargent et Ashby (1982), ramenée à une taille de grains de* $100\mu m$

Les tableaux 2.2 et 2.3 regroupent, de la même manière, les résultats de la littérature concernant respectivement le Zircaloy-2 et le Zircaloy-4. Les deux mêmes régimes sont observés, mais avec des exposants de Norton sensiblement plus faibles.

Référence	Conditions expérimentales	Comportement en fluage
Schober et al. (1957) Jones (1966)	345-500°C 14-280MPa $d_g \approx 12 - 50\mu m$ directions de laminage et transverse	$n = 1$ Coble $n = 5$ dislocations
Bernstein (1967)	520-620°C 3-70MPa $d_g \approx 10\mu m$ sous argon direction de laminage	$n = 1$ et $E_a \approx 178kJ{\cdot}mol^{-1}$ Coble $n = 4,5 - 5,5$ et $E_a \approx 286kJ{\cdot}mol^{-1}$ glissement des dislocations
Clay et Redding (1976)	700-800°C 10-70MPa sous argon pression interne	$n = 5$ et $E_a \approx 295kJ{\cdot}mol^{-1}$
Rose et Hindle (1977)	600-800°C 20-70MPa sous vapeur, vide, argon pression interne	$n = 5$ et $E_a \approx 287kJ{\cdot}mol^{-1}$
Prasad et al. (1992)	600°C 1,84-3,84MPa $d_g \approx 16,6\mu m$, sous argon éprouvette hélicoïdale	$n = 1$ et $E_a \approx 267kJ{\cdot}mol^{-1}$ Nabarro-Herring
bilan : Hayes et Kassner (2006)	500-600°C 0,1-115MPa $d_g \approx 7 - 17\mu m$	$n = 1,1$ $E_a \approx 90kJ{\cdot}mol^{-1}$ Coble, Nabarro-Herring et/ou Ashby-Verrall $n = 4,8$ $E_a \approx 270kJ{\cdot}mol^{-1}$ montée des dislocations

Tableau 2.2 – *Bilan bibliographique sur le fluage du Zy-2 à haute température en phase α : tailles de grain d_g, exposant n et énergies d'activation E_a de la loi puissance*

Référence	Conditions expérimentales	Comportement en fluage
Hardy (1973) Luton (1971)	800°C 10-100MPa compression	$n \approx 4$
Rosinger et al. (1979)	667-800°C 10-60MPa $d_g \approx 5\mu m$, sous argon direction de laminage	$n = 5,32$ et $E_a \approx 284,6 kJ{\cdot}mol^{-1}$ glissement et/ou montée des dislocations
Donaldson et Ecob (1985)	700-800°C 1-60MPa $d_g > 8\mu m$ sous vide direction de laminage	$n < 2$ et $E_a \approx 120 kJ{\cdot}mol^{-1}$ Coble $n \approx 5$ et $E_a \approx 270 kJ{\cdot}mol^{-1}$ montée des dislocations
Ortlieb et al. (1987)	600-800°C sous air pression interne	$n = 4,57$ et $E_a \approx 250 kJ{\cdot}mol^{-1}$
Tanikella (1998)	500°C	$n = 1$ Coble $n = 6$ montée des dislocations
Fréchinet (2001)	700-800°C 3-50MPa $d_g \approx 10\mu m$ sous vide direction de laminage	$n = 1,3$ et $E_a \approx 190 kJ{\cdot}mol^{-1}$ Coble $n = 5$ et $E_a \approx 316 kJ{\cdot}mol^{-1}$ glissement-montée des dislocations
bilan : Hayes et Kassner (2006)	500-800°C 3-100MPa	$n = 5$ $E_a \approx 270 kJ{\cdot}mol^{-1}$ montée des dislocations

Tableau 2.3 – *Bilan bibliographique sur le fluage du Zy-4 à haute température en phase α : tailles de grain d_g, exposant n et énergies d'activation E_a de la loi puissance*

La figure 2.4 (Hayes et Kassner (2006)) compare les comportements du zirconium pur avec ceux du Zircaloy-2 et du Zircaloy-4. Les données ont été normalisées par un coefficient de diffusion correspondant à une énergie d'activation de $270 kJ.mol^{-1}$ et un coefficient pré-exponentiel de $5.10^{-4} m^2.s^{-1}$ (Hayes et Kassner (2002)). Les auteurs soulignent ainsi l'effet durcissant des éléments d'alliage. Prasad et al. (1992) avaient également relevé pour le Zircaloy-2 des vitesses de fluage de presque deux décades inférieures à celles du zirconium pur.

Les tableaux 2.4 et 2.5 regroupent les résultats de la littérature concernant les alliages Zr-Nb(-Sn). Par rapport aux alliages précédents, ces études proposent même un troisième régime intermédiaire, qui serait favorisé par la présence de Nb. Charit et Murty (2008) confirment dans leur bilan comparatif que les alliages Zr-Nb sont également plus résistants au fluage que le zirconium pur.

Enfin, les différents régimes cités précédemment s'observent également pour le titane et ses alliages (Sargent et Ashby (1982)). Ainsi, certains auteurs ont étudié conjointement le titane et le zirconium (Malakondaiah et Rama Rao (1981), Malakondaiah et al. (1982), Tanikella (1998), Rama Rao (1998)).

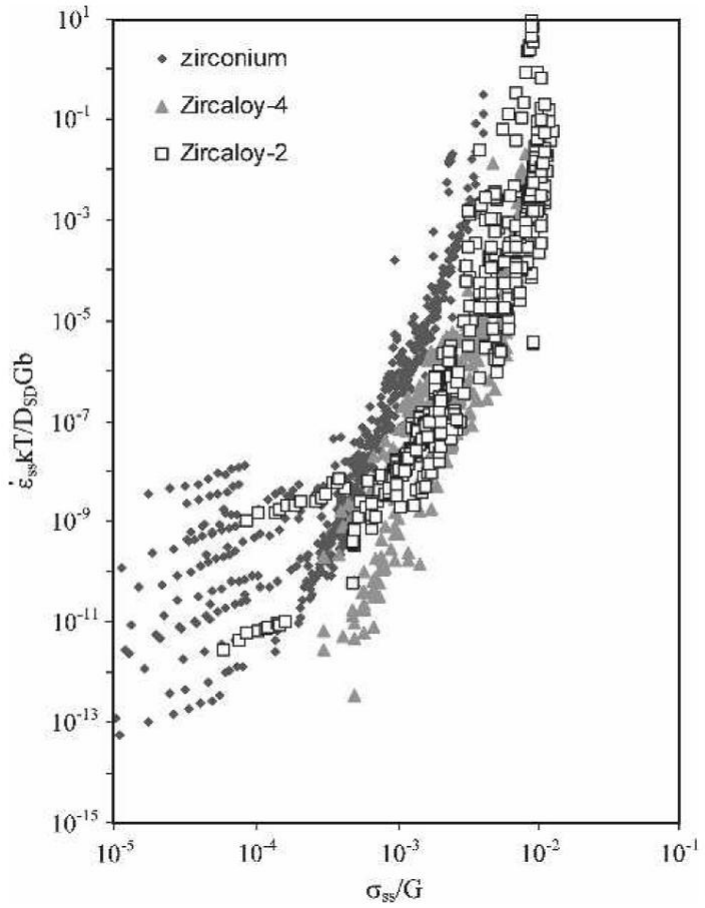


Figure 2.4 – *Vitesses de fluage (normalisées par un coefficient de diffusion, à la température considérée) en fonction de la contrainte (normalisée par le module de cisaillement, à la température considérée) pour différentes études de la bibliographie (Hayes et Kassner (2006) et références mentionnées tableaux 2.1 à 2.3)*

Référence	Conditions expérimentales	Comportement en fluage
Murty et al. (1995) Murty et al. (2005) Charit et Murty (2008)	500-650°C 20-140MPa $d_g \approx 8\mu m$ sous air directions de laminage et transversale	$n = 1$ $E_a \approx 107 - 138kJ{\cdot}mol^{-1}$ Coble $n = 3$ $E_a \approx 282kJ{\cdot}mol^{-1}$ glissement des dislocations $n = 7$ $E_a \approx 297 - 402kJ{\cdot}mol^{-1}$ montée des dislocations
Kutty et al. (1997)	700°C (indentation)	$n = 5,3 - 4,7$ $E_a \approx 300kJ{\cdot}mol^{-1}$
Zhou et al. (2004)	360-570°C 20-200MPa sous air biaxial (traction et pression interne)	$n = 1$ $E_a \approx 109kJ{\cdot}mol^{-1}$ Coble $n = 3$ $E_a \approx 244kJ{\cdot}mol^{-1}$ glissement des dislocations $n = 5$ $E_a \approx 244kJ{\cdot}mol^{-1}$ montée des dislocations

Tableau 2.4 – *Bilan bibliographique sur le fluage des alliages Zr-Sn-Nb à haute température en phase α : tailles de grain d_g, exposant n et énergies d'activation E_a de la loi puissance*

Référence	Conditions expérimentales	Comportement en fluage
Adam et al. (1985) Adam et al. (1987)	650-760°C sous air pression interne	$n = 6$ $E_a \approx 120 kJ{\cdot}mol^{-1}$
Alymov et al. (1987a) Pirogov et al. (1989) Charit et Murty (2008)	$d_g \approx 5\mu m$ $d_g \approx 8\mu m$ 400-600°C 10-150MPa	$n = 3$ glissement des dislocations $n = 5$ montée des dislocations $n = 3$ glissement des dislocations $n = 6$ montée des dislocations $E_a \approx 235 kJ{\cdot}mol^{-1}$
Stephan et al. (1992)	700-810°C sous argon pression interne	$E_a \approx 321 kJ{\cdot}mol^{-1}$
Kaddour (2004) Kaddour et al. (2004)	650-760°C 1-60MPa $d_g \approx 6 - 7\mu m$ sous vide direction laminage	$n = 1$ $E_a \approx 133 kJ{\cdot}mol^{-1}$ diffusion $n = 4$ $E_a \approx 194 kJ{\cdot}mol^{-1}$ dislocations

Tableau 2.5 – *Bilan bibliographique sur le fluage des alliages Zr-1%Nb à haute température en phase α : tailles de grain d_g, exposant n et énergies d'activation E_a de la loi puissance*

Quand cette information était disponible, nous avons relevé la taille de grains du matériau testé. Ce paramètre microstructural apparaît important pour le régime de fluage d'exposant de Norton n=1, quand celui-ci est observé, mais de peu d'influence sur les autres régimes.

Le mode de sollicitation en fluage diffère également d'une étude à l'autre (uniaxial dans la direction de laminage ou transverse, tubes en pression interne ou sous sollicitation biaxiale, torsion, éprouvettes hélicoïdales...). Comme le matériau est fortement texturé, cela pourrait être source d'écarts entre les résultats des différentes études, comme c'est le cas à plus basse température, alors que la plupart des modèles proposés sont isotropes. Quelques auteurs ont essayé de quantifier l'effet de l'anisotropie de la phase α à haute température. Schober et al. (1957), Jones (1966) ont mesuré des vitesses de fluage identiques dans la direction de laminage et la direction transverse, même à 345°C pour du Zy-2 recristallisé. La comparaison entre les vitesses de fluage selon les trois directions principales d'un bloc épais de zirconium par MacEwen et al. (1981) ont montré des écarts inférieurs à 50% en vitesse entre 600 et 700°C. Murty et al. (1995), en comparant les directions de laminage et transverse, relèvent environ 30% d'écart en vitesse sur le régime n=1 et des écarts plus importants sur les régimes agissant à plus forte contrainte (facteurs 6 et 16 sur les vitesses pour les régimes n=3 et 7 respectivement), pour du Zirlo à 500°C. Murty et al. (2005), en analysant ces résultats, parlent d'isotropie plane (dans le plan de la tôle). On pourrait donc penser que les effets de l'anisotropie diminuent avec la température, ce qui expliquerait la relative uniformité des résultats de la littérature.

La figure 2.4 (Hayes et Kassner (2006)) présente une forte dispersion des données. Une partie de cette dispersion peut s'expliquer par l'incertitude concernant le coefficient de diffusion utilisé pour la normalisation. Il est aussi vraisemblable que les différences de protocole entre les études comparées induisent des écarts de comportement en fluage. Pour les contraintes les plus faibles, la dispersion est de quatre ordres de grandeur, probablement du fait que les auteurs n'ont pas tenu compte de la taille des grains pour comparer les données.

Du fait de protocoles expérimentaux très différents, d'une étude à l'autre, les résultats restent difficiles à comparer, notamment au niveau des coefficients de Norton et énergies d'activation.

Cette difficulté justifie notamment la nécessité d'acquérir de nouvelles données expérimentales sur nos tôles de M5®, pour s'appuyer sur des estimations précises de la vitesse de fluage.

2.1.1.2 Bilan des essais de fluage

Des essais de fluage isotherme ont donc été effectués sur des tôles de M5® dans le domaine quasi-α entre 650 et 760°C, dans la direction de laminage. Dans ce domaine de températures, deux régimes de fluage thermiquement activés sont observés (figure 2.5), sur lesquels on identifie une loi puissance (équation 2.1, modèle de Norton sans seuil) :

1. pour les basses contraintes, un régime de fluage avec un exposant de Norton n_1=1,
2. pour les contraintes plus élevées, un régime de fluage avec un exposant de Norton supérieur n_2=5.

La contrainte de transition entre les deux régimes diminue légèrement quand la température augmente et se situe entre 15 et 20MPa (à 760 et 650°C respectivement).

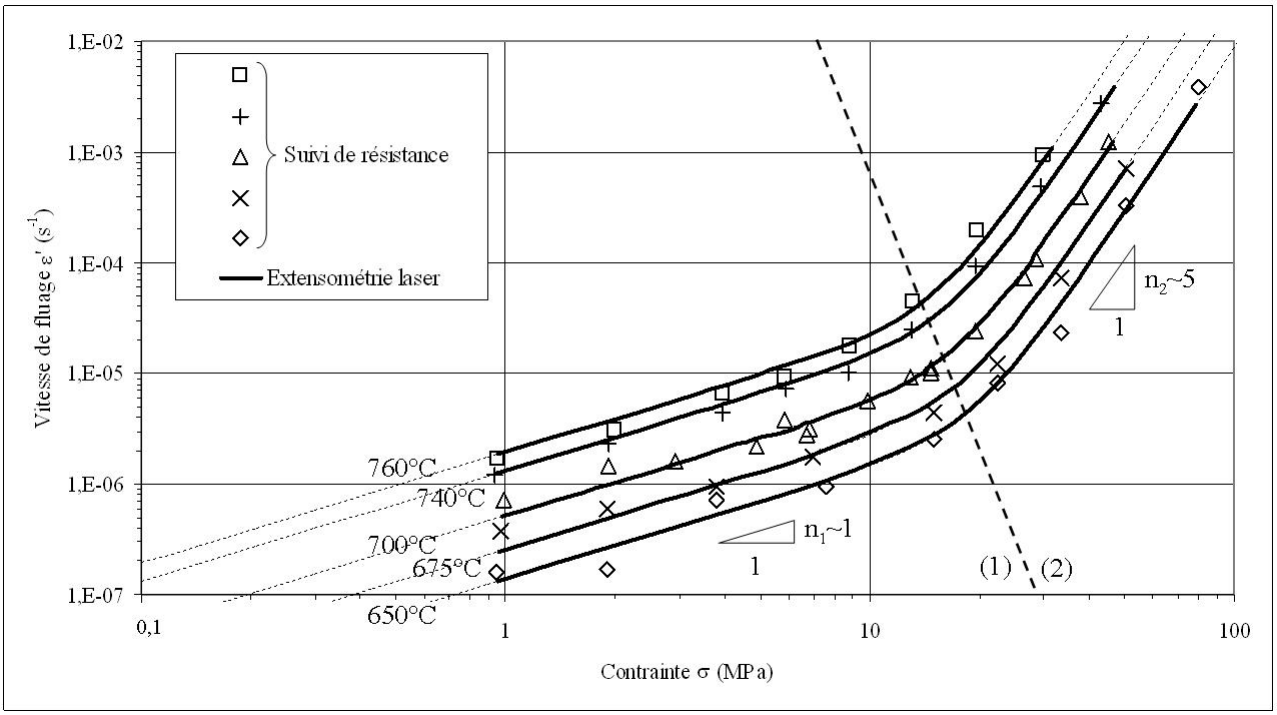


Figure 2.5 – *Comportement expérimental en fluage du M5® dans le domaine quasi-α (un essai par température)*

Les deux méthodes de suivi cinématique (suivi de résistance et extensométrie laser) fournissent des résultats cohérents. Etant donnée la meilleure précision obtenue par extensométrie laser, les mesures expérimentales obtenues par cette méthode seront utilisées par la suite dans ce domaine.

La figure 2.6 compare ces résultats aux résultats obtenus précédemment lors de la thèse de D. Kaddour (2004), aux mêmes températures, dans des conditions analogues, en fluage par traction uniaxiale, sur des gaines de M5®. Les deux régimes de fluage ont également été observés et les vitesses de fluage mesurées sont relativement proches même si quelques écarts sont mis en évidence :

- **dans le régime de fluage basses contraintes, une plus grande sensibilité à la température est relevée pour les tôles**. A 650 et 675°C, les vitesses de fluage plus faibles que sur gaines ont été mesurées sur tôles alors qu'entre 700 et 760°C, ces vitesses sont analogues.
- **dans le régime de fluage à plus fortes contraintes**, nous ne disposons pas de données sur gaines au-delà de 700°C. Entre 650 et 700°C, **le coefficient de Norton identifié par Kaddour (2004) était plus faible (n_2=4 contre 5)**.

Les écarts sont donc relativement faibles (au maximum 50% en vitesse). Ceux-ci pourraient provenir d'effets de textures même si les textures de la gaine et de la tôle sont voisines dans leur état initial recristallisé (figure 1.6 et Kaddour (2004)) et que la sollicitation de fluage est dans la direction de laminage dans les deux cas. Plus vraisemblablement, les écarts sont à relier au protocole expérimental utilisé pour le fluage axial des gaines (déformation légèrement non homogène par effet d'ombrage entre les drapeaux utilisés pour le suivi par extensométrie laser, Kaddour (2004)). **Les essais sur tôles** bénéficient d'un protocole expérimental mieux maîtrisé et donc de mesures plus fiables. Ils **sont donc considérés dans la suite comme les mesures de référence du matériau**.

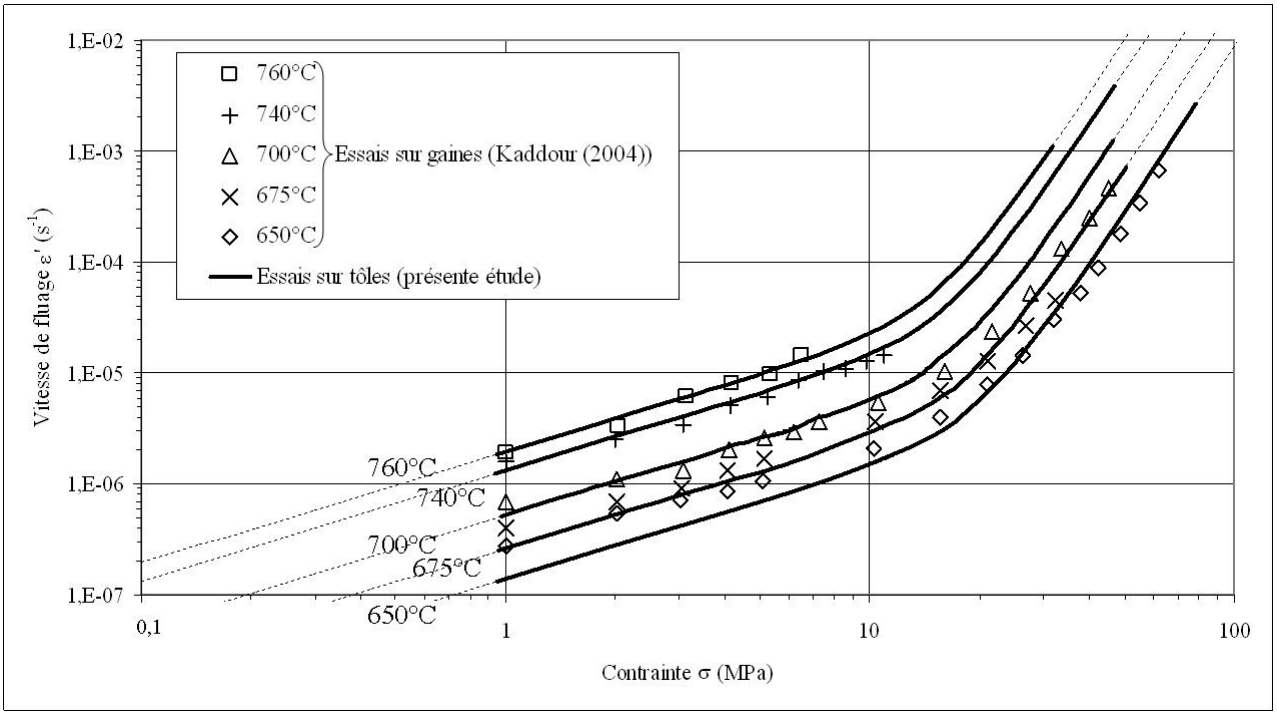


Figure 2.6 – *Comparaison entre les essais réalisés sur tôle (présente étude) et sur gaine (Kaddour (2004)) dans le domaine quasi-α*

Des observations métallographiques par microscopie optique ont été effectuées après ces essais de fluage (figure 2.7). A cette échelle et dans ces conditions d'observation, la microstructure diffère peu de celle observée à l'état initial (figure 1.5) : structure équiaxe recristallisée avec une taille de grains moyenne de 6-7μm.

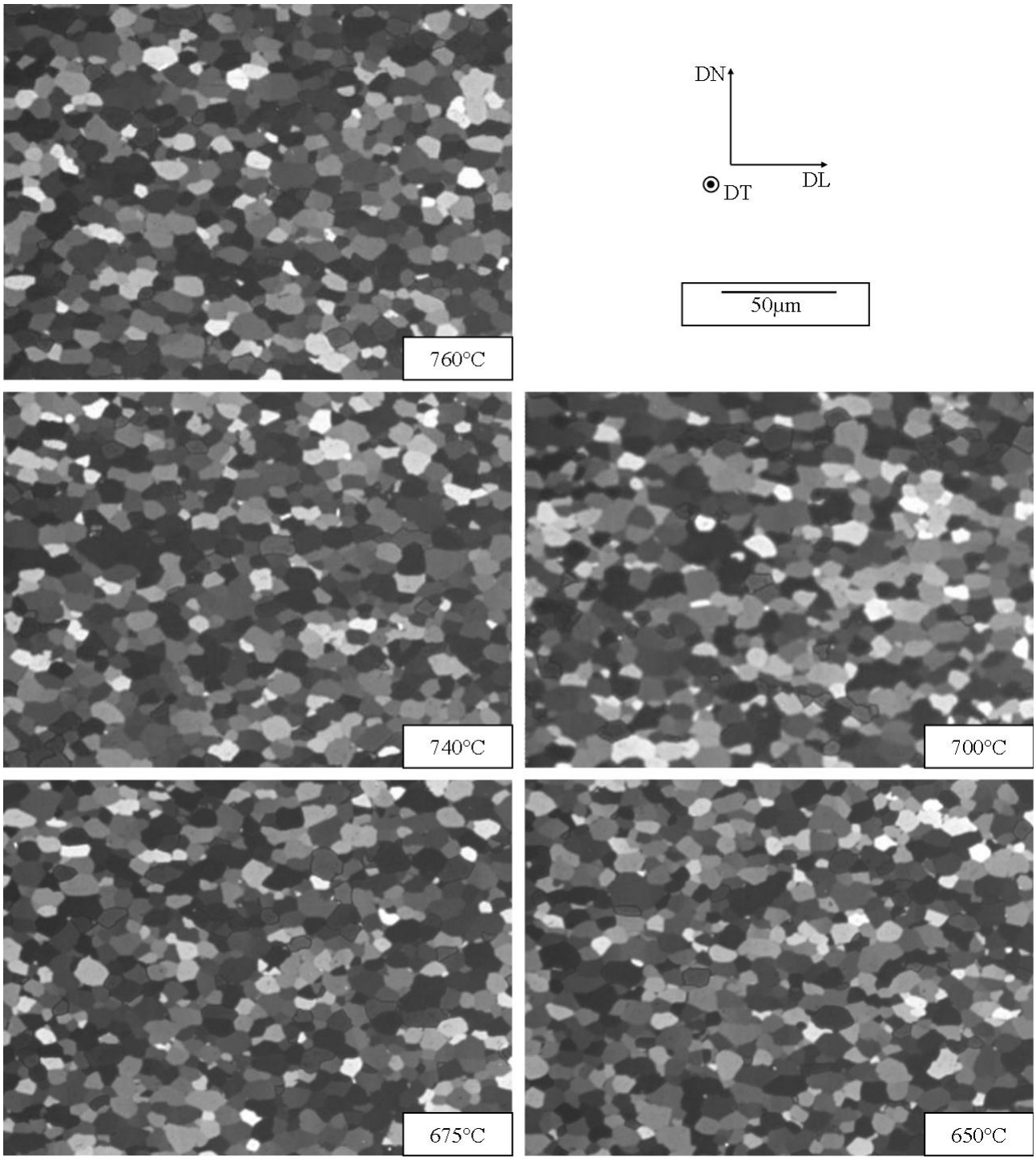


Figure 2.7 – *Micrographies optiques (contraste de Nomarsky) du M5® après essais de fluage dans le domaine quasi-α (zone utile des éprouvettes)*

Sur la base des exposants de Norton observés ainsi que par analogie avec les données bibliographiques obtenues sur le zirconium et ses alliages (voire étendus au titane), le régime basses contraintes (n_1=1) impliquerait des mécanismes, contrôlant la vitesse de déformation, de type diffusionnel (en volume (Nabarro (1948), Herring (1950)) voire plus vraisemblablement aux interfaces (Coble (1963))). Conjointement, des mécanismes de glissement aux joints de grains α (éventuellement au niveau des interfaces interphases avec la phase β_{Zr}) pourraient également exister.

Les observations microstructurales à mener pour confimer ce point sont spécifiques aux différents mécanismes (Burton et Reynolds (1995), Rama Rao (1998), Langdon (2000, 2002), Wadsworth et al. (2002), McNee et al. (2002), Greenwood (2005)). En l'absence de telles observations dans notre cas, il est impossible de conclure et tous les mécanismes sont à envisager pour le moment.

De la même manière, des mécanismes de déformation par mouvements de dislocations (montée et/ou glissement) seraient à associer au régime de fluage à plus fortes contraintes (n_2=5).

En considérant que les deux régimes de fluage coexistent même si dans chaque domaine l'un ou l'autre des mécanismes prédomine, la vitesse de fluage de la phase α dans le domaine quasi-α peut être modélisée par l'équation 2.2 :

$$\underline{\underline{\dot{\varepsilon}^{vp}}} = \underline{\underline{\dot{\varepsilon}_1^{vp}}} + \underline{\underline{\dot{\varepsilon}_2^{vp}}} \tag{2.2}$$

Chaque vitesse de déformation viscoplastique $\underline{\underline{\dot{\varepsilon}_i^{vp}}}$ correspond à l'un des deux régimes :

1. pour le régime basses contraintes :

$$\underline{\underline{\dot{\varepsilon}_1^{vp}}} = \left[\dot{\varepsilon}_1 \left(\frac{\sigma_{VM}}{\sigma_0}\right)^{n_1}\right] \frac{3}{2} \frac{\underline{\underline{\sigma^D}}}{\sigma_{VM}} \tag{2.3}$$

2. pour le régime à plus fortes contraintes :

$$\underline{\underline{\dot{\varepsilon}_2^{vp}}} = \left[\dot{\varepsilon}_2 \left(\frac{\sigma_{VM}}{\sigma_0}\right)^{n_2}\right] \frac{3}{2} \frac{\underline{\underline{\sigma^D}}}{\sigma_{VM}} \tag{2.4}$$

avec :
- n_1=1 et n_2=5,
- $\dot{\varepsilon}_i$, homogène à une vitesse de déformation,
- σ_{VM} la contrainte équivalente de von Misès,
- σ_0 un paramètre homogène à une contrainte (ici, choisi égal à 1MPa),
- $\underline{\underline{\sigma^D}}$ la partie déviatorique du tenseur des contraintes.

Un premier modèle peut être identifié sur cette base expérimentale en considérant uniquement, comme l'avait proposé Kaddour (2004), une dépendance envers la température par l'intermédiaire d'un modèle à énergie d'activation de type Arrhénius (équation 2.5) :

$$\dot{\varepsilon}_i = \frac{A_i}{T} \exp\left(-\frac{E_{ai}}{RT}\right) \tag{2.5}$$

avec :
- A_i des constantes ($K{\cdot}s^{-1}$),
- E_{ai} des énergies d'activation ($kJ{\cdot}mol^{-1}$),
- R la constante des gaz parfaits,
- T la température (en K).

La figure 2.8 présente l'identification des deux valeurs d'énergies d'activation E_{ai} associées aux deux régimes de fluage avec :
- $A_1 \approx 2,7.10^7 K{\cdot}s^{-1}$
- $A_2 \approx 1,2.10^5 K{\cdot}s^{-1}$

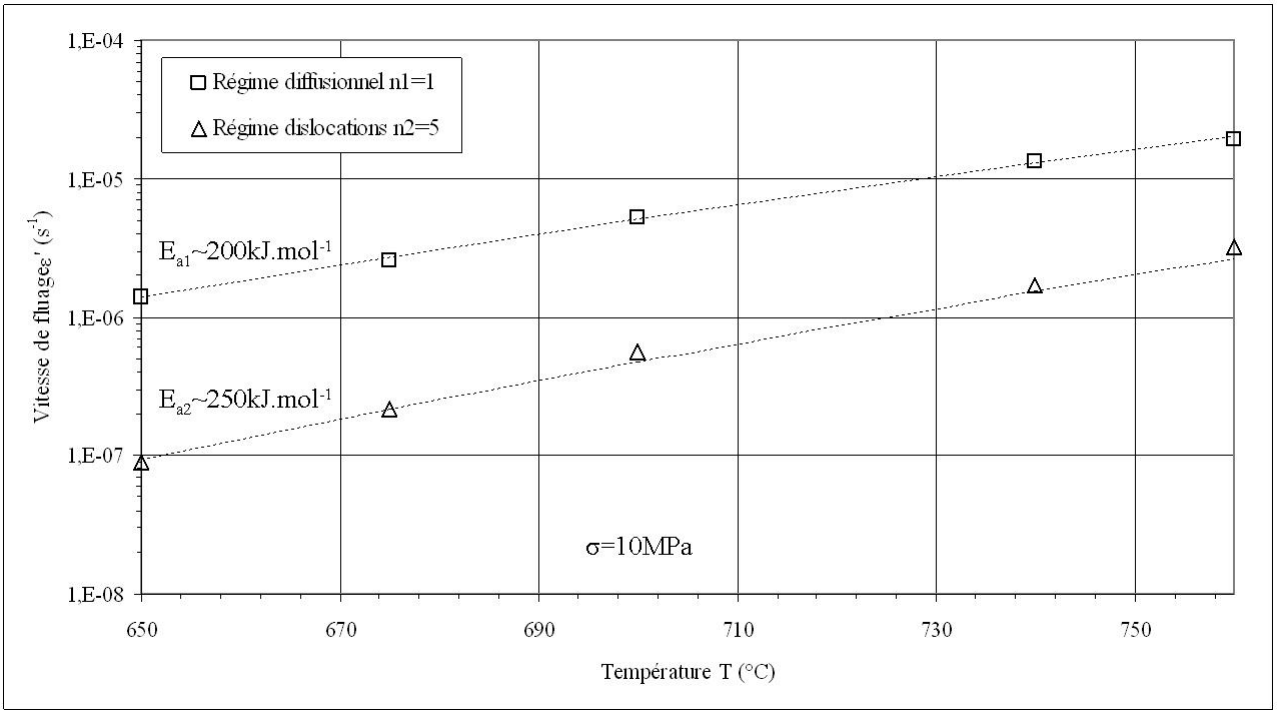


Figure 2.8 – *Identification des énergies d'activation des deux régimes de fluage du M5® dans le domaine quasi-α*

Ce premier modèle décrit correctement le comportement du matériau dans le domaine quasi-α. Les énergies d'activation identifiées sont sensiblement supérieures à celles proposée par Kaddour (2004) (respectivement $133kJ{\cdot}mol^{-1}$ et $194kJ{\cdot}mol^{-1}$). Les écarts ne sont cependant pas très importants si on considère la faible étendue de température de la base expérimentale (110°C, d'où une incertitude évaluée à $\pm 20kJ{\cdot}mol^{-1}$ sur l'identification des énergies d'activation). Par ailleurs, par rapport aux valeurs des énergies d'activation relevées dans la littérature et à leur diversité (tableaux 2.1 à 2.5), cette identification peut être considérée comme raisonnable.

2.1.2 Domaine monophasé β

Contrairement au domaine quasi-α, le domaine de températures considéré (960-1050°C) est un domaine strictement monophasé β, sans phase α résiduelle et où les éléments d'alliage sont tous en solution.

2.1.2.1 Etude bibliographique

Les données bibliographiques sont nettement moins nombreuses dans le domaine β par rapport à celles du domaine α. Sargent et Ashby (1982) ont construit leur carte des mécanismes de déformation pour la phase β du zirconium pur sans données expérimentales mais en supposant un comportement analogue à celui du titane pur. Ils ont ainsi prédit, pour une taille de grains de $100\mu m$, deux régimes de fluage (figure 2.3) :

- aux faibles contraintes, un régime diffusionnel avec diffusion au cœur des grains (Nabarro (1948), Herring (1950)),
- aux contraintes plus élevées, un régimes de fluage dislocations.

Dans les différentes études référencées dans le tableau 2.6, **seul le régime de fluage par glissement et/ou montée des dislocations a été relevé**. Ceci n'exclut bien sûr pas que pour des contraintes plus faibles (et donc difficilement accessibles expérimentalement) ou des tailles de grains plus faibles, le matériau puisse fluer selon un mécanisme diffusionnel.

Référence	Conditions expérimentales	Comportement en fluage
Ardell (1964)	Zr pur 1200°C	$n \approx 4$
Abramyan et al. (1967)	Zr pur 1050-1370°C	$n = 3,25$ $E_a \approx 146,5 kJ{\cdot}mol^{-1}$
Rose et Hindle (1973) Rose et Hindle (1977)	Zy-2 1000-1140°C	$n = 4,2$ $E_a \approx 238 kJ{\cdot}mol^{-1}$
Clendening (1975) Hardy (1973)	Zy-4 1000-1200°C 2,5-5,4MPa	$n = 3,7$ $E_a \approx 150 kJ{\cdot}mol^{-1}$
Hunt et Foote (1977)	1000-1300°C 4-12MPa Zy-4 Zr-2,5%Nb	 $n = 3,7 - 4$ $E_a = 130 - 150 kJ{\cdot}mol^{-1}$ $n = 4$ $E_a = 70 - 100 kJ{\cdot}mol^{-1}$
Burton et al. (1978)	Zy-2 1050-1250°C 0,5-2MPa	$n = 3,7$ $E_a \approx 174 kJ{\cdot}mol^{-1}$ glissement des dislocations et des joints de grain
Clay et Stride (1978)	Zy-2 1000-1500°C 1,5-5MPa	$n = 4,2$ $E_a \approx 150 kJ{\cdot}mol^{-1}$
Rizkalla et al. (1979)	Zy-2 1000-1200°C 0,5-10MPa (compression)	$n = 3,5 - 4$ $E_a = 130 - 143 kJ{\cdot}mol^{-1}$ dislocations
Rosinger et al. (1979)	Zy-4 1000-1200°C 1-10MPa	$n = 3,79$ $E_a = 142,3 kJ{\cdot}mol^{-1}$ glissement -montée dislocations
Shewfelt et al. (1984)	Zr-2,5%Nb 950-1200°C	$n = 3,4$ $E_a \approx 163 kJ{\cdot}mol^{-1}$
Stephan et al. (1992)	Zr-1%Nb 840-930°C	$n \approx 4$ $E_a = 140,3 kJ{\cdot}mol^{-1}$
Fréchinet (2001)	Zy-4 1000-1100°C 0,7-3MPa	$n = 4,25$ $E_a \approx 150 kJ{\cdot}mol^{-1}$ glissement -montée des dislocations
Kaddour (2004) Kaddour et al. (2004)	Zr-1%Nb 960-1100°C 1-5MPa	$n = 4,3$ $E_a \approx 142 kJ{\cdot}mol^{-1}$ glissement -montée des dislocations
Rodchenkov et Semenov (2005)	Zr-2,5%Nb 900-1000°C	$n = 5$ $E_a \approx 319 kJ{\cdot}mol^{-1}$
Charit et Murty (2008) Alymov et al. (1987b)	Zr-1%Nb 897-1097°C	$n = 4$ $E_a \approx 110 kJ{\cdot}mol^{-1}$ glissement -montée des dislocations

Tableau 2.6 – *Bilan bibliographique sur le fluage du zirconium et des alliages de zirconium à haute température en phase β : exposant n et énergie d'activation E_a de la loi puissance*

Le grossissement très rapide des grains β dès l'atteinte de la température de fin de transformation de phases crée une microstructure plus grossière en phase β (taille de grains supérieure à $100\mu m$). Ceci limite donc *a priori* les possibilités d'observation d'un éventuel régime de fluage diffusionnel à faibles contraintes.

Wenk et al. (2004), Romero et al. (2009) ont étudié la texture de la phase β créée lors de la transformation de phases au chauffage. Le matériau apparaît moins texturé en phase β, phase de symétrie supérieure (cubique centrée). Néanmoins, à cause de la taille des grains β, un volume important de matière est nécessaire pour inclure la plupart des orientations comprises dans la texture du matériau et en atténuer l'anisotropie.

Burton et al. (1978), Clay et Stride (1978) ont réalisé leurs essais de fluage sur des fils chauffés par effet Joule. La structure β sollicitée était une structure de type « bambou » présentant des grains en série (figure 2.9). Cette structure est moins résistante au fluage car les grains, non confinés latéralement par des grains voisins, se déforment plus librement. Le glissement aux joints de grain est également plus aisé, même si la majorité d'entre eux sont orientés transversalement à la direction de traction, ce qui est défavorable au glissement intergranulaire. De plus, les éprouvettes ont tendance à strictionner : les grains favorablement orientés pour le glissement des dislocations se déforment de manière plus importante, la section se réduisant alors localement ; la localisation est accentuée également par le système de chauffage de l'éprouvette, car plus la section diminue, plus l'effet Joule et donc l'efficacité du chauffage sont élevés.

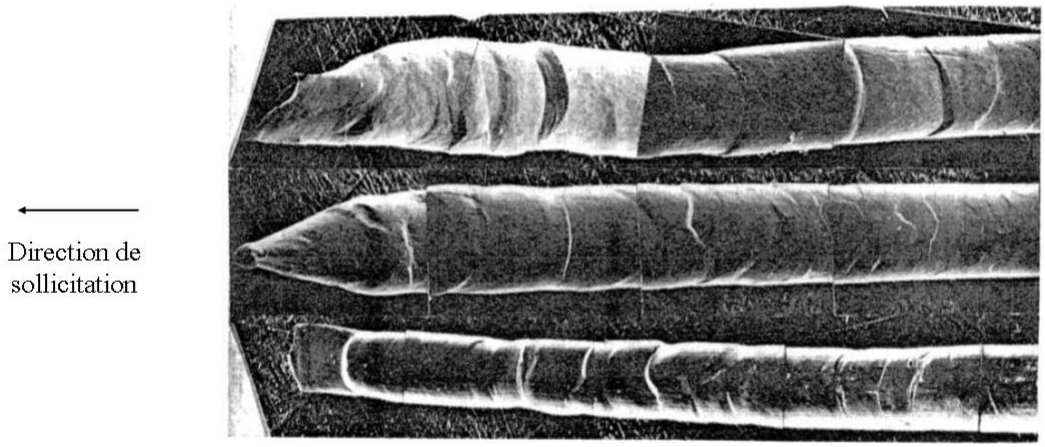


Figure 2.9 – *Micrographie électronique à balayage (électrons secondaires) d'un fil de Zy-2 après un essai de fluage dans le domaine β (Burton et al. (1978))*

Les autres études réalisées sur des éprouvettes plus volumineuses (gaines ou tôles), comparées par Evans et Knowles (1978), Rosinger et al. (1979), ne mettent pas en évidence d'effet de texture. L'isotropie de comportement en fluage resterait néanmoins à démontrer.

Par comparaison à la phase α, outre l'effet de la température, la phase β est présentée comme moins résistante au fluage. Ceci peut s'expliquer par le nombre plus important de systèmes de glissement de la structure cubique centrée (Rodchenkov et Semenov (2005)). Hunt et Foote (1977) attribuent plutôt cet écart à l'absence de précipités, tous les éléments d'alliage étant en solution solide.

Evans et Knowles (1978), qui ont comparé les comportements du zirconium, du Zy-2 et du Zy-4 soulignent le faible effet des éléments d'alliage sur le comportement en fluage dans

le domaine β (50% au maximum sur les vitesses, à comparer aux écarts de plusieurs décades observés pour le domaine α).

2.1.2.2 Bilan des essais de fluage

Des essais de fluage isotherme ont été effectués sur le M5® dans le domaine β entre 960 et 1050°C. Contrairement au domaine quasi-α, un seul régime de fluage thermiquement activé est observé (figure 2.10), à rapprocher du régime observé à plus fortes contraintes dans le domaine quasi-α, avec un exposant de Norton n_2=4, conforme à la bibliographie.

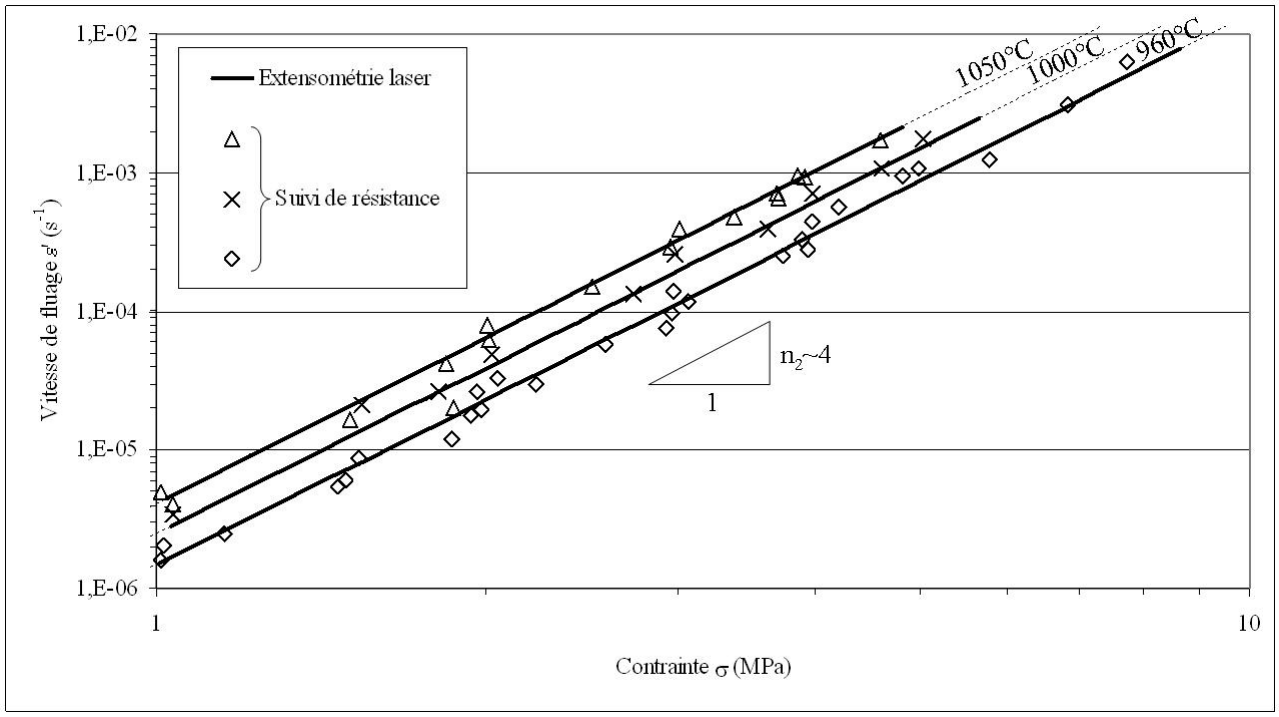


Figure 2.10 – *Comportement expérimental en fluage du M5® dans le domaine β (au moins deux essais par température)*

A nouveau, les deux méthodes de suivi cinématique (suivi de résistance et extensométrie laser) fournissent des résultats cohérents. Etant donnée la meilleure précision obtenue par extensométrie laser, les mesures expérimentales obtenues par cette méthode seront utilisées par la suite dans ce domaine, tout comme dans le domaine quasi-α.

Aucun essai n'a pu être réalisé au-delà de 1050°C car sur cette géométrie d'éprouvette (figure A.2), la section est relativement faible et on a observé une sensibilité locale due à un affaiblissement créé par le soudage du thermocouple. Nous nous sommes donc limités à des températures plus faibles pour lesquelles la déformation reste homogène.

Comme pour le domaine quasi-α, en se basant sur l'exposant de Norton (n_2=4) ainsi que sur les données bibliographiques, des mécanismes de dislocations (montée et/ou glissement) seraient à associer au régime de fluage observé. Etant donnée la retransformation du matériau au refroidissement, les mécanismes de fluage sont encore plus complexes à identifier *post-mortem* dans ce domaine.

Des observations métallographiques ont été effectuées après les essais de fluage au niveau de la zone utile de l'éprouvette (figure 2.11). Une structure en lattes de type Widmanstätten est créée au refroidissement à partir du domaine β. Afin de mieux révéler la microstructure d'intérêt existant à haute température, un refroidissement étagé a été mis en œuvre (annexe A), qui révèle les ex-joints de grains β. Dans ce domaine de températures, les tailles de grains observées sont supérieures à $500\mu m$ et croissent avec la température.

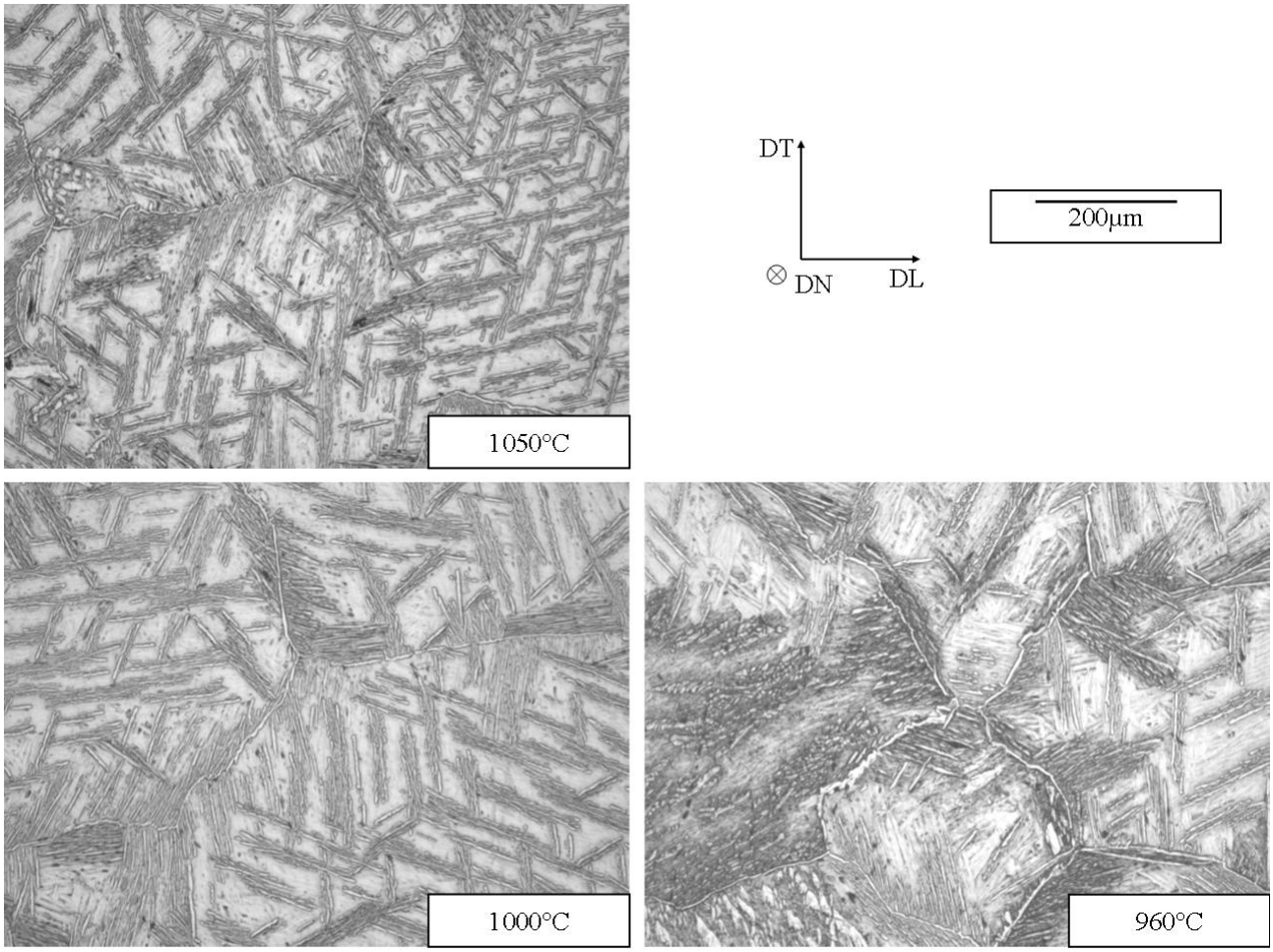


Figure 2.11 – *Micrographies optiques (lumière blanche) du M5® après essais de fluage dans le domaine β et refroidissement étagé (zone utile des éprouvettes)*

Certains grains étant quasi millimétriques, les éprouvettes ne présentent parfois que deux ou trois grains dans l'épaisseur et moins d'une dizaine de grains dans la section. Ce n'est donc pas tout à fait une structure de type bambou (figure 2.9). Même si des hétérogénéités locales de déformation sont visibles figure 2.12, même au bout de plusieurs dizaines de pourcents de déformation (maximum atteint : 40%), d'un point de vue global, si on s'intéresse au comportement en volume, il y a peu de localisation de la déformation.

Néanmoins, afin d'étudier la répétabilité, à chaque température, les essais ont été doublés (triplés à 960°C). On n'observe que très peu de dispersion entre les essais (figure 2.10), malgré le peu de grains sollicités (de l'ordre de la dizaine de grains), on en conclut que les expériences sont représentatives du comportement du matériau.

Ceci est conforté par comparaison avec les résultats obtenus sur gaines par Kaddour (2004). Les gaines présentant une section nettement plus importante (initialement environ $16mm^2$

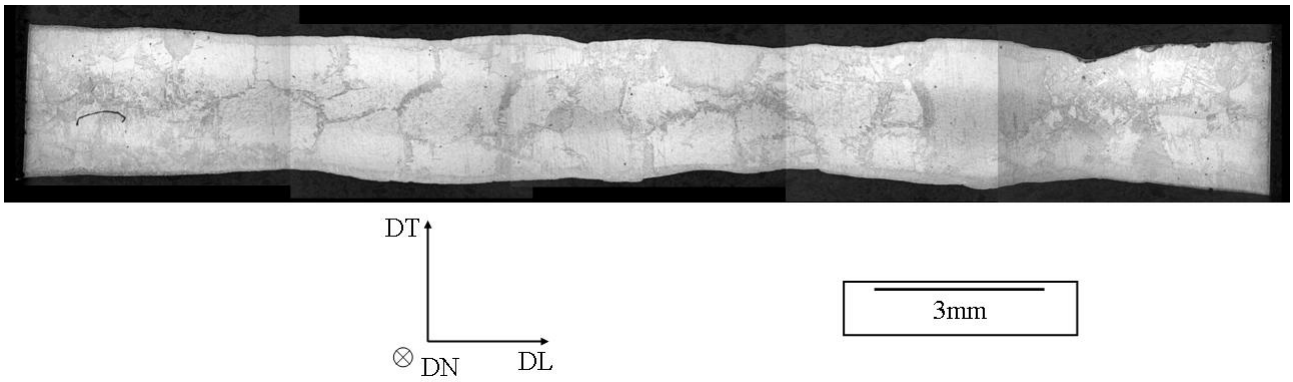


Figure 2.12 – *Micrographie optique (lumière blanche) du M5® après essai de fluage dans le domaine β (1050°C) et refroidissement four coupé*

contre $3,6mm^2$ pour les tôles), davantage de grains sont donc sollicités dans la section.

La figure 2.13 présente les mesures effectuées sur gaines (Kaddour (2004)) aux mêmes températures (et également à 1100°C car les gaines plus massives ont permis d'atteindre sans artefact cette température) comparées à celles effectuées sur tôles. Les résultats obtenus sont très voisins, même si sur la base expérimentale globalement plus restreinte en contraintes de Kaddour (2004), l'exposant de Norton proposé était plus élevé (n_2=4,3 contre n_2=4 dans la présente étude). L'écart est néanmoins moins important que dans le domaine quasi-α.

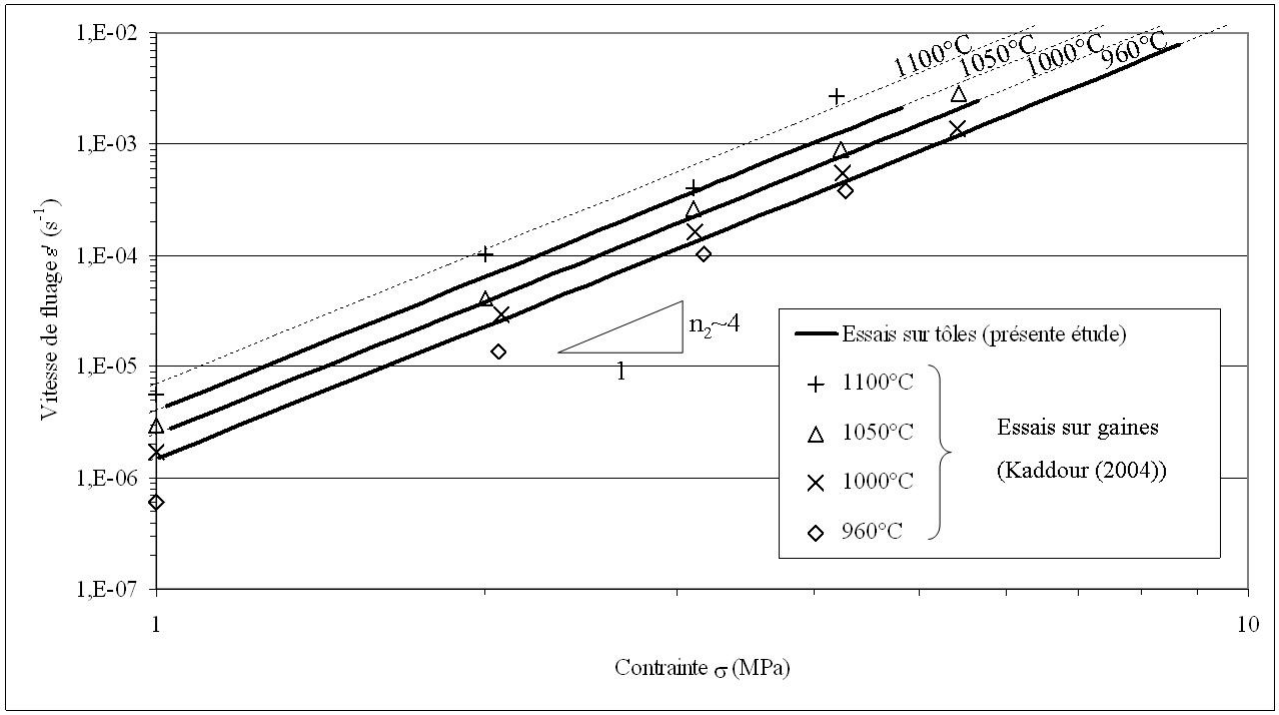


Figure 2.13 – *Comparaison entre les essais réalisés sur tôle (présente étude) et sur gaine (Kaddour (2004)) dans le domaine β*

La phase β ayant un comportement moins anisotrope que la phase α, les faibles écarts sont probablement à attribuer aux différences de protocole expérimental.

Un premier modèle de comportement de la phase β, ne prenant en compte que l'effet de la

température (équation 2.5) est identifié sur cette base expérimentale, en ne considérant que le second régime de fluage (i=2).

La figure 2.14 présente l'identification de l'énergie d'activation E_{a2} ($\approx 180 kJ{\cdot}mol^{-1}$) avec $A_2 \approx 7.10^4 K{\cdot}s^{-1}$.

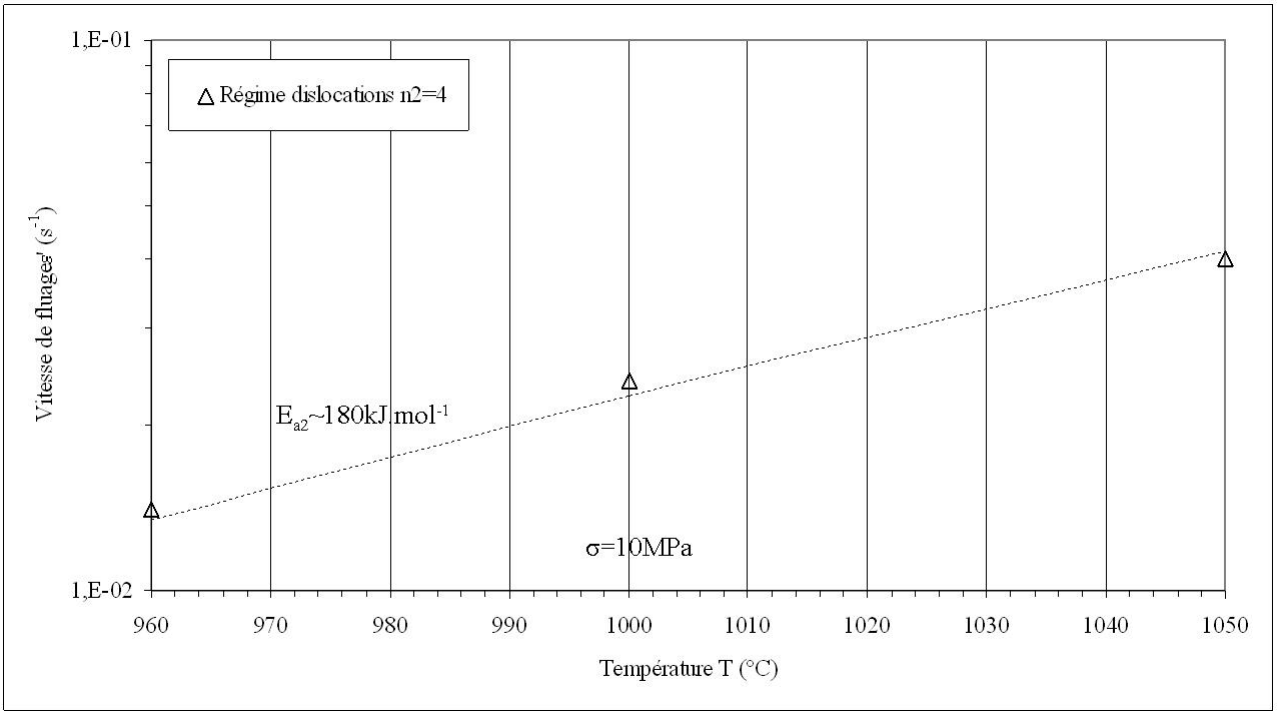


Figure 2.14 – *Identification de l'énergie d'activation pour le fluage du M5® dans le domaine β*

Compte tenu de la faible étendue de variation de températures (90°C), ce modèle décrit correctement le comportement de la phase β dans la plage 960-1050°C, avec une faible précision pour l'identification de l'énergie d'activation (incertitude évaluée à $\pm 25 kJ{\cdot}mol^{-1}$). C'est pourquoi, même si la valeur proposée est supérieure à celle de Kaddour (2004) ($E_a \approx 142 kJ{\cdot}mol^{-1}$), pour le moment, il est difficile de conclure quant à la qualité de l'identification des paramètres du modèle.

2.2 Domaine biphasé ($\alpha + \beta$)

2.2.1 Etude bibliographique

Seuls les alliages de zirconium, par rapport au zirconium pur, ont un domaine de températures de transformation de phases $\alpha \rightarrow \beta$ suffisamment étendu pour étudier le comportement en fluage dans le domaine biphasé ($\alpha + \beta$). Comme les modifications microstructurales sont importantes, même au sein d'une même étude, une grande diversité de comportements est observée.

Cette diversité de comportements se retrouve dans le tableau 2.7 qui regroupe les principales références de travaux ayant essayé d'identifier une loi puissance dans le domaine biphasé.

Référence	Conditions expérimentales	Comportement en fluage
Clendening (1975)	Zy-4, 900°C sous argon direction de laminage	$n = 2,2$
Hunt et Foote (1977)	Zr-2,5%Nb 700-800°C 900-1000°C Zy-4 900°C 4-12MPa, sous vide pression interne	$n = 1$ $n = 2,2$ $n = 2,2$
Rosinger et al. (1979)	Zy-4, 822-972°C 3-30MPa, sous argon direction de laminage	$n = 1,8$ $E_a = 56,6 kJ{\cdot}mol^{-1}$ $n = 2,28$ $E_a = 155,5 kJ{\cdot}mol^{-1}$
Adam et al. (1985) Adam et al. (1987) Adam et al. (1988)	Zr-1%Nb, 780-950°C sous argon et vapeur pression interne	$n = 6$ $E_a = 63,3 kJ{\cdot}mol^{-1}$
Adam et al. (1989)	Zr-1%Nb, 820-905°C sous argon et vapeur pression interne	$n = 6$ $E_a = 140 kJ{\cdot}mol^{-1}$
Fréchinet (2001)	Zy-4, 825-920°C 1-40MPa, sous vide direction de laminage	$n = 1,3$ $E_a \approx 190 kJ{\cdot}mol^{-1}$
Kaddour (2004) Kaddour et al. (2004)	Zr-1%Nb, 800-900°C 1-30MPa, sous vide direction de laminage	$n = 1,3$
Rodchenkov et Semenov (2005)	Zr-2,5%Nb, 600-800°C sous argon directions de laminage et transversale	$n = 2,67$ $E_a \approx 202 kJ{\cdot}mol^{-1}$

Tableau 2.7 – *Bilan bibliographique sur le fluage des alliages de zirconium à haute température dans le domaine biphasé ($\alpha + \beta$) : exposant n et énergie d'activation E_a de la loi puissance*

Shewfelt et al. (1984), Shewfelt et Lyall (1985) proposent de décomposer la déformation observée pour le Zr-2,5%Nb entre 850 et 950°C en une contribution de déformation de la phase β de type loi-puissance et une contribution due au glissement des joints de grains, au niveau des interfaces interphases.

Boček et al. (1977), Garde et al. (1978) et Garde (1979) ont mis en évidence en traction ces glissements aux joints de grains vers 850°C-900°C (figure 2.15), au début de la transformation de phases. L'accommodation de ce glissement aux joints de grains se ferait par du fluage diffusionnel (modèle de Ashby et Verrall (1973)), de la recristallisation dynamique ou encore du fluage par mouvements de dislocations.

En traction toujours, ce glissement aux joints de grains confère au matériau un comportement superplastique également observé notamment par Chung et al. (1977), Fotedar et al. (1997) sur du Zy-2, Lee et Backofen (1967), Hill et al. (2001) sur du Zy-4 et Singh et al. (2001), Kapoor et al. (2005) sur du Zr-2,5%Nb. Le pic de superplasticité correspond à un maximum du coefficient m de sensibilité de la contrainte à la vitesse de traction de l'ordre de 0,5. Pour le fluage, cela correspondrait à un exposant de Norton $n = 1/m$ d'environ 2, qui est une valeur

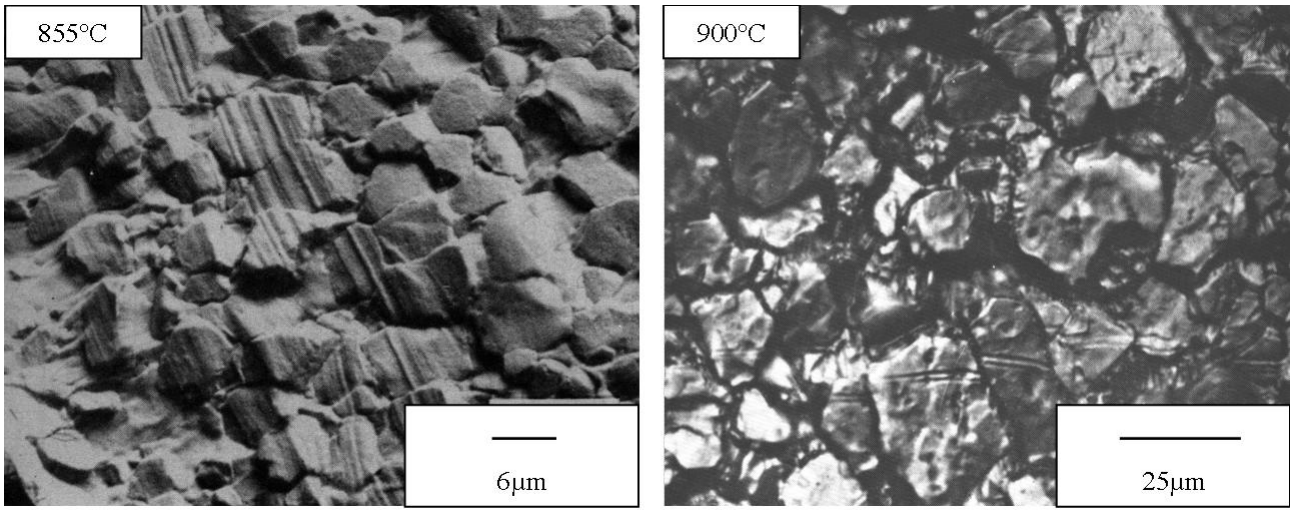


Figure 2.15 – *Micrographies électroniques à balayage (électrons secondaires) mettant en évidence du glissement aux joints de grains après un essai de traction sur du Zy-4 dans le domaine biphasé(Boček et al. (1977), Garde et al. (1978))*

proche de celles répertoriées dans le tableau 2.7. Des valeurs plus faibles de m (de l'ordre de 0,2-0,3) sont aussi mesurées au voisinage du pic de superplasticité, ce qui donnerait un exposant de Norton n de l'ordre de 4-5.

La phase β est considérée comme étant la phase la moins résistante au fluage : en effet, celle-ci ne contient pas de précipités (éléments d'alliage en solution solide, Hunt et Foote (1977)) ; de plus Rodchenkov et Semenov (2005) expliquent également que la phase β, non seulement possède plus de sytèmes de glissement que la phase α, mais elle est en plus appauvrie en oxygène dans le domaine biphasé, élément durcissant en fluage, par rapport à la phase α.

On peut donc retenir que **les interfaces interphases (α/β) sont susceptibles de glisser**. Ce mécanisme de glissement, également envisagé dans le domaine quasi-α, peut être soit le mécanisme contrôlant la vitesse de déformation, soit se produire conjointement à un autre mécanisme d'accommodation contrôlant la vitesse de déformation : mécanismes diffusionnels, de mouvements de dislocations... (Cannon et Langdon (1983), Chokshi et Langdon (1991), Chokshi (2001), Langdon (1994, 2000))

Néanmoins, il convient de souligner que les micrographies de la figure 2.15 pourraient non pas mettre en évidence du glissement aux interfaces interphases (α/β) mais uniquement le fait que **la phase β située entre les grains α se déforme beaucoup plus vite que ces derniers. C'est cette seconde explication qui sera d'ailleurs privilégiée dans la suite de l'étude.**

Comme dans le domaine quasi-α, de forts écarts de comportements subsistent entre les différentes données bibliographiques. Afin d'obtenir des estimations précises de la vitesse de fluage des tôles de M5®, il convient d'acquérir de nouvelles données expérimentales, sur le même matériau et dans les mêmes conditions que pour les essais dans le domaine quasi-α.

2.2.2 Bilan des essais de fluage

Des essais de fluage isotherme ont donc été effectués sur le M5® dans le domaine biphasé $(\alpha+\beta)$ entre 800 et 900°C. L'effet de la température sur les vitesses de fluage est moins net que dans les domaines monophasés (figure 2.16). **Entre 800 et 860°C, on observe nettement une augmentation de la vitesse de fluage avec la température et entre 860 et 900°C une stagnation, voire même une diminution à 900°C**.

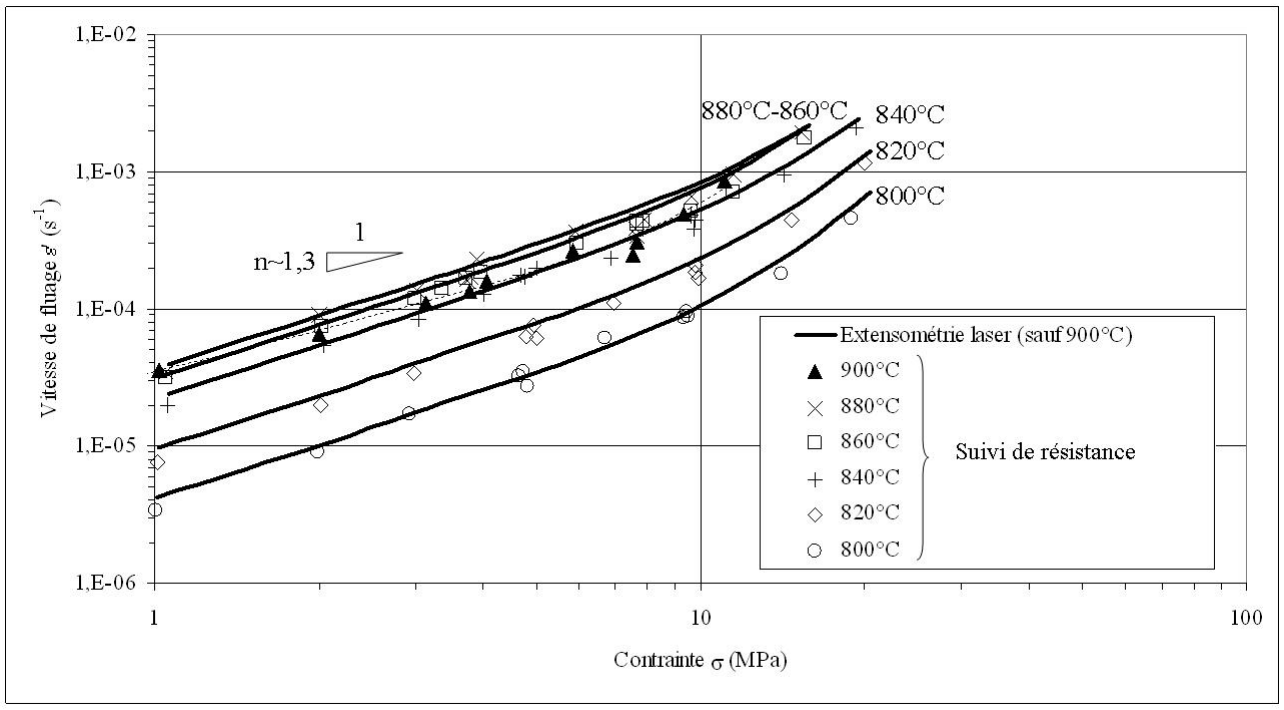


Figure 2.16 – *Comportement expérimental en fluage du M5® dans le domaine biphasé $(\alpha+\beta)$ (un essai par température)*

Par rapport à la contrainte, on peut distinguer un régime entre 1 et 10MPa avec un exposant de Norton $n_1 = 1,3$ et une transition vers un autre régime avec un exposant plus élevé pour les plus fortes contraintes. **Aucun mécanisme de fluage clairement prépondérant n'est identifié directement**. La compréhension de ce domaine nécessite donc des investigations plus poussées.

Dans ce domaine biphasé, tout comme dans les autres domaines, les essais précédents (Kaddour (2004)) effectués sur gaine sont en bon accord (écarts en vitesse inférieurs à 20%) avec les essais effectués ici sur tôle (figure 2.17).

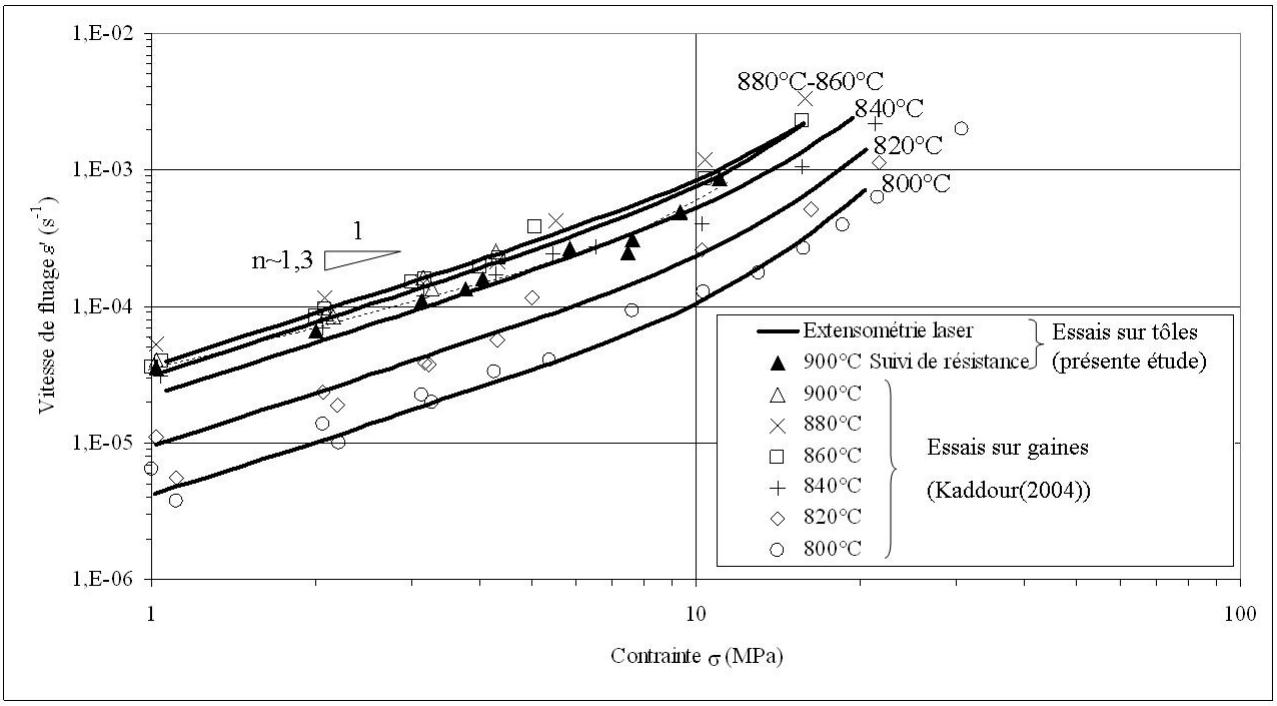


Figure 2.17 – *Comparaison entre les essais réalisés sur tôle (présente étude) et sur gaine (Kaddour (2004)) dans le domaine biphasé ($\alpha + \beta$)*

Sur les micrographies optiques obtenues après les essais de fluage et un refroidissement four coupé (figure 2.18), la phase β de la structure existant à haute température (biphasée ($\alpha + \beta$)) s'est transformée au refroidissement en une structure en lattes de Widmanstätten (foncées sur les micrographies) que l'on peut distinguer de la phase α primaire (en clair).

En supposant d'une part que la microstructure n'évolue pas pendant le maintien au chauffage (Kaddour (2004) a montré que la résistivité n'évoluait pas, ce qui est confirmé dans cette étude *a posteriori* par le bon accord entre les mesures de suivi de résistance et par extensométrie laser) et que d'autre part, la phase α primaire n'évolue pas significativement au cours du refroidissement, ces micrographies permettent de décomposer la transformation de phases au chauffage.

Comme le montraient aussi les micrographies 2.1 et 2.2, la germination de la phase β_{Zr} se produit aux joints de grains α et préférentiellement aux joints triples. Il y a également quelques germes en position intragranulaire. La phase β croît ensuite le long des joints de grains α puis s'épaissit vers le cœur des grains α. **A partir de 880-900°C, le grossissement des grains β est visible**.

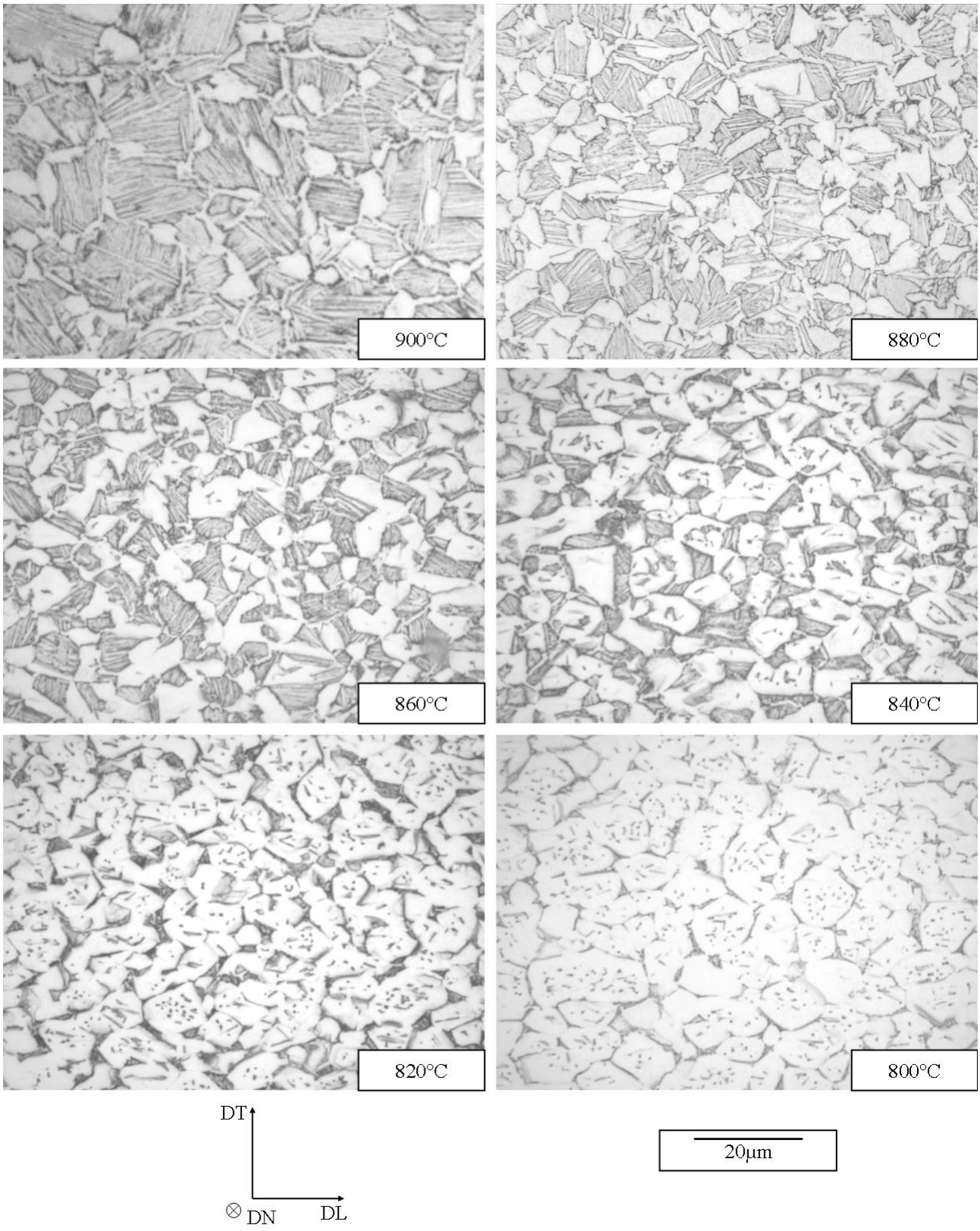


Figure 2.18 – *Micrographies optiques (lumière blanche) du M5® après essais de fluage dans le domaine biphasé ($\alpha + \beta$) et refroidissement four coupé (zone utile des éprouvettes)*

Au cours des essais, la transformation de phases est suivie *in-situ* par la méthode de suivi de résistance détaillée en annexe A. Les valeurs de fractions de phase β mesurées pour chaque essai sont reportées sur la figure 2.19. Ces valeurs sont proches des fractions attendues en conditions de « quasi-équilibre » (obtenues après des essais de calorimétrie). Les essais de 800 à 900°C

balaient un large intervalle du domaine biphasé (de 7% à 92% de phase β).

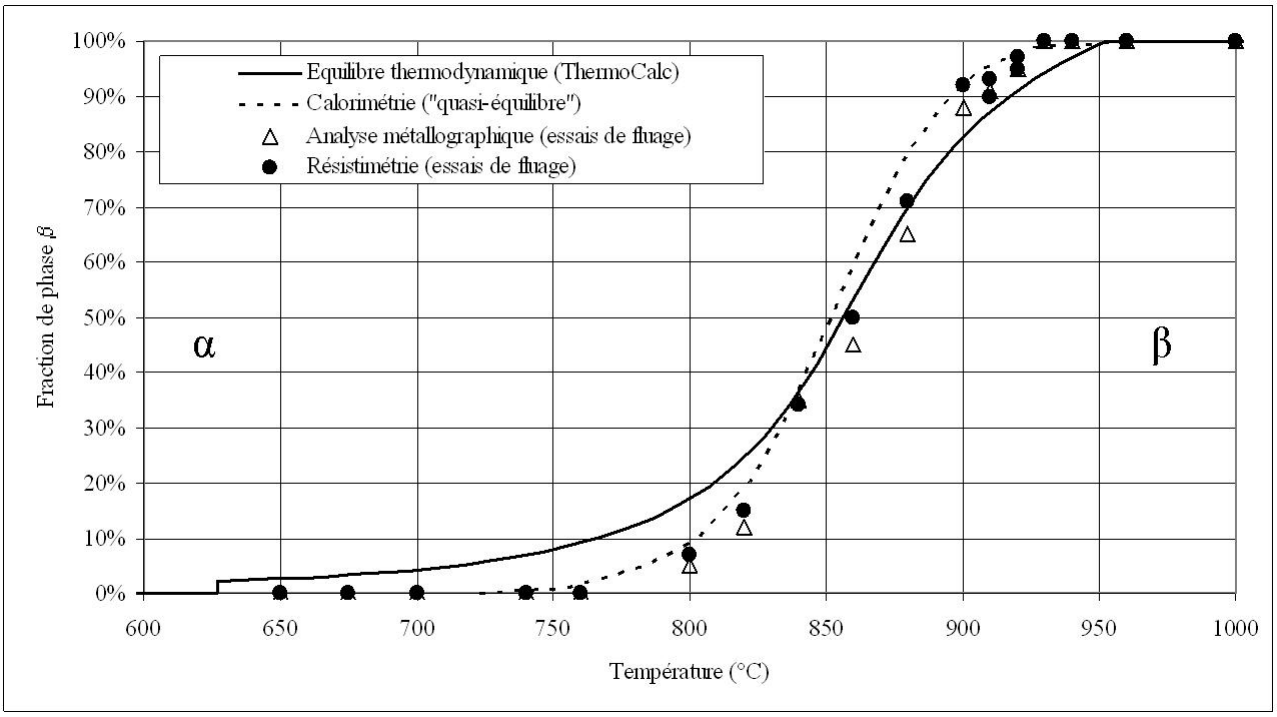


Figure 2.19 – *Fraction de phase β transformée évaluée par mesure de résistance lors des essais de fluage en conditions de « quasi-équilibre » et par analyse métallographique post-essai*

Une évaluation « manuelle » de la fraction de phase β a été effectuée à partir des micrographies optiques. Des valeurs légèrement plus faibles de fractions de phase β sont ainsi obtenues (figure 2.19). A 900°C, on a considéré que la phase α située aux joints de grains β, de forme lamellaire, s'était probablement formée lors du refroidissement. Seule la phase α globulaire est considérée comme primaire et est donc prise en compte. La distinction n'est pas toujours aisée et une condition préalable est que le polissage et l'attaque chimique, opérations délicates, soient suffisamment efficaces pour correctement révéler la microstructure. De plus, il n'est pas exclu que la phase α primaire ait légèrement grossi au refroidissement, avant l'apparition de la structure de Widmanstätten. Cette évaluation doit donc être considérée comme une borne inférieure de la fraction de phase β.

Hormis à 900°C, lors de ces essais dans le domaine biphasé ($\alpha + \beta$), les deux méthodes de suivi cinématique (suivi de résistance et extensométrie laser) fournissent des courbes de fluage équivalentes et l'on privilégiera les mesures obtenues par extensométrie laser (figure 2.16). A 900°C en revanche, les valeurs obtenues par extensométrie laser (non représentées pour des raisons de lisibilité) sont supérieures à celles obtenues par suivi de résistance (environ d'un facteur 1,5 sur les vitesses). L'analyse métallographique a montré une bonne homogénéité au niveau de la zone utile, mais au niveau des congés de raccordement, une proportion de phase α sensiblement plus importante et des grains β plus petits, se rapprochant de ce que l'on observe à 880°C. Ceci confirme le gradient de 15-20°C au niveau des congés de raccordement par rapport à la mesure de température centrale du thermocouple (mais ce gradient est inférieur à 5°C au niveau de la zone utile). Comme expliqué en annexe A, **les mesures obtenues par suivi de résistance sont donc préférées à celles obtenues par extensométrie laser pour la température d'essai de 900°C**.

2.3 Effet de la température

2.3.1 Première modélisation du comportement du matériau biphasé

Le premier modèle proposé de comportement de chaque phase, α et β, prenant en compte l'effet de la contrainte et de la température semble bien décrire les vitesses de fluage sur chaque base d'identification, respectivement dans les domaines quasi-α et β.

En extrapolant ce modèle dans le domaine biphasé ($\alpha + \beta$) comme proposé par Kaddour (2004), par exemple à 860°C (figure 2.20), on peut remarquer que le comportement expérimental à 860°C n'est pas encadré pour les faibles contraintes (à 860°C, inférieures à 5MPa) par les lois décrivant le comportement de chaque phase. On « fluerait plus vite » que chacune des deux phases considérées séparément.

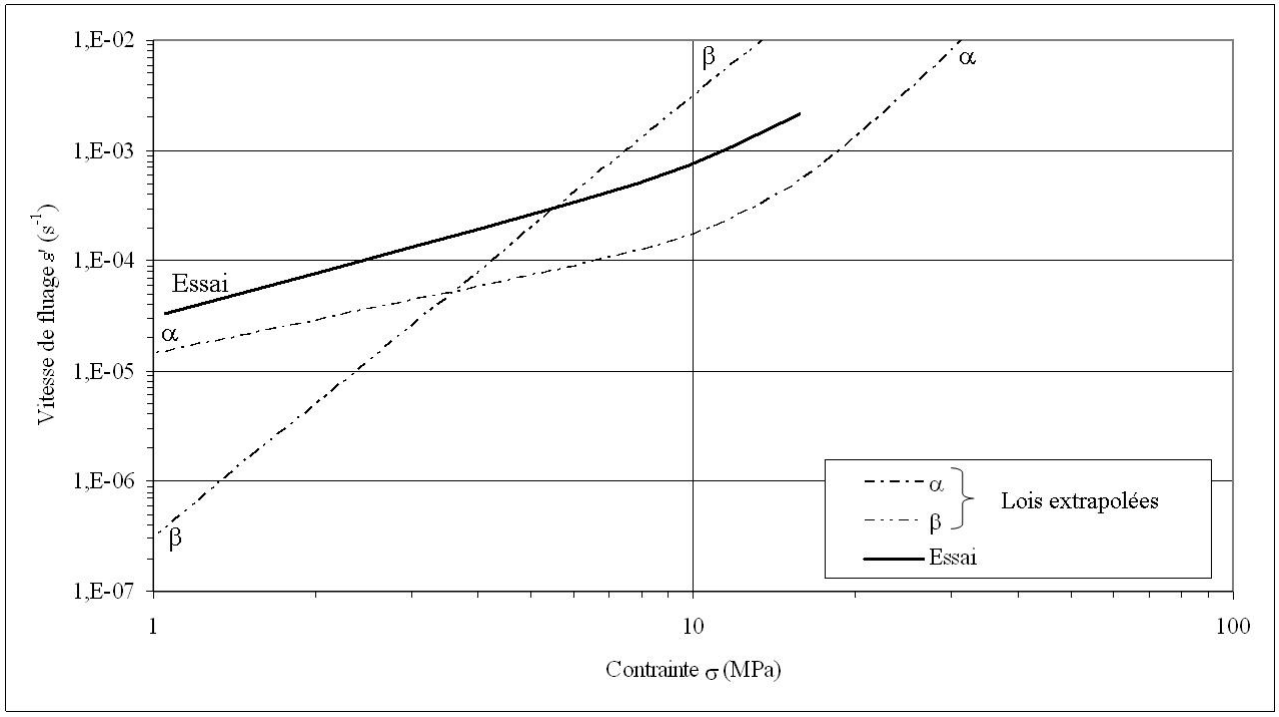


Figure 2.20 – *Modélisation du fluage du M5® à 860°C à partir de lois pour chacune des phases α et β extrapolées en température à partir des domaines monophasés quasi-α et β*

Sans utiliser la fraction de chaque phase (50% à 860°C) ni utiliser le moindre modèle d'homogénéisation, le fait d'avoir un comportement expérimental « hors bornes » par rapport aux lois extrapolées indique que notre modèle de comportement pour chacune des phases néglige sans doute un effet physique important, probablement lors de l'étape d'extrapolation. En effet, dans le domaine d'identification (monophasé), le modèle semblait décrire correctement le comportement de chaque phase.

C'est ce que nous allons confirmer dans le paragraphe suivant.

2.3.2 Comparaison entre les différents domaines de températures, à basse contrainte (1-4MPa)

A partir de l'ensemble des essais effectués, un comparatif est dressé entre les trois domaines, monophasés quasi-α et β et biphasé ($\alpha+\beta$). On s'intéresse en particulier au domaine des faibles contraintes (1-4MPa) où la première modélisation se place « hors bornes » par rapport au comportement expérimental.

La figure 2.21 regroupe ainsi sous la forme de courbes isocontraintes, en fonction de la température, les vitesses de fluage expérimentales, comme le fait la figure 1.16 pour les essais sur gaines. Dans les domaines monophasés quasi-α et β, le fluage est thermiquement activé, les vitesses étant croissantes avec la température. Dans le domaine biphasé ($\alpha+\beta$), de 800 à 860°C, les vitesses sont également croissantes avec la température. Par contre, de 860 à 900°C, les courbes présentent un plateau, à savoir que les vitesses, à contrainte donnée, sont quasiment constantes quelle que soit la température.

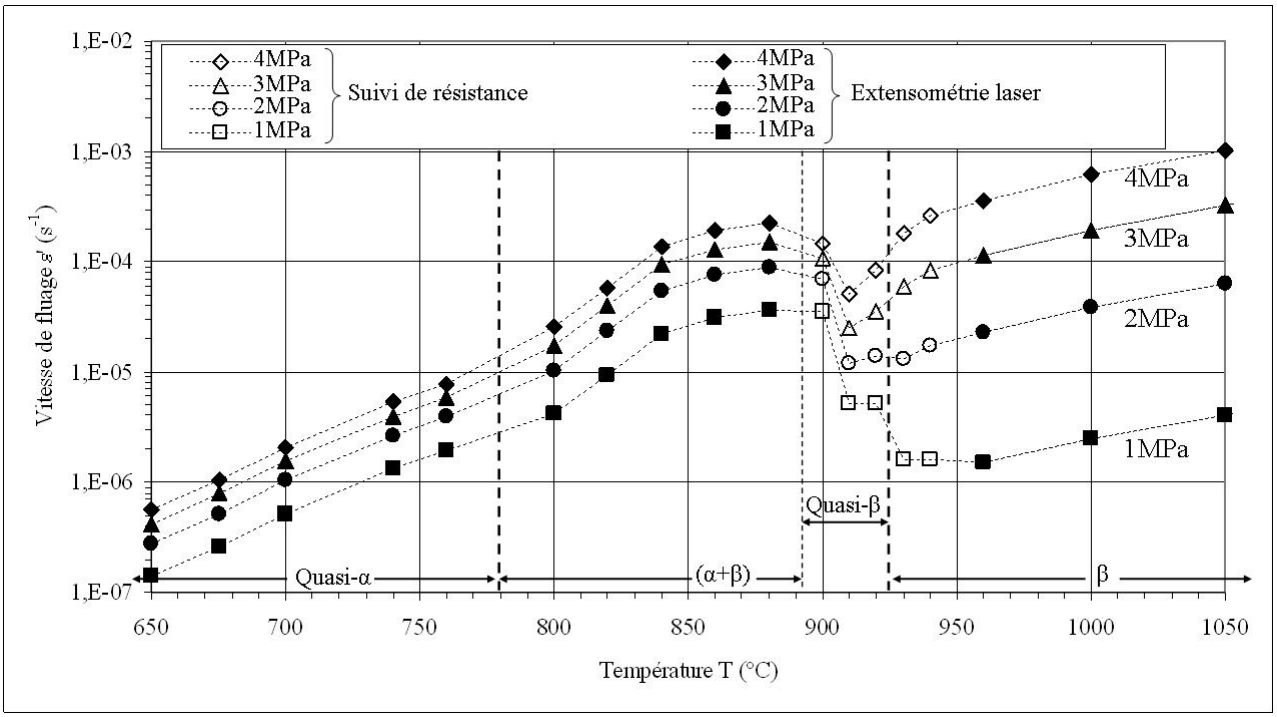


Figure 2.21 – *Comportement expérimental en fluage du M5® aux faibles contraintes (courbes isocontraintes 1-4MPa)(à partir de 910°C, au moins deux essais par température)*

Entre 900 et 960°C, dans le haut du domaine biphasé, en prenant en compte les essais enrichissant la base expérimentale (entre 910 et 940°C, sur lesquels nous reviendrons dans le paragraphe suivant), une rupture de comportement est observée. A une contrainte donnée, on observe sur la figure 2.21 une diminution de la vitesse de fluage suivie d'une augmentation, la température du minimum (entre 910 et 940°C) étant fonction de la contrainte.

A partir de cette rupture de comportement dans le haut du domaine biphasé, il apparaît à nouveau que l'extrapolation directe d'un modèle de comportement de la phase β dans le domaine biphasé n'est pas possible.

Cette rupture de comportement dans le haut du domaine biphasé a déjà été constatée par Clendening (1975), Hunt et Foote (1977), Fréchinet (2001) sur du Zy-4, Hunt et Foote (1977),

Shewfelt et al. (1984) sur du Zr-2,5%Nb et Alymov et al. (1987b), Kaddour (2004) sur du Zr-1%Nb. Hunt et Foote (1977) l'attribuent aux changements microstructuraux dont le grossissement des grains β et la dissolution des précipités. Charit et Murty (2008) attribuent la rupture observée par Alymov et al. (1987b) à un changement des coefficients de diffusion entre le domaine biphasé et le domaine β.

2.3.3 Domaine quasi-β

Le haut du domaine biphasé est donc un domaine d'intérêt assez restreint en température dans lequel le comportement global du matériau évolue très fortement, surtout aux faibles contraintes. Des essais de fluage isotherme supplémentaires ont donc été effectués entre 900 et 960°C.

A 900°C, on a détecté par suivi de résistance 92% de phase β (figure 2.19). Le comportement global en fluage du matériau est donc majoritairement influencé par la phase β et, par suite, on peut supposer *a priori* que le comportement observé est quasiment celui de la phase β. *A fortiori*, pour les températures supérieures (aucune phase α résiduelle n'est détectée par résistivité au-delà de 920°C), il en serait de même. Le domaine où il reste quelques pourcents de phase α résiduelle, s'étendant au dessus de 900°C jusqu'au transus $\alpha + \beta \rightarrow \beta$, sera donc dénommé dans la suite de cette étude domaine quasi-β.

A partir de cette hypothèse, pour les essais à 900, 910 et 920°C, on peut considérer (figure 2.22) que l'**on observe pour le comportement de la phase β deux régimes de fluage** :

1. pour les basses contraintes, un régime de fluage avec un exposant de Norton n_1=1, surtout observé à 900°C, comme ce qui avait été observé pour la phase α dans le domaine quasi-α,

2. pour les contraintes plus élevées, le régime de fluage déjà observé pour la phase β avec un exposant de Norton supérieur n_2=4, surtout observé à 910 et 920°C

A 930 et 940°C, comme pour les essais réalisés dans le domaine β, à partir de 960°C, seul le régime n_2=4 est mis en évidence dans ce domaine de contraintes.

Le dépouillement de ces essais (entre 900 et 940°C) à partir des mesures de l'extensomètre laser diffère de celui réalisé à partir des mesures de résistance au niveau des faibles contraintes (régime n_1=1). Ceci s'explique par la présence du gradient de température observé au niveau des congés de raccordement par rapport à la zone utile. En effet, expérimentalement, on observe une brusque diminution des vitesses de fluage quand la température augmente, les congés étant donc moins résistants au fluage que la zone utile, ceux-ci faussent le dépouillement par suivi extensométrique. C'est ici sensible car le changement de régime a lieu dans un domaine de températures très restreint. C'est pourquoi, seules les mesures effectuées par suivi de résistance ont été considérées. Pour les autres essais, cela ne remet pas en cause le dépouillement à partir des mesures de l'extensomètre laser dans la mesure où les résultats sont en bon accord avec les mesures par suivi de résistance.

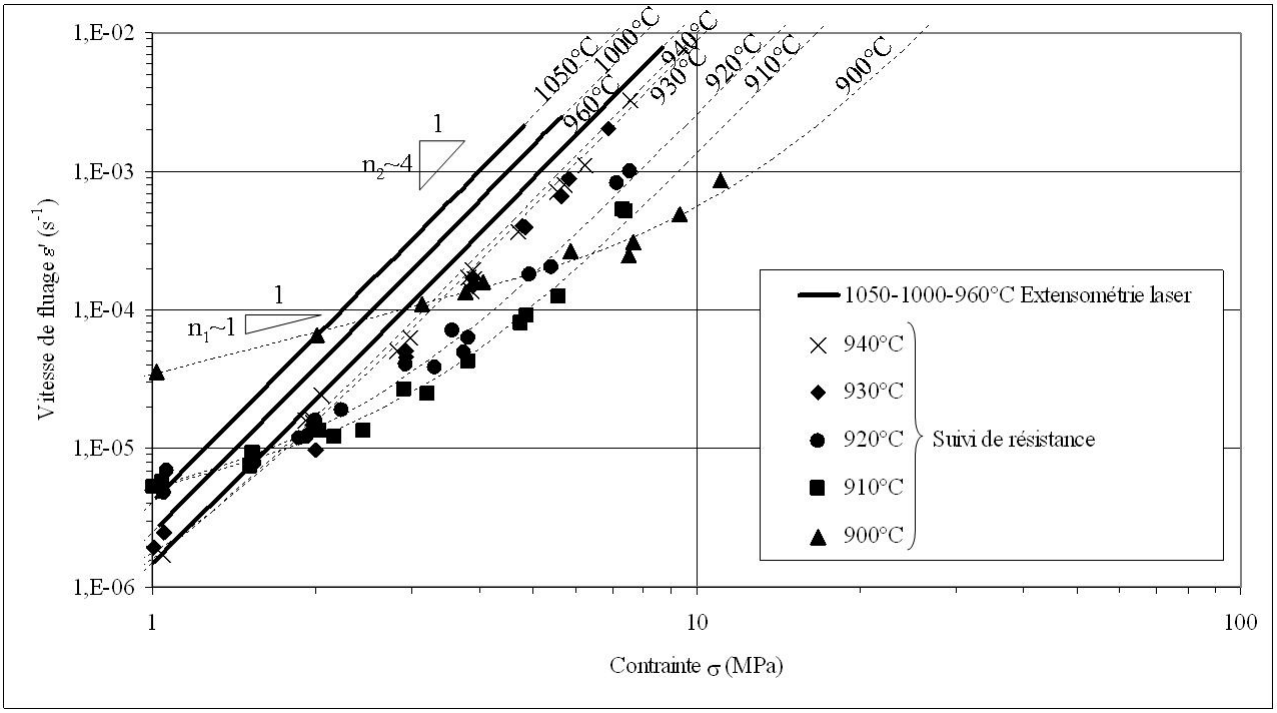


Figure 2.22 – *Comportement expérimental en fluage du M5® dans le domaine quasi-β (à partir de 910°C, au moins deux essais par température)*

Les micrographies optiques de la figure 2.23 présentent la microstructure après les essais de fluage réalisés à 930 et 940°C. Aucune trace de phase α résiduelle à haute température n'a été décelée au niveau de la zone utile sur les essais suivis d'un refroidissement direct. On peut donc en conclure que le transus haut de la transformation de phases du M5® est estimé lors de nos essais entre 920 et 930°C. Le domaine quasi-β, précédemment défini, s'étend donc de 900 à 920°C (figure 2.22, en toute rigueur un peu plus de 920°C). Les essais à 930 et 940°C ont été doublés pour, d'une part, mieux révéler par un refroidissement interrompu la taille des ex-grains β (supérieure à $500\mu m$, figure 2.23) et pour, d'autre part, confirmer la représentativité de nos essais malgré la grande taille des grains β sollicités, relativement à la taille de l'éprouvette.

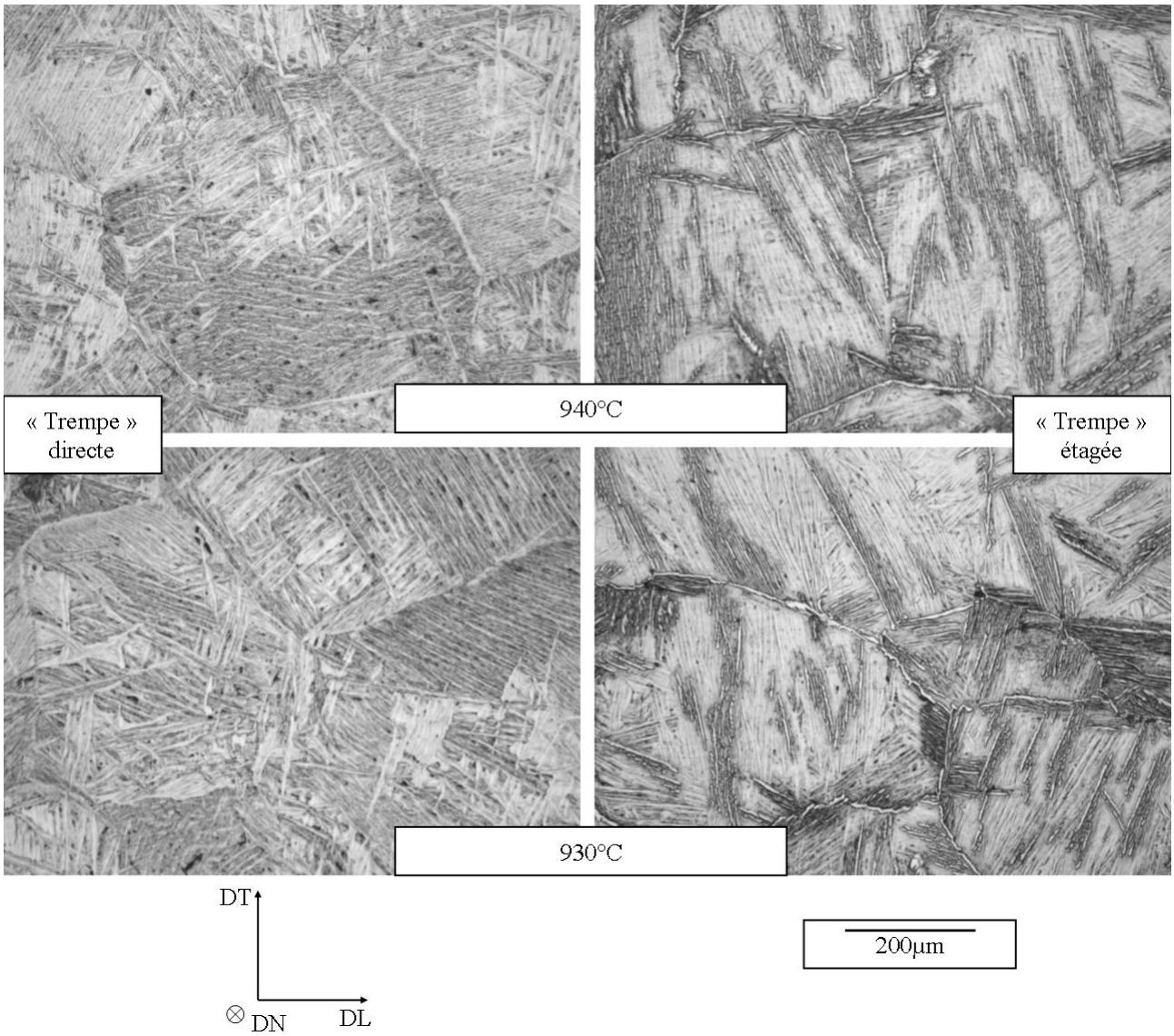


Figure 2.23 – *Micrographies optiques (lumière blanche) du M5® après essais de fluage dans le bas du domaine β et refroidissement direct ou étagé (zone utile des éprouvettes)*

La figure 2.24 présente les micrographies optiques du M5® après les essais réalisés à 900, 910 et 920°C (domaine quasi-β). Ces températures se situent bien en dessous du transus haut de la transformation de phases car de la phase α primaire, se présentant sous forme globulaire, est observée. De la phase α, de forme lamellaire, est également observée au niveau des joints de grains β. Globalement, la fraction de phase α observée est supérieure à celle mesurée par suivi de résistance au cours de l'essai (figure 2.19), sans doute pour les mêmes raisons que dans le domaine biphasé. Comme nous l'avions déjà fait, lors de l'évaluation « manuelle » de la fraction de phase à partir des micrographies, seule la phase α globulaire est considérée comme primaire et donc prise en compte. Cette évaluation métallographique fournit, comme dans le domaine biphasé, une borne inférieure vis-à-vis de la fraction de phase β réellement présente lors de l'essai de fluage.

Le grossissement des grains β, déjà observé à partir de 880°C (figure 2.18) se produit également dans cet intervalle de température restreint. La disparition de la phase α résiduelle en fin de transformation de phases, qui « épinglait » les joints de grains β semble liée au brusque grossissement des grains β à partir de 930°C.

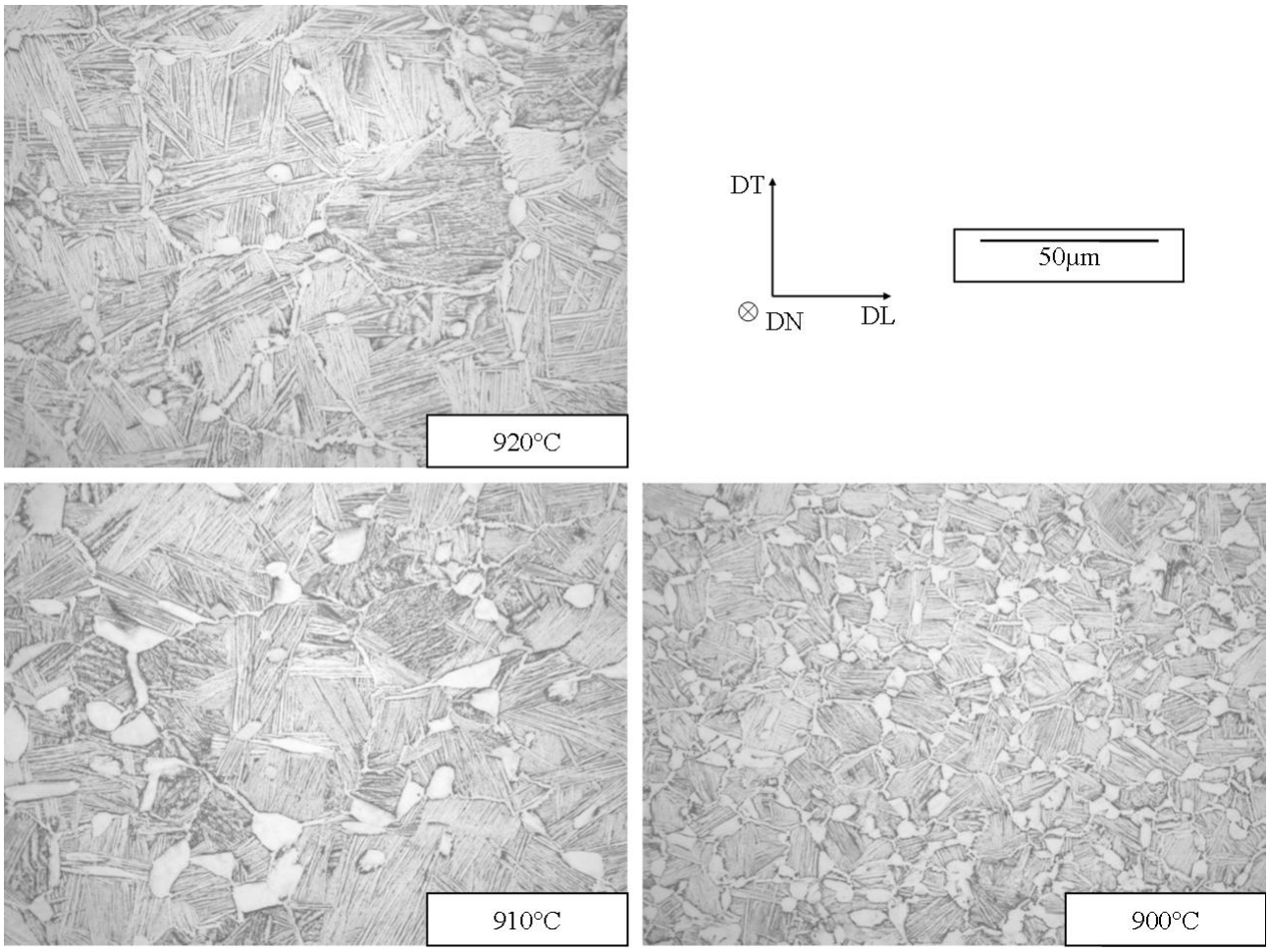


Figure 2.24 – *Micrographies optiques (lumière blanche) du M5® après essais de fluage dans le domaine quasi-β et refroidissement four coupé*

2.3.4 Bilan et problématique de l'étude

L'ensemble des essais réalisés entre 650 et 1050°C sur de la tôle de M5® (soit 26 essais) ont révélé un comportement analogue à celui observé sur gaines par Kaddour (2004) :

- dans le domaine monophasé quasi-α, deux régimes de fluage sont observés, d'exposants de Norton n_1=1 à faibles contraintes et n_2=5 à plus fortes contraintes
- dans le domaine monophasé β, seul le régime n_2=4 est mis en évidence

La modélisation du comportement du matériau biphasé basée sur l'extrapolation directe de lois de comportement pour chaque phase identifiées dans les domaines monophasés respectifs est insuffisante, en particulier aux faibles contraintes. Cette difficulté est à relier notamment à la rupture de comportement observée dans le haut du domaine biphasé. L'extrapolation du comportement de chaque phase et donc la modélisation du comportement de chaque phase sont à améliorer : un ou plusieurs phénomènes physiques ont probalement été ignorés lors de l'extrapolation et la suite de l'étude sera consacrée à la recherche et à la quantification de ces effets « fantômes ».

L'étude bibliographique du fluage des alliages de zirconium dans le domaine biphasé mettait en avant le phénomène de glissement des interfaces interphases (α/β). Même si ce phénomène de glissement n'est pas complètement à exclure, notamment dans le domaine

quasi-α où ces interfaces sont déjà présentes, d'autres explications sont ici privilégiées, concernant le comportement intrinsèque de chacune des phases.

Les essais ciblant le haut du domaine biphasé, considéré alors comme le domaine quasi-β nous amènent à proposer un régime supplémentaire de fluage pour la phase β, avec un exposant de Norton n_1=1 s'ajoutant au régime déjà mis en évidence. Par ailleurs, d'un point de vue microstructural, la transition du domaine quasi-β (900-920°C) au bas du domaine 100% β (930-960°C) présente, parallèlement à la disparition de la phase α, un fort grossissement de la taille des grains β.

Dans le premier modèle proposé, seule l'influence de la température était prise en compte. Peut-on cependant extrapoler directement les résultats obtenus avec 100% de (très gros grains) β au domaine biphasé pour lequel les grains β sont beaucoup plus petits ? **La taille de grains** étant suceptible d'influencer fortement le comportement en fluage (Nabarro (1948), Herring (1950), Coble (1963)), **cette influence va être évaluée dans la deuxième partie de l'étude, en particulier sur le régime supplémentaire de fluage proposé pour la phase** β.

Prasad et al. (1992) et Hayes et Kassner (2006) ont souligné l'influence des éléments d'alliage en comparant le comportement en fluage des Zircaloys à haute température dans le domaine α par rapport à celui du zirconium. Les diagrammes binaires Zr-Nb (figure 1.8) et Zr-O (figure 1.7) prédisent une **variation de la composition chimique de chaque phase en Nb et O respectivement dans le domaine biphasé**, par rapport à la composition chimique dans les domaines monophasés (composition nominale de l'alliage M5®). Nous allons chercher dans la deuxième partie de cette étude à **évaluer cette influence éventuelle par rapport aux effets respectifs de la température et de la taille de grains**.

La première modélisation du comportement du matériau biphasé (figure 2.20) a mis également en évidence que les comportements extrapolés de chaque phase sont susceptibles de présenter un contraste de plusieurs décades en vitesse dans le domaine biphasé. Les modèles de Taylor (1938) et Sachs (1928), ne prenant en compte, outre le comportement de chaque phase, que la fraction volumique des constituants, risquent de fournir des estimations de la vitesse de fluage du matériau biphasé relativement éloignées, sans que l'on sache si l'une ou l'autre est pertinente. Par conséquent, il est nécessaire d'utiliser des outils d'homogénéisation plus riches. Dans la troisième partie de notre étude, une approche purement numérique est choisie et développée. Dans de telles conditions de contraste entre phases, la répartition spatiale de chaque phase pouvant avoir une influence non négligeable sur le comportement macroscopique du matériau, la morphologie de chaque phase du M5® rencontrée dans le domaine biphasé ($\alpha + \beta$) au chauffage peut être observée sur les micrographies de la figure 2.18. **L'étude numérique de l'influence de cette morphologie fait également l'objet de la troisième partie**.

Chapitre 3

Effets de la taille de grains et des éléments d'alliage sur le comportement en fluage

Ce chapitre vise à enrichir les modèles de comportement de chaque phase, que l'on cherche d'abord à identifier dans les domaines quasi-monophasés respectifs, afin ensuite, de les extrapoler dans le domaine biphasé pour servir de base à la modélisation micro-mécanique du comportement du matériau biphasé.

Le chapitre 2 a en effet mis en évidence que l'effet seul de la température ne permettait apparemment pas de rendre compte du comportement de chaque phase dans le domaine biphasé. La taille de grains, mais aussi les éléments d'alliage sont susceptibles d'influencer fortement le comportement en fluage à haute température.

Dans un premier temps, après avoir quantifié les évolutions de taille de grains α et β dans les différents domaines de température, nous avons étudié expérimentalement l'influence de cette taille de grains sur le comportement en fluage à l'aide de matériaux modèles à taille de grains contrôlée élaborés spécifiquement. Il s'est avéré que ce paramètre avait un effet significatif sur la vitesse de fluage et ces essais ont donc permis de proposer un modèle de comportement en fluage pour chacune des phases, prenant en compte l'effet de taille de grains. Ce nouveau modèle introduit également le second régime de fluage observé dans le chapitre précédent pour la phase β à faibles contraintes. Une identification de ce modèle est finalement proposée à partir de l'ensemble des essais effectués sur le matériau M5® dans les domaines quasi-α pour la phase α et quasi-β et β pour la phase β.

Dans un second temps, une approche similaire est adoptée en ce qui concerne l'effet des éléments chimiques. Le contraste « micro-chimique » en Nb et O existant entre les phases α et β dans le domaine biphasé est mis en évidence et quantifié expérimentalement (pour le Nb) et à partir de simulations thermodynamiques. Ces analyses ont permis de définir les compositions chimiques en Nb et O de matériaux modèles représentatifs chimiquement de chaque phase dans le domaine biphasé. Une évaluation de l'effet de la composition chimique sur le comportement en fluage de chaque phase est proposée à partir des essais réalisés sur ces alliages modèles ainsi que sur des alliages à teneur en O et / ou Nb différentes. Néanmoins, l'effet de la composition chimique s'avérant de second-ordre, il n'est pas pris en compte dans le modèle de comportement en fluage.

Sommaire

3.1 Effet de la taille de grains sur le comportement en fluage 92
3.1.1 Etude bibliographique 92
3.1.1.1 Domaine monophasé α 92
3.1.1.2 Domaines biphasé $(\alpha + \beta)$, quasi-β 95
3.1.1.3 Domaine monophasé β 95
3.1.2 Mise en évidence des évolutions de tailles de grains 95
3.1.3 Elaboration des matériaux modèles à taille de grains contrôlée 98
3.1.3.1 Etude bibliographique 98
3.1.3.2 Elaboration des matériaux modèles pour le domaine quasi-α . . 105
3.1.3.3 Elaboration des matériaux modèles pour le domaine quasi-β . . 110
3.1.4 Comportement en fluage des matériaux modèles 111
3.1.4.1 Domaine quasi-α 111
3.1.4.2 Domaine quasi-β 113
3.1.5 Modélisation de l'effet de la taille de grains 120
3.1.5.1 Domaine quasi-α 120
3.1.5.2 Domaine quasi-β 121
3.1.6 Bilan 125
3.2 Effet de la composition chimique sur le comportement en fluage . . . 127
3.2.1 Etude bibliographique 127
3.2.1.1 Domaine monophasé α 127
3.2.1.2 Domaine monophasé β 129
3.2.1.3 Domaines biphasé $(\alpha + \beta)$ et quasi-β 130
3.2.2 Mise en évidence du contraste « micro-chimique » dans le domaine biphasé 130
3.2.3 Matériaux à teneur spécifique en niobium et oxygène 136
3.2.3.1 Matériaux modèles représentatifs de chaque phase dans le domaine biphasé 136
3.2.3.2 Autres matériaux complémentaires 141
3.2.4 Comportement en fluage des matériaux à teneur spécifique en niobium et oxygène 147
3.2.4.1 Domaine quasi-α 147
3.2.4.2 Domaines quasi-β et β 153
3.2.4.3 Domaine biphasé $(\alpha + \beta)$ 160
3.2.5 Synthèse 162

3.1 Effet de la taille de grains sur le comportement en fluage

3.1.1 Etude bibliographique

3.1.1.1 Domaine monophasé α

Parmi les études référencées dans les tableaux 2.1, 2.2, 2.3, 2.4 et 2.5, un certain nombre d'auteurs ont tenté d'établir des corrélations entre les tailles de grains du zirconium et de ses alliages et leur comportement en fluage dans le domaine α ou quasi-α. Ils ont, soit utilisé plusieurs matériaux présentant des tailles de grains différentes, soit comparé leurs résultats à d'autres résultats de la littérature obtenus sur un matériau ayant des tailles de grains distinctes. Le tableau 3.1 regroupe les informations concernant les conditions expérimentales des études citées ci-dessous.

Bernstein (1967) a ainsi comparé ses données obtenues sur du zirconium faiblement allié ayant une taille de grains de $50\mu m$ aux résultats obtenus par Ardell (1964) avec une taille de grains de $300\mu m$. Il constate ainsi que **le régime de fluage par glissement des dislocations semble peu affecté par la différence de taille de grains**. A l'inverse, seul le matériau présentant la plus faible taille de grains présente un second régime à faibles contraintes, en accord avec le mécanisme diffusionnel de Coble (1963) qu'il associe à celui-ci. Néanmoins, il ne peut pas vérifier la dépendance de la vitesse de fluage à l'inverse du cube de la taille de grains, telle qu'attendue théoriquement, faute de pouvoir faire varier celle-ci.

Warda et al. (1973), MacEwen et al. (1981) confirment que **le régime de fluage par glissement des dislocations n'est pas affecté par la taille de grains** (le zirconium étudié présentant des tailles de grains de 12, 50 et $300\mu m$ pour Warda et al. (1973) et 30 et $200\mu m$ pour MacEwen et al. (1981)). Des conclusions analogues sont proposées pour le Zy-4 (Donaldson et Ecob (1985)) et plus récemment pour du zirconium avec des tailles de grains moyennes de 16, 33 et $50\mu m$ (Prasad et al. (1989, 1992), Rama Rao (1998)) ou en analysant globalement la plupart des données de la littérature pour du zirconium et des Zircaloys (Hayes et Kassner (2002), Pérez-Prado et al. (2005), Hayes et Kassner (2006), Kassner et al. (2007)).

En ce qui concerne **le régime de fluage diffusionnel**, Malakondaiah et al. (1982) constatent de manière qualitative une diminution des vitesses de fluage entre du zirconium de taille de grains $39\mu m$ et celui à $56\mu m$. Sur la base de l'énergie d'activation identifiée, l'auteur propose plutôt un mécanisme de fluage de Nabarro (1948), Herring (1950), avec une dépendance de la vitesse de fluage à l'inverse du carré de la taille de grains, là non plus sans confrontation quantitative. Donaldson et Ecob (1985) constatent aussi sur du Zy-4 **une diminution des vitesses de fluage dans ce régime quand la taille de grains du matériau augmente**. A partir d'une gamme de taille de grains plus étendue (48-$113\mu m$) de zirconium faiblement allié, Fiala et Čadek (1985), Fiala et al. (1991b, a) identifient **une dépendance envers l'inverse de la puissance** $2,9\pm0,1$ **de la taille de grains, ce qui correspond au régime de Coble (1963)**.

Référence	Matériau	Gamme de taille de grains	Obtention de la taille de grains	Domaine de T°C - σMPa	Conditions expérimentales
Ardell (1964)	Zr	300μm	laminage à froid 50% recuits 920°C-2h puis 855°C-40h	660-845°C 6-37,2MPa	sous vide traction sur tôle
Bernstein (1967)	Zr	50μm	laminage à froid recuit 825-875°C-2h	520-620°C 4,5-20,7MPa	sous argon traction sur tôle
Warda et al. (1973)	Zr	12, 50 et 300μm	laminage à froid 50% recuit	450-550°C 2-6MPa	sous vide traction sur tôle et barre
MacEwen et al. (1981)	Zr	30μm 200μm	laminage à froid recuit 675°C-1h puis 700°C-2h recuit 600°C-1h puis 725°C-3h	600-700°C 5-20MPa	sous vide traction sur tôle et barre
Donaldson et Ecob (1985)	Zy-4	8μm non stable	laminage à froid recuit 800°C-2h	700-800°C 1-100MPa	sous vide traction sur tôle
Prasad et al. (1989, 1992) Rama Rao (1998)	Zr	16μm 33μm 50μm	recuit 650°C-30min étirage 13% recuit 840°C-1h étirage 13% recuit 840°C-1h et étirage 7% recuit 840°C-1h	540-730°C 1-5,5MPa	sous vide traction sur hélice
Pérez-Prado et al. (2005) Hayes et Kassner (2006)	Zr Zy-2	58μm 7-8μm	forgeage recuit 780°C-30min forgeage recuit 780°C-30min	350-700°C 8-70MPa 500-600°C 24-52MPa	sous air / argon avec / sans revêtement platine traction sur barre
Malakondaiah et al. (1982)	Zr	39μm 56μm	recuit 570°C recuit 630°C	570-630°C N.R.	sous vide traction sur hélice
Fiala et Čadek (1985) Fiala et al. (1991b, a)	Zr	48-113μm	laminage à froid et étirage recuit 750°C 4-30h	475-700°C 0,08-2,19MPa	sous argon traction sur hélice
Novotny et al. (1985) Fiala et al. (1991a)	Zr	127-342μm	laminage à froid et étirage recuit 500-750°C 30-500h	500-850°C 0,08-1,8MPa	sous argon traction sur hélice

Tableau 3.1 – *Bilan bibliographique sur l'influence de la taille de grains sur le comportement en fluage du zirconium et ses alliages dans le domaine* α

Prasad et al. (1989, 1992), Rama Rao (1998) ont étudié trois nuances de zirconium présentant trois valeurs moyennes de taille de grains (16, 33 et 50μm). Ils distinguent les régimes de Coble (1963) et de Nabarro (1948), Herring (1950) en fonction de la température et de la taille de grains : le régime de fluage de Nabarro-Herring est associé aux plus hautes températures et celui de Coble aux plus faibles. La température de transition entre les deux régimes augmente quand la taille de grains diminue : elle est d'environ 670°C pour une taille de grains de 50μm, mais d'environ 700°C pour la taille de grains de 33μm. Cette température de transition est tout à fait comparable à celle de 580°C proposée par Sargent et Ashby (1982) pour une taille de grains de 100μm (figure 2.3). Les résultats de Prasad et al. (1989, 1992), Rama Rao (1998) sont en accord avec ceux de Fiala et Čadek (1985), Fiala et al. (1991b, a) car les essais de ces derniers correspondent bien au domaine de Coble qu'ils ont défini.

Aux faibles contraintes, pour des tailles de grains plus élevées (supérieures à 120μm), le régime de fluage prépondérant n'est plus un régime diffusionnel mais **un régime de fluage dislocations de type Harper et Dorn (1957)**. Novotny et al. (1985) l'ont étudié sur un large intervalle de tailles de grain (127-342μm) et ils ont vérifié que **dans ce régime, les vitesses de fluage ne dépendent pas de la taille de grains**. Prasad et al. (1989, 1992), Rama Rao (1998) ont ainsi pu bâtir des cartes des mécanismes de déformation du zirconium dont un exemple à 700°C est présenté sur la figure 3.1 dans le plan taille de grains - contraintes.

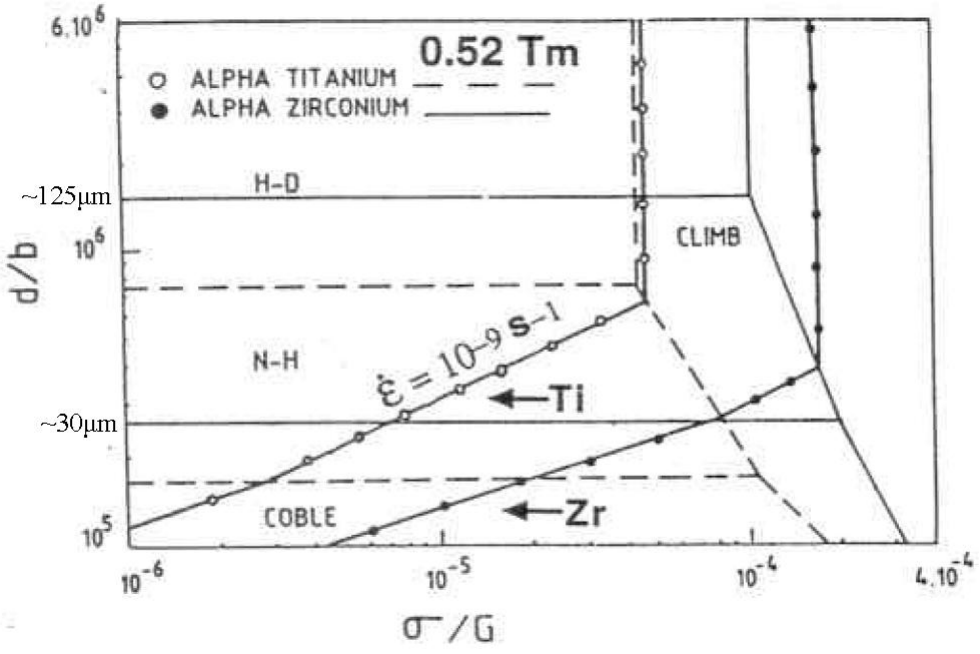


Figure 3.1 – *Carte des mécanismes de déformation du zirconium α à 700°C (et du titane, à 600°C) (Prasad et al. (1989, 1992), Rama Rao (1998))*

Hayes et Kassner (2002), Pérez-Prado et al. (2005), Hayes et Kassner (2006), Kassner et al. (2007) ont analysé les différentes données de fluage aux faibles contraintes et distinguent de manière analogue deux domaines :

- pour les tailles de grains supérieures à 90μm, le domaine de fluage de type Harper-Dorn pour lequel les vitesses de fluage sont indépendantes de la taille de grains,
- pour les tailles de grains inférieures à 90μm, un domaine de fluage pour lequel le

mécanisme contrôlant la vitesse de fluage n'est pas clairement identifié (Coble (1963), Nabarro (1948), Herring (1950) et/ou Ashby et Verrall (1973)). Une dépendance de la vitesse à l'inverse de la taille de grains semble permettre de mieux interpréter de manière unifiée les différents résultats expérimentaux qu'une dépendance à l'inverse du carré ou du cube de la taille de grains. Néanmoins, les écarts relevés figure 2.4 montrent que la comparaison entre les différentes études est souvent délicate du simple fait de protocoles expérimentaux différents. Par conséquent, il convient peut-être de nuancer la conclusion quantitative des auteurs et retenir seulement que les vitesses de fluage de ce régime augmentent quand la taille de grains diminue.

3.1.1.2 Domaines biphasé $(\alpha + \beta)$, quasi-β

De telles corrélations entre taille de grains et comportement en fluage sont nettement plus rares dans la littérature concernant le domaine biphasé $(\alpha + \beta)$. En se basant sur des essais de fluage uniaxial sur du Zr-2,5%Nb, Shewfelt et al. (1984), Shewfelt et Lyall (1985) attribuent la diminution des vitesses de fluage enre 750 et 850°C au grossissement de la microstructure biphasée. Garde et al. (1978), Garde (1979) ont effectué des essais de traction au voisinage de 850°C sur du Zy-4 présentant des tailles de grains α de 5, 11 et 55μm. Dans le domaine des faibles vitesses de traction ($< 10^{-4}s^{-1}$ pour 850°C, $< 10^{-3}s^{-1}$ pour 900°C) pour lequel les auteurs ont observé du glissement aux joints de grains (figure 2.15), ils ont remarqué, pour une contrainte donnée, une diminution de la vitesse de traction proportionnelle à la taille de grains, et y ont associé un modèle d'Ashby et Verrall (1973). Pour les vitesses de traction plus élevées ($> 10^{-4}s^{-1}$ pour 850°C, $> 10^{-3}s^{-1}$ pour 900°C), associées au fluage par mouvements de dislocations, cet effet de taille de grains s'atténue. Des observations analogues ont été effectuées pour la limite d'élasticité du matériau, dans les mêmes conditions.

Pour du Zircaloy-4 et du Zr-2,5%Nb, dans la partie haute température du domaine biphasé, que nous avons appelé domaine quasi-β, Hunt et Foote (1977) ont observé pour des températures croissantes, une diminution des vitesses de fluage ainsi qu'une transition d'un régime non précisé de fluage, de coefficient de Norton $n = 2,2$, vers un régime de fluage dislocations, de coefficient de Norton $n = 4$. Les auteurs expliquent la diminution de vitesses de fluage par les évolutions microstructurales dont le grossissement des grains β.

3.1.1.3 Domaine monophasé β

Aucune corrélation entre taille de grains et évolution des vitesses de fluage n'a été établie pour le domaine β. Ceci est probablement lié, d'une part, au peu de données expérimentales disponibles, d'autre part, au fait que le régime en général observé de fluage par mouvement des dislocations est *a priori* indépendant de la taille de grains (Frost et Ashby (1982)). De plus, dans le domaine 100%β, tout comme pour les alliages de titane, il est impossible d'entraver et donc de contrôler la croissance du grain.

3.1.2 Mise en évidence des évolutions de tailles de grains

Avant d'entamer une campagne expérimentale dont la bibliographie précédente a montré qu'elle serait nécessairement conséquente, on commence par exploiter la base expérimentale sur le M5® présentée dans le chapitre 2. Les différentes micrographies optiques des éprouvettes soumises aux essais de fluage (figures 2.7, 2.11, 2.18, 2.24 et 2.23) ont été analysées quantitati-

vement selon les méthodes décrites en annexe B, afin de déterminer la taille de grains moyenne[1]. Le tableau 3.2 regroupe les différentes tailles de grains α et β mesurées en fonction de la température.

Température (°C)	Taille des grains α (μm)	Nombre de grains analysés	Taille des grains β (μm)	Nombre de grains analysés
650	6,5	3923		
675	6,1	4518		
700	6,3	4168		
740	6,2	4389		
760	6,7	3701		
800	7,4	100	1,2	100
820	7,1	100	2,6	100
840	6,8	100	4,0	100
860	6,7	100	5,8	100
880	5,9	100	9,5	100
900	5,1	100	20	100
910	9,8	100	42	100
920	7,5	100	51	100
930			493	64
940			548	66
960			607	59
1000			751	53
1050			911	42

Tableau 3.2 – *Tailles moyennes des grains α et β du M5® obtenues par analyse métallographique après les essais de fluage isotherme du chapitre précédent 2*

Dans le domaine quasi-α, les analyses métallographiques ont été menées de manière automatique, ce qui permet d'obtenir une meilleure statistique (plusieurs milliers de grains analysés) et une meilleure précision. La phase β existant dans ce domaine se présente sous forme de fins liserés aux joints de grains α ou de plaquettes au cœur des grains α. Aucune taille de grains β n'a donc été définie dans ce cas et la phase β a été ignorée dans la quantification.

Dans les autres domaines (biphasé, quasi-β et β), l'analyse métallographique a été réalisée manuellement. Le nombre de grains analysés a donc été réduit (maximum 100 grains analysés), mais reste suffisamment élevé pour que l'évaluation de la taille de grains moyenne mesurée soit suffisamment précise (erreur due au nombre de grains mesurés inférieure à 5%, évaluée par estimation de la variance).

Dans les domaines biphasés et quasi-β, l'imprécision de la mesure de taille de grains provient également de la qualité des micrographies (attaque relativement délicate pour révéler correctement la microstructure) et de la microstructure elle-même, après refroidissement, qui pourrait ne pas être exactement représentative de la microstructure biphasée existant à haute température, du fait d'une possible transformation d'une petite fraction de phase β en phase α

[1]il s'agit bien entendu de la moyenne à deux dimensions, car mesurée sur une surface polie (intersection des polyèdres que sont les grains en trois dimensions avec la surface). Pour une structure équiaxe, la moyenne à trois dimensions est liée à la moyenne à deux dimensions par un coefficient de proportionnalité de $4/\pi$ (Saylor et al. (2004))

équiaxe, que l'on confondrait avec la phase α primaire à haute température (on peut en effet suspecter un mouvement inverse des interfaces α/β au début du refroidissement, *i.e.* on ne fige pas toujours la microstructure biphasée de haute température).

L'erreur sur les mesures de tailles de grains est donc évaluée à :
- $\pm 0,5 \mu m$ pour les grains α dans le domaine quasi-α,
- $\pm 1 \mu m$ pour les grains α dans le domaine biphasé et le domaine quasi-β,
- $\pm 1 \mu m$ pour les grains β dans le domaine biphasé,
- $\pm 10\%$ pour les grains β dans le domaine quasi-β et le domaine β.

Dans le domaine biphasé, pour la mesure de taille de grains β, seuls les ex-grains β massifs ont été considérés. Tout comme dans le domaine quasi-α, les lisérés et les plaquettes n'ont pas été considérés dans l'analyse métallographique.

Ces résultats de mesures de tailles de grains sont également reportés sur la figure 3.2[2]. Dans le domaine quasi-α, aucune évolution de taille de grains n'a été mise en évidence par rapport à la taille de grains initiale ($6,3 \pm 0,5 \mu m$). Les évolutions restent relativement faibles dans le domaine biphasé et le domaine quasi-β. Les grains α auraient naturellement tendance, sous l'effet de la transformation de phases $\alpha \rightarrow \beta$, à présenter des tailles décroissantes quand la température augmente. Cet effet est compensé par un grossissement global de la microstructure, modéré dans le domaine biphasé, mais très important dans le domaine quasi-β. Les variations de la taille des grains α dans le domaine biphasé sont donc modérées par rapport au domaine quasi-α (inférieures à 50%).

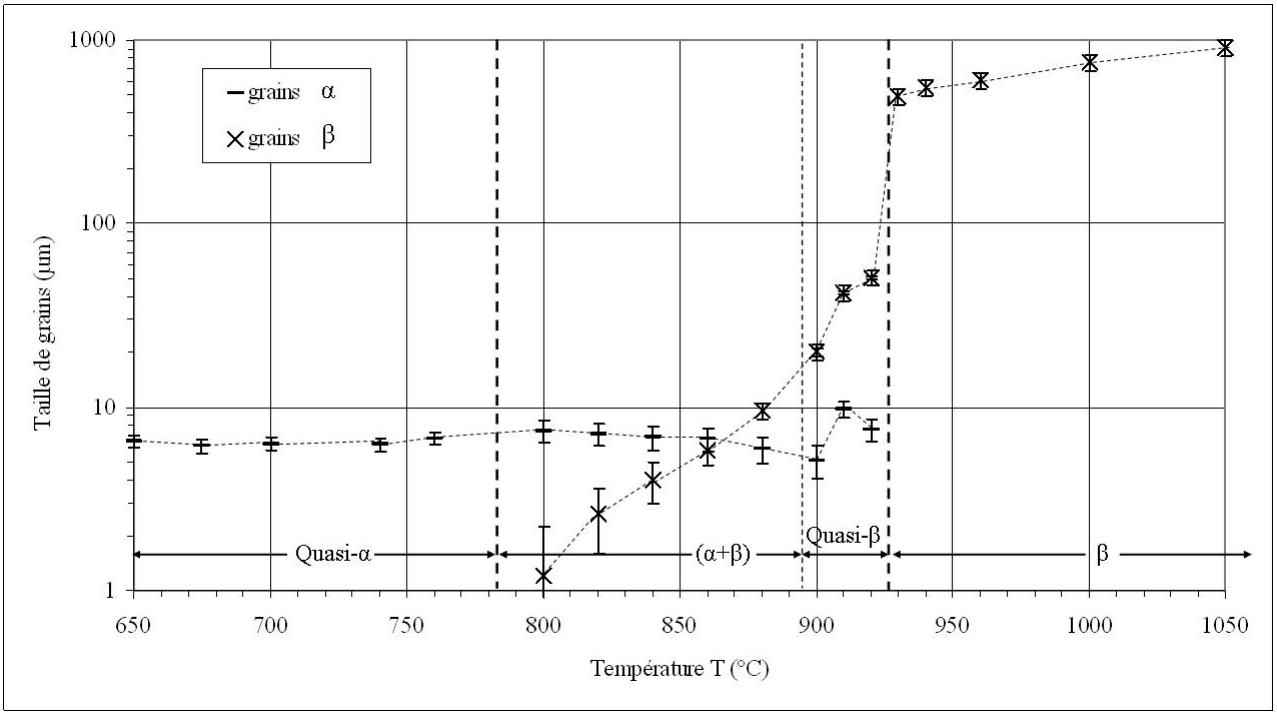


Figure 3.2 – *Tailles des grains α et β du M5® obtenues par analyse métallographique après les essais de fluage isotherme*

Les évolutions de taille de grains sont nettement plus importantes pour la phase β. Les phénomènes de transformation de phases et de grossissement de la microstructure cumulent leurs

[2]on rappelle que la taille de grains n'apparaît pas significativement affectée par la présence d'une contrainte appliquée ou la durée de l'essai

effets. Dans le domaine biphasé, la taille de grains β augmente en fonction de la température principalement par le biais de l'avancement de la transformation de phases, la phase α résiduelle limitant le grossissement de la microstructure (Hunt et Foote (1977)). Dans le domaine quasi-β et le domaine β, au contraire, le grossissement des grains β devient très rapide car les grains ne sont plus gênés par la phase α non transformée. Les tailles de grains β dans le domaine biphasé sont donc de deux à trois décades inférieures à celles dans le domaine 100% β.

Ces analyses métallographiques sont en bon accord d'un point de vue qualitatif avec les observations de Chung et al. (1975) ou Sills et Holt (1979) sur des Zircaloys.

L'étude de l'influence de la taille des grains α ainsi que β sur le comportement en fluage semble donc incontournable pour pouvoir modéliser correctement le comportement de chaque phase, même si pour la phase α l'évolution est très modeste avec la température.

3.1.3 Elaboration des matériaux modèles à taille de grains contrôlée

Des matériaux modèles à taille de grains contrôlée ont été élaborés à partir du matériau M5® d'origine. Ces matériaux sont destinés à mettre en évidence l'effet de la taille de grains sur le comportement en fluage des phases α et β dans les domaines monophasés (ou quasi-monophasés) respectifs. Il s'agit donc plus précisément de transformer le matériau M5® en un matériau modèle présentant au cours des essais de fluage des tailles de grains :

- distinctes (inférieures ou supérieures) des tailles de grains observées précédemment (figure 3.2) ;
- homogènes, comme le matériau M5® ;
- n'évoluant pas ou peu au cours des essais de fluage.

De plus, pour s'affranchir d'un éventuel effet de microstructure, non modélisé, on cherche à conserver une microstructure équiaxe (micrographies 2.7 pour le domaine quasi-α, 2.24 pour le domaine quasi-β et 2.11 ou 2.23 pour le domaine β). En particulier, on s'attache à ne pas modifier significativement la texture des tôles de M5® (figure 1.6), résultant de son procédé de fabrication.

3.1.3.1 Etude bibliographique

Les méthodes utilisées afin de modifier les tailles de grain du M5® ont été choisies et mises en œuvre en se basant sur un certain nombre de résultats de la littérature obtenus sur du zirconium et ses alliages.

1. Modification de la taille des grains α

   Le tableau 3.1 regroupe les conditions expérimentales dans lesquelles se sont déroulées les études de fluage précédemment mentionnées, en particulier le procédé d'obtention de la taille de grains ou de la gamme de taille de grains y est précisé. Il s'agit pour la plupart des auteurs d'un traitement thermo-mécanique composé d'une déformation plastique effectuée à froid, souvent par laminage, puis d'un recuit dans le haut du domaine α.

   D'autres méthodes sont envisagées. Ainsi, Malakondaiah et al. (1982) se contentent d'un simple traitement thermique dans le domaine α pour faire varier la taille de grains du zirconium. La température du traitement détermine la taille de grains. Plus la température

est élevée, plus la taille de grains est importante. Dans une étude concernant le titane, les mêmes auteurs (Malakondaiah et Rama Rao (1981)) rajoutent aussi le fait que plus la durée du traitement est longue, plus la taille de grains est importante. Le grossissement des grains est donc un phénomène thermiquement activé.

D'autres études, regroupées sur le tableau 3.3, se sont servies de traitements thermiques pour faire varier la taille de grains du zirconium et de ses alliages. On peut y noter deux techniques permettant d'obtenir des monocristaux de zirconium, utilisant la transformation de phases $\beta \rightarrow \alpha$ avec un gradient thermique ou avec un cyclage thermique. Cette dernière méthode a été récemment réutilisée par Bacroix et al. (2006) sur du Zr-2Hf de haute pureté.

Avec un alliage Zr-Cr-Fe, Northwood et Dosen (1980) sont parvenus à faire recristalliser et croître des grains α à partir d'une microstructure de trempe mixte dans la mesure où les précipités dus au Cr ($ZrCr_2$) étaient suffisamment petits pour ne pas épingler les joints de grains et ainsi empêcher leur croissance. Nowikov et Pfeiffer (1957) ont utilisé des traitements thermiques uniquement dans le domaine α pour faire varier la taille de grains du Zy-2 à partir de l'état détendu. Comme l'avaient également remarqué Ardell (1964) et Bernstein (1967) (tableau 3.1) ou encore Cui et Oikawa (1985) sur du titane, un grossissement plus important des grains peut être obtenu pour une température de traitement proche du transus $\alpha/(\alpha+\beta)$.

Référence	Matériau initial Traitement thermique	Matériau obtenu taille de grains
Nowikov et Pfeiffer (1957)	Zy-2 détendu 650°C-1h 850°C-1h	recristallisé $20\mu m$ $200\mu m$
Higgins et Soo (1967)	Zr origine iodure 3 cycles $\beta \leftrightarrow \alpha$ 1200°C-6h↔840°C-96h	monocristallin $\leq 37mm$
Akhtar et Teghtsoonian (1971) Akhtar (1976b) Akhtar (1976a)	Zr 120ppm 0 fondu puis monocristaux β gradient de refroidissement (400°C/cm) recuit 820°C-120h	monocristallin $\leq 200mm$
Northwood et Dosen (1980)	Zr-Cr-Fe 1050°C-30min trempe 4000-30000°C/s recuit 650-800°C 12h	partiellement recristallisé $\leq 500\mu m$ (taille ex-grain β)

Tableau 3.3 – *Bilan bibliographique sur les traitements thermiques effectués afin de modifier la taille des grains α du zirconium et ses alliages*

Néanmoins, comme la figure 3.2 le laissait présager, il n'est pas aisé, en partant d'un alliage de zirconium initialement totalement recristallisé, de modifier de manière significative la taille de grains par un simple traitement thermique dans le domaine α. En effet, en plus d'une certaine durée et/ou température de recuit, la mobilité des joints de grains a besoin d'une force motrice supplémentaire, par exemple provenant de la densité de dislocations que l'on peut augmenter par de la déformation plastique.

Les tableaux 3.4, 3.5 et 3.6 complètent le tableau 3.1 par d'autres études ayant mentionné l'utilisation d'un traitement thermo-mécanique préalable afin de faire varier la taille de grains du matériau dans le domaine α.

Quelques études sont parvenues à raffiner la microstructure du matériau, soit par recristallisation dynamique (Jiang et al. (2008)), soit par le procédé ECAP (Equal Channel Angular Pressing, Yu et al. (2005), Lee et Kim (2006), Lee et al. (2007)). Néanmoins, il apparaît que la structure obtenue n'est pas stable à haute température et tend à regrossir. De plus, la texture obtenue diffère fortement de celle d'un matériau laminé recristallisé (Yu et al. (2005)).

Les autres études proposent plutôt un traitement mécanique (déformation plastique) effectué à température ambiante, suivi d'un ou plusieurs traitements thermiques de recuit. Comme pour les traitements thermiques, les paramètres essentiels du traitement thermo-mécanique sont la température et la durée du (ou des) traitement(s) thermique(s), qui doivent être suffisants. Le taux de déformation, appliqué à température ambiante, est également décisif pour les caractéristiques finales du matériau.

Référence	Matériau initial Traitement thermo-mécanique	Matériau obtenu taille de grains
Bokros (1960)	Zr et Zy-3 traction 3-70% 20-260-482°C recuit 482-650°C 200-1000h	recristallisation primaire et secondaire $20 - 900\mu m$ figure 3.3
Higgins (1966)	Zr (origine iodure) laminage à froid 84% recuit 800°C-5min ou recuit 800°C-24h	recristallisation primaire $30\mu m$ secondaire $200\mu m$
Couterne et Cizeron (1969)	Zr laminage à froid 70% recuit 840°C-12h traction à froid 2,5% recuit 840°C-100h	monocristallin $1mm$
Lee (1970)	Zy-2 laminage à froid 70% recuit 550°C-4h	recristallisé $2\mu m$
Coleman et Rumball (1971)	Zr-Cr-Fe forgeage en phase β trempe soit recuit 760°C-8h soit laminage à froid 3-45% et recuit 760°C-2h puis laminage à froid 3-45% et recuit 760°C-2h	recristallisé $\leq 800\mu m$ ($800\mu m$ pour 11%, hétérogène) $7 - 15\mu m$ ($15\mu m$ pour 7%, homogène)

Tableau 3.4 – *Bilan bibliographique sur les traitements thermo-mécaniques effectués afin de modifier la taille des grains α du zirconium et ses alliages*

Référence	Matériau initial Traitement thermo-mécanique	Matériau obtenu taille de grains
Thorpe et Smith (1978b) Thorpe et Smith (1978a)	Zr-1%Nb-600ppmO laminage à froid 83% recuit 590°C-20h	 recristallisé $2,2\mu m$
Chirkin et El-Yazgi (1990)	Zr-Nb-600ppmO compression à froid 0%Nb 4% 1%Nb 23% 2,5%Nb $\geq$ 40% recuit 570°C-5h	recristallisation complète complète incomplète
Béchade (1993)	Zy-4 laminage à froid 10-80% recuit 700°C-2h	 recristallisé $30-5\mu m$
Caré et Bretheau (1993) Béchade et Pelé (1994) Caré et Bretheau (1995)	Zr702 recristallisé $20\mu m$ traction à froid sens longitudinal 3% ou sens transversal 3% recuit 745°C-4,5h	recristallisé $100\mu m$ (texture inchangée) $100-500\mu m$ (texture modifiée)
Song et Gray III (1995)	Zr laminage à froid 50% recuits intermédiaires 600°C 1h et 0,5h recuit final 600°C 2h-16h	recristallisé $25-75\mu m$
Chun et al. (1999b) Chun et al. (1999a)	Zr-1%Nb Zr-1%Nb-0,1%Mo Zr-1%Nb-0,3%Mo Zr-1%Nb-0,5%Mo Zr-1%Nb-0,7%Mo laminage à froid 25% recuit 700°C 54-148-398h	$9,1-10,2-16,1\mu m$ $7,1-8,7-12,5\mu m$ $5,4-6,0-9,8\mu m$ $4,5-5,9-9,8\mu m$ $4,1-4,7-6,4\mu m$ recristallisé, quasi-α texture inchangée
Chaubet et al. (2001)	Zr702 laminage à froid 75-80% soit unidirectionnel et recuit 760-840°C 1-24h soit croisé et recuit 840°C 24h puis traction à froid 2% recuit 840°C-96h	recristallisé $50-145\mu m$ (homogène) $219\mu m$ (hétérogène $\leq 600\mu m$) $1,9mm$ (hétérogène $\leq 9cm$)
Yu et al. (2005)	Zr702 recristallisé $20\mu m$ 4 passes ECAP 90° recuit 600°C-1,66h puis recuit 800°C-6h puis recuit 800°C-6h	recristallisé texture modifiée $0,3\mu m$ $5\mu m$ $30\mu m$

Tableau 3.5 – *Bilan bibliographique sur les traitements thermo-mécaniques effectués afin de modifier la taille des grains α du zirconium et ses alliages (suite)*

Référence	Matériau initial Traitement thermo-mécanique	Matériau obtenu taille de grains
Zhu et al. (2005) Zhu et al. (2007) Francillette et al. (1998)	Zr-2Hf recristallisé $10 - 50\mu m$ compression plane à froid 50% recuit 530°C 7-15-45-160min ou recuit 600°C-30min ou recuit 650°C-30min	texture modifiée recristallisation $2 - 5 - 8 - 10\mu m$ (partielle) $4 - 12\mu m$ (complète) $15\mu m$ (complète)
Bacroix et al. (2006)	Zr-2Hf laminage à froid $\leq 70\%$ recuit 820°C-19h traction à froid 2,2% recuit 820°C-48h	recristallisé $50\mu m$ multicristal $\leq 3mm$
Lee et Kim (2006) Lee et al. (2007)	Zr702 recristallisé $20\mu m$ 4 passes ECAP 135° recuit 600°C-10min 4 passes ECAP 135° recuit 600°C-1h ou recuit 500°C-1h	recristallisé $3\mu m$ $3\mu m$ $0,2\mu m$
Jiang et al. (2008)	Zr recristallisé $17\mu m$ laminage à froid 25% laminage à chaud 327°C 2 passes de 75%	 recristallisation dynamique $0,4\mu m$

Tableau 3.6 – *Bilan bibliographique sur les traitements thermo-mécaniques effectués afin de modifier la taille des grains α du zirconium et ses alliages (suite et fin)*

Si la traction-compression est parfois utilisée pour déformer le matériau, le laminage est la méthode la plus couramment utilisée car elle permet d'appliquer de manière homogène de forts taux de déformation. Pour pouvoir faire varier la taille de grains du matériau, en fonction du traitement thermique à suivre, la déformation plastique du matériau doit être suffisante pour permettre la mobilité des joints de grains et le grossissement des grains ou encore pour faire naître de nouveaux grains (germination). Ce minimum de déformation est souvent appelé déformation critique. Si on applique une déformation inférieure à cette déformation critique, la taille des grains n'est pas modifiée par le traitement thermique au-delà de ce qui peut être obtenu par simple traitement thermique sur matériau non écroui. Au-delà de cette déformation critique, la taille de grains obtenue après traitement thermique décroît quand la déformation augmente, la part liée à la germination augmentant également, au détriment du grossissement. La taille de grains la plus importante est donc obtenue juste au dessus de la déformation critique (figure 3.3).

Sarrail et al. (2007), Rodriguez et al. (2008) ont utilisé le pliage afin de déformer des échantillons. De la même manière que pour les éprouvettes de traction de forme trapézoïdale, la déformation plastique est hétérogène. On peut donc vérifier en un seul essai (figure 3.4) l'existence et la valeur de la déformation critique au niveau des grains. Au voisinage de la fibre neutre de la tôle (zone centrale verticale), la déformation n'est pas suffisante pour modifier la taille de grains. Quand on s'éloigne de cette fibre neutre, on

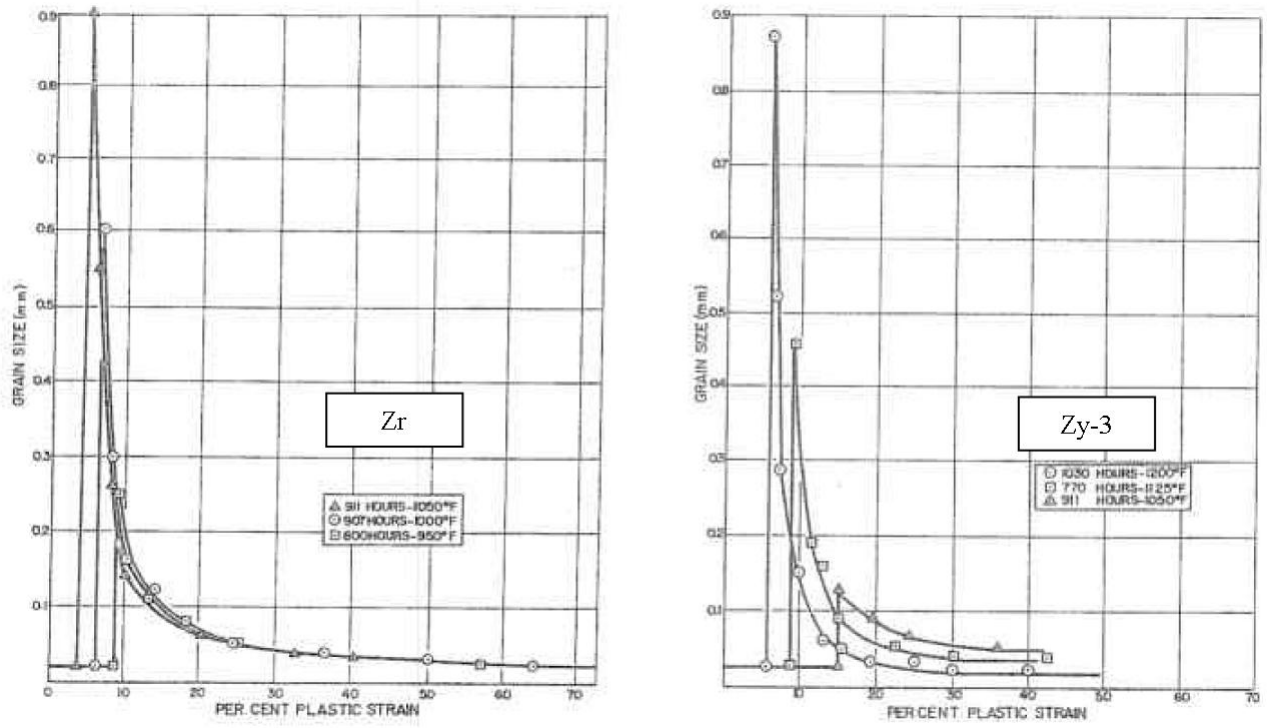


Figure 3.3 – *Tailles de grains α du zirconium et du Zy-3 obtenues après un traitement thermo-mécanique, en fonction de la déformation plastique (par traction à 260°C, Bokros (1960))*

observe un fort grossissement de la taille de grains, qui correspond aux zones dont la déformation est proche de la déformation critique. Puis, plus on se rapproche des bords de la tôle, plus la déformation plastique est importante mais la taille de grains décroît.

Pour des déformations nettement supérieures à la déformation critique, dans le cas du laminage, la microstructure obtenue est généralement équiaxe, avec une taille de grains assez homogène. La texture du matériau final est caractéristique d'une texture de laminage. En effet, après germination, la croissance des grains s'est faite sans sélection d'orientation particulière (croissance normale). Ceci est dû en partie au laminage qui permet une bonne homogénéité de la déformation (Béchade (1993), Chun et al. (1999b, a), Chaubet et al. (2001, 2002)). Wagner et al. (2002), Bozzolo et al. (2005) ont fait des observations analogues sur du titane.

A l'inverse, pour des déformations voisines de la déformation critique, ce sont quelques grains qui possèdent des orientations favorables qui grossissent au détriment des autres grains (croissance anormale). Le matériau résultant de ce traitement peut donc présenter une hétérogénéité de taille de grains, d'autant plus s'il subsiste des grains qui ont peu grossi. Les joints entre gros grains sont généralement assez tortueux. La texture du matériau est également fortement modifiée par ces grains (Béchade (1993), Béchade et Pelé (1994), Chaubet et al. (2001, 2002), Bacroix et al. (2006) ou Wagner et al. (2002), Bozzolo et al. (2005) pour du titane.).

Si la recristallisation et la croissance des grains sont favorisées par une température et une durée élevées du traitement thermique, la transformation de phases allotropique $\alpha \rightarrow \beta$ apparaît comme un élément limitant. Bokros (1960), Chung et al. (1975) expliquent que pour les Zircaloys, au début du domaine biphasé $(\alpha + \beta)$, la phase β naissante, qui ap-

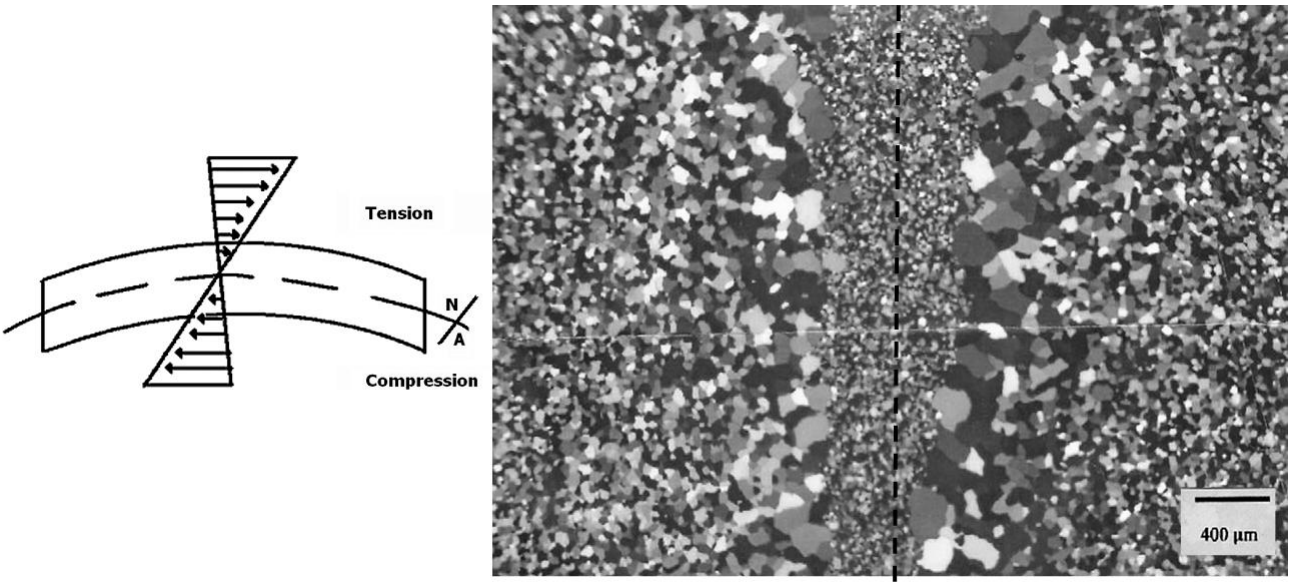


Figure 3.4 – *Micrographie optique (contraste de Nomarsky) du Zr702 après pliage 5T à froid puis recuit 800°C-1h, la fibre neutre de la tôle est la médiane verticale et* $\varepsilon_{critique} \approx 5\%$ *(Sarrail et al. (2007), Rodriguez et al. (2008))*

paraît aux joints de grains α bloque la croissance de ces derniers. Chun et al. (1999b, a) ont remarqué de leur côté que plus la teneur en Mo augmentait, plus la taille de grains était faible, à traitement thermo-mécanique identique. Le molybdène agit par effet β-gène, en augmentant la fraction de phase β présente à 700°C, cette dernière étant le véritable élément bloquant. Il pourrait également exister une action directe du molybdène sur la croissance des grains.

En effet, les éléments d'alliage et les impuretés peuvent également limiter la croissance des grains. Ce n'est pas un hasard si les auteurs souhaitant des monocristaux ou de gros grains ont utilisé les nuances de zirconium les plus pures (tableaux 3.1, 3.4, 3.5 et 3.6). Garofalo (1967) explique de manière générale que **les températures de restauration et de recristallisation augmentent avec les teneurs en éléments d'alliage**. Bokros (1960) note une plus grande facilité à obtenir une taille de grains importante avec du zirconium, relativement au Zy-3. Higgins (1966), à cause du procédé d'obtention de son zirconium (iodure), obtient des tailles de grains plus faibles qu'avec des nuances plus pures, par inhibition lors de la croissance normale. Pour les alliages Zr-Nb, plus la teneur en Nb augmente, plus la recristallisation est lente (Kim et al. (2002)) et nécessite une déformation préalable importante (Chirkin et El-Yazgi (1990)). Ce sont plus précisément les intermétalliques, les précipités (ou les ségrégations microchimiques aux joints de grains) dus aux éléments d'alliage qui interviennent en épinglant les joints de grains α (Northwood et Dosen (1980), Gilbert et al. (1985), Yu et al. (2005), Rodriguez et al. (2008)). A partir d'une certaine température, les précipités se dissolvent et perdent leur caractère bloquant (Östberg et Attermo (1962)).

En gênant le grossissement des grains α, les précipités peuvent permettre d'empêcher le grossissement anormal des grains et donc d'obtenir un matériau présentant une taille de grains plus homogène (Chun et al. (1999b, a), Rodriguez et al. (2008)).

2. Modification de la taille des grains β

Même si les références sont rares pour les grains β et leur taille, quelques études ont néanmoins abordé leur croissance. De nombreux auteurs ont noté le fort grossissement des grains β en fin de transformation de phases (notamment Langeron et Lehr (1959) pour du zirconium, Nowikov et Pfeiffer (1957) pour du Zy-2, Sills et Holt (1979) pour du Zy-4, Hunt et Foote (1977) pour du Zr-2,5%Nb). Ce grossissement est expliqué par la disparition progressive de la phase α et la dissolution de précipités qui épinglaient les joints de grains β. Quelques grains β se mettent alors à croître, limités souvent par la taille des échantillons ou des éprouvettes, *i.e.* la croissance des grains β s'arrête quand l'échantillon est multicristallin (et ne contient donc que ces gros grains).

Afin d'obtenir des échantillons monocristallins, Akhtar (1976b, a) a utilisé un gradient de refroidissement pour solidifier du zirconium et obtenir des monocristaux β.

Holt (1970), Chung et al. (1975) ont mesuré la croissance de grains β de Zy-4 au cours de traitements thermiques entre 960°C et 1400°C. Dans la phase de croissance des grains, des lois empiriques en puissance du temps sont proposées. Comme pour les grains α, la croissance des grains β est thermiquement activée : plus la température est élevée, plus la croissance est rapide.

Les paramètres déterminant la taille des grains β sont donc la durée et la température du traitement thermique, la difficulté étant de bloquer par la suite la croissance des grains. En effet, la croissance des grains β est très rapide comparée à celle des grains α. Seward et al. (2004) ont mesuré, pour du titane, un ordre de grandeur entre les vitesses de croissance des grains α et β pour des traitements thermiques proches en température (870°C pour les grains α et 910°C pour les grains β).

Chun et al. (1999b, a) ont néanmoins noté que l'addition de Mo pour les alliages Zr-1%Nb permettait de ralentir la croissance des grains β à 1000°C, sans l'expliquer complètement. Un effet de ségrégation du Mo aux joints de grains β ou un effet du Mo en solution solide sur la mobilité des joints sont proposés.

3.1.3.2 Elaboration des matériaux modèles pour le domaine quasi-α

Nous retenons donc de ces travaux antérieurs que la taille de grains du matériau peut être modifiée à l'aide d'un traitement thermo-mécanique. Ce traitement doit être homogène dans la zone utile de l'éprouvette afin d'obtenir une taille de grains homogène. Etant donné la fine microstructure du matériau M5®, on s'attend à obtenir, en cas de modification de taille de grains, une microstructure plus grossière. Par rapport aux grossissements observés dans la littérature, étant donné que le M5® est un alliage industriel (donc relativement allié) et tenant compte de l'existence avec le Nb d'un palier monotectoïde vers 620°C, seuls des grossissements assez faibles semblent plus accessibles.

On a choisi le procédé de laminage afin de déformer plastiquement à froid le matériau. En effet, il est envisageable de déformer de manière homogène de la tôle de M5® afin d'obtenir une tôle plus fine dans laquelle on pourra prélever des éprouvettes en vue des essais de fluage. Comme l'épaisseur initiale de la tôle est de 1,18mm, on peut atteindre des taux de laminage de plusieurs dizaines de pourcents tout en conservant une épaisseur suffisante pour les essais mécaniques (épaisseur minimale choisie à 0,6mm). L'étude bibliographique a de plus montré

que le matériau obtenu peut présenter une microstructure équiaxe après recristallisation avec une taille de grains homogène et une texture peu modifiée par rapport à la texture initiale. Il convient néanmoins pour cela de ne pas appliquer une déformation trop proche de la déformation critique, même si les éléments d'alliage présents voire la phase β naissante peuvent empêcher la croissance anormale des grains. Enfin, également pour ne pas modifier trop fortement la texture, le laminage est effectué suivant la direction de laminage initiale.

Pour les échantillons tests, cette opération de détermination des traitements à appliquer a été réalisée au Centre des Matériaux (Mines ParisTech) à température ambiante (sans traitement thermique) et sans lubrification. Pour les matériaux destinés aux essais de fluage, celle-ci s'est déroulée au LTMEX (Laboratoire de Technologie des Matériaux Extrêmes, Service de Recherches Métallurgiques Appliquées, CEA) sur un laminoir comportant deux cylindres de travail de diamètre 254mm, dans les mêmes conditions. Pour les tests, des épaisseurs finales de 0,6-0,7-0,8-0,9 et 1mm ont été obtenues (ainsi que des échantillons complémentaires laminés à 1,05-1,09-1,13mm) afin de couvrir une large gamme de taux de laminage (jusqu'à 50%).

En ce qui concerne le traitement thermique postérieur au laminage à froid, les paramètres à choisir sont la durée et la température de traitement afin d'obtenir une taille de grains stable à haute température (recristallisation et croissance des grains achevées) et si possible distincte de la taille de grains initiale. Les recuits ont été effectués sous vide secondaire afin de limiter la contamination, notamment par l'oxygène lors des recuits.

Les premiers tests ont été effectués à la température de 580°C (Mardon et al. (2000)), correspondant à la température de recristallisation utilisée lors de l'élaboration du M5®, pour des durées de 5 et 10h. Cette température est inférieure à la température du palier monotectoïde, ce qui permet d'éviter la formation de phase β_{Zr} susceptible d'après la littérature de bloquer la croissance des grains.

Les analyses métallographiques effectuées sur les échantillons n'ont pas montré de variation significative de la taille de grains ($< 0,5\mu m$) pour les échantillons les plus laminés (épaisseur finale de 0,6 et 0,7mm) et une recristallisation incomplète pour les autres taux de laminage. Pour envisager une recristallisation complète et éventuellement une variation de taille de grains, il faudrait envisager des recuits nettement plus longs, ce que nous n'avons pas fait.

La température des recuits a été augmentée à 700°C et des durées de 1-4-8 et 16h ont été choisies. Dans l'optique de réaliser par la suite un essai de fluage dans le domaine quasi-α (par exemple 700°C), l'objectif est d'obtenir une taille de grains qui restera stable à cette température au cours du fluage.

Des analyses métallographiques sont effectuées après les recuits. Les résultats des analyses sont regroupés sur la figure 3.5. Les résultats concernant l'échantillon non laminé (1,18mm d'épaisseur) confirment que les grains du M5® restent stables lors du recuit, comme lors des essais de fluage effectués dans le domaine quasi-α (variations de l'ordre de la précision de la mesure). Pour les échantillons laminés, des augmentations de taille de grains sont mesurées. La phase β_{Zr} naissante n'a donc pas totalement bloqué la croissance des grains α.

Comme remarqué lors de l'étude bibliographique, au-delà de la déformation critique, d'un point de vue qualitatif, la taille de grains augmente avec la durée du recuit mais diminue pour des taux de laminage croissants (ou quand l'épaisseur finale diminue). **Plus le taux de laminage est élevé, plus la taille de grains se stabilise rapidement** (recristallisation et croissance des grains rapides).

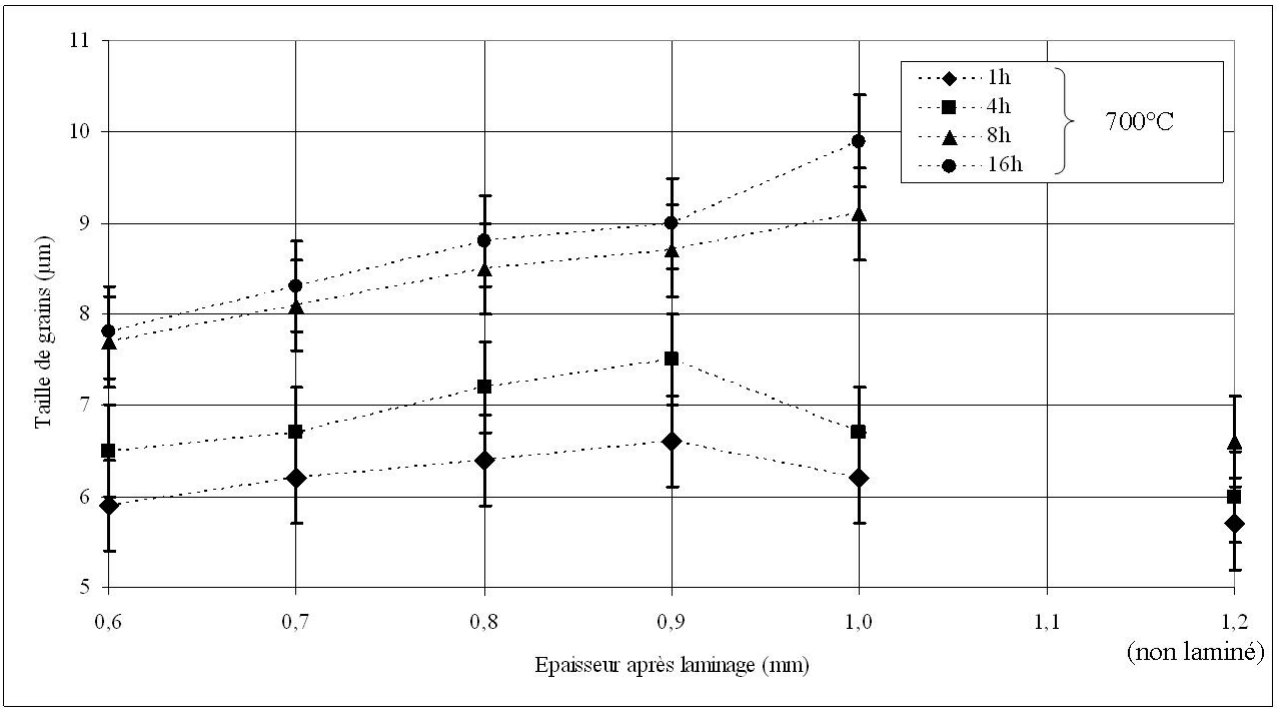


Figure 3.5 – *Taille des grains α (moyenne et écart-type) obtenues par analyse métallographique après les essais de traitements thermomécaniques sur le M5® (laminage à froid et recuit)*

Pour tenter d'obtenir des variations plus importantes de la taille de grains, des traitements complémentaires ont été effectués. D'une part, un traitement thermique à plus haute température (800°C-16h) en conservant les mêmes taux de laminage a été essayé. Les analyses métallographiques n'ont pas montré de variations plus élevées de la taille de grains. A cette température, la fraction de phase β_{Zr} plus élevée empêche alors probablement le grossissement des grains α. D'autre part, un traitement mécanique moins sévère (épaisseurs finales après laminage de 1-1,05-1,09 et 1,13mm) a été envisagé. Un recuit à 700°C de 96h (plus long que précédemment comme les taux de laminage sont plus faibles) n'a néanmoins pas permis d'obtenir une taille de grains plus élevée. L'échantillon laminé à 1mm a quand même permis de montrer que la taille de grains était stabilisée dès 16h de recuit ($9,5 \pm 0,5 \mu m$ après 96h contre $9,9 \pm 0,5 \mu m$ après 16h).

Au final, après un recuit de 16h à 700°C, les échantillons laminés entre 0,6 et 1mm présentent une structure équiaxe avec des grains de taille relativement homogène et stable à 700°C (pour des durées de quelques heures). Le grossissement de la microstructure obtenue est relativement faible mais devrait néanmoins avoir une influence significative sur le comportement en fluage du matériau.

Les textures à mi-épaisseur des matériaux laminés de 1,18 à 0,9 et 0,6mm et recuits à 700°C pendant 16h ont été analysées par la technique de diffraction des rayons X (figures 3.6 et 3.7) afin de les comparer à la texture initiale du M5® (figure 1.6).

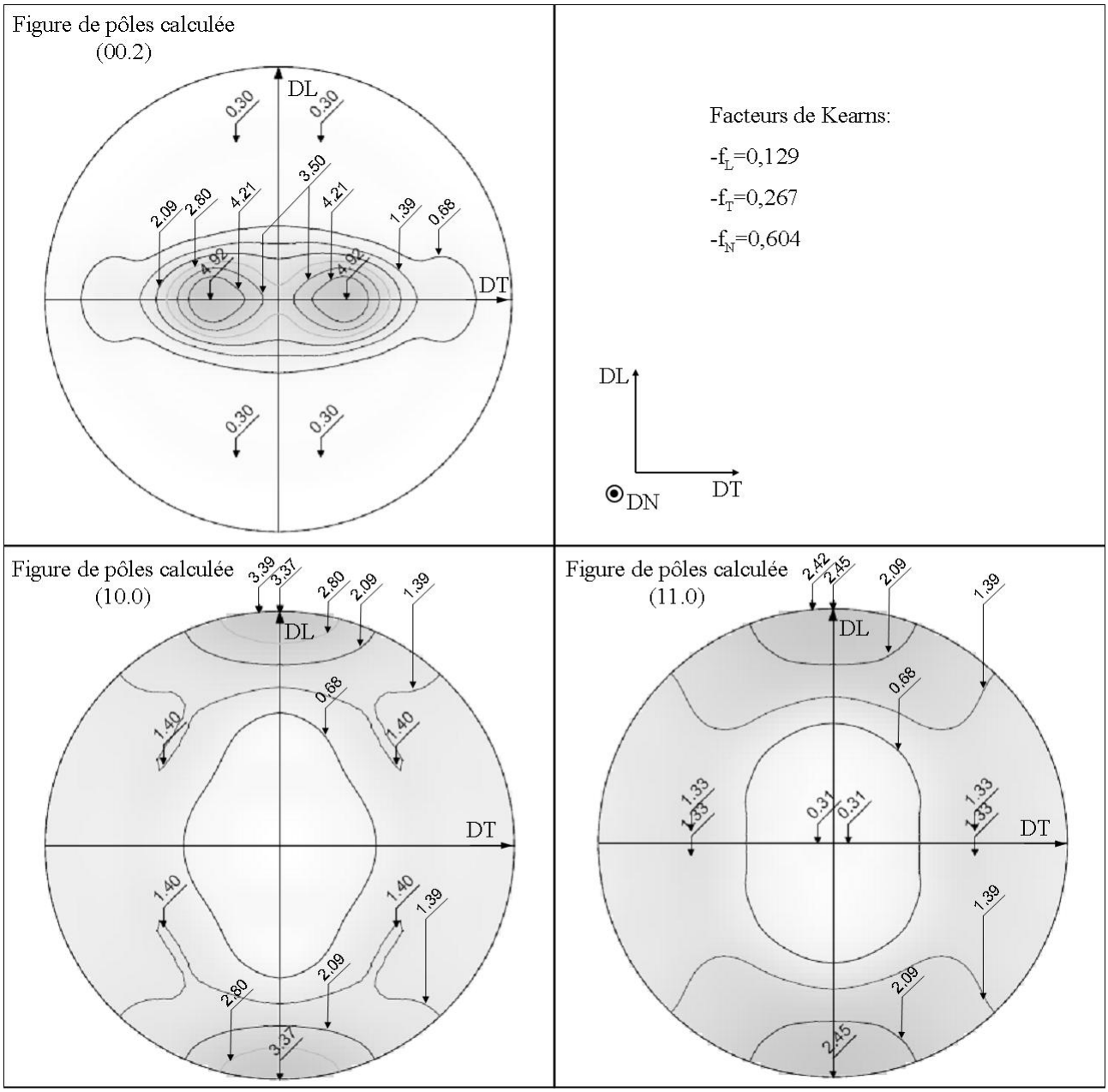


Figure 3.6 – *Figures de pôles (00.2), (10.0) et (11.0), à mi-épaisseur, de la tôle de M5® relaminée à froid de 1,2 à 0,9mm puis recuite durant 16h à 700°C (sous vide secondaire)*

On retrouve dans les deux cas des textures classiques de produits recristallisés après laminage à froid et elles sont donc peu modifiées par rapport au M5®. Ainsi, les axes $\underline{c}$ sont inclinés dans le plan (DN,DT) entre 15° à 30° de DN (environ 22° pour 0,6mm et 27° pour 0,9mm contre 24° pour le M5®). Les normales aux plans prismatiques sont également orientées suivant la direction de laminage DL.

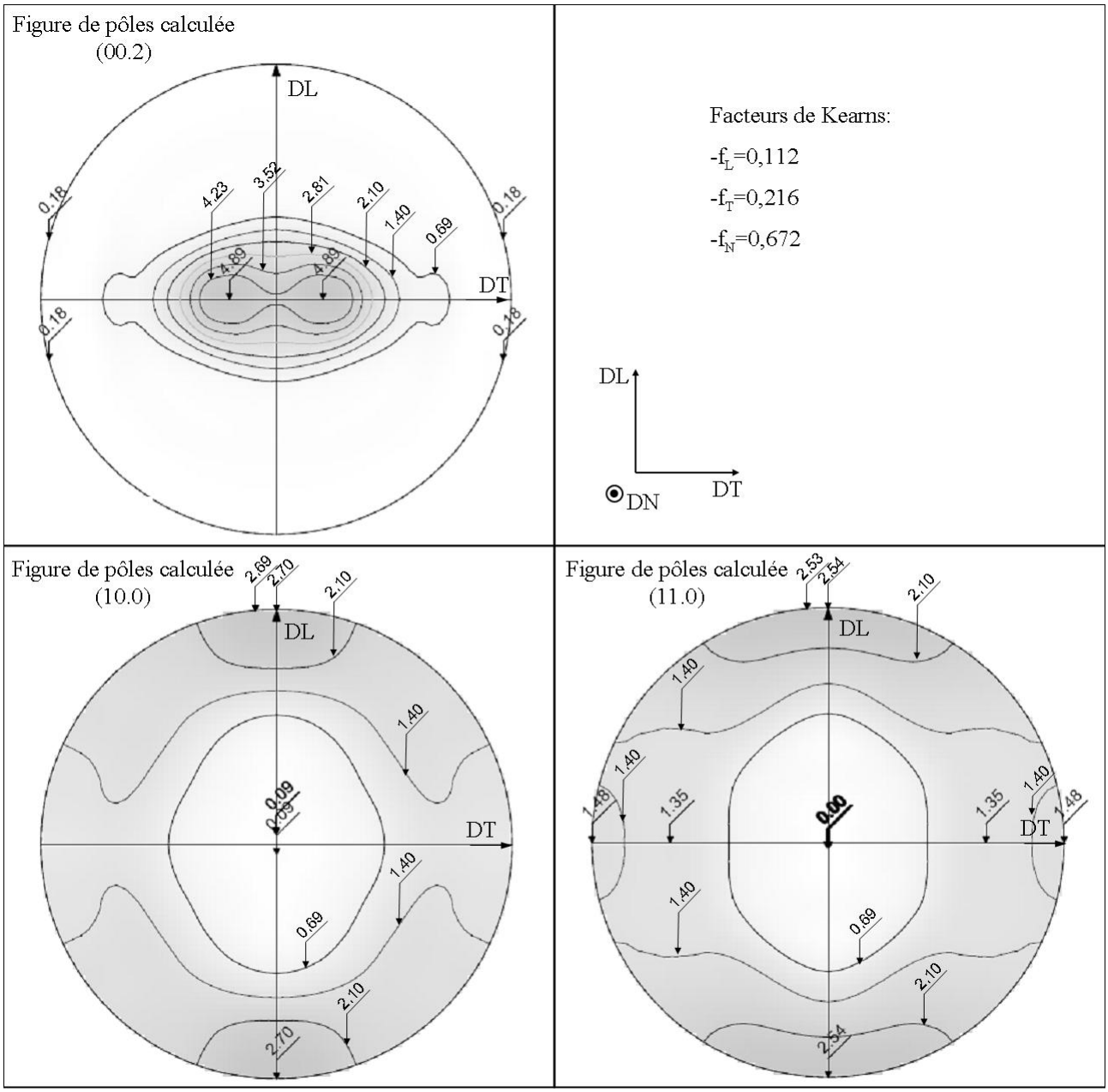


Figure 3.7 – *Figures de pôles (00.2), (10.0) et (11.0), à mi-épaisseur, de la tôle de M5® relaminée à froid de 1,2 à 0,6mm puis recuite durant 16h à 700°C (sous vide secondaire)*

Plus précisément, on constate que le matériau laminé à 0,9mm présente un étalement plus important des axes $\underline{c}$ suivant DT (environ 30°) alors que celui laminé à 0,6mm voit ses axes $\underline{c}$ inclinés à 17° de DN. Le facteur de Kearns f_N passe donc de 0,672 (0,6mm) à 0,604 (0,9mm) alors qu'il était de 0,655 pour le M5®. En même temps on retrouve pour l'alliage le plus déformé (0,6mm) une orientation des plans prismatiques plus représentative de la texture de recristallisation (normales aux plans (11.0) suivant DL) alors que l'alliage moins déformé (0,9mm) a plutôt des normales aux plans (10.0) orientés suivant DL (orientation typique de la texture de déformation). La recristallisation est plus complète pour l'échantillon laminé à 0,6mm, sans doute grâce à la déformation plastique plus importante. Ces différences restent néanmoins assez minimes.

La difficulté a été ici de parvenir à faire suffisamment croître la taille de grains α du matériau. A partir des résultats les plus significatifs, deux matériaux modèles ont donc été élaborés à partir

de la tôle de M5® initiale par laminage à froid à 0,9 et 0,6mm selon la direction initiale de laminage. Un recuit de 700°C pendant 16h est effectué sous vide secondaire afin de recristalliser le matériau et de faire croître la taille de grains α. Les matériaux obtenus ne diffèrent *a priori* du matériau initial, ou tout du moins une fois chauffés à haute température (>650°C), que par leur taille de grains, :

- $7,8 \pm 0,5\mu m$ (pour le laminé à 0,9mm),
- $9 \pm 0,5\mu m$ (pour le laminé à 0,6mm),
- contre $6,3 \pm 0,5\mu m$ (état de réception).

3.1.3.3 Elaboration des matériaux modèles pour le domaine quasi-β

Contrairement au domaine quasi-α, dans le domaine quasi-β, la difficulté réside dans la capacité à empêcher ou tout du moins freiner le fort grossissement des grains β et à obtenir des grains β de taille inférieure aux quelques centaines de micromètres observés dans le domaine β. Dans le domaine quasi-β, la taille de grains la plus faible a été obtenue à la température la plus faible, soit 900°C (figure 3.2). Cette température est donc choisie comme référence pour l'essai de fluage afin de ne pas limiter la gamme de taille de grains pour les matériaux modèles.

D'après l'étude bibliographique, les paramètres permettant de faire varier la taille de grains sont la durée et la température du traitement. Une fois que cette variation est obtenue, l'objectif est de stabiliser la taille de grains pour l'essai de fluage ultérieur (à 900°C).

Comme les essais de fluage sur les matériaux modèles sont effectués dans le domaine quasi-β en conditions de « quasi-équilibre », il subsiste de la phase α dans la microstructure du matériau. Cette phase α, empêchant au chauffage le fort grossissement des grains β dans le domaine quasi-β, constitue le moyen d'épingler les joints de grains β et de stabiliser la microstructure des matériaux modèles.

Deux premiers traitements thermiques sont donc effectués, à 910 et 920°C, avec maintien en température de 30min, afin de faire croître la taille des grains β en tendant vers l'état de « quasi-équilibre » qui a été atteint avant les essais de fluage à 910 et 920°C et donc tendre vers les tailles de grains observées à ces températures (figure 3.2), stabilisées par la phase α résiduelle. Lors du refroidissement vers la température d'essai, peu de modifications structurales se produisent. Seule une faible partie de la phase β existant à 910 ou 920°C se retransforme en phase α, qu'il conviendra d'essayer d'analyser, de même que les grains β. Un temps de maintien de 30min avant l'essai doit permettre d'atteindre à nouveau le « quasi-équilibre » à 900°C.

Afin d'élaborer un troisième matériau modèle à taille de grains β plus élevée, un troisième traitement thermique est mis en œuvre en augmentant la température du traitement jusqu'au domaine β à 960°C (en conservant la durée de 30min). La taille de grains β atteint plusieurs centaines de microns (figure 3.2) sans qu'il soit aisé de la limiter. Lors du refroidissement vers la température d'essai, une plus grande quantité de phase β se retransforme en phase α, qui doit stabiliser les grains β. L'intégralité de la phase α présente alors à 900°C sera sous forme de lattes, contrairement aux traitements à 910 et 920°C. A nouveau, une analyse de la microstructure doit permettre d'évaluer la pertinence du traitement thermique.

Les analyses métallographiques sont réalisées après les essais de fluage, en supposant qu'il n'y a pas de changements microstructuraux trop importants au cours de l'essai.

3.1.4 Comportement en fluage des matériaux modèles

3.1.4.1 Domaine quasi-α

Des éprouvettes ont été prélevées dans la direction de laminage des tôles de M5® relaminées à froid de 1,18 à respectivement 0,9 et 0,6mm puis recuites durant 16h à 700°C (sous vide secondaire). Ces éprouvettes ont ensuite été soumises à un essai de fluage isotherme dans le domaine quasi-α, à 700°C, selon le même protocole que celui utilisé précédemment pour le matériau M5® de référence.

Des observations métallographiques ont été effectuées par microscopie optique après les essais de fluage (figure 3.8). Ces micrographies ont été analysées comme précédemment afin d'en déduire les tailles de grains des différents matériaux modèles. Celles-ci sont très comparables à celles des échantillons tests qui ont servi à la mise au point des traitements thermo-mécaniques :

- $7,6 \pm 0,5 \mu m$ pour le matériau laminé jusqu'à 0,6mm (contre $7,8 \pm 0,5 \mu m$ pour les échantillons tests),
- $9,1 \pm 0,5 \mu m$ pour le matériau laminé jusqu'à 0,9mm (contre $9 \pm 0,5 \mu m$ pour les échantillons tests).

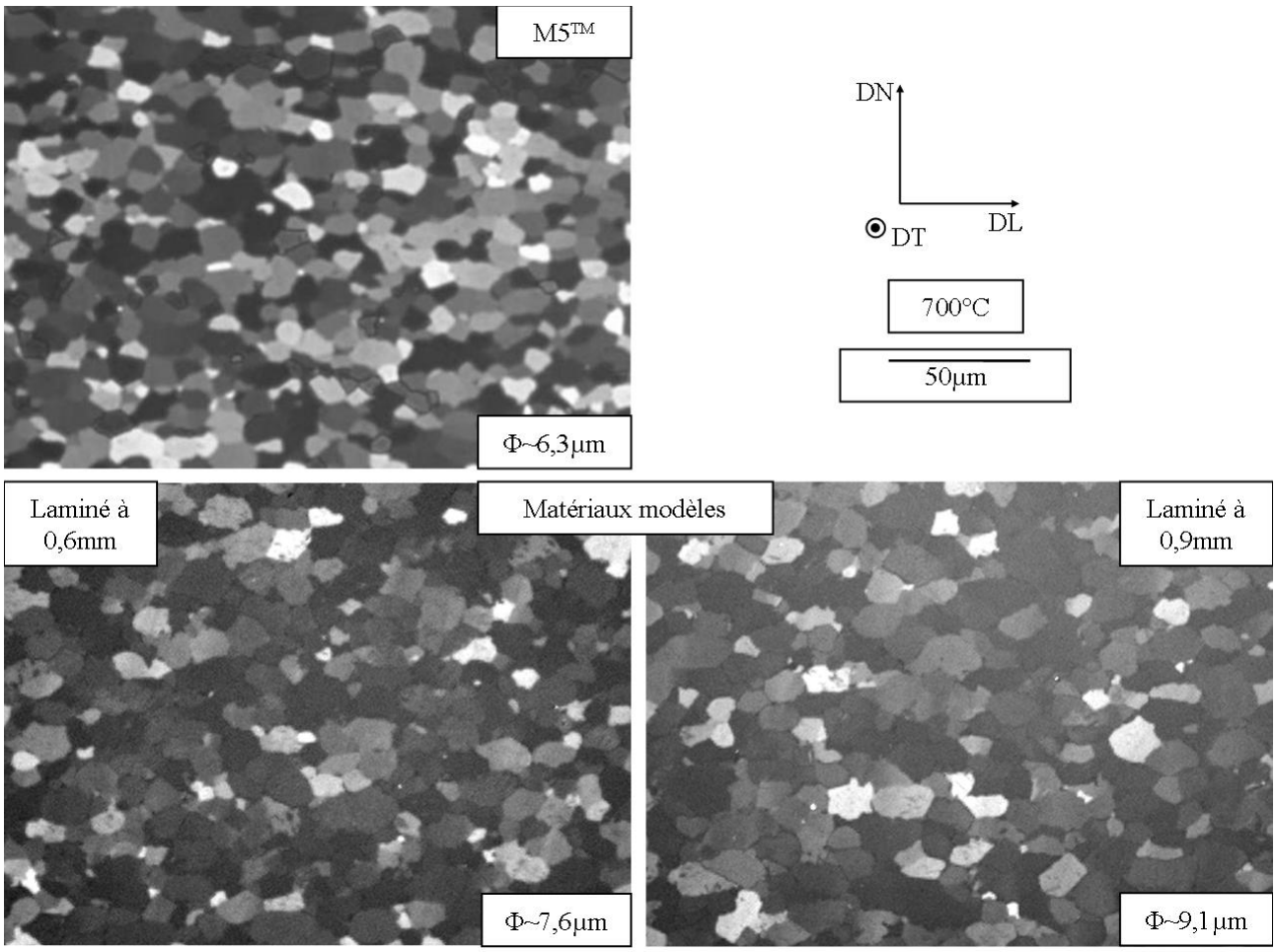


Figure 3.8 – *Micrographies optiques (contraste de Nomarsky) du M5® et des matériaux modèles à taille de grains distincte après essais de fluage à 700°C (domaine quasi-α, zone utile des éprouvettes)*

Le comportement en fluage de ces matériaux modèles est comparé sur la figure 3.9 au comportement du M5®. Les matériaux modèles présentent les deux régimes de fluage déjà observés

sur la figure 2.5 (le régime avec exposant de Norton n_1=1 aux basses contraintes, de type diffusionnel, et le régime de fluage avec un exposant de Norton n_2=5 pour les contraintes plus élevées, de type dislocations). La contrainte de transition entre les deux régimes diminue légèrement en fonction de la taille de grains et se situe entre 10 et 15MPa.

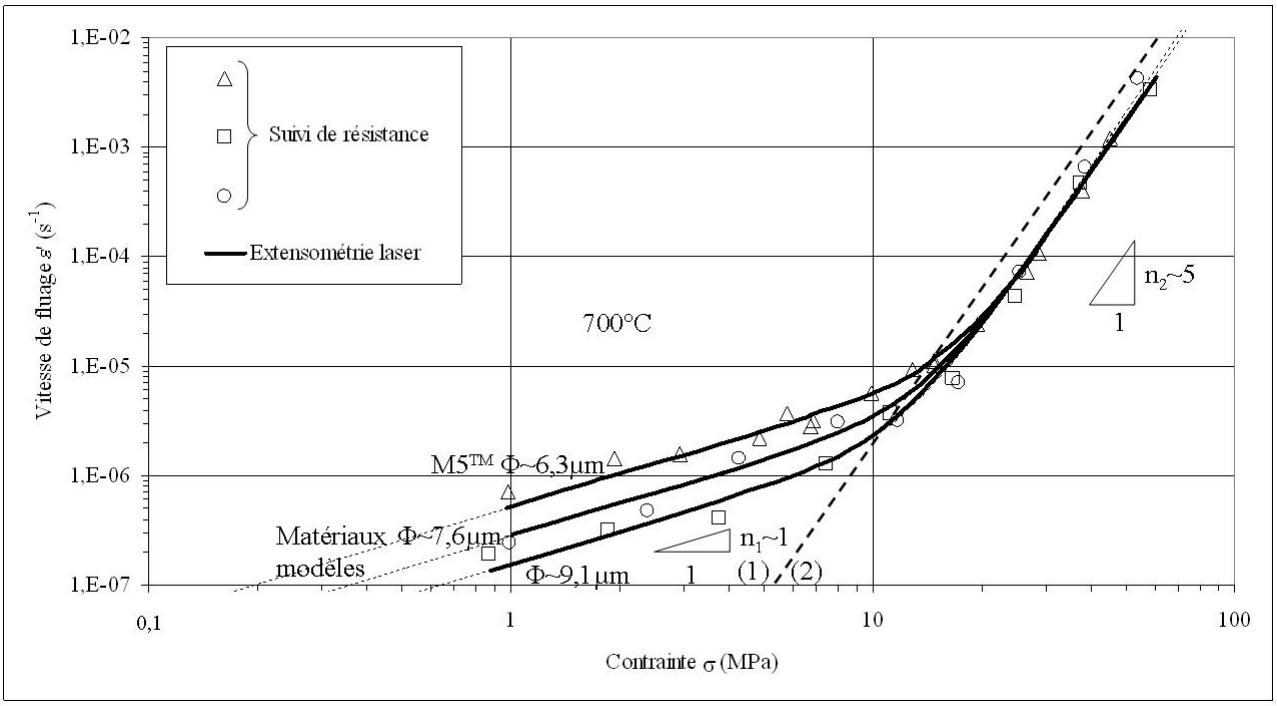


Figure 3.9 – *Comportement expérimental en fluage à 700°C (domaine quasi-α) du M5® et des matériaux modèles à tailles de grains distinctes (un essai par matériau)*

Aucun effet de taille de grains n'est observé dans ces conditions dans le régime de fluage dislocations, ce qui est cohérent avec les résultats présentés dans la littérature. Par contre, dans l'autre régime de fluage, des vitesses plus faibles (inférieures d'un facteur 4-5 au maximum, ce qui est significatif par rapport à l'incertitude expérimentale, équation A.30) ont été mesurées pour les matériaux modèles, décroissantes quand la taille de grains augmente. Il y a donc bien un effet de la taille de grains sur le comportement en fluage dans ce régime. Ceci conforte donc le fait qu'il s'agit d'un régime diffusionnel et non d'un régime de Harper et Dorn (1957).

Si on analyse de manière plus quantitative cet effet de taille de grains sur le régime diffusionnel, on peut comparer les vitesses expérimentales (on a considéré ici les mesures obtenues par extensométrie laser) aux modèles de Coble et Nabarro-Herring. La figure 3.10 présente cette comparaison, le comportement du M5® étant utilisé comme référence. Le modèle de Coble semble mieux reproduire l'effet de taille de grains dans l'intervalle étudié, qui reste trop peu étendu pour que l'on puisse conclure de manière certaine. Cette conclusion est en accord avec la bibliographie, notamment Prasad et al. (1989, 1992), Rama Rao (1998), qui prévoient à 700°C une transition entre les régimes Coble et Nabarro-Herring pour une taille de grains de $33\mu m$, pour du zirconium.

Comme on souhaite extrapoler cette modélisation dans le domaine biphasé, on s'intéresse par exemple à la température de 860°C, correspondant à 50% de phase α et une taille de grains observée de $6,7 \pm 1\mu m$ (figure 3.2). Dans ces conditions, pour du zirconium, Prasad et al. (1989,

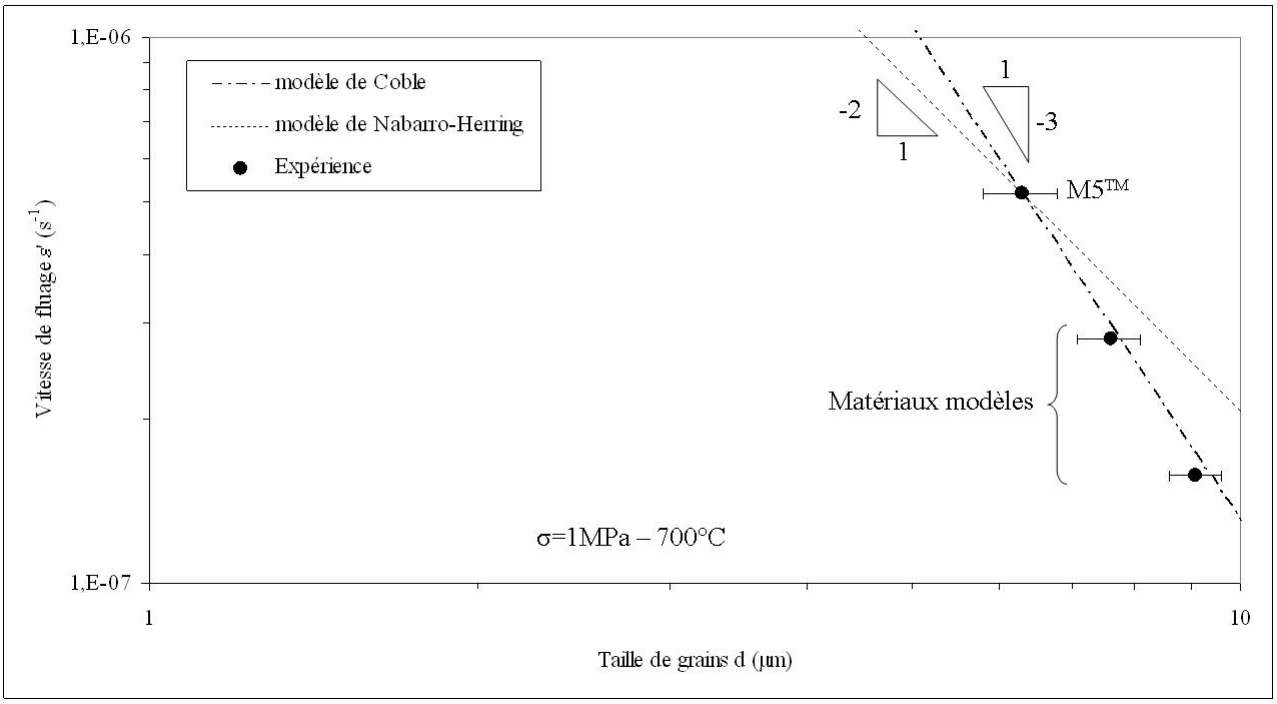


Figure 3.10 – *Evolution des vitesses de fluage du M5® et des matériaux modèles en fonction de la taille de grains à 700°C (domaine quasi-α) et pour une contrainte de 1MPa (régime $n_1 = 1$). Comparaison avec les modèles de fluage diffusionnel de Coble et de Nabarro-Herring*

1992), Rama Rao (1998) prévoient la transition vers 835 ± 15°C entre le régime de Coble et de Nabarro-Herring. Ce dernier pourrait donc intervenir pour tout ou partie à 860°C.

Néanmoins, comme les tailles de grains α n'évoluent pas significativement dans les domaines quasi-α et biphasé (figure 3.2), le modèle de Coble sera à même de bien décrire l'effet de taille de grains pour notre étude. Par exemple, à 860°C, il n'y a environ que 6% d'écart entre les prédictions données par les deux modèles, ce qui est inférieur à l'incertitude expérimentale sur les vitesses de fluage (équation A.30).

Afin de modéliser l'effet de taille de grains sur le comportement en fluage de la phase α du M5®, on considérera pour enrichir le modèle de comportement du chapitre précédent (prenant en compte jusqu'à maintenant uniquement l'effet de la température), selon la contrainte :
- soit un modèle de type Coble (dépendant de l'inverse du cube de la taille de grains) pour décrire cet effet dans le régime diffusionnel,
- soit aucun effet de taille de grains dans le régime dislocations (modèle inchangé).

3.1.4.2 Domaine quasi-β

Pour l'étude de l'effet de la taille de grains sur le comportement en fluage de la phase β, l'élaboration des matériaux modèles se fait par traitement thermique en préambule de l'essai de fluage à 900°C (domaine quasi-β). Le protocole utilisé pour les essais de fluage précédemment présentés est donc légèrement modifié au niveau du cycle thermique appliqué antérieurement au chargement mécanique. Le cycle thermique utilisé est décrit sur la figure 3.11. Il présente donc un palier isotherme supplémentaire de trente minutes, la température de ce traitement étant le paramètre fixant la taille de grains β avant l'essai proprement dit, réalisé à 900°C. A

la suite de ce palier, une période de trente minutes à la température d'essai permet d'atteindre un état de « quasi-équilibre » avant de commencer le cycle de chargements de fluage.

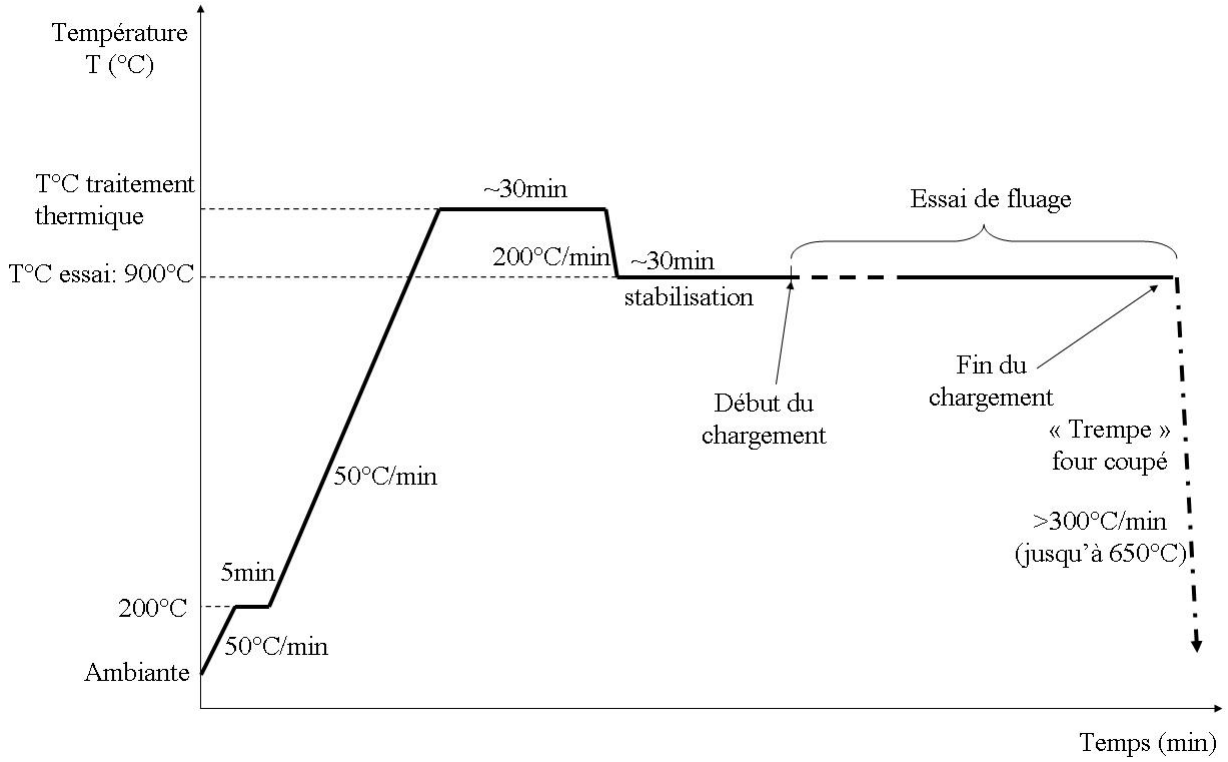


Figure 3.11 – *Cycle thermique appliqué aux éprouvettes de fluage pour étudier le comportement à 900°C (domaine quasi-β des matériaux modèles à taille de grains spécifique)*

Les trois matériaux modèles ont été ainsi traités respectivement à 910 et 920°C (domaine quasi-β) et 960°C (domaine β) avant d'être soumis à un essai de fluage isotherme à 900°C (domaine quasi-β).

Les observations métallographiques effectuées en microscopie optique après les différents essais de fluage sont regroupées sur la figure 3.12. On suppose qu'il n'y a pas eu d'évolution de microstructure au cours de l'essai de fluage. Des analyses métallographiques manuelles ont permis d'évaluer à 10% près les tailles de grains moyennes des matériaux modèles :

- $34\mu m$ pour le matériau traité à 910°C,
- $48\mu m$ pour le matériau traité à 920°C,
- $595\mu m$ pour le matériau traité à 960°C.

Le suivi de la transformation de phases par la mesure de résistance a indiqué des fractions volumiques de phase β de 94, 96 et 92% au début de l'essai de fluage pour les matériaux traités respectivement à 910, 920 et 960°C. Ces valeurs sont proches de la valeur obtenue pour l'essai de référence du M5® à 900°C (92%). Par conséquent, du point de vue de la quantité de phase α, les différents matériaux modèles sont comparables au M5®.

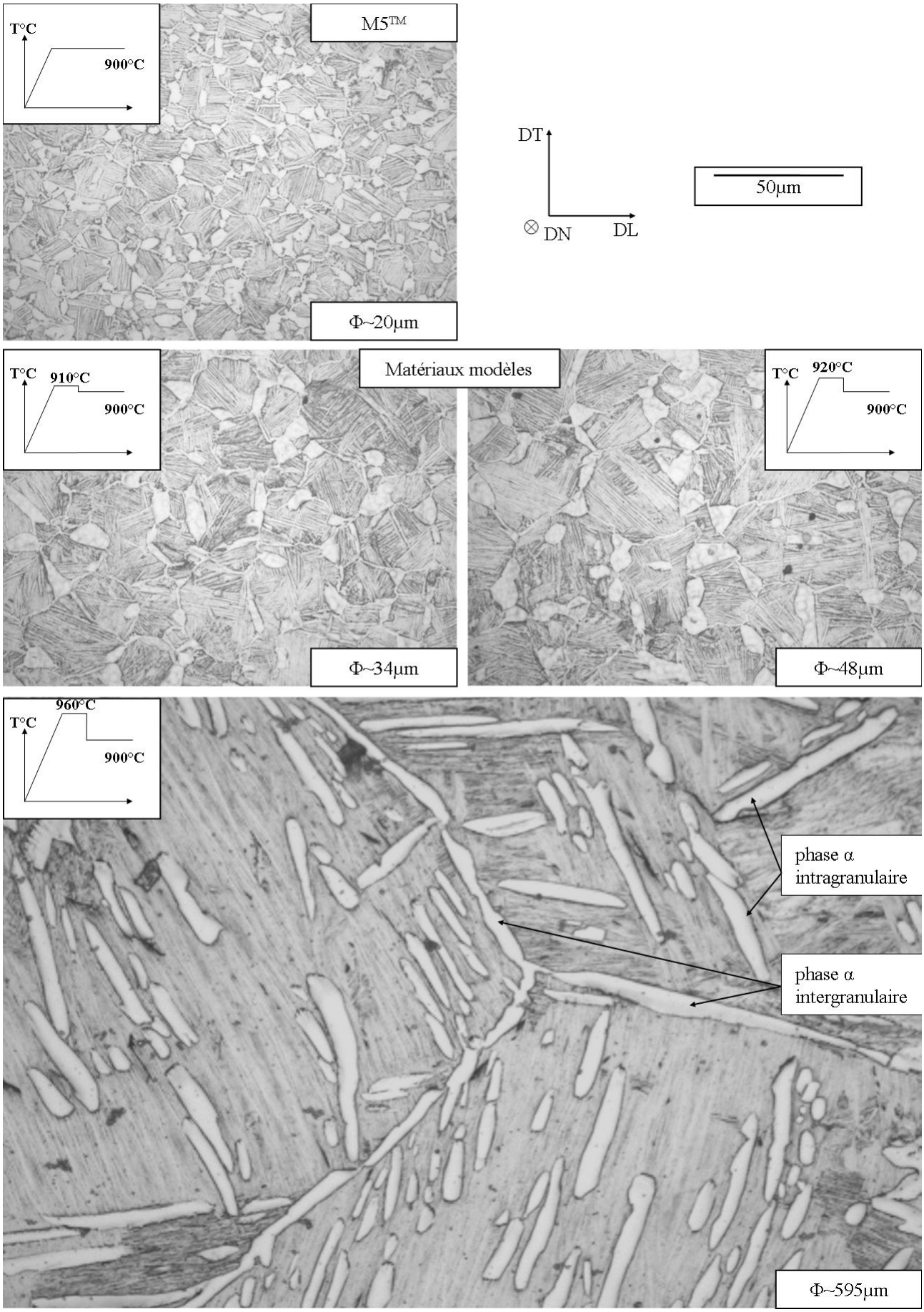


Figure 3.12 – *Micrographies optiques (lumière blanche) du M5® et des matériaux modèles à taille de grains distincte après essais de fluage à 900°C (domaine quasi-β) et un refroidissement four coupé (zone utile des éprouvettes)*

Des différences morphologiques sont néanmoins à remarquer sur les micrographies post-essai, dues à la retransformation d'une partie de la phase β, formée à plus haute température, lors du refroidissement vers la température d'essai (900°C). Pour les échantillons traités à 910 et 920°C, hormis les différences de taille de grains, les morphologies sont très ressemblantes. La phase α se présente majoritairement sous forme globulaire au niveau des joints de grains ex-β. On peut également remarquer de la phase α sous forme de lattes au niveau des joints de grains, tout comme sur la micrographie du M5®. Dans ce dernier cas, on a supposé que cette phase α était apparue après l'essai de fluage lors du refroidissement four coupé. Dans le cas des matériaux modèles, on ne peut pas exlure qu'une partie de cette phase α ait été créée lors du refroidissement jusqu'à la température d'essai, avant l'essai de fluage. On fait donc toutefois l'hypothèse que l'on peut négliger l'influence de cette petite évolution microstructurale sur le comportement mécanique des matériaux modèles comparativement au M5® porté directement par chauffage à 900°C.

Pour le matériau traité à 960°C, au-delà du transus haut de transformation de phases, toute la phase α ayant été transformée à 960°C, elle n'existe plus sous forme primaire mais uniquement sous forme de lattes (Östberg (1961), Holt (1973), Woo et Tangri (1979)). Les lattes les plus épaisses correspondent, tout du moins en partie, à la phase α créée lors du refroidissement vers la température d'essai. Deux sites de germination semblent en compétition, les sites inter et intra-granulaires β. Comme la plupart des joints des grains ex-β sont recouverts de phase α (comme on l'a aussi observé lors des trempes étagées après certains essais de fluage), les sites intergranulaires semblent priviliégiés en début de transformation de phases au refroidissement (Kaddour (2004)). Néanmoins, probablement à cause de la densité de joints de grains β pour des tailles de grains de plusieurs centaines de microns, une partie de la phase α germe également au cœur des grains β. Afin d'intégrer également ce matériau modèle pour évaluer l'effet de taille de grains, deux hypothèses simplificatrices sont donc à faire :

- on néglige l'influence de la présence de phase α intragranulaire sur le comportement en fluage à 900°C,
- on considère que la morphologie en lattes de la phase α aux joints de grains β ne modifie pas le comportement observé par rapport à de la phase α primaire, formée par incursion directe au chauffage depuis les basses températures.

Moyennant toutes ces hypothèses, une analyse qualitative et quantitative pourra être menée sur les résultats des essais de fluage.

Le comportement expérimental des matériaux modèles est comparé sur la figure 3.13 au comportement de référence du M5® à 900°C. Seules les mesures effectuées par le suivi de résistance sont utilisées dans le cas du domaine quasi-β (cf. annexe A). Le comportement en fluage des matériaux modèles diffère de manière importante du comportement du matériau M5® de référence. Les écarts les plus importants (dépassant deux décades en vitesses de fluage) sont mesurés pour les faibles contraintes (<5MPa). Dans ce domaine de contraintes, plus la taille de grains est élevée, plus la vitesse de fluage est faible. A plus fortes contraintes (>5MPa), les vitesses de fluage sont également affectées par la taille de grains, mais de manière moins marquée. De plus, pour les plus fortes contraintes, les vitesses de fluage semblent même croître légèrement en fonction de la taille de grains.

Les deux régimes de fluage d'exposants de Norton n_1=1 et n_2=4 identifiés dans le domaine β et quasi-β (figure 2.22) ne sont pas observés pour les trois matériaux modèles. Pour le matériau M5® et le matériau modèle traité à 910°C (taille de grains de 34μm environ), on observe essentiellement le régime d'exposant de Norton n_1=1. Pour le matériau modèle traité à 920°C (taille de grains de 48μm environ), il s'agit de la transition entre les deux régimes. Le régime de fluage observé pour le matériau présentant une taille de grains moyenne de 595μm (traité à

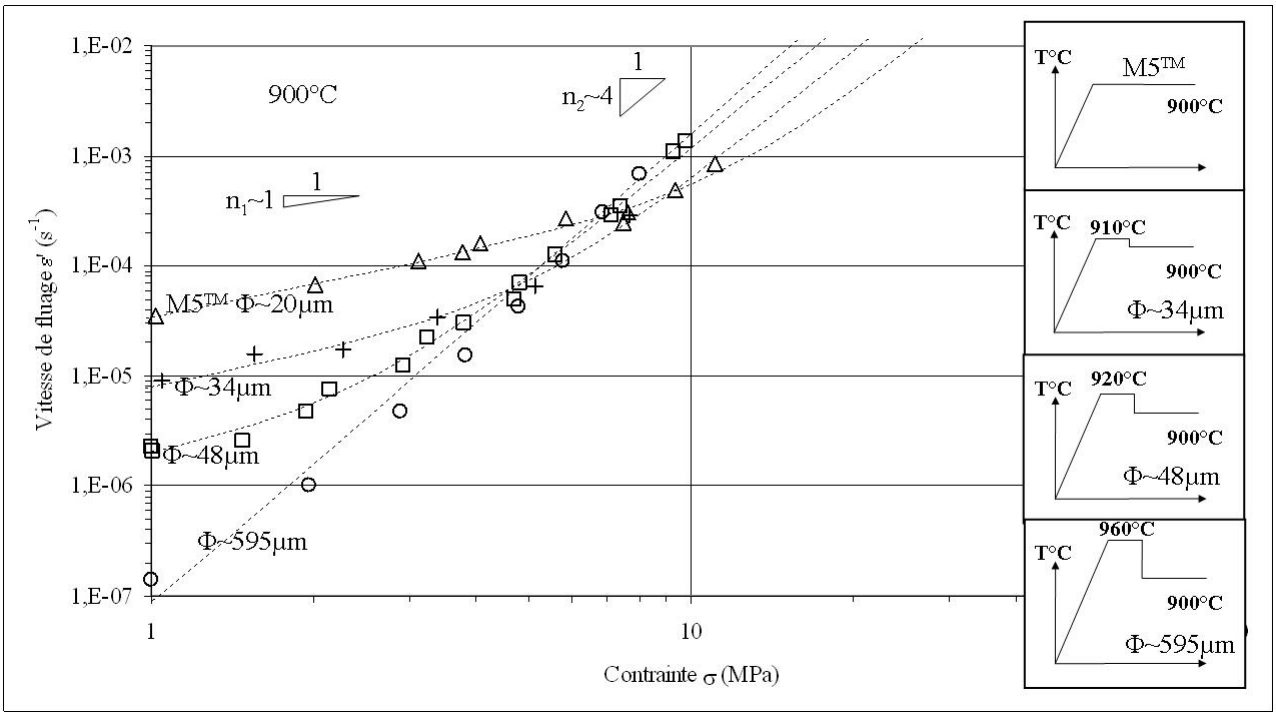


Figure 3.13 – *Comportement expérimental en fluage à 900°C (domaine quasi-β) du M5® et des matériaux modèles à taille de grains distinctes, mentionnées sur les courbes (un essai par matériau). Les vitesses sont évaluées par suivi de résistance*

960°C) est uniquement le second régime (n_2=4), tel qu'il se manifeste dans le domaine 100% β (avec des tailles de grains de plusieurs centaines de micromètres également).

Le régime n_1=1 semble donc le plus sensible à la taille de grains, ce qui confirme qu'il s'agit d'un régime diffusionnel. Le second régime n_2=4 est, quant à lui, moins influencé par la taille de grains.

La figure 3.14 décrit l'évolution de la vitesse de fluage dans le régime diffusionnel en fonction de la taille de grains. Seuls les matériaux modèles traités à 910 et 920°C apparaissent dans cette comparaison du fait que le régime de fluage $n_1 = 1$ n'a pas été observé pour le troisième matériau modèle traité à 960°C. D'une manière analogue au domaine quasi-α, ces valeurs expérimentales sont confrontées aux modèles de Coble et Nabarro-Herring, l'essai sur le M5® servant de référence. Il apparaît à nouveau que **le modèle de type Coble décrit mieux l'effet de taille de grains dans ce régime**. La même nuance est à apporter, à savoir que l'on ne peut pas exlure de manière catégorique les autres modèles, en particulier celui de Nabarro-Herring, même si les écarts sont plus importants que dans le domaine quasi-α.

Cette analyse est plus délicate à mener pour le régime de fluage dislocations pour la raison évidente du manque de données expérimentales pour les essais sur le M5® et le matériau modèle traité à 910°C. En effet, pour ces essais, pour les contraintes les plus élevées, correspondant aux vitesses de fluage maximales accessibles avec ce dispositif expérimental, on semble seulement observer la transition entre les deux régimes de manière qualitative. Cette transition permet d'évaluer le second régime pour les deux cas mentionnés ci-dessus (courbes tracées en pointillés sur la figure 3.13), mais de manière quantitative, la précision est moindre relativement aux matériaux traités à 920 et 960°C.

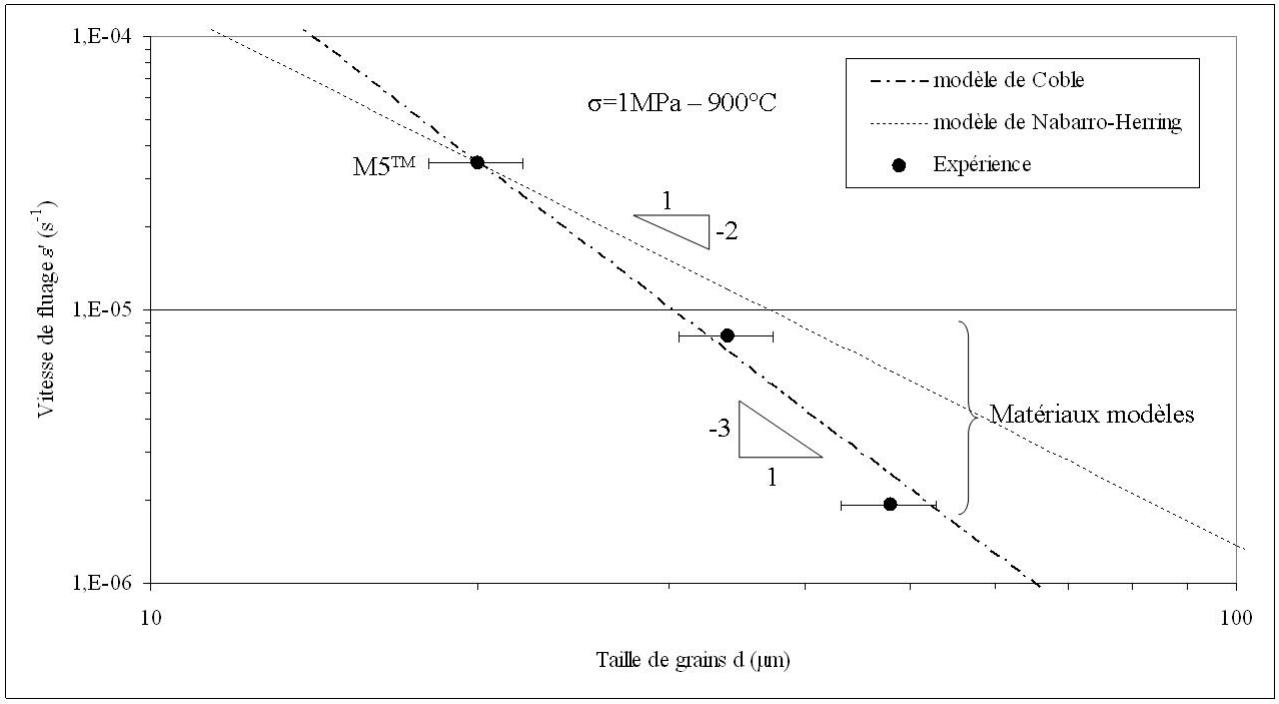


Figure 3.14 – *Evolution des vitesses de fluage du M5® et des matériaux modèles en fonction de la taille de grains à 900°C (domaine quasi-β) et pour une contrainte de 1MPa (régime $n_1 = 1$). Comparaison avec les modèles de fluage diffusionnel de Coble et de Nabarro-Herring*

La figure 3.15, qui décrit l'évolution de la vitesse de fluage du régime dislocations en fonction de la taille de grains semble indiquer qu'il pourrait exister un petit effet de taille de grains pour les plus faibles tailles de grains. La vitesse de fluage augmenterait avec la taille de grains. Pour des tailles de grains plus élevées, cet effet s'atténuerait. **L'effet de taille de grains ne concernerait donc *a priori* que le domaine quasi-β.**

Aucune donnée bibliographique concernant le zirconium et ses alliages ne fait état, à notre connaissance, d'un effet de taille de grains sur le régime de fluage dislocations, en particulier pour la phase β. Si on élargit ce champ aux autres matériaux métalliques, même si majoritairement, le fluage dislocations est présenté comme étant insensible à la taille de grains, quelques travaux référencés par Garofalo (1967) (dont quelques unes de ses propres études), ou encore Li (1992), peuvent nuancer ce propos. Garofalo et al. (1964) expliquent ainsi que pour un alliage de fer austénitique, à 704°C, les vitesses de fluage diminuent inversement proportionnellement avec la taille de grains avant d'augmenter, proportionnellement au carré de la taille de grains. Même si Garofalo et al. (1964) ne le mentionnent pas explicitement, il s'agit de fluage dislocations, sur la base de l'exposant de Norton (n$\approx$ 3). Une étude sur un Monel (Ni-Cu, Shahinian et Lane (1953)) rapporte un comportement analogue en fonction de la taille de grains. Des études moins complètes sur le cuivre (cfc), le laiton (Cu-Zn, cfc) ou encore l'étain (tl (tétragonal)) ont montré des évolutions comparables des vitesses de fluage en fonction de la taille de grains.

Une dépendance envers le carré de la taille de grains peut être ici rattachée à un effet de type Hall-Petch sur le fluage, comparable à celui observé classiquement en traction sur la limite d'élasticité. En effet, avec l'exposant de Norton n_2=4 correspondant au régime de fluage dislocations, un effet Hall-Petch peut se traduire, à vitesse de fluage donnée, par une dépendance

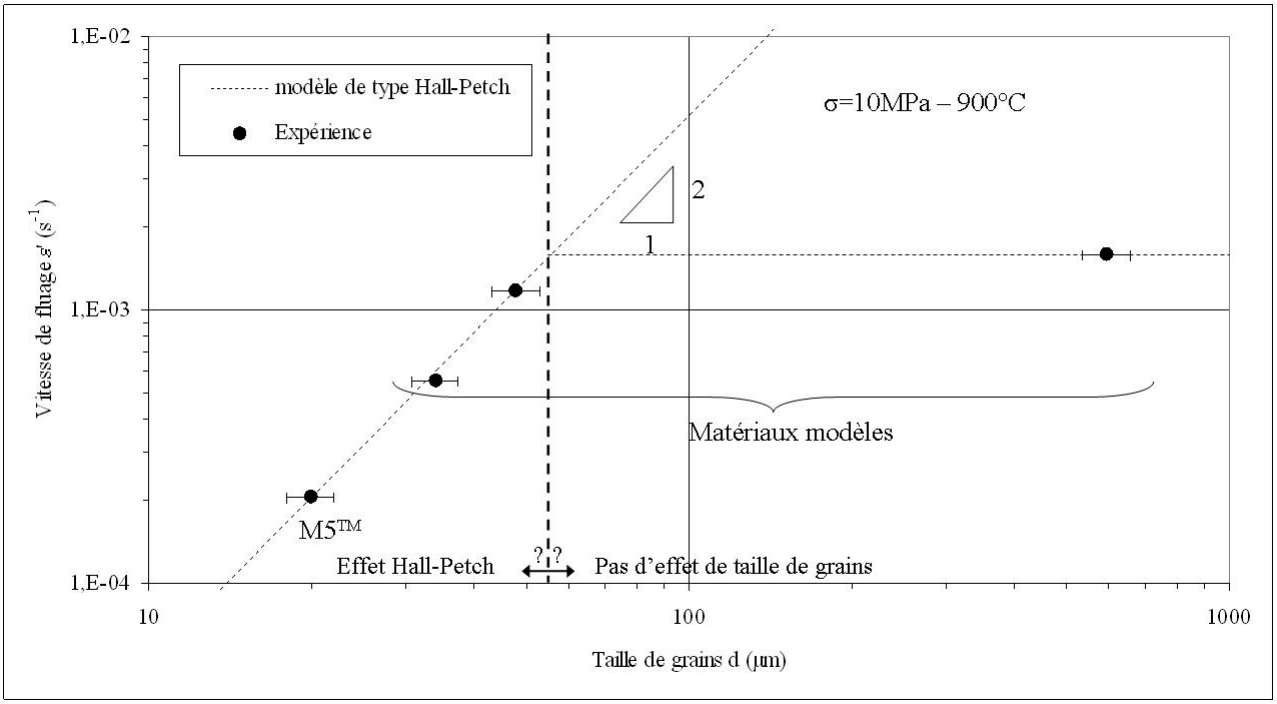


Figure 3.15 – *Evolution des vitesses de fluage du M5® et des matériaux modèles en fonction de la taille de grains à 900°C (domaine quasi-β) et pour une contrainte de 10MPa (régime $n_2 = 4$). Comparaison avec un modèle de type Hall-Petch*

de la contrainte de fluage à l'inverse de la racine carrée de la taille de grains (équation 3.1) :

$$\sigma \propto \dot{\varepsilon}^{\frac{1}{n_2}} \frac{1}{d^{\frac{1}{2}}} \tag{3.1}$$

Soit en inversant (équation 3.2) :

$$\dot{\varepsilon} \propto \sigma^{n_2} d^{\frac{n_2}{2}} \tag{3.2}$$

Ceci correspond donc à une dépendance de la vitesse de fluage à la puissance $n_2/2$ de la taille de grains, donc ici au carré de la taille de grains.

Une bonne adéquation entre ce modèle et les résultats estimés à partir des données expérimentales peut être envisagée (figure 3.15) jusqu'à la taille de grains de $48\mu m$. **Cet effet ne se prolonge apparemment pas jusqu'au matériau à gros grains ($595\mu m$)**. En interpolant les résultats, on pourrait donc définir une limite de 50-100μm séparant un domaine (>50-100μm) dans lequel la taille de grains n'a pas d'influence sur le régime de fluage dislocations et un autre domaine (<50-100μm) dans lequel il existe un effet Hall-Petch sur le régime de fluage dislocations.

Il est à noter que cette modélisation de l'effet de taille de grains pour le régime dislocations, sujette à caution du fait du manque de données expérimentales, a, d'une part, peu d'influence sur la modélisation précédente concernant l'effet de taille de grains sur le régime diffusionnel de la phase β, et d'autre part, comme on le montrera dans le chapitre suivant (chapitre 4) peu d'impact, *in fine*, sur les simulations du comportement du matériau biphasé.

Afin de modéliser l'effet de taille de grains sur le comportement en fluage de la phase β du M5®, on considérera pour enrichir le modèle du chapitre précédent (prenant en compte uniquement l'effet de la température) :
- un modèle de type Coble (vitesse de fluage dépendant de l'inverse du cube de la taille de grains) pour décrire cet effet dans le régime diffusionnel,
- pour le régime dislocations, aucun effet de taille de grains dans le domaine β mais un effet de type Hall-Petch (vitesse de fluage en puissance $n_2/2$ de la taille de grains) uniquement pour le domaine quasi-β et les faibles tailles de grains (inférieures à 50-100μm).

La mise en équation de ce modèle est présentée dans le paragraphe suivant.

3.1.5 Modélisation de l'effet de la taille de grains

3.1.5.1 Domaine quasi-α

La prise en compte de l'effet de taille de grains sur le comportement en fluage de la phase α vient enrichir le premier modèle qui prenait en compte uniquement l'effet de la température. Un modèle de type Coble est introduit pour le régime de fluage diffusionnel. Le régime de fluage dislocations est inchangé par rapport au premier modèle.

La partition des déformations s'écrit de la même manière que précédemment (équation 3.3) :

$$\underline{\underline{\dot{\varepsilon}^{vp}}} = \underline{\underline{\dot{\varepsilon}_1^{vp}}} + \underline{\underline{\dot{\varepsilon}_2^{vp}}} \tag{3.3}$$

Chaque régime est associé à l'une des deux vitesses de déformation viscoplastique $\underline{\underline{\dot{\varepsilon}_i^{vp}}}$:

1. pour le régime de fluage diffusionnel :

$$\underline{\underline{\dot{\varepsilon}_1}}^{vp} = \left[\dot{\varepsilon}_1 \left(\frac{\sigma_{VM}}{\sigma_0}\right)^{n_1}\right] \frac{3}{2} \frac{\underline{\underline{\sigma^D}}}{\sigma_{VM}} \tag{3.4}$$

$$\dot{\varepsilon}_1 = \frac{A_1}{T} \left(\frac{d_0}{d_\alpha}\right)^3 \exp\left(-\frac{E_{a1}}{RT}\right) \tag{3.5}$$

2. pour le régime de fluage dislocations :

$$\underline{\underline{\dot{\varepsilon}_2}}^{vp} = \left[\dot{\varepsilon}_2 \left(\frac{\sigma_{VM}}{\sigma_0}\right)^{n_2}\right] \frac{3}{2} \frac{\underline{\underline{\sigma^D}}}{\sigma_{VM}} \tag{3.6}$$

$$\dot{\varepsilon}_2 = \frac{A_2}{T} \exp\left(-\frac{E_{a2}}{RT}\right) \tag{3.7}$$

avec :
- n_1=1 et n_2=5,
- $\dot{\varepsilon}_i$, homogène à une vitesse de déformation,
- σ_{VM} la contrainte équivalente de von Mises,
- σ_0 un paramètre homogène à une contrainte (ici, choisi égal à 1MPa),
- $\underline{\underline{\sigma^D}}$ la partie déviatorique du tenseur des contraintes,
- d_α la taille de grains α (en μm),
- d_0 un paramètre homogène à une taille de grains (ici, choisi égal à la taille de grains initiale du matériau, soit 6,3μm),

- A_i des constantes ($K{\cdot}s^{-1}$),
- E_{ai} des énergies d'activation ($kJ{\cdot}mol^{-1}$),
- R la constante des gaz parfaits,
- T la température (en K).

L'identification du modèle est réalisée sur l'ensemble des essais réalisés sur le M5® dans le domaine quasi-α, comme pour le premier modèle. Les valeurs initiales des paramètres sont prises égales aux valeurs du modèle précédent. La figure 3.16 présente l'identification des deux énergies d'activation E_{ai} associées aux deux régimes de fluage avec :

- $A_1 \approx 2,7.10^7 K{\cdot}s^{-1}$
- $A_2 \approx 1,2.10^5 K{\cdot}s^{-1}$

Comme dans le domaine quasi-α, les évolutions de tailles de grains α sont quasiment nulles pour une microstructure de départ donnée (quasi-α équiaxe recristallisée), les paramètres identifiés sont les mêmes que précédemment.

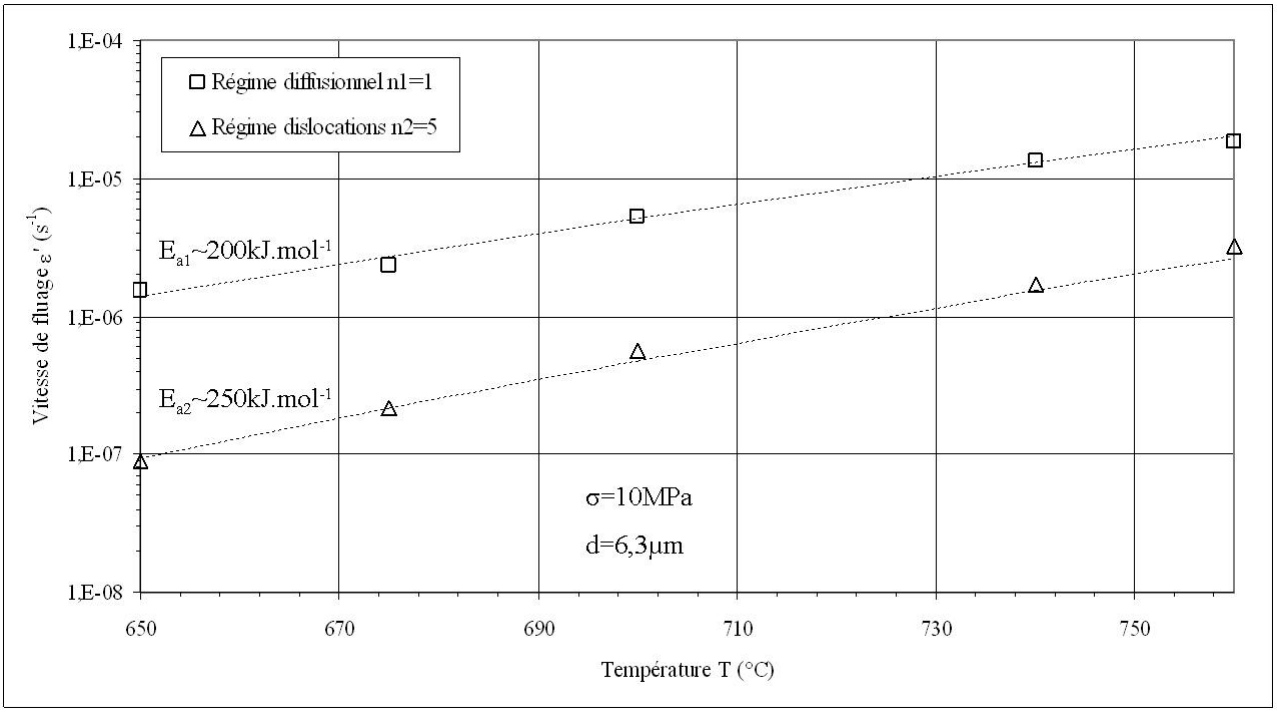


Figure 3.16 – *Identification des énergies d'activation des deux régimes de fluage du M5® dans le domaine quasi-α (après prise en compte de l'effet de taille de grains)*

3.1.5.2 Domaine quasi-β

La prise en compte de l'effet de taille de grains sur le comportement en fluage de la phase β vient enrichir le premier modèle qui prenait en compte uniquement l'effet de la température et un seul régime de fluage. Un autre régime, de fluage diffusionnel, est introduit en complément du régime de fluage dislocations.

Un modèle de type Coble décrit l'effet de taille de grains sur le régime de fluage diffusionnel. Le régime dislocations est inchangé par rapport au premier modèle dans le domaine β. Un effet de type Hall-Petch est ajouté pour le domaine quasi-β pour les faibles tailles de grains

(inférieures à $60\mu m$ environ).

Etant donnée la taille de grains β dans le domaine β (figure 3.2), il suffit de mettre un critère sur la taille de grains, sans faire de distinction entre les domaines β et quasi-β. Cela limite bien sûr la robustesse du modèle et donc, en dehors de ce cadre, il faudrait revenir à la distinction initiale, plus stricte, avant d'extrapoler ce modèle.

La partition des déformations s'écrit de la même manière que précédemment (équation 3.8) :

$$\underline{\underline{\dot{\varepsilon}^{vp}}} = \underline{\underline{\dot{\varepsilon}_1^{vp}}} + \underline{\underline{\dot{\varepsilon}_2^{vp}}} \tag{3.8}$$

Chaque régime est associé à l'une des deux vitesses de déformation viscoplastique $\underline{\underline{\dot{\varepsilon}_i^{vp}}}$:

1. pour le régime de fluage diffusionnel :

$$\underline{\underline{\dot{\varepsilon}_1}}^{vp} = \left[\dot{\varepsilon}_1 \left(\frac{\sigma_{VM}}{\sigma_0}\right)^{n_1}\right] \frac{3}{2} \frac{\underline{\underline{\sigma^D}}}{\sigma_{VM}} \tag{3.9}$$

$$\dot{\varepsilon}_1 = \frac{A_1}{T} \left(\frac{d_1}{d_\beta}\right)^3 \exp\left(-\frac{E_{a1}}{RT}\right) \tag{3.10}$$

2. pour le régime de fluage dislocations :

$$\underline{\underline{\dot{\varepsilon}_2}}^{vp} = \left[\dot{\varepsilon}_2 \left(\frac{\sigma_{VM}}{\sigma_0}\right)^{n_2}\right] \frac{3}{2} \frac{\underline{\underline{\sigma^D}}}{\sigma_{VM}} \tag{3.11}$$

$$\dot{\varepsilon}_2 = \frac{A_2}{T} min\left[1, \left(\frac{d_\beta}{d_2}\right)^2\right] \exp\left(-\frac{E_{a2}}{RT}\right) \tag{3.12}$$

avec :
- n_1=1 et n_2=4,
- $\dot{\varepsilon}_i$, homogène à une vitesse de déformation,
- σ_{VM} la contrainte équivalente de von Mises,
- σ_0 un paramètre homogène à une contrainte (ici, choisi égal à 1MPa),
- $\underline{\underline{\sigma^D}}$ la partie déviatorique du tenseur des contraintes,
- $\underline{\underline{d_\beta}}$ la taille de grains β (en μm),
- d_1 un paramètre homogène à une taille de grains (ici, choisi égal à $20\mu m$, correspondant à la taille de grains β à 900°C),
- d_2 un paramètre homogène à une taille de grains (correspondant à une taille limite de prise en compte de l'effet Hall-Petch, à identifier),
- A_i des constantes ($K{\cdot}s^{-1}$),
- E_{ai} des énergies d'activation ($kJ{\cdot}mol^{-1}$),
- R la constante des gaz parfaits,
- T la température (en K).

L'identification du modèle est réalisée sur l'ensemble des essais réalisés sur le M5® dans le domaine β comme pour le premier modèle et en incluant également le domaine quasi-β. Les valeurs initiales des paramètres sont basées sur les paramètres du modèle précédent.

L'identification des paramètres relatifs au régime supplémentaire de fluage diffusionnel ne peut bien sûr s'appuyer que sur les essais réalisés dans le domaine quasi-β. La figure 3.17 présente l'identification de l'énergie d'activation de ce régime (E_{a1}) avec $A_1 \approx 4,5.10^{18} K{\cdot}s^{-1}$. De

par l'absence de données bibliographiques sur ce régime, bien que la valeur de l'énergie d'activation puisse paraître anormalement élevée, on ne peut pas vraiment conclure sur sa validité. De plus, l'intervalle de température de 20°C ne permet pas d'obtenir une identification précise.

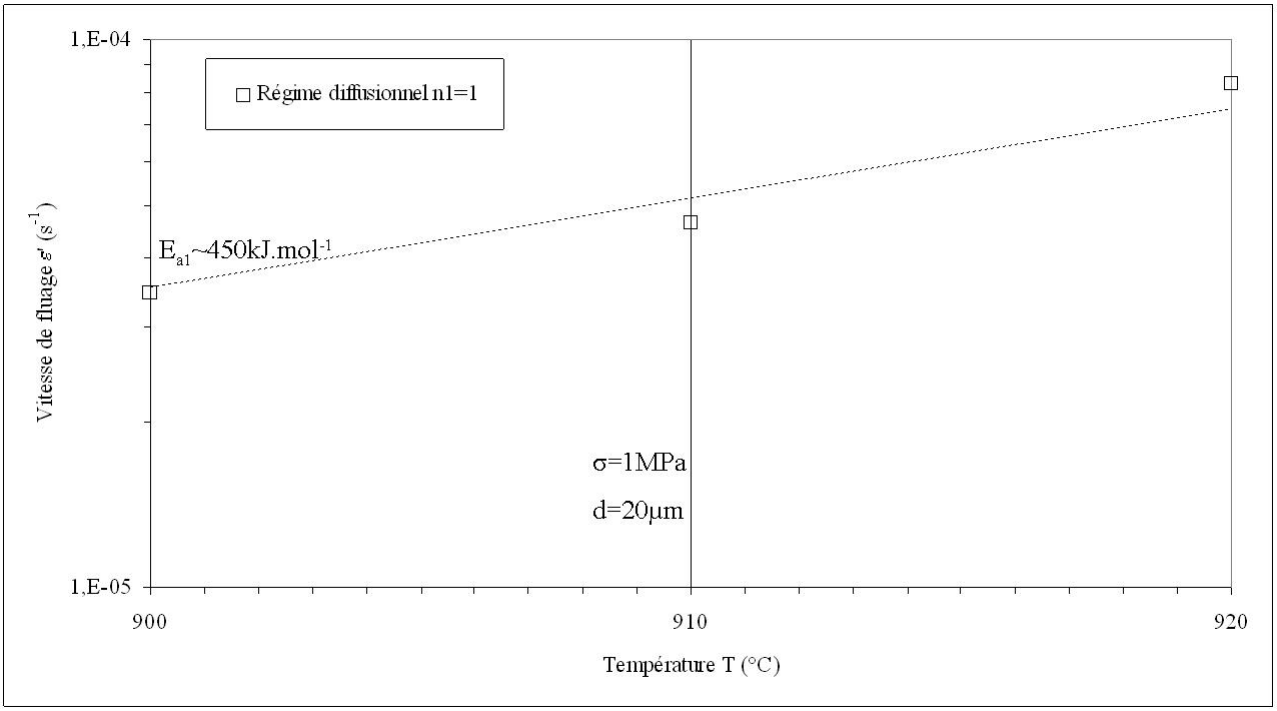


Figure 3.17 – *Identification de l'énergie d'activation du régime de fluage diffusionnel du M5® dans le domaine quasi-β (après prise en compte de l'effet de taille de grains)*

Pour le régime de fluage dislocations, il reste trois paramètres à identifier (E_{a2}, A_2 et d_2). Le paramètre d_2 pourrait être identifié à partir des essais sur les matériaux modèles (environ $55\mu m$). Une autre solution consiste à considérer les essais réalisés sur le M5® dans les domaines β et quasi-β. Dans ce cas on obtient $d_2 \approx 90\mu m$. Cette valeur est privilégiée car elle s'appuie sur un plus grand nombre de données expérimentales (essais à 920 et 910°C doublés sur le M5®). De plus cela permet de conserver une base d'identification plus homogène.

La figure 3.18 présente l'identification de l'énergie d'activation de ce régime avec $A_2 \approx 7.10^4 K{\cdot}s^{-1}$. Comme l'identification de E_{a2} et A_2 s'appuie essentiellement sur les essais réalisés dans le domaine β, les valeurs ne diffèrent pas de celles du modèle précédent.

Cette identification justifie d'une certaine manière *a posteriori* la prise en compte de l'effet de taille de grains pour le régime dislocations pour les faibles tailles de grains. En effet, cela apporte une unité de comportement entre les domaines quasi-β et β (figure 3.18) et permet de mieux décrire le comportement de la phase β dans ces domaines (on trouvera la comparaison entre le comportement expérimental et modélisé sur la figure 3.19).

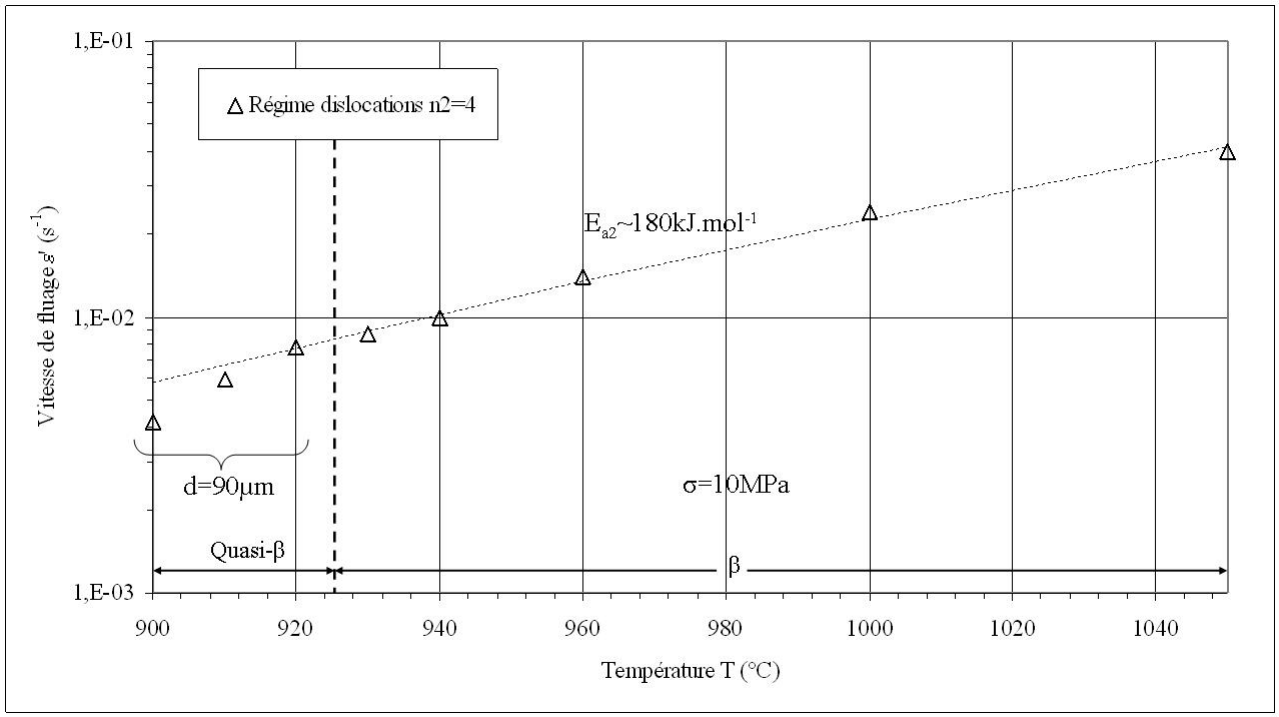


Figure 3.18 – *Identification de l'énergie d'activation du régime de fluage dislocations du M5® dans les domaines quasi-β (après prise en compte de l'effet de taille de grains) et β*

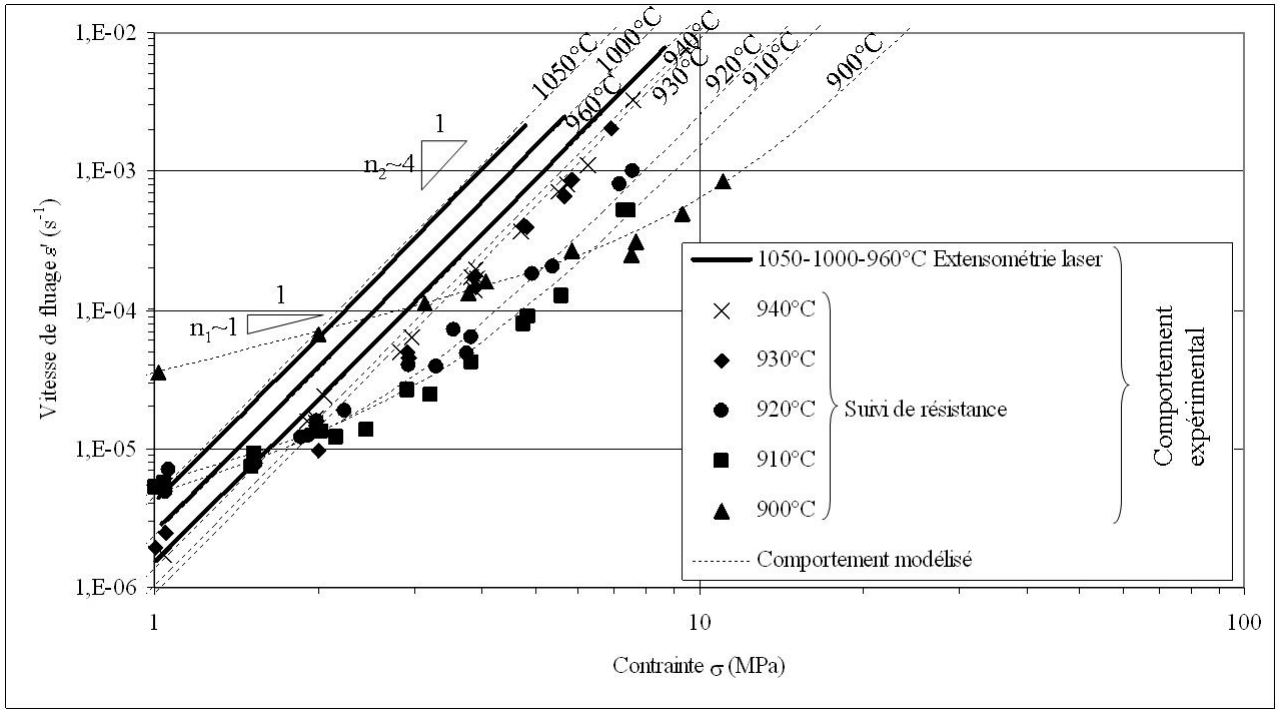


Figure 3.19 – *Comportement expérimental et modélisé en fluage du M5® dans les domaines quasi-β et β*

3.1.6 Bilan

Nous avons montré expérimentalement que dans certains domaines de température / contrainte, la vitesse de fluage du M5® était sensible à la taille de grains. Ainsi, la prise en compte de cet effet a permis d'affiner le modèle de comportement destiné à être ensuite extrapolé dans le domaine biphasé.

Ainsi, pour la phase α :
- aucun effet de taille de grains n'est mis en évidence pour le régime de fluage dislocations,
- un effet de taille de grains décrit par le modèle de Coble est observé dans le régime basses contraintes, confirmant son caractère diffusionnel.

Pour la phase β, cette étude a établi les résultats suivants :
- on constate peu d'effet de taille de grains pour le régime de fluage dislocations, même si, pour les faibles tailles de grains (inférieures à $90\mu m$ environ), un effet de type Hall-Petch pourrait conduire à renforcer le matériau,
- l'existence d'un second régime de fluage est confirmée. Ce régime est, comme pour la phase α, fortement dépendant de la taille de grains (modèle de type Coble) et sa prise en compte est d'autant plus primordiale dans les domaines quasi-β et biphasé que les tailles de grains β ont un intervalle d'évolution important (trois décades).

Un modèle prenant en compte l'effet de la température et l'effet de taille de grains a été identifié à partir de l'ensemble des essais de fluage effectués sur le matériau M5®. Ce modèle vise à apporter une amélioration sensible dans la description du comportement de chaque phase dans le domaine biphasé.

Les résultats sont synthétisés sur la figure 3.20 qui décrit dans le plan contraintes - températures (650-1050°C) les isovitesses de fluage de chaque phase (de $10^{-7}s^{-1}$ à $10^{-2}s^{-1}$) pour une taille de grains fixe de $10\mu m$, dans les domaines quasi-monophasés respectifs et également l'extrapolation dans le domaine biphasé. Le tableau 3.7 regroupe les différents paramètres du modèle de fluage du M5®.

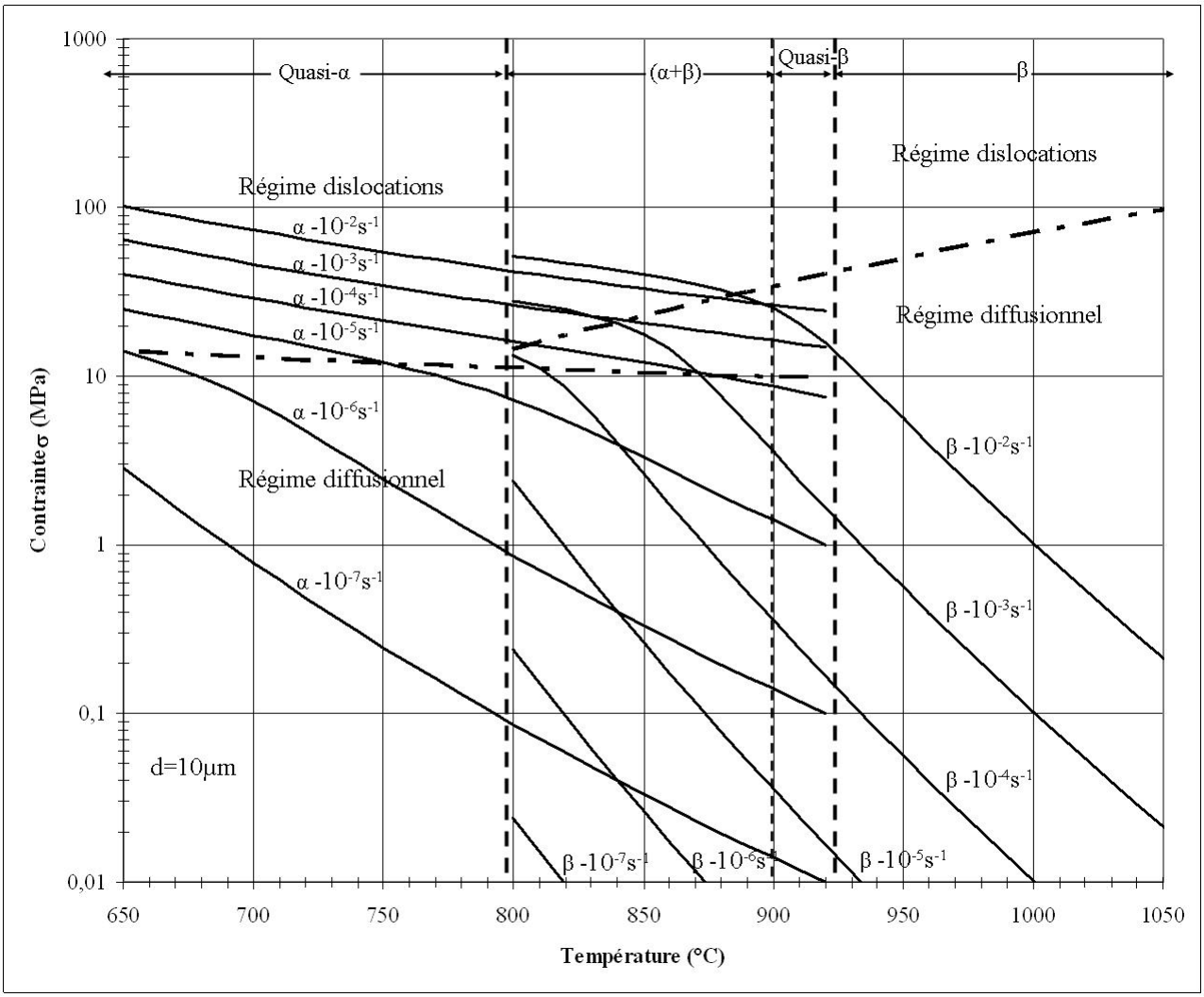


Figure 3.20 – *Carte de déformation (isovitesses) pour le modèle de fluage du M5® pour une taille de grains α et β de 10µm, avec extrapolation dans le domaine biphasé*

Phase	Régime de fluage	Exposant de Norton	Energie d'activation	Constante
α	Coble	$n_1 = 1$	$200kJ.mol^{-1}$	$2,7.10^7 K.s^{-1}$
	dislocations	$n_2 = 5$	$250kJ.mol^{-1}$	$1,2.10^5 K.s^{-1}$
β	Coble	$n_1 = 1$	$450kJ.mol^{-1}$	$4,5.10^{18} K.s^{-1}$
	dislocations	$n_2 = 4$	$180kJ.mol^{-1}$	$7.10^4 K.s^{-1}$ (avec $d_2 = 90\mu m$)

Tableau 3.7 – *Paramètres du modèle de fluage du M5® décrit par les équations 3.3, 3.4, 3.5, 3.6, 3.7, 3.8, 3.9, 3.10, 3.11 et 3.12*

3.2 Effet de la composition chimique sur le comportement en fluage

3.2.1 Etude bibliographique

3.2.1.1 Domaine monophasé α

Parmi les études référencées dans les tableaux 2.1, 2.2, 2.3, 2.4 et 2.5, quelques auteurs ont abordé l'effet des éléments d'alliage sur le comportement en fluage dans le domaine α ou quasi-α. En général, ils se sont basés sur la comparaison des résultats obtenus sur plusieurs alliages, provenant parfois d'autres études de la littérature. Les éléments d'alliage les plus étudiés sont l'étain et le niobium. Quelques résultats, plus rares, ont été obtenus sur des matériaux élaborés spécifiquement.

Bernstein (1967) a ainsi comparé ses résultats obtenus entre 520 et 620°C sur du zirconium faiblement allié et du Zircaloy-2, ainsi que ceux de Ardell (1964). Il observe dans le régime de fluage diffusionnel de Coble des vitesses de fluage entre 2 et 3 décades inférieures pour le Zy-2 par rapport au Zr (après prise en compte de l'effet de taille de grains) et explique cet écart par un effet global des éléments d'alliage (Sn-Fe-Cr-Ni) en solution solide, qui augmentent l'énergie d'activation du fluage diffusionnel au niveau des joints de grains (de $E_a \approx 112 kJ{\cdot}mol^{-1}$ pour le zirconium à $E_a \approx 178 kJ{\cdot}mol^{-1}$ pour le Zy-2). Malakondaiah et al. (1988), Prasad et al. (1992), Rama Rao (1998) ont entrepris une comparaison entre du Zr et du Zy-2 à taille de grains identique de $16\mu m$. Entre 510 et 730°C, le Zy-2 présente, après un régime transitoire plus long, des vitesses de fluage en régime permanent inférieures de quasiment deux décades. Les auteurs avancent également un effet des éléments d'alliage sur les énergies d'activation, notamment les précipités contenant du Cr aux joints de grains. En interprétant les énergies d'activation, une conséquence avancée par les auteurs est un changement de mécanisme de fluage entre celui de Coble pour le zirconium et de Nabarro-Herring pour le Zircaloy-2.

Fiala et al. (1991b) ont réalisé une comparaison entre des nuances de zirconium faiblement alliés mais présentant une légère variation de pureté (99,95% de pureté pour le zirconium employé par Ardell (1964), Bernstein (1967) contre 99,8% pour celui employé par Pahutová et Čadek (1973), Fiala et al. (1991b)). Entre 550 et 565°C, un facteur 2,5 sur les vitesses de fluage dans le régime diffusionnel de Coble est observé entre les nuances de zirconium. Les auteurs interprètent les écarts observés en partie par la présence de ségrégations microchimiques d'ions au niveau des joints de grains pour le zirconium le moins pur, des écarts pouvant également provenir des différences de protocole expérimental. Dans l'ensemble de ces études, l'exposant de Norton de 1, associé aux régimes de fluage diffusionnels, n'est pas modifié. Arzt et al. (1983) proposent des modèles de fluage diffusionnel prenant en compte ces effets d'éléments d'alliage par rapport au fluage des matériaux non alliés.

Les résultats sont plus nombreux dans la littérature en ce qui concerne le régime de fluage dislocations. Hayes et Kassner (2006) ont regroupé un certain nombre de résultats obtenus entre 300 et 850°C sur du zirconium et du Zircaloy-2 et 4. La figure 2.4 compare le comportement des alliages avec celui du zirconium et met ainsi en évidence pour le régime de fluage dislocations l'effet durcissant des éléments d'alliage présents dans les Zircaloys. L'exposant de Norton est légèrement différent selon les alliages (6,4 pour le zirconium, 4,8 pour le Zy-2 et 5 pour le Zy-4). Bernstein (1967) avait également noté cette tendance entre le zirconium et le Zy-2, les exposants de Norton étant respectivement dans les intervalles 6-7 et 4,5-5,5.

Luton (1971) a étudié en particulier l'effet de l'étain, élément de substitution en solution

solide, à l'aide d'alliages spécifiques Zr-Sn pour des teneurs massiques en étain allant jusqu'à 5%. L'effet le plus significatif a été observé à 825°C sous une contrainte de 20MPa : une augmentation de la teneur en Sn de 0,7% à 3% a pour effet une diminution de la vitesse de fluage d'un facteur 30. L'auteur avance que l'étain diminue l'énergie de défaut d'empilement dans le matériau, ce qui a pour conséquence d'augmenter la hauteur des obstacles au glissement des dislocations et donc de renforcer le matériau vis-à-vis de ce régime de fluage. En traction, Wadekar et al. (1991) ont retrouvé des résultats en accord jusqu'à 400°C pour des alliages Zr-Sn pour des teneurs massiques en étain comprises entre 0,5 et 8%. Pour les teneurs les plus élevées, cet effet provient également des précipités formés avec l'étain.

D'après Hunt et Foote (1977), mis à part l'étain, le titane et l'hafnium, les autres éléments de substitution sont peu solubles en phase α et ont tendance à former de gros précipités et ne consituent pas des obstacles aussi efficaces au glissement des dislocations. Néanmoins, Murty et al. (1995), Murty (2000b) ont comparé le comportement en fluage du Zy-4 et du Zr-1%Nb-1%Sn-0,2%Fe entre 500 et 600°C. L'addition de niobium rend le matériau plus résistant au fluage (environ 2 décades en vitesse de fluage) et les auteurs observent l'apparition d'un régime intermédiaire de fluage par glissement des dislocations au lieu du régime de fluage par montée des dislocations.

A des températures plus basses, Warda et al. (1973) ont étudié trois alliages à faibles teneurs en oxygène (22, 45 et 65ppm) entre 450 et 550°C. L'oxygène, en position interstitielle, permet de renforcer le matériau dès 45ppm d'environ une demi-décade en vitesse, après un régime transitoire anormal, en lien avec des phénomènes de vieillissement dynamique.

Pour des teneurs plus élevées en oxygène (de 900 à 1800ppm), Mardon et al. (2000) ont mesuré pour du M5® une diminution quasiment de moitié de la déformation diamétrale à 400°C après 240h de fluage sous une contrainte circonférentielle de 130MPa. Dans les mêmes conditions expérimentales, Charquet et al. (1998), Charquet (2000), Mardon et al. (2000) ont étudié l'effet du soufre pour le M5® ou Zr-1%Nb, le Zy-4 et le Zr-0,5Sn-0,6Fe-0,4V, pour de faibles teneurs (<40ppm). Celui-ci renforce assez nettement le matériau (déformation réduite de 75% avec 15ppm de S pour le M5®) par action du soufre en solution solide sur les dislocations car l'effet semble s'atténuer au-delà de sa limite de solubilité en phase α, qui se situe apparemment entre 10 et 20ppm. Si l'effet du fer n'est pas apparu significatif dans l'étude, l'accent est mis sur l'influence du procédé de fabrication du matériau qui est déterminant en ce qui concerne la précipitation et la dissolution des éléments d'alliage.

Ainsi, Brenner et al. (2002) ont étudié deux alliages Zr-1%Nb-O qui se différenciaient, à cause de procédés d'élaboration distincts, par une teneur finale en niobium en solution solide en phase α de 0,1%, le niobium restant se trouvant sous forme de précipités. Cette différence de teneur s'est traduite au niveau du comportement en fluage à 400°C sous une contrainte de 130MPa par une vitesse quatre fois plus importante pour l'alliage possédant le moins de niobium en solution, ce qui montre que le niobium en substitution renforce significativement le matériau en fluage. Pahutová et al. (1976b, a) ont également observé cet effet du niobium entre 350 et 550°C sur du zirconium contenant 0-0,5-2,5-4,5%Nb. Même si dans cette étude des effets de microstructure sont également à prendre en compte car les matériaux présentaient des microstructures de trempe (traitement préalable dans le domaine β), l'effet est surtout significatif entre 0 et 2,5%Nb.

Charit et Murty (2008) ont comparé des données bibliographiques notamment pour du zirconium pur, du Zr-0,5 et 1%Nb, entre 350 et 400°C. Ils concluent que les comportements des alliages Zr-0,5% et Zr-1%Nb sont proches, avec le même exposant de Norton de 3, et donc que

l'effet du niobium sature en-deçà de la limite de solubilité en phase α, même si de plus fortes teneurs en niobium n'ont néanmoins pas été prises en compte. D'après les auteurs, c'est un rayon atomique 9% supérieur à celui du Zr qui est à l'origine de cet effet, par interaction élastique avec les dislocations. Comme proposé par Murty et al. (1995), Murty (2000b), le niobium favorise plutôt le glissement des dislocations par rapport à leur montée. Charit et Murty (2008) ont également analysé des résultats pour du Zy-4, du Zr-1%Sn-1%Nb-0,2%Fe ou encore du Zr-3%Sn-1%Mo-1%Nb. Malgré un rayon atomique plus petit que celui du niobium (3% contre 9% de plus que le zirconium), Charit et Murty (2008) avancent que l'étain renforce aussi efficacement que le niobium. La présence à la fois de niobium et d'étain (Zhou et al. (2004)) voire de molybdène (de rayon atomique 13% supérieur à celui du zirconium) assure la meilleure tenue au fluage, à travers un effet de solution solide pour les éléments dissous, mais aussi un effet des particules pour les éléments précipités. Les auteurs ont remarqué que les alliages ne contenant pas de niobium ont un exposant de Norton supérieur ou égal à 4, au lieu de l'exposant de 3, indépendamment de la teneur en niobium.

D'après Pahutová et al. (1985) qui ont étudié un grand nombre d'alliages Zr-Sn-Nb-Mo entre 400 et 550°C, toujours sur des microstructures de trempe, l'étain est l'élément le plus soluble parmi les trois et agit donc essentiellement en solution solide en diminuant l'énergie de défaut d'empilement, en accord avec Luton (1971). McInteer et al. (1989) proposent la même analyse à partir de ces essais à 400°C pour du Zy-4 de teneur en étain variant de 1,22 à 1,54%. Le zirconium et le molybdène agiraient quant à eux en solution solide par interaction élastique avec les dislocations, étant donnés leurs rayons atomiques, et également sous forme de précipités. Grâce à une meilleure solubilité de l'étain, Lee et al. (2009) qui ont comparé le comportement d'alliages détendus de Zy-4 et Zr-Sn-Nb-Fe entre 450 et 500°C pour des contraintes comprises entre 80 et 150MPa, concluent également que l'étain en solution solide (0,36% massique de plus dans le Zy-4) est plus efficace que le niobium (1% massique de plus dans le Zr-Sn-Nb-Fe), en solution solide et sous forme de précipités β_{Nb} et intermétalliques.

Kim et al. (2006) ont comparé le renforcement d'alliages de zirconium par le niobium, le cuivre et le fer (Zr-0,3%Cu, Zr-0,3%Fe, Zr-0,5%Nb-0,3%Cu et Zr-0,5%Nb-0,3%Fe) entre 100 et 140MPa pour des températures de 280-330°C. C'est le niobium qui apparaît le meilleur obstacle au glissement des dislocations devant respectivement le Fe et le Cu, ce qui est cohérent avec les caractéristiques de diffusion des différents éléments. Les auteurs n'ont pas relevé de modification significative des exposants de Norton en fonction des alliages (entre 5 et 5,8). **Dans l'ensemble de ces études concernant le régime de fluage dislocations, les principaux cas de changement d'exposant de Norton sont associés non pas à des variations de la teneur en un élément d'alliage mais plutôt à la nature des éléments d'alliage.**

3.2.1.2 Domaine monophasé β

Contrairement au domaine α, les limites de solubilité sont nettement plus élevées dans le domaine β et les éléments d'alliage se retrouvent rapidement en condition de « quasi-équilibre » en solution solide. Ainsi, d'après Hunt et Foote (1977), le comportement du Zr-2,5%Nb se distingue franchement (deux décades en vitesse) de celui du Zy-4 après la transformation de phases à partir du moment où les éléments d'alliage, présents en plus grande quantité dans le Zr-2,5%Nb, se dissolvent, en l'occurence au-delà de 900°C, dans le domaine β.

Pour des nuances de zirconium moins alliées que le Zr-2,5%Nb, peu d'effets des éléments d'alliage sont reportés dans la littérature. Evans et Knowles (1978) ont réalisé une comparaison entre les études pour du zirconium (Ardell (1964)), pour du Zy-2 (Burton et al. (1978), Clay et

Stride (1978)) et pour du Zy-4 (Clendening (1975)). Peu d'écarts apparaissent dans le domaine 1000-1500°C, ce qui traduit un faible effet des éléments d'alliage (Sn-Fe-Cr-Ni).

Sous une sollicitation de compression pour du Zy-2 enrichi en oxygène (1260 et 4180ppm), une diminution de la vitesse de seulement 20% est mesurée par Rizkalla et al. (1979), ce qui n'est pas significatif par rapport aux incertitudes de l'essai, d'après les auteurs. Chakravartty et al. (2007) n'observent pas de différence de comportement pour du Zr-1%Nb-1%Sn par rapport aux autres alliages de zirconium lors de la compression à chaud jusqu'à 1050°C.

Il semblerait donc que seules de fortes variations de teneurs en éléments d'alliage auraient une réelle influence sur le comportement en fluage à haute température de la phase β.

3.2.1.3 Domaines biphasé $(\alpha + \beta)$ et quasi-β

Dans le domaine biphasé, la composition chimique a un premier effet sur les températures de transformation de phases et donc sur le comportement en fluage, les phases α et β n'ayant *a priori* pas le même comportement. C'est l'effet qui est observé en traction par Garde et al. (1978) pour des Zy-2 et 4 aux environs de 850°C. La diminution de résistance au fluage observée pour du Zy-4 et du M5® hydruré (de 100 à 1000ppm) par Brachet et al. (2002) sur le dispositif EDGAR (Forgeron et al. (2000)) est également attribuée à cet effet.

Dans le Zy-4 biphasé, Chung et al. (1975) attribuent la meilleure résistance mécanique de la phase α à la teneur plus importante en oxygène par rapport à la phase β. Rizkalla et al. (1979) ont étudié le comportement en compression du Zy-2 enrichi en oxygène (de 1200 à 12000ppm) pour des températures comprises entre 1000 et 1200°C, ce qui correspond au domaine biphasé, par effet α-gène de l'oxygène. Le matériau le plus riche en oxygène, à 1000°C, est majoritairement α (85%). Les auteurs attribuent le comportement observé à celui de la phase α (contenant 14300ppm d'oxygène alors que les 15% de phase β en contiennent 1300ppm). Par comparaison avec un comportement extrapolé à 1000°C pour le Zy-2, **un effet durcissant de l'oxygène est mis en évidence. Pour le domaine biphasé à proprement parler, une modélisation prenant en compte la fraction volumique et supposant une déformation homogène de chaque phase permet de mettre en évidence un renforcement de chaque phase de l'ordre de 7% pour 1000ppm d'oxygène en solution solide.**

3.2.2 Mise en évidence du contraste « micro-chimique » dans le domaine biphasé

L'étude bibliographique a montré que des variations de teneurs en niobium et oxygène sont susceptibles de modifier le comportement en fluage du matériau, au même titre que l'effet de taille de grains.

Les diagrammes binaires Zr-Nb (figure 1.8) et Zr-O (figure 1.7) prédisent à l'équilibre dans le domaine biphasé par rapport à la composition nominale du M5® :
- de la phase α enrichie en O et appauvrie en Nb
- et inversement de la phase β enrichie en Nb et appauvrie en O.

Ce paragraphe a pour objet de mettre en évidence ce contraste « micro-chimique » entre les phases α et β dans le domaine biphasé dans les conditions expérimentales de « quasi-équilibre ».

Cette analyse sert de base à la définition de matériaux à teneurs spécifiques en niobium et oxygène, représentatifs de chaque phase dans le domaine biphasé, afin d'en étudier l'effet sur le comportement en fluage.

Bethune et Williams (1969) ont mené des analyses microsonde pour du Zr-2,5%Nb(-0,137%O) ayant subi des recuits entre 600 et 850°C dans le domaine biphasé. Les résultats des analyses sont regroupés figure 3.21 sur un diagramme pseudo-binaire Zr-Nb. Les concentrations de « quasi-équilibre » en Nb sont atteintes rapidement dans la phase α et pour les températures supérieures à 850°C dans la phase β alors que pour les températures plus basses, des recuits longs sont nécessaires. L'équilibre est atteint par exemple après le recuit de 672h à 600 et 700°C.

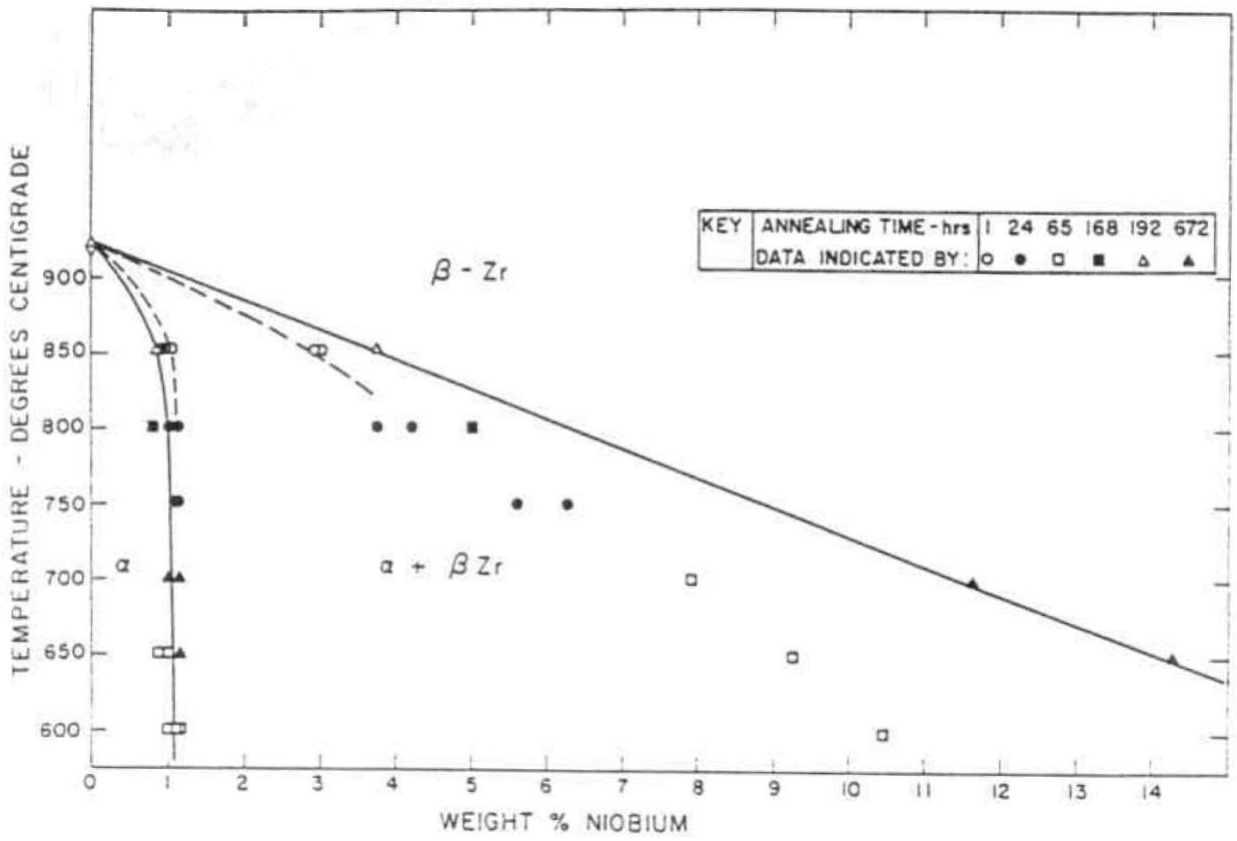


Figure 3.21 – *Diagramme pseudo-binaire Zr-Nb déterminé à partir des analyses microsonde d'un alliage Zr-2,5%Nb recuit dans le domaine biphasé (Bethune et Williams (1969))*

Chung et al. (1975), Garde et al. (1978) ont également construit avec des Zircaloys contenant diverses teneurs en oxygène un diagramme pseudo-binaire Zr-O à partir d'analyses métallographiques, de mesures de micro-dureté et de suivi de résistance (figure 3.22).

Une approche analogue à celle de Bethune et Williams (1969) a été utilisée au cours de notre étude. Etant données les difficultés à mesurer les teneurs en oxygène de la même manière (faibles teneurs et variations), seules les teneurs en niobium des phases α et β du M5® dans le domaine biphasé sont étudiées expérimentalement à l'aide d'une microsonde électronique de Castaing, par spectrométrie à dispersion de longueur d'onde (WDS).

Les échantillons ayant subi les essais de fluage dans le domaine biphasé ont été analysés en priorité. Les teneurs en niobium ont été mesurées à partir de la raie L_α du Nb. La poire d'interaction avec la matière est de l'ordre du μm^3 (une tension d'accélération de 15kV et un

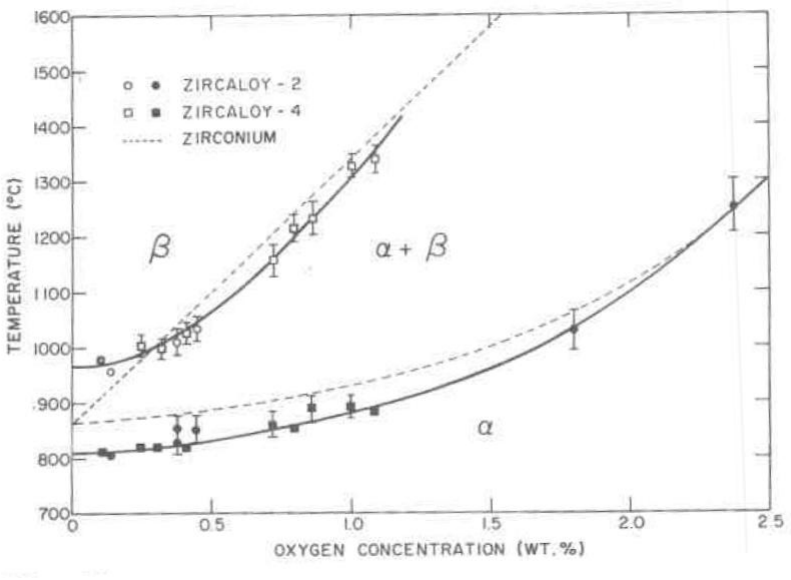


Figure 3.22 – *Diagramme pseudo-binaire Zr-O déterminé à partir des analyses métallographiques et de résistivité de Zircaloys (Chung et al. (1975), Garde et al. (1978))*

courant de sonde de 10nA ont été employés pour avoir cette résolution et des temps de comptage raisonnables).

La figure 3.23 présente les cartographies de concentration en niobium des échantillons ayant flué entre 800 et 900°C. Etant donnée la résolution spatiale de la technique, de l'ordre du micromètre, le pas des cartographies est fixée à $0{,}3\mu m$ sur une zone de $60\mu m$x$60\mu m$ (soit 200pixels x 200pixels). De plus, pour des raisons de temps de manipulation, le temps d'acquisition par point est de 500ms. Par conséquent, les cartographies présentées ne doivent être analysées que d'un point de vue qualitatif, les zones les plus claires représentant les plus fortes concentrations en niobium.

D'un point de vue qualitatif, on observe sur la figure 3.23 des teneurs en Nb variables. Les plus faibles teneurs (zones sombres) correspondent sur les cartographies à de la phase α (zones claires sur les micrographies optiques). Inversement, les plus fortes teneurs en niobium (zones claires) correspondent à l'ex-phase β (zones en lattes sur les micrographies optiques). Plus la température est élevée, plus la fraction de zone riche en niobium est importante, traduisant la progression de la transformation de phases $\alpha \rightarrow \beta$.

La résolution de la méthode n'est néanmoins pas suffisante, notamment au début de la transformation de phases, pour distinguer les lisérés de phase β intergranulaires α et *a fortiori* les germes intragranulaires.

Une analyse plus quantitative a ensuite été menée sur une statistique de 600 points par échantillon, séparés de $1\mu m$ pour éviter les problèmes liés à la pollution de la surface des échantillons. Un temps d'acquisition par point de 20s est choisi. En plus du pic, le fond continu est mesuré pour chaque point ; étant fonction de la teneur locale en niobium, un fond continu moyen ne peut être employé pour réduire le temps de manipulation.

Sur l'ensemble des points de mesure, la teneur moyenne des échantillons est de 0,98% de niobium, proche des 1% attendus. On a considéré que pour chaque échantillon, les extrema des mesures correspondent aux teneurs d'une zone ne contenant qu'une seule phase, les maxima

pour l'ex-phase β et les minima pour la phase α. Si la résolution n'est pas suffisante, ces valeurs représentent les mesures les plus proches des teneurs réelles. Les valeurs intermédiaires correspondent quant à elles aux zones biphasées ($\alpha + \beta$).

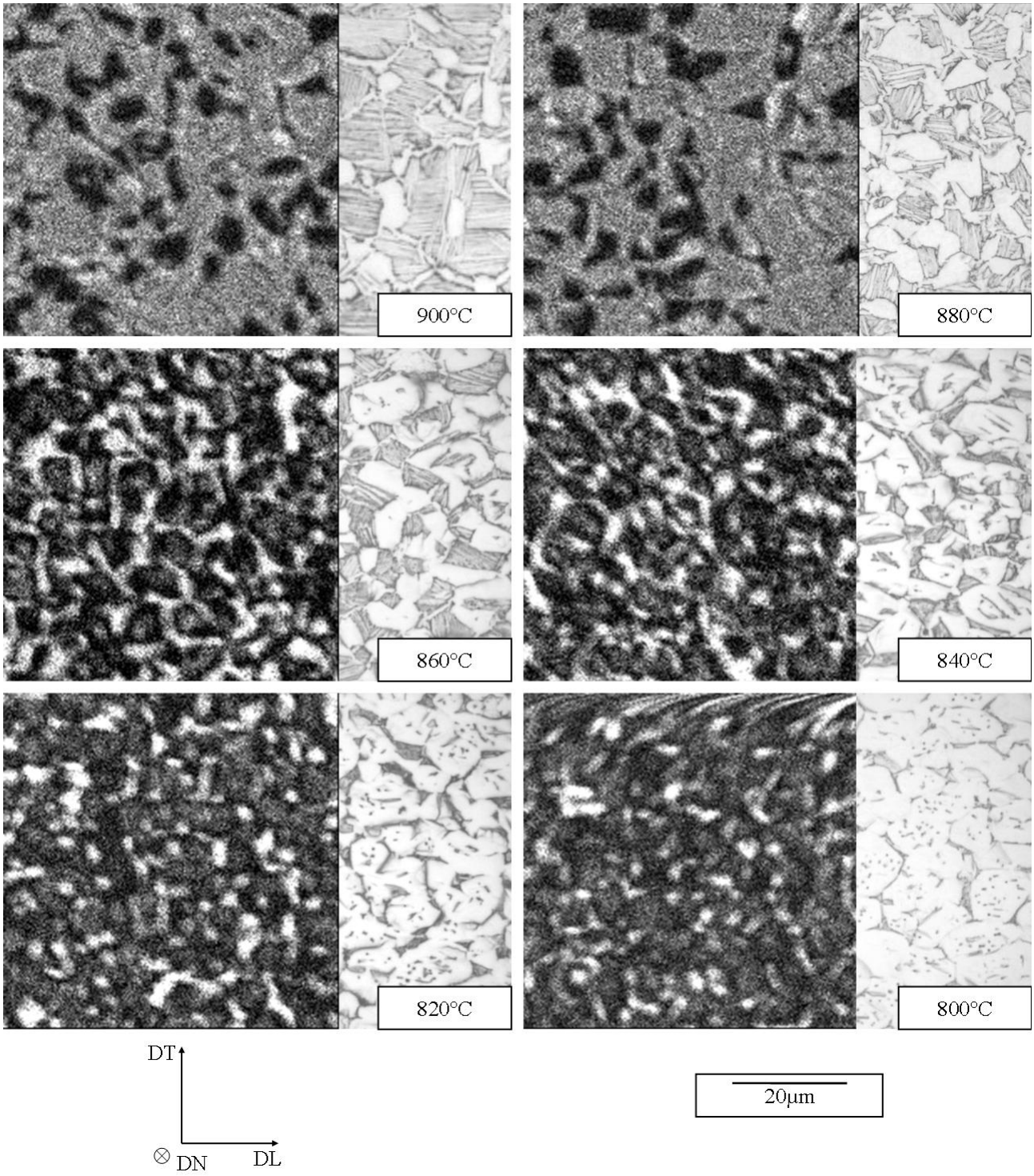


Figure 3.23 – *Cartographie X de concentration en Nb (microsonde, zones claires riches en Nb) et micrographies optiques (lumière blanche) du M5® après essais de fluage dans le domaine biphasé ($\alpha + \beta$) et refroidissement four coupé (zone utile des éprouvettes)*

Ces valeurs extrêmes sont reportées sur la figure 3.24. Il s'agit d'un diagramme pseudo-binaire Zr-Nb(-1400ppmO) tracé à partir de calculs thermodynamiques (Thermocalc^{TM} + Zircobase Dupin et al. (1999)). Pour la phase α, les valeurs expérimentales obtenues sur les échan-

tillons de fluage sont proches des valeurs calculées à l'équilibre. Des écarts plus importants sont observés pour la phase β. Des teneurs légèrement supérieures sont trouvées de 840 à 900°C. Au début de la transformation de phases (800 et 820°C), au contraire, des teneurs inférieures sont mesurées.

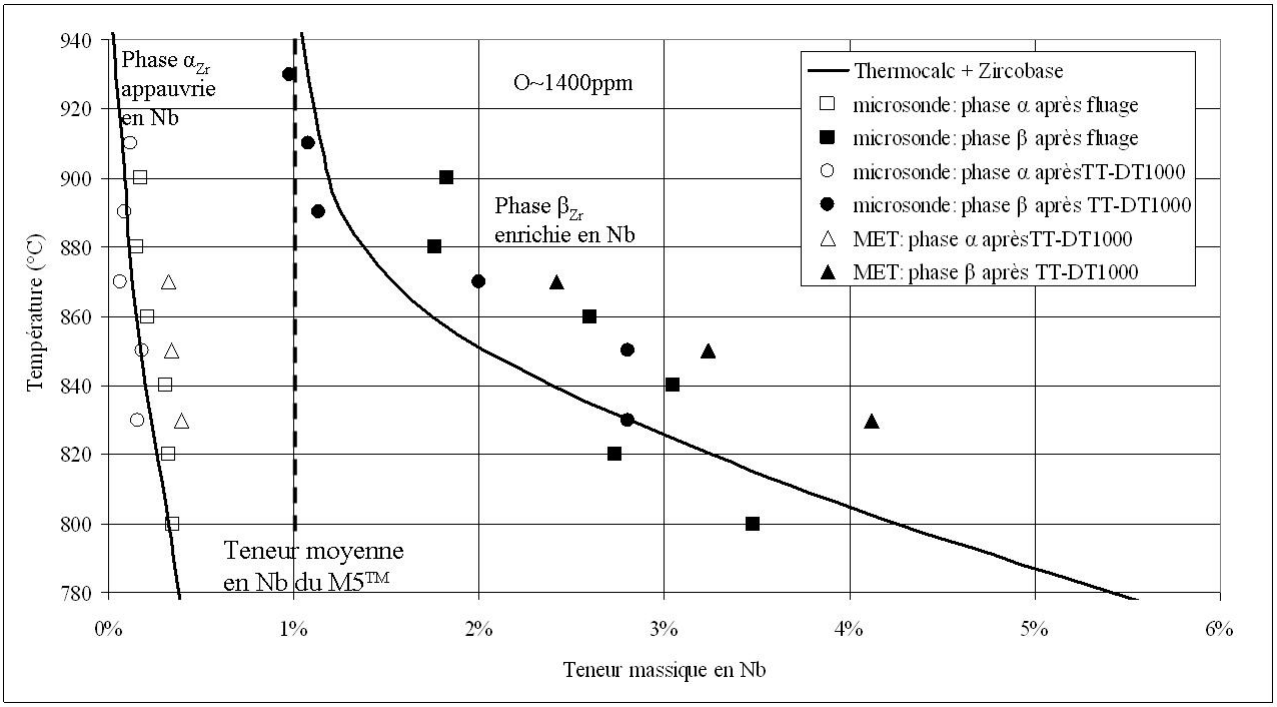


Figure 3.24 – *Diagramme pseudo-binaire Zr-Nb (1400ppm O) déterminé par analyses microsonde et par microscopie électronique en transmission du M5® après essais de fluage et traitements thermiques dans le domaine biphasé ($\alpha + \beta$) et par calcul thermodynamique (Thermocalc^{TM} + Zircobase Dupin et al. (1999))*

Deux sources d'écarts ont été envisagées sur ces analyses. D'une part, la résolution de la microsonde n'est pas forcément suffisante pour que la poire d'interaction n'analyse qu'une seule phase par point. Dans ce cas, les valeurs trouvées devraient sous-estimer le contraste « microchimique » entre phases. C'est cette hypothèse que l'on peut avancer pour les températures de 800 et 820°C, pour lesquelles les teneurs en niobium seraient sous-estimées et dans ce cas plus proches des teneurs à l'équilibre. D'autre part, les échantillons analysés ont été refroidis à partir du domaine biphasé « four coupé » (vitesses de refroidissement de l'ordre de 300°C/min), ce qui n'est peut-être pas suffisant pour « geler » globalement les compositions chimiques à haute température de chaque phase.

Des analyses complémentaires ont donc été menées sur des échantillons traités thermiquement sous vide à l'aide d'un dilatomètre de trempe. Les traitements thermiques subis consistent en un chauffage jusqu'au domaine biphasé et en un maintien isotherme durant 2h (à 830-850-870 et 890°C), suivis d'une trempe hélium (vitesse de refroidissement d'environ 200°C/s). La durée du maintien doit permettre d'atteindre les mêmes conditions de « quasi-équilibre » que pour les essais de fluage.

Des analyses microsonde ont été menées sur l'ensemble de ces échantillons en suivant le même protocole expérimental. En complément, trois lames minces ont été prélevées à partir des échantillons traités à 830, 850 et 870°C afin de les analyser en microscopie électronique en

transmission, ainsi que par spectrométrie à dispersion de longueur d'onde (WDS).

La figure 3.25 présente une micrographie de l'échantillon traité à 830°C. La phase α, appauvrie en niobium, apparaît homogène et sans gros précipités, contrairement aux observations faites dans le domaine quasi-α (figure 2.1). L'ex-phase β est plus hétérogène de par sa structure de trempe composée de fines lattes de phase α entourées de lisérés de phase β métastable, très riches en niobium (teneurs en Nb mesurées de 5 à 10%). Afin d'obtenir une teneur moyenne en niobium pour chacune des phases malgré l'échelle d'observation, les analyses quantitatives ont été effectuées sur une dizaine de fenêtres d'analyse (de quelques micromètres carrés) puis moyennées.

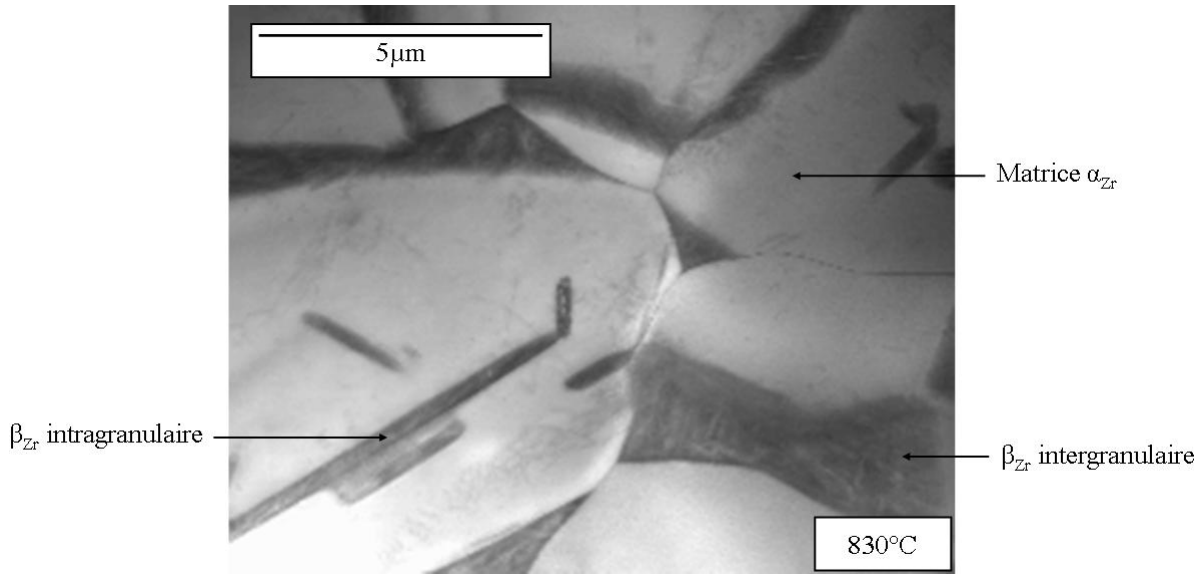


Figure 3.25 – *Micrographie électronique en transmission (champ clair) du M5® après traitement thermique dans le domaine biphasé ($\alpha + \beta$) à 830°C (refroidissement par trempe à l'hélium)*

Les résultats de l'ensemble des analyses complémentaires sont reportés sur le diagramme pseudo-binaire Zr-Nb (figure 3.24). Les analyses microsonde sont en bon accord avec celles réalisées sur les échantillons de fluage, ce qui montre que la vitesse de refroidisssement « four coupé » était suffissante pour « geler » la répartition chimique par phase du niobium telle qu'elle existait à haute température. Pour les échantillons traités à 850 et 870°C, les analyses réalisées par microscopie en transmission confirment également les résultats obtenus avec la microsonde. Pour celui traité à 830°C, une teneur supérieure a été relevée, grâce à la résolution spatiale de la méthode.

L'ensemble des analyses a donc permis de mettre en évidence expérimentalement un contraste « micro-chimique » en niobium proche de celui attendu à l'équilibre, par rapport à la teneur moyenne de 1%. A 860°C, par exemple, la phase β est nettement enrichie en niobium, de l'ordre de 2,5%, alors que la phase α est appauvrie, et en contient de l'ordre de 0,2%.

Pour l'oxygène, la figure 3.26 présente le diagramme pseudo-binaire Zr-O(-1%Nb) déterminé par calcul thermodynamique (Thermocalc^{TM} + Zircobase Dupin et al. (1999)). Le contraste « micro-chimique » en oxygène est inverse, par rapport à la teneur moyenne de 0,14%. A 860°C, par exemple, c'est la phase α qui est nettement enrichie en oxygène, de l'ordre de 0,27%, alors que c'est la phase β qui est appauvrie, de l'ordre de 0,03%.

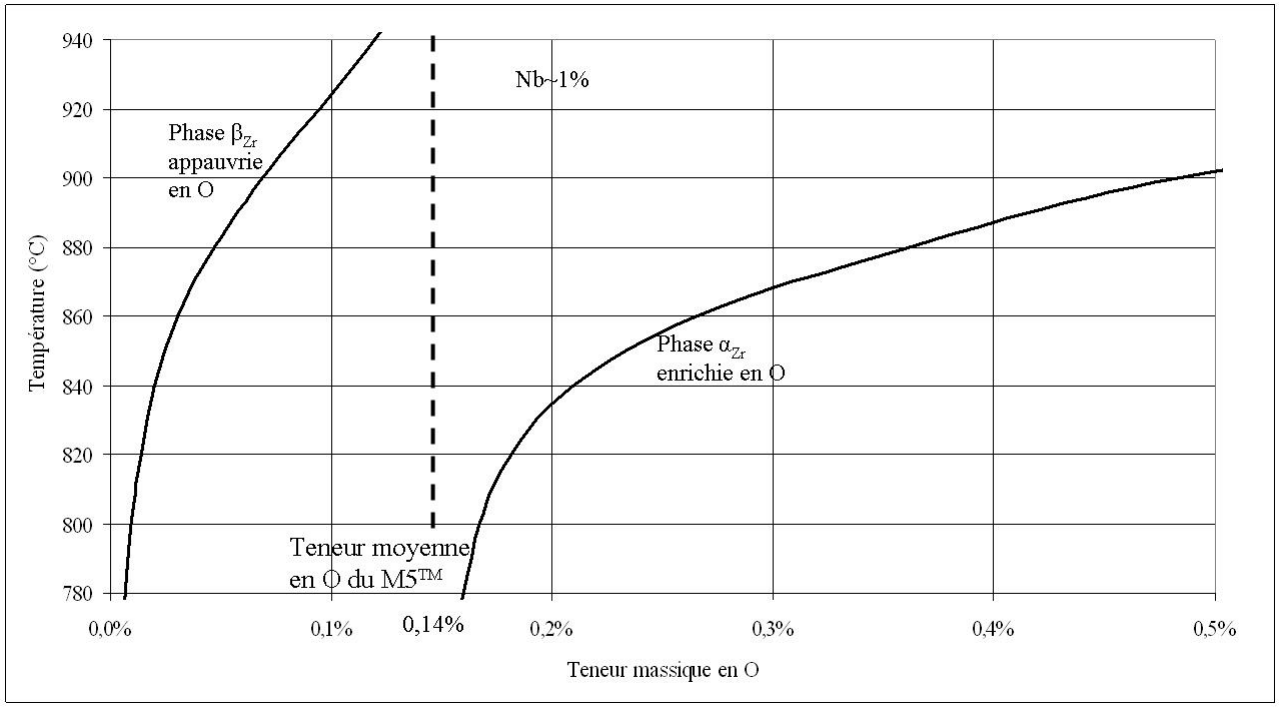


Figure 3.26 – *Diagramme pseudo-binaire Zr-O (1% de Nb) déterminé par calcul thermodynamique (Thermocalc^{TM} + Zircobase Dupin et al. (1999))*

A partir des analyses expérimentales (pour le niobium) et des calculs thermodynamiques (pour l'oxygène), des compositions chimiques en Nb et O représentatives de chaque phase dans le domaine biphasé peuvent être définies. A 860°C, température où les fractions volumiques de chaque phase seraient similaires ($\approx$ 50%), les phases sont caractérisées par des teneurs en niobium et oxygène récapitulées dans le tableau 3.8.

phase	Nb (mesuré)	O (calculé)
β	2,5%	0,03%
α	0,2%	0,27%

Tableau 3.8 – *Composition chimique en niobium et oxygène représentative de chaque phase dans le domaine biphasé à 860°C (pourcentages massiques)*

3.2.3 Matériaux à teneur spécifique en niobium et oxygène

3.2.3.1 Matériaux modèles représentatifs de chaque phase dans le domaine biphasé

Des matériaux modèles représentatifs de chaque phase dans le domaine biphasé ont été élaborés spécifiquement pour cette étude au Laboratoire de Technologie des Matériaux Extrêmes (Service des Recherches Métallurgiques Appliquées, CEA). Trois alliages ont été considérés : deux alliages représentatifs respectivement de la phase α et de la phase β et un troisième, servant de référence, se rapprochant de la composition en niobium et oxygène du M5®. Ce troisième alliage a pour intérêt d'avoir subi le même procédé de fabrication que les deux autres

alliages modèles, mais de posséder une composition chimique en niobium et oxygène proche du matériau M5®, afin de s'affranchir d'un éventuel artefact lié au procédé de fabrication. Les teneurs en niobium et oxygène visées pour les deux premiers alliages sont donc celles du tableau 3.8. Les désignations utilisées pour ces matériaux dans la suite de ce chapitre seront les suivantes :

- pseudo-M5 pour le matériau se rapprochant de la composition moyenne en niobium et oxygène du M5®,
- représentatif-β pour le matériau se rapprochant de la composition en niobium et oxygène de la phase β à 860°C,
- représentatif-α pour le matériau se rapprochant de la composition en niobium et oxygène de la phase α à 860°C.

Afin que la composition en impuretés soit la même pour ces trois alliages, le même grade de zirconium est utilisé comme base de départ pour toutes les élaborations. La teneur en oxygène finale est obtenue par ajout de zircone. Par conséquent, la teneur minimale, obtenue sans addition de zircone, est celle du zirconium de base, à condition d'éviter toute pollution lors de l'élaboration. Du zirconium grade D, d'origine Cézus (AREVA NP), a été employé. Sans atteindre la teneur réelle en oxygène pour la phase β, cela a permis de viser des teneurs en oxygène inférieures à 500-600ppm. Des teneurs en fer analogues pour les trois alliages, d'environ 300ppm comme pour le M5®, ont été visées.

L'élaboration a été menée en quatre étapes :

- 4 fusions à l'arc en creuset froid du Zr grade D et des additifs spécifiques, avec des traitements thermiques d'homogénéisation menés sous vide à 1100°C pendant 30min. En sortie de fusion, des largets d'environ 260g et 13mm d'épaisseur sont obtenus (figure 3.27) ;
- usinage de la surface des largets par fraisage jusqu'à une épaisseur d'environ 10mm, ce qui permet d'éliminer la pollution surfacique éventuelle et d'obtenir une surface adaptée au laminage ;
- laminage à chaud (700°C) jusqu'à une épaisseur de 5mm ;
- laminage à froid jusqu'à l'épaisseur la plus proche possible des 1,18mm de la tôle de M5® de notre étude, avec des recuits, intermédiaires et final, sous vide, de 5h à 580°C.

La figure 3.27 présente les produits plats finaux. Le laminage à froid a pu être mené pour les matériaux pseudo-M5 et représentatif-β jusqu'à une épaisseur de 2mm, ce qui a permis de prélever trois éprouvettes de fluage de chaque alliage dans la direction de laminage. **Le matériau représentatif-α** a été laminé jusqu'à une épaisseur de 4mm mais **s'est avéré impropre aux essais mécaniques** (fissures observables à l'oeil nu). **Aucune éprouvette de cet alliage n'a donc pu être usinée**. C'est vraisemblablement l'oxygène, en forte quantité et pas nécessairement réparti de manière homogène, qui a empêché le bon déroulement du laminage pour cette nuance. Il pourra être envisagé pour élaborer un tel alliage de ne réaliser l'enrichissement en oxygène qu'*a posteriori* par des traitements d'oxydation et d'homogénéisation, à mettre au point en se basant sur ceux réalisés par Anthony Stern (2007), ce qui sort du cadre de cette étude.

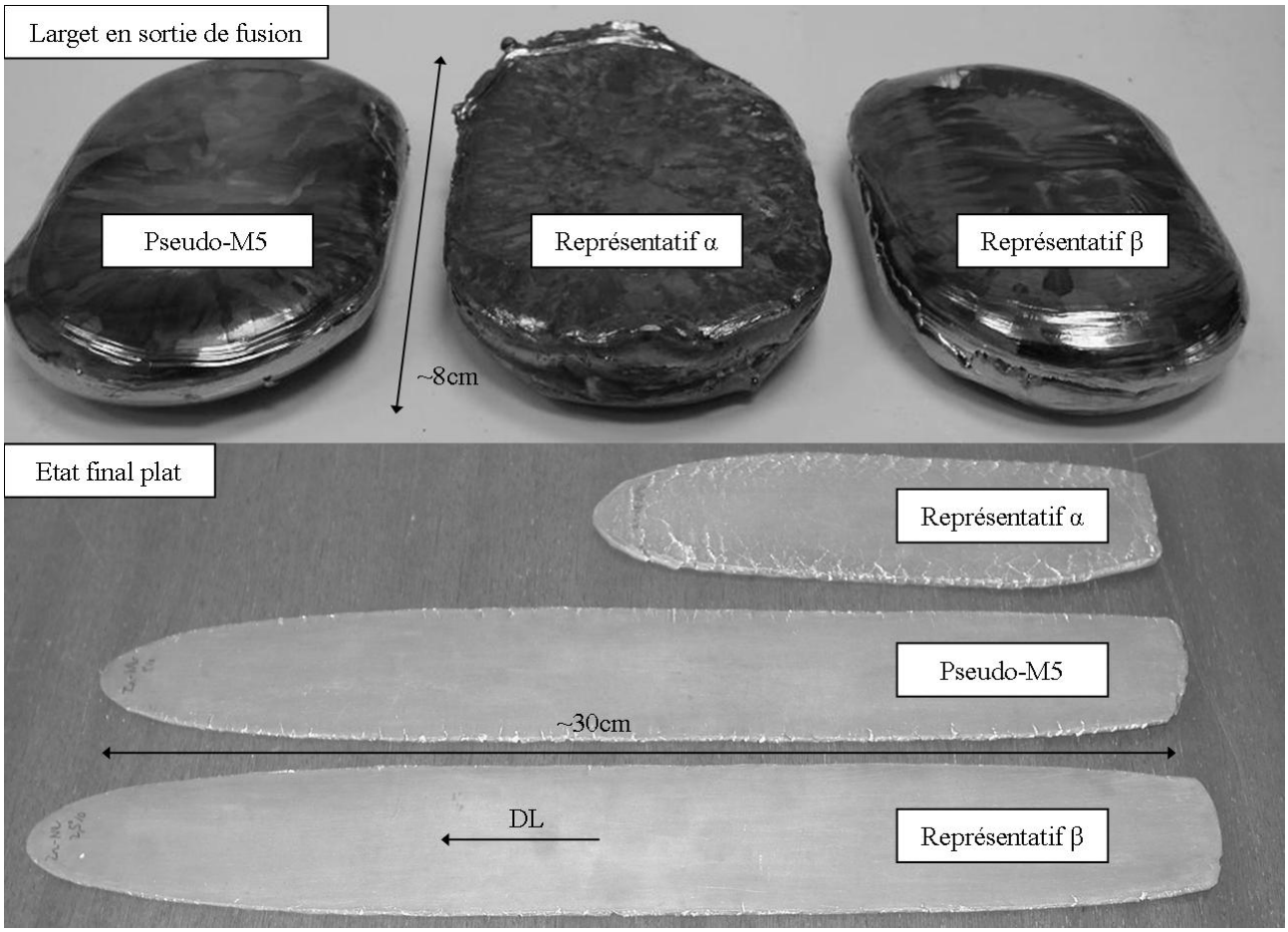


Figure 3.27 – *Matériaux modèles représentatifs de chaque phase dans le domaine biphasé en cours et fin d'élaboration (Laboratoire de Technologie des Matériaux Extrêmes, Service de Recherches Métallurgiques Appliquées, CEA)*

Le tableau 3.9 présente les analyses chimiques effectuées sur les matériaux modèles finaux. Les teneurs en niobium et fer ont été analysées par Spectrométrie d'Emission Plasma (SEP) et celles en oxygène par Fusion Réductrice et Absorption Infrarouge (FRIR). Pour les trois alliages, la teneur en étain est inférieure à 50ppm. La matériau pseudo-M5 ne possède pas exactement la composition visée. la teneur en niobium est sensiblement plus faible que celle du M5® alors que la teneur en oxygène est plus élevée. Le matériau représentatif-β présente une composition chimique satisfaisante, notamment en oxygène, malgré une teneur en niobium légèrement plus faible que prévu. La composition chimique du matériau représentatif-α était également conforme aux attentes.

Les analyses de micro-dureté dans l'épaisseur de la tôle n'ont pas révélé d'hétérogénéité chimique pour les matériaux pseudo-M5 et représentatif-β. Pour le matériau représentatif-α, un gradient de dureté a été mis en évidence, ce qui pourrait expliquer les problèmes de mise en forme rencontrés. En effet, le gradient de dureté pourrait être représentatif d'un gradient en teneur en oxygène (figure 1.17), donc de la présence de zones très riches en oxygène et très peu ductiles.

	Matériau	pseudo-M5	représentatif-β	représentatif-α
Nb	visée	0,94%	2,5%	0,2%
	obtenue	0,94%	2,25%	0,19%
O	visée	0,14%	0,03%	0,27%
	obtenue	0,162%	0,043%	0,28%
Fe	visée	0,03%	0,03%	0,03%
	obtenue	0,02%	0,02%	0,02%

Tableau 3.9 – *Compositions chimiques visées et obtenues en principaux éléments d'alliage des matériaux modèles représentatifs de chaque phase dans le domaine biphasé (pourcentages massiques)*

Les textures à mi-épaisseur des matériaux pseudo-M5 et représentatif-β ont été analysées par la technique de diffraction des rayons X (figures 3.28 et 3.29) afin de les comparer à la texture initiale du M5® (figure 1.6).

Les axes $\underline{c}$ sont inclinés dans le plan (DN,DT) entre 15° et 30° de DN (environ 24° pour le pseudo-M5 et 28° pour le représentatif-β[3] contre 24° pour le M5®). Les normales aux plans prismatiques (11.0) sont également orientées majoritairement suivant la direction de laminage DL. On retrouve globalement donc dans les deux cas des textures classiques de laminage à froid de produits plats recristallisés, donc assez comparables à celle du M5®. On ne s'attend donc pas à un effet de texture sur la différence de comportement en fluage de ces matériaux puisque dans tous les cas les éprouvettes sont prélevées dans la direction DL.

[3]Une légère dissymétrie de texture a été observée au niveau de la texture brute pour le matériau représentatif-β pouvant être liée à un défaut de prélèvement dans la tôle laminée, voire un polissage de biais par rapport au plan de la tôle

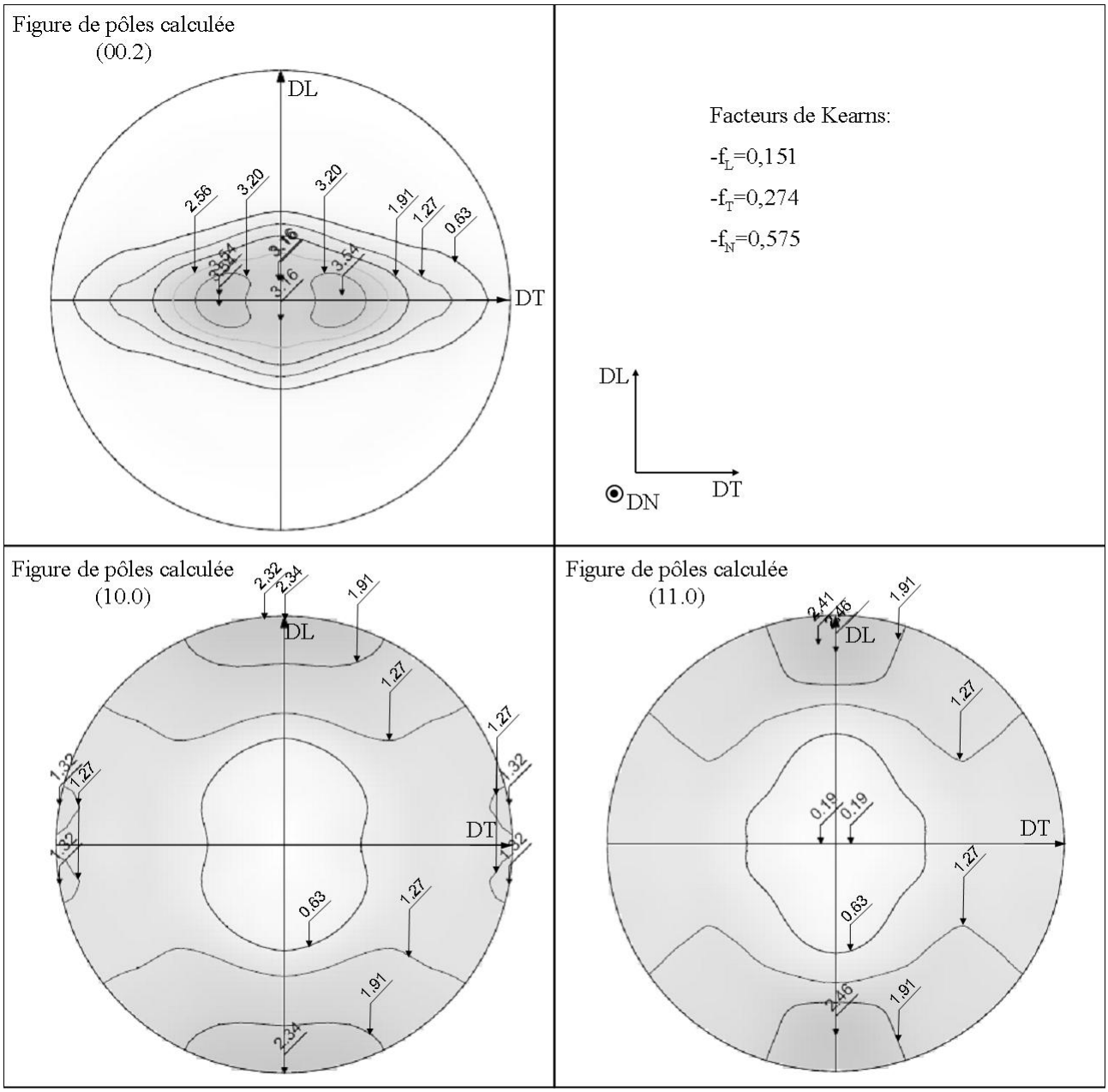


Figure 3.28 – *Figures de pôles (00.2), (10.0) et (11.0), à mi-épaisseur, de la tôle de matériau modèle pseudo-M5*

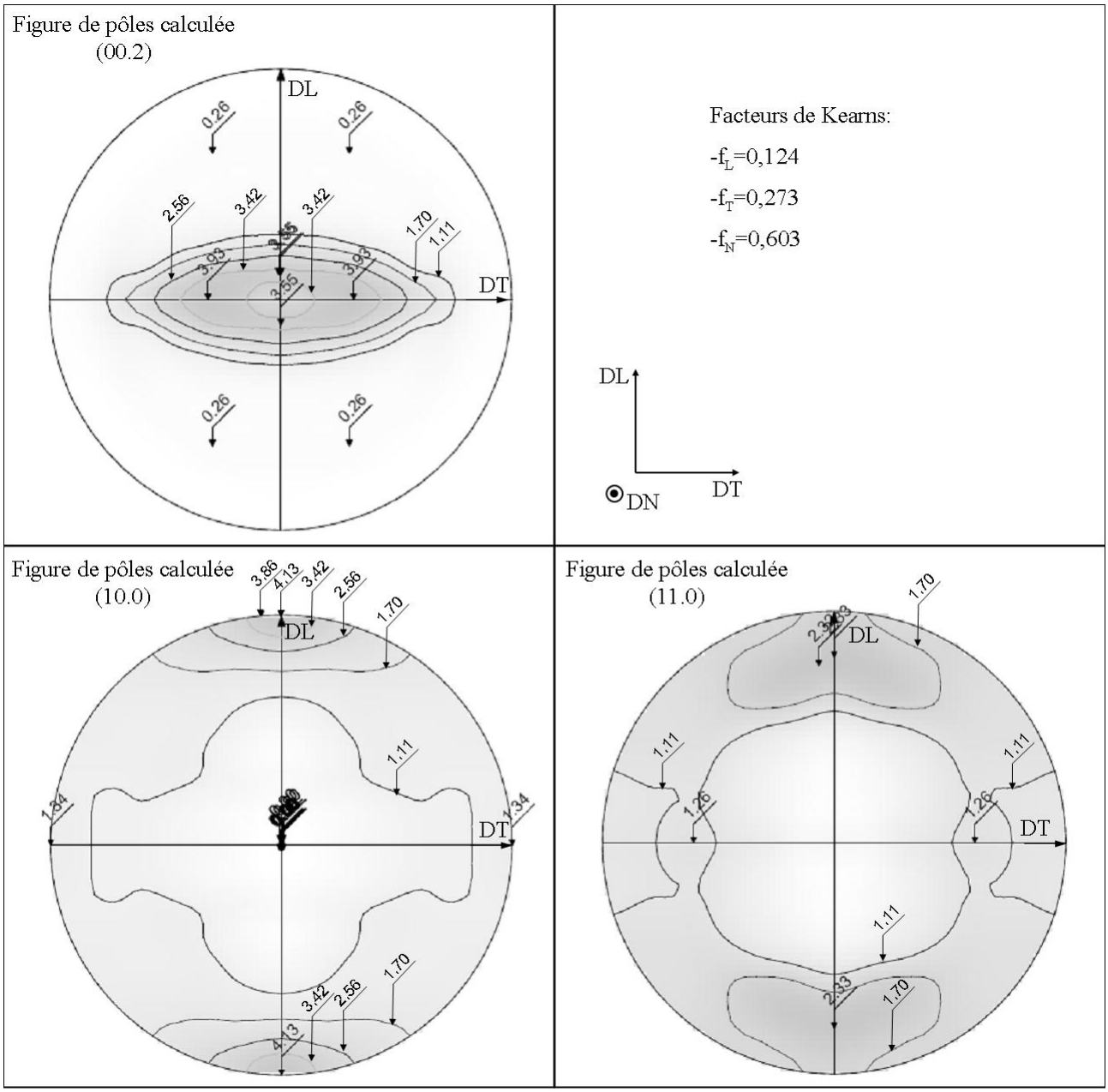


Figure 3.29 – *Figures de pôles (00.2), (10.0) et (11.0), à mi-épaisseur, de la tôle du matériau modèle représentatif-β*

3.2.3.2 Autres matériaux complémentaires

Des alliages complémentaires Zr-Nb-O, à différentes teneurs en niobium, sont également considérés afin d'enrichir la base de matériaux disponibles :

- un alliage Zr-0,55%Nb étudié dans le cadre de la thèse de Toffolon (2000). Cet alliage se présente sous la forme d'une tôle recristallisée (grains α équiaxes de taille moyenne $8\mu m$) de 3mm d'épaisseur. Deux éprouvettes de fluage ont été prélevées dans la direction de laminage ;
- un alliage Zr-2,5%Nb également étudié dans le cadre de la thèse de Toffolon (2000). Il s'agit d'un alliage industriel d'origine Wah-Chang, utilisé pour les tubes de force des réacteurs canadiens CANDU. Cet alliage se présente sous la forme d'une tôle écrouie (à froid) de 2,75mm d'épaisseur. Une seule éprouvette a été prélevée dans la direction de laminage ;

– deux alliages Zr-0,14 et 0,28%Nb élaborés par Cezus. Initialement sous la forme de tôles recristallisées de 4mm d'épaisseur, les matériaux ont été laminés à froid jusqu'à une épaisseur de 2mm au Laboratoire de Technologie des Matériaux Extrêmes (Service de Recherches Métallurgiques Appliquées, CEA) puis recristallisés 5h à 580°C. Cette opération a permis le prélèvement de cinq éprouvettes par nuance.

Le tableau 3.10 regroupe les compositions chimiques en Nb, O et Fe de ces alliages. Les teneurs en oxygène des alliages Zr-0,55 et 2,5%Nb sont légèrement plus faibles que celle du M5®. De plus, alors que tous les autres alliages ont de faibles teneurs en fer, l'alliage Zr-2,5%Nb en contient 0,1%, ce qui peut entraîner des différences au niveau des phases intermétalliques. Ces différences sont donc à prendre en compte lors de l'analyse des résultats de fluage.

Matériau	Nb	O	Fe	Taille de grains (état de réception)
Zr-0,14%Nb	0,14%	0,145%	0,017%	$\approx 9\mu m$
Zr-0,28%Nb	0,28%	0,143%	0,019%	$\approx 9\mu m$
Zr-0,55%Nb	0,55%	0,125%	0,025%	$\approx 8\mu m$
Zr-2,5%Nb	2,5%	0,11%	0,1%	non équiaxe

Tableau 3.10 – *Composition chimique en principaux éléments d'alliage des matériaux complémentaires à teneurs spécifiques en Nb et O (pourcentages massiques)*

Les textures à mi-épaisseur des matériaux à faible teneur en niobium (0,14, 0,28 et 0,55%Nb) ont été analysées par diffraction des rayons X (figures 3.30, 3.31 et 3.32) afin de les comparer à la texture initiale du M5® (figure 1.6). Le matériau Zr-2,5%Nb étant sous forme écrouie, sa texture n'est pas présentée ici car elle n'est pas représentative de celle existant à haute température après recristallisation, *i.e.* au début des essais de fluage.

On retrouve pour les trois matériaux des textures classiques de produits plats recristallisés après laminage à froid, comparables à celle du M5®. Ainsi, les axes $\underline{c}$ sont inclinés dans le plan (DN,DT) entre 15° et 30° de DN (environ 20° pour le Zr-0,14%Nb, 23° pour le Zr-0,28%Nb et 26° pour le Zr-0,55%Nb contre 24° pour le M5®). Les normales aux plans prismatiques, sont également orientées suivant la direction de laminage DL.

Pour la teneur la plus faible en Nb (0,14%), on retrouve la texture la moins affectée par le niobium avec les axes $\underline{c}$ les plus proches de DN, et donc le facteur de Kearns f_N le plus élevé (0,635). De plus, les normales aux plans (10.0) et (11.0) sont orientées de façon égale suivant DL. Pour les teneurs plus élevées en niobium, en incluant également dans l'analyse les matériaux modèles pseudo-M5 et représentatifs-β (figures 3.28 et 3.29), même si la texture évolue peu, une orientation plus marquée des normales aux plans (11.0) suivant DL peut être notée ainsi qu'une orientation moins marquée des plans de base suivant DN et donc un facteur de Kearns f_N diminuant quand la teneur en Nb augmente jusqu'à 0,55%Nb.

De manière globale, il y a donc peu de différences de texture entre tous les matériaux à teneur spécifique en niobium et oxygène. En première approximation, on fait donc l'hypothèse que les différentes éventuelles de comportement mécanique en fluage à haute température ne proviennent pas d'un effet de texture.

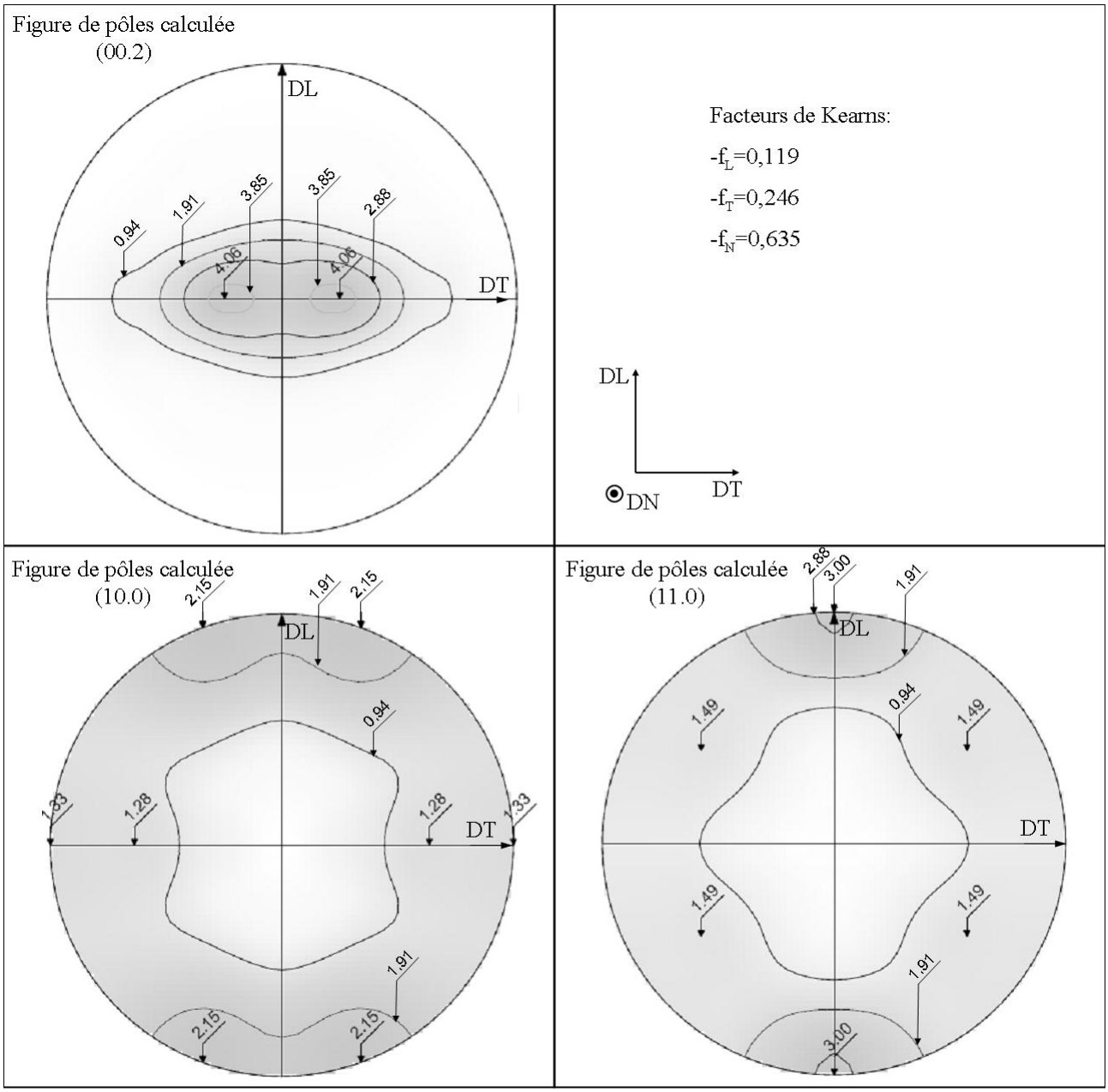


Figure 3.30 – *Figures de pôles (00.2), (10.0) et (11.0), à mi-épaisseur, de la tôle de Zr-0,14%Nb*

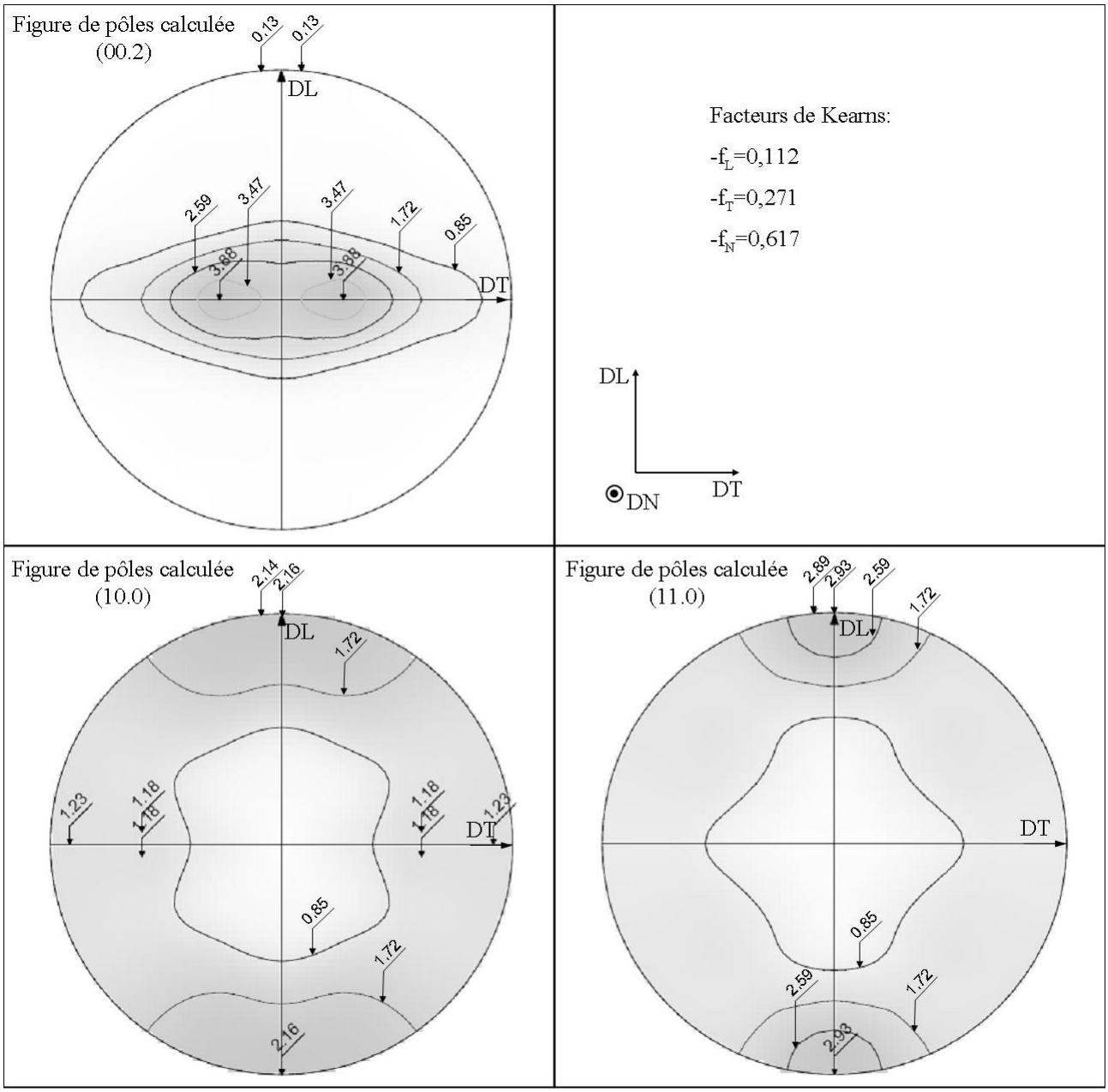


Figure 3.31 – *Figures de pôles (00.2), (10.0) et (11.0), à mi-épaisseur, de la tôle de Zr-0,28%Nb*

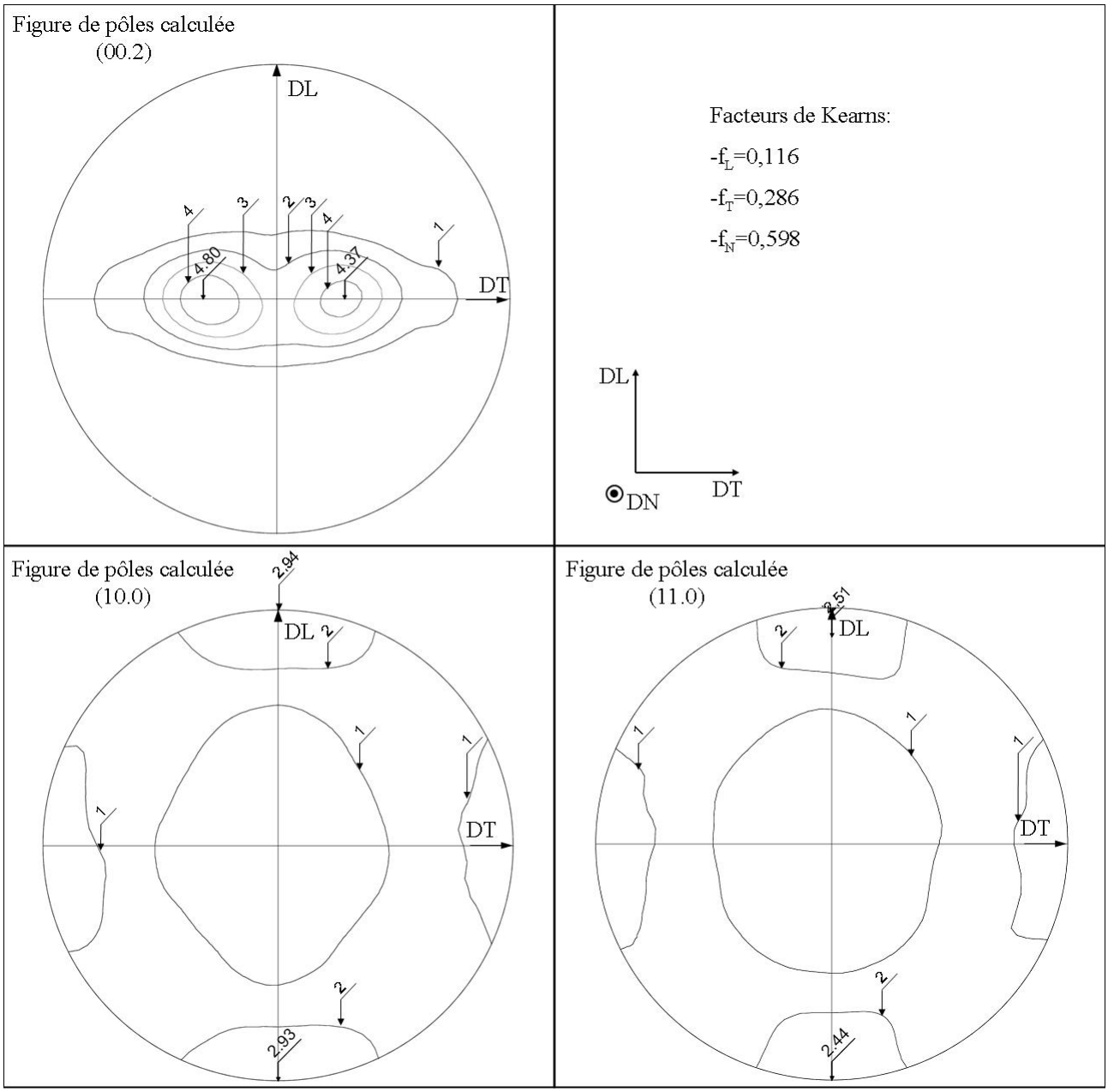


Figure 3.32 – *Figures de pôles (00.2), (10.0) et (11.0), à mi-épaisseur, de la tôle de Zr-0,55%Nb*

Les compositions chimiques de ces différents alliages à teneur spécifique en niobium et oxygène ont une influence sur les températures de transformation de phases. Il est donc important d'étudier et de prévoir la transformation de phases de chacun des alliages, dans les conditions de « quasi- équilibre » de l'étude. La figure 3.33 présente les calculs thermodynamiques (Thermocalc^{TM} + Zircobase Dupin et al. (1999)) permettant d'évaluer la fraction de phase β_{Zr} à l'équilibre transformée en fonction de la température. Les plus fortes teneurs en niobium ont tendance à faire diminuer les températures de transformation de phases. A l'inverse, plus la teneur en oxygène est importante, plus les températures de transformations de phases, en particulier le transus $(\alpha + \beta) \leftrightarrow \beta$, sont élevées.

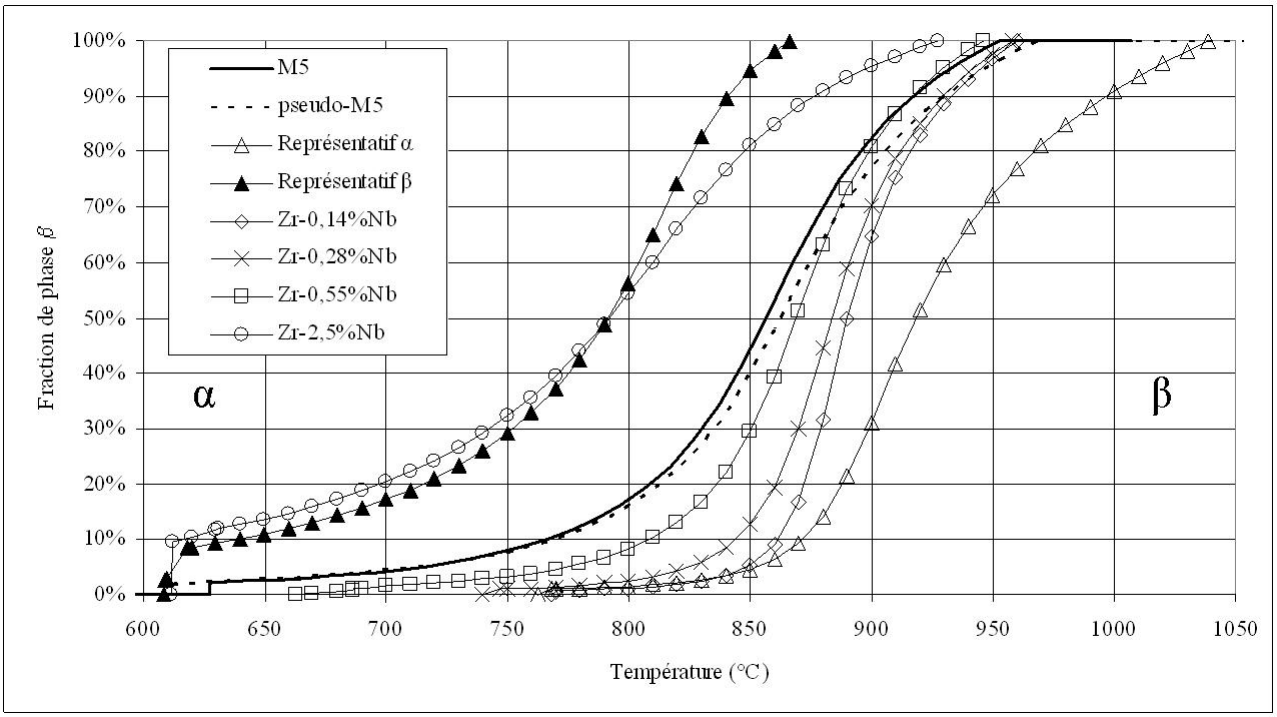


Figure 3.33 – *Fraction de phase β_{Zr} transformée à l'équilibre évaluée par calcul thermodynamique (Thermocalc^{TM} + Zircobase Dupin et al. (1999)) pour les différents alliages à teneur spécifique en niobium et oxygène*

Ces calculs sont complétés par des essais de calorimétrie différentielle à balayage. Comme expliqué dans le chapitre introductif, le dépouillement de ces essais se fait, afin de se placer dans les conditions de « quasi- équilibre », en considérant la moyenne des températures à fraction constante entre la courbe au chauffage (hypothèse haute) et la courbe au refroidissement[4].

Les résultats sont reportés sur la figure 3.34. Les résultats expérimentaux sont en bon accord avec les calculs thermodynamiques, mis à part donc au début de la transformation de phases et de manière plus marquée pour les matériaux contenant les plus fortes teneurs en niobium.

Pour le matériau représentatif-β, des fractions plus importantes ont été relevées par calorimétrie par rapport au calcul thermodynamique entre 750 et 850°C. Cela semble provenir d'un retard plus important de la transformation $\beta \rightarrow \alpha$ au refroidissement par rapport aux autres alliages. Ceci n'a pas été approfondi dans cette étude car les domaines d'intérêt pour cet alliage, à savoir les domaines quasi-β et β, sont bien cohérents entre les données de calorimétrie et les prédictions du calcul thermodynamique.

En première approximation, les valeurs de demi-hystérésis obtenues par calorimétrie seront privilégiées dans la suite de l'étude.

[4]Il est rappelé que considérer le demi-hystérésis entre chauffage (hypothèse haute) et refroidissement n'est pas rigoureusement correct pour les fractions de phase β inférieures à 10-20% car la retransformation inverse $\beta \rightarrow \alpha$ n'est pas complète dans les alliages au Nb et il subsiste une certaine fraction résiduelle de phase β_{Zr} (métastable, enrichie en Nb) après le cycle calorimétrique

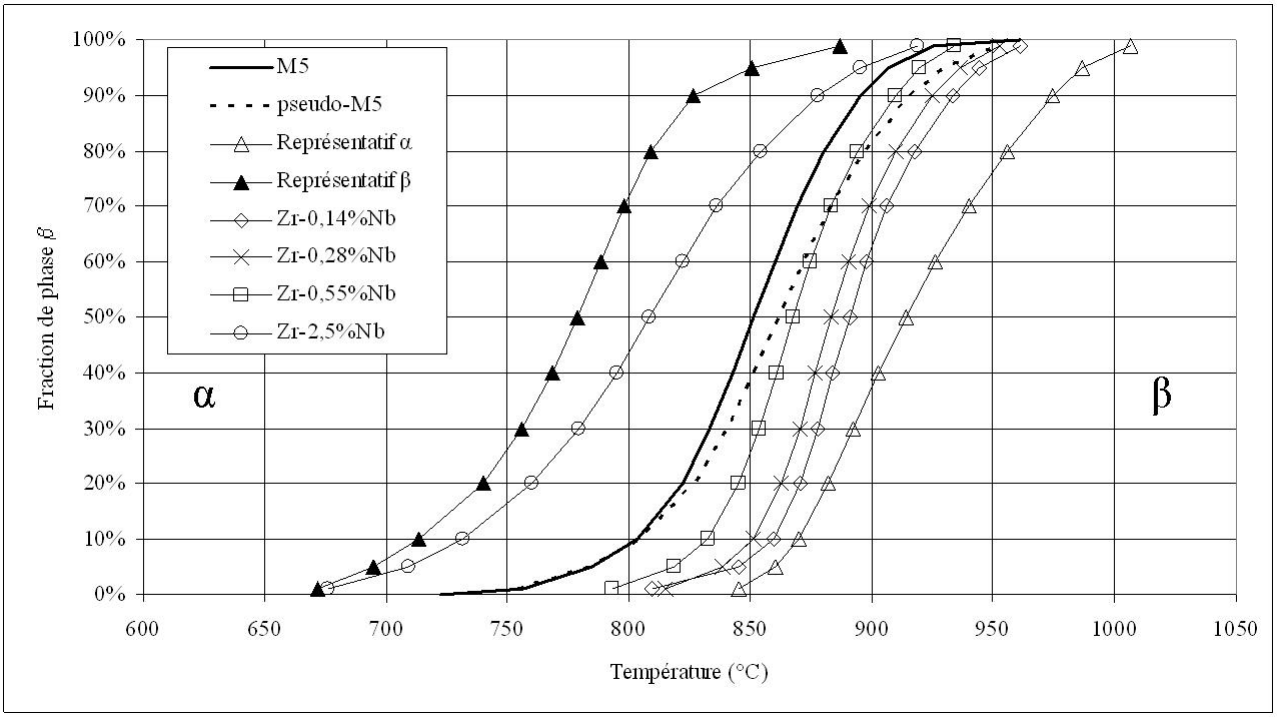


Figure 3.34 – *Fraction de phase β_{Zr} transformée évaluée par calorimétrie en conditions de « quasi-équilibre » (demi-hystérésis) pour les différents alliages à teneur spécifique en niobium et oxygène*

3.2.4 Comportement en fluage des matériaux à teneur spécifique en niobium et oxygène

3.2.4.1 Domaine quasi-α

Comme le matériau représentatif-α s'est révélé impropre aux les essais de fluage, **l'étude dans le domaine quasi-α s'est focalisée sur l'effet d'un appauvrissement en niobium sur le comportement en fluage**. Il conviendrait par la suite de compléter cette étude par celle de l'effet de l'enrichissement en oxygène en développant des moyens expérimentaux adaptés.

Des essais de fluage isotherme ont donc été effectués sur les tôles de matériaux faiblement alliés en niobium (0,14-0,28 et 0,55%Nb) dans le domaine quasi-α à 700°C .

Des observations métallographiques ont été menées par microscopie optique après les essais de fluage, de durées comparables (figure 3.35). Ces micrographies ont été analysées comme précédemment afin d'en déduire les tailles de grains des différents matériaux à teneur variable en niobium. Toutes les microstructures sont équiaxes avec une taille de grains relativement homogène par échantillon. Ces alliages à faible teneur en niobium présentent des tailles de grains plus importantes que le M5®. Si le matériau Zr-0,55%Nb présente une taille de grains comparable ($11,9 \pm 0,5\mu m$), les autres matériaux ont subi un fort grossissement de la taille de grains à 700°C. Ceci s'explique sans doute d'une part par la plus faible teneur en éléments d'alliage que le M5® et d'autre part par l'absence de phase β créée au palier monotectoïde, le niobium étant présent en-deçà de la limite de solubilité. Cette absence de phase β permet probablement une plus grande mobilité des joints de grains α qui ne sont pas épinglés comme dans le M5®.

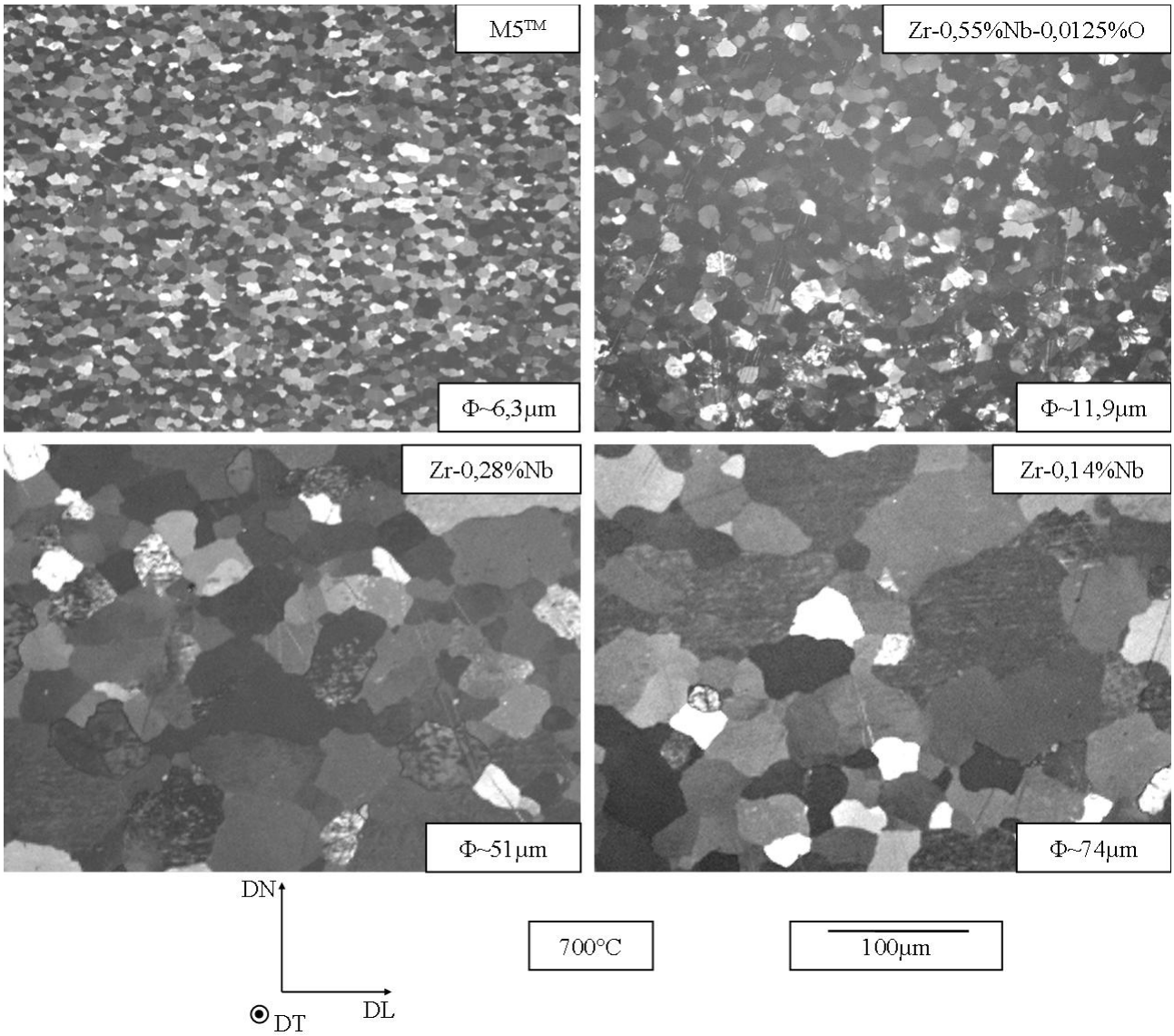


Figure 3.35 – *Micrographies optiques (contraste de Nomarsky) du M5® et des matériaux à faible teneur en Nb après essais de fluage à 700°C (domaine quasi-α, zone utile des éprouvettes)*

Les joints de grains apparaissent assez sinueux pour les matériaux faiblement alliés (Zr-0,14 et 0,28%Nb) : les grains n'ont pas du tout une forme d'équilibre. Il pourrait être intéressant de faire des traitements thermiques interrompus sur ces alliages pour connaître la cinétique d'évolution de la taille des grains. On pourrait alors utiliser un tel matériau pour étudier plus précisément l'effet de taille de grains α sur le comportement en fluage diffusionnel.

A cette température, le matériau Zr-0,55%Nb présente pour les faibles contraintes (<15MPa) le régime de fluage diffusionnel, avec un exposant de Norton n_1=1 (figure 3.36). Pour les contraintes plus élevées (>15MPa), le régime de fluage dislocations (n_2=5) est observé. Pour les matériaux plus faiblement alliés en Nb (0,14 et 0,28%), seul le régime de fluage dislocations est présent, avec le même exposant de Norton (n_2=5).

Le comportement en fluage à 700°C de ces alliages est aussi comparé au comportement du M5®. Si les exposants de Norton sont inchangés, on peut noter des écarts en termes de vitesse de fluage :

- **pour le régime de fluage dislocations, plus la teneur en niobium est faible, plus la vitesse est élevée (écart supérieur à une décade entre 0,14 et 1%Nb)** ;

– pour le régime de fluage diffusionnel, c'est le M5® qui présente la vitesse la plus élevée (une demi-décade par rapport au Zr-0,55%Nb). Dans ce régime, il faut prendre en compte l'effet de taille de grains mis en évidence pour le M5® afin de réellement appréhender l'effet du niobium.

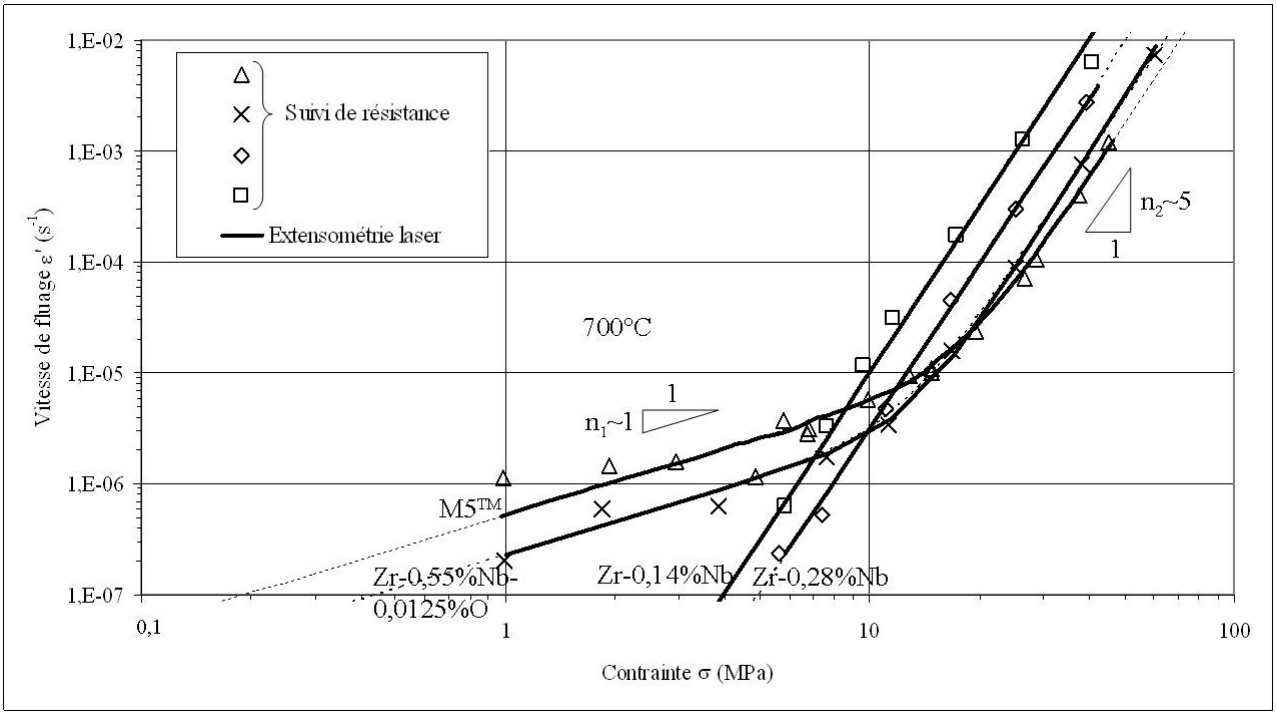


Figure 3.36 – *Comportement expérimental en fluage à 700°C (domaine quasi-α) du M5® et des matériaux à faible teneur en Nb (un essai par matériau)*

La taille de grains des matériaux Zr-0,14 et 0,28%Nb étant trop importante à 700°C pour éventuellement observer le régime de fluage diffusionnel, il a été envisagé d'utiliser la même méthode que pour le fluage du M5® en phase β à taille de grains contrôlée, *i.e.* se placer au début du domaine biphasé en espérant que la phase naissante β bloque le grossissement des grains α et maintienne une microstructure plus fine qu'à 700°C. Les températures sont choisies à partir des résultats de calorimétrie (figure 3.34) afin que la fraction de phase β soit environ de 5%, soit 840°C pour le Zr-0,28%Nb et 850°C pour le Zr-0,14%Nb.

Des observations métallographiques ont été effectuées par microscopie optique après les essais de fluage (figure 3.37). Ces micrographies ont été analysées afin d'en déduire les tailles de grains des deux matériaux. Ces analyses confirment que la microstructure a moins grossi qu'à 700°C, même si les tailles de grains sont relativement élevées par rapport au M5®. Ainsi, à 840°C, le Zr-0,28%Nb présente une taille de grains moyenne de $39 \pm 2\mu m$ alors que le Zr-0,14%Nb présente une taille de grains moyenne de $43 \pm 2\mu m$ à 850°C.

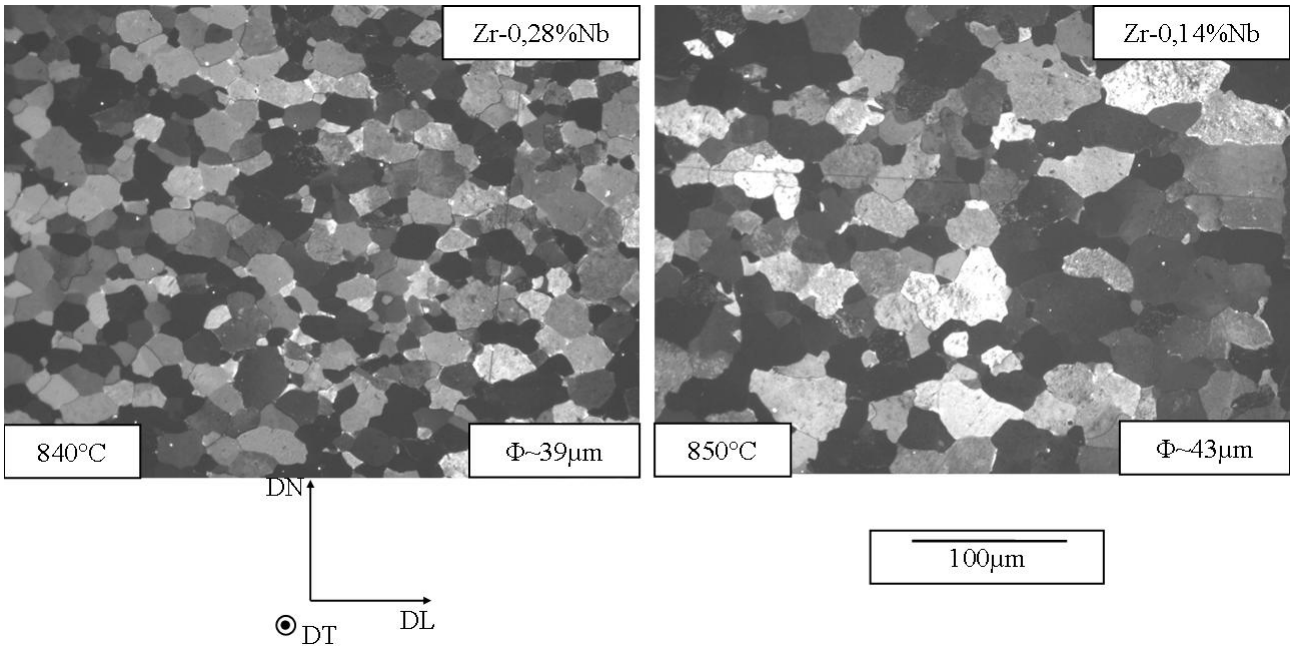


Figure 3.37 – *Micrographies optiques (contraste de Nomarsky) des matériaux Zr-0,14 et 0,28%Nb après essais de fluage à 850 et 840°C respectivement (domaine quasi-α, zone utile des éprouvettes)*

Des essais de fluage isotherme ont été effectués sur les tôles de matériaux faiblement alliés en niobium (0,14-0,28%Nb) dans le domaine quasi-α (bas du domaine biphasé) à 840 et 850°C (figure 3.38). On fait l'hypothèse que l'on peut négliger l'influence des quelques pourcents de phase β sur le comportement en fluage des alliages. A ces températures, on observe pour les deux matériaux les deux régimes de fluage diffusionnel (n_1=1) et dislocations (n_2=5).

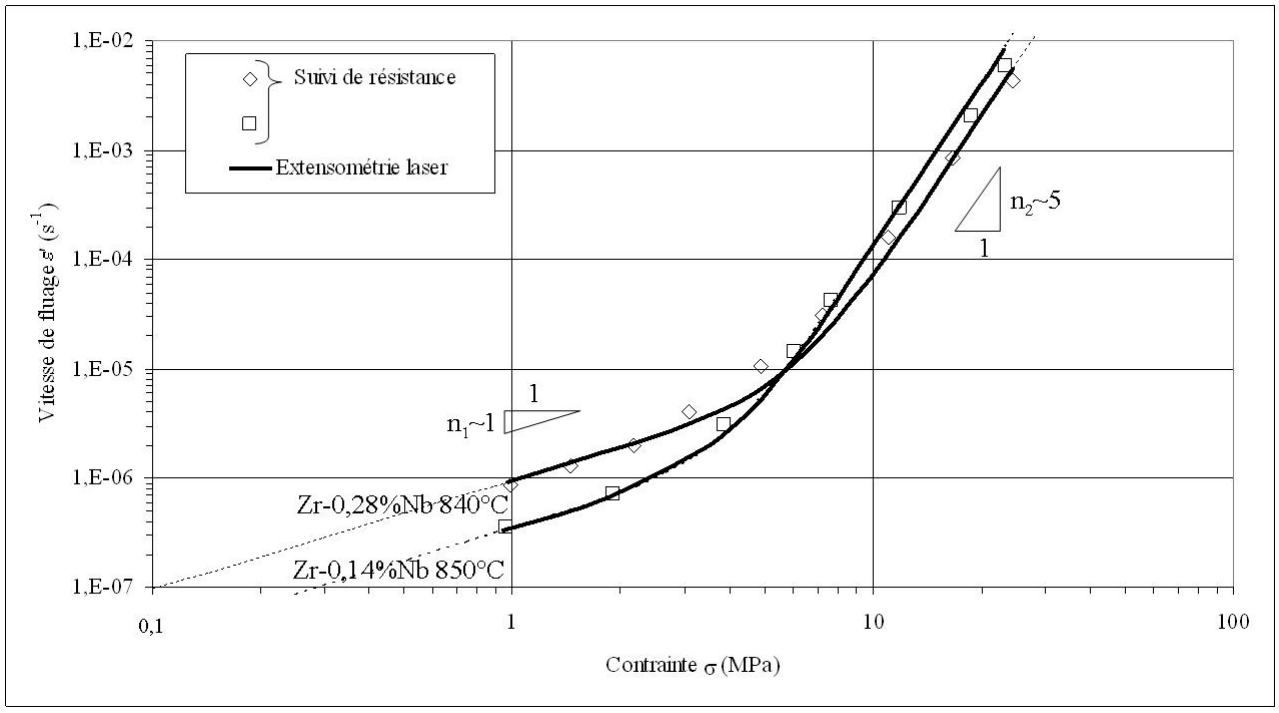


Figure 3.38 – *Comportement expérimental en fluage à 840-850°C (domaine quasi-α) des matériaux Zr-0,14 et 0,28%Nb (un essai par matériau)*

Les différents résultats de ces essais de fluage effectués à 700, 840 et 850°C sur les alliages Zr-0,14, 0,28 et 0,55%Nb sont comparés sur la figure 3.39 en fonction de la teneur en niobium, en ramenant les résultats expérimentaux dans les mêmes conditions :

- température de 700°C comme détaillé ci-après,
- taille de grains de $6,3\mu m$ comme détaillé ci-après,
- contrainte de fluage de 10MPa (en se basant sur les exposants de Norton de n_1=1 pour le régime de fluage diffusionnel et de n_2=5 pour le régime de fluage dislocations).

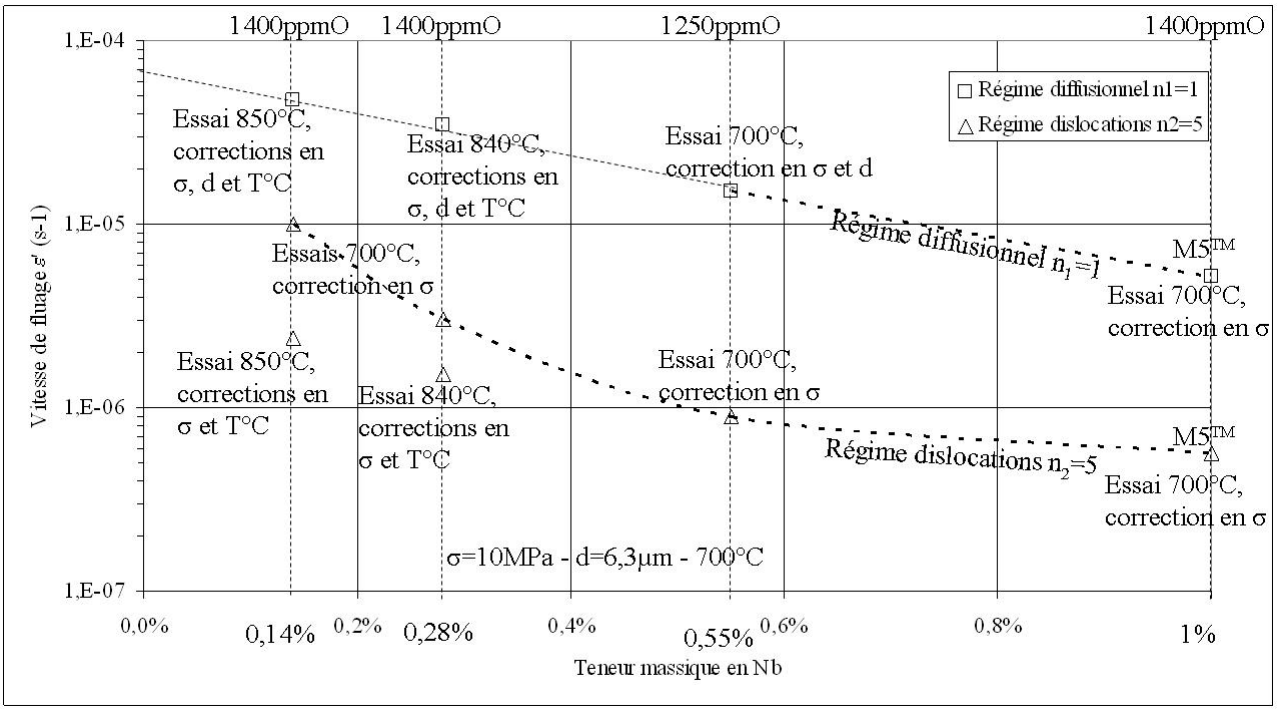


Figure 3.39 – *Evolution des vitesses de fluage en fonction de la teneur en niobium du M5® et des matériaux à faible teneur en Nb dans le domaine quasi-α pour une contrainte de 10MPa. Les vitesses de fluage sont ramenées à une température de 700°C et une taille de grains de 6,3µm via l'équation 3.5 (pour le régime de fluage diffusionnel de Coble $n_1 = 1$) et l'équation 3.7 (pour le régime de fluage dislocations $n_2 = 5$)*

Pour le régime de fluage dislocations (n_2=5), les essais effectués à 840 et 850°C ont été comparés à ceux effectués à 700°C en prenant en compte l'effet de la température grâce au modèle décrit par l'équation 3.7, en considérant $E_{a2} = 250kJ.mol^{-1}$, *i.e.* on a supposé que le niobium ne modifiait pas l'énergie d'activation.

Pour le régime de fluage diffusionnel (n_1=1), l'effet de taille de grains est pris en compte grâce au modèle de Coble proposé précédemment (équation 3.5), en considérant $E_{a1} = 200kJ.mol^{-1}$, *i.e.* on a aussi supposé ici que le niobium ne modifiait pas l'énergie d'activation. Ce modèle, prenant également en compte l'effet de la température, a donc permis de comparer les résultats obtenus à 840 et 850°C à ceux obtenus à 700°C. Les tailles de grains considérées sont celles analysées après les essais avec les micrographies optiques. Les tailles de grains ont été supposées constantes durant les essais. Dans le cas contraire, pour des contraintes de fluage croissantes, les exposants de Norton apparents pour les régimes diffusionnels seraient inférieurs à un.

D'une manière globale, **les vitesses de fluage diminuent dans les deux régimes quand la teneur en niobium augmente**. Pour le régime diffusionnel, la vitesse de fluage diminue de moins d'une décade pour une teneur variant de 0,14 à 1%. Les vitesses de fluage correspondant

aux quatre teneurs en niobium sont alignées et obéissent à la loi exponentielle suivante (équation 3.13) :

$$\dot{\varepsilon}_{diffusionnel}\left(c_{Nb}\right) = 6,8.10^{-5}.exp\left(-259c_{Nb}\right)\left(s^{-1}\right) \tag{3.13}$$

avec c_{Nb} la teneur massique en niobium.

Pour le régime de fluage dislocations, cette diminution est supérieure à une décade si on ne considère que les essais effectués à 700°C, pour le même intervalle de teneur en Nb. Les variations les plus fortes sont observées pour des teneurs massiques en niobium inférieures à 0,55%, en-deçà de la limite de solubilité du niobium en phase α à cette température. L'effet durcissant du niobium serait donc essentiellement lié au niobium en solution solide.

Les vitesses de fluage obtenues à partir des essais effectués à plus haute température (840 et 850°C) sont sensiblement inférieures à celle obtenues à 700°C, après recalage en température. Si on tient compte aussi pour ces essais de l'effet d'appauvrissement en niobium de la phase α à cause de la transformation de phases (teneurs résiduelles massiques en niobium évaluées à l'équilibre à environ 0,2% pour le Zr-0,28%Nb à 840°C et d'environ 0,05% pour le Zr-0,14%Nb), cet écart serait accentué. A moins que ceux-ci ne soient la conséquence d'un éventuel artefact dû à une valeur incertaine de l'énergie d'activation considérée pour la correction en température, on peut aussi penser que le fluage est moins sensible à la teneur en niobium quand la température augmente. Il faudrait connaître l'effet de la teneur en niobium sur l'autodiffusion et l'énergie d'activation pour pouvoir approfondir ce point.

Pour le régime de fluage diffusionnel de Coble, Fiala et Čadek (1985) ont mesuré à 700°C pour du zirconium faiblement allié une vitesse de fluage (équivalente pour une contrainte de 10MPa et une taille de grains de 6,3μm) d'environ $1,2.10^{-4}s^{-1}$, ce qui est tout à fait comparable à l'extrapolation de nos résultats à une teneur nulle en Nb ($\approx 6,8.10^{-5}s^{-1}$). Pour le régime de fluage dislocations, pour du zirconium faiblement allié, à 700°C et pour une contrainte de fluage de 10MPa, Ardell et Sherby (1967) ont mesuré une vitesse de $2,5.10^{-6}s^{-1}$, Gilbert et al. (1969) de $1,8.10^{-6}s^{-1}$ et Pahutová et Čadek (1973) de $1,4.10^{-6}s^{-1}$. En extrapolant nos résultats, on obtient une vitesse supérieure ($\approx 4.10^{-5}s^{-1}$). La comparaison est plus délicate dans ce cas car Gilbert et al. (1969), Pahutová et Čadek (1973) proposent des exposants de Norton supérieurs à 5 et les écarts diminueraient quand la contrainte augmente.

En conclusion, **cette étude a mis en évidence un effet durcissant du niobium (pour des teneurs comprises entre 0,14 et 1% massiques) sur le fluage des alliages de zirconium dans le domaine quasi-α :**

- **pour le régime de fluage diffusionnel de Coble, cet effet durcissant**, inférieur à une décade entre 0,14 et 1% massiques de niobium, **a pu être quantifié par une dépendance exponentielle de la vitesse de fluage envers la teneur en niobium : $\dot{\varepsilon}_{diffusionnel}\left(c_{Nb}\right) = 6,8.10^{-5}.e^{-259c_{Nb}}(s^{-1})$ avec c_{Nb} la teneur massique en niobium ;**
- **pour le régime de fluage dislocations, cet effet, supérieur à une décade entre 0,14 et 1% massiques de niobium, est plus difficilement quantifiable. A 700°C, l'effet est le plus fort pour des teneurs inférieures à la limite de solubilité de niobium (0,55%Nb). Il semblerait néanmoins que pour des températures plus élevées et notamment le domaine biphasé ($\alpha+\beta$), cet effet ait tendance à s'atténuer.**

Cette étude est bien sûr à compléter par une étude de l'influence d'un enrichissement en oxygène pour la phase α. D'après l'étude bibliographique, on peut s'attendre à un effet inverse de l'appauvrissement en niobium. **Les valeurs obtenues en vitesse de fluage pour**

un appauvrissement en niobium de 1 à environ 0,2%, inférieures à une décade, peuvent donc être considérées comme une borne supérieure de l'effet du contraste « micro-chimique » (enrichissement en oxygène et appauvrissement en niobium) sur le comportement en fluage de la phase α.

3.2.4.2 Domaines quasi-β et β

L'étude est divisée en deux domaines, le domaine monophasé β dans lequel on étudie *a priori* uniquement le régime de fluage dislocations à cause de la taille des grains β élevée (quelques centaines de microns) et le domaine quasi-β dans lequel on souhaite également étudier le régime de fluage diffusionnel dans la mesure où la taille des grains β reste modeste grâce à quelques pourcents de phase α.

1. Domaine monophasé β :

   Afin d'éviter les possibles artefacts de correction en température à cause du manque de précision concernant les énergies d'activation, une seule température d'essai est choisie. D'après l'étude calorimétrique (figure 3.34), à 960°C, tous les matériaux sont dans ce domaine monophasé β. Des essais de fluage isothermes ont donc été menés à 960°C sur les tôles des matériaux modèles (pseudo-M5 et représentatif-β) ainsi que sur les matériaux très faiblement alliés en Nb (Zr-0,14 et 0,28%Nb).

   Des observations métallographiques ont été effectuées par microscopie optique après les essais de fluage, de durées comparables, au niveau de la zone utile des éprouvettes (figure 3.40). Afin de mieux révéler la microstructure d'intérêt existant à haute température, un refroidissement étagé a été mis en oeuvre pour révéler les ex-joints de grains β (annexe A). En se basant sur la figure 3.34, un palier à 880°C a été utilisé pour tous les matériaux sauf le matériau représentatif-β (palier à 800°C). Les différents matériaux testés ne présentent pas de traces de phase α résiduelle existant à 960°C, ce qui confirme bien, en plus du suivi de résistance, qu'il s'agit du domaine monophasé β.

   Malgré la trempe étagée, les ex-joints de grains β sont difficiles à distinguer pour les alliages Zr-0,14 et 0,28%Nb. La préparation métallographique (polissage et attaque), spécifique aux alliages Zr-Nb, semble moins efficace pour des faibles teneurs en niobium car l'attaque cible préférentiellement les zones riches en niobium. *A contrario*, l'échantillon représentatif-β s'est révélé très sensible vis-à-vis de l'attaque. Pour des analyses plus poussées, de nouveaux protocoles de préparation seraient à essayer pour ces alliages à faible teneur en Nb. On peut néanmoins globalement observer, comme pour tous les autres échantillons, et ceci est confirmé par le relief de surface des éprouvettes, des tailles de grains supérieures à $500\mu m$.

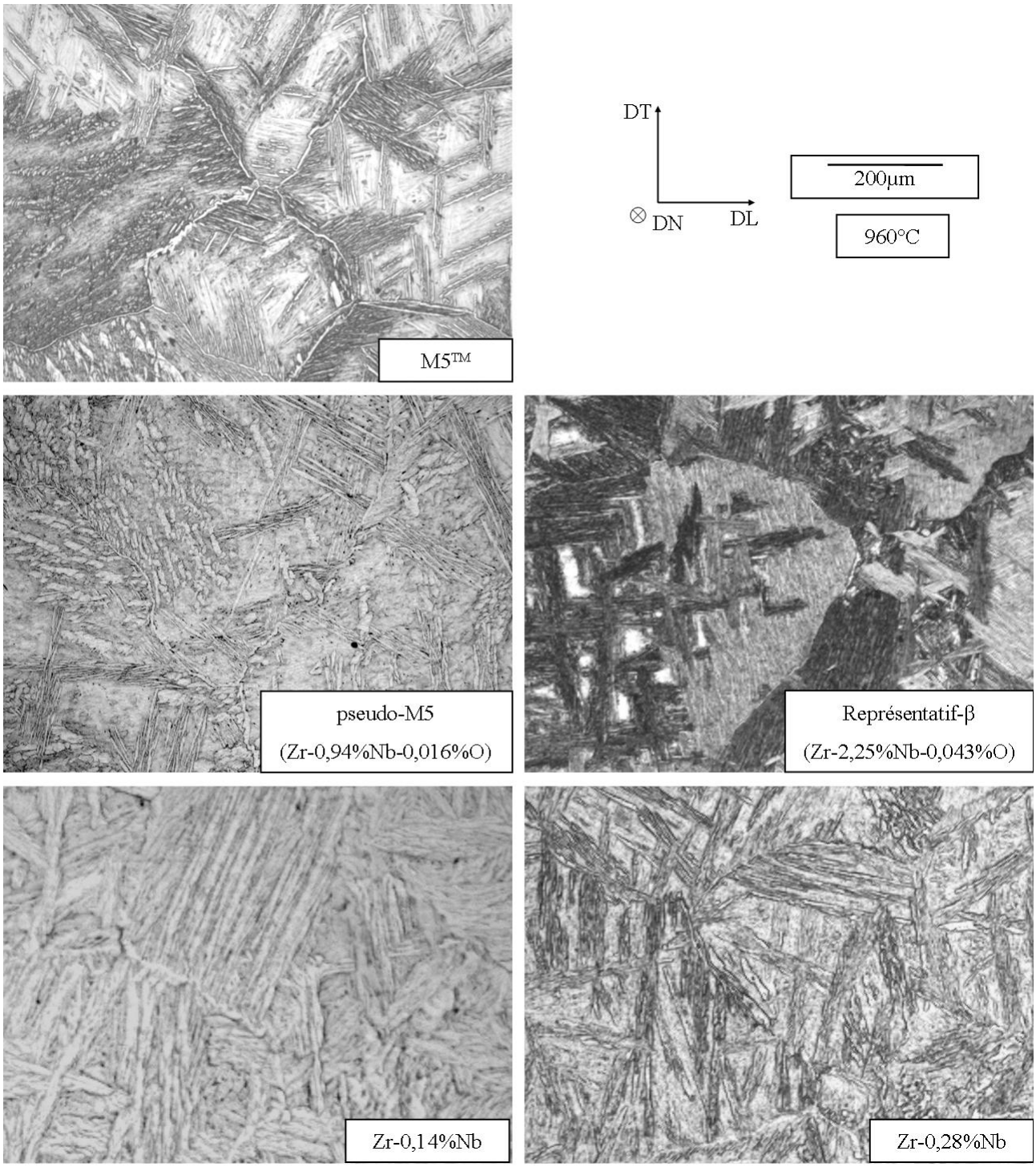


Figure 3.40 – *Micrographies optiques (lumière blanche) du M5®, des matériaux à faible teneur en Nb (Zr-0,14 et 0,28%Nb) et des matériaux modèles pseudo-M5 (Zr-0,94%Nb-0,16%O) et représentatif-β (Zr-2,25%Nb-0,043%O) après essais de fluage dans le domaine β à 960°C et refroidissement étagé (zone utile des éprouvettes)*

Les résultats de ces essais de fluage sont comparés au comportement du M5® à la même température sur la figure 3.41. Un seul régime de fluage est observé, de type dislocations, sans modification significative de l'exposant de Norton par rapport au M5® (n_2=4).

Le régime de fluage dislocations est peu sensible à la taille de grains dans le domaine β d'après le paragraphe précédent, la comparaison peut donc être directe entre les alliages, même si les tailles de grains sont légèrement différentes. Les alliages à faible te-

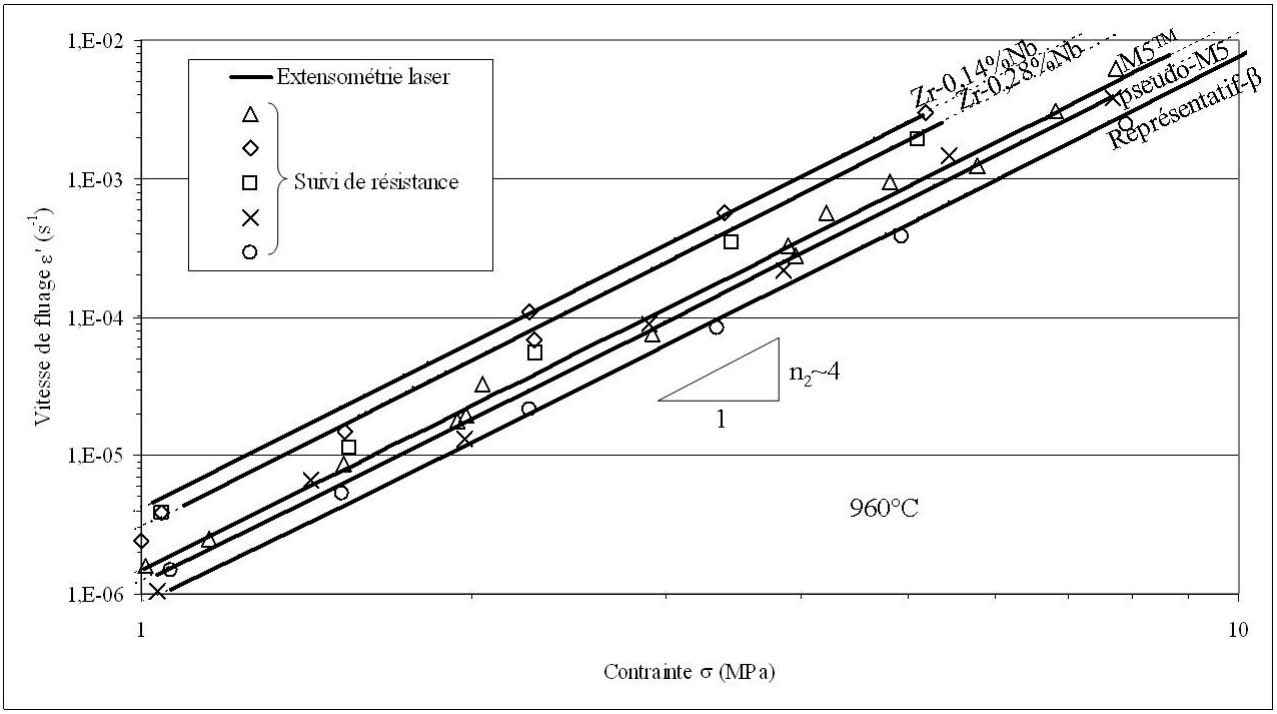


Figure 3.41 – *Comportement expérimental en fluage à 960°C (domaine β) du M5®, des matériaux à faible teneur en Nb (Zr-0,14 et 0,28%Nb) et des matériaux modèles pseudo-M5 (Zr-0,94%Nb-0,16%O) et représentatif-β (Zr-2,25%Nb-0,043%O). Un essai par matériau*

neur en niobium (0,14 et 0,28%Nb) présentent les vitesses de fluage les plus élevées. Le matériau pseudo-M5 a un comportement proche du M5® à 960°C alors que le matériau représentatif-β est le plus résistant au fluage. Les vitesses de fluage diminuent donc quand la teneur en niobium augmente (mis à part pour le matériau pseudo-M5 qui a une teneur inférieure à celle du M5® mais l'écart n'est pas très élevé et pourrait provenir de la teneur plus élevée en oxygène). La faible teneur en oxygène du matériau représentatif-β ne compense pas totalement l'effet durcissant du niobium. Ainsi, le contraste « micro-chimique » (enrichissement en niobium et appauvrissement en oxygène) révèle un effet à 960°C, même si celui-ci reste assez faible (diminution des vitesses d'environ 45% pour le régime de fluage dislocations entre le M5® et le matériau représentatif-β).

2. Domaine quasi-β :

Les matériaux modèles (pseudo-M5 et représentatif-β) ainsi que les matériaux Zr-0,55%Nb et Zr-2,5%Nb ont été testés dans le domaine quasi-β. Comme l'analyse quantitative des tailles de grains est délicate pour les matériaux Zr-0,14 et 0,28%Nb et que la connaissance de ce paramètre est primordiale pour l'interprétation des essais, ces matériaux n'ont pas été utilisés dans cette partie de la campagne d'essais. Par ailleurs, pour la phase β, on s'intéresse à l'enrichissement en niobium plutôt qu'à des teneurs massiques inféreures à 1%. Ils pourraient être néanmoins considérés par la suite, une fois mis au point le protocole d'analyse métallographique.

Le choix des températures d'essai est fondé sur l'étude calorimétrique puis validé par des traitements thermiques effectués dans la machine de fluage sur de petits coupons. L'objectif est, pour chaque matériau, de sélectionner une température pour laquelle la phase α est en quantité suffisamment faible pour que l'on puisse en négliger l'influence sur le comportement mécanique en fluage. La phase α doit néanmoins être présente en quantité suffisante afin de stabiliser la taille des grains β à des valeurs faibles, ce qui correspond à une condition favorable pour pouvoir mettre en évidence le régime de fluage diffusionnel.

Des essais de fluage isothermes ont donc été menés à 920°C pour le matériau pseudo-M5 et le matériau Zr-0,55%Nb alors que le matériau représentatif-β a été testé pour une température de 840°C et le matériau Zr-2,5%Nb pour une température de 880°C.

Des observations métallographiques ont été effectuées par microscopie optique après les essais de fluage (figure 3.42), de durées comparables. Tous les échantillons présentent des fractions de phases β supérieures à 90%, ce qui a été confirmé avant les essais de fluage par mesure de résistance (à part pour les matériaux non testés par ailleurs dans le domaine β, pour lesquels le suivi de résistance ne peut donc être dépouillé, soit le Zr-0,55%Nb et Zr-2,5%Nb). La microstructure du matériau Zr-0,55%Nb a été la plus délicate à révéler même si une analyse quantitative de la taille de grains a pu être menée comme pour les autres échantillons. Les matériaux pseudo-M5 et Zr-0,55%Nb présentent des tailles de grains voisines de celles du M5® à 920°C alors que les matériaux à forte teneur en niobium (représentatif-β et Zr-2,5%Nb) présentent les microstructures les plus fines, sans doute grâce justement à la plus forte teneur en niobium. Enfin, on peut noter que malgré l'état de départ du Zr-2,5%Nb (écroui et non recristallisé), la microstructure du matériau semble très semblable à celle des autres matériaux.

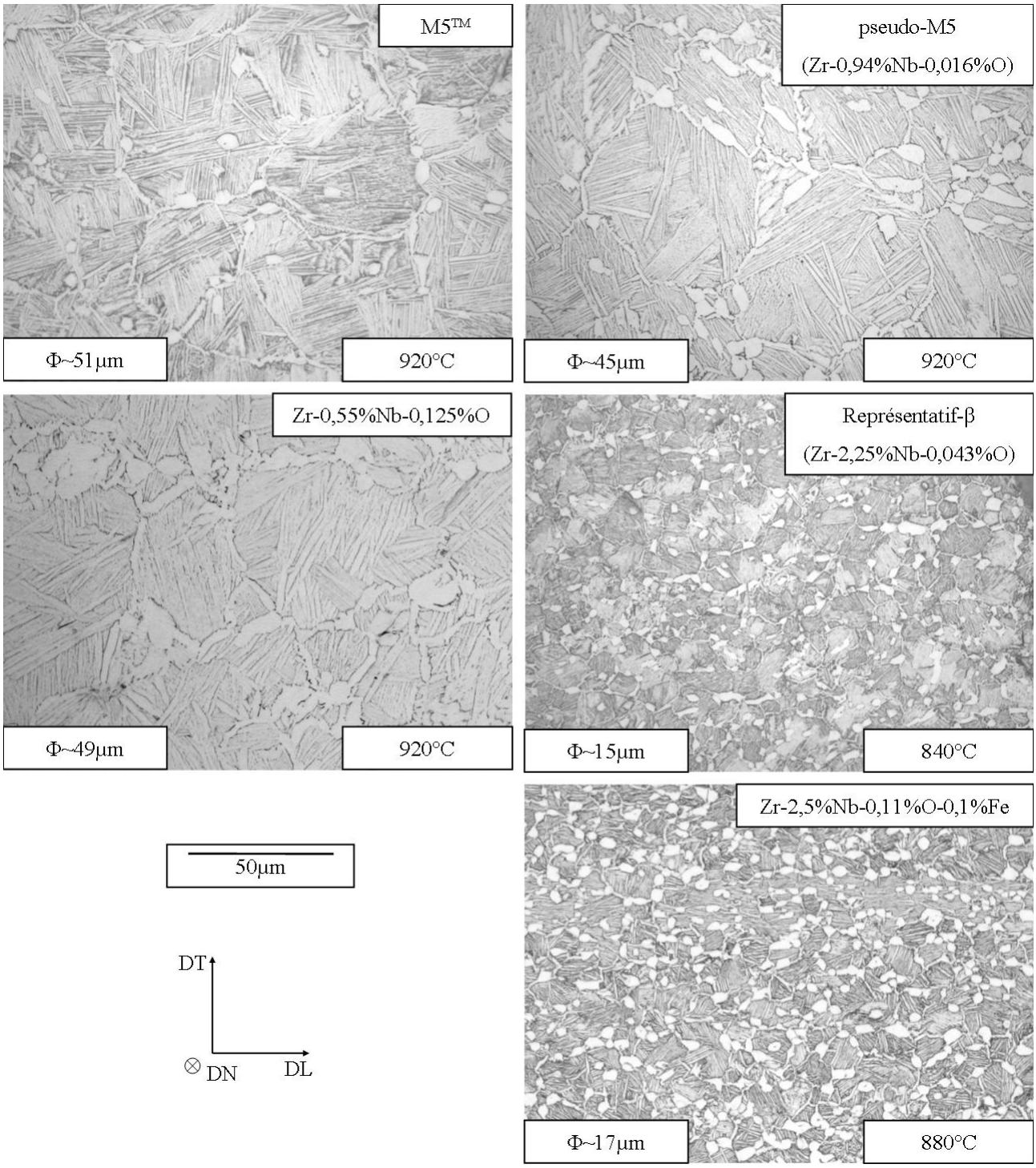


Figure 3.42 – *Micrographies optiques (lumière blanche) du M5®, des matériaux modèles pseudo-M5 (Zr-0,94%Nb-0,16%O) et représentatif-β (Zr-2,25%Nb-0,043%O), et des matériaux Zr-0,55%Nb-0,0125%O et Zr-2,5%Nb-0,011%O-0,1%Fe après essais de fluage dans le domaine quasi-β et refroidissement four coupé (zone utile des éprouvettes)*

La figure 3.43 regroupe les résultats des essais de fluage effectués dans le domaine quasi-β pour les matériaux Zr-0,55%Nb et pseudo-M5 (920°C), Zr-2,5%Nb (880°C) et représentatif-β (840°C). Les quatre matériaux présentent les deux régimes de fluage diffusionnel (n_1=1) pour les plus faibles contraintes et de fluage dislocations pour les plus fortes contraintes (n_2=4). Plus en détail, on peut remarquer que pour les matériaux Zr-0,55%Nb et pseudo-M5, le régime dislocations est le mieux défini dans la gamme de contraintes explorée (1-20MPa). Pour les matériaux à forte teneur en niobium (représentatif-β et Zr-2,5%Nb),

les deux régimes sont nettement définis.

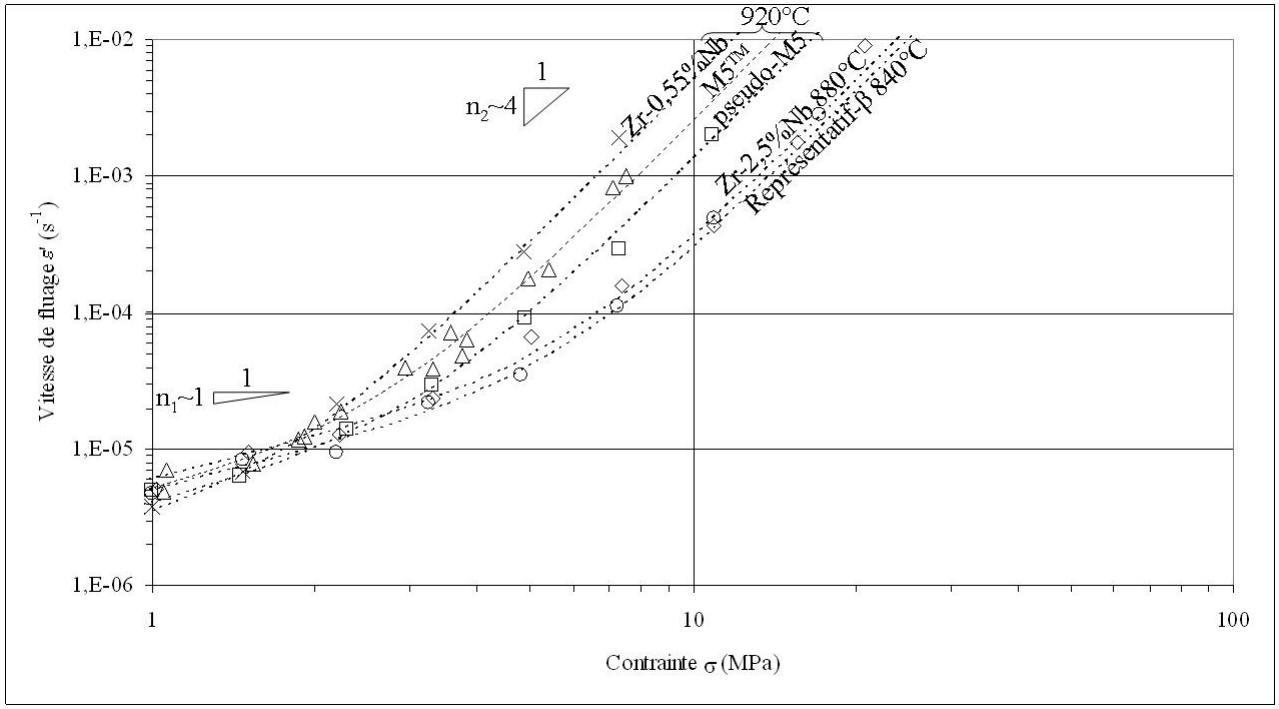


Figure 3.43 – *Comportement expérimental en fluage dans le domaine quasi-β du M5®, des matériaux modèles pseudo-M5 (Zr-0,94%Nb-0,16%O) et représentatif-β (Zr-2,25%Nb-0,043%O), et des matériaux Zr-0,55%Nb-0,0125%O et Zr-2,5%Nb-0,011%O-0,1%Fe (un essai par matériau)*

Afin d'interpréter ces résultats en fonction de la composition chimique des alliages, il faut tenir compte des effets de température et de taille de grains qui ont été mis en évidence précédemment dans cette étude. Comme pour le domaine quasi-α, on a supposé que les énergies d'activation n'étaient pas modifiées par la teneur en niobium et que les tailles de grains n'évoluaient pas au cours de l'essai. Le modèle mis en place dans l'étude de la taille de grains est utilisé : modèle de Coble pour le régime de fluage diffusionnel (équation 3.10 avec une énergie d'activation $E_{a1} = 450kJ.mol^{-1}$) et modèle décrit par l'équation 3.12 pour le régime de fluage dislocations (avec une énergie d'activation $E_{a2} = 180kJ.mol^{-1}$), indépendant de la taille de grains pour les tailles supérieures à $90\mu m$ et présentant un effet de type Hall-Petch pour les tailles de grains inférieures.

Tous les résultats des essais effectués dans les domaines quasi-β et β sont regroupés sur la figure 3.44 en fonction de la teneur en niobium du matériau, en ramenant les résultats expérimentaux dans les mêmes conditions par régime de fluage :

- température de 960°C pour le régime de fluage dislocations et de 920°C pour le régime de fluage diffusionnel,
- taille de grains de $90\mu m$ pour le régime de fluage dislocations et de $20\mu m$ pour le régime de fluage diffusionnel,
- contrainte de fluage de 10MPa (en se basant sur les exposants de Norton de $n_1 = 1$ pour le régime de fluage diffusionnel et de $n_2 = 4$ pour le régime de fluage dislocations).

Les résultats des essais effectués dans le domaine monophasé β sont reportés directement pour une contrainte de 10MPa, pour le régime de fluage dislocations, en considérant l'exposant

de Norton $n_2 = 4$. En effet, les tailles de grains étant supérieures à $90\mu m$, aucune prise en compte de l'effet de taille de grains n'est nécessaire.

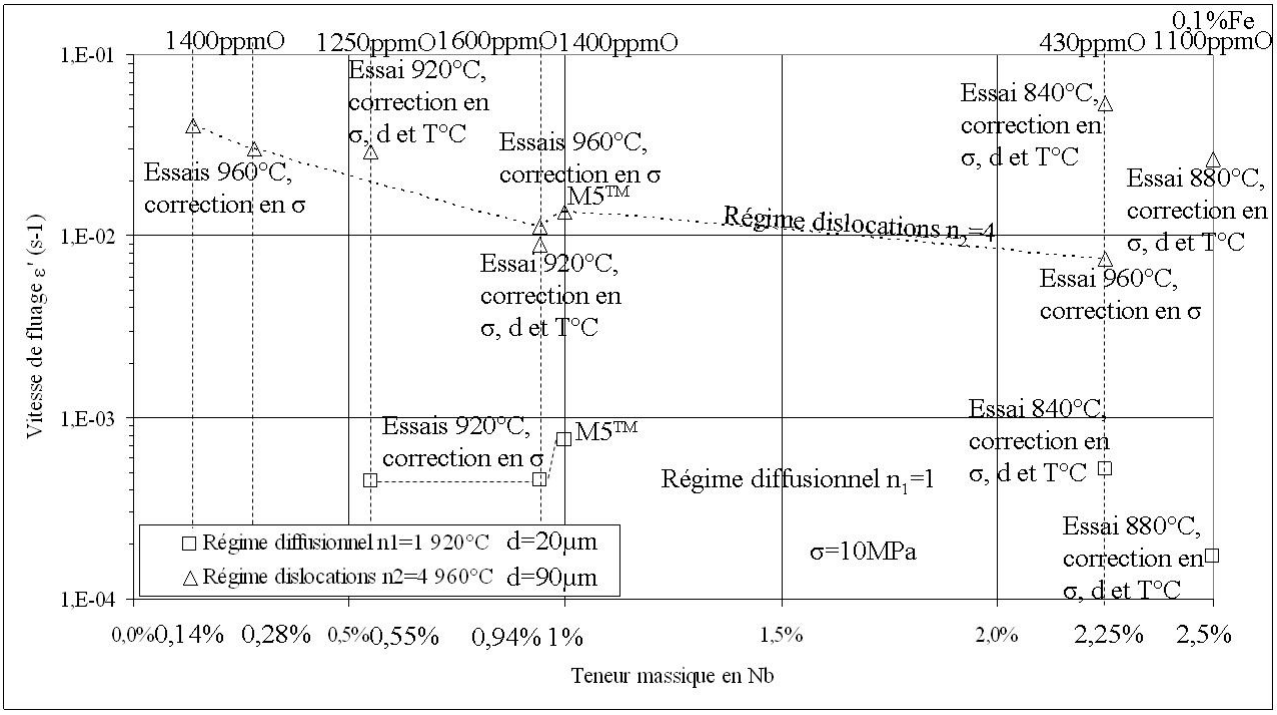


Figure 3.44 – *Evolution des vitesses de fluage en fonction de la teneur en niobium du M5® et des matériaux à teneur spécifique en niobium et oxygène dans les domaines β et quasi-β, pour une contrainte de 10MPa. Les vitesses de fluage sont ramenées à une température de 920°C et une taille de grains de 20µm via l'équation 3.10 pour le régime de fluage diffusionnel de Coble $n_1 = 1$ et à une température de 960°C et une taille de grains de 90µm via l'équation 3.12 pour le régime de fluage dislocations $n_2 = 4$)*

Les conclusions sont les mêmes que celles tirées directement à partir des courbes de fluage dans le domaine β (960°C), à savoir qu'**un renforcement du matériau est observé dans le régime de fluage dislocations quand la teneur en niobium augmente**. Dans ces conditions, le matériau représentatif-β est légèrement plus résistant que le M5® (diminution d'environ 45% de la vitesse de fluage). Ceci peut s'expliquer, comme les éléments d'alliage sont en solution solide à cette température, par le fait que le matériau est globalement plus allié. En extrapolant ces résultats vers une teneur nulle en niobium, on obtient une vitesse de fluage d'environ $5.10^{-2}s^{-1}$ (soit $\approx 10^{-4}s^{-1}$ pour 1MPa et 1200°C), qui paraît raisonnable par rapport à la littérature, notamment à Ardell (1964) qui a mesuré à 1MPa pour une température de 1200°C une vitesse de fluage de $4.10^{-5}s^{-1}$ pour du zirconium peu allié.

Les résultats obtenus sur le régime de fluage dislocations à partir des essais effectués à 920°C sur les matériaux modèles pseudo-M5 et Zr-0,55%Nb sont en bon accord avec les résultats obtenus à 960°C. Ceci montre dans ce cas que le modèle prenant en compte l'effet de taille de grains et de température reproduit correctement ces effets pour de faibles augmentations de températures (40°C) et de taille de grains (de 45-49μm à 90μm alors que le modèle a été bâti sur des tailles de 20 à 48μm). En revanche, des vitesses de fluage nettement plus importantes sont prédites à partir des essais réalisés à 840°C sur le matériau représentatif-β et à 880°C pour le Zr-2,5%Nb. Ceci peut éventuellement montrer des limitations du modèle pour des extrapolations trop importantes en température (80-120°C) et en tailles de grains (de 15-17μm

à $90\mu m$). Par ailleurs, la plus faible teneur en oxgène de ce matériau peut également être une cause supplémentaire d'écart.

D'autres hypothèses peuvent être proposées pour ces matériaux fortement alliés comme la non-dissolution complète des éléments d'alliage, notamment dans la phase α résiduelle, qui appauvrirait alors la solution solide et affaiblirait donc le matériau, contrairement au domaine monophasé β. On peut aussi penser que la phase β est appauvrie en oxygène en solution solide, la phase α résiduelle étant riche en oxygène. Pour le matériau Zr-2,5%Nb, riche en fer, les intermétalliques contenant du Fe, subsistant à 880°C, peuvent agir en accentuant cet effet d'appauvrissement de la solution solide.

Pour le régime de fluage diffusionnel, mis à part pour le matériau Zr-2,5%Nb, peu de variations de vitesses de fluage sont à relever. En particulier, le matériau représentatif-β est relativement proche du M5®, l'effet durcissant du contraste micro-chimique (appauvrissement en oxygène et enrichissement en niobium) semble donc faible (diminution d'environ 30% de la vitesse). L'essai réalisé sur le Zr-2,5%Nb montre quant à lui un effet durcissant plus significatif du niobium (et sans doute du fer) sur le régime de fluage diffusionnel.

Au bilan, les deux éléments, oxygène et niobium, présentent un petit effet durcissant en fluage pour la phase β :

- pour l'effet du niobium : un facteur inférieur à 5 sur les vitesses dans le régime de fluage dislocations est observé entre 0,14 et 2,25% massiques de niobium alors qu'un facteur inférieur à 3 sur les vitesses dans le régime de fluage dislocations est observé entre 0,14 et 2,5% massiques de niobium ;
- pour l'effet de l'oxygène : entre 2,25 et 2,5% massiques de niobium, si on considère les corrections en température et taille de grains correctes, un facteur environ 3 sur les vitesses de fluage dans les deux régimes est apparu entre 430 et 1100ppm d'oxygène.

Si on extrapole les observations effectuées dans les domaines quasi-α et β au domaine biphasé (α+β), à une température de 860°C (à laquelle la fraction volumique de chaque phase est environ 50%), on chercher à évaluer l'écart de comportement en fluage pour les phases α et β entre la composition nominale et les compositions à l'équilibre :

- pour la phase α : en ne considérant que l'effet d'appauvrissement en niobium (effet d'enrichissement en oxygène non étudié mais probablement inverse), un facteur 10 sur la vitesse de fluage dans les deux régimes,
- pour la phase β : en considérant les effets combinés de l'enrichissement en niobium et de l'appauvrissement en oxygène (matériau représentatif-β), une diminution d'environ 30% de la vitesse de fluage, dans les deux régimes.

Ces évaluations vont être confontées dans le domaine biphasé.

3.2.4.3 Domaine biphasé $(\alpha + \beta)$

Un essai complémentaire de fluage a été réalisé pour le matériau modèle pseudo-M5 à la même température que l'essai de fluage mené dans le domaine quasi-β pour le matériau représentatif-β, *i.e.* 840°C. La figure 3.45 présente les résultats de cet essai ainsi que les résultats mesurés à cette température pour le M5®.

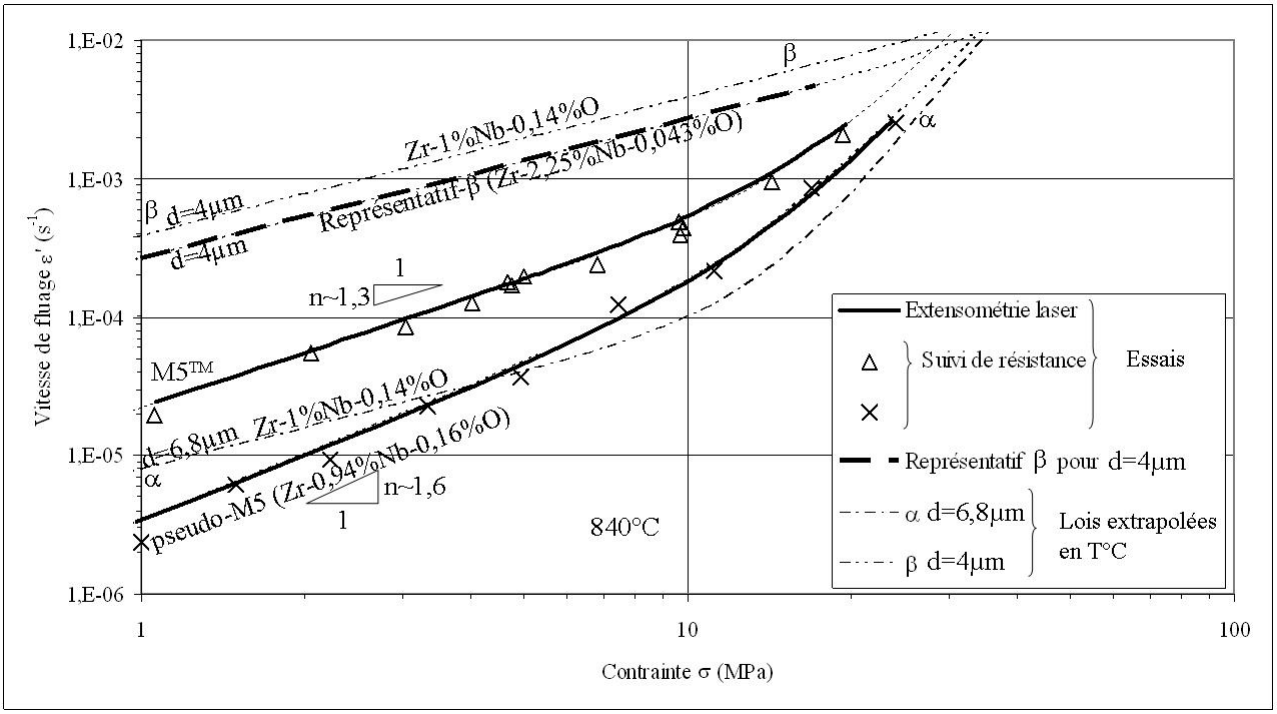


Figure 3.45 – *Comportement expérimental en fluage à 840°C (domaine biphasé ($\alpha + \beta$)) du M5®, du pseudo-M5 (Zr-0,94%Nb-0,16%O) et du représentatif-β (Zr-2,25%Nb-0,043%O) après prise en compte de l'effet de taille de grains. Comparaison avec la modélisation utilisant les lois pour chacune des phases α et β extrapolées en température et taille de grains à partir des domaines monophasés quasi-α et β)*

Des vitesses de fluage inférieures d'environ une demi-décade ont été mesurées pour le matériau pseudo-M5 par rapport au M5®. Alors que le régime de fluage observé présentait un exposant de Norton de l'ordre de de $n \approx 1,3$ pour le M5®, cet exposant est plus élevé, environ 1,6 pour le pseudo-M5.

L'étude bibliographique concernant un éventuel effet des élements d'alliage dans le domaine biphasé a mis en évidence en premier lieu un effet de fraction volumique de chaque phase. Pour cet essai, l'écart de comportement entre les deux alliages provient pour une partie probablement de là. Etant donné que le pseudo-M5 contient moins de niobium mais plus d'oxygène que le matériau M5®, un décalage dans les températures de transformations de phases est attendu (figure 3.33) et mesuré (figure 3.34) vers des températures plus élevées. Cet écart est confirmé par les mesures de résistance avant l'essai de fluage ainsi que les analyses métallographiques effectuées après l'essai de fluage (figure 3.46). Une fraction de phase β inférieure de 7% environ se traduit, comme la phase α est, d'après la littérature, la phase dure, par une diminution des vitesses de fluage.

D'autres effets sont également à envisager, comme la taille des grains α et β, qui est aussi susceptible d'être modifiée. A 840°C, le matériau M5® présente une taille de grains α de $6,8 \pm 1\mu m$ et β de $4 \pm 1\mu m$ alors que la microstructure du pseudo-M5 est plus grossière (taille de grains α de $9,2 \pm 1\mu m$ et β de $4,5 \pm 1\mu m$).

La figure 3.45 présente également la courbe de fluage du matériau modèle représentatif-β construite à partir de l'essai réalisé à la même température en prenant en compte l'effet de taille de grains ($4\mu m$ observés à 840°C pour les grains β pour le M5® au lieu des $15\mu m$ mesurés après l'essai sur le matériau pseudo-M5). Les lois de fluage sont également tracées sur la

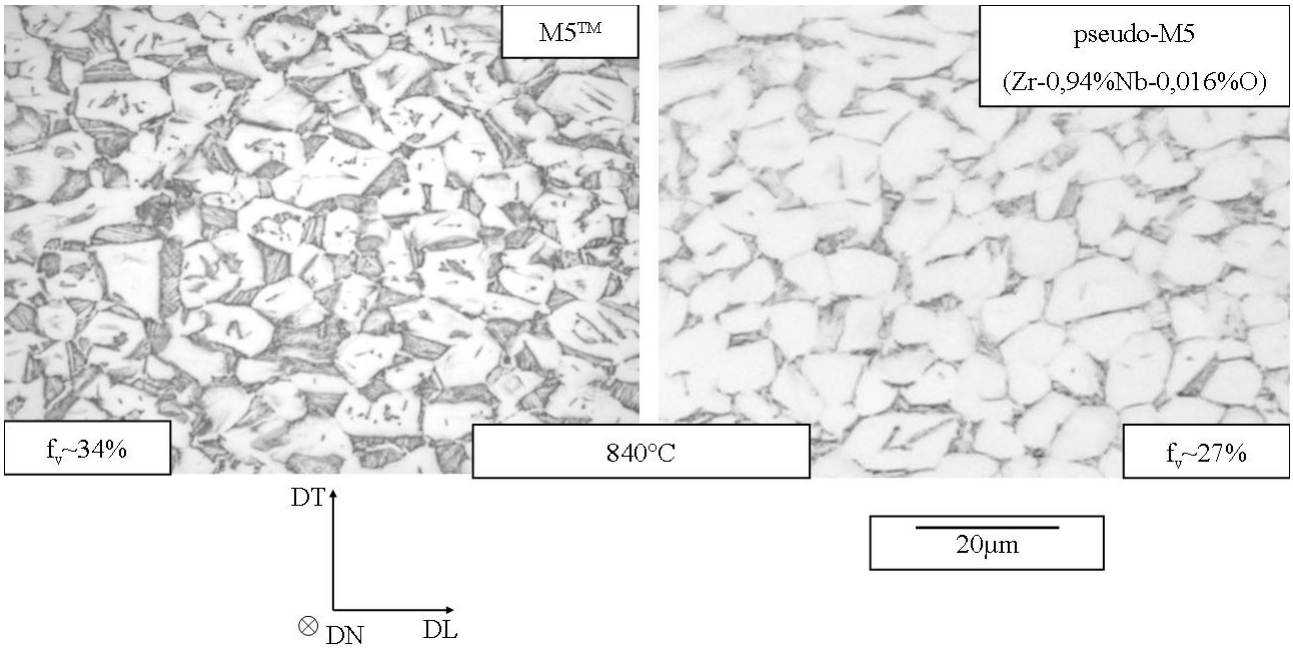


Figure 3.46 – *Micrographies optiques (lumière blanche) du M5® et du pseudo-M5 (Zr-0,94%Nb-0,16%O) après essais de fluage à 840°C (domaine biphasé (α+β)) et refroidissement four coupé (zone utile des éprouvettes)*

figure 3.45 pour chaque phase, en se basant sur le modèle identifié précédemment (prenant en compte les effets de taille de grains et de température) extrapolées à 840°C et pour les tailles de grains mesurées pour le M5® à 840°C ($4\mu m$ pour la phase β et $6{,}8\mu m$ pour la phase α). En considérant les tailles de grains observées pour le pseudo-M5, ces lois de fluage pour la phase β et la phase α auraient dû encadrer la courbe de fluage du pseudo-M5, ce qui indique à nouveau l'importance de la prise en compte de cet effet. En l'absence de matériau représentatif-α, la comparaison se concentre sur la phase β et confirme que l'on retrouve l'effet observé dans le régime de fluage diffusionnel (diminution d'environ 30% de la vitesse) et donc que l'effet du contraste « micro-chimique » apparaît faible pour la phase β, par rapport à l'effet de taille de grains déjà pris en compte.

3.2.5 Synthèse

Nous avons mis en évidence expérimentalement le contraste « micro-chimique » en niobium entre les deux phases dans le domaine biphasé. Les teneurs mesurées, d'enrichissement de la phase β et d'appauvrissement de la phase α, se sont révélées proches des teneurs à l'équilibre, prédites par les calculs thermodynamiques.

Nous nous sommes attachés à mettre en évidence un effet de ces teneurs spécifiques en niobium et oxygène sur le comportement en fluage de chaque phase, en complément de l'effet de taille de grains. La texture et la microstructure des alliages utilisés étant proches de celles du M5® à haute température, on se focalise sur l'effet de la composition chimique, moyennant la prise en compte de l'effet de taille de grains.

Ainsi, pour la phase α :
- les deux régimes de fluage se sont révélés sensibles à la teneur en niobium. Une diminution de la teneur de 1 à 0,2% entraîne à 700°C une augmentation de la vitesse de fluage

de moins d'une décade dans le régime de fluage diffusionnel et d'un peu plus d'une décade dans le régime de fluage dislocations. L'effet n'est plus que d'une demi-décade pour le régime de fluage dislocations quand la température augmente vers 840-850°C ;
- en se basant sur un effet inverse de l'enrichissement en oxygène de la phase α, on peut considérer l'effet du niobium seul comme une borne supérieure de l'effet du contraste « micro-chimique » global sur la phase α ;
- afin de compléter cette étude et réellement conclure quand à l'effet du contraste, des alliages à teneurs variables en oxygène seraient à envisager ainsi que le matériau représentatif-α, mais des difficultés de mise en œuvre liées à la fragilité de ce type d'alliage sont à attendre.

Pour la phase β, cette étude a permis d'établir les conclusions suivantes :
- le régime de fluage dislocations est sensible à la teneur en niobium, même si les écarts relevés sont moins importants que pour la phase α (une diminution de la teneur de 1 à 0,2% entraîne à 960°C une augmentation de la vitesse de fluage d'environ une demi-décade) ;
- aucun effet du niobium seul n'a clairement été mis en évidence pour le régime de fluage diffusionnel ;
- l'effet combiné de l'enrichissement en niobium et de l'appauvrissement en oxygène tel qu'observé pour la phase β dans le domaine biphasé a révélé un faible effet durcissant dans le régime de fluage dislocations (45% environ en vitesse) et dans le régime de fluage diffusionnel (30% environ en vitesse). Cet effet du contraste « micro-chimique » apparaît donc de second ordre, en ce qui concerne la phase β, par rapport à l'effet de taille de grains.

Par conséquent, le modèle de fluage prenant en compte l'effet de taille de grains ainsi que l'effet de la température semble à la vue de ces études suffisant, en première approximation, pour décrire le comportement de la phase β dans les domaines monophasé β, quasi-β voire biphasé ($\alpha + \beta$). Pour la phase α, faute d'investigations complémentaires à partir d'alliages à teneurs variables en oxygène et représentatif-α, aucune modélisation complémentaire prenant en compte un effet des éléments d'alliage n'est envisagée (les écarts maximaux de vitesse de fluage de la phase α liés au contraste « micro-chimique » sont estimés à une décade).

En complément de l'élaboration d'un nouveau matériau modèle représentatif-α, il pourrait aussi être intéressant d'élaborer un autre pseudo-M5 encore plus proche en composition chimique du M5® pour conforter la comparaison.

Chapitre 4

Simulation du comportement du matériau biphasé

L'objet de ce chapitre est l'évaluation du comportement en fluage du matériau biphasé (ou comportement effectif), à partir des lois de comportement de chaque phase et d'une information sur la répartition de ces phases au sein du matériau. Le problème de changement d'échelle est ici traité par une approche d'homogénéisation statistique et numérique permettant d'estimer ce comportement effectif à partir de simulations par éléments finis (Cast3M (CEA-SEMT (2009))) de microstructures biphasées aléatoires décrivant la morphologie 3D de chacune des phases. Cette méthode utilisant des Volumes Elémentaires Statistiques (VES) est décrite dans une première partie avant d'être appliquée afin d'atteindre trois objectifs.

Le premier objectif, traité dans la partie 4.2, est d'évaluer l'effet de la morphologie des deux phases sur le comportement en fluage du matériau biphasé, pour le comparer avec l'effet de la taille de grains et l'effet de la composition chimique (chapitre 3). Ces deux derniers effets influencent les lois de comportement de chaque phase et ont été étudiés par une approche expérimentale. L'effet de la morphologie est quant à lui estimé pour des lois de comportement données, à l'aide de simulations.

Le second et principal objectif, traité dans la partie 4.3, est la simulation du comportement du M5® dans le domaine biphasé. Les lois de comportement (des phases α et β), utilisées ici au niveau local, sont celles identifiées au niveau global dans le chapitre précédent (chapitre 3), extrapolées dans le domaine biphasé à partir des domaines quasi-monophasés respectifs. Ces lois prennent en compte deux effets (en plus de l'effet de la contrainte) : l'effet de la température et l'effet de la taille de grain. L'effet de la composition chimique est ici négligé et donc non pris en compte. Les résultats des simulations sont confrontés aux mesures expérimentales.

Le dernier objectif, traité dans les parties 4.2 et 4.3 est de valider, en les confrontant aux résultats obtenus par éléments finis, les résultats obtenus par des modèles analytiques d'homogénéisation non-linéaire au « second-ordre » (développés récemment (Ponte Castañeda (2002a, b)), et réalisés dans le cadre d'une collaboration informelle avec le Laboratoire des Propriétés Mécaniques et Thermodynamiques des Matériaux (actuellement Laboratoire des Sciences des procédés et des Matériaux, remerciements à R. Brenner et O. Castelnau, CNRS)). Etant donné le faible coût de calcul associé à ces modèles analytiques, l'enjeu de cette validation est d'un intérêt considérable. Cette collaboration avec le LPMTM n'ayant débuté qu'en fin de thèse, ce dernier objectif n'est ici malheureusement traité que partiellement.

Sommaire

4.1 Approche numérique en fluage par VES 168
4.1.1 Généralités sur la méthode 168
4.1.2 Génération des microstructures biphasées 169
4.1.2.1 Modèle de génération de microstructures biphasées du M5® . . 170
4.1.2.2 Modèles de génération de microstructures biphasées pour les autres morphologies 173
4.1.3 Conditions aux limites dans le cas du fluage 178
4.1.4 Estimation du comportement effectif et des tailles du VER et du VSR . . 183
4.1.5 Discrétisations temporelle et spatiale 184
4.1.5.1 Discrétisation temporelle 184
4.1.5.2 Discrétisation spatiale 185
4.2 Evaluation de l'effet morphologique sur le comportement en fluage . 186
4.2.1 Lois de comportement 187
4.2.2 Modèles analytiques 188
4.2.2.1 Modèles de Sachs et de Taylor 188
4.2.2.2 Approches analytiques affines et au second-ordre 189
4.2.3 Etude d'une microstructure de type polycristaux biphasés de Voronoï . . 190
4.2.3.1 Résultats des simulations par éléments finis 190
4.2.3.2 Comparaison avec les modèles analytiques 191
4.2.3.3 Moyennes par phase, percolation 192
4.2.4 Etude de la sensibilité à la morphologie 194
4.3 Evaluation du comportement en fluage du M5® dans le domaine biphasé 197
4.3.1 Evolution des lois de comportement et de la microstructure dans le domaine biphasé 197
4.3.2 Modèles analytiques 201
4.3.2.1 Modèles de Sachs et de Taylor 201
4.3.2.2 Modèle auto-cohérent (approche au second-ordre) 205
4.3.3 Simulation par éléments finis du comportement en fluage du M5® dans le domaine biphasé 206
4.3.3.1 Analyse des résultats à 1MPa 207
4.3.3.2 Analyse des résultats à 860°C 210
4.4 Conclusion 213

4.1 Approche numérique en fluage par VES

4.1.1 Généralités sur la méthode

Le problème considéré est un problème de changement d'échelle entre l'échelle microscopique où l'on considère le matériau composé de deux phases α et β homogènes, dont on suppose connaître le comportement, et l'échelle macroscopique où le matériau est considéré comme homogène. Afin de pouvoir ensuite utiliser le comportement macroscopique en fluage du matériau pour un calcul de structure (éprouvette ou gaine), l'échelle macroscopique doit rester très inférieure à l'échelle de la structure. Ceci poserait d'office un problème dans le domaine β où les tailles de grains sont importantes, mais pas dans le domaine biphasé ou quasi-β, où les grains restent petits.

Le choix de la méthode employée pour estimer le comportement macroscopique en fluage du matériau biphasé (ou comportement effectif) s'est porté sur la méthode des éléments finis. En effet, contrairement à d'autres méthodes d'estimations analytiques, comme par exemple l'approche auto-cohérente, ou de type « bornes », les méthodes numériques permettent de prendre en compte la morphologie de manière explicite, et donc de manière plus détaillée, au travers de Volumes Elémentaires (VE) de microstructure biphasée décrivant la répartition géométrique de chacune des phases. La méthode des éléments finis est employée pour résoudre le problème de mécanique de fluage que l'on pose alors à l'échelle de ces microstructures.

Ces VE sont soit obtenus directement à partir d'observations microstructurales 3D quand elles sont accessibles, par exemple par tomographie, soit simulés à partir d'un modèle aléatoire de génération de microstructure qui reproduit certaines caractéristiques morphologiques du matériau réel. Dans le premier cas, on peut accéder à des morphologies 3D réelles complexes sans avoir à les modéliser. Par contre le volume total de matériau observé est limité. Dans le second cas, une fois la difficulté de modélisation de la morphologie du matériau franchie, cette limite n'existe plus.

Si la taille du VE considéré augmente, le comportement en fluage obtenu par simulation de ce volume (ou comportement apparent) tend vers le comportement effectif que l'on cherche à estimer (*a priori* inconnu donc). On dit que la taille d'un VE est « Représentative » si la propriété étudiée est indépendante (pour une précision donnée) :

- de la taille du VE,
- du choix des conditions aux limites,
- du VE considéré.

Les VE respectant ces conditions sont appelés Volumes Elémentaires Représentatifs (VER). Cette notion de VER est donc dépendante :

- de la propriété étudiée et de la sollicitation (ici la vitesse macroscopique stationnaire de fluage en traction uniaxiale),
- du matériau : morphologie (dont la fraction volumique) et comportement intrinsèque des phases,
- de la précision de l'estimation que l'on souhaite obtenir.

L'augmentation des capacités des moyens de calcul et le développement des techniques de calcul parallèle permettent d'atteindre des volumes de simulation de plus en plus importants et ainsi, dans certains cas, de se rapprocher du VER avec une précision très fine.

En fonction du problème étudié et des capacités de calcul à disposition, la simulation d'un VER n'est cependant pas toujours accessible. Néanmoins, une approche statistique peut être

envisagée sur des VE plus petits que le VER, que l'on appelle appelle alors Volumes Elémentaires Statistiques (Ostoja-Starzewski (2006)).

Si on considère un VES plus petit que le VER, le comportement apparent est alors susceptible d'être distinct du comportement effectif, d'autant plus que le VES est petit. De plus, les comportements apparents simulés sur plusieurs réalisations indépendantes de VES présentent donc aussi *a priori* des fluctuations entre réalisations. De même, ces fluctuations sont d'autant plus importantes que les VES sont petits. Comme les simulations sur chaque VES sont indépendantes, celles-ci peuvent être effectuées en parallèle de manière directe.

L'espérance ou moyenne de ces comportements apparents peut être calculée. On peut remarquer que dans le cas de VES expérimentaux, la limite du volume total observé peut alors devenir critique, ce qui n'est pas le cas pour les VES simulés. Lorsque la taille des VES augmente, l'espérance des comportements apparents tend vers le comportement effectif du matériau. On dit que la taille d'un VES est « Statistiquement Représentative » si la propriété étudiée est indépendante (pour une précision donnée) :

– de la taille des VES,
– du choix des conditions aux limites.

Les VES respectant ces conditions sont des Volumes Statistiquement Représentatifs (VSR). Chaque VSR, sans être nécessairement individuellement un VER, contient « une part de représentativité » du comportement effectif du matériau. Cette notion de VSR est donc, comme pour la notion de VER, dépendante de la propriété étudiée, de la sollicitation, du matériau (morphologie et comportement de chacune des phases) et de la précision requise. La définition du VSR étant moins stricte que celle du VER, la taille du VSR est potentiellement inférieure à la taille du VER. Enfin, le volume du VSR (d(VSR)) désigne le volume du plus petit VSR (équation 4.1) :

$$d(VSR) \leq d(VER) \tag{4.1}$$

Le comportement effectif peut donc être estimé à partir de simulations plus légères à mettre en œuvre, mais plus nombreuses, que la simulation directe d'un VER.

Ne disposant pas de VE expérimental, la microstructure 3D est néanmoins connue grâce aux micrographies obtenues après les essais de fluage (figure 2.18) ou encore des essais de dissolution anodique sélective ne laissant que l'ex-phase β (Kaddour (2004)). Les VES sont générés numériquement. La suite de cette section détaille donc les modèles de génération de microstructures utilisées, les conditions aux limites appliquées, ainsi que les méthodes utilisées pour l'estimation du comportement effectif et de la taille des VSR.

4.1.2 Génération des microstructures biphasées

Dans cette étude, un modèle de génération de microstructures biphasées aléatoires est utilisé afin de tenter de reproduire la morphologie expérimentale du matériau réel. Dans l'objectif d'étudier l'influence de la morphologie sur le comportement en fluage du matériau biphasé, d'autres modèles ont permis de générer d'autres morphologies virtuelles de matériaux biphasés.

Un maillage par éléments finis est associé à ces modèles de génération de microstructures. Il s'agit d'un maillage cubique régulier (formant un cube de côté L correspondant à la taille du VES) pour lequel on attribue les propriétés de l'une ou l'autre des phases à chaque point de Gauss. Les interfaces sont ainsi artificiellement irrégulières en comparaison à un maillage libre. On s'intéresse ici essentiellement à la vitesse de fluage moyenne (et donc aux déformations moyennes). Diard et al. (2005) ont montré dans un cas de plasticité polycristalline que

l'influence sur les grandeurs moyennes du type de maillage (libre ou régulier) était faible. On peut penser qu'il en est de même dans cette étude qui s'apparente au cas précédent (et aussi pour laquelle de faibles contrastes sont utilisés), même si une démonstration par un comparatif analogue le confirmerait.

4.1.2.1 Modèle de génération de microstructures biphasées du M5®

Le modèle cherche à reproduire de manière purement phénoménologique la morphologie expérimentale du M5® dans le domaine biphasé telle qu'elle peut être observée expérimentalement en conditions de « quasi-équilibre » après un chauffage. On a vu sur les micrographies optiques (figure 2.18) que la phase β germe aux joints de grains α, de manière préférentielle aux joints triples. Puis cette phase croît le long de ces joints de grains et s'épaissit vers le cœur des grains α. Quelques germes de phase β sont également observés en position intragranulaire, ils sont négligés du fait de leur faible proportion en fraction. En effet, ces germes ont une croissance très limitée en comparaison des germes intergranulaires, probablement en raison de l'absorption du niobium en phase α par la phase β intergranulaire.

La microstructure initiale monophasée α est représentée par une tesselation de Voronoï dont les centres ont été générés par un processus ponctuel de Poisson (figure 4.1). La tesselation de Voronoï permet ainsi de reproduire par l'intermédiaire de polyèdres une microstructure polycristalline équiaxe (Barbe et al. (2001a, b)), chaque polyèdre représentant un grain α de la microstructure initiale, avant chauffage.

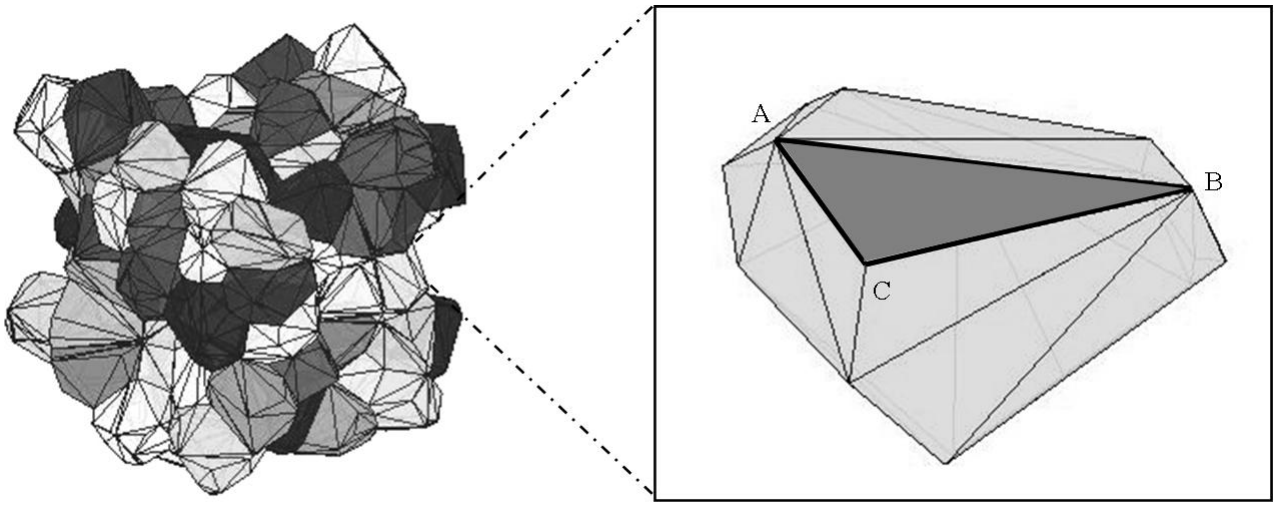


Figure 4.1 – *Exemple de microstructure initiale monophasée α (à gauche), modélisée par une tesselation de Voronoï, constituée de polyèdres (détail à droite)*

Pour un cube de côté L, intersectant la tesselation, le nombre n_g de germes α moyen ou de centres de Voronoï présents est (équation 4.2) :

$$n_g = \left(\frac{L}{L_g}\right)^3 \tag{4.2}$$

avec L_g le côté du cube correspondant en moyenne à un grain α. On précise que le nombre de grains au sein d'un VE est cependant variable d'un VE à l'autre du fait du processus de Poisson. De plus, en raison des effets de bords (une partie d'un grain est prise en compte dans

le VE alors que le germe n'appartient pas nécessairement au VE), le nombre de germes présents dans un VE est inférieur au nombre de grains intersectés par le VE. Ainsi, les VE obtenus pour $L = L_g$, dont un exemple est donné sur la figure 4.2, sont composés de plusieurs fractions de grains α.

Le processus ponctuel de Poisson permet d'inclure un premier caractère aléatoire dans le modèle de génération de microstructures. Comme on peut le trouver dans la littérature (Decker et Jeulin (2000), Kanit et al. (2003)), une contrainte de périodicité peut-être introduite artificiellement aux frontières du volume cubique en périodisant les centres de polyèdres de Voronoï. La microstructure, moins aléatoire, est constituée du motif VE reproduit à l'infini selon un réseau cubique.

A partir de ces microstructures α, on va faire pousser de la phase β à des localisations bien choisies afin de reproduire les observations expérimentales. On définit ainsi une zone proche des joints de grains à l'aide d'un champ $C(M)$.

La surface convexe des polyèdres de Voronoï, correspondant aux joints de grains α, peut être décomposée en facettes triangulaires ABC (figure 4.1). Pour chacune de ces facettes ABC, on associe un champ C^i_{ABC} en tout point M de l'espace (limité au polyèdre i considéré) décroissant de manière exponentielle quand la distance avec la facette augmente (équation 4.3) :

$$C^i_{ABC}(M) = exp\left(-\frac{d_{ABC-M}S_0}{d_0 S_{ABC}}\right) \tag{4.3}$$

avec :
- d_{ABC-M} la distance entre le point M et la facette ABC en μm,
- d_0 un paramètre de portée du champ, homogène à une longueur (en μm),
- S_{ABC} la surface de la facette ABC (en μm^2),
- S_0 un paramètre homogène à une surface (ici, choisi égal à $1\mu m^2$).

Chaque champ élémentaire C_{ABC} est donc maximum au voisinage de la facette qui le génère. Par sommation sur l'ensemble des facettes, un champ total C^i est obtenu en tout point M de l'espace limité au polyèdre i (équation 4.4) :

$$C^i(M) = \sum_{facettes\ du\ polyèdre\ i} C^i_{ABC}(M) \tag{4.4}$$

Le champ total C est obtenu par la réunion des champs C^i des différents polyèdres (équation 4.5) :

$$C(M) = \bigcup_i C^i(M) \tag{4.5}$$

Ce champ C présente des maxima aux voisinages des facettes et plus particulièrement aux joints triples (figure 4.2). Inversement, les centres des polyèdres correspondent aux minima.

Comme on peut remarquer que les polyèdres de Voronoï sont parfois composés de très petites facettes (figure 4.1), la prise en compte de la surface S_{ABC} dans le calcul des champs élémentaires C^i_{ABC} permet d'en limiter l'influence sur le champ total C (équation 4.3).

Par seuillage de ce champ, on distingue les points (de Gauss) de l'espace appartenant à la phase α (points où le champ est inférieur au critère de seuillage) de ceux correspondant à la phase β. Le critère de seuillage dépend donc, à portée d_0 donnée, de la fraction volumique visée

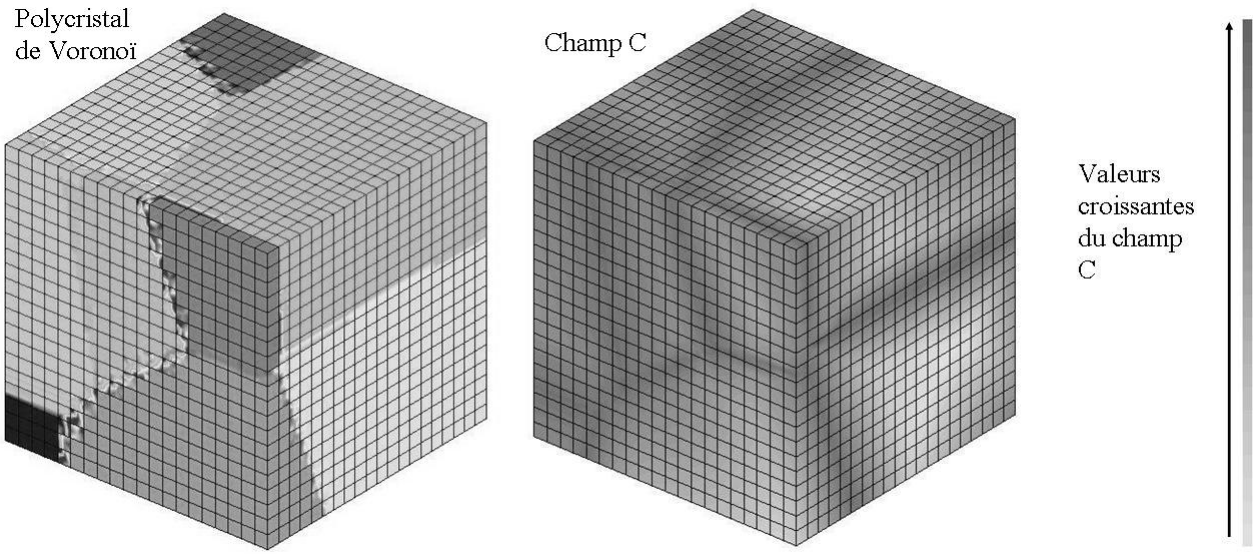


Figure 4.2 – *Exemple de maillage de quelques polyèdres de Voronoï (à gauche, n_g=1) et du champ C créé par les facettes de ces polyèdres (à droite, portée $d_0 = 0,05L_g$)*

pour la phase β (figure 4.3).

Le paramètre de portée d_0 intervenant dans la définition des champs élémentaires C_{ABC} (équation 4.3) influence les interactions entre ces champs élémentaires au niveau du champ total C. A fraction de phase β donnée, plus la portée d_0 est grande, plus les champs élémentaires interagissent et par conséquent, plus la phase β se concentre au niveau des joints triples par rapport au reste des joints de grains. A l'inverse, plus la portée est faible, plus les champs élémentaires agissent de manière indépendante au niveau du champ total et plus la phase β se répartit avec une épaisseur constante par facette autour de celle-ci.

Ce paramètre pourrait être ajusté à l'aide de covariogrammes 2D en comparant des coupes surfaciques de microstructures simulées avec les micrographies optiques expérimentales. Dans la pratique, la plage de variation possible de la portée est réduite. A fraction de phase β donnée :

- pour des portées inférieures à 0,01, aucune influence sur la morphologie de la phase β créée n'est visible,
- pour des portées supérieures à 0,1, les champs élémentaires intéragissent sur des distances trop importantes par rapport à la taille des grains et la phase β créée a une forme trop irrégulière par rapport aux morphologies expérimentales.

On a donc choisi de fixer la portée d_0 à 0,05 pour l'ensemble de l'étude.

Ce modèle permet donc de reproduire de manière phénoménologique l'apparition de la phase β lors de la transformation de phases $\alpha \rightarrow \beta$ (figure 4.4). A partir du processus poissonnien de tirage des centres des polyèdres de Voronoï, le modèle de génération de la microstructure biphasée est déterministe puisque les valeurs de d_0 et du critère de seuillage sont homogènes et fixées. Ainsi, une contrainte de périodicité pourrait être introduite uniquement en considérant une tesselation de Voronoï périodique *i.e.* une répartition périodique des centres des polyèdres de Voronoï.

Les propriétés de percolation des microstructures biphasées dépendent de la fraction volumique de chaque phase. Expérimentalement, des essais de dissolution sélective anodique effectués par Kaddour (2004) ont permis d'étudier la percolation de l'ex-phase β restante. Ainsi, à

Figure 4.3 – *Fraction de phase β visée en fonction du critère de seuillage du champ C (portée $d_0 = 0,05L_g$), construite sur la base d'un grand nombre de simulations de VE (1000 VE de taille $n_g = 1$)*

800 et 820°C, une partie de la phase β intergranulaire est déjà percolée (existence de phase ex-β après dissolution). Pour des températures plus élevées, dès 840°C, la percolation de la phase β semble complète. La phase α n'est plus percolée à 880 et 900°C. Globalement, on peut donc proposer trois intervalles correspondant à trois cas de percolation :

- pour de faibles fractions volumiques de phase β (<5%), expérimentalement observées jusqu'à 760°C, la microstructure est considérée comme quasi-α dans les chapitres précédents, seule la phase α est percolée ;
- pour des fractions volumiques de phase β comprises entre 5 et environ 60%, expérimentalement observées entre 800 et 860°C, la microstructure est bi-percolée (les deux phases, α et β sont percolées) ;
- pour des fractions volumiques de phase β supérieures à environ 60%, expérimentalement observées au-dessus de 880°C, seule la phase β est percolée.

Même si les seuils de percolation de chaque phase n'ont pas été déterminés avec précision, le modèle de génération de microstructures biphasées proposé dans cette étude possède un seuil de percolation de la phase β inférieur à 10% et un seuil de percolation de la phase α entre 40 et 50% de phase α, ce qui est conforme aux observations expérimentales.

4.1.2.2 Modèles de génération de microstructures biphasées pour les autres morphologies

D'autres modèles de génération de microstructures sont utilisés dans cette étude afin d'étudier des éventuels effets de morphologie « extrême » sur le comportement en fluage. Deux modèles classiques, de sphères booléennes et de polycristaux biphasés sont présentés dans ce paragraphe. Deux autres modèles, basés comme le modèle représentatif de la morphologie du M5® et des polycristaux biphasés, sur les polyèdres de Voronoï ont également été utilisés.

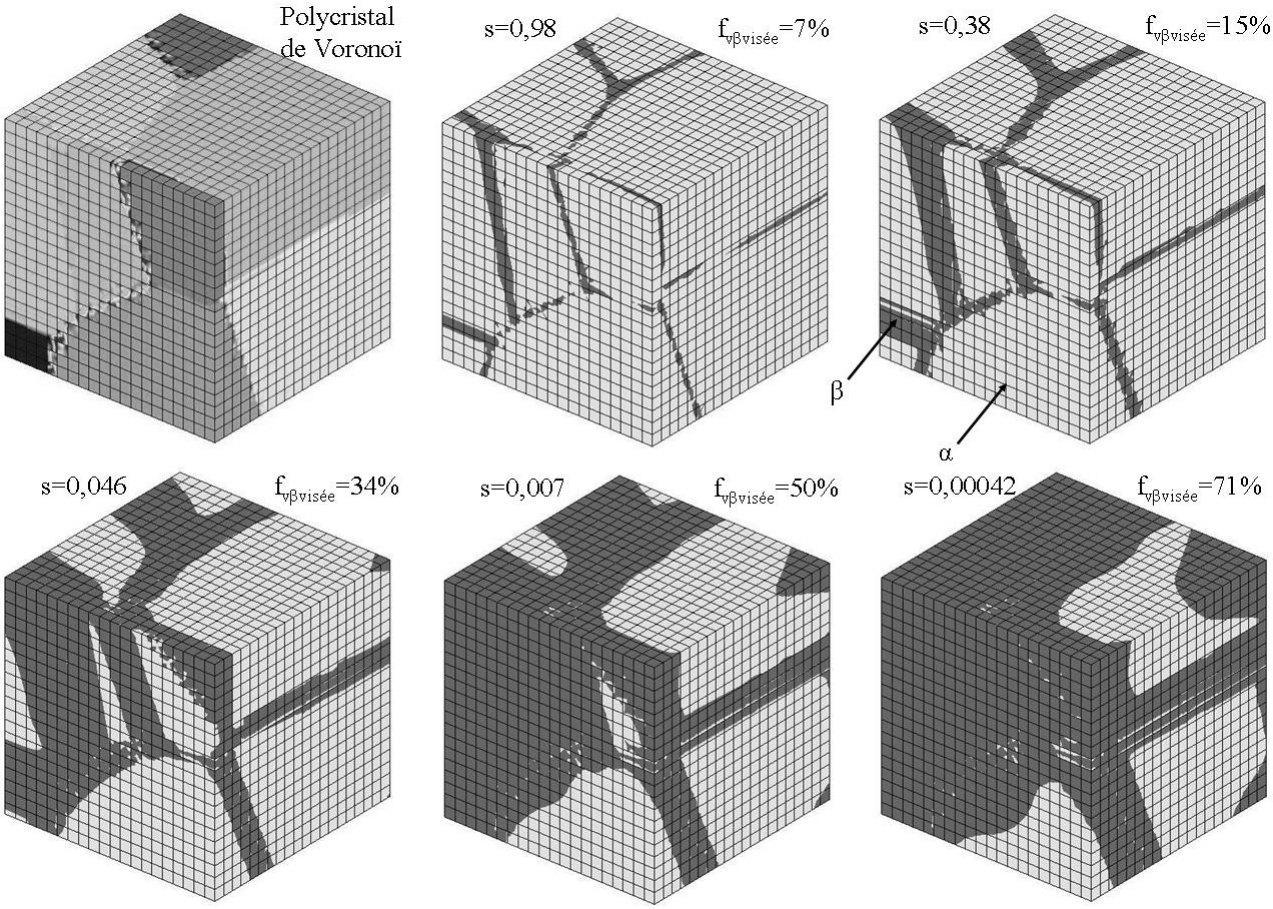


Figure 4.4 – *Exemple de maillages modélisant la microstructure biphasée du M5® à partir d'une même tesselation de Voronoï (n_g=1) et cinq valeurs du critère de seuillage, s. Nota : les artefacts observés au voisinage des interfaces sont associés à la visualisation, sous Cast3M, sous forme continue, de champs discontinus*

Pour tous les modèles de microstructure, la première étape consiste en la génération de germes par un processus ponctuel de Poisson. Leur nombre est supposé identique au nombre de germes moyen n_g utilisé dans le modèle de microstruture biphasées du M5® (équation 4.2). Mis à part pour le modèle des polycristaux biphasé de Voronoï, la seule étape aléatoire des modèles de microstructures est ce processus ponctuel de Poisson, comme expliqué précédemment.

Une contrainte de périodicité aux frontières du volume cubique peut simplement être rajoutée à ce modèle de microstructure en rendant périodique le processus ponctuel de Poisson à l'origine des centres des sphères.

Un mailllage cubique analogue est utilisé et les différents points de Gauss sont associés à l'une ou l'autre des phases et leur comportement respectif en fonction des modèles décrits ci-dessous :

1. Modèle des polycristaux biphasés de Voronoï :

   Ce modèle de microstructures a notamment été utilisé par Kanit (2003), Kanit et al. (2003), Madi et al. (2005, 2006). Il s'agit d'un appauvrissement du modèle polycristallin basé sur les polyèdres de Voronoï. Dans le cadre polycristallin, chaque grain polyédrique possède une orientation cristalline, distribuée aléatoirement en fonction de la texture

moyenne. Dans ce cas, il y a autant de phases que d'orientations cristallines considérées. Ici, pour les polycristaux biphasés, seules deux phases existent et le tirage de l'appartenance de chaque grain à l'une ou l'autre des phases se fait aléatoirement avec une probabilité égale à la fraction volumique visée.

Le caractère aléatoire du modèle réside donc dans le processus ponctuel de Poisson pour la construction des polyères de Voronoï mais aussi dans l'attribution de la phase aux différents grains.

La figure 4.5 présente un exemple de microstructure obtenue à partir d'une tesselation de Voronoï d'environ 125 germes pour une fraction volumique visée de phase β de 30%. Guering (1985) a proposé pour ce modèle un seuil de percolation de 18,5% pour la phase β. Par symétrie, on en déduit un seuil de perte de percolation de la phase α à 82,5% de phase β. Dans l'exemple de la figure 4.5, la structure est bi-percolée.

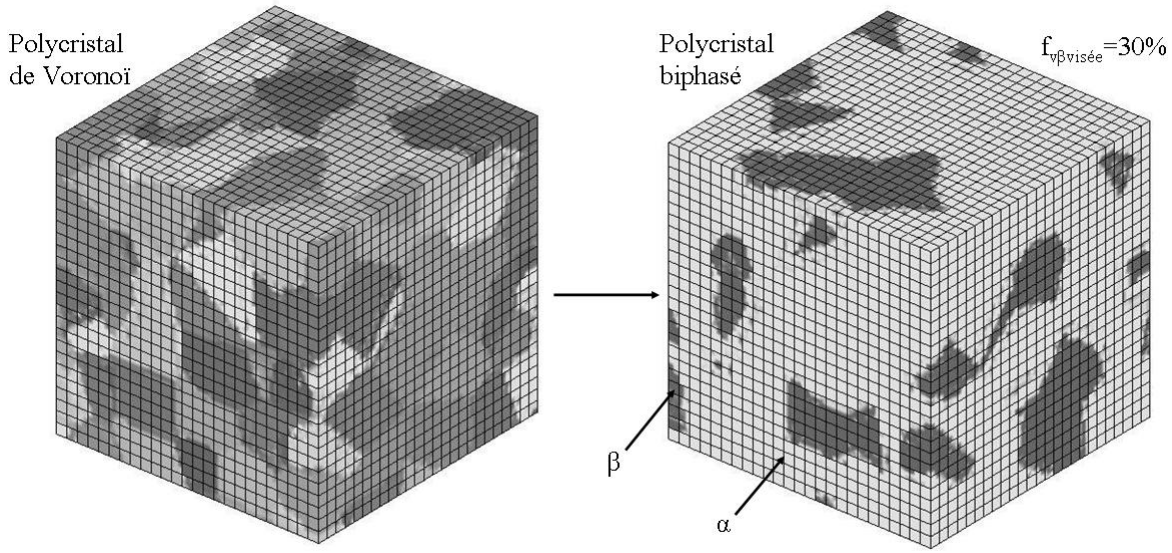


Figure 4.5 – *Exemple de maillage modélisant la microstructure d'un polycristal biphasé (à droite, $f_{v\beta visée} = 30\%$) à partir d'une tesselation de Voronoï (à gauche, $n_g = 125$)*

2. Modèle des sphères booléennes :

Ce modèle de microstructures est basé sur des sphères de diamètre donné identique d_1 dont les centres sont générés par un processus ponctuel de Poisson. L'union des sphères est constituée de phase β, le complémentaire de phase α. D'après Matheron (1975), pour une microstructure de côté L, contenant n_g sphères de diamètre d_1, la fraction volumique moyenne est donnée par (équation 4.6) :

$$f_{v\beta} = 1 - exp\left(-n_g \frac{\pi}{6} \frac{{d_1}^3}{L^3}\right) \tag{4.6}$$

La fraction volumique moyenne est donc donnée, pour un nombre n_g de sphères, en fixant leur diamètre.

La figure 4.6 présente un exemple de microstructure obtenue à partir d'environ 125 sphères booléennes pour une fraction volumique visée de phase β de 30% ($d_1 \approx 0,176 L_g$). Jeulin et

Moreaud (2005) ont évalué numériquement le seuil de percolation du modèle de sphères booléennes à 28,95%. Les auteurs proposent également la valeur de 94,6% de phase β comme seuil de perte de percolation de la phase α. La microstructure sur la figure 4.6 est bi-percolée, en accord avec ces seuils.

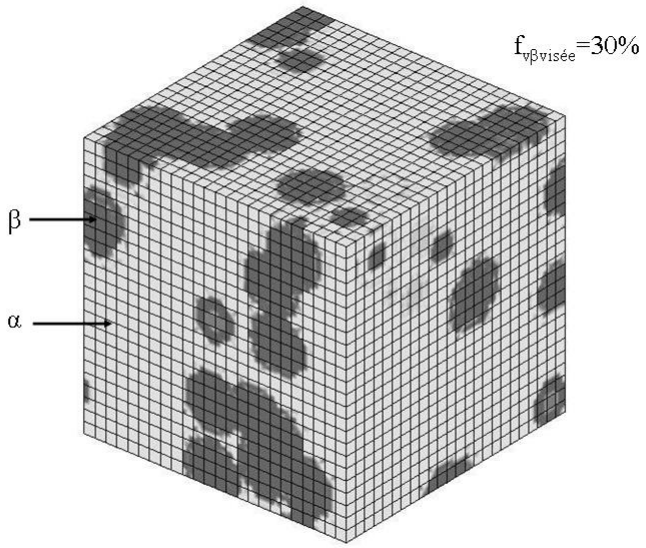


Figure 4.6 – *Exemple de maillage modélisant la microstructure biphasée de sphères booléennes ($f_{v\beta visée} = 30\%$) à partir de 125 germes en moyenne*

3. Modèle des arêtes de Voronoï :

Ce modèle de microstructure se base sur les arêtes des polyèdres de Voronoï. La microstructure biphasée obtenue est constituée par un squelette de cylindres de phase β de diamètre d_2 portés par les arêtes des polyèdres de Voronoï (figure 4.8 et 4.7). Elle est obtenue par seuillage d'un champ de distance aux arêtes.

La fraction volumique moyenne est obtenue, pour une valeur L_g donnée, en fixant le diamètre d_2 des cylindres (critère de seuillage du champ distance). La détermination est faite sur la base d'un grand nombre de simulations numériques. Par exemple, pour une fraction visée de phase β de 30%, on obtient $d_2 \approx 0,175 L_g$.

Comme les arêtes des polyèdres forment un réseau interconnecté, la percolation de la phase β est effective dès les premiers pourcents de phase. Le seuil de perte de percolation de la phase α est évalué entre 60 et 70% de phase β.

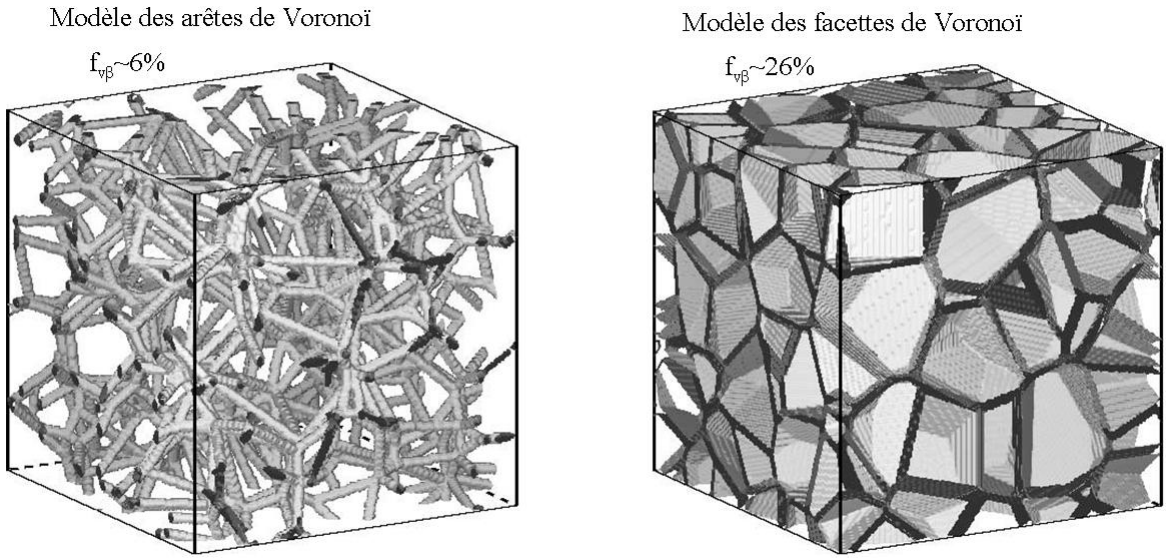


Figure 4.7 – *Exemple de microstructures biphasées obtenues à partir d'environ 100 polyèdres de Voronoï et les modèles des arêtes (à gauche) et des facettes (à droite) de Voronoï (Arns et al. (2002))*

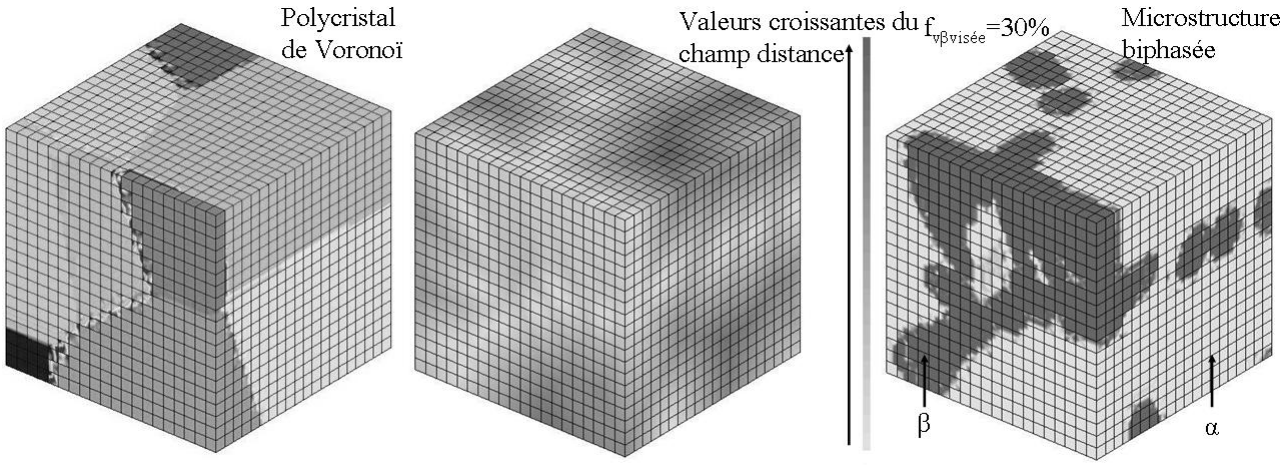


Figure 4.8 – *Exemple de maillage modélisant la microstructure biphasée (à droite, $f_{v\beta visée} = 30\%$ pour $d_2 \approx 0,175L_g$) obtenue par seuillage du champ distance (au milieu) par rapport aux arêtes des polyèdres de Voronoï (à gauche, n_g=1)*

4. Modèle des facettes de Voronoï :

Le modèle de microstructure des facettes de Voronoï est également basé sur une tesselation de Voronoï. La microstructure biphasée est constituée de volumes de phase β délimités par des plans parallèles aux facettes des polyèdres de Voronoï et d'épaisseur $d_3/2$, centrés sur les dites facettes (figure 4.7 et 4.9). Elle est obtenue par seuillage d'un champ de distance aux facettes.

L'épaisseur des facettes d_3 est déterminée, en fonction de la fraction volumique moyenne visée, sur la base d'un grand nombre de simulations numériques, pour une valeur L_g donnée. Par exemple, pour une fraction de 30%, on obtient $d_3 \approx 0,12L_g$.

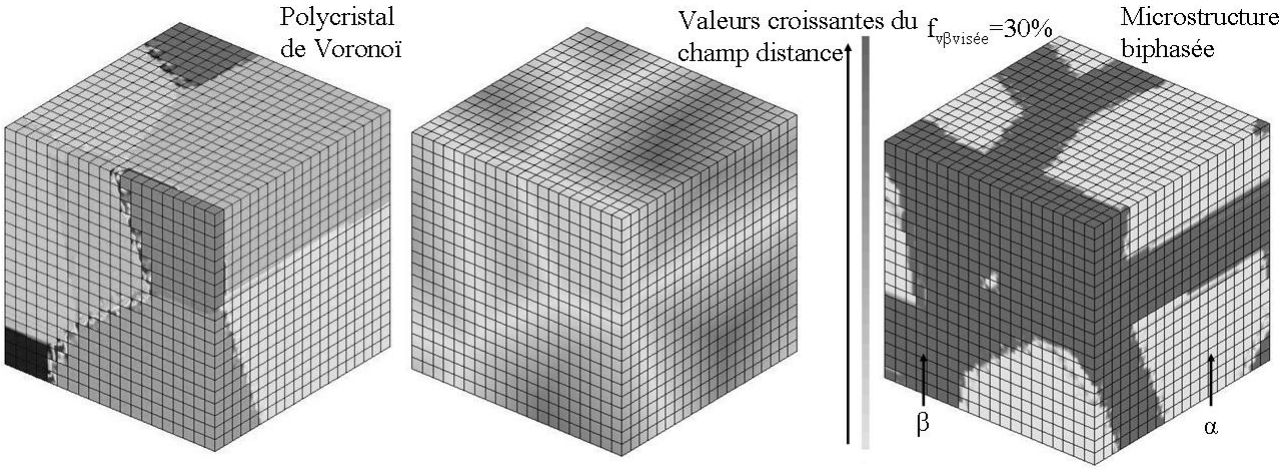


Figure 4.9 – *Exemple de maillage modélisant la microstructure biphasée (à droite, $f_{v\beta} \approx 30\%$ pour $d_3 \approx 0,12L_g$) obtenue par seuillage du champ distance (au milieu) par rapport aux facettes des polyèdres de Voronoï (à gauche, n_g=1)*

De même que pour les arêtes de Voronoï, les facettes sont interconnectées, la phase β est percolée dès les premiers pourcents de phase. Par contre, et contrairement aux autres modèles de microstructures biphasées, la phase α ne percole donc pour aucune fraction volumique.

4.1.3 Conditions aux limites dans le cas du fluage

Comme les Volumes Elémentaires (VE) cubiques simulés sont *a priori* des volumes plus petits que le VER, le type de conditions aux limites est susceptible d'influencer le comportement apparent. Dans le cas du fluage, le comportement apparent est caractérisé par la moyenne volumique de la vitesse de déformation, en régime stationnaire, sur le VE considéré. Dans ce paragraphe, les trois types de conditions aux limites employées dans l'étude sont présentés ainsi que leur adaptation dans le cas d'un chargement de fluage.

On note de manière classique la déformation locale $\underline{\underline{\varepsilon}}(M) = (\varepsilon_{ij}(M))$, la vitesse locale de déformation $\underline{\underline{\dot{\varepsilon}}}(M) = (\dot{\varepsilon}_{ij}(M))$ et la contrainte locale $\underline{\underline{\sigma}}(M) = (\sigma_{ij}(M))$ au point M du VE. La déformation $\underline{\underline{E}} = (E_{ij})$, la vitesse de déformation $\underline{\underline{\dot{E}}} = \left(\dot{E}_{ij}\right)$ et la contrainte $\underline{\underline{\Sigma}} = (\Sigma_{ij})$ macroscopiques sont définies comme étant les moyennes des grandeurs locales sur le VE considéré (équations 4.7, 4.8 et 4.9) :

$$E_{ij} = \langle \varepsilon_{ij} \rangle_{VE} = \frac{1}{V(VE)} \int_{M \in VE} \varepsilon_{ij}(M) dV(M) \tag{4.7}$$

$$\dot{E}_{ij} = \langle \dot{\varepsilon}_{ij} \rangle_{VE} = \frac{1}{V(VE)} \int_{M \in VE} \dot{\varepsilon}_{ij}(M) dV(M) \tag{4.8}$$

$$\Sigma_{ij} = \langle \sigma_{ij} \rangle_{VE} = \frac{1}{V(VE)} \int_{M \in VE} \sigma_{ij}(M) dV(M) \tag{4.9}$$

Dans la cas d'un chargement de fluage uniaxial, une contrainte macroscopique constante (et non pas une charge constante comme expérimentalement) pilote le chargement à appliquer au

VE :

$$\underline{\underline{\Sigma}} = \begin{pmatrix} \Sigma & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \tag{4.10}$$

Cette contrainte macroscopique de fluage est utilisée au travers de trois types de conditions aux limites qui s'apliquent au contour S du VE :

1. Conditions aux Limites en Contrainte Homogène pilotées en Contrainte (CLCHC) :

   Ceci consiste en l'application locale en tout point M du contour S du VE, de normale sortante $\underline{n}(M)$, de la contrainte macroscopique à travers le vecteur contrainte (équation 4.11)[1] :

   $$\underline{\underline{\sigma}}(M).\underline{n}(M) = \underline{\underline{\Sigma}}.\underline{n}(M) \tag{4.11}$$

   Le pilotage de ces conditions aux limites est naturellement en contrainte et se fait donc directement dans le cas du fluage.

2. Conditions aux Limites en Déformation Homogène pilotées en Contrainte (CLDHC) :

   La déformation homogène du VE peut se traduire en tout point M du contour S du VE par un champ de déplacement décrit par l'équation 4.12 :

   $$\underline{u}(M) = \underline{\underline{E}}.\underline{OM} \tag{4.12}$$

   Le pilotage naturel de ces conditions aux limites est donc un pilotage en déformation (Conditions aux Limites en Déformation Homogène pilotées en Déformation (CLDHD)), très facile à implémenter dans un code éléments finis en déplacement (Cast3M (CEA-SEMT (2009)) dans notre cas).

   En revanche, un pilotage en déformation étant inadapté au fluage, il a été nécessaire de mettre en place un pilotage en contrainte (Conditions aux Limites en Déformation Homogène pilotées en Contrainte (CLDHC)). Le chargement statique, appliqué sur le contour S du VE, est identique à celui utilisé en CLCHC (équation 4.11). Il est donc nécessaire d'introduire une condition cinématique complémentaire permettant d'assurer la condition de déformation homogène au contour. Cette condition est donnée par la relation 4.13 à appliquer à tous les nœuds du contour :

   $$\underline{u}(M) = \frac{x_1(M)}{x_1(A_1)}.\underline{u}(A_1) + \frac{x_2(M)}{x_2(A_2)}.\underline{u}(A_2) + \frac{x_3(M)}{x_3(A_3)}.\underline{u}(A_3) \tag{4.13}$$

   où O, A_1, A_2, A_3 sont quatre sommets du VE tels que définis sur la figure 4.10.

   Ces conditions cinématiques complémentaires sont prises en compte dans Cast3M par l'introduction de multiplicateurs de Lagrange. Ces multiplicateurs de Lagrange viennent alors perturber le champ de contrainte homogène qui aurait été obtenu par la seule application de la condition statique, sur le contour S du VE. Les contraintes peuvent donc être hétérogènes sur le contour.

[1] Sous Cast3M (CEA-SEMT (2009)), la fonction FSUR est utilisée

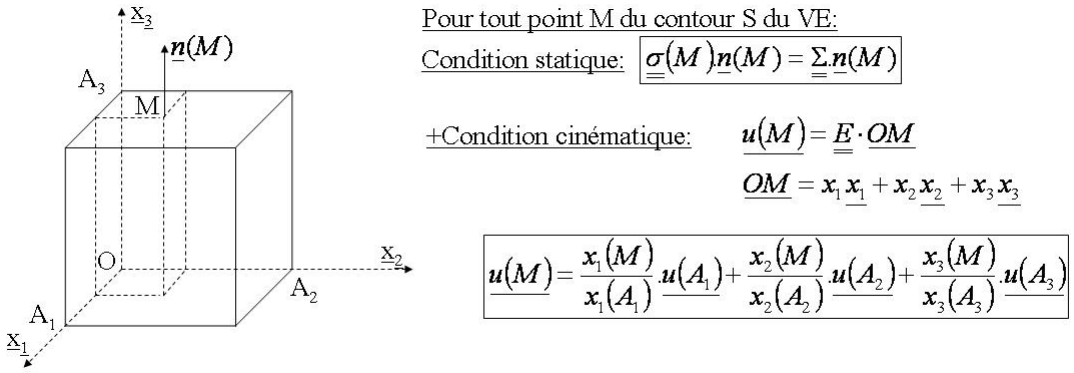


Figure 4.10 – *Application de Conditions aux Limites en Déformation Homogène pilotées en Contrainte (CLDHC) à un VES cubique, relation cinématique liant les points M du contour S du VE. O, A_1, A_2, A_3 sont quatre sommets du VE*

3. Conditions aux Limites Périodiques pilotées en Contrainte (CLPC) :

La périodicité des conditions aux limites peut se traduire de manière cinématique en tout point M du contour S du VE par l'équation 4.14 :

$$\underline{u}(M) = \underline{u}(M_0) + \underline{\underline{E}}.\underline{h} \tag{4.14}$$

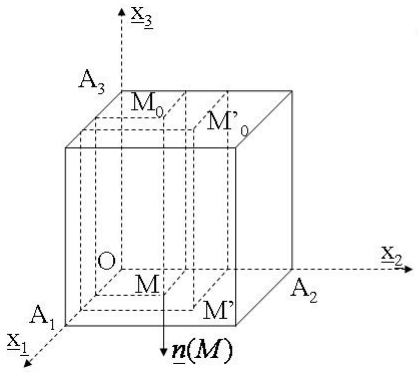
où M_0 est le point opposé à M (figure 4.11) et $\underline{h} = \underline{MM_0}$ le vecteur de périodicité.

Le pilotage de ces conditions aux limites en déformation (Conditions aux Limites Périodiques pilotées en Déformation (CLPD)) n'étant pas adapté au fluage, un pilotage en contraintes Conditions aux Limites Périodiques pilotées en Contrainte (CLPC)) a aussi été mis en place. Le chargement statique, appliqué sur le contour S du VE, est identique à celui utilisé en CLCHC (équation 4.11). Il est donc nécessaire d'introduire une condition cinématique complémentaire permettant d'assurer la périodicité au contour. Cette condition est donnée par la relation 4.15 et illustrée sur la figure 4.11, à appliquer à tous les nœuds de faces opposées du contour :

$$\forall (M, M'), \underline{u}(M) - \underline{u}(M') = \underline{u}(M_0) - \underline{u}(M'_0) \tag{4.15}$$

où (M_0, M'_0) est un couple de points opposés choisi arbitrairement.

Ces conditions cinématiques complémentaires sont prises en compte dans Cast3M par l'introduction de multiplicateurs de Lagrange. Ces multiplicateurs de Lagrange viennent alors perturber le champ de contrainte homogène qui aurait été obtenu par la seule application de la condition statique, sur le contour S du VE. Les contraintes peuvent donc être hétérogènes sur le contour.



Condition statique:

Pour tout point M du contour S du VE: $\underline{\underline{\sigma}}(M).\underline{n}(M) = \underline{\underline{\Sigma}}.\underline{n}(M)$

+Condition cinématique:

Pour tous nœuds de faces opposées (M, M') du contour S du VE:

$$\underline{u}(M) = \underline{u}(M_0) + \underline{\underline{E}} \cdot \underbrace{\underline{h}}_{=\underline{MM_0}}$$

$$\underline{u}(M') = \underline{u}(M'_0) + \underline{\underline{E}} \cdot \underbrace{\underline{h}}_{=\underline{M'M'_0}}$$

$$\boxed{\underline{u}(M) - \underline{u}(M') = \underline{u}(M_0) - \underline{u}(M'_0)}$$

Figure 4.11 – *Application de Conditions aux Limites Périodiques pilotées en Contrainte (CLPC) à un VE, relation cinématique liant les paires de points (M,M') du contour S du VE*

Pour les trois types de conditions aux limites, afin d'assurer l'unicité de la solution, il convient de bloquer le mouvement de corps rigide du VE. Pour cela, avec les notations des figures 4.10 et 4.11, on fixe le point O, on bloque les déplacements du point A_1 selon $\underline{x_2}$ et $\underline{x_3}$ et enfin le déplacement du point A_2 selon $\underline{x_3}$.

Dans le cas d'un problème élastique d'homogénéisation, Huet (1990), Hazanov et Huet (1994), Ostoja-Starzewski (2006) ont établi un certain nombre de résultats pour des VE, de taille inférieure ou égale au VER, et des partitions de ces VE, en appliquant des Conditions aux Limites en Contrainte Homogène (CLCH) et des Conditions aux Limites en Déformation Homogène (CLDH). Ces résultats ont ensuite été étendus à la viscoélasticité (Huet (1999, 2001b, a)).

Pour un VE donné, le module de rigidité apparent obtenu avec les CLCH est plus souple que celui obtenu avec les CLDH (Huet (1990), Hazanov et Huet (1994), Ostoja-Starzewski (2006)) :

$$\underline{\underline{\underline{\underline{C}}}}^{apparent}_{CLCH} \leq \underline{\underline{\underline{\underline{C}}}}^{apparent}_{CLDH} \tag{4.16}$$

Ceci équivaut à la relation suivante pour les modules de souplesse :

$$\underline{\underline{\underline{\underline{S}}}}^{apparent}_{CLDH} \leq \underline{\underline{\underline{\underline{S}}}}^{apparent}_{CLCH} \tag{4.17}$$

Les conditions aux limites périodiques (CLP) fournissent une troisième évaluation différente de la rigidité apparente (et souplesse apparente), intermédaire entre les CLCH et CLDH (Sab (1992)) :

$$\underline{\underline{\underline{\underline{C}}}}^{apparent}_{CLCH} \leq \underline{\underline{\underline{\underline{C}}}}^{apparent}_{CLP} \leq \underline{\underline{\underline{\underline{C}}}}^{apparent}_{CLDH} \tag{4.18}$$

En considérant des VES de taille d_i, la rigidité apparente en CLDH pour cette taille de VES obtenue en moyennant les rigidités apparentes entre VES est $\left\langle \underline{\underline{\underline{\underline{C}}}}^{apparent}_{CLDH} \right\rangle_{d_i}$. Cette rigidité moyenne apparente tend pour des tailles de VES infiniment petites d_0 vers le module de rigidité obtenu par la borne analytique de Voigt (hypothèse de déformation homogène). Inversement, elle tend vers le module de rigidité effectif pour des tailles de VES supérieures au VSR ou VER et *a fortiori* pour des tailles infiniment grandes d_∞. Ces notions de bornes et aussi d'effet de taille d_i de VES peuvent être traduites par l'inégalité 4.19 (Ostoja-Starzewski (2006)) :

$$\underline{\underline{\underline{\underline{C}}}}^{effectif} = \left\langle \underline{\underline{\underline{\underline{C}}}}^{apparent}_{CLDH} \right\rangle_{d_\infty} \leq ... \leq \left\langle \underline{\underline{\underline{\underline{C}}}}^{apparent}_{CLDH} \right\rangle_{d_i} \leq ... \leq \left\langle \underline{\underline{\underline{\underline{C}}}}^{apparent}_{CLDH} \right\rangle_{d_0} = \underline{\underline{\underline{\underline{C}}}}^{Voigt} \tag{4.19}$$

avec $d_i \leq d_{i+1}$.

D'une manière analoque, en considérant des VES de taille d_i, la souplesse apparente en CLCH pour cette taille de VES obtenue en moyennant les souplesses apparentes entre VES est $\left\langle \underline{\underline{\underline{\underline{S}}}}^{apparent}_{CLCH} \right\rangle_{d_i}$. Cette souplesse moyenne apparente tend pour des tailles de VES infiniment petites d_0 vers le module de souplesse obtenu par la borne analytique de Reuss (hypothèse de contrainte homogène). Inversement, elle tend vers le module de souplesse effectif pour des tailles de VES supérieures au VSR ou VER et *a fortiori* pour des tailles infiniment grandes d_∞. Ces notions de bornes et aussi d'effet de taille d_i de VES peuvent être traduites par l'inégalité 4.20 (Ostoja-Starzewski (2006)) :

$$\underline{\underline{\underline{\underline{S}}}}^{effectif} = \left\langle \underline{\underline{\underline{\underline{S}}}}^{apparent}_{CLCH} \right\rangle_{d_\infty} \leq ... \leq \left\langle \underline{\underline{\underline{\underline{S}}}}^{apparent}_{CLCH} \right\rangle_{d_i} \leq ... \leq \left\langle \underline{\underline{\underline{\underline{S}}}}^{apparent}_{CLCH} \right\rangle_{d_0} = \underline{\underline{\underline{\underline{S}}}}^{Reuss} \tag{4.20}$$

avec $d_i \leq d_{i+1}$.

$\left\langle \underline{\underline{\underline{\underline{C}}}}^{apparent}_{CLDH} \right\rangle_{d_i}$ peut être vu comme un modèle de Voigt d'un matériau constitué de phases de comportement $\underline{\underline{\underline{\underline{C}}}}^{apparent}_{CLDH}$ (hypothèse de déformation moyenne identique sur tous les VES). Et $\left\langle \underline{\underline{\underline{\underline{S}}}}^{apparent}_{CLCH} \right\rangle_{d_i}$ peut également être vu comme un modèle de Reuss d'un matériau constitué de phases de comportement $\underline{\underline{\underline{\underline{S}}}}^{apparent}_{CLCH}$ (hypothèse de contrainte moyenne identique sur tous les VES).

Un point crucial est ici mis en évidence, notamment pour des VE nettement plus petits que le VER. Il existe en effet plusieurs possibilités de moyenne à envisager, qui fournissent des comportements apparents moyens d'autant plus distincts que les comportements apparents diffèrent entre VE. Pour le problème d'élasticité, les modules de rigidité ou de souplesse peuvent être moyennés. Plus généralement, le processus de moyenne peut notamment être envisagé :

- en moyennant les contraintes à déformation (ou vitesse de déformation) macroscopique donnée,
- ou en moyennant les déformations (ou vitesses de déformation) à contrainte macroscopique donnée.

Dans le cadre de l'étude de fluage, le pilotage des simulations par éléments finis est effectué par l'intermédiaire de la contrainte macroscopique $\underline{\underline{\Sigma}}$, pour les trois types de conditions aux limites. Le processus de moyenne est donc fait obligatoirement à contrainte donnée $\underline{\underline{\Sigma}}$, le comportement apparent est ainsi évalué par la vitesse macroscopique de déformation de fluage $\underline{\underline{\dot{E}}}$.

Dans le cadre général des comportements non-linéaires, les notions de bornes citées précédemment ne sont pas établies de manière générale. On se propose néanmoins d'utiliser ici, pour un comportement élastoviscoplastique non-linéaire et une taille d_i de VES, trois estimations possibles $\left\langle \underline{\underline{\dot{E}}}^{apparent}_{CL} \right\rangle_{d_i}$ correspondant aux trois types de conditions aux limites. On peut supposer que $\left\langle \underline{\underline{\dot{E}}}^{apparent}_{CLDHC} \right\rangle_{d_i}$ correspond à une estimation raide alors que $\left\langle \underline{\underline{\dot{E}}}^{apparent}_{CLCHC} \right\rangle_{d_i}$ correspond à une estimation souple et que $\left\langle \underline{\underline{\dot{E}}}^{apparent}_{CLPC} \right\rangle_{d_i}$ est une estimation située entre les deux valeurs précédentes, ce qui est en pratique confirmé par la suite dans l'ensemble.

$\left\langle \underline{\underline{\dot{E}}}^{apparent}_{CLCHC} \right\rangle_{d_i}$ correspond à une hypothèse de contrainte identique entre les VES et de contrainte homogène au contour ; tandis que $\left\langle \underline{\underline{\dot{E}}}^{apparent}_{CLDHC} \right\rangle_{d_i}$ correspond à une hypothèse de contrainte identique entre les VES et de déformation homogène au contour, il y a donc peu de chance que cette estimation corresponde à une borne.

Ces vitesses moyennes apparentes tendent pour des tailles de VES infiniment petites d_0 vers la vitesse de fluage obtenue par le modèle analytique de Sachs (1928) (hypothèse de contrainte homogène). Inversement, elles tendent vers la vitesse effective pour des tailles de VES supérieures au VSR ou VER et *a fortiori* pour des tailles infiniment grandes d_∞.

4.1.4 Estimation du comportement effectif et des tailles du VER et du VSR

La simulation du comportement apparent du VER permet d'obtenir directement à partir de la vitesse macroscopique de déformation le comportement effectif du matériau, indépendamment du type de conditions aux limites choisi. D'un point de vue pratique, un VE est considéré comme VER si l'écart entre les vitesses apparentes obtenues par CLCHC et CLDHC est inférieur à 5%, quelle que soit la réalisation de VE. Notons toutefois que, dans ce travail, le VER ainsi défini n'a jamais pu être atteint.

Pour une morphologie donnée (notamment le paramètre de fraction volumique de chaque phase), un comportement de chaque phase donné et une contrainte axiale de fluage donnée, une démarche analogue à Kanit (2003), Madi (2006) est employée pour évaluer le comportement effectif, *i.e.* la vitesse axiale effective de fluage.

En plus de la sensibilité aux conditions aux limites, le comportement apparent est aussi susceptible d'être différent du comportement apparent simulé à partir d'un autre VE de même taille. L'idée est alors de moyenner les comportements moyens entre VE, pour chaque type de conditions aux limites, afin d'estimer au mieux le comportement effectif du matériau à partir de cette taille de VE. Il s'agit alors d'une approche statistique sur des VES, chaque VE étant considéré comme un VES. Les réalisations et simulations sont donc multipliées afin d'évaluer la moyenne stabilisée ou espérance $\mu\left(\dot{E}\right)_{VES}$ de la vitesse axiale de fluage entre VES de même taille.

Ainsi, après chaque simulation, pour chaque type de conditions aux limites, l'espérance $\mu\left(\dot{E}\right)_{VES}$ de la vitesse de fluage est estimée à partir de la moyenne arithmétique des vitesses de fluage macroscopiques des n différents VES :

$$\left\langle \dot{E} \right\rangle_{nVES} = \frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n} \dot{E}_i \tag{4.21}$$

En considérant que la vitesse de fluage de chaque VES est une fonction stationnaire ergodique, la variance σ^2 peut être estimée pour la variance ponctuelle s^2 pour n VES (Kanit et al. (2003), Kanit (2003), Madi et al. (2005, 2006), Madi (2006)) :

$$s^2 = \frac{n}{n-1}\left(\left\langle \dot{E}^2 \right\rangle_{nVES} - \left\langle \dot{E} \right\rangle^2_{nVES}\right) \overset{n\to\infty}{\to} \mu\left(\dot{E}^2\right) - \mu\left(\dot{E}\right)^2 = \sigma^2 \tag{4.22}$$

En considérant une loi normale de répartition des vitesses, hypothèse que l'on pourrait vérifier, ceci permet d'estimer un intervalle de confiance et une erreur relative $e_{relative}$ commise dans

l'estimation de l'espérance $\mu\left(\dot{E}\right)_{VES}$ de la vitesse de fluage à partir de la moyenne arithmétique $\left\langle \dot{E} \right\rangle_{nVES}$ (Kanit et al. (2003), Kanit (2003), Madi et al. (2005, 2006), Madi (2006)) :

$$e_{relative} \approx \frac{2s}{\sqrt{n}\left\langle \dot{E} \right\rangle_{nVES}} \tag{4.23}$$

Lorsque cette erreur relative $e_{relative}$ devient inférieure à 5%, on considère que l'on a simulé suffisamment de VES pour évaluer l'espérance $\mu\left(\dot{E}\right)_{VES}$ de la vitesse axiale de fluage entre VES. A partir de ce nombre de VES, l'estimation du comportement effectif est donc obtenue avec la vitesse moyenne entre les VES avec les CLPC. Deux estimations sont également proposées à partir des CLCHC et CLDHC. Si ces estimations n'ont pas un statut rigoureux de borne, les résultats obtenus montrent globalement qu'elles sont néanmoins des estimations respectivement plutôt souple et plutôt raide.

Huet (1990), Sab (1992), Ostoja-Starzewski (1998), Kanit et al. (2003) ont observé pour des VE petits (quelques grains dans leurs cas) un biais entre les espérances de comportement apparent et le comportement effectif recherché. Les espérances de vitesses de fluage, pour une taille de VES donnée, sont donc susceptibles d'être différentes en fonction du type de conditions aux limites employé. Afin d'estimer plus précisément la vitesse de fluage effective, de plus grands VES sont à utiliser, dans la limite des moyens de calcul.

Si, pour une taille de VES donnée, l'écart entre les espérances des vitesses évaluées par les CLDHC et CLCHC est inférieur à 5%, les VES sont alors considérés comme des Volumes Statistiquement Représentatifs (VSR) car ils permettent d'estimer le comportement effectif par une approche statistique.

Dans le cas d'un fort contraste entre phases et d'une phase « molle » débouchante, il est probable que l'estimation obtenue par les CLCHC soit une estimation très souple de la vitesse effective de fluage, par rapport aux autres types de conditions aux limites (CLDHC et CLPC). La définition du VSR proposée ici est donc assez sévère. On aurait pu assouplir cette définition en ne considérant que l'écart entre CLPC et CLDHC.

4.1.5 Discrétisations temporelle et spatiale

L'objectif de ce paragraphe est d'assurer, en amont de l'étude de l'effet morphologique, la stabilité des simulations par éléments finis par rapport aux pas de discrétisation, *i.e.* la convergence temporelle et spatiale des résultats.

4.1.5.1 Discrétisation temporelle

Le calcul par éléments finis s'effectue grâce à une discrétisation temporelle régulière, *i.e.* un découpage en pas de temps réguliers. L'objectif de ce paragraphe est de qualifier un choix automatique et robuste de pas de calcul, assurant la convergence temporelle. Par ailleurs, comme on s'intéresse à la vitesse du fluage en régime permanent, on souhaite interrompre le calcul dès que ce régime est atteint.

Le modèle de microstructure des polycristaux biphasés de Voronoï a été utilisé pour cette étude. Une tesselation contenant 36 germes (30 germes visés) a permis de générer cinq microstructures biphasées contenant environ respectivement 10-30-50-70 et 90% de phase β. Les lois

de comportement, décrites au paragraphe 4.2.1, ont été attribuées aux phases α et β.

Ces microstructures biphasées ont été discrétisées selon quatre maillages réguliers :
- 27000 éléments cubiques linéaires (cub8) monophasés,
- 27000 éléments cubiques linéaires (cub8) polyphasés,
- 3375 éléments cubiques quadratiques (cu20) monophasés,
- 3375 éléments cubiques quadratiques (cu20) polyphasés.

Le chargement de fluage de 100MPa est appliqué avec une mise en charge d'une seconde[2], discrétisée en dix pas, selon les conditions aux limites périodiques (CLPC). De façon à atteindre le régime permanent de fluage, des durées de simulation de 800-400-200-100 et 50s ont été choisis respectivement pour 10-30-50-70 et 90% de phase β. Des pas en nombre croissant ont été utilisés. La convergence des résultats est étudiée du point de vue des vitesses (ou contraintes) de fluage moyennes et moyennes par phase.

Pour les quatre types de maillage, les figures C.1, C.2, C.3 et C.4 regroupent dans l'annexe C les résultats des simulations de fluage. Ces simulations montrent qu'il faut choisir un minimum d'environ 40 pas de calcul par pourcent de déformation finale pour s'assurer dans tous les cas de la convergence temporelle des calculs.

Ne connaissant pas *a priori* la déformation finale avant de réaliser la simulation, il convient d'utiliser l'estimation du modèle de Sachs (1928), qui est dans la plupart des cas rencontrés une valeur majorante. Cette estimation est possible à partir de la donnée de la fraction volumique de phase β de la microstructure à simuler. Cette approche permet de choisir une discrétisation temporelle robuste vis-à-vis des différentes fractions volumiques et microstructures.

Si la phase α s'est déformée d'environ 0,5%, on a observé (annexe C sur les figures C.5 et C.6) que le régime permanent est atteint. Afin de s'assurer *a priori* que la durée totale de la simulation permette bien d'atteindre le régime permanent, on considère, dans le cas le plus défavorable le temps mis par une microstructure monophasée, uniquement constituée de phase dure pour atteindre la déformation de 0,5%. Cette surestimation ne porte pas préjudice au temps de calcul car ce dernier est en fait interrompu dès que l'on détecte, au cours du calcul que le régime permanent est considéré comme atteint.

En effet, au cours du calcul, la fin du régime transitoire est détectée en se basant sur la linéarité par rapport au temps de la déformation (annexe C, figure C.7) avec un critère limite de 0,0001, sur un intervalle de temps « glissant ».

4.1.5.2 Discrétisation spatiale

Le calcul par éléments finis nécessite également une discrétisation spatiale de la géométrie. Dans le cas de notre étude, il s'agit d'un maillage cubique régulier. Des éléments linéaires (cub8) et quadratiques (cu20), monophasés et polyphasés ont été utilisés. L'objectif de ce paragraphe est, d'une part, de choisir parmi ces éléments ceux les plus adaptés à la modélisation envisagée. De plus, le degré de raffinement du maillage assurant la convergence spatiale est aussi étudié.

Comme précédemment, le modèle de microstructure des polycristaux biphasés de Voronoï a été utilisé pour cette étude. La même tesselation que précédemment, contenant 36 germes (30

[2]Même si cette mise en charge de 1s est conservée dans l'étude de la discrétisation spatiale, par la suite, la charge de fluage est appliquée dès le premier pas de calcul.

germes visés), a permis de générer cinq microstructures biphasées contenant environ respectivement 10-30-50-70 et 90% de phase β. Les lois de comportement, décrites au paragraphe 4.2.1, ont été attribuées aux phases α et β.

De même, le chargement de fluage de 100MPa est appliqué avec une mise en charge d'une seconde, discrétisée en dix pas, selon les conditions aux limites périodiques (CLPC). De façon à atteindre le régime permanent de fluage, des temps de simulation de 800-400-200-100 et 50s ont été choisis respectivement pour 10-30-50-70 et 90% de phase β. 80 pas de temps égaux fractionnent les temps de simulation, ce qui est suffisant pour assurer la convergence temporelle d'après le paragraphe précédent. Un nombre croissant d'éléments consituant le maillage est choisi.

La géométrie des microstructures à simuler étant susceptible d'être dégradée par la discrétisation spatiale, l'étude de la fraction volumique de phase β a montré (figure C.8 en annexe C) l'intérêt d'utiliser des éléments polyphasés (sans augmentation des temps de simulation).

L'étude des vitesses de fluage a ensuite mis en évidence que les éléments quadratiques, au contraire des éléments linéaires, permettaient d'atteindre des résultats convergés spatialement du point de vue des vitesses de fluage moyenne et moyennes par phase (figures C.9, C.10, C.11 et C.12 en annexe C).

Dans le cas du modèle des polycristaux biphasés de Voronoï, indépendamment de la fraction de phase β, un raffinement de 125 éléments quadratiques polyphasés par germe est donc choisi, à partir de l'ensemble des simulaions réalisées (figures C.9, C.10, C.11 et C.12 en annexe C).

Pour la fraction de phase β visée d'environ 30%, des simulations ont été effectuées avec les trois types de conditions aux limites sur des maillages d'éléments quadratiques polyphasés pour chaque modèle de microstructures étudié. La figure C.13 détaille les évolutions des vitesses de fluage moyenne et moyennes par phase en fonction de la discrétisation spatiale.

En analysant ces résultats (figure C.13 en annexe C), le raffinement nécessaire à la convergence spatiale a été choisi. Par germe contenu dans la microstructure, on a donc dû utiliser :
- pour le modèle des polyèdres biphasés de Voronoï, 125 éléments,
- pour le modèle des sphères booléennes, 216 éléments,
- pour le modèle des arêtes de Voronoï, 3375 éléments,
- pour le modèle des facettes de Voronoï, 8000 éléments,
- pour le modèle de microstructures biphasées du M5®, 8000 éléments.

4.2 Evaluation de l'effet morphologique sur le comportement en fluage

Cette approche est utilisée dans un premier temps afin d'évaluer un possible effet morphologique sur le comportement en fluage. Après une brève description des lois de comportement de chaque phase, des modèles analytiques sont ensuite présentés et sont confrontés aux simulations par éléments finis. Les études de sensibilité à la fraction volumique et à la morphologie sont ensuite détaillées.

4.2.1 Lois de comportement

Le comportement de chaque phase est de type élasto-viscoplastique à seuil nul (avec une limite d'élasticité nulle). Dans une démarche d'analyse de l'effet de la morphologie, des lois de comportement simplifiées par rapport aux lois expérimentales sont choisies. Le caractère non-linéaire des lois est néanmoins conservé.

Il s'agit du modèle de fluage de Norton, implanté en « petites déformations » dans Cast3m CEA-SEMT (2009). L'intégration de la loi de comportement est réalisée par une méthode de point fixe. L'équation 4.24 décrit la partition des déformations entre parties élastique $\underline{\underline{\varepsilon^e}}$ et viscoplastique $\underline{\underline{\varepsilon^{vp}}}$. Il s'agit donc d'un modèle à une variable d'état $\underline{\underline{\varepsilon}}$ et une variable interne $\underline{\underline{\varepsilon^{vp}}}$.

$$\underline{\underline{\varepsilon}} = \underline{\underline{\varepsilon^e}} + \underline{\underline{\varepsilon^{vp}}} \tag{4.24}$$

On considère la loi de Hooke pour l'élasticité (équation 4.25) :

$$\underline{\underline{\sigma}} = \frac{E}{1+\nu}\left(\underline{\underline{\varepsilon^e}} + \frac{\nu}{1-2\nu} tr\left(\underline{\underline{\varepsilon^e}}\right)\underline{\underline{I}}\right) \tag{4.25}$$

Aucun contraste entre phases n'est considéré au niveau des paramètres élastiques (valeurs choisies arbitrairement à E=100GPa et ν=0,3).

En ce qui concerne la déformation viscoplastique $\underline{\underline{\varepsilon^{vp}}}$, on a un modèle associé avec critère de von Misès, en 3D (équation 4.26) :

$$\underline{\underline{\dot{\varepsilon}^{vp}}} = \left[\dot{\varepsilon}_0\left(\frac{\sigma_{VM}}{\sigma_0}\right)^n\right]\frac{3}{2}\frac{\underline{\underline{\sigma^D}}}{\sigma_{VM}} \tag{4.26}$$

avec :
- $\dot{\varepsilon}_0$, homogène à une vitesse de déformation,
- σ_{VM} la contrainte équivalente de Von Misès,
- σ_0 un paramètre homogène à une contrainte (ici, choisi égal à 1MPa),
- $\underline{\underline{\sigma^D}}$ la partie déviatorique de la contrainte.

Dans une démarche d'analyse de l'effet morphologique, afin de s'affranchir de l'influence de la contrainte, un contraste constant de vitesse de fluage entre les phases est considéré. L'exposant de Norton n est donc choisi identique pour les deux phases, égal à 4, valeur observée expérimentalement pour la phase β dans le régime de fluage dislocations. D'après Rougier et al. (1993), le matériau biphasé obéira également à une loi de Norton de même exposant. Une seule contrainte a donc besoin d'être testée, choisie ici arbitrairement à 100MPa. Un contraste de 100 est considéré au niveau des vitesses, la phase la plus résistante au fluage étant la phase α. Il s'agit du contraste maximum prévu par la modélisation du chapitre précédent prenant en compte l'effet de taille de grains entre 820 et 900°C. Le tableau 4.1 regroupe les paramètres matériau du modèle de Norton utilisé pour les phases α et β.

Phase	α	β
n	4	4
$\dot{\varepsilon}_0$	$10^{-13}s^{-1}$	$10^{-11}s^{-1}$

Tableau 4.1 – *Paramètres matériau choisis pour le modèle de Norton pour les phases α et β pour tester l'effet de morphologie*

4.2.2 Modèles analytiques

4.2.2.1 Modèles de Sachs et de Taylor

Les modèles de Sachs (1928) et Taylor (1938) peuvent être utilisés pour estimer, à partir des lois de fluage pour les phases α et β et de la fraction volumique de phase β, la vitesse de fluage du matériau biphasé. L'élasticité est négligée dans ces deux modèles.

Ces deux modèles sont basés sur une hypothèse d'homogénéité des contraintes et vitesses de fluage par phase soit, selon l'axe de la sollicitation :

$$\dot{\varepsilon}_\alpha = \dot{\varepsilon}_{0\alpha}\sigma_\alpha^n \tag{4.27}$$

$$\dot{\varepsilon}_\beta = \dot{\varepsilon}_{0\beta}\sigma_\beta^n \tag{4.28}$$

Le modèle de Sachs suppose une contrainte homogène dans les phases α et β, égale à la contrainte de fluage :

$$\Sigma = \sigma_\alpha = \sigma_\beta \tag{4.29}$$

La vitesse de fluage de chaque phase et du matériau biphasé sont déduites directement :

$$\dot{E} = (1 - f_{v\beta})\,\dot{\varepsilon}_\alpha + f_{v\beta}\dot{\varepsilon}_\beta \tag{4.30}$$

$$\dot{E} = (1 - f_{v\beta})\left[\dot{\varepsilon}_{0\alpha}\Sigma^n\right] + f_{v\beta}\left[\dot{\varepsilon}_{0\beta}\Sigma^n\right] = \left[(1 - f_{v\beta})\,\dot{\varepsilon}_{0\alpha} + f_{v\beta}\dot{\varepsilon}_{0\beta}\right]\Sigma^n \tag{4.31}$$

Le modèle de Taylor suppose au contraire une vitesse de déformation homogène dans les phases α et β, égale à la vitesse de fluage recherchée :

$$\dot{E} = \dot{\varepsilon}_\alpha = \dot{\varepsilon}_\beta \tag{4.32}$$

Comme l'exposant de Norton n est le même pour les deux phases, la solution est explicite dans ce cas à partir de la contrainte de fluage :

$$\Sigma = (1 - f_{v\beta})\,\sigma_\alpha + f_{v\beta}\sigma_\beta \tag{4.33}$$

$$\sigma_\alpha = \frac{\dot{\varepsilon}_{0\beta}^{1/n}\Sigma}{\dot{\varepsilon}_{0\beta}^{1/n} + f_{v\beta}\left(\dot{\varepsilon}_{0\alpha}^{1/n} - \dot{\varepsilon}_{0\beta}^{1/n}\right)} \tag{4.34}$$

$$\sigma_\beta = \frac{\dot{\varepsilon}_{0\alpha}^{1/n}\Sigma}{\dot{\varepsilon}_{0\beta}^{1/n} + f_{v\beta}\left(\dot{\varepsilon}_{0\alpha}^{1/n} - \dot{\varepsilon}_{0\beta}^{1/n}\right)} \tag{4.35}$$

$$\dot{E} = \frac{\dot{\varepsilon}_{0\alpha}\dot{\varepsilon}_{0\beta}\Sigma^n}{\left[\dot{\varepsilon}_{0\beta}^{1/n} + f_{v\beta}\left(\dot{\varepsilon}_{0\alpha}^{1/n} - \dot{\varepsilon}_{0\beta}^{1/n}\right)\right]^n} \tag{4.36}$$

Pour ces lois de comportement, les modèles de Sachs et de Taylor constituent des bornes pour les vitesses de fluage, respectivement supérieure et inférieure. Ces bornes sont reportées sur la figure 4.12. L'écart entre les bornes est nul pour les matériaux monophasés α ($f_{v\beta} = 0\%$) et β ($f_{v\beta} = 100\%$) et maximum (facteur 12,3 environ en vitesse) pour la fraction :

$$f_{v\beta} = \frac{\left(1 - \dfrac{\dot{\varepsilon}_{0\beta}}{\dot{\varepsilon}_{0\alpha}}\right) + n\left(1 - \left(\dfrac{\dot{\varepsilon}_{0\beta}}{\dot{\varepsilon}_{0\alpha}}\right)^{1/n}\right)}{(n+1)\left(1 - \dfrac{\dot{\varepsilon}_{0\beta}}{\dot{\varepsilon}_{0\alpha}}\right)\left(1 - \left(\dfrac{\dot{\varepsilon}_{0\beta}}{\dot{\varepsilon}_{0\alpha}}\right)^{1/n}\right)} \approx 28,4\% \tag{4.37}$$

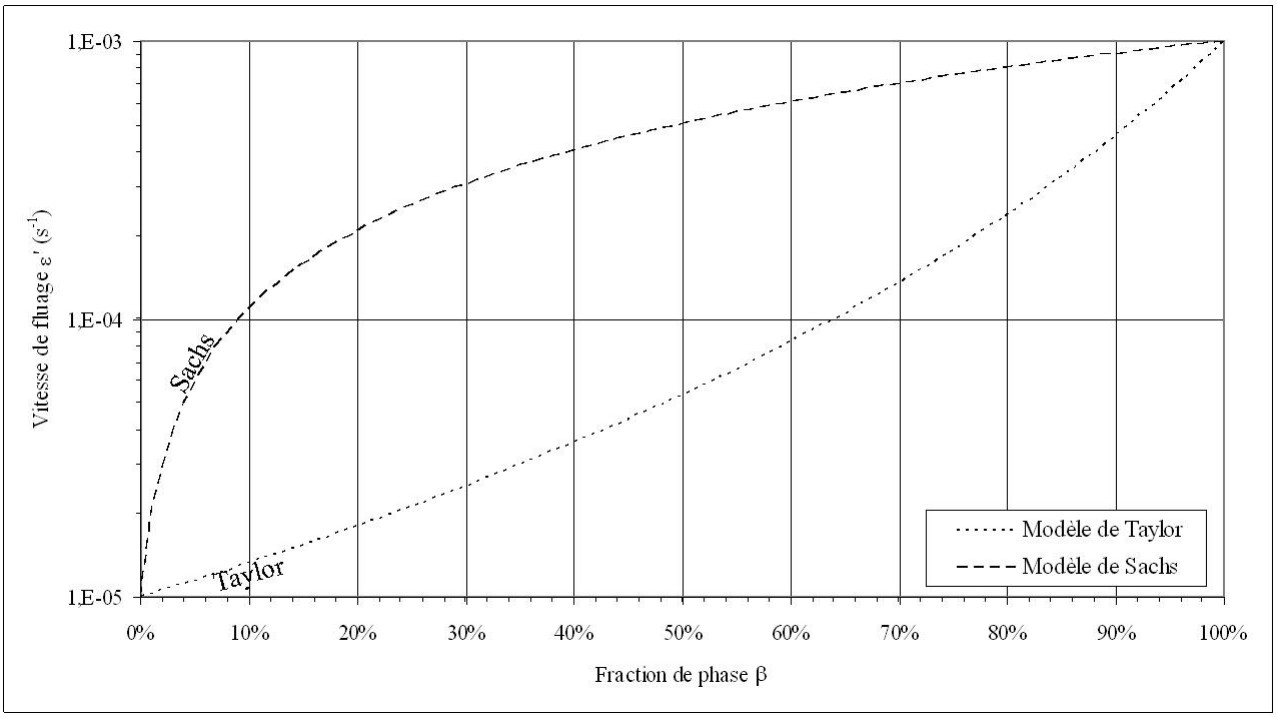


Figure 4.12 – *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la fraction volumique de phase β pour les modèles de Taylor et de Sachs (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)*

L'écart entre les bornes de Taylor et Sachs étant élevé, il est nécessaire de proposer une meilleure estimation, ce à quoi l'on s'attache dans la suite par l'intermédiaire des simulations par éléments finis et d'autres modèles analytiques.

4.2.2.2 Approches analytiques affines et au second-ordre

Deux approches supplémentaires utilisées au Laboratoire des Propriétés Mécaniques et Thermodynamiques des Matériaux (R. Brenner et O. Castelnau, CNRS) ont également été envisagées. Ces méthodes ont notamment été utilisées par Brenner et al. (2002), Brenner et Masson (2005), Castelnau et al. (2006).

Il s'agit d'approches de type champs moyens basées sur une approche affine (approximation locale de la loi de comportement par sa tangente (Masson et Zaoui (1999), Masson et al. (2000))) ou une approche au second-ordre (développement de Taylor au second-ordre du potentiel d'où dérive la loi de comportement (Ponte Castañeda (2002a, b))). On ne retiendra ici que les résultats obtenus par l'approche au second-ordre, les résultats obtenus par le modèle affine sont présentés en annexe C sur la figure C.15 (de même que ceux obtenus par le modèle de Berveiller et Zaoui (1979) (basé sur l'approximation sécante du modèle auto-cohérent, sur la figure C.14)). L'estimation de la vitesse de fluage est obtenue avec un schéma auto-cohérent.

Les estimations d'Hashin-Shtrikman ont également été évaluées. La morphologie utilisée dans cette modélisation est donc de type inclusion-matrice, *i.e.* seule la matrice est percolée. Pour l'estimation supérieure (HS+), la phase la moins résistante au fluage est la matrice alors que pour l'estimation inférieure (HS-), la matrice est la phase la plus résistante.

La figure 4.13 présente les courbes de vitesses données par l'approche au second-ordre, le

modèle auto-cohérent, ainsi que les estimations d'Hashin-Shtrikman. L'estimation inférieure d'Hashin-Shtrikman est relativement proche du modèle de Taylor alors que l'estimation supérieure est nettement inférieure au modèle de Sachs. Jusqu'à environ 30% de phase β, le modèle auto-cohérent est très proche de l'estimation inférieure d'Hashin-Shtrikman. A partir d'environ 90% de phase β, il est au contraire proche de l'estimation supérieure.

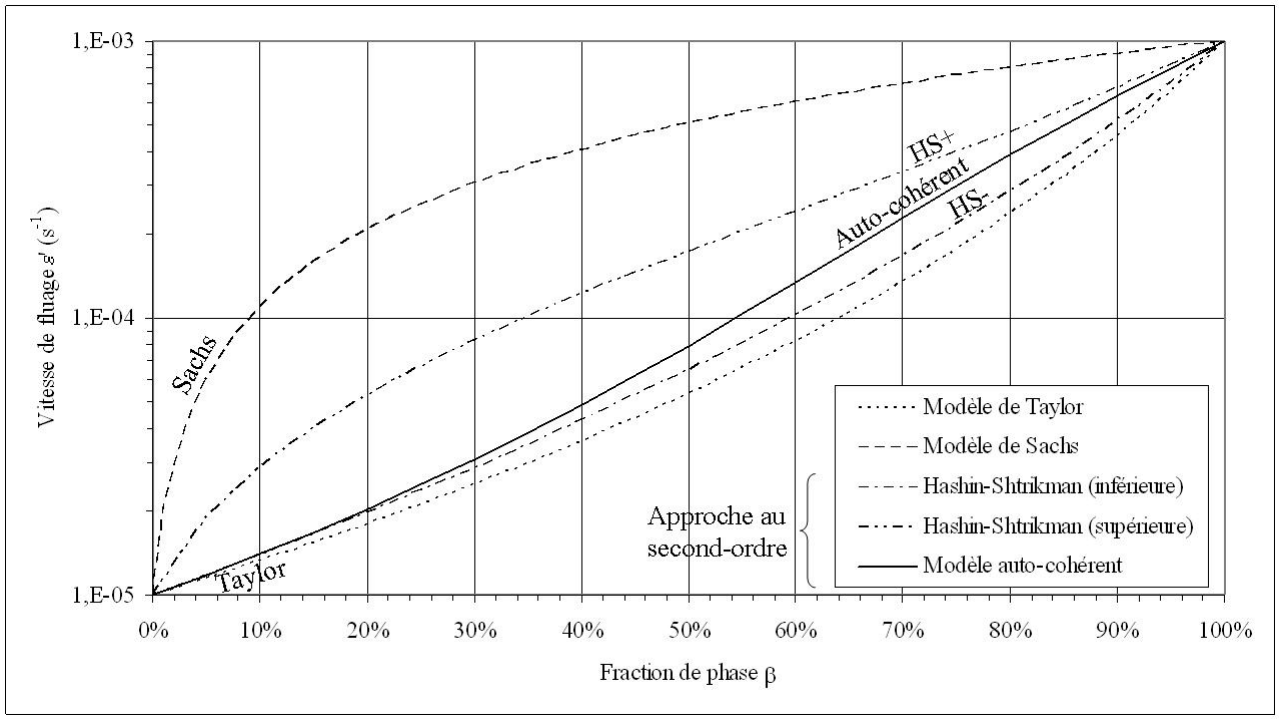


Figure 4.13 – *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la fraction volumique de phase β évaluées par l'approche au second-ordre (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)*

Ces modèles analytiques vont être confrontés aux simulations par éléments finis afin de qualifier les estimations fournies. Les simulations par éléments finis, car ce sont celles qui prennent en compte la morphologie du matériau biphasé, seront considérés comme une référence pour ce comparatif.

4.2.3 Etude d'une microstructure de type polycristaux biphasés de Voronoï

L'objectif est d'ici d'étudier l'influence de la fraction volumique sur le comportement en fluage, le modèle morphologique de microstructure étant celui des polyèdres biphasés de Voronoï. Des fractions volumiques de phase β de 10, 30, 50, 70 et 90% ont été considérées. On s'attache également à comparer ces résultats aux résultats obtenus par l'approche analytique au second-ordre.

4.2.3.1 Résultats des simulations par éléments finis

La figure 4.14 présente les vitesses de fluage moyennes entre les VES obtenues pour les trois types de conditions aux limites pour une taille correspondant à 27 germes en moyenne par VES.

Le nombre de VES nécessaire pour estimer la vitesse moyenne à ±5% ainsi que l'estimation de la variance sont également indiqués sur la figure.

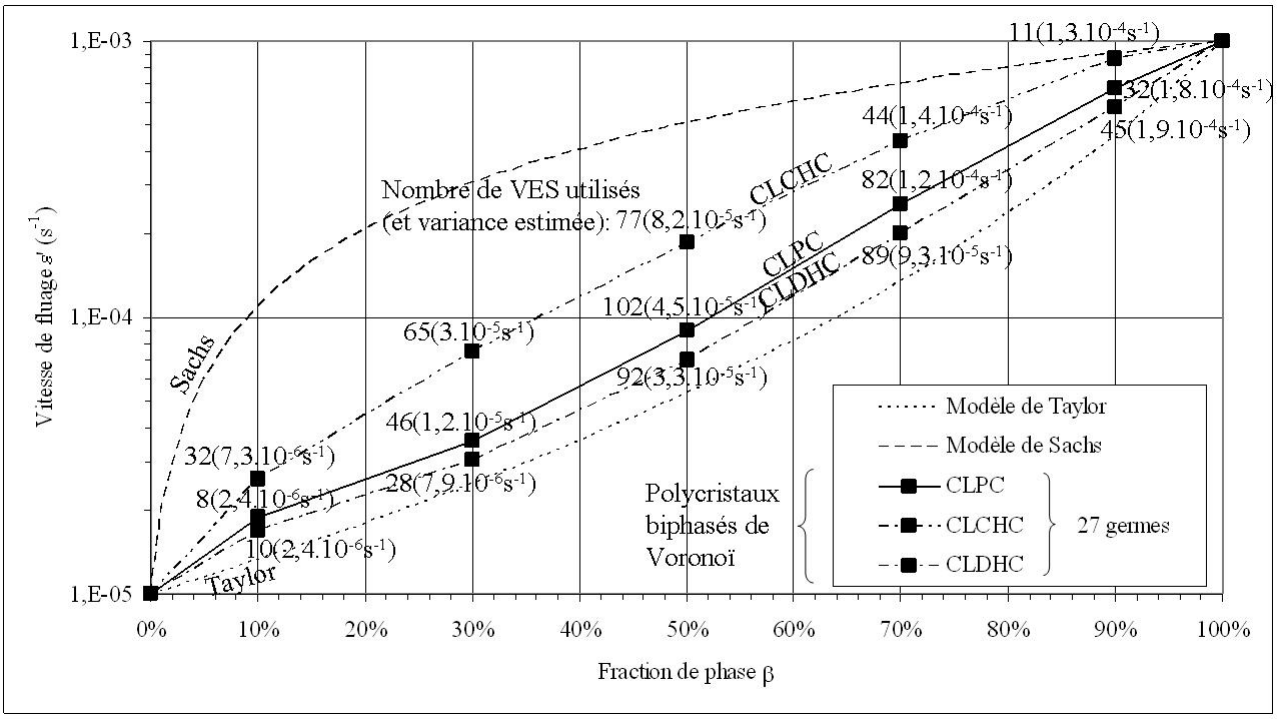


Figure 4.14 – *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la fraction volumique de phase β évaluées par approche numérique statistique sur des polycristaux biphasés de Voronoï de 27 germes (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)*

Les CLPC fournissent des vitesses plus proches des CLDHC que des CLCHC. Etant donné le contraste entre phases et le fait que la phase β « molle » soit débouchante (figure 4.5), on pouvait en effet s'attendre au fait que les CLCHC fournissent une estimation très souple par rapport aux autres types de conditions aux limites. Par rapport à la définition stricte du VSR donnée précédemment, il ne s'agit donc pas de VSR, même si les différences sont faibles entre les CLPC et CLDHC. Les CLPC sont néanmoins utilisées pour estimer la vitesse de fluage du matériau biphasé, ce qui présente une amélioration par rapport aux modèles de Sachs et Taylor. La dispersion entre VES est maximale pour une fraction de phase β de 50%. Pour des fractions plus faibles, les CLCHC présentent des variations entre VES plus importantes que les CLPC et CLDHC. A l'inverse, pour des fractions plus élevées, des fluctuations plus importantes entre VES ont été obtenues avec les CLPC et CLDHC.

4.2.3.2 Comparaison avec les modèles analytiques

La figure 4.15 compare les résultats obtenus par éléments finis en CLPC pour des VES de 27 germes en moyenne avec ceux provenant de la modélisation analytique par approche au second-ordre. Les comparaisons avec les modélisations affine et de Berveiller et Zaoui (1979) sont présentées en annexe C sur les figures C.19 et C.20. Les estimations hautes et basses d'Hashin-Shtrikman encadrent les résultats obtenus par éléments finis. Le modèle auto-cohérent estime des vitesses de fluage inférieures aux simulations. A 10%, cet écart est le plus élevé (en échelle logarithmique) alors que pour des fractions supérieures à 30%, les écarts sont assez faibles.

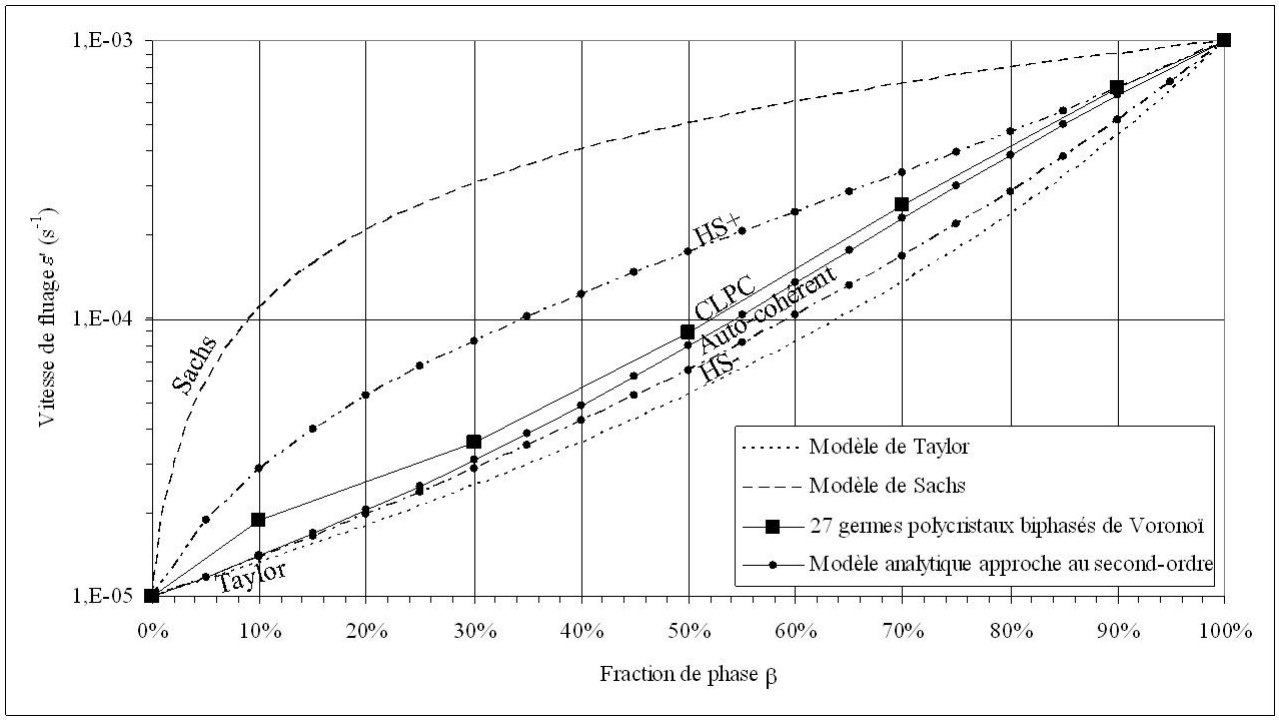


Figure 4.15 – *Comparaison des évolutions des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la fraction volumique de phase β évaluées par approche numérique statistique sur des polycristaux biphasés de Voronoï de 27 germes et par approche analytique au second-ordre auto-cohérente (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)*

L'approche au second-ordre fournit les valeurs les plus comparables aux simulations par éléments finis par rapport aux approches affines et de Berveiller et Zaoui (1979). Pour cette morphologie et ces lois de comportement, la modélisation au second-ordre fournit une estimation satisfaisante. Aucun effet morphologique n'est donc mis ici en évidence. Dans la suite, les résultats obtenus analytiquement sont également confrontés à d'autres morphologies.

4.2.3.3 Moyennes par phase, percolation

Les moyennes et moyennes par phase sont tracées sur la figure 4.16 pour la contrainte et sur la figure 4.17 pour la vitesse de fluage. La contrainte moyenne est la plus élevée dans la phase α, plus résistante au fluage, par rapport à la phase β. De la même manière, la déformation moyenne est la plus élevée dans la phase β, moins résistante au fluage, par rapport à la phase β. En échelle logarithmique, les contrastes de contraintes sont assez faibles alors qu'ils sont plus élevés en vitesse de déformation.

Les seuils de percolation se situent à 18,5 et 81,5% de phase β. Il n'y a pas d'effet majeur au niveau des vitesses moyennes (figures 4.14), moyennes par phase (figure 4.17) ou contraintes moyennes par phase (figure 4.16). On peut néanmoins relever de légers effets : un contraste de contraintes en phases légèrement plus faible à 10 et 90% et un contraste plus élevé entre phases à 10 et 90%, voire une vitesse de fluage légèrement élevée à 10%.

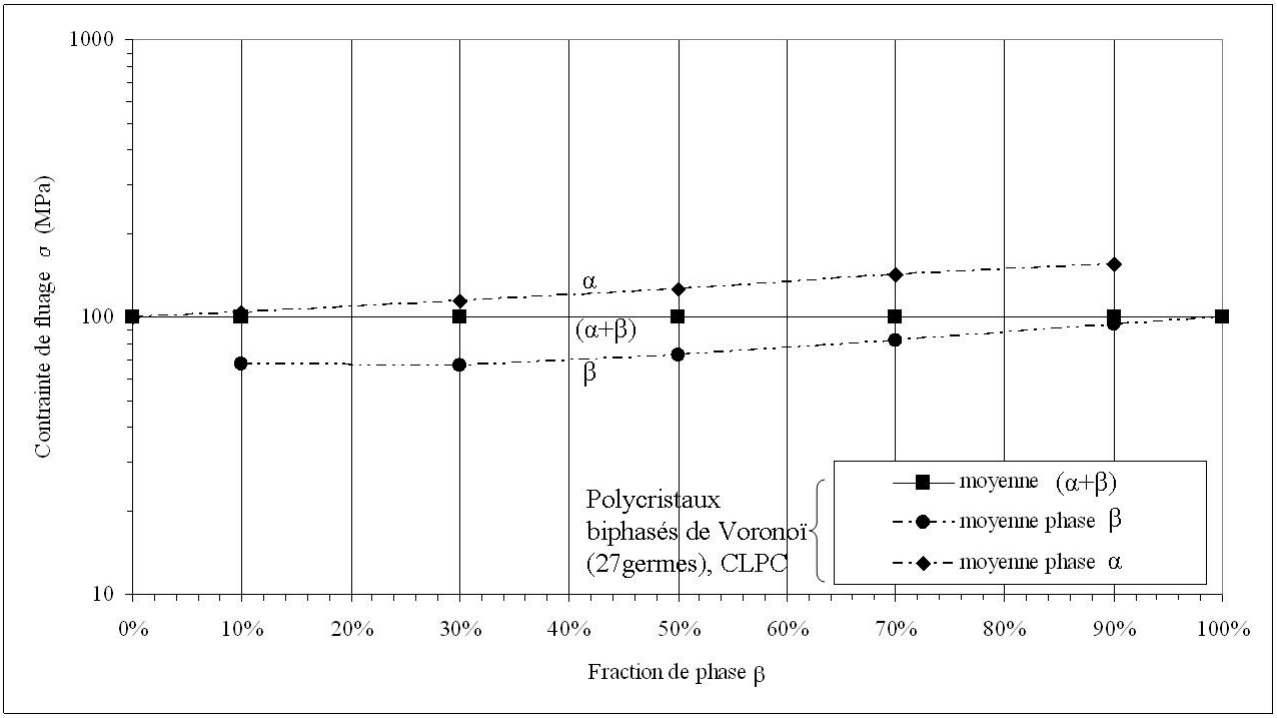


Figure 4.16 – *Evolution des contraintes de fluage moyenne et moyennes par phase en fonction de la fraction volumique de phase β évaluées par approche numérique statistique sur des polycristaux biphasés de Voronoï de 27 germes avec les conditions aux limites périodiques (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)*

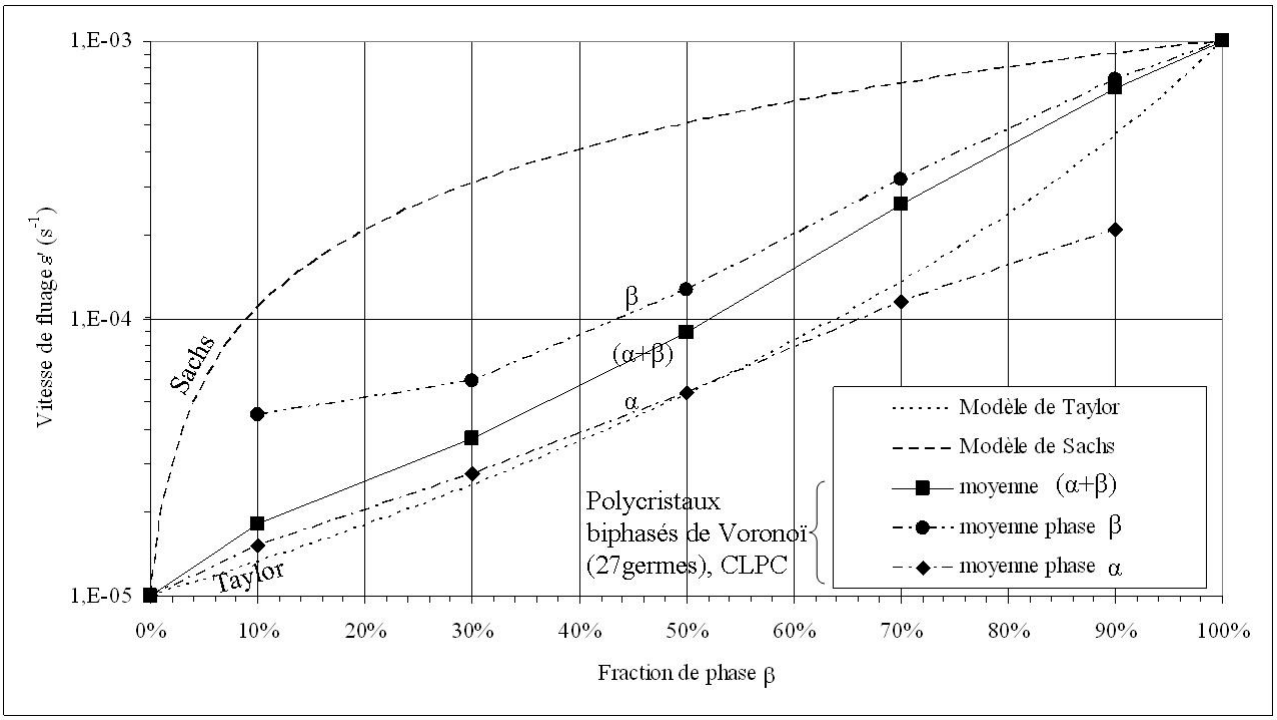


Figure 4.17 – *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) moyenne et moyennes par phase en fonction de la fraction volumique de phase β évaluées par approche numérique statistique sur des polycristaux biphasés de Voronoï de 27 germes avec les conditions aux limites périodiques (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)*

Des simulations effectuées sur des VES plus petits (8 germes) sont présentées en annexe C sur la figure C.16. Le nombre de VES à simuler est plus important, mais cela nécessite globalement un temps de calcul plus faible. Pour ces petits VES, de faibles écarts ont été relevés en CLPC et CLDHC alors que des vitesses sensiblement plus élevées sont calculées, en particulier pour des fractions de 10, 30 et 50% de phase β. Ces VES présentent donc une plus forte sensibilité aux conditions aux limites et sont donc moins représentatifs.

Des simulations ont également été menées sur des VES périodisés (8 et 27 germes en annexe C sur les figures C.17 et C.18). Les dispersions entre VES sont nettement plus élevées pour les microstructures périodiques. Pour les VES de 8 germes, un biais apparaît également en CLPC et CLDHC, les microstructures périodiques présentant des vitesses de fluage plus élevées alors que les résultats obtenus en CLCHC sont sensiblement les mêmes. Ce biais s'atténue pour une taille de VES plus importante (27 germes) en terme de vitesse de fluage même si la dispersion entre VES reste plus élevée que pour les microstructures non périodisées. Il est donc préférable d'utiliser des microstructures non périodisées, qui sont plus représentatives (en moyenne) à une taille donnée.

4.2.4 Etude de la sensibilité à la morphologie

L'objectif de cette partie est de mettre en évidence une éventuelle sensibilité à la morphologie. Si l'approche analytique au second-ordre fournit des résultats satisfaisants pour le modèle de microstructures des polycristaux de Voronoï, une comparaison avec l'approche analytique au second-ordre est également menée ici avec les autres modèles de microstructures présentés dans le paragraphe précédent. L'écart entre les modèles de Sachs et Taylor est maximum au voisinage de 30% de phase β, on s'intéresse à cette fraction de phase pour laquelle un effet morphologique est susceptible d'être mis en évidence. Pour cette fraction de phase β, toutes les microstructures sont bipercolées excepté pour le modèle des facettes de Voronoï, pour lequel seule la phase β est percolée.

Pour chaque modèle de microstructure, des tailles croissantes de VES sont employées, pour chaque type de conditions aux limites. Les vitesses de fluage obtenues pour ces différentes tailles de VES sont présentées en annexe C sur les figures C.21, C.22, C.23, C.24 et C.25. Dans la suite du paragraphe, les résultats obtenus sur les VES de tailles les plus importantes sont utilisés. Comme des raffinements différents sont employés en fonction de la morphologie (étude de sensibilité en annexe C sur le figure C.13), ces tailles maximales, limitées par les capacités de calcul, varient d'une morphologie à une autre.

La figure 4.18 compare les vitesses de fluage entre les différentes morphologies étudiées, pour les trois types de conditions aux limites avec celle obtenue analytiquement avec l'approche au second-ordre. Par rapport à la définition stricte du VSR donnée précédemment, le VSR n'est atteint pour aucune des morphologies, même si les différences sont assez faibles entre les CLPC et CLDHC. Pour le modèle des sphères booléennes, la taille des VES simulés semble néanmoins plus proche du VSR que celle des VES des autres morphologies.

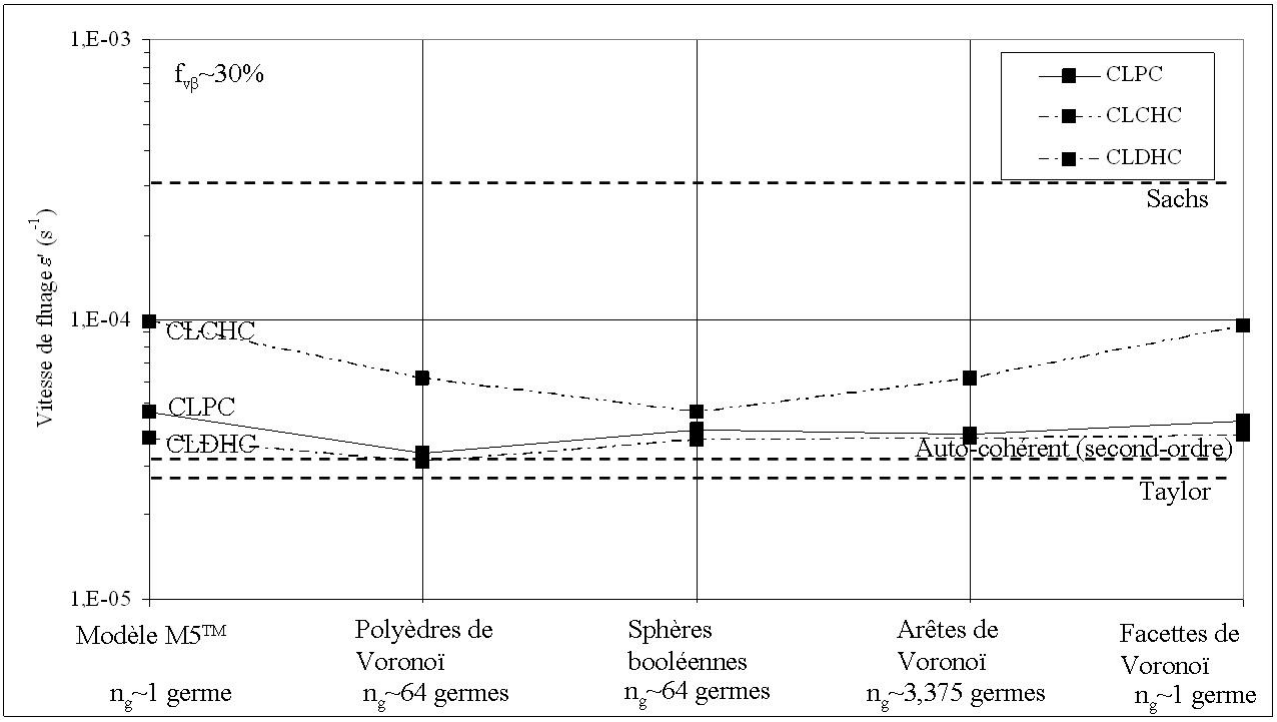


Figure 4.18 – *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) en fonction des morphologies étudiées, pour les trois types de conditions aux limites et les VES de tailles maximales utilisées ($f_{v\beta} \approx 30\%$, paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)*

En se basant sur les résultats obtenus avec les CLPC pour évaluer les vitesses de fluage, peu d'effets de morphologie sont ici mis en évidence. Cela peut notamment sembler étonnant pour le modèle des facettes de Voronoï pour lequel la phase α n'est pas percolée. Ceci pourrait provenir de biais lié à la petite taille du VES utilisé. D'une part, même si on peut noter sur la figure 4.9 que pour $n_g = 1$ les microstructures reposent sur plusieurs polyèdres de Voronoï, cela n'exclut pas que pour certaines de ces microstructures une partie de la phase α soit traversante et se rapproche ainsi des cas où la microstructure est bipercolée. D'autre part, dans le cas des conditions aux limites périodiques, la morphologie n'est pas exactement le modèle des facettes de Voronoï mais plutôt une répétition périodique de motifs de la taille du VES construit avec le modèle des facettes de Voronoï, ce qui peut mener dans certains cas à des microstructures bipercolées comme les autres morphologies étudiées. Il conviendrait donc, pour pouvoir exclure un effet de la morphogie, de pouvoir simuler de plus grands VES, ce qui nécessiterait de plus grosses capacités de calculs.

Pour les simulations obtenues avec les CLPC, les moyennes et moyennes par phase sont tracées sur la figure 4.19 pour la contrainte et sur la figure 4.20 pour la vitesse de fluage. Comme pour les moyennes, les moyennes par phase montrent à nouveau peu d'effet de la morphologie. Dans tous les cas, le contraste de contraintes entre les phases α et β est faible (de l'ordre de 1,5).

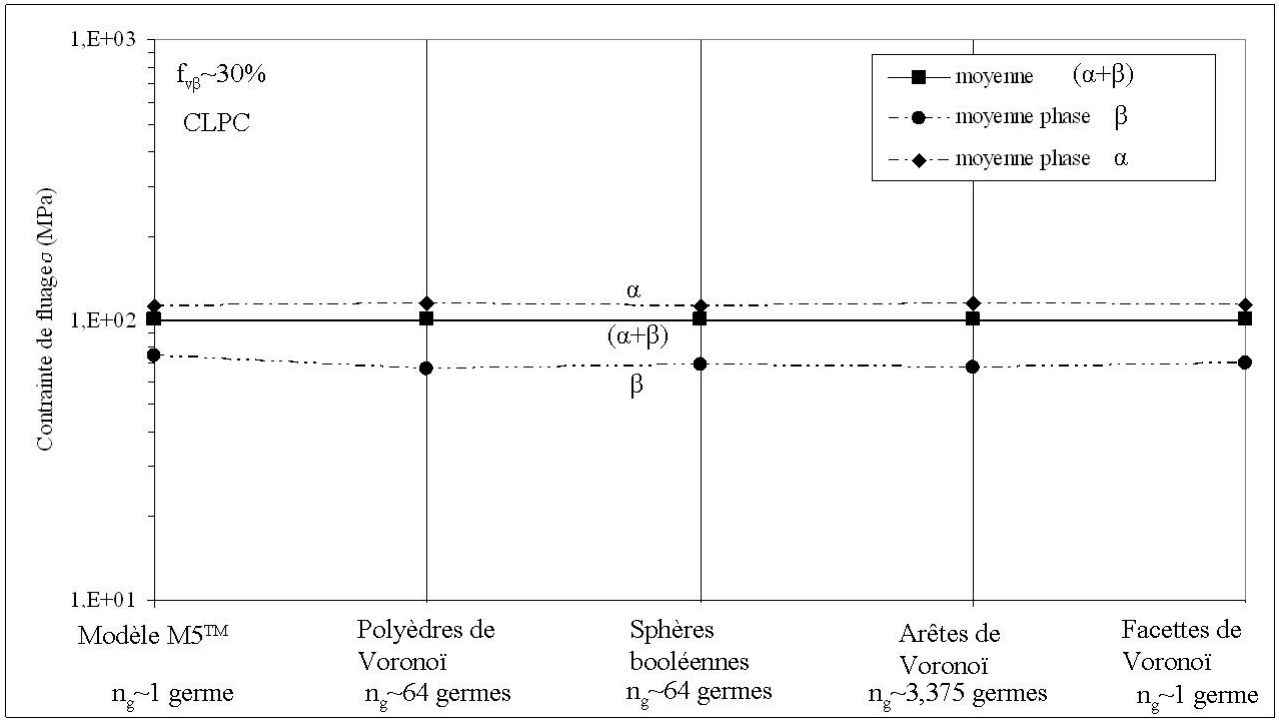


Figure 4.19 – *Evolution des contraintes de fluage moyenne et moyennes par phase en fonction des morphologies étudiées ($f_{v\beta} \approx 30\%$), avec les conditions aux limites périodiques (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)*

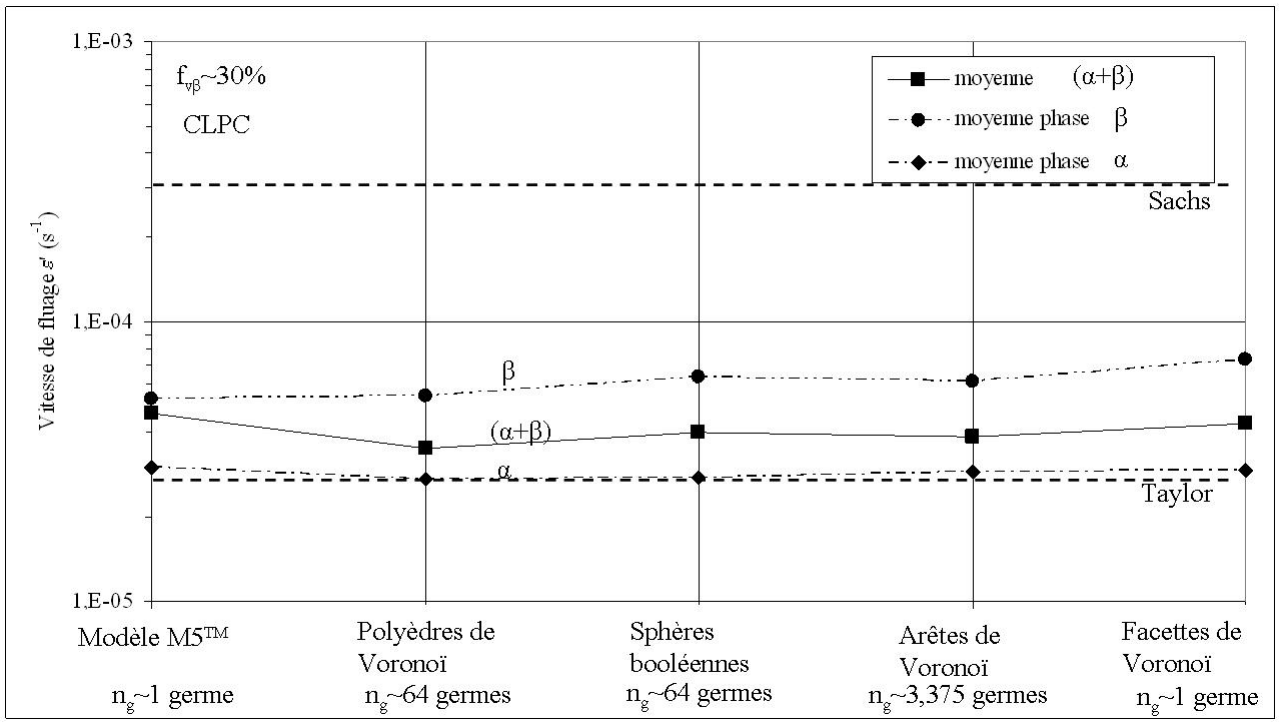


Figure 4.20 – *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) moyenne et moyennes par phase en fonction des morphologies étudiées ($f_{v\beta} \approx 30\%$), avec les conditions aux limites périodiques (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)*

Dans les conditions de cette étude, peu d'effets de morphologie sont observés. Il pourrait néanmoins en être autrement pour de plus forts contrastes de comportement entre les phases α et β. De plus, cette étude serait à poursuivre à l'aide de VES de plus grande taille, se rapprochant de la taille du VSR, afin de réaliser un comparatif entre morphologies des comportements effectifs estimés. Par ailleurs, de plus grands VES permettraient de pleinement étudier les différentes morphologies développées ici, sans biais.

Les modèles analytiques de Sachs et Taylor ne fournissent qu'un encadrement assez large du comportement d'un matériau biphasé. Sans la limite des capacités de calculs, l'approche numérique statistique par VES est à privilégier pour l'évaluation du comportement en fluage d'un matériau dont on connaît la morphologie des phases. De manière plus réaliste, le modèle auto-cohérent avec l'approche au second-ordre permet de fournir une estimation qui semble correcte du comportement du matériau biphasé. Ce modèle analytique est donc un moyen très efficace pour évaluer le comportement en fluage d'un matériau dont les phases obéissent à des lois de Norton.

Afin d'évaluer le comportement en fluage du M5® dans le domaine biphasé, les deux approches, numérique statistique par VES et analytique (modèle auto-cohérent avec approche au second-ordre) sont choisies. Les modèles de Taylor et Sachs, très rapides à mettre en œuvre, sont également utilisés.

4.3 Evaluation du comportement en fluage du M5® dans le domaine biphasé

Les lois de comportement utilisées pour cette évaluation sont détaillées dans le paragraphe suivant et les microstructures employées sont celles présentées dans le paragraphe 4.1.2.1, pour le M5®. Les résultats obtenus avec les modèles analytiques sélectionnés sont ensuite présentés et confrontés aux résultats expérimentaux. Enfin, il en est de même avec les résultats obtenus par simulations par éléments finis. Ces derniers sont aussi analysés afin d'étudier dans quel régime de fluage sont sollicitées les phases. L'effet morphologique est aussi comparé à l'effet de taille de grains.

4.3.1 Evolution des lois de comportement et de la microstructure dans le domaine biphasé

La modélisation du comportement en fluage de chacune des phases a été établie et identifiée dans le chapitre précédent à partir d'essais dans les domaines monophasés quasi-α et β respectivement. Cette modélisation prend en compte l'effet de la température ainsi que l'effet de la taille de grains. Les lois de chacune de phases peuvent s'exprimer sous la forme simplifiée détaillée en annexe A (équations A.11, A.12 et A.13).

Ces lois sont extrapolées dans le domaine biphasé, aux températures étudiées expérimentalement (800, 820, 840, 860, 880 et 900°C). Pour le régime de fluage diffusionnel, on fait l'hypothèse que la nature du joint de grains n'a pas d'influence. En effet, en monophasé α, le fluage diffusionnel caractérise de la déformation par diffusion aux joints de grains α/α ; en monophasé β, le fluage diffusionnel caractérise de la déformation par diffusion aux joints de

grains β/β mais en biphasé, les joints de grains sont majoritairement α/β. Donc si la déformation est pilotée par la diffusion intergranulaire, il faudrait en toute rigueur considérer les joints α/β. Le faible contraste entre phases en fluage diffusionnel (tableau 4.2) permet sans doute d'éviter de devoir prendre en compte de manière supplémentaire les interfaces interphases. De plus, on rappelle que les lois de fluage diffusionnel de chaque phase ont été identifiées avec des joints de grains α/β : dans le domaine quasi-α, de la phase β est présente aux joints de grains α, et dans le domaine quasi-β, dans lequel de la phase α est aussi présente aux joints de grains β.

Les tailles de grains considérées pour chacune des phases sont celles mesurées par analyse métallographique après les essais de fluage (tableau 3.2). Le tableau 4.2 rappelle ces tailles de grains et regroupe les valeurs des paramètres $\dot{\varepsilon_1}$, $\dot{\varepsilon_2}$, n_1 et n_2 pour chacune des phases et pour les différentes températures.

Phase		800°C	820°C	840°C	860°C	880°C	900°C
α	$d_\alpha(\mu m)$	7,4	7,1	6,8	6,7	5,9	5,1
$n_1 = 1$	$\dot{\varepsilon}_1(s^{-1})$	$2,86.10^{-6}$	$4,78.10^{-6}$	$7,94.10^{-6}$	$1,19.10^{-5}$	$2,48.10^{-5}$	$5,39.10^{-5}$
$n_2 = 5$	$\dot{\varepsilon}_2(s^{-1})$	$7,57.10^{-11}$	$1,24.10^{-10}$	$2,00.10^{-9}$	$3,16.10^{-10}$	$4,93.10^{-10}$	$7,55.10^{-10}$
β	$d_\beta(\mu m)$	1,2	2,6	4,0	5,8	9,5	20
$n_1 = 1$	$\dot{\varepsilon}_1(s^{-1})$	$2,42.10^{-3}$	$5,88.10^{-4}$	$3,86.10^{-4}$	$2,93.10^{-4}$	$1,50.10^{-4}$	$3,52.10^{-5}$
$n_2 = 4$	$\dot{\varepsilon}_2(s^{-1})$	$2,01.10^{-11}$	$1,34.10^{-10}$	$4,44.10^{-10}$	$1,29.10^{-9}$	$4,75.10^{-9}$	$2,85.10^{-8}$

Tableau 4.2 – *Paramètres du modèle de fluage M5® dans le domaine biphasé prenant en compte l'effet de la température et de la taille de grains pour les phases α et β*

On fixe donc la taille de grains dans la loi de comportement, ce qui est nécessaire pour les modèles analytiques. Par éléments finis, on aurait pu tenir compte de la taille de chaque grain de la microstructure pour avoir une loi locale. Un tel raffinement n'a pas été mis en place vu que les lois ont été identifiées avec une taille de grains moyenne et vu également l'hypothèse forte ne distinguant pas le type de joint de grains.

Le paramètre de première importance dans ce modèle est la taille de grains, en particulier pour le régime de fluage diffusionnel. Une incertitude expérimentale, de $\pm 1\mu m$, peut donc avoir une forte influence sur l'extrapolation des lois pour chacune des phases α et β. La figure 4.21 reporte les vitesses de fluage à 1MPa (régime de fluage diffusionnel) extrapolées dans le domaine biphasé ainsi que les incertitudes liées à la taille de grains dans le domaine biphasé.

La loi de fluage de la phase α est peu sensible à cette incertitude car la taille de grains α du domaine biphasé évolue peu par rapport à celle observée dans le domaine quasi-α. L'incertitude est la plus importante à 880 et 900°C, en fin de transformation de phases, quand la taille de grains α commence à diminuer de manière significative. Néanmoins, à ces températures, l'influence de la phase α sur le comportement du matériau tend *a priori* à diminuer car la fraction volumique devient inférieure à 30% et que la phase α ne percole plus.

Entre 860 et 900°C, l'incertitude sur la loi de fluage de la phase β liée à celle de la taille de grains β à ces températures est du même ordre de grandeur. Pour des températures plus faibles, cette incertitude augmente significativement alors que les tailles de grains β deviennent très faibles par rapport aux tailles de grains observées dans le domaine quasi-β. A 820°C, l'incertitude atteint une décade et à 800°C, trois décades. Il semble délicat d'améliorer la précision à ces températures sur la connaissance de la taille de grains β étant donnée la forme des grains

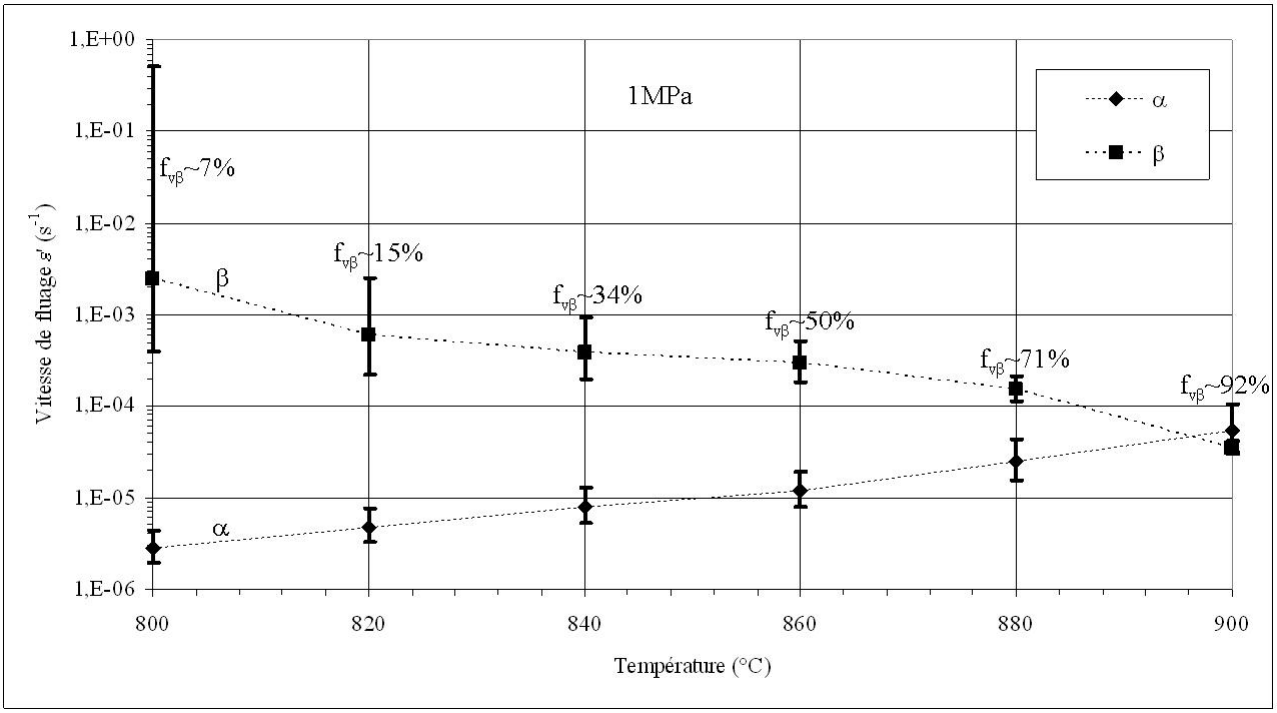


Figure 4.21 – *Vitesse de fluage à 1MPa pour chacune des phases α et β extrapolée en température et taille de grains à partir des domaines monophasés quasi-α et β et incertitudes liées à la taille de grains dans le domaine biphasé (paramètres du modèle détaillés dans le tableau 3.7)*

observés (figure 2.18). En conséquence, la plus grande prudence est de mise pour les lois de fluage de la phase β à 800 et 820°C.

Les lois de fluage des phases α et β extrapolées sont reportées sur la figure 4.22. Les résultats expérimentaux sont également représentés. Contrairement à la modélisation ne prenant en compte que l'effet de température et de la contrainte mais pas l'effet de taille de grains (figure 2.20), de 800 à 880°C, les courbes expérimentales sont encadrées par les vitesses de chaque phase, même pour les faibles contraintes. Ceci montre une amélioration sensible de la modélisation du comportement de chacune des phases.

En prenant en compte les incertitudes maximales de taille de grains α et β du domaine biphasé, les courbes expérimentales restent dans tous les cas encadrées par les vitesses de chaque phase, hormis à 800°C et 880°C au voisinage de 1MPa où la vitesse expérimentale du matériau biphasé deviendrait très légèrement inférieure à celle de la phase α.

A 900°C, les comportements modélisés des phases α et β sont assez proches. Les points expérimentaux sont plus proches de la phase β, ce qui est logique vu que cet essai a été utilisé dans le domaine quasi-β pour identifier le comportement de la phase β. L'hypothèse proposée était que l'on négligeait l'influence de la phase α résiduelle sur le comportement mécanique observé. Comme le contraste en vitesse entre les phases est faible d'après le modèle, cela permet de renforcer *a posterirori* cette hypothèse.

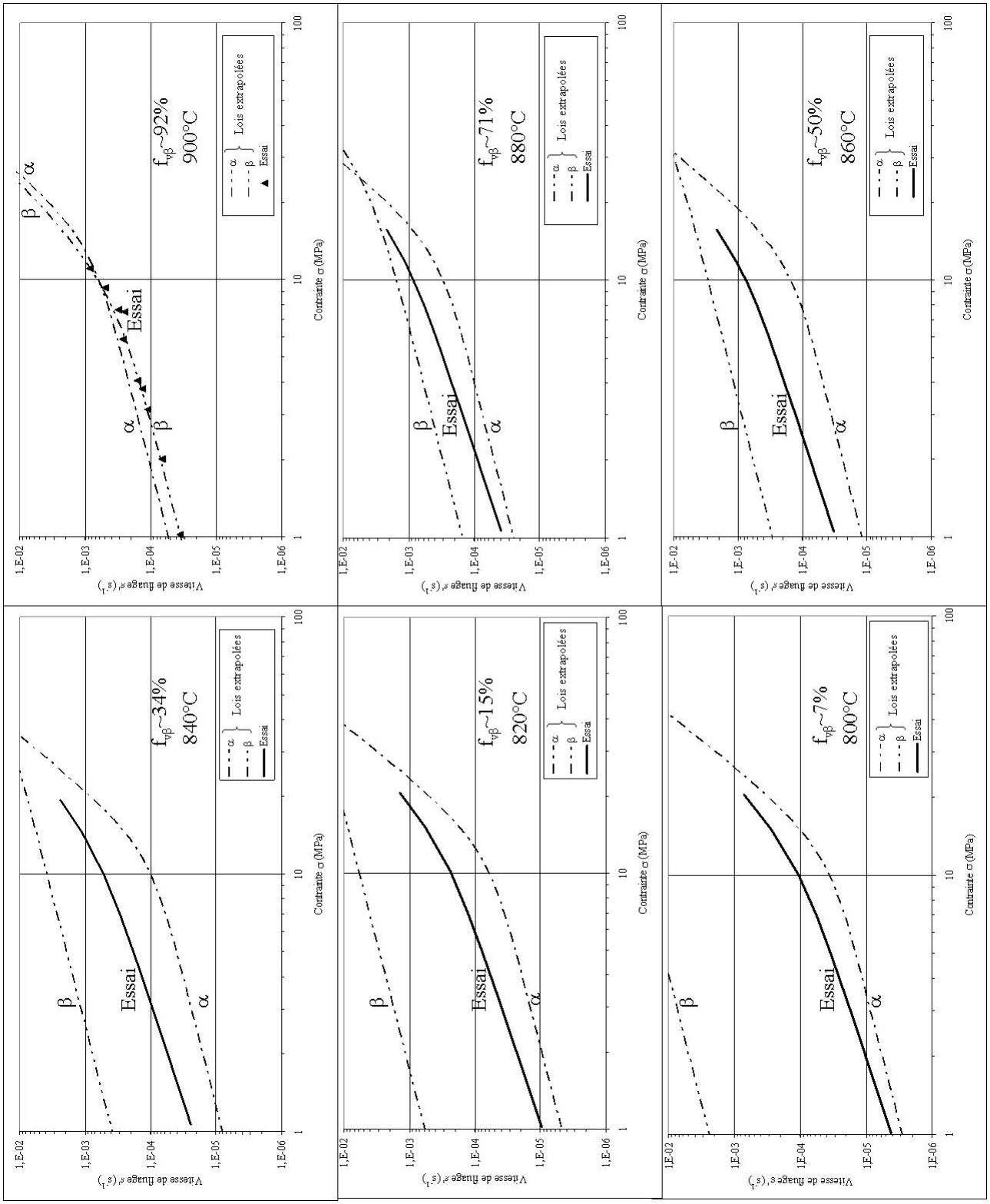


Figure 4.22 – *Modélisation du fluage du M5® dans le domaine biphasé à partir de lois pour chacune des phases α et β (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.2)*

Jusqu'à environ 10MPa, les deux phases présentent le régime de fluage diffusionnel. Dans ce régime, le contraste entre phases ne dépend pas de la contrainte. Il est maximum à 800°C (de l'ordre de trois décades en vitesse) et décroît quand la température augmente. Jusqu'à 880°C, la phase la plus résistante au fluage est la phase α, conformément à la bibliographie (Hunt et Foote (1977), Rodchenkov et Semenov (2005)). A 900°C, le contraste s'inverse par effet de taille de grains, la phase β est alors légèrement plus résistante que la phase α.

Mis à part à 900°C, pour des contraintes plus élevées, le régime de fluage de la phase β est encore diffusionnel alors que la phase α présente le régime de fluage dislocations. Ainsi, le contraste entre phases diminue quand la contrainte augmente et on peut même observer des croisements entre les courbes de chacune des phases. Pour les contraintes les plus élévées (30MPa ou plus selon la température), la modélisation extrapolée prévoit que la phase α devient moins résistante que la phase β.

Des exemples de microstructures simulées ont été présentés sur la figure 4.4. A 800°C ($f_{v\beta} \approx 7\%$), la phase β est quasiment percolée alors que la phase α l'est entièrement. Entre 820 et 860°C (de $f_{v\beta} \approx 15\%$ à $\approx 50\%$), les microstructures sont bi-percolées. Enfin, à 880°C ($f_{v\beta} \approx 71\%$), seule la phase β percole.

4.3.2 Modèles analytiques

4.3.2.1 Modèles de Sachs et de Taylor

Dans un premier temps, à partir de ces lois de fluage pour les phases α et β et de la donnée de la fraction volumique moyenne de phase β (tableau 4.3), les modèles de Sachs (1928) et Taylor (1938) sont utilisés pour leur simplicité de mise en œuvre.

Température	800°C	820°C	840°C	860°C	880°C	900°C
$f_{v\beta}$	7%	15%	34%	50%	71%	92%

Tableau 4.3 – *Fractions volumiques de phase β du M5® considérées dans le domaine biphasé, mesurées par suivi de résistance avant les essais de fluage*

Dans les deux cas, les contraintes et vitesses de fluage sont homogènes par phase :

$$\dot{\varepsilon}_\alpha = \dot{\varepsilon}_{1\alpha}\sigma_\alpha^{n_{1\alpha}} + \dot{\varepsilon}_{2\alpha}\sigma_\alpha^{n_{2\alpha}} \tag{4.38}$$

$$\dot{\varepsilon}_\beta = \dot{\varepsilon}_{1\beta}\sigma_\beta^{n_{1\beta}} + \dot{\varepsilon}_{2\beta}\sigma_\beta^{n_{2\beta}} \tag{4.39}$$

Le modèle de Sachs suppose une contrainte homogène dans les phases α et β, égale à la contrainte de fluage :

$$\Sigma = \sigma_\alpha = \sigma_\beta \tag{4.40}$$

La vitesse de fluage de chaque phase et donc du matériau biphasé sont obtenues directement :

$$\dot{E} = (1 - f_{v\beta})\,\dot{\varepsilon}_\alpha + f_{v\beta}\dot{\varepsilon}_\beta \tag{4.41}$$

$$\dot{E} = (1 - f_{v\beta})\left[\dot{\varepsilon}_{1\alpha}\Sigma^{n_{1\alpha}} + \dot{\varepsilon}_{2\alpha}\Sigma^{n_{2\alpha}}\right] + f_{v\beta}\left[\dot{\varepsilon}_{1\beta}\Sigma^{n_{1\beta}} + \dot{\varepsilon}_{2\beta}\Sigma^{n_{2\beta}}\right] \tag{4.42}$$

Le modèle de Taylor suppose au contraire une vitesse de déformation homogène dans les phases α et β, égale à la vitesse de fluage recherchée :

$$\dot{E} = \dot{\varepsilon}_\alpha = \dot{\varepsilon}_\beta \tag{4.43}$$

Les équations de comportement ne permettant pas d'expliciter la contrainte en fonction de la vitesse de fluage, le solveur du logiciel Excel (basé sur un algorithme de gradient réduit

généralisé) est utilisé pour calculer numériquement les contraintes σ_α et σ_β dans chaque phase, pour une vitesse de fluage donnée. La contrainte de fluage est ensuite obtenue à partir des contraintes dans chaque phase :

$$\Sigma = (1 - f_{v\beta})\,\sigma_\alpha + f_{v\beta}\sigma_\beta \tag{4.44}$$

Les modèles de Sachs et Taylor sont des bornes du point de vue énergétique, respectivement supérieure et inférieure. Néanmoins, étant donnée la forme particulière des lois de comportement (à deux régimes), cette hiérachie n'est pas valable du point de vue des vitesses de fluage.

La figure 4.23 présente ainsi un exemple artificiel de lois α et β mettant en évidence pour une fraction volumique de 50% cette particularité au niveau des modèles de Taylor et de Sachs[3]. Pour cette fraction volumique (50%), le modèle de Taylor est la courbe moyenne, à vitesse donnée, des lois α et β alors que le modèle de Sachs est la courbe moyenne, à contrainte donnée. Dans ce cas, pour des contraintes inférieures à environ 7,5MPa, le modèle de Sachs propose de manière habituelle une valeur supérieure pour les vitesses de fluage et le modèle de Taylor une valeur inférieure. De 7,5 à 10MPa, les rôles sont inversés.

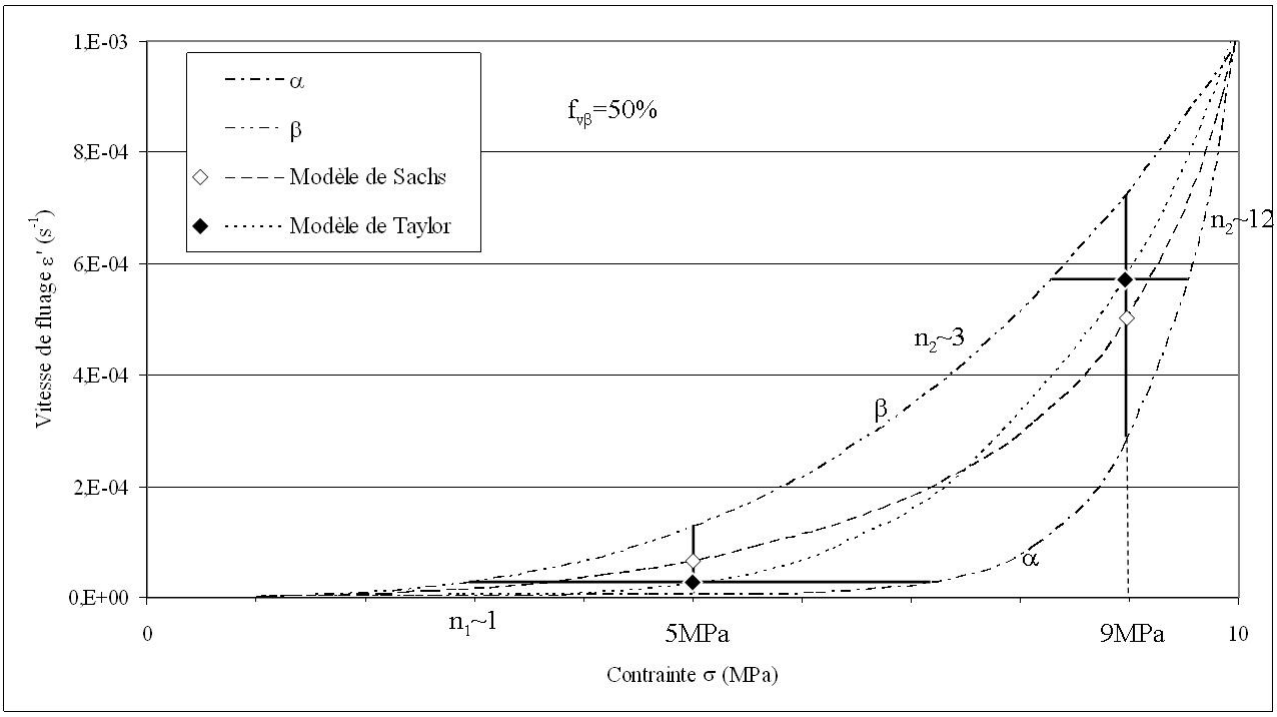


Figure 4.23 – *Illustration en échelle linéaire de la possibilité de croisement entre les modèles de Sachs et de Taylor (hypothèses de contrainte et déformation homogène respectivement) pour un matériau biphasé et des lois de comportement non-linéaires pour chacune des phases α et β*

Quoi qu'il en soit, ces modèles demeurent parmi les plus simples à mettre en œuvre pour évaluer les vitesses de fluage d'un matériau biphasé. Ils ont donc été appliqués avec les lois de fluage du tableau 4.2 et les fractions volumiques du tableau 4.3. La figure 4.24 présente cette modélisation pour les différentes températures étudiées dans le domaine biphasé.

[3]Les valeurs des exposants de Norton sont ainsi accentuées (n_2=3 pour la phase β et n_2=12 pour la phase α) pour que le croisement soit le plus net possible sur la figure

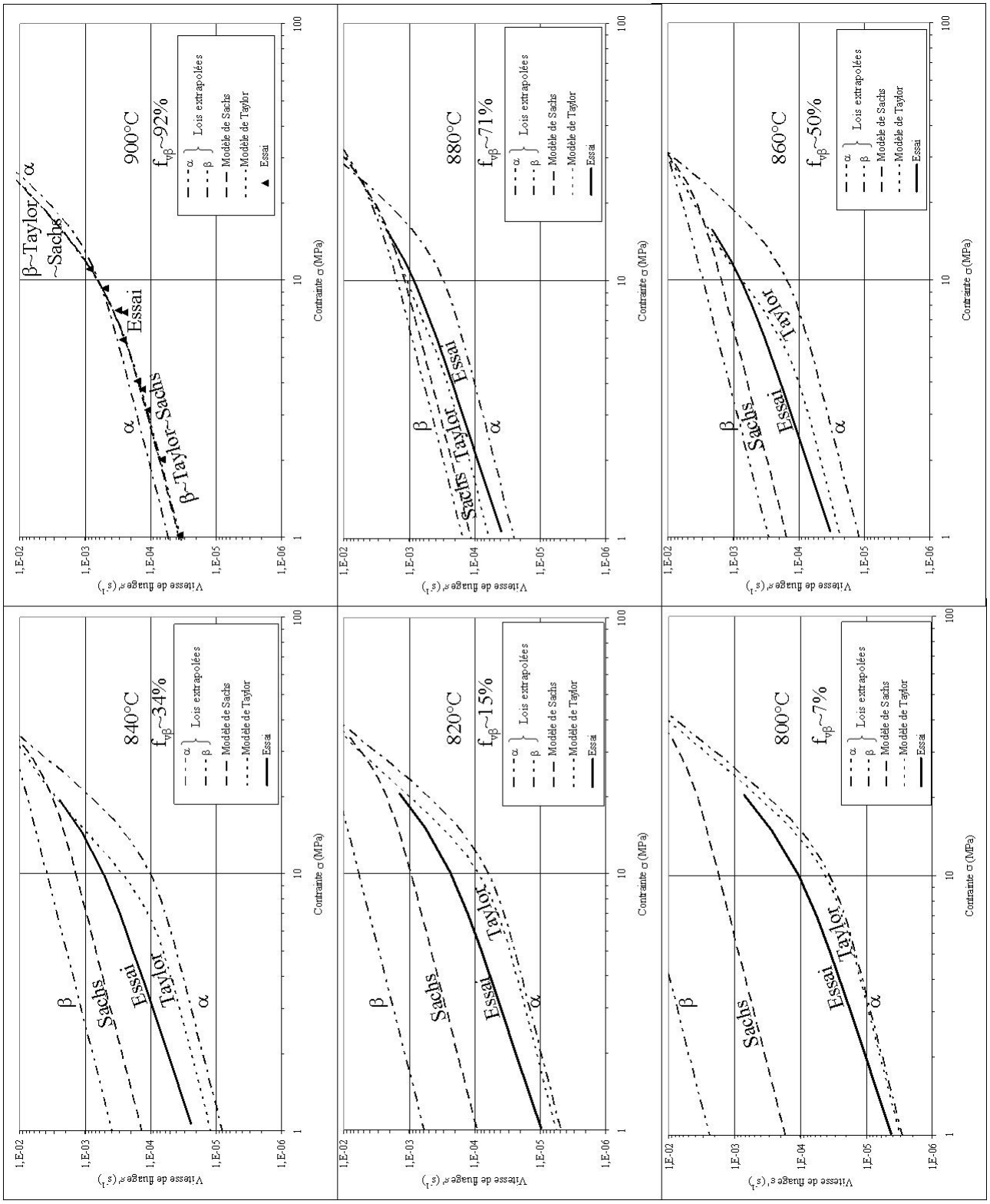


Figure 4.24 – *Modélisations de Taylor et de Sachs (hypothèses de déformation et contrainte homogène respectivement) du fluage du M5® dans le domaine biphasé à partir de lois pour chacune des phases α et β (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.2)*

A 900°C, comme le contraste de vitesses est faible entre les phases et que la fraction de phase β est élevée (92%), les modèles de Taylor et Sachs demeurent au voisinage de la loi β et donc également des résultats expérimentaux. Dans ce cas, aucune modélisation supplémentaire ne semble nécessaire à cette température. De plus, d'après la figure 4.25, l'incertitude concernant la loi α, due à la taille de grains (figure 4.21) a peu d'influence à cette température.

A 880°C, le contraste de vitesses entre les phases α et β est inférieur à une décade sur tout le domaine de contraintes. Les modèles de Taylor et de Sachs donnent donc des résultats similaires. Les résultats expérimentaux sont légèrement inférieurs en vitesse aux prédictions du modèle de Taylor. Les écarts sont néanmoins assez faibles et pourraient provenir, pour une part, sur la l'incertitude de taille de grains (figure 4.25) ou pour d'autre part, de l'incertitude expérimentale (annexe A) et des hypothèses simplificatrices quant aux lois de comportement. Pour des tailles de grains légèrement supérieures, les vitesses expérimentales pourraient être encadrées par les modèles de Sachs et Taylor. Inversement, si les tailles de grains ont été légèrement surestimées, l'écart par rapport au modèle de Taylor pourrait être sensiblement plus important, tout en restant inférieur à un facteur 2 en vitesse.

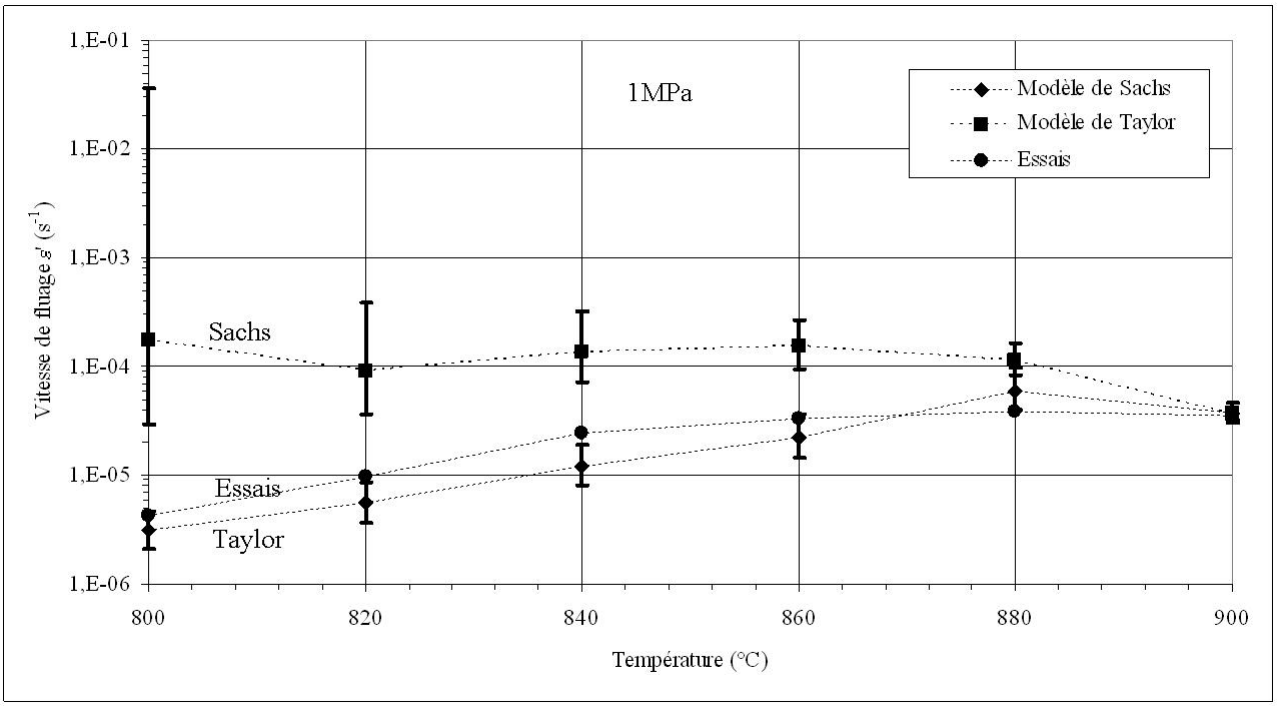


Figure 4.25 – *Modélisations de Taylor et de Sachs (hypothèses de déformation et contrainte homogène respectivement) du fluage du M5® à 1MPa dans le domaine biphasé à partir de lois pour chacune des phases α et β extrapolées en température et taille de grains à partir des domaines monophasés quasi-α et β et incertitudes liées à la taille de grains dans le domaine biphasé (paramètres matériau détaillés dans le tableau 3.7)*

A 840 et 860°C, les modèles de Sachs et Taylor donnent des résultats plus nettement différents, comme l'écart entre les vitesses de chaque phase est plus élevé (1,5 décade environ). A ces deux températures, une modélisation complémentaire peut être utile pour estimer plus précisément la vitesse du matériau biphasé. Par ailleurs, les résultats expérimentaux sont encadrés par les modèles. A ces deux températures, en deçà de 10MPa (où les courbes de Sachs et Taylor sont proches l'une de l'autre et aussi de la courbe expérimentale), l'incertitude liée à la taille de grains ne modifie pas ces observations (figure 4.25).

A 800 et 820°C, le contraste entre les vitesses de fluage des deux phases est encore plus élevé (2-3 décades) et les prédictions des modèles de Taylor et Sachs sont alors éloignées de plus d'une décade en vitesse. Dans ces deux cas également, une modélisation plus fine est nécessaire pour mieux estimer la vitesse du matériau biphasé. Les courbes expérimentales sont encadrées

par les modèles et sont plus proches du modèle de Taylor. La forte incertitude concernant les vitesses de la phase β liée à l'évaluation de la taille de grains à ces températures est rappelée. Pour ces faibles fractions de phase, l'influence de cette incertitude est modérée sur le modèle de Taylor mais plus forte sur le modèle de Sachs. Malgré cela, les modèles de Taylor et Sachs encadrent quasiment dans tous les cas les courbes expérimentales (figure 4.25). De plus, malgré la grande simplicité du modèle, en première approche, les vitesses évaluées par le modèle de Taylor sont plutôt satisfaisantes.

4.3.2.2 Modèle auto-cohérent (approche au second-ordre)

Les lois de comportement expérimentales ont été implantées dans le modèle auto-cohérent, avec l'approche au second-ordre, au Laboratoire des Propriétés Mécaniques et Thermodynamiques des Matériaux (R. Brenner et O. Castelnau, CNRS). Des simulations ont ainsi été effectuées pour la température de 860°C et des contraintes de fluage de 1, 4, 10 et 20MPa.

La figure 4.26 présente les résultats de ces simulations. En plus de la vitesse macroscopique de fluage, ces simulations fournissent également les contraintes et vitesses par phase. De plus, une estimation des hétérogénéités de contrainte et déformation intraphases est également accessible grâce à l'approche au second-ordre en définissant les grandeurs normalisées suivantes :

$$\delta\sigma = \frac{\sqrt{\left\langle \sigma_{eq}^2 \right\rangle_{eq} - \left\langle \sigma \right\rangle_{eq}^2}}{\left\langle \sigma \right\rangle_{eq}} \tag{4.45}$$

$$\delta\dot{\varepsilon} = \frac{\sqrt{\left\langle \dot{\varepsilon}_{eq}^2 \right\rangle_{eq} - \left\langle \dot{\varepsilon} \right\rangle_{eq}^2}}{\left\langle \dot{\varepsilon} \right\rangle_{eq}} \tag{4.46}$$

Ces grandeurs sont également reportées sur la figure 4.26.

Le modèle auto-cohérent fournit une estimation très proche des valeurs expérimentales et permet de reproduire une sensibilité analogue à la contrainte (exposant de Norton apparent de l'ordre de 1,2 entre 1 et 10MPa). Les résultats du modèle auto-cohérent sont plus proches de ceux du modèle de Taylor que de ceux du modèle de Sachs, comme cela avait été remarqué dans le paragraphe précédent.

En considérant les contraintes et hétérogénéités de contraintes ($\delta\sigma$) par phase, dans ce domaine de contraintes, seul le régime de fluage diffusionnel est sollicité pour la phase β. Le régime de fluage dislocations, dont la modélisation de l'effet Hall-Petch était moins solidement fondée, n'intervient donc pas dans le fluage du matériau biphasé. Pour la phase α, les deux régimes de fluage, diffusionnel et dislocations, sont sollicités. L'exposant de Norton apparent légèrement supérieur à 1 est donc sans doute dû à la phase α.

A 1MPa, les deux phases fluent dans le régime diffusionnel et les hétérogénéités sont identiques entre phases. Pour les contraintes plus élevées (supérieures à 10MPa), les hétérogénéités de contraintes et déformations diminuent. Ceci est dû au fait que le contraste entre phases diminue lorsque la contrainte augmente, mais aussi au fait, pour les contraintes de la phase α, que cette dernière flue de plus en plus dans le régime dislocations.

Cette modélisation analytique semble donc très intéressante, car pour de faibles temps de calcul, elle permet d'apporter une amélioration par rapport au modèle de Taylor en proposant

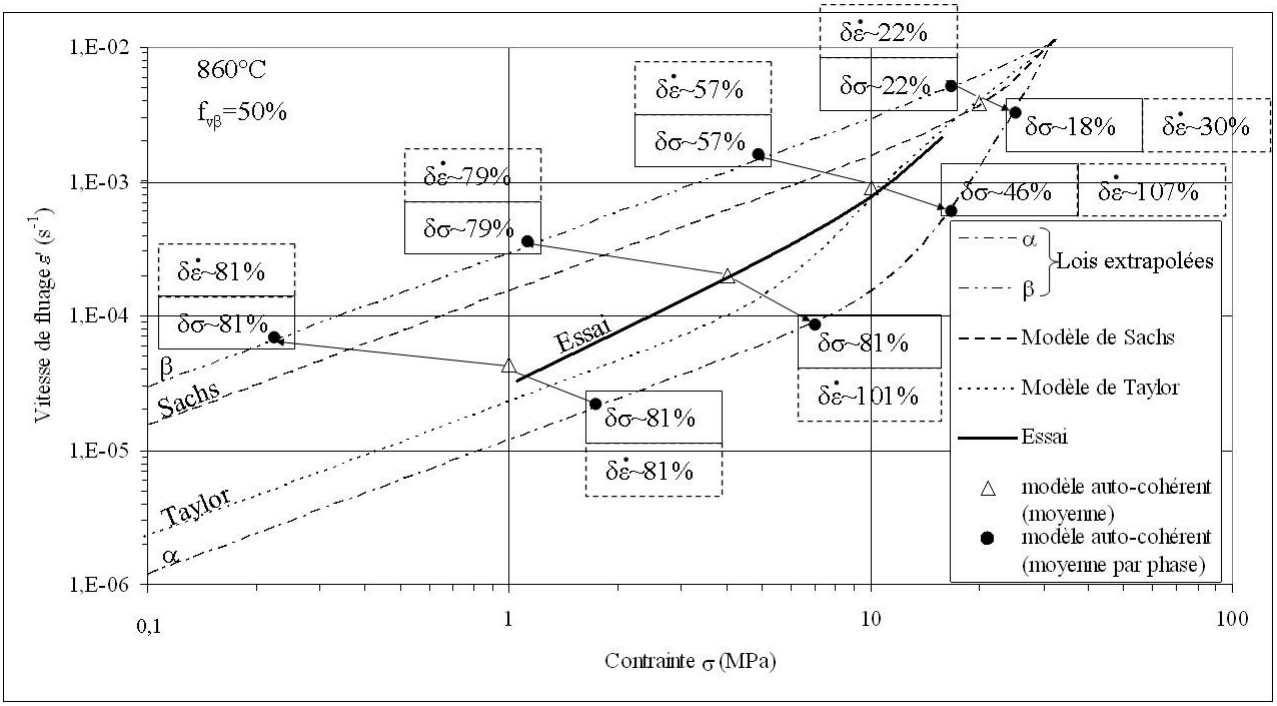


Figure 4.26 – *Modélisation auto-cohérente (approche au second ordre) du fluage du M5® à 860°C à partir de lois pour chacune des phases α et β (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.2). Les hétérogénéités intraphases, δσ (équation 4.45) et δε̇ (équation 4.46), sont mentionnées sur le graphe*

des vitesses de fluage plus proches des vitesses expérimentales et un exposant de Norton apparent analogue à l'exposant expérimental. Elle nécessite malgré tout une validation par rapport aux simulations par éléments finis, qui prennent en compte la morphologie du matériau.

4.3.3 Simulation par éléments finis du comportement en fluage du M5® dans le domaine biphasé

Des simulations par éléments finis ont été effectuées, en suivant l'approche statistique sur des VES, dans des conditions qui permettent la confrontation avec les modèles analytiques précédents :

- pour une contrainte de fluage de 1MPa aux températures de 820, 840, 860 et 880°C ;
- et pour des contraintes de fluage de 4, 10 et 20MPa à 860°C.

A 900°C, les modèles de Taylor et Sachs sont suffisants pour prédire le comportement du matériau biphasé.

A 800°C, aucune simulation par éléments finis n'a été effectuée. Etant donné le fort contraste entre les lois de fluage de chaque phase (figure 4.22) et la finesse de la phase β au niveau de la microstructure (figure 4.4), un raffinement de maillage plus important du maillage qu'aux autres températures aurait été nécessaire. De plus, comme l'incertitude concernant le comportement de la phase β à cause de la taille de grains est très élevée (figure 4.21), il a été décidé de focaliser les simulations aux autres températures du domaine biphasé. On peut néanmoins noter qu'il s'agit presque ici du domaine quasi-α ($f_{v\beta} \approx 7\%$).

Comme pour l'étude de l'effet morphologique sur le comportement en fluage, des éléments cubiques quadratiques à 20 nœuds (CU20) ont été utilisés. A 820 et 840°C, on a utilisé un raffinement de 20 éléments pour une longueur L_g (côté du cube correspondant en moyenne à un grain α de la tesselation de Voronoï). A 860°C et 880°C, comme le contraste entre les phases est moins important et que les grains β sont plus gros, un raffinement moins important, respectivement de 15 et 10 éléments pour L_g, a été suffisant.

Pour les différentes conditions de simulations, des VES contenant en moyenne un germe ($n_g = 1$, figure 4.4) ont été employés avec les trois types de conditions aux limites. Les réalisations de VES ont été multipliées afin d'obtenir pour chaque type de conditions aux limites, un comportement apparent moyen.

Mis à part à 860°C sous une contrainte de 20MPa, pour cette taille de VES, il a été observé un écart significatif entre les vitesses moyennes apparentes de fluage obtenues par les trois types de conditions aux limites (figures 4.27 et 4.29). Il ne s'agit donc pas de VSR même si les écarts sont faibles entre les CLPC et CLDHC. L'évaluation du comportement effectif est alors basée sur le comportement moyen entre les VES obtenu avec les conditions aux limites périodiques (CLPC). L'intervalle de confiance est fixé par les deux autres types de conditions aux limites, les CLCHC fournissant une estimation supérieure et les CLDHC une estimation inférieure (proche de celle obtenue par les CLPC). Les VES simulés sont de taille inférieure au VSR mais permettent donc néanmoins d'affiner l'estimation de la vitesse effective du matériau biphasé par rapport aux modèles de Sachs et Taylor.

4.3.3.1 Analyse des résultats à 1MPa

1. Vitesses moyennes de fluage :

   La figure 4.27 regroupe les vitesses de fluage moyennes obtenues pour une contrainte de 1MPa à 820, 840, 860 et 880°C. Comme mentionné précédemment, on observe des écarts entre les vitesses de fluage apparentes fournies par les trois types de conditions aux limites, même si cet écart est faible à 880°C. L'écart est le plus important avec les CLCHC alors que les CLPC et CLDHC donnent des résultats proches.

   Le comportement apparent, évalué par les CLPC, est assez proche des vitesses expérimentales à 820, 840 et 860°C. A 880°C, l'écart est plus important mais cela n'est pas surprenant car la valeur expérimentale est inférieure aux prédictions du modèle de Taylor. Pour toutes les températures, les estimations obtenues avec les CLPC sont assez proches du modèle de Taylor et plus éloignées du modèle de Sachs (mis à part à 880°C).

   A 860°C, la modélisation analytique auto-cohérente, avec approche au second-ordre, fournit une vitesse de fluage comprise entre celles obtenues par les CLPC et CLDHC, proche donc de l'estimation simulée par éléments finis, ce qui valide dans ces conditions le modèle analytique.

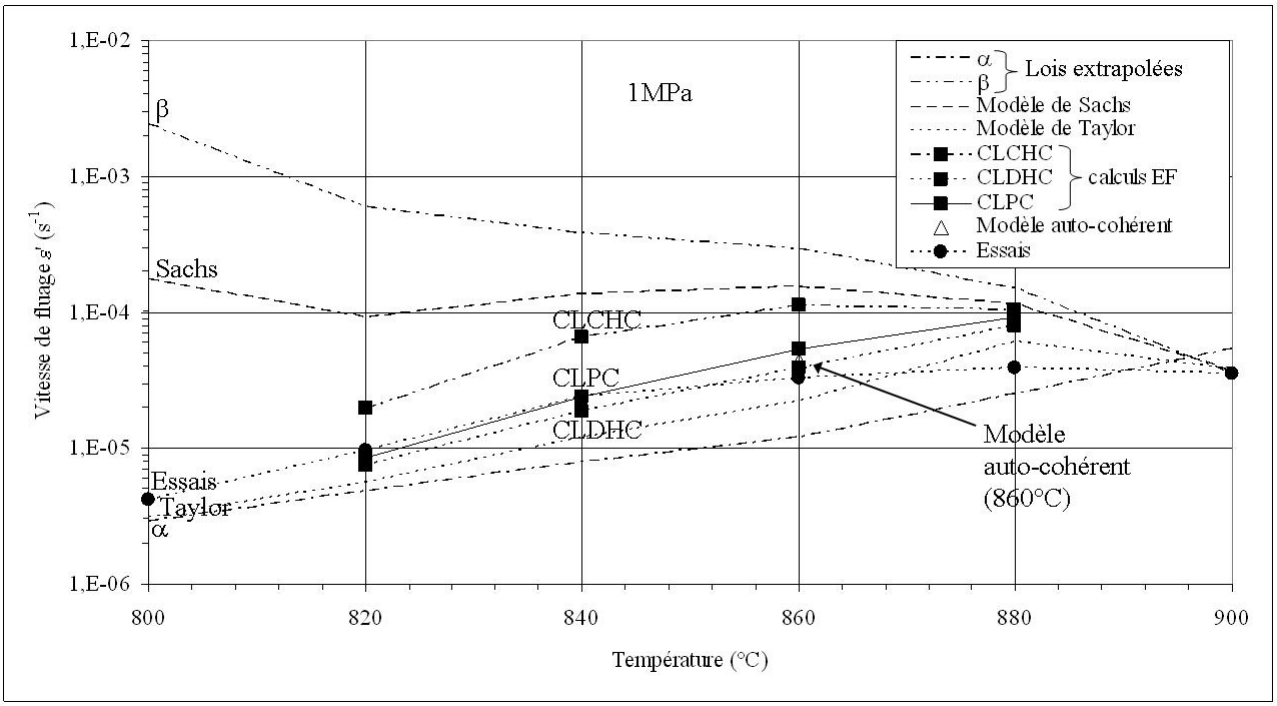


Figure 4.27 – *Modélisation par éléments finis du fluage du M5® pour une contrainte de 1MPa à partir de lois pour chacune des phases α et β (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.2)*

2. Analyse des hétérogénéités :

La figure 4.28 permet l'analyse des hétérogénéités de contraintes et vitesses de fluage dans chacune des phases pour une contrainte de fluage à 1MPa à 820, 840, 860 et 880°C. Les hétérogénéités intraphases, définies de manière analogue au modèle analytique ($\delta\sigma$ (équation 4.45) et $\delta\dot{\varepsilon}$ (équation 4.46)) et calculées à partir des champs de contraintes et de vitesses de fluage aux points de Gauss, sont mentionnées sur le graphe.

Pour toutes ces températures, la contrainte se concentre dans la phase α, plus résistante au fluage et inversement pour la déformation dans la phase β. Etant donnés les comportements de chaque phase aux différentes températures (figure 4.22), seul le régime diffusionnel est sollicité dans le matériau biphasé d'après ces simulations. Comme le coefficient de Norton est $n_1 = 1$ pour le régime diffusionnel, ceci se traduit par des valeurs d'hétérogénéité identiques en contraintes et vitesses de déformation pour chaque température.

Les hétérogénéités de contraintes et vitesses de déformation diminuent quand la température augmente car le contraste entre phases diminue aussi. A 820 et 840°C, contraintes et déformations sont nettement plus hétérogènes dans la phase β. Ceci s'explique par sa distribution morphologique, toute la phase β est peu éloignée de l'autre phase, et donc fortement affectée mécaniquement par la phase α. A 860 et 880°C, les contraintes et déformations sont quasiment aussi hétérogènes dans chacune des phases.

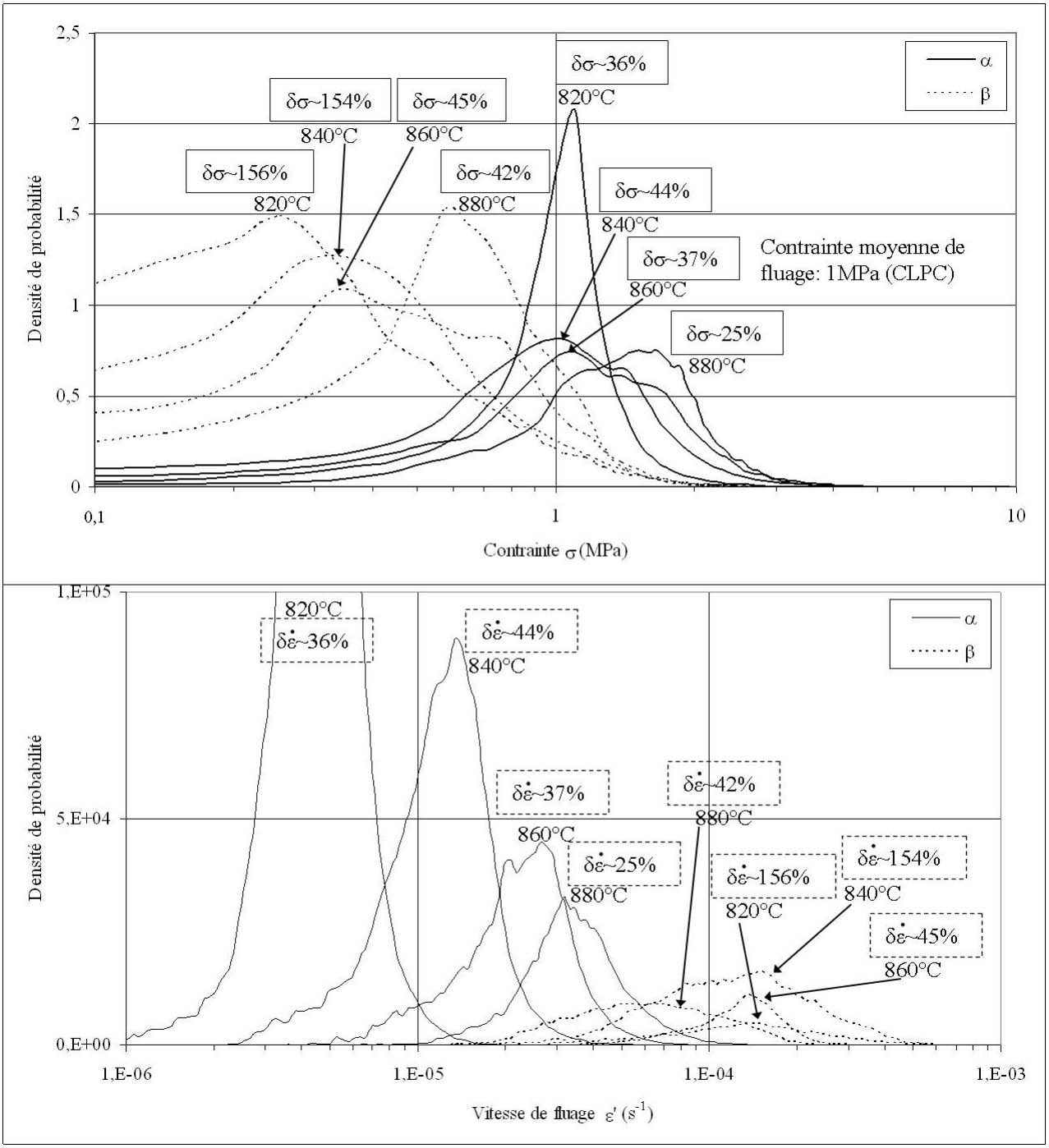


Figure 4.28 – *Hétérogénéités par phase de contraintes et vitesses de fluage du M5® pour une contrainte de 1MPa simulées par éléments finis en conditions aux limites périodiques à partir de lois pour chacune des phases α et β (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.2). Les hétérogénéités intraphases, $\delta\sigma$ (équation 4.45) et $\delta\dot{\varepsilon}$ (équation 4.46), sont mentionnées sur le graphe*

4.3.3.2 Analyse des résultats à 860°C

1. Vitesses moyennes de fluage :

La figure 4.29 regroupe les vitesses de fluage moyennes obtenues à 860°C pour une contrainte de 1, 4, 10 et 20MPa. Comme mentionné précédemment, de 1 à 10MPa, on observe des écarts entre les vitesses de fluage apparentes fournies par les trois types de conditions aux limites, même si cet écart est faible pour 10MPa. L'écart est le plus important avec les CLCHC alors que les CLPC et CLDHC ont des résultats proches. A 20MPa, l'écart entre les CLCHC et CLDHC est inférieur à 5%, les VES simulés sont donc des VSR pour cette température (et donc les lois de comportements des phases α et β à 860°C) et cette contrainte de 20MPa.

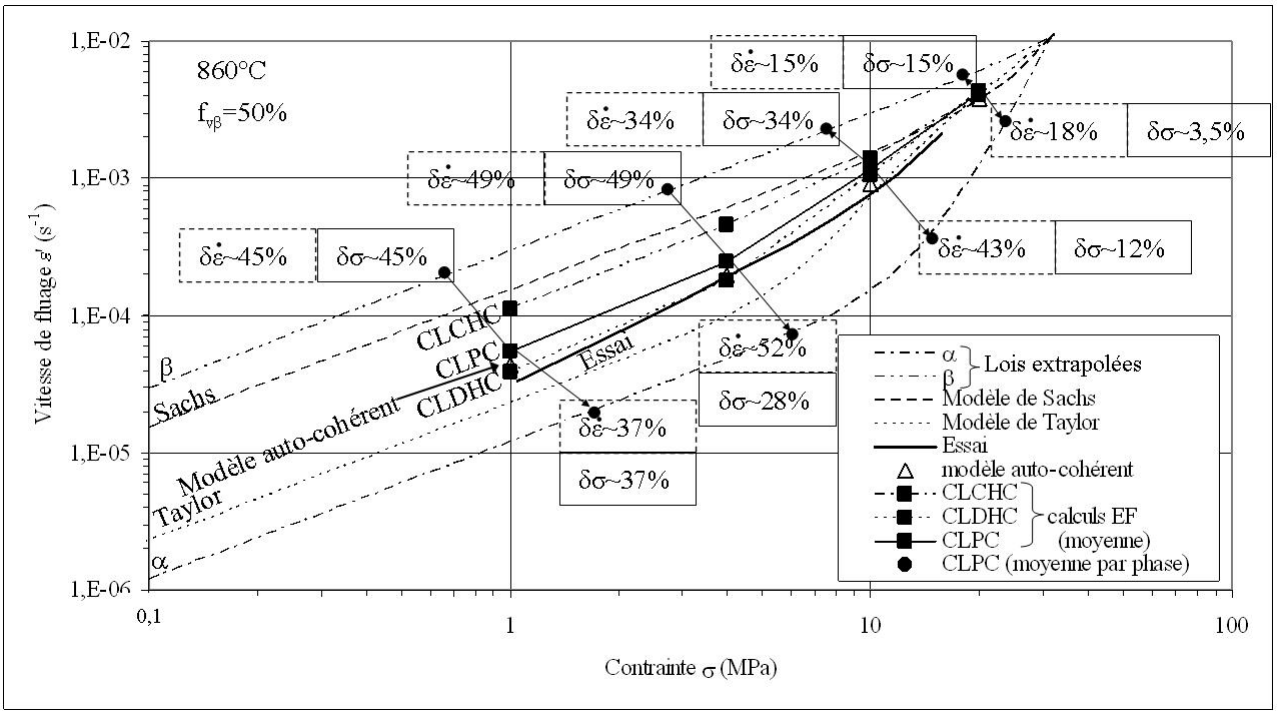


Figure 4.29 – *Modélisation par éléments finis du fluage à 1-4-10 et 20MPa du M5® à 860°C à partir de lois pour chacune des phases α et β (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.2). Les hétérogénéités intraphases, $\delta\sigma$ (équation 4.45) et $\delta\dot{\varepsilon}$ (équation 4.46), sont mentionnées sur le graphe*

Pour toutes les contraintes explorées, les vitesses de fluage estimées par éléments finis en conditions périodiques sont quasiment médianes (en logarithmique) entre les modèles de Sachs et Taylor et légèrement plus élevées que la valeur obtenue avec le modèle auto-cohérent. Pourtant, le contraste de contraintes entre les phases α et β est moins élevé dans la modélisation par éléments finis (figures 4.26 et 4.29). Dans les deux cas, la sensibilité à la contrainte est la même et les résultats sont proches des valeurs expérimentales.

2. Analyse des hétérogénéités :

La figure 4.30 permet l'analyse des hétérogénéités de contraintes et vitesses de fluage dans chacune des phases à 860°C pour les contraintes de fluage à 1, 4, 10 et 20MPa. Les hétérogénéités intraphases, définies de manière analogue au modèle analytique ($\delta\sigma$ (équation

4.45) et $\delta\dot{\varepsilon}$ (équation 4.46)) et calculées à partir des champs de contraintes et de vitesses de fluage aux points de Gauss, sont mentionnées sur le graphe.

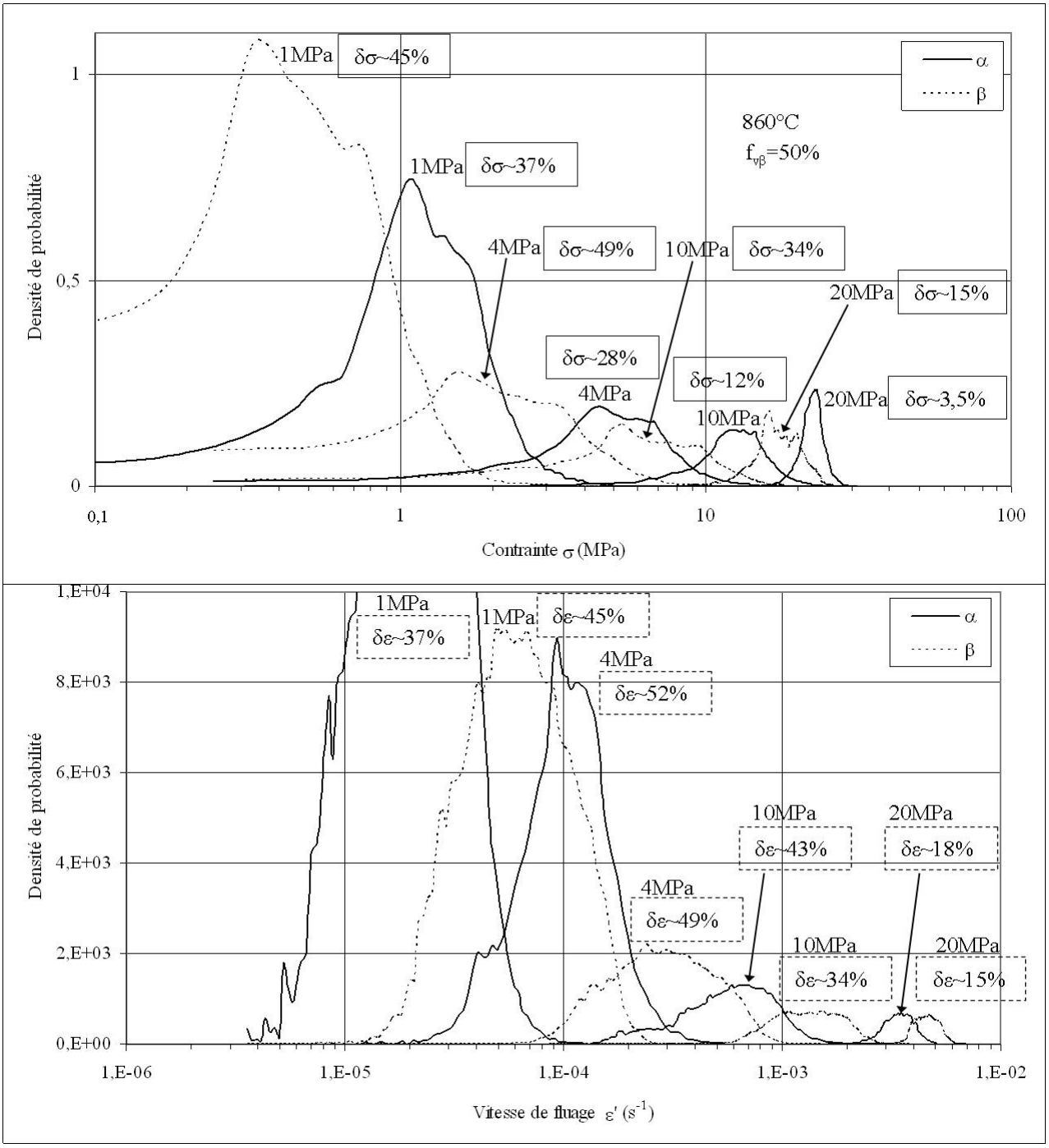


Figure 4.30 – *Hétérogénéités par phase de contraintes et vitesses de fluage à 1-4-10 et 20MPa du M5® à 860°C simulées par éléments finis en conditions aux limites périodiques à partir de lois pour chacune des phases α et β (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.2). Les hétérogénéités intraphases, $\delta\sigma$ (équation 4.45) et $\delta\dot{\varepsilon}$ (équation 4.46), sont mentionnées sur le graphe*

Les hétérogénéités de contraintes ($\delta\sigma$) et déformations ($\delta\dot{\varepsilon}$) sont moins importantes que dans la modélisation auto-cohérente (figures 4.26 et 4.29). A 1MPa, seuls les régimes de fluage diffusionnels sont sollicités, l'hétérogénéité intraphase est donc identique en

contrainte et déformation (figure 4.30). Pour les autres contraintes, la phase β est toujours sollicitée dans le régime de fluage diffusionnel alors que la phase α flue également dans la régime de fluage dislocations, partiellement à 4 et 10MPa et complètement à 20MPa. Les hétérogénéités de contraintes diminuent quand la contrainte moyenne augmente et sont plus élevées dans la phase β par rapport à la phase α. Les hétérogénéités de déformation diminuent de même dans la phase β pour des contraintes plus élevées et deviennent donc inférieures à celles calculées pour la phase α.

Le comportement en fluage du matériau M5® a été évalué par des approches analytiques (modèles de Sachs, Taylor, auto-cohérent avec approche au second-ordre) et numériques (approche statistique par VES, par éléments finis). Le comportement de chaque phase est décrit par le modèle identifié dans les domaines quasi-α et quasi-β et détaillé dans le tableau 3.7. La prise en compte de la taille de grains dans le comportement de chaque phase permet de reproduire de manière satisfaisante l'évolution du fluage de chaque phase et améliore la modélisation du fluage dans le domaine biphasé. La forte dépendance des lois de comportement vis-à-vis de la taille de grains montre qu'il est important de connaître le plus précisément possible ce paramètre. En affinant la connaissance de la taille des grains α et β dans le domaine biphasé, les différentes modélisations pourraient être améliorées.

Les modèles de Sachs et Taylor ne sont suffisants que lorsque le contraste entre phases est faible (à 880 et 900°C par exemple). Pour les températures plus faibles, même si le modèle de Taylor peut, en première approximation fournir une estimation, ces modèles sont insuffisants. Le modèle auto-cohérent et le modèle par éléments finis proposent des vitesses de fluage comparables et proches des vitesses expérimentales. Même si la confrontation entre ces modélisations est à approfondir, ces résultats confirment donc que le modèle auto-cohérent avec approche au second-ordre permet d'évaluer le comportement en fluage du matériau biphasé, même pour ces nouvelles lois de fluage. Dans le cadre d'une approche macroscopique telle que cette étude et de faibles contrastes entre phases, le modèle le plus efficace est donc le modèle auto-cohérent, avec approche au second-ordre.

Pour de plus forts contrastes, l'approche statistique par VES et la modélisation par éléments finis pourraient s'avérer nécessaire. Il en serait de même dans le cadre d'une approche plus locale. Afin d'affiner les estimations par éléments finis aux différentes températures, des simulations pour des VES de plus grande taille seraient à envisager, ce qui représente une étude assez lourde en temps et puissance de calcul.

Les simulations ont permis de montrer que dans le domaine biphasé, la phase β est uniquement sollicitée dans le régime de fluage diffusionnel alors que la phase α est sollicitée dans les deux régimes de fluage, diffusionnel et dislocations. L'hypothèse d'effet Hall-Petch pour le régime de fluage dislocations de la phase β n'a donc pas d'influence dans le domaine biphasé.

4.4 Conclusion

Pour une fraction de phase β de 30% et un contraste constant de 100 en vitesse pour des lois de fluage de Norton, peu d'effet de morphologie est observé. Il pourrait néanmoins en être autrement pour de plus forts contrastes de comportement entre les phases α et β. Comme les contrastes entre phases pour les lois de fluage de chaque phase s'avèrent faibles, cette étude a permis de montrer que l'effet de morphologie est limité pour le fluage du M5® dans le domaine biphasé, très inférieur à l'effet de taille de grains. Pour une quantification plus précise de l'effet morphologique, cette étude serait à poursuivre à l'aide de VES de plus grande taille, se rapprochant de la taille du VSR, afin de réaliser un comparatif entre morphologies des comportements effectifs estimés.

Les différentes modélisations montrent que la prise en compte de l'effet de taille de grains améliore très fortement la modélisation du comportement du matériau biphasé. En effet, les différentes valeurs fournies par ces modèles s'approchent des valeurs expérimentales. Un bon accord entre les simulations par éléments finis et le modèle analytique auto-cohérent, avec approche au second ordre, a été observé. Même si la confrontation entre ces modélisations est à approfondir, la modélisation analytique apparaît comme une solution efficace à retenir pour estimer le comportement du matériau biphasé à partir des lois de fluage modélisées pour chaque phase.

Il faut néanmoins rester conscient que la physique sous-jacente de cette modélisation peut être mise en doute, notamment le fait que l'on n'a pas distingué pour le fluage diffusionnel de Coble le type de joints de grains (interfaces inter ou intraphases). Des approches plus locales seraient à envisager pour améliorer ces aspects. Dans ce cas, la modélisation par éléments finis s'avérerait sans doute nécessaire, en plus des modèles analytiques.

Chapitre 5

Conclusion générale et perspectives d'études

5.1 Conclusion générale

Au sein d'un projet de soutien au nucléaire industriel, *i.e.* aux réacteurs nucléaires actuellement en service, ce travail de thèse a fait plus particulièrement partie des travaux d'étude de la tenue du gainage combustible en alliage de zirconium M5® des Réacteurs à Eau Pressurisée (REP). Le contexte considéré est l'une des situations de référence utilisées dans les études de dimensionnement et de sûreté des REP, à savoir l'Accident par Perte de Réfrigérant Primaire (APRP).

Dans le cas d'une rupture d'une branche du circuit primaire, ce scénario prévoit que les gaines de combustible sont soumises à un transitoire les portant rapidement à haute température (700-1200°C), en présence de vapeur d'eau et avec une pression interne significative. Les exigences de sûreté se traduisent par un certain nombre de critères portant sur la déformation et la fragilisation des gaines au cours du transitoire, servant de démonstration quant à la la capacité de refroidissabilité du cœur à long terme. Cette étude s'est plus particulièrement inscrite dans la première phase du transitoire APRP (gonflement - rupture).

Il est néanmoins rappelé que ce travail de thèse s'est située en amont par rapport aux conditions APRP, bien que la motivation initiale soit reliée à ces conditions accidentelles. Notamment, les effets suivants n'ont pas été pris en compte ici :
- irradiation (matériau vierge) ;
- hydrogène (matériau vierge) ;
- oxydation (vide secondaire) ;
- conditions dynamiques (conditions isothermes et sollicitations de fluage) ;
- texture et structure différentes de celles d'une gaine en pression interne (sollicitation axiale dans la direction de laminage d'une tôle).

Nos résultats et conclusions, présentés dans ce manuscrit et synthétisés ci-dessous, ne sont donc valides que dans ce cadre particulier. Leur extrapolation aux conditions EDGAR et *a fortiori* APRP ne peuvent se faire directement, sans précautions.

1. Comportement en fluage au chauffage du M5® :

   A partir des différents essais réalisés sur de la tôle de M5®, pour des températures comprises entre 650 et 1050°C, un comportement analogue a été révélé, par rapport à celui observé par Kaddour (2004) sur gaines. Plus en détails selon les différents domaines de phases, on a observé :
   - dans le domaine monophasé quasi-α, deux régimes de fluage, d'exposants de Norton n_1=1 à faibles contraintes et n_2=5 à plus fortes contraintes
   - dans le domaine monophasé β, un seul régime d'exposant de Norton n_2=4
   - dans le haut du domaine biphasé, un régime supplémentaire de fluage avec un exposant de Norton n_1=1. Ce domaine a été alors considéré comme le domaine quasi-β et le régime observé est associé à la phase β, en plus du régime déjà mis en évidence dans le domaine monophasé β. Par ailleurs, d'un point de vue microstructural, parallèlement à la disparition de la phase α, un fort grossissement de la taille des grains β lors de la transition du domaine quasi-β (900-920°C) vers le bas du domaine 100% β (930-960°C).

   L'insuffisance de la modélisation du comportement du matériau biphasé basée sur l'extrapolation directe de lois de comportement pour chaque phase identifiées dans les domaines monophasés respectifs a été remise en évidence, en particulier aux faibles contraintes, et reliée notamment à la rupture de comportement observée dans le haut du domaine

biphasé. Afin d'améliorer l'extrapolation du comportement de chaque phase et par conséquent la modélisation du comportement de chaque phase, les effets de taille de grains et des éléments d'alliage ont alors été étudiés.

2. Effet de la taille de grains sur le comportement en fluage du M5® :

Pour la phase α, ce travail a établi les résultats suivants :
- un effet de taille de grains, décrit par le modèle de Coble, est observé dans le régime basses contraintes, confirmant son caractère diffusionnel,
- aucun effet de taille de grains n'est mis en évidence pour le régime de fluage dislocations, aux plus fortes contraintes.

Pour la phase β, cette étude a montré les résultats suivants :
- peu d'effet de taille de grains pour le régime de fluage dislocations a été constaté. Malgré tout, un effet de type Hall-Petch pourrait conduire à un renforcement du matériau, pour les faibles tailles de grains (inférieures à $90\mu m$ environ),
- l'on a confirmé l'existence d'un second régime de fluage. Comme pour la phase α, il s'agit d'un régime fortement dépendant de la taille de grains. Etant donné que les tailles de grains β ont un intervalle d'évolution important (trois décades) dans les domaines quasi-β et biphasé, il est crucial de prendre en compte cet effet. Un modèle de type Coble est ici également adapté.

Il a donc été montré expérimentalement que la vitesse de fluage du M5® était sensible à la taille de grains, dans certains domaines de température / contrainte. Par conséquent, le modèle de comportement destiné à être ensuite extrapolé dans le domaine biphasé a été affiné en y incluant ces effets de taille de grains. L'identification a été réalisée à partir de l'ensemble des essais de fluage effectués sur le matériau M5®.

3. Effet des éléments d'alliage sur le comportement en fluage du M5® :

Le contraste « micro-chimique » en niobium entre chaque phase dans le domaine biphasé a été mis en évidence par un étude préliminaire expérimentale. Des teneurs proches des teneurs à l'équilibre ont ainsi été mesurées, enrichissement en niobium de la phase β et appauvrissement de la phase α.

En complément de l'effet de taille de grains, nous nous sommes alors attachés à mettre en évidence un effet de ces teneurs spécifiques en niobium et oxygène sur le comportement en fluage de chaque phase.

Pour la phase α, cette étude a montré les résultats suivants :
- la teneur en niobium a révélé un effet sur les deux régimes de fluage. A 700°C, une diminution de la teneur de 1 à 0,2% entraîne une augmentation de la vitesse de fluage de moins d'une décade dans le régime de fluage diffusionnel et d'un peu plus d'une décade dans le régime de fluage dislocations. Quand la température augmente vers 840-850°C, cet effet diminue d'une demi-décade pour le régime de fluage dislocations ;
- cet effet du niobium seul peut être considéré comme une borne supérieure de l'effet du contraste « micro-chimique » global sur la phase α, dans l'hypothèse où l'effet serait inverse pour l'enrichissement en oxygène de la phase α.

Pour la phase β, ce travail a permis d'établir les résultats suivants :
- la teneur en niobium a un effet sur le régime de fluage dislocations. Les écarts relevés sont néanmoins moins importants que pour la phase α (une diminution de la teneur de 1 à 0,2% entraîne à 960°C une augmentation de la vitesse de fluage d'environ une demi-décade) ;
- pour le régime de fluage diffusionnel, aucun effet du niobium seul n'a clairement été mis en évidence ;
- un faible effet durcissant dans le régime de fluage dislocations (45% environ en vitesse) et dans le régime de fluage diffusionnel (30% environ en vitesse) a été mesuré, sous l'effet combiné de l'enrichissement en niobium et de l'appauvrissement en oxygène tel qu'observé pour la phase β dans le domaine biphasé.

A la lumière de ces résultats, par rapport à l'effet de taille de grains, l'effet du contraste « micro-chimique » apparaît de second ordre. Dans un premier temps, le modèle de fluage prenant en compte l'effet de taille de grains ainsi que l'effet de la température a donc semblé suffisant pour décrire le comportement de la phase β dans les domaines monophasé β, quasi-β voire biphasé ($\alpha + \beta$).

4. Simulation du comportement du matériau biphasé M5® :

A partir des lois de comportement de chaque phase, l'évaluation du comportement en fluage du matériau biphasé a été traitée par une approche numérique et statistique : la méthode, utilisant des Volumes Elémentaires Statistiques (VES), a consisté en l'estimation du comportement effectif à partir de simulations par éléments finis de microstructures biphasées aléatoires, décrivant la morphologie 3D de chacune des phases.

Ainsi, dans un premier temps, en se basant sur des lois de comportement simplifiées pour chaque phase, on a étudié à partir de différents morphologies et différentes fractions volumiques l'effet de la morphologie sur le comportement en fluage du matériau biphasé. Peu d'effet a été observé par cette étude. De plus, dans ces conditions, l'estimation du comportement du matériau biphasé à partir d'une modélisation analytique auto-cohérente, avec l'approche au second-ordre, est apparue très efficace et donc très satisfaisante.

Dans un second temps, on s'est basé sur la modélisation du comportement en fluage de chaque phase prenant en compte l'effet de taille de grains ainsi que l'effet de la température. Les extrapolations de ces lois dans le domaine biphasé, modélisation analytiques (modèles de Sachs, Taylor, auto-cohérent avec approche au second-ordre) et les simulations numériques ont montré que la prise en compte de l'effet de taille de grains permet de reproduire de manière satisfaisante l'évolution du fluage de chaque phase. Les estimations des vitesses de fluage du matériau biphasé se sont révélées proches des vitesses observées expérimentalement. A nouveau, l'estimation du comportement du matériau biphasé à partir d'une modélisation analytique auto-cohérente, avec l'approche au second-ordre, est apparue très intéressante. Il s'agit donc d'une méthode à considérer par la suite.

De plus, ces simulations ont permis de montrer que dans le domaine biphasé :
- la phase α est sollicitée dans les deux régimes de fluage, diffusionnel et dislocations,
- la phase β est uniquement sollicitée dans le régime de fluage diffusionnel. La modélisation d'un supposé effet Hall-Petch pour le régime de fluage dislocations de la phase β n'a donc pas d'effet dans le domaine biphasé.

5.2 Perspectives d'études

– Simulation du comportement du matériau biphasé M5® :

Afin d'étudier plus finement un possible effet morphologique, les simulations sont à poursuivre à l'aide de VES de plus grande taille, se rapprochant de la taille de VSR. Ceci pourrait être effectué pour différentes fractions volumiques afin de réellement balayer les différentes possibilités de percolation de chaque phase. Cela permettrait de réaliser de manière plus complète et sans biais un comparatif entre morphologies des comportement effectifs estimés. Une comparaison plus locale reste à effectuer à l'aide des distributions des déformations (ou vitesses de déformation) et contraintes dans chaque phase, en plus des comparaisons globales (moyennes et moyennes par phase). Un plus fort contraste entre les phases peut aussi être envisagé afin d'accentuer l'effet de la morpholgie.

La base expérimentale étant assez large, la confrontation entre les simulations du comportement du matériau biphasé M5® et les essais doit être complétée. De même, les simulations sont à poursuivre à l'aide de VES de plus grande taille, se rapprochant de la taille de VSR.

Toutes ces travaux complémentaires peuvent également permettre de confronter les simulations numériques et les modèles analytiques pour les valider plus complètement, afin de pouvoir s'en servir pour les prochaines évolutions de la modélisation des lois de comportements des phases α et β du M5®.

– Effet de l'oxygène et/ou de l'oxydation sur le comportement en fluage du M5® ?

Les résultats de cette étude concernant plus particulièrement les effets du niobium, il convient d'étayer l'hypothèse selon laquelle l'effet de l'oxygène serait inverse, *i.e.* aussi un effet durcissant mais s'opposant à celui niobium car les teneurs en niobium et oxygène évoluent en sens inverse dans le domaine biphasé.

Pour cela, des alliages à variabilité en oxygène doivent être élaborés afin de compléter l'étude des effets des éléments d'alliage sur le comportement en fluage du M5®, de même que le matériau représentatif-α, dont l'élaboration a échoué.

Si l'effet combiné du niobium et de l'oxygène s'avère assez important, une modélisation complémentaire pourrait alors permettre d'affiner les lois de comportement des phases α et β dans le domaine biphasé.

Par ailleurs, afin de se rapprocher du cadre réel des études EDGAR ou APRP, il conviendra de prendre en compte progressivement les effets mis de côté. En particulier, dans un premier temps, l'étude de l'effet de l'oxydation, s'appuyant en partie sur l'étude précédente de l'effet de l'oxygène est à aborder.

– Comportement isotropique ou anisotropique du M5® ?

Cette perspective concerne essentiellement la phase α, la plus susceptible à de l'anisotropie de comportement, mais pourrait être aussi abordée pour la phase β. L'objectif affiché serait d'identifier un comportement isotrope à haute température (>650°C ou tout du moins dans le domaine biphasé).

Si ce n'est pas le cas, il s'agira de développer un nouveau modèle de gonflement, correspondant à du fluage d'une gaine sous pression interne. Mais, comme le phénomène de ballonnement (gonflement localisé de la gaine) n'est pas vraiment unidimensionnel, cela risque de ne pas suffire. De manière plus complète, on pourrait donc envisager de développer un modèle tridimensionnel de fluage, par exemple en élargissant la base expérimentale à d'autres directions de sollicitations et en analysant les résultats par des approches polycristallines.

Ainsi, on permettrait le passage entre différentes structures (tôles, gaines) et sollicitations (traction, pression interne...), par des approches polycristallines en cas d'anisotropie.

– Conditions dynamiques du M5® :

Par la suite, afin de se rapprocher des conditions du transitoire APRP, il faudra prendre aussi en compte les aspects anisothermes et évolution de la pression interne. Comme des conditions dynamiques impliquent des états hors équilibre (retards dans la transformation de phases...), cette perspective semble la plus lointaine. Un premier pas pourrait être une modélisation pseudo-dynamique, *i.e.* décomposer les évolutions dynamiques en une succession de paliers statiques, et de voir quelles sont les évolutions à apporter à cette modélisation.

Annexe A

Essais de fluage sur tôle

Cette annexe décrit la technique expérimentale employée dans toute l'étude pour mener des essais de fluage isotherme sur tôle, à haute température (650-1050°C), sous atmosphère protectrice (vide secondaire) et dans le domaine des faibles contraintes (1-100MPa). Une méthode de chargement axial par paliers a été employée à chaque température investiguée.

Les différentes mesures effectuées ainsi que les méthodes de dépouillement sont décrites en détail. Un système de suivi de résistance permet de suivre *in-situ* la transformation de phases et la déformation de l'éprouvette. La déformation de l'éprouvette est également suivie par extensométrie laser. Les mesures dans ce cas sont dépouillées par analyse inverse.

Enfin, les diverses incertitudes expérimentales sont évaluées.

Sommaire

A.1 Dispositif expérimental de fluage 223
A.2 Déroulement des essais de fluage 226
A.3 Dépouillement des essais de fluage 228
A.3.1 Suivi de la transformation de phases 229
A.3.1.1 Principe du suivi de résistance 229
A.3.1.2 Validation de la technique sur tôle 233
A.3.2 Suivi cinématique par mesure de résistance 234
A.3.3 Suivi cinématique par extensométrie laser 235
A.3.3.1 Modèle de comportement d.d.i. (deux déformations inélastiques) 236
A.3.3.2 Pré-dépouillement 237
A.3.3.3 Identification inverse (couplage Cast3M - SiDoLo) 239
A.3.4 Comparaison des deux méthodes de suivi cinématique 240
A.4 Incertitudes expérimentales 242
A.4.1 Grandeurs mesurées 242
A.4.2 Grandeurs calculées 244
A.5 Conclusion 248

A.1 Dispositif expérimental de fluage

Le dispositif expérimental utilisé pour réaliser les essais de fluage a été développé au Centre des Matériaux des Mines ParisTech par Michel Rousselot lors de la thèse de Stéphane Fréchinet (2001), puis amélioré lors de celle de Djillali Kaddour (2004) (figure A.1). Il permet, sous atmosphère protectrice (vide secondaire), d'effectuer des essais dilatométriques et mécaniques en contrôle de charge axiale, à haute température, sur diverses géométries d'éprouvettes :

- des tubes de gainage comme lors des thèses de Fréchinet (2001), Kaddour (2004),
- des tôles dans cette étude (figure A.2), pour lesquelles un protocole spécifique a été mis en place.

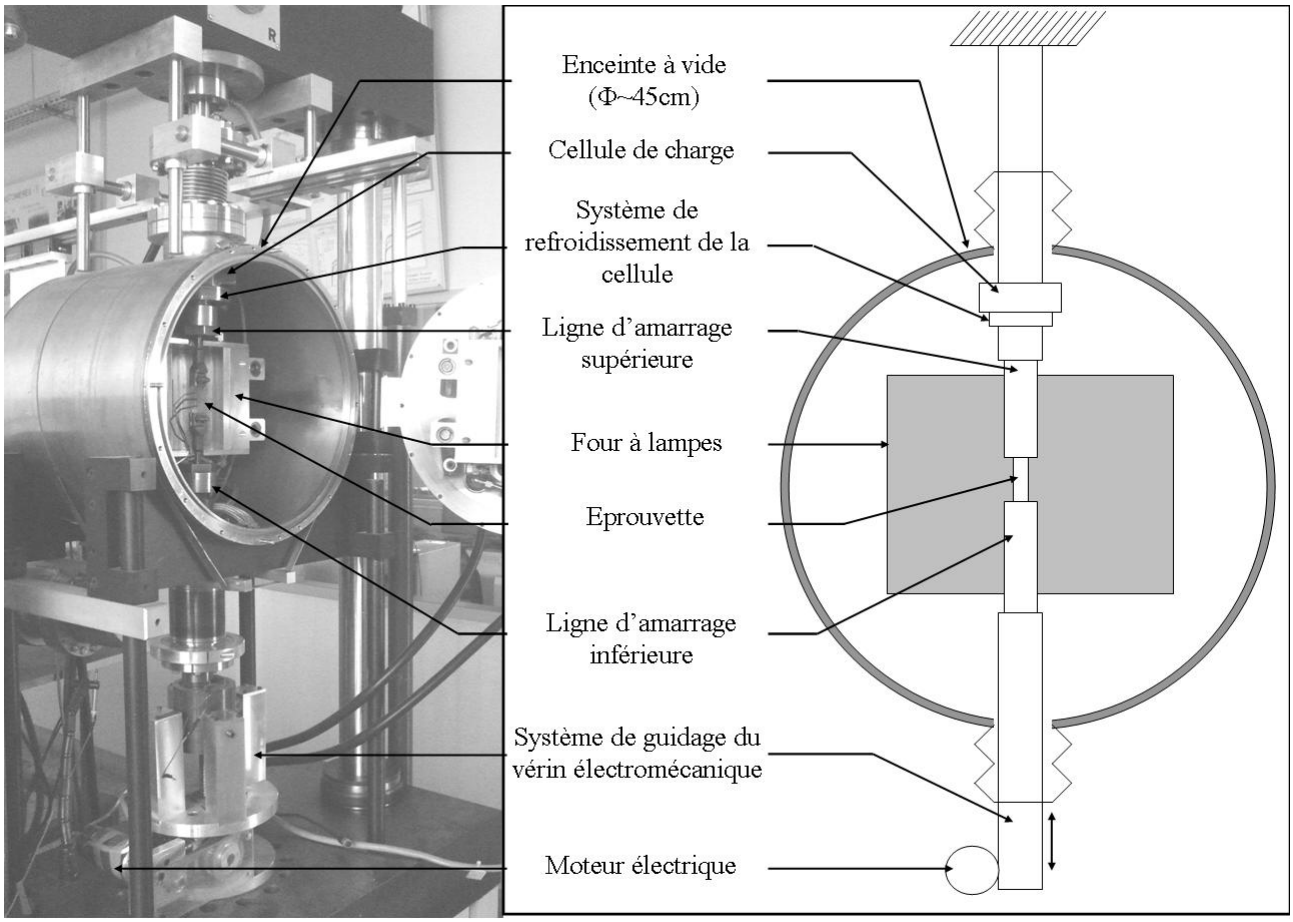


Figure A.1 – *Dispositif expérimental de fluage axial à haute température sous vide secondaire*

L'enceinte à vide, équipée d'un système de pompage (pompe primaire à palettes et pompe secondaire turbomoléculaire) permet d'atteindre un vide secondaire inférieur à 10^{-6}mbar.

Le four à radiations, d'une puissance maximale de 6kW, situé à l'intérieur de cette enceinte, permet d'atteindre des températures supérieures à 1200°C. Son pilotage thermique est assuré par un EuroTherm, comprenant un correcteur PID, la mesure de température se faisant par l'intermédiaire d'un thermocouple S platine / platine rhodié - 10% (pour des raisons de compatibilité métallurgique à haute température avec les alliages de zirconium) soudé par points au milieu de la zone utile de l'éprouvette (figure A.3). Ceci permet de réguler la température jusqu'à des vitesses de 300°C/min. Cette limitation provient notamment de la limite de vitesse de refroidissement four coupé en-dessous de 650°C. Fréchinet (2001), Kaddour (2004) ont vérifié à l'aide de deux thermocouples supplémentaires que le gradient thermique au niveau de la zone

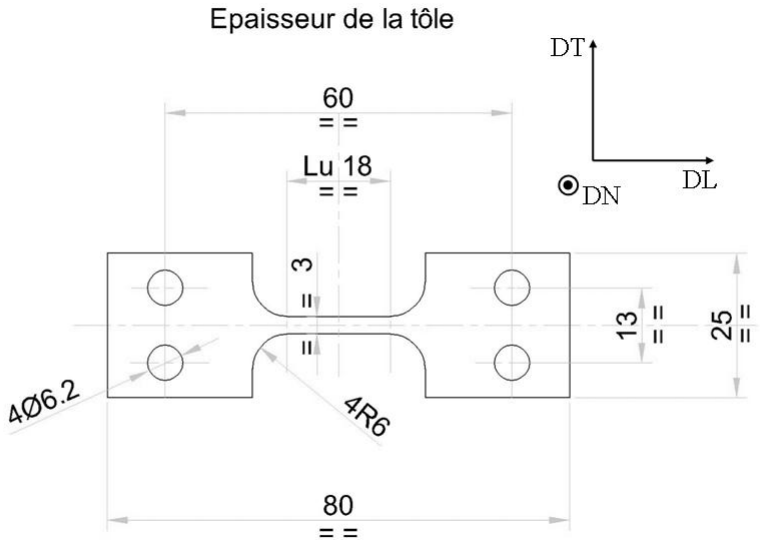


Figure A.2 – *Géomérie des éprouvettes de fluage*

utile est inférieur à 5°C. Ce faible gradient thermique a été confirmé ici grâce aux observations métallographiques post essais (homogénéité des proportions de phase α et β dans le domaine biphasé et également de taille de grains en haut du domaine biphasé dans le domaine où est observé le fort grossissement des grains β).

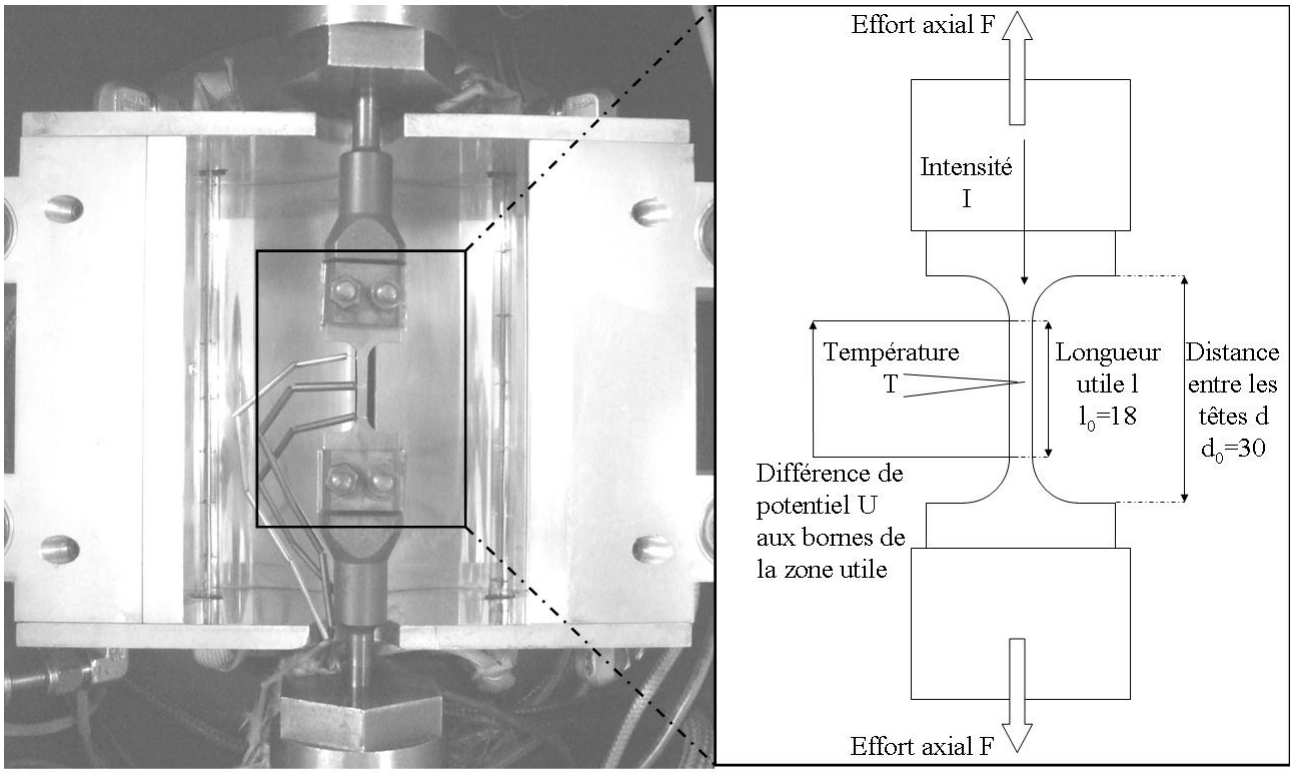


Figure A.3 – *Montage expérimental des éprouvettes de fluage*

Le vérin électromécanique, placé à l'extérieur de l'enceinte, sollicite axialement l'éprouvette. Une cellule de charge de capacité maximale 50daN est située à l'intérieur de l'enceinte. Associée à un asservissement à correcteur proportionnel, celle-ci permet de piloter le vérin à charge im-

posée F (figure A.3). Le réglage correct de l'alignement de la ligne de traction s'effectue par les intermédiaires du système de serrage des mors sur les lignes d'amarrages supérieurs et inférieurs (système à olives coniques), du pot en métal de Wood reliant la ligne d'amarrage inférieure au vérin électromécanique et aussi du système de guidage du vérin électromécanique.

Un extensomètre laser, dont l'émetteur et le récepteur sont situés de part et d'autre de l'enceinte au niveau de hublots filtrants (figure A.4), mesure sans contact la distance d entre les têtes de l'éprouvette (figure A.3). Le dépouillement de ces mesures est détaillé dans la suite de cette annexe.

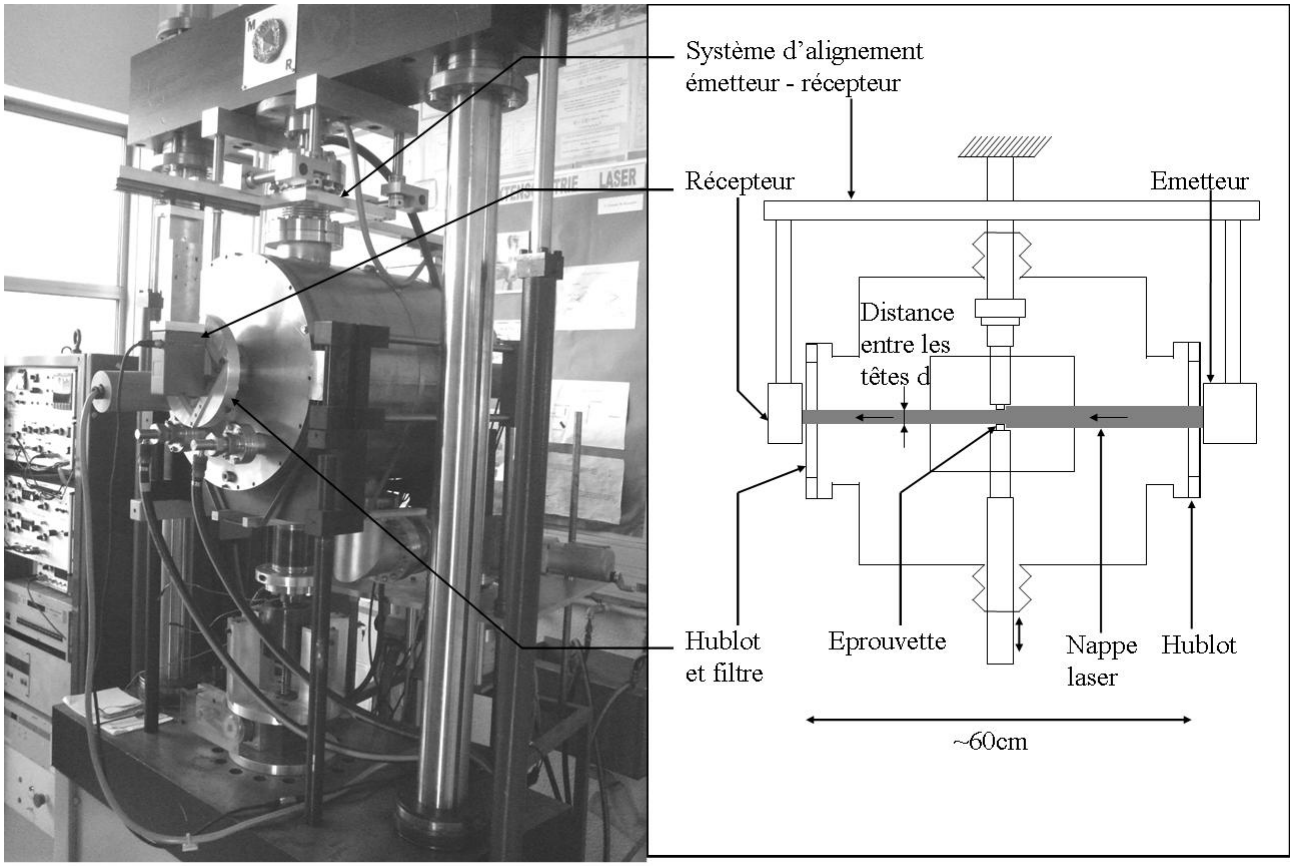


Figure A.4 – *Positionnement de l'extensomètre laser de part et d'autre de la machine de fluage*

Un suivi de résistance de l'éprouvette est également mis en œuvre par un système quatre fils, composé de deux amenées de courant continu d'intensité I et de deux fils de prise de potentiel U en platine rhodié - 10% (pour les mêmes raisons de compatibilité métallurgique avec le Zr que pour le thermocouple). Ces prises de potentiel sont soudées par points de part et d'autre de la zone utile (figure A.3). Cette mesure de différence de potentiel permet à la fois de suivre *in-situ* la transformation de phases dans le matériau, mais aussi au cours de l'essai de suivre la déformation de la partie utile de l'éprouvette. Le dépouillement de ces mesures est également détaillé dans la suite.

Les mors étant en alliage à base de nickel, des feuillards de molybdène sont insérés comme éléments séparateurs entre les mors et l'éprouvette (toujours pour des raisons de compatibilité métallurgique avec le matériau), tout en conduisant le courant arrivant par les mors et devant traverser l'éprouvette.

Le four et la cellule de charge (et par conséquent la ligne d'amarrage supérieure) sont refroidis par une circulation d'eau.

A.2 Déroulement des essais de fluage

Le montage expérimental des éprouvettes est réalisé comme décrit sur la figure A.3, en régulant à charge nulle. L'enceinte est ensuite mise sous vide secondaire.

Les acquisitions effectuées lors de l'essai sont, en fonction de la base de temps :
- la température T de l'éprouvette, par l'intermédiaire du thermocouple,
- la charge axiale F appliquée, par l'intermédiaire de la cellule de charge,
- la différence de potentiel U de part et d'autre de la zone utile,
- la distance d entre les têtes de l'éprouvette, par l'intermédiaire de l'extensomètre laser.

Le cycle thermique appliqué lors de l'essai est décrit figure A.5.

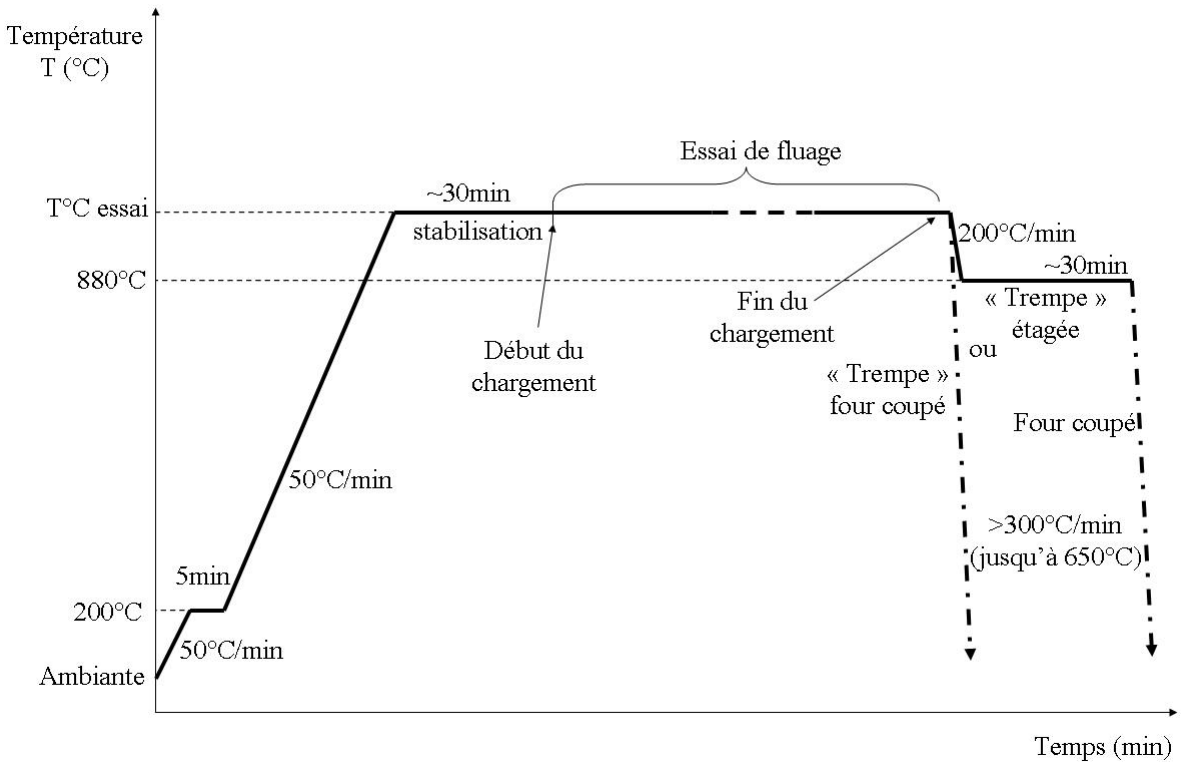


Figure A.5 – *Cycle thermique appliqué aux éprouvettes de fluage*

Les différents chauffages et refroidissements sont effectués à charge nulle, le sytème de régulation suivant alors la dilatation thermique du matériau ainsi que la dilatation ou contraction due aux changements de phases.

Un premier palier de 5min à 200°C permet de vérifier le bon fonctionnement de l'acquisition et des asservissements en température et en charge. De plus, cela sert de référence de départ commune à tous les essais.

La température d'essai est atteinte ensuite en suivant une rampe de 50°C/min. Un palier d'attente de 30min à cette température est effectué avant de débuter le cycle de chargement

mécanique, dont un exemple est fourni figure A.6. La température est ainsi plus homogène au voisinage de l'éprouvette et la mesure laser par conséquent plus stable également. Par ailleurs, d'un point de vue métallurgique, un état de « quasi-équilibre » est atteint, que ce soit en termes de transformation de phases ou de taille de grains. Cette phase de stabilisation à la température d'essai permet aussi de vérifier qu'il n'y a pas de chargement parasite (la distance d entre les têtes mesurée par l'extensomètre laser reste fixe).

Contrairement à un essai de fluage classique (Gueussier (1956), Saint-Antonin (1995)) où l'on maintient une charge ou une contrainte constante, dans un souci d'économie de temps et de matière, une même éprouvette est sollicitée à différentes charges constantes au cours d'un même essai. Cette approche a déjà été utilisée dans les études précédentes (Kaddour (2004) et Kaddour et al. (2004) sur le même matériau et antérieurement Fréchinet (2001) sur le Zy-4) ou dans d'autres études dans la littérature, notamment pour le Zr par Ardell et Sherby (1967), MacEwen et al. (1981) ou des alliages de Zr par Murty (2000a) ou encore des composites à matrice Ti (Ranganath et Mishra (1996)). Certaines limites d'une telle approche sont expérimentées par Warda et al. (1973) ou décrites par Franklin et al. (1983) : durcissement et restauration éventuels du matériau, plus généralement dans le cas d'études à plus basse température.

Une méthode à paliers croissants et/ou décroissants de température a été utilisée également par Ardell et Sherby (1967), Gilbert et al. (1969), Warda et al. (1973), MacEwen et al. (1981) sur du Zr en comparatif de la méthode précédente ou par Malakondaiah et al. (1982) sur du Zr, Ti et Co dans le domaine α pour identifier des énergies d'activation ou encore Singh et al. (2001) sur du Zr-2,5%Nb afin de mettre en évidence l'effet de l'état métallurgique de départ (écroui ou recristallisé). Etant donné les effets microstructuraux sur le comportement en fluage mis en évidence par Kaddour (2004), une telle approche ne peut être envisagée au-delà de ce domaine et n'a donc pas été utilisée ici.

Ici, afin donc de s'assurer de l'équivalence dans ce cas précis entre les deux approches, il convient de vérifier qu'il n'y a pas d'effet d'histoire du chargement. On fait donc subir à l'éprouvette à la fois des paliers croissants et décroissants de charge comme décrit figure A.6.

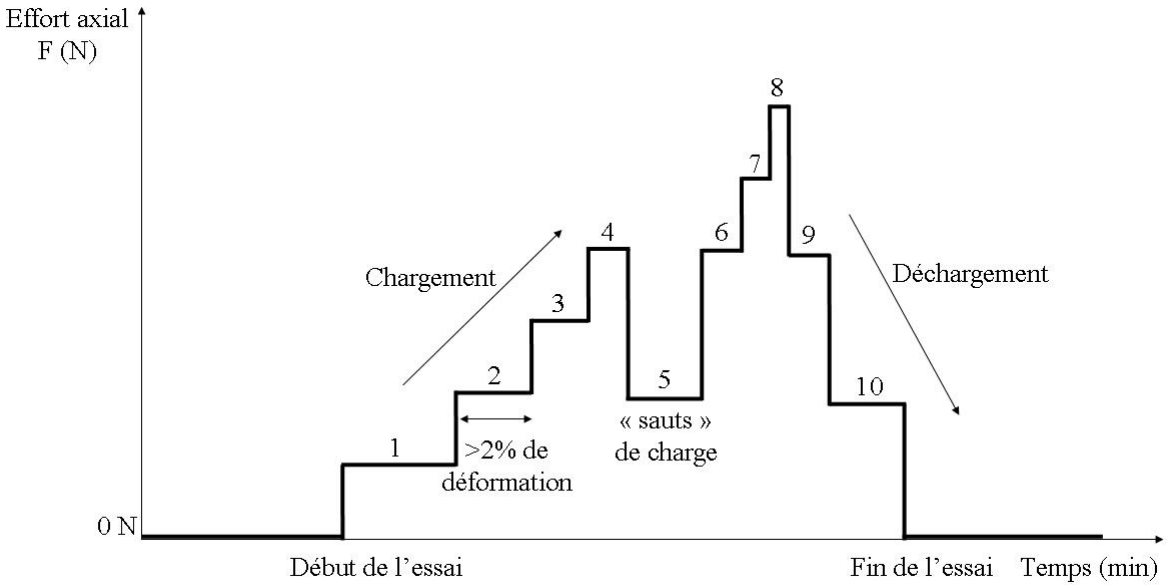


Figure A.6 – *Cycle de chargement mécanique appliqué aux éprouvettes de fluage (ici, par exemple, 10 paliers de chargement)*

Mis à part dans de rares cas, au premier niveau de chargement, les éprouvettes ne sont sollicitées que dans le régime de fluage secondaire ou stationnaire (vitesse de fluage constante en fonction du temps). Chaque niveau de chargement est maintenu pour déformer la zone utile d'environ 2% afin d'obtenir une mesure correcte de la vitesse de déformation.

L'essai est piloté à charge constante et non pas à contrainte constante. Il est donc normal de constater que la contrainte augmente légèrement au cours du palier. Néanmoins, pour des paliers d'environ 2% de déformation, cette augmentation est trop faible pour être sensible au niveau des vitesses de fluage (vitesses constantes par niveau de charge). C'est donc la contrainte moyenne par niveau de chargement qui est retenue.

D'un point de vue pratique, le choix du niveau minimum de chargement (premier niveau) et du niveau maximum de chargement est limité respectivement par la précision expérimentale de la mesure de la charge et par la vitesse maximale accessible à charge constante (en-deçà de la capacité maximale de 50daN la cellule de charge). Le nombre maximum de paliers est quant à lui lié à l'allongement total mesurable par extensométrie laser (10mm).

A la fin de l'essai, avant de refroidir, on régule à nouveau à charge nulle. Aucun effet de seuil n'est observé, à savoir que le matériau s'arrête de fluer (vitesse de déformation inférieure à $5.10^{-8}s^{-1}$) quand on annule la sollicitation.

Le refroidissement peut ensuite s'effectuer de deux manières :

- four coupé afin de « tremper » la microstructure du matériau. C'est le refroidissement utilisé pour les essais effectués dans le domaine quasi-α, mais surtout ceux effectués dans le domaine biphasé ($\alpha+\beta$). Le but est que la phase β, existant à la température d'essai, se transforme au refroidissement en une microstructure de Widmanstätten, que l'on pourra distinguer de la phase α primaire en métallographie (figure 2.18).

- de manière étagée avec un palier isotherme de 30min à 880°C avant de refroidir également four coupé. Ce refroidissement a été utilisé pour les essais effectués dans le domaine β. En effet il a été observé lors de la thèse de D. Kaddour (2004) qu'au refroidissement à partir du domaine β, la phase α germait principalement tout d'abord en position intergranulaire β et se développait le long des joints de grains sous forme de lattes, la germination / croissance en position intragranulaire β se déroulant par la suite. Le palier isotherme à 880°C permet aux lattes de phase α formées au refroidissement, en l'occurrence principalement intergranulaires, de s'épaissir, par rapport aux autres lattes, intragranulaires, qui seront formées dans la suite du refroidissement, ce qui permet de mettre en évidence les ex-grains β par analyse métallographique (figure 2.11).

A.3 Dépouillement des essais de fluage

Etant donnés les niveaux de déformations atteints (plusieurs dizaines de %), le dépouillement de l'essai se fait en grandeurs rationnelles. Deux mesures permettent d'accéder à la déformation de l'éprouvette : le suivi de résistance, qui permet de plus d'assurer un suivi *in-situ* de la transformation de phases, et le suivi de la distance d entre les têtes de l'éprouvette, par extensométrie laser.

A.3.1 Suivi de la transformation de phases

Le suivi de résistance est utilisé pour observer les évolutions de la résistivité d'un matériau. Les principaux paramètres influençant la résistivité sont l'organisation cristalline (phases, densité de dislocations), la température et la composition chimique (éléments d'alliages et impuretés Renucci et Langeron (1967b), Peletsky et Musayeva (1995)). Les évolutions de la résistivité peuvent donc être liées à divers phénomènes, notamment la recristallisation (Renucci et Langeron (1967b)), la déformation plastique (Renucci et Langeron (1967a)), le vieillissement ou la précipitation (Loucif et al. (1992), Merle et al. (1993)) ou bien encore des transformations de phases.

Cette technique de suivi de résistance a été utilisée dans un certain nombre d'études pour suivre les transformations de phases. En particulier on peut citer entre autres Zil'Bershteyn et al. (1973), Bein et Béchet (1996), Da Costa Teixeira et al. (2007), Bruneseaux et al. (2008) sur du titane ou des alliages de titane, Zil'Bershteyn et al. (1973), Milošević et Maglić (2006) sur du zirconium, Chung et al. (1975), Corchia et Righini (1981), Arias et Roberti (1983), Fréchinet (2001), Gey et al. (2002) sur du Zy-2 ou 4, Peletsky et Musayeva (1995), Canay et al. (2000) sur des alliages Zr-1%Nb ou encore Coriette (1997), Kaddour (2004) sur du M5®.

A.3.1.1 Principe du suivi de résistance

Les deux phases α et β n'ayant pas exactement la même résistivité, la transformation de phases fait varier la résistivité globale de l'échantillon. Le principe de la méthode et le dépouillement sont décrits ci-dessous.

Le principe du suivi de transformation par résistance est le suivant : on fait passer dans l'éprouvette (figure A.3) par l'intermédiaire des mors un courant d'intensité I constante et on mesure de part et d'autre de la zone utile de l'éprouvette à l'aide de prises de potentiel une tension U.

Etant donnée la faible section de l'éprouvette (environ 3,6mm^2 pour l'épaisseur minimale) et pour ne pas perturber la mesure de température au niveau du thermocouple, ce courant est limité à 0,5A, le rapport signal / bruit pour U restant acceptable. L'amplification est réglée pour avoir environ 0,2V à température ambiante.

Par exemple, lors d'un chauffage, on obtient la courbe de tension U figure A.7.

Cette tension U mesurée dépend évidemment de la résistance de la zone utile, donc de la résistivité de l'éprouvette entre les prises de potentiel, mais aussi des déformations de celle-ci. La matière comprise entre les prises de potentiel est modélisée par un parallélépipède rectangle de section S et de longueur l. La densité de courant est supposée constante dans ce volume. En faisant l'hypothèse d'homogénéité de la déformation dans la zone utile (et donc entre les prises de potentiel, vérifiable *a posteriori*) et de conservation du volume, on peut isoler l'effet résistif. En effet, on a (équation A.1) :

$$U = \frac{\rho l}{S} I = \frac{\rho l^2}{V} I \tag{A.1}$$

avec :

- ρ la résistivité du matériau, que l'on suppose dépendre uniquement de la température et non pas des déformations (hypothèse vérifiée sur ce matériau par D. Kaddour (2004)),
- l la distance entre les prises de potentiel,
- S la section de l'éprouvette,

– V le volume de matière compris entre les prises de potentiel (V=Sl=V_0=S_0l_0 par conservation du volume (valeurs à 200°C indicées 0)).

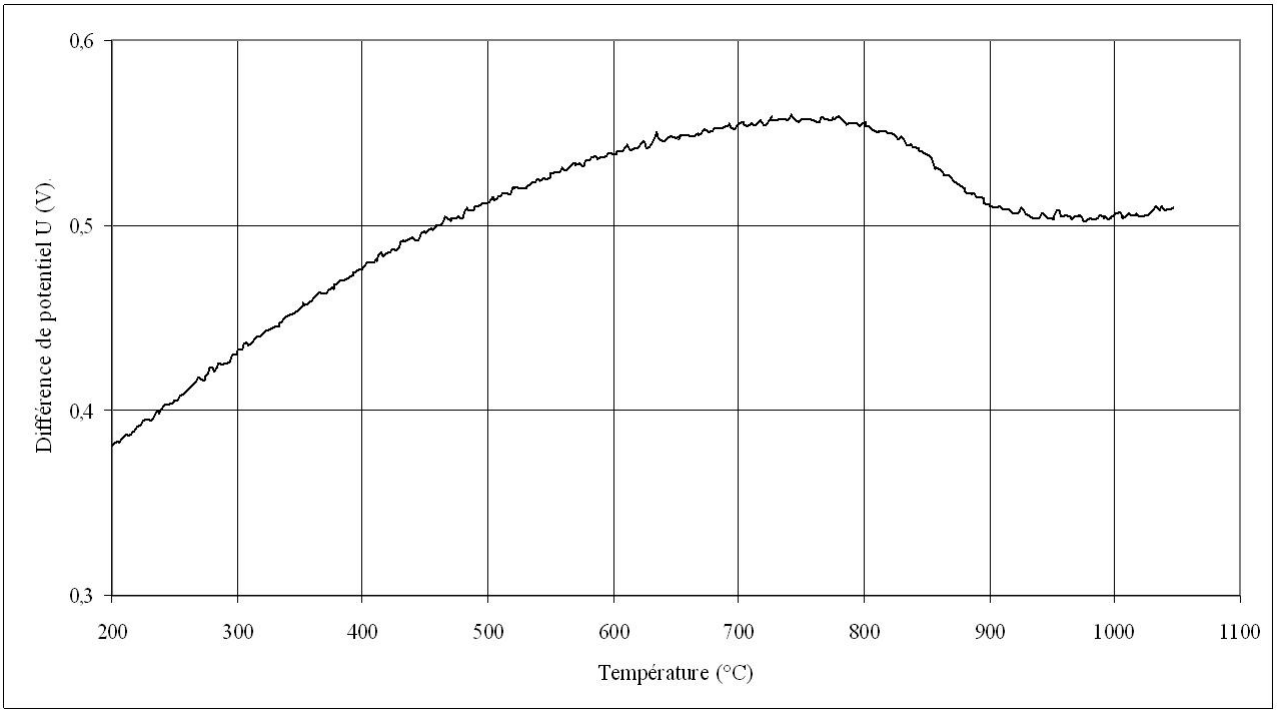


Figure A.7 – *Tension U mesurée lors d'un changement de phase, ici au chauffage à 10°C/min*

Les contributions de la résistivité et des déformations peuvent donc être séparées (équation A.2) :

$$\frac{U}{U_0} = \frac{\rho}{\rho_0}\frac{l^2}{{l_0}^2} \tag{A.2}$$

$$\text{donc } \frac{\rho}{\rho_0} = \frac{U}{U_0}\frac{{l_0}^2}{l^2} = \frac{U}{U_0} exp\,(-2\varepsilon) \tag{A.3}$$

Si les déformations sont importantes, par exemple lors de l'essai de fluage, cette séparation est nécessaire. La déformation de la zone utile est évaluée à partir des mesures d'extensométrie laser, dont le dépouillement est expliqué ci-après.

Dans notre cas, comme le suivi de résistance est déjà utilisé pendant l'essai de fluage pour suivre les déformations, on s'intéresse à la fraction de phase β formée avant le début du chargement, qui correspond à la fraction de phase présente par la suite au cours de l'essai. En effet, il a été montré par Kaddour (2004) que l'évolution de la transformation de phases est très limitée pendant l'essai de fluage (« quasi-équilibre », la résistivité relative décorrélée de la déformation restant constante). En supposant que la déformation est homogène entre les têtes de l'éprouvette (dilatation thermique et de transformation de phases, liée à l'homogénéité thermique), on peut calculer la résistivité relative en se servant des mesures de l'extensomètre laser. En effet, on a (équation A.4) :

$$\frac{l}{l_0} = \frac{d}{d_0} \tag{A.4}$$

$$\text{donc } \frac{\rho}{\rho_0} = \frac{U}{U_0}\frac{{d_0}^2}{d^2} \tag{A.5}$$

Ici, la déformation, uniquement due à la dilatation thermique et de transformation de phases, étant relativement faible (Guilbert et al. (2005)), cette compensation de la déformation dans le calcul de la résistivité relative pourrait être facultative.

Classiquement, les variations de résistivité sont linéaires en fonction de la température (par exemple pour les aciers Porter et Rosenthal (1959), Hamata (1992)), c'est le cas pour la phase β, mais pas pour la phase α (figure A.8). Cela est observé dans la littérature par Milošević et Maglić (2006), Chung et al. (1975), Corchia et Righini (1981), Arias et Roberti (1983), Fréchinet (2001), Gey et al. (2002) pour le zirconium ou les Zircaloys que l'on peut interpoler la résistivité de la phase α par un polynôme de degré 2 de manière purement empirique. Même si la question reste ouverte notamment pour le zirconium pur, cette non-linéarité peut être liée dans le cas des alliages à la présence de précipités intermétalliques dans la phase α. Dans le cas des alliages Zr-1%Nb et en particulier du M5®, ceci pourrait également être lié à la présence de phase β_{Nb} dans la phase α. La non linéarité est même plus importante pour ces alliages. Il a été montré par Peletsky et Musayeva (1995), Canay et al. (2000), Kaddour (2004) que dans le cas du Zr-1%Nb ou du M5®, il faut interpoler la résistivité de la phase α par un polynôme de degré 3. En considérant que la résistivité de chaque phase obéit à la même loi dans le domaine biphasé (on suppose que la variation de la composition chimique de chaque phase par rappport à la composition moyenne n'influence pas la résistivité de chaque phase), on extrapole linéairement la résistivité pour la phase β dans le domaine biphasé, et par un polynôme d'ordre 3 la résistivité de la phase α.

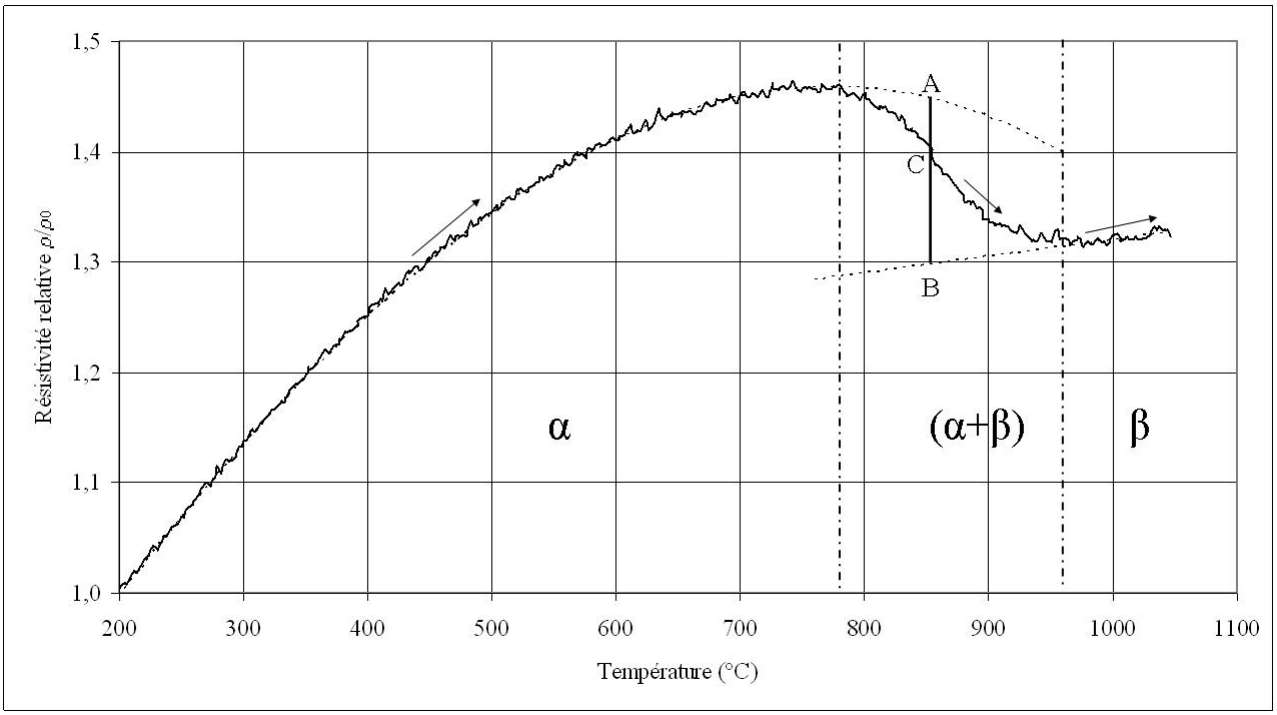


Figure A.8 – *Résistivité relative lors d'un changement de phase, ici au chauffage à 10°C/min*

La résistivité d'un matériau biphasé peut dépendre de la morphologie des deux phases (Fan (1995)). Ici, deux hypothèses extrêmes sont considérées afin d'obtenir un encadrement de la fraction réelle : modèles série et parallèle de répartition des deux phases.

– Modèle série : la règle des leviers est typiquement utilisée (équation A.6) pour en déduire la fraction volumique de phase β.

$$f_{v\beta} = \frac{\rho - \rho_\alpha}{\rho_\beta - \rho_\alpha} \tag{A.6}$$

– Modèle parallèle : la règle des leviers inverse est considérée dans ce cas (équation A.7)

$$f'_{v\beta} = \frac{\frac{1}{\rho} - \frac{1}{\rho_\alpha}}{\frac{1}{\rho_\beta} - \frac{1}{\rho_\alpha}} \tag{A.7}$$

Etant donné le faible contraste entre les deux phases, les deux modèles bornes série et parallèle sont très proches (figure A.9). Dans le corps du mémoire, seul le modèle série est utilisé.

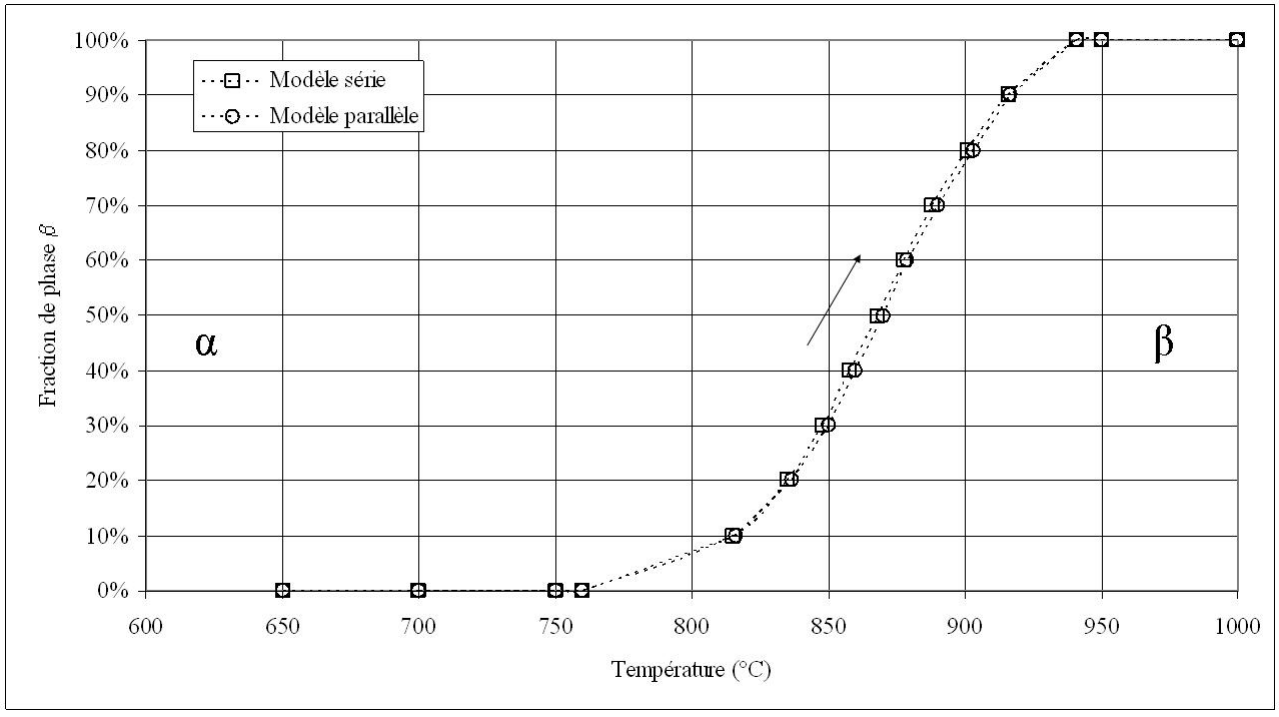


Figure A.9 – *Fraction de phase β transformée évaluée par mesure de résistance lors d'un changement de phase, ici au chauffage à 10°C/min*

Des cycles sous charge nulle effectués jusqu'à 1050°C avec des vitesses de 10 et 50°C/min ont permis de déterminer, par la méthode des moindres carrés sur le demi-hystérésis, des polynômes de référence de résistivité relative pour la phase α et la phase β, dans des conditions de « quasi-équilibre ». Ceux-ci sont utilisés pour le dépouillement des essais de fluage :

– pour la phase α : $\frac{\rho_\alpha}{\rho_0} = 6,865.10^{-1} + 1.652.10^{-3}T + 1.822.10^{-7}T^2 + 6,866.10^{-10}T^3$

– pour la phase β : $\frac{\rho_\beta}{\rho_0} = 1.219 + 1,646.10^{-4}T$

(avec T exprimée en °C)

A.3.1.2 Validation de la technique sur tôle

Cette technique de suivi *in-situ* de la transformation de phases a été validée dans le cas du même matériau sous forme de gaine (Kaddour (2004)) par comparaison avec d'autres techniques expérimentales de suivi de transformation de phases (calorimétrie différentielle à balayage (DSC), analyses d'images métallographiques) ainsi qu'à des calculs thermodynamiques à l'équilibre (Thermocalc^{TM} et Zircobase (Dupin et al. (1999), Toffolon (2000)).

La présentation du matériau (tôle) ainsi que la géométrie des éprouvettes étant différentes (figure A.2), une comparaison analogue a été effectuée afin de valider à nouveau l'utilisation de cette technique de suivi de transformation de phases.

Lors des cycles sous charge nulle effectués jusqu'à 1050°C avec des vitesses de 10 et 50°C/min, les fractions volumiques de phase β transformée au chauffage et au refroidissement ont été évaluées en conditions dynamiques par le suivi de résistance. Les résultats sont comparés figure A.10 avec des résultats obtenus par calorimétrie (vitesse de chauffage et de refroidissement de 10°C/min). Les résultats obtenus par les deux méthodes sont très proches. L'état de « quasi-équilibre » est estimé en considérant le demi-hystérésis des mesures de calorimétrie au chauffage (sans considérer la transformation du β_{Nb}) et au refroidissement. Des retards de transformation de phases sont observés par rapport à ces conditions de « quasi-équilibre ». Le retard est d'autant plus important que la vitesse de chauffage ou de refroidissement est importante.

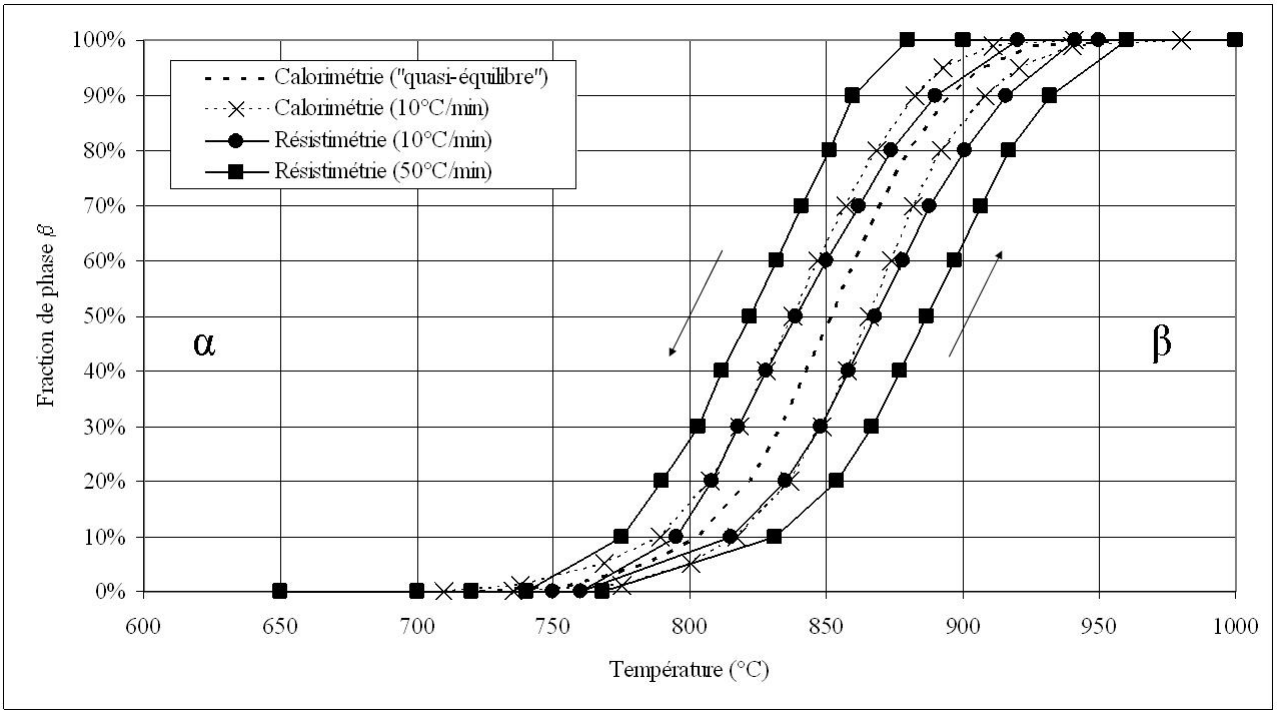


Figure A.10 – *Fraction de phase β transformée au chauffage et au refroidissement évaluée par calorimétrie (vitesses de 10°C/min et demi-hystérésis) et par mesure de résistance (vitesses de 10 et 50°C/min)*

Au cours des essais de fluage isotherme, l'évaluation de la transformation de phases se fait dans des conditions de quasi-équilibre. Pour chaque essai de fluage, la fraction volumique de phase β mesurée est reportée figure A.11. Ces résultats sont comparés aux fractions à l'équilibre calculées par l'intermédiaire de ThermoCalc^{TM} sur le système pseudo binaire Zr-Nb-O (Dupin et al. (1999), Toffolon (2000)), aux fractions mesurées par calorimétrie (demi-hystérésis) ainsi

qu'aux mesures effectuées par Kaddour (2004) sur gaines lors de ses esssais de fluage. Les fractions mesurées sur gaines et sur tôles sont très proches. De plus, on observe à nouveau un très bon accord entre les mesures effectuées par calorimétrie et par suivi de résistance. Des écarts plus importants sont à noter par rapport aux calculs thermodynamiques. En début de transformation, cela est dû en partie au fait que le calcul ThermoCalc^{TM}, contrairement aux autres méthodes, prend en compte la transformation du β_{Nb} en β_{Zr}. Par ailleurs, expérimentalement, il est logique que l'on forme des fractions de phase β inférieures aux fractions à l'équilibre car cet équilibre n'est pas atteint, surtout à faibles températures. L'écart observé en fin de transformation peut s'expliquer par l'effet des impuretés, par exemple le Fe (élément β-gène), sur la transformation de phases, que l'on ne prend pas en compte dans les calculs thermodynamiques.

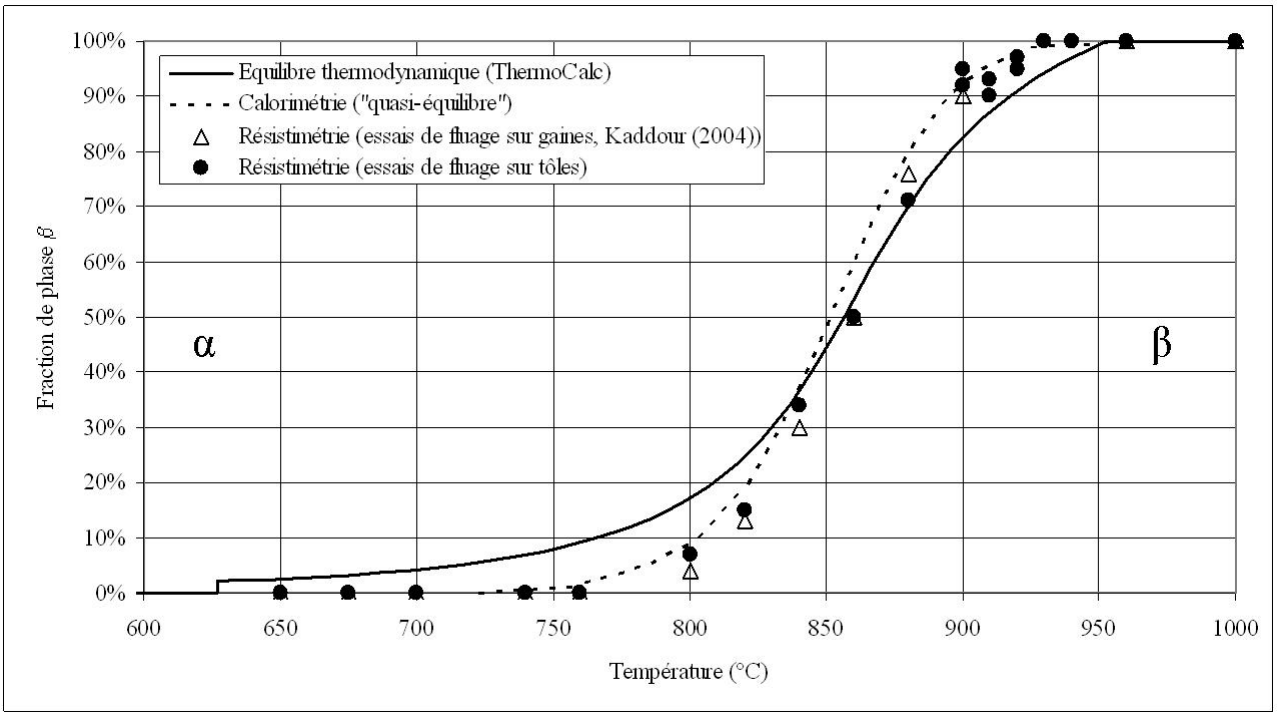


Figure A.11 – *Fraction de phase β transformée évaluée par mesure de résistance lors des essais de fluage en conditions de « quasi-équilibre »*

Sous réserve de validité de la technique de calorimétrie, ces comparaisons viennent s'ajouter à celles effectuées par D. Kaddour (2004). Le matériau sous forme de produit plat se comporte du point de vue de la transformation de phases comme le matériau sous forme de gaine et la technique de suivi *in-situ* de la transformation de phases par mesure de résistance est validée dans nos conditions d'utilisation.

A.3.2 Suivi cinématique par mesure de résistance

Comme exposé précédemment, la tension U du suivi résistif dépend à la fois de la résistivité du matériau, donc de la transformation de phases, et des déformations de la zone utile. Pendant l'essai de fluage isotherme, l'évolution de la transformation de phases est très limitée (« quasi-équilibre »), donc en supposant à nouveau que la résistivité ne dépend pas des déformations mais uniquement de la température, on en déduit que l'évolution de U est uniquement due aux déformations de l'éprouvette. Ainsi, la déformation de l'éprouvette (en considérant l'état initial

au début du chargement) s'écrit (équation A.8) :

$$\varepsilon(t) = \log \frac{l(t)}{l_0} = \frac{1}{2} \log \frac{U(t)}{U_0} \tag{A.8}$$

Par la méthode des moindres carrés pour chaque niveau de chargement, on en déduit une vitesse de fluage.

Pour la contrainte (équation A.9), on tient compte de la réduction de la section.

$$\sigma(t) = \frac{F}{S(t)} \tag{A.9}$$

On suppose à nouveau que la déformation est homogène dans la zone utile et que le volume est constant. On a donc la contrainte déduite de la déformation vraie et de la charge mesurée (équation A.10) :

$$\sigma(t) = \frac{F}{S_0 \cdot exp\,(-2\varepsilon)} \tag{A.10}$$

A.3.3 Suivi cinématique par extensométrie laser

Dans le cas des essais sur gaines (Fréchinet (2001), Kaddour (2004)), l'extensomètre laser suivait la distance entre des drapeaux collés sur l'éprouvette. En supposant la déformation homogène dans la zone entre les drapeaux, ce qui peut être discutable à cause de l'ombrage créé par les drapeaux, les déformations pouvaient en être déduites directement et par suite, il était possible d'évaluer les vitesses de fluage par la méthode des moindres carrés.

Au contraire, lors des essais sur tôle, l'extensomètre ne mesure plus une distance inter-drapeaux mais inter-têtes de l'éprouvette (figure A.3). Etant donné que la déformation de fluage n'est pas homogène entre les têtes d'éprouvettes du fait de la présence de congés de raccordement, on ne peut pas en déduire directement la déformation ou la vitesse de déformation dans la zone utile.

On suit donc le protocole décrit figure A.12. Les deux principales étapes sont :

- le prédépouillement de l'essai, pour évaluer des valeurs initiales des contraintes et vitesses de fluage directement à partir de l'extensomètre laser, en supposant que seule la zone utile se déforme ou bien que toute la matière entre les têtes de l'éprouvette se déforme de manière homogène ;

- l'identification inverse (couplage Cast3M (CEA-SEMT (2009)) - SiDoLo (Pilvin (2003), Vincent (2007))) : à partir des efforts F et des vitesses associées de déplacement $\dot{d}$ des têtes, mesurées par extensométrie laser, des simulations par éléments finis de l'essai de fluage sont réalisées, de manière itérative, pour optimiser les paramètres du modèle d.d.i. de comportement du matériau. Les paramètres du modèle pour les conditions d'essai sont ainsi identifiés. Par ailleurs, la contrainte vraie ainsi que la vitesse de fluage peuvent aussi être calculées, au niveau de la zone utile, où ces grandeurs sont homogènes.

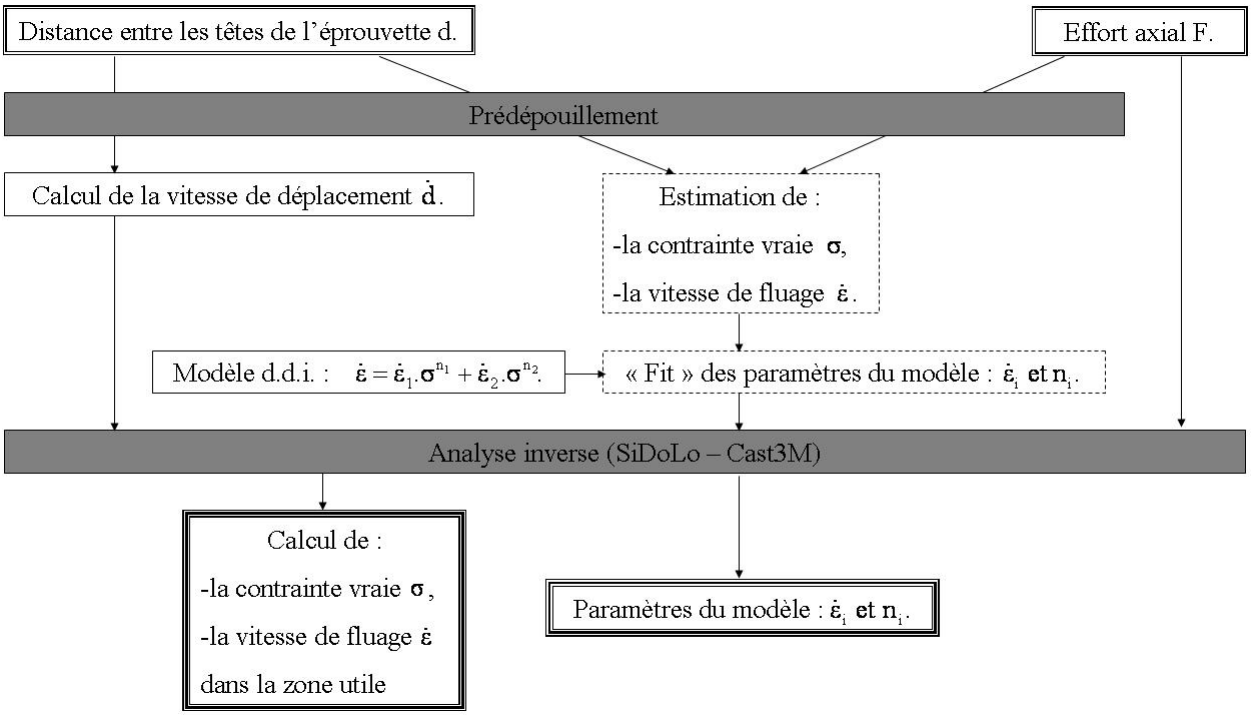


Figure A.12 – *Schéma descriptif du dépouillement de l'essai de fluage*

A.3.3.1 Modèle de comportement d.d.i. (deux déformations inélastiques)

Pour l'analyse inverse, il faut supposer le modèle de comportement. Ici, il s'agit d'un modèle élasto-viscoplastique sans seuil (avec limite d'élasticité nulle), qui dérive d'un potentiel (Besson et al. (2001)). Il a été introduit dans Cast3m CEA-SEMT (2009) via le module UMAT. L'intégration de la loi de comportement est réalisée par une méthode de point fixe.

L'équation A.11 décrit la partition des déformations entre parties élastique $\underline{\underline{\varepsilon^e}}$ et les deux déformations viscoplastiques $\underline{\underline{\varepsilon_1{}^{vp}}}$ et $\underline{\underline{\varepsilon_2{}^{vp}}}$. Il s'agit donc d'un modèle à une variable d'état $\underline{\underline{\varepsilon}}$ (ou $\underline{\underline{\sigma}}$) et deux variables internes $\underline{\underline{\varepsilon_1{}^{vp}}}$ et $\underline{\underline{\varepsilon_2{}^{vp}}}$.

$$\underline{\underline{\varepsilon}} = \underline{\underline{\varepsilon^e}} + \underline{\underline{\varepsilon_1{}^{vp}}} + \underline{\underline{\varepsilon_2{}^{vp}}} \tag{A.11}$$

On considère la loi de Hooke pour l'élasticité (équation A.12) :

$$\underline{\underline{\sigma}} = 2\mu\underline{\underline{\varepsilon^e}} + \lambda tr\left(\underline{\underline{\varepsilon^e}}\right)\underline{\underline{I}} \tag{A.12}$$

Pour les paramètres élastiques, dépendants de la température, les valeurs utilisées ont été identifiées sur du Zy-4 par Darchis et Lemoine (1984). Leur influence est relativement faible par rapport aux autres paramètres et ne s'observe que dans le régime transitoire.

En ce qui concerne les déformations viscoplastiques $\underline{\underline{\varepsilon_i{}^{vp}}}$, on a en 3D (équation A.13) :

$$\underline{\underline{\dot{\varepsilon}_i{}^{vp}}} = \left[\dot{\varepsilon}_i\left(\frac{\sigma_{VM}}{\sigma_0}\right)^{n_i}\right]\frac{3}{2}\frac{\underline{\underline{\sigma^D}}}{\sigma_{VM}} \tag{A.13}$$

avec :

- $\dot{\varepsilon}_i$, homogène à une vitesse de déformation,
- σ_{VM} la contrainte équivalente de Von Misès,
- σ_0 un paramètre homogène à une contrainte (ici, choisi égal à 1MPa),

– $\underline{\underline{\sigma^D}}$ la partie déviatorique de la contrainte.

Deux régimes de fluage d'exposants respectifs n_1 et n_2 sont ainsi modélisés.
Les paramètres à identifier sont $\dot{\varepsilon_1}$, $\dot{\varepsilon_2}$, n_1 et n_2.

A.3.3.2 Pré-dépouillement

Pour chaque niveau de chargement, par la méthode des moindres carrés, on déduit la vitesse de déplacement $\dot{d}$ des têtes de l'éprouvette (figure A.13).

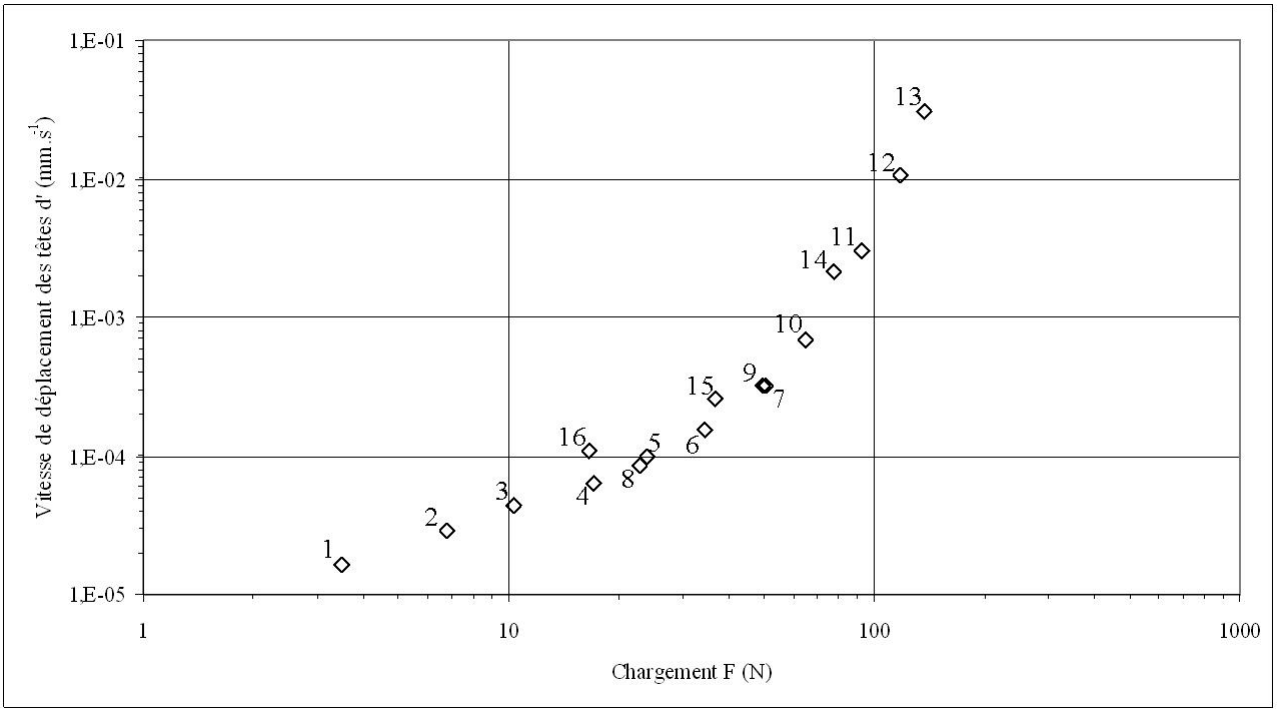


Figure A.13 – *Données expérimentales macroscopiques après un essai de fluage à 700°C (ici, 16 paliers de chargement, les numéros correspondants à leur ordre d'application)*

Le second objectif du pré-dépouillement est d'évaluer pour chaque niveau de chargement la contrainte et la vitesse de fluage dans la zone utile afin d'identifier un premier jeu de paramètres de la loi de comportement.

Ceci pourrait se faire en utilisant le suivi de résistance. Néanmoins, afin de découpler complètement les mesures de résistance de celles par extensométrie laser, cette solution n'a pas été retenue.

Une autre idée consiste à supposer :
– soit (hypothèse haute) que seule la zone utile (l_0=18mm) se déforme entre les têtes, et de manière homogène : l'allongement entre les têtes correspond dans ce cas à l'allongement de la zone utile seule ;
– soit (hypothèse basse) que l'éprouvette se déforme de manière homogène entre les têtes (zone utile et congés de raccordement, kl_0=18mm).

On a donc au niveau du prédépouillement (équation A.14) :

$$\varepsilon(t) = \log\left(1 + \frac{d - d_0}{k l_0}\right) \tag{A.14}$$

avec :
- k=1 pour l'hypothèse haute
- k=$\frac{30}{18}$ pour l'hypothèse basse

Dans le premier cas, les allongements et déformations sont surestimés alors que dans le second cas, ils sont sousestimés, de même que pour les contraintes. Néanmoins, ces deux hypothèses extrêmes permettent de réaliser un pré-dépouillement de l'essai en contrainte et déformation (et par suite vitesse de fluage, figure A.14).

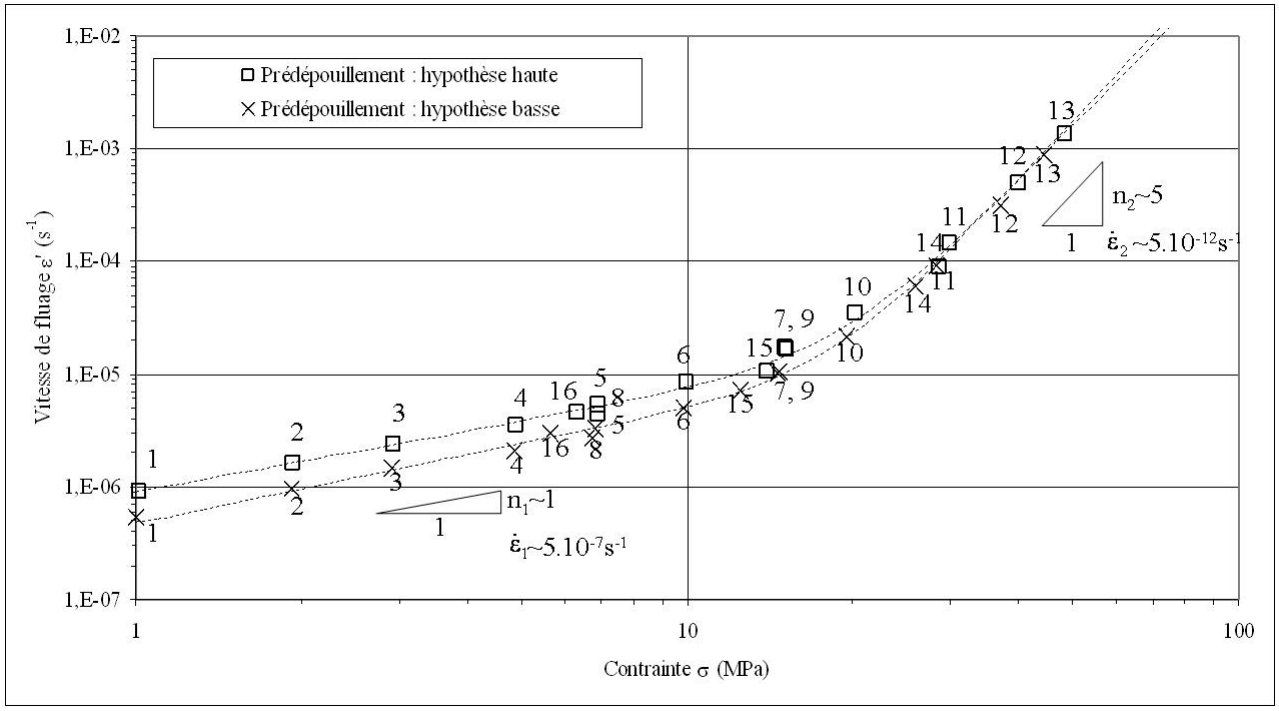


Figure A.14 – *Prédépouillement de l'essai de fluage à 700°C (ici, 16 paliers de chargement, les numéros correspondant à leur ordre d'application)*

L'une ou l'autre des hypothèses se rapproche du comportement réel de l'éprouvette en fonction du comportement du matériau. Ainsi, de manière intuitive, plus l'exposant de Norton est élevé, moins le congé de raccordement tend à se déformer relativement à la zone utile et dans ces cas-là, on se rapproche de l'hypothèse haute. Inversement, plus cet exposant se rapproche de 1, plus le congé de raccordement se déforme par rapport à la zone utile et plus on tend vers un comportement intermédiaire entre les deux hypothèses.

L'écart entre les deux hypothèses est plus important en début d'essai, pour les faibles déformations, car quand la déformation augmente, même si l'écart entre les vitesses de fluage reste important, en termes de courbe de fluage, cela est compensé en partie par l'écart croissant sur les contraintes.

Les exposants de Norton ont tendance à être surestimés par l'hypothèse basse et sous-estimés par l'hypothèse haute. Par conséquent, pour des déformations importantes, les deux courbes

de prédépouillement peuvent se croiser, comme sur la figure A.14. Ces deux hypothèses n'encadrent pas strictement le comportement réel.

Par la méthode des moindres carrés, à partir de ces estimations, un premier jeu de paramètres ($\dot{\varepsilon_1}$, $\dot{\varepsilon_2}$, n_1 et n_2) est identifié.

A.3.3.3 Identification inverse (couplage Cast3M - SiDoLo)

1. Modélisation de l'essai de fluage par éléments finis (Cast3M)

   L'essai de fluage est modélisé par éléments finis sous Cast3M (CEA-SEMT (2009)). Afin de prendre en compte la réduction d'épaisseur lors de l'essai, on effectue une simulation en 3D. On prend également en compte les symétries du problème (figure A.15). Des éléments linéaires prismatiques à 6 nœuds (PRI6) sont utilisés pour le maillage. Il a été vérifié que le nombre de d'éléments (6 dans la largeur de la partie utile et 2 dans l'épaisseur) était suffisant.

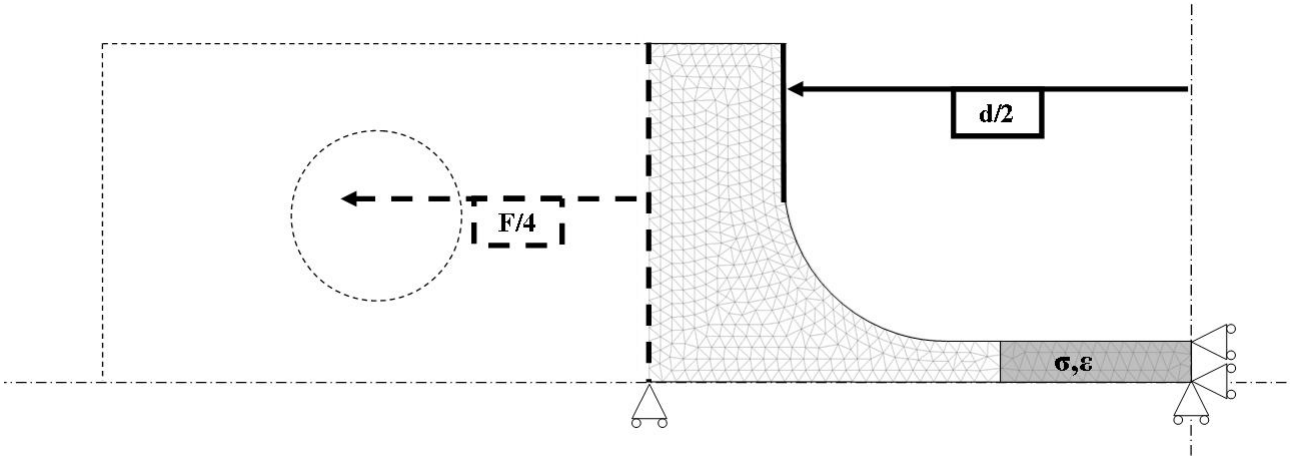


Figure A.15 – *Modélisation de l'essai de fluage*

Les conditions de symétrie (pas de déplacement des points des plans de symétrie hors plan) bloquent le mouvement de solide rigide. Il a été vérifié expérimentalement que les têtes des éprouvettes ne se déforment pas au cours de l'essai et que de plus, il n'y a pas de glissement par rapport aux mors. Cette partie de l'éprouvette n'a donc pas été considérée dans le maillage. De plus, le chargement s'effectue en moyenne axialement sur le plan vertical pointillé (figure A.15), dont on n'autorise qu'un déplacement de bloc dans la même direction que le chargement ainsi que le déplacement dans la direction normale à la tôle.

Les différents paliers de chargement de l'essai peuvent ainsi être appliqués, des rampes de 5s (durée moyenne lors des expériences) modélisant les transitions.

Le modèle de comportement d.d.i. est utilisé et le calcul est effectué en « grands déplacements » sous Cast3M car sur certains essais, l'allongement de l'éprouvette atteint 8 à 9mm. Plus précisément, l'option « grands déplacements » de Cast3M correspond à un calcul en petits déplacements mais avec réactualisation de la géométrie à chaque pas de

calcul.

En post-traitement de ce calcul, pour chaque palier de chargement de fluage de l'essai, on peut en déduire le déplacement (ou la vitesse de déplacement) des têtes d'éprouvettes, au niveau du plan vertical (en gras figure A.15). De même, en considérant le domaine grisé (figure A.15) qui représente la zone utile où l'on observe une homogénéité des contraintes et déformations), on peut en déduire pour chaque niveau de chargement la contrainte vraie ainsi que la déformation vraie (ou vitesse de déformation) dans la partie utile de l'éprouvette.

2. Identification inverse (couplage Cast3M - SiDoLo)

Grâce à l'outil de couplage SiDoLo-Cast3M développé par Ludovic Vincent (2007), à partir des vitesses de déplacement des têtes pour chaque niveau de chargement, on peut obtenir pour la zone utile de l'éprouvette les différentes vitesses de déformation ainsi que les différents niveaux de contraintes de fluage. Sur l'ensemble de l'éprouvette simulée par éléments finis, en considérant les hétérogénéités de contraintes et déformations, on obtient même, en toute rigueur, une portion de la courbe de comportement vitesse de déformation - contrainte de fluage.

En utilisant la base de temps expérimentale, les différents niveaux de chargement F et les vitesses $\dot{d}$ de déplacement des têtes correspondantes, on se sert de cet outil pour identifier les paramètres du modèle d.d.i. Les valeurs initiales de ces paramètres sont celles obtenues lors du pré-dépouillement. L'identification se fait de manière itérative par minimisation de l'écart entre les vitesses de déplacement des têtes expérimentales et simulées.

On vérifie *a posteriori* que l'écart entre les déplacements des têtes expérimentaux et simulés est faible, ce qui est le cas, étant donnée la quasi-linéarité de ceux-ci en fonction du temps pour chaque niveau de chargement. Cette comparaison pourrait également être incluse dans le processus de minimisation.

Après l'identification inverse, on obtient donc les paramètres du modèle d.d.i., valables pour la gamme de contrainte explorée (figure A.16). Comme on pouvait l'anticiper lors du prédépouillement, le comportement simulé est plus proche de l'hypothèse basse pour les exposants de Norton proches de 1 et inversement plus proche de l'hypothèse haute pour les exposants de Norton plus élevés. Sur la figure A.16, l'hypothèse basse semble être à privilégier sur ce cas particulier si on ne dépouille pas l'essai par analyse inverse. Néanmoins, de manière évidente, dans le cas où l'on aurait uniquement un régime de fluage à fort exposant de Norton, la conclusion inverse s'imposerait.

Ces écarts avec les hypothèses extrêmes, variables selon le comportement et les niveaux de chargement explorés, justifient l'utilisation de cette méthode de dépouillement et d'identification globale, qui reste raisonnable en temps de calculs (quelques heures).

A.3.4 Comparaison des deux méthodes de suivi cinématique

Il est sûrement plus direct pour suivre les déformations de mesurer un déplacement (celui des têtes) plutôt que la résistance de l'éprouvette. Ce déplacement est de plus mesuré avec une excellente précision (de l'ordre de quelques micromètres) alors que pour éviter de perturber les

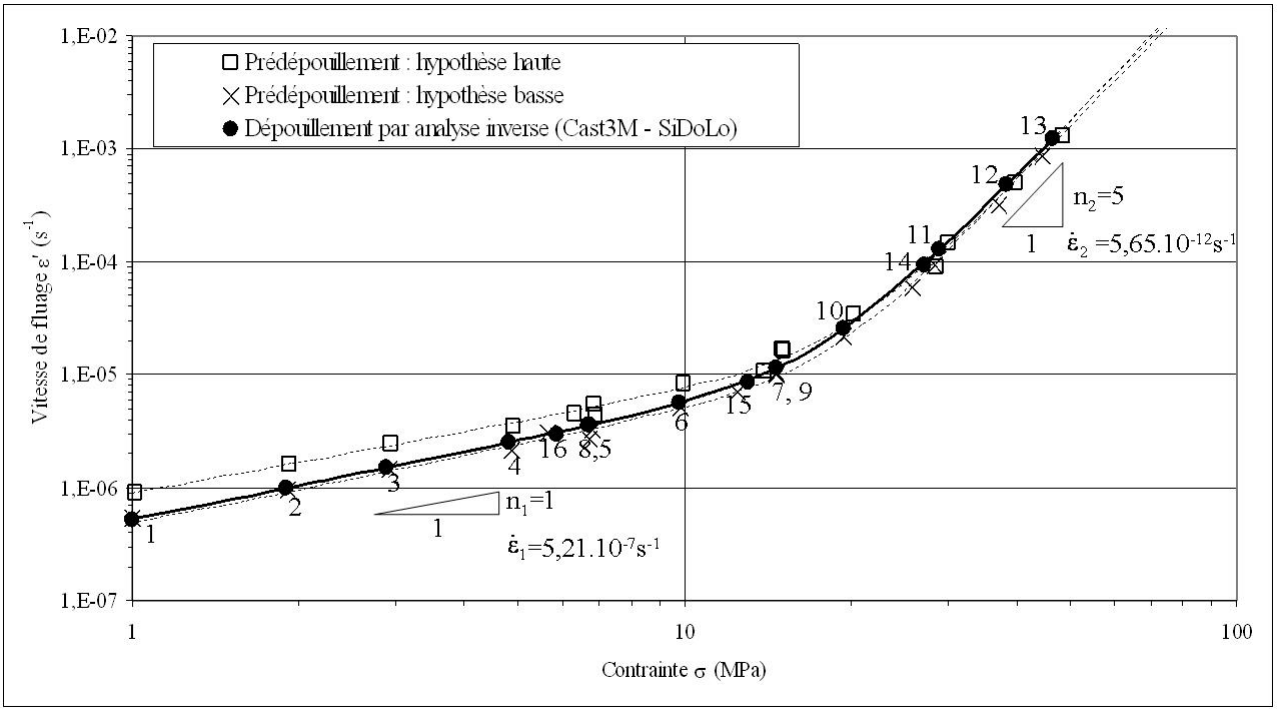


Figure A.16 – *Courbe de fluage dépouillée de l'essai à 700° C (ici, 16 paliers de chargement, les numéros correspondant à leur ordre d'application)*

mesures de température, la différence de potentiel mesurée de part et d'autre de la zone utile est relativement faible, et donc relativement bruitée. Une estimation de la précision de chaque méthode est proposée dans la suite de cette annexe. Du point de vue de la précision intrinsèque, l'extensométrie laser semble plus avantageuse car elle nécessite des déformations plus faibles pour déterminer une vitesse de fluage avec une précision donnée.

Par contre, cette méthode suppose que l'on a le même comportement dans la zone utile et dans les congés. Si on a un faible gradient thermique au niveau de la zone utile (inférieur à 5°C), celui-ci est plus important si on inclut les congés (de l'ordre de 15-20°C). Dans le cas de phénomènes sensibles thermiquement (comme la croissance brusque des grains β au chauffage entre 900 et 930°C), cela peut poser problème. Dans ces cas-là, l'analyse du suivi de la résistance est indispensable. A l'inverse, le suivi résistif concerne uniquement la zone utile.

Par ailleurs, il convient de souligner que, pour le suivi résistif, on a une relative indépendance des mesures entre les niveaux de chargement alors que, pour l'autre méthode, l'analyse inverse se fait globalement sur l'essai donc sur l'ensemble des niveaux de chargement. De plus, il faut supposer la forme de la loi de comportement du matériau pour pouvoir réaliser les calculs par éléments finis.

Tout en étant conscient de cela, on peut utiliser les deux méthodes de manière complémentaire, à savoir que d'une manière générale, pour des raisons de précision de mesure, on privilégie les mesures par extensométrie, les mesures de suivi de résistance servant à les confirmer (figure A.17) et dans les cas où l'extensométrie laser est mise en défaut (dans notre cas, dans le haut du domaine biphasé), seules les mesures de suivi de résistance sont utilisées.

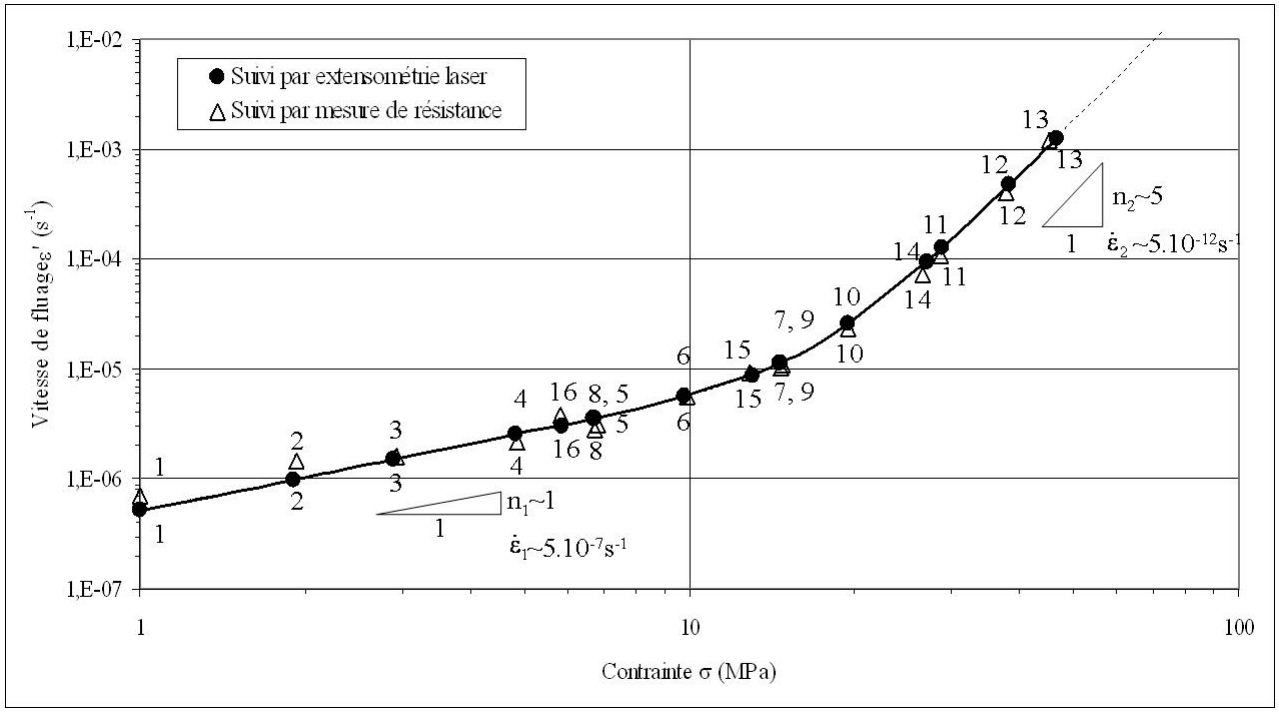


Figure A.17 – *Comparaison des deux techniques pour le suivi du fluage à 700°C (ici, 16 paliers de chargement, les numéros correspondant à leur ordre d'application)*

A.4 Incertitudes expérimentales

Une évaluation des incertitudes expérimentales liées à ce protocole d'essais de fluage est proposée : les incertitudes concernant d'une part les grandeurs physiques mesurées et celles concernant d'autre part les grandeurs dépouillées, déduites de ces grandeurs mesurées.

A.4.1 Grandeurs mesurées

Les grandeurs mesurées au cours de l'essai de fluage sont : le temps, la température, la différence de potentiel de part et d'autre de la zone utile, l'effort axial appliqué ainsi que la distance entre les têtes de l'éprouvette.

Ces grandeurs sont enregistrées informatiquement par l'intermédiaire d'une carte et d'un logiciel d'acquisition (NoteBook^{TM}). L'échantillonage réalisé en 12bits introduit une incertitude supplémentaire, fonction de la gamme d'acquisition utilisée ($\pm 0,244mV$ pour la gamme $\pm 1V$ et $\pm 2,44mV$ pour la gamme $\pm 10V$).

1. La mesure de température s'effectue par le thermocouple S utilisé pour l'asservissement thermique du four. L'erreur statique d'asservissement est en régime permanent inférieure à $\pm 0,5^oC$ entre la température mesurée et la température visée. D'après Bonnier et Devin (1997), Devin (1999), l'incertitude de mesure due à un thermocouple S est d'environ $\pm 1,5^oC$ dans des conditions idéales. Ici, la mesure est susceptible d'être perturbée par l'intensité I traversant l'éprouvette pour le suivi de résistance. Cette perturbation est évaluée au maximum à $\pm 0,5^oC$. Enfin, par rapport à cette mesure quasi-ponctuelle de température, un léger gradient de température existe globalement dans la zone utile. Il a été vérifié par Fréchinet (2001) et *a posteriori* dans cette étude (analyse métallographique)

que ce gradient est inférieur à 5°C. Afin d'évaluer l'incertitude sur la mesure de température, on assimile ce gradient à un écart de température de $\pm 2,5^oC$. L'incertitude sur la température réelle est donc d'environ $\pm 5^oC$. En ajoutant l'erreur d'acquisition ($\pm 0,59^oC$, la gamme $\pm 10V$ étant utilisée), l'incertitude sur la mesure de température est (équation A.15) :

$$\Delta T \approx \pm 5,6^oC \tag{A.15}$$

Le domaine de température exploré ici étant 650-1050°C, cette erreur correspond en relatif au maximum à 650°C à (équation A.16) :

$$\frac{\Delta T}{T} \leq 0,6\% \tag{A.16}$$

2. Pour la mesure de différence de potentiel aux bornes de la zone utile de l'éprouvette, le bruit étant relativement important pour ce signal fortement amplifié, les autres sources d'incertitude (dérive, système d'acquisition (gamme $\pm 1V$) ...) sont considérées comme négligeables devant celui-ci. Ainsi, l'incertitude sur la différence de potentiel est (équation A.17) :

$$\Delta U \approx \pm 3mV \tag{A.17}$$

Cette erreur correspond en relatif pour la différence de potentiel minimale mesurée en début d'essai (200mV) à (équation A.18) :

$$\frac{\Delta U}{U} \leq 1,5\% \tag{A.18}$$

L'erreur étant donc essentiellement statistique, en multipliant les nombre d'acquisitions, les effets de celle-ci sur les grandeurs calculées à partir du suivi de résistance pourront être limités.

3. La mesure de l'effort axial s'effectue par la cellule de charge de 50daN qui est impliquée dans l'asservissement du vérin de traction en contrôle de charge. L'erreur statique d'asservissement entre la charge visée et la charge mesurée est inférieure à $\pm 0,01daN$. Par ailleurs, d'après les données constructeur, l'erreur de mesure correspond à $\pm 0,1\%$ de la pleine échelle, soit ici $\pm 0,05daN$. Une gamme d'acquisition de $\pm 1V$ rajoutant une incertitude de $\pm 2,44.10^{-3}daN$, l'incertitude globale sur la charge est (équation A.19) :

$$\Delta F \approx \pm 0,063daN \tag{A.19}$$

Cette erreur correspond en relatif pour le chargement appliqué le plus faible (0,36daN) à (équation A.20) :

$$\frac{\Delta F}{F} \leq 17,4\% \tag{A.20}$$

L'erreur relative étant inversement proportionnelle à la charge F, celle-ci diminue rapidement pour des charges plus importantes.

4. Dans des conditions d'utilisation optimales, la résolution de l'extensomètre laser peut atteindre $\pm 1\mu m$. Dans les conditions expérimentales exposées précédemment, en prenant en compte les erreurs supplémentaires, dues notamment aux positions relatives de l'émetteur laser, de l'éprouvette et du récepteur laser ainsi qu'aux perturbations des radiations du four, l'incertitude du système extensométrique est évaluée à $\pm 10\mu m$. La gamme $\pm 10V$ ayant dû être utilisée, une erreur supplémentaire de $\pm 2,44mV$, soit $\pm 2,44\mu m$, est introduite par le système d'acquisition. L'écartement entre les têtes de l'éprouvette est donc évaluée avec une précision (équation A.21) :

$$\Delta d \approx \pm 13\mu m \tag{A.21}$$

Cette erreur sur la distance inter-têtes correspond initialement pour l'écartement de 30mm à (équation A.22) :

$$\frac{\Delta d}{d} \leq 4,15.10^{-2}\% \tag{A.22}$$

5. Pendant les essais de fluage, les acquisitions sont effectuées en fonction d'une base de temps provenant de l'horloge interne du PC d'acquisition. Etant données la fréquence d'acquisition (1Hz) et la durée des paliers de charge (de 30s pour les plus courts à quelques heures pour les plus longs), l'incertitude sur le temps est négligée par rapport aux autres incertitudes.

6. En plus de ces grandeurs mesurées, l'erreur sur la géométrie initiale des éprouvettes peut également être mentionnée comme les dimensions des éprouvettes, en particulier la section, interviennent également dans le dépouillement des essais. Les dimensions ont été mesurées à l'aide d'un palmer, dont la précision est $\Delta l = \pm 0,01mm$ (Schatz (1997)). L'incertitude sur la section initiale est donc pour une largeur de 3mm et une épaisseur de 1,2mm (équation A.23) :

$$\frac{\Delta S_0}{S_0} \leq 1,2\% \tag{A.23}$$

A.4.2 Grandeurs calculées

Des vitesses de déformation, des contraintes ainsi que des fractions de phase β sont calculées à partir de ces grandeurs mesurées selon le dépouillement expliqué précédemment.

1. Précision sur le calcul de la vitesse de déformation par le suivi de résistance :

   Dans ce cas précis, la déformation ε est calculée à partir de U par l'équation A.8. Au cours de l'essai de fluage, les différences de potentiel mesurées sont au minimum de l'ordre de 400mV. En considérant l'incertitude sur cette mesure de potentiel (équation A.17), on a donc (équation A.24) :

   $$\Delta\varepsilon \leq \frac{\Delta U}{U} \approx 0,75\% \tag{A.24}$$

   Le nombre de points de mesure (plusieurs dizaines ou centaines) permet d'améliorer l'erreur statistique commise. On ne prend pas en compte cet effet dans le calcul suivant, on considère que la vitesse de déformation est calculée entre les instants t_1 et t_2 par l'équation A.25 :

   $$\dot{\varepsilon}(t) = \frac{\varepsilon_2 - \varepsilon_1}{t_2 - t_1} \tag{A.25}$$

   En considérant uniquement l'incertitude sur les déformations (incertitude sur le temps négligée), par le suivi cinématique de résistance, la précision sur la vitesse de fluage est donc pour un palier de 2% de déformation (équation A.26) :

   $$\frac{\Delta\dot{\varepsilon}}{\dot{\varepsilon}} \leq \frac{2\Delta\varepsilon}{\varepsilon_2 - \varepsilon_1} \approx 75\% \tag{A.26}$$

   Cette estimation de l'erreur peut paraître très importante, il convient de souligner à nouveau qu'avec le nombre de points de mesures (au minimum 30), cette erreur due essentiellement au bruit est probablement sensiblement moindre. Il est d'ailleurs à noter que les vitesses calculées à partir des mesures de suivi de résistance sont proches de celles calculées à partir de l'extensomètre laser, dont la précision est plus importante.

2. Précision sur le calcul de la vitesse de déformation par extensométrie laser :

   Le traitement des mesures de l'extensomètre laser étant indirect et global, une estimation directe (prédépouillement) et individuelle (par niveau de chargement) des erreurs commises est proposée, de manière conservative.

   A partir des mesures d'extensométrie laser, la déformation est calculée lors du prédépouillement à partir de la distance inter-têtes par l'équation A.14 avec (équation A.27) :

   $$1 \leq k \leq \frac{30}{18} \tag{A.27}$$

   De la même manière, on considère que la vitesse de déformation est calculée entre les temps t_1 et t_2 par l'équation A.25.

   Par niveau de chargement, la contrainte dans l'éprouvette est quasi-constante : k est donc considéré comme constant par palier de charge. Le différentiel de déformation est donc (équation A.28) :

   $$\varepsilon_2 - \varepsilon_1 = \log\left(1 + \frac{d_2 - d_0}{k l_0}\right) - \log\left(1 + \frac{d_1 - d_0}{k l_0}\right) \tag{A.28}$$

   L'incertitude sur la vitesse de déformation provient à la fois de l'incertitude Δd sur la mesure de d_2 et d_1 et de l'incertitude $\Delta k = \pm\frac{1}{3}$ sur la valeur de k dans l'intervalle considéré (équation A.29) :

   $$\Delta\left(\varepsilon_2 - \varepsilon_1\right) \leq \frac{2\Delta d}{l_0} + \frac{2\Delta k}{k} \tag{A.29}$$

   En considérant à nouveau uniquement l'incertitude sur les déformations, par le suivi extensométrique laser, la précision sur la vitesse de fluage est donc pour un palier de 2% de déformation (équation A.30) :

   $$\frac{\Delta\dot{\varepsilon}}{\dot{\varepsilon}} \approx 7,22\% + 33,33\% \tag{A.30}$$

   L'incertitude sur la vitesse de déformation est due principalement, au niveau du prédépouillement, au fait que l'on ne connaisse pas *a priori* le comportement des congés de raccordement par rapport à celui de la zone utile, d'où l'intérêt, à nouveau, du dépouillement par analyse inverse. Ce dépouillement permet de diminuer cette incertitude de 33,33% et de tendre vers l'incertitude de 7,22% uniquement due à la mesure du laser.

   La précision de mesures sur les vitesses de fluage par extensométrie laser est supérieure à celle obtenue par suivi de résistance, en mettant à part les inconvénients détaillés dans la section précédente de comparaison entre les deux méthodes.

3. Précision sur le calcul des contraintes :

   On considère que le calcul de la contrainte vraie est effectué selon l'équation A.10. L'incertitude sur la mesure de cette contrainte (équation A.31) provient donc de la mesure de la charge axiale F (équation A.20), de la mesure de la section initiale S_0 (équation A.23) et aussi du calcul de la déformation :

   $$\frac{\Delta\sigma}{\sigma} = \frac{\Delta F}{F} + \frac{\Delta S_0}{S_0} + \Delta\varepsilon \tag{A.31}$$

Si la déformation est calculée à partir des mesures de suivi de résistance (équation A.24), pour le niveau de chargement le plus faible (0,36daN correspondant à environ 1MPa), l'incertitude sur la contrainte est (équation A.32) :

$$\frac{\Delta\sigma}{\sigma} \approx 19,26\% \tag{A.32}$$

Pour ce faible niveau de chargement, l'incertitude est principalement due à l'incertitude sur la charge. Cette incertitude sur la charge est inversement proportionnelle à la celle-ci donc l'incertitude sur la contrainte diminue donc sensiblement pour les niveaux de charge plus élevés (*e.g.* 10,59% pour environ 2MPa et 5,39% pour environ 5MPa).

Si la déformation est calculée à partir des mesures de l'extensomètre laser (équation A.14), l'incertitude correspondant est en considérant l'allongement maximum $d - d_0 = 10mm$ (équation A.33) :

$$\Delta\varepsilon \leq \frac{\Delta d}{l_0} + \frac{d - d_0}{kl_0 + (d - d_0)}\frac{\Delta k}{k} \approx 7,22.10^{-2}\% + 11,90\% \tag{A.33}$$

Ce qui donne une incertitude sur la contrainte au vu de $\frac{\Delta F}{F}$ et $\frac{\Delta S_0}{S_0}$ (équation A.34) :

$$\frac{\Delta\sigma}{\sigma} \approx 18,6\% + 11,9\% \tag{A.34}$$

La même remarque sur l'incertitude sur la charge peut être faite. Par ailleurs, l'incertitude sur la déformation est relativement importante si on considère l'incertitude sur la valeur de k. En incluant l'apport de l'analyse inverse, la précision sur la déformation est grandement améliorée.

Au final comme la mesure de la charge est la principale source d'incertitude, la précision sur la contrainte vraie est du même ordre de grandeur par les deux approches (suivi de résistance ou extensométrie laser).

Les incertitudes sur la contrainte et sur la vitesse de déformation obtenue par extensométrie laser proviennent, pour une part importante, de l'incertitude sur la valeur de k à l'étape du prédépouillement des déformations et vitesses de déformation (hypothèses hautes et basses figure A.14). En ne conservant que l'incertitude due au laser dans le calcul des déformations (7,22.10^{-2}% équation A.33) et vitesses de déformation (7,22% équation A.30) et les incertitudes sur les mesures de la charge axiale F et de la section initiale S_0 dans le calcul des contraintes (équations A.31 et A.34), la figure A.18 permet de mettre en évidence l'importance de la précision du dépouillement au regard des incertitudes de mesure. Ceci permet à nouveau de justifier l'utilisation de l'identification inverse (couplage Cast3M - SiDoLo) lors du dépouillement de l'essai de fluage à partir des mesures de l'extensomètre laser.

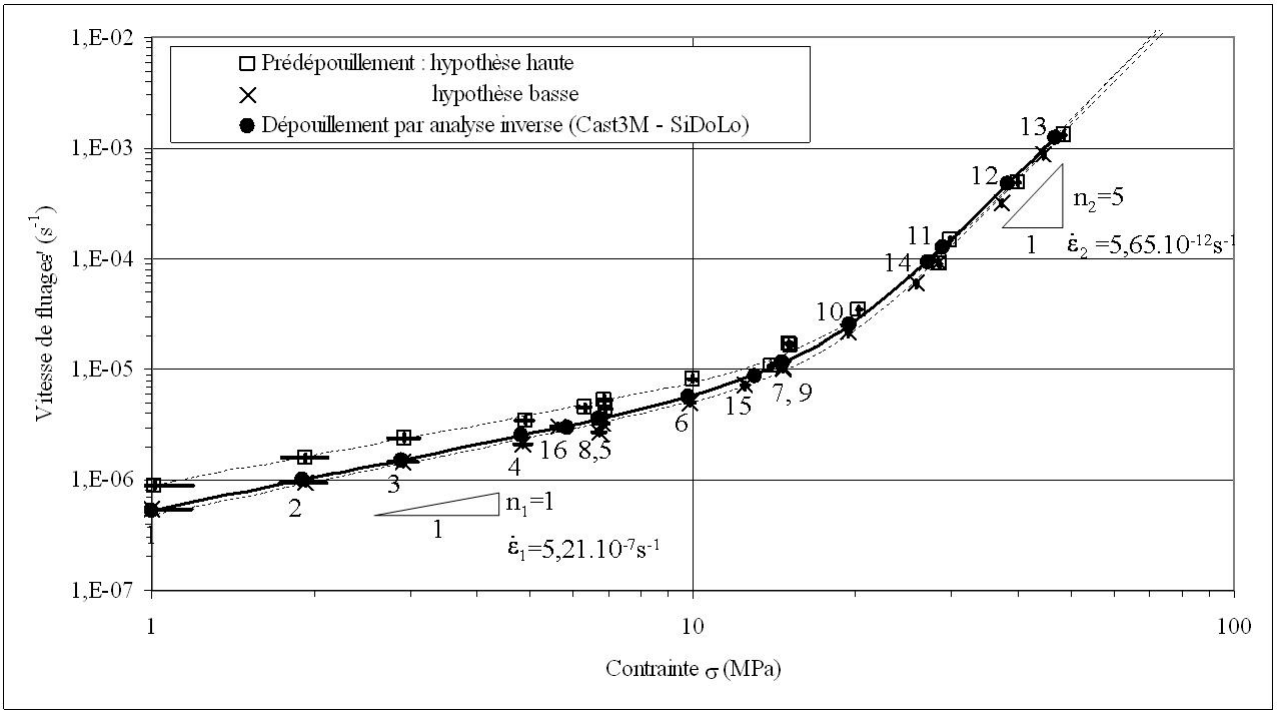


Figure A.18 – *Comparaison entre les incertitudes de mesures (vitesses de déformation et contraintes vraies) pour les prédépouillements et l'apport du dépouillement par analyse inverse pour l'essai à 700°C*

4. Précision sur le calcul des fractions de phase β :

   Les incertitudes sur le calcul des fractions de phase β ont pour origine d'une part les incertitudes sur la tension U mesurée aux bornes de la zone utile (équation A.17) mais aussi l'incertitude sur la validité de la méthode employée. La reproductibilité de la méthode d'une éprouvette à une autre peut également être remarquée figure A.11, par exemple à 900, 910 et 920°C. Les résultats semblent cohérents entre eux, et avec ceux obtenus par d'autres techniques, notamment la calorimétrie, ce qui nous a permis de valider l'utilisation de cette technique de suivi de résistance. Il ne s'agit donc pas d'une validation absolue de nos résultats mais uniquement une validation relative.

   De par le bruit de mesure enregistré au niveau de la tension U, même si les effets sont atténués par la multiplication des points de mesure, l'incertitude sur la fraction de phase β est évaluée à (équation A.35) :

$$\Delta f_{v\beta} \approx \pm 5\% \tag{A.35}$$

A.5 Conclusion

Les conditions expérimentales dans lesquelles ont été menées les essais de fluage sur tôle de cette étude ont été décrits dans cette annexe :

- isothermes à haute température (650-1050°C),
- dans le domaine des faibles contraintes (1-100MPa), avec une méthode de chargement axial par paliers,
- sous atmosphère protectrice (vide secondaire).

Parmi les mesures effectuées ainsi que les méthodes de dépouillement employées, un système de suivi de résistance a été mis en place afin de suivre *in-situ* la transformation de phases, mais aussi la déformation de l'éprouvette. Une autre méthode de suivi extensométrique laser permet également de suivre la déformation de l'éprouvette, en utilisant pour dépouiller les mesures l'analyse inverse.

Les incertitudes concernant les grandeurs physiques mesurées et les grandeurs dépouillées sont évaluées. Ceci permet, d'une part, de qualifier la technique expérimentale employée dans toute l'étude pour mener les essais de fluage, et, d'autre part, de justifier les différentes analyses quantitatives basées sur ces essais.

Annexe B

Analyses métallographiques des tailles de grains

Cette annexe décrit les techniques expérimentales employées dans toute l'étude pour mener les analyses métallographiques quantitatives afin de mesurer les tailles de grains du matériau, notamment après les essais de fluage. Ces techniques peuvent également être utilisées pour suivre la transformation de phases du matériau *post-mortem*.

On distingue les analyses effectuées pour le domaine quasi-α de celles effectuées dans les domaines biphasé ($\alpha + \beta$), quasi-β et β. Pour ces deux cas, la préparation des échantillons est d'abord décrite. Les techniques d'observation et d'analyse micrographiques sont ensuite exposées.

Sommaire

B.1 Préparation des échantillons 251
B.1.1 Domaine quasi-α 251
B.1.2 Domaines biphasé ($\alpha + \beta$), quasi-β et β 251
B.2 Analyse des échantillons 251
B.2.1 Domaine quasi-α 251
B.2.2 Domaines biphasé ($\alpha + \beta$), quasi-β et β 253

B.1 Préparation des échantillons

B.1.1 Domaine quasi-α

Les échantillons à analyser sont polis mécaniquement, tout d'abord sur papier SiC de granulométrie décroissante (de 320 à 1200) et ensuite sur feutre avec de la pâte de diamant de finesse 6 puis $3\mu m$ (voire $1\mu m$ au besoin).

Un polissage mécano-chimique sur tissu-mousse est alors effectué, à température ambiante, pendant une durée allant de 30s à 2min, à l'aide d'un mélange développé au Service de Recherches Métallurgiques Appliquées (CEA), contenant notamment de la silice (OPS) et de l'acide fluorhydrique.

L'échantillon est alors prêt à être observé par microscopie optique. Si ce n'est pas le cas, les dernières étapes de préparation sont recommencées.

B.1.2 Domaines biphasé $(\alpha + \beta)$, quasi-β et β

Comme précédemment, les échantillons à analyser sont polis mécaniquement, tout d'abord sur papier SiC de granulométrie décroissante (de 320 à 1200) et ensuite sur feutre avec de la pâte de diamant de finesse 6 puis $3\mu m$ (voire $1\mu m$ au besoin).

Une attaque chimique est alors menée à température ambiante, pendant une durée allant de 30s à 2min, à l'aide du mélange à base d'acides fluorhydrique et nitrique, dont la composition est donnée dans le tableau B.1 :

composé	concentration	volume (pour 100mL)
acide fluorhydrique	40%	5mL
acide nitrique	65%	50mL
glycérol	98%	45mL

Tableau B.1 – *Composition de l'attaque chimique pour l'analyse métallographique des échanillons biphasés, quasi-β et β d'alliages Zr-Nb*

L'échantillon est alors prêt à être observé par microscopie optique. Si ce n'est pas le cas, les dernières étapes de préparation sont recommencées.

B.2 Analyse des échantillons

B.2.1 Domaine quasi-α

L'observation micrographique est réalisée en lumière polarisée afin de distinguer les différentes orientations des grains α. Les micrographies ainsi obtenues sont alors analysées de manière automatique à l'aide du logiciel MatLab et d'un programme développé au Centre des Matériaux (Mines ParisTech) par F. N'Guyen, que l'on a optimisé.

La figure B.1 représente ce traitement. L'image, en couleurs, est d'abord convertie en niveaux de gris. Dans le cas où l'éclairement de la micrographie est hétérogène, le niveau de gris

moyen est homogénéisé. Le contraste est également optimisé sur toute l'échelle des niveaux de gris afin que la structure ressorte le mieux possible. Par une méthode de gradient qui détecte les variations locales importantes de niveaux de gris, les joints de grains sont repérés. Chaque ensemble connexe est alors associé à un grain.

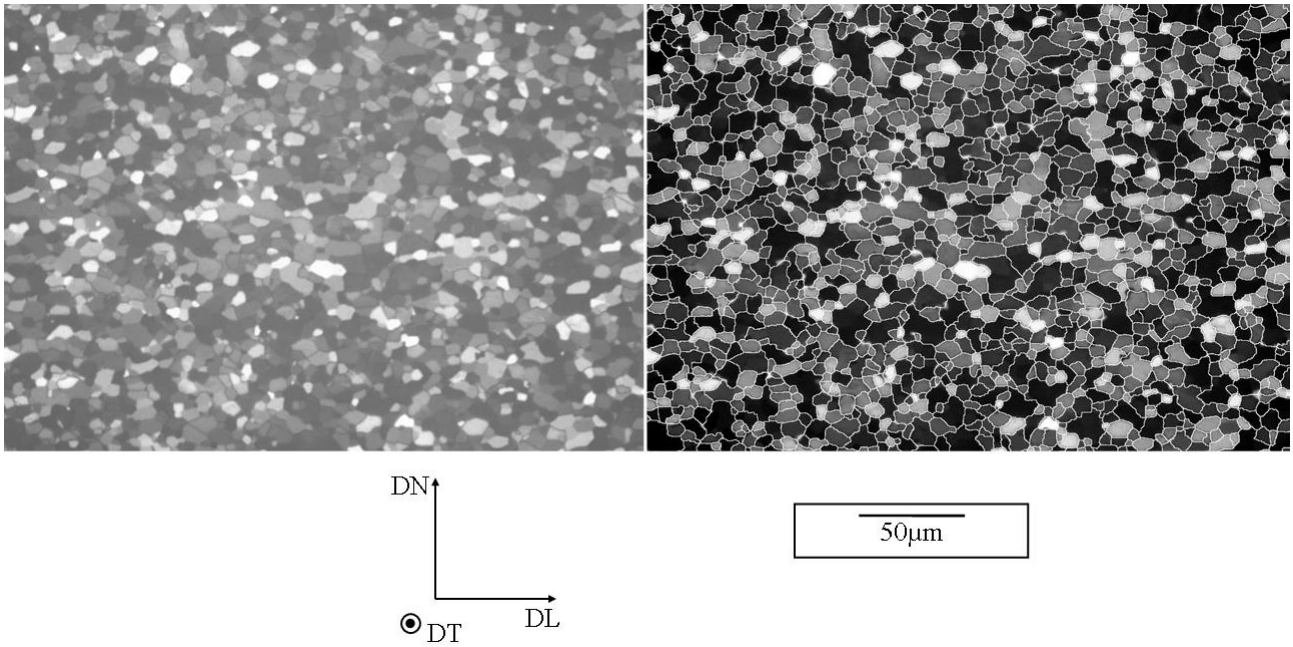


Figure B.1 – *Micrographie optique (contraste de Nomarsky) du M5® dans le domaine quasi-α à gauche. Analyse micrographique repérant automatiquement les joints de grains à droite (MatLab)*

Le découpage automatique est validé visuellement car il peut arriver que certains grains voisins de niveaux de gris trop proches restent groupés ou inversement que si les niveaux de gris du grain ne sont pas bien homogènes, le grain soit découpé en plusieurs morceaux. Si ces phénomènes restent rares (pas plus d'une dizaine par image comme celle de la figure B.1, contenant typiquement plus de mille grains), le découpage est considéré comme correct.

On peut donc obtenir quantitativement la surface de chaque grain (en pixels) et leur diamètre équivalent (en pixels), sous l'hypothèse de forme circulaire. A l'aide de l'échelle micrométrique, cette grandeur est convertie en micromètres puis moyennée sur l'ensemble des grains analysés pour donner le paramètre de taille de grains du matériau, que l'on a utilisé dans cette étude. Les grains incomplets, situés au bord de la micrographie pourraient être exclus de l'analyse mais étant donné le nombre important de grains analysés, la taille de grains moyenne est insensible à cet effet de bord.

Comme les tailles de grains sont mesurées sur une surface polie (intersection des polyèdres que sont les grains en trois dimensions avec la surface), il s'agit de la moyenne à deux dimensions[1].

[1]Pour une structure équiaxe, la moyenne à trois dimensions est liée à la moyenne à deux dimensions par un coefficient de proportionnalité de $4/\pi$ (Saylor et al. (2004))

B.2.2 Domaines biphasé $(\alpha + \beta)$, quasi-β et β

L'observation micrographique est réalisée en lumière blanche. Pour les domaines biphasé $(\alpha + \beta)$ et quasi-β, une « trempe » four coupé, directe, pour le refroidissement de l'échantillon après le traitement thermique ou l'essai de fluage permet la distinction entre les phases α et β existant à haute température. Pour le domaine β, une « trempe » étagée, décrite sur la figure A.5 permet de mieux mettre en évidence les joints des ex-grains β.

Les micrographies ainsi obtenues sont alors analysées de manière manuelle à l'aide du logiciel ImageJ qui permet de mesurer la surface des polygones construits par une méthode de calques (manuelle elle aussi) avec les joints de grains α[2] ou β. La figure B.2 représente un exemple de découpage des joints de grains β dans le domaine quasi-β.

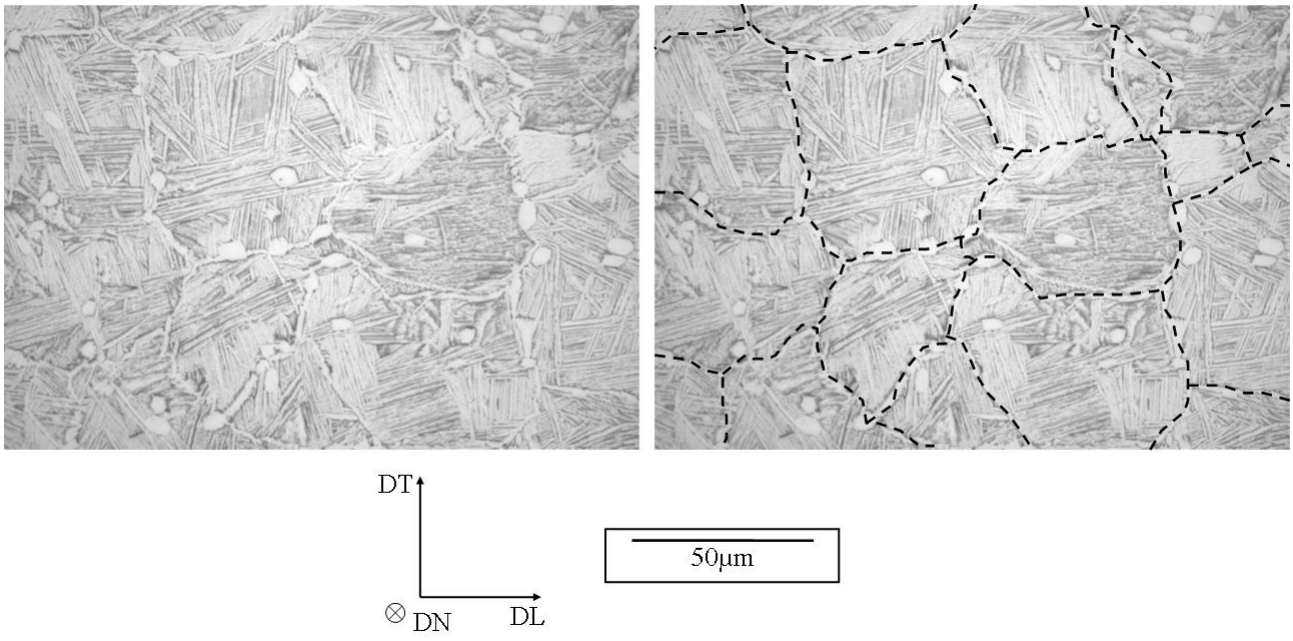


Figure B.2 – *Micrographie optique (lumière blanche) du M5® dans le domaine quasi-β à gauche. Analyse micrographique manuelle repérant les joints de grains à droite*

Du fait du nombre réduit de grains β par micrographie, on exclut cette fois-ci de l'analyse les grains incomplets, situés au bord de la micrographie. On obtient alors quantitavement la surface de chaque grain (en pixels) et leur diamètre équivalent (en pixels), sous l'hypothèse de forme circulaire. Comme pour le domaine quasi-α, à l'aide de l'échelle micrométrique, cette grandeur est convertie en micromètres puis moyennée sur l'ensemble des grains analysés pour donner le paramètre de taille de grains du matériau. Là encore il s'agit donc d'une moyenne à deux dimensions. Afin d'obtenir une moyenne stabilisée, un minimum d'une cinquantaine de grains, nécessitant parfois plusieurs micrographies, s'est avéré nécessaire.

Dans le domaine biphasé ou quasi-β, en mesurant de cette manière la surface occupée par les grains β (ou celle occupée par les grains α), on peut estimer la fraction de phase β.

[2]pour le domaine biphasé

Annexe C

Simulation du comportement du matériau biphasé

Ce chapitre annexe apporte quelques compléments au chapitre 4, visant à l'évaluation du comportement en fluage du matériau biphasé (ou comportement effectif), à partir des lois de comportement de chaque phase. Le problème de changement d'échelle est ici traité par une approche d'homogénéisation statistique et numérique permettant d'estimer ce comportement effectif à partir de simulations par éléments finis (Cast3M (CEA-SEMT (2009))) de microstructures biphasées aléatoires décrivant la morphologie 3D de chacune des phases.

Dans une première partie, des précisions concernant les discrétisations temporelle et spatiale sont apportées afin de qualifier les simulations par éléments finis effectuées. Le choix des pas de temps ainsi que du temps final des calculs sont testés et validés. Le choix du type d'éléments à utiliser, à savoir éléments linéaires ou quadratiques, monophasés ou polyphasés est aussi soupesé et tranché.

Les résultats non présentés dans le corps du mémoire (chapitre 4) sont détaillés dans une seconde partie. On retrouve ainsi les modélisations analytiques de Berveiller et Zaoui (1979) et par l'approche affine ainsi que la confrontation de ces résultats avec les simulations numériques par éléments finis. De plus, des simulations numériques effectuées sur des VES de taille plus faible et/ou périodisés sont analysées ici.

Sommaire

C.1 Approche numérique en fluage par VES : Discrétisations temporelle et spatiale 257
C.1.1 Discrétisation temporelle 257
C.1.2 Discrétisation spatiale 265
C.2 Evaluation de l'effet morphologique sur le comportement en fluage . 274
C.2.1 Modèles analytiques 274
C.2.1.1 Modèle de Berveiller-Zaoui 274
C.2.1.2 Approche affine 274
C.2.2 Etude d'une microstructure de type polycristaux biphasés de Voronoï . . 275
C.2.2.1 Résultats des simulations par éléments finis sur des VES de « petite » taille, périodiques ou non périodiques 275
C.2.2.2 Comparaison avec les modèles analytiques 278
C.2.3 Etude de la sensibilité à la morphologie 279

C.1 Approche numérique en fluage par VES : Discrétisations temporelle et spatiale

C.1.1 Discrétisation temporelle

Le calcul par éléments finis s'effectue grâce à une discrétisation temporelle régulière, *i.e.* un découpage en pas de temps réguliers. L'objectif de ce paragraphe est de qualifier un choix automatique et robuste de pas de calcul, assurant la convergence temporelle. Par ailleurs, comme on s'intéresse à la vitesse du fluage en régime permanent, on souhaite interrompre le calcul dès que ce régime est atteint.

Le modèle de microstructure des polycristaux biphasés de Voronoï a été utilisé pour cette étude. Une tesselation contenant 36 germes (30 germes visés) a permis de générer cinq microstructures biphasées contenant environ respectivement 10-30-50-70 et 90% de phase β. Les lois de comportement décrites dans le paragraphe 4.2.1, ont été attribuées aux phases α et β.

Ces microstructures biphasées ont été discrétisées selon quatre maillages réguliers :
- 27000 éléments cubiques linéaires (cub8) monophasés,
- 27000 éléments cubiques linéaires (cub8) polyphasés,
- 3375 éléments cubiques quadratiques (cu20) monophasés,
- 3375 éléments cubiques quadratiques (cu20) polyphasés.

Le paragraphe suivant, de discrétisation spatiale, montre *a posteriori*, que la convergence spatiale est bien assurée dans ces conditions.

Le chargement de fluage de 100MPa est appliqué avec une mise en charge d'une seconde, discrétisée en dix pas, selon les conditions aux limites périodiques (CLPC). De façon à atteindre le régime de fluage stationnaire, des temps de simulation de 800-400-200-100 et 50s ont été choisis respectivement pour 10-30-50-70 et 90% de phase β.

Les simulations ont été réalisées sous Cast3M [1](CEA-SEMT (2009)). Un nombre de pas de temps croissant fractionne les temps de simulation (10, 20, 40, 80, 160 et 320 pas). Comme le temps de calcul est quasiment proportionnel au nombre de pas, il convient de choisir les pas les plus longs qui mènent à un résultat convergé, du point de vue des vitesses (ou contraintes) de fluage moyennes et moyennes par phase.

Pour les quatre types de maillage, les figures C.1, C.2, C.3 et C.4 regroupent les résultats des simulations de fluage. Les déformations atteintes étant différentes d'un cas à un autre, les vitesses de fluage moyenne et moyennes par phase sont représentées en fonction du nombre de pas, ramenées à la déformation moyenne, à la fin de la simulation. Ce choix permet une comparaison plus facile de la rapidité de convergence entre différents paramétrages du calcul, quelle que soit la valeur de convergence.

Pour les deux ou trois valeurs de pas de calcul les plus fines, le calcul aboutit et mène à un résultat convergé, peu sensible à la discrétisation temporelle. Inversement, pour les tailles de pas de calcul les plus grossières, le calcul n'aboutit pas. Peu de différences sont observées entre les quatre types d'éléments, si ce n'est que les éléments linéaires présentent de plus faibles vitesses de fluage et convergent donc plus facilement en termes de discrétisation temporelle. Nous

[1]Avec le module de calcul PASAPAS, l'option « convergence forcée » doit être « fausse » afin d'interdire des sous-pas de calculs non convergés, sources d'erreurs. Dans ce cas, dès que les pas de calculs sont trop importants, le calcul s'interrompt sans être mené au bout.

reviendrons sur cet effet de maillage dans le paragraphe suivant sur la discrétisation spatiale.

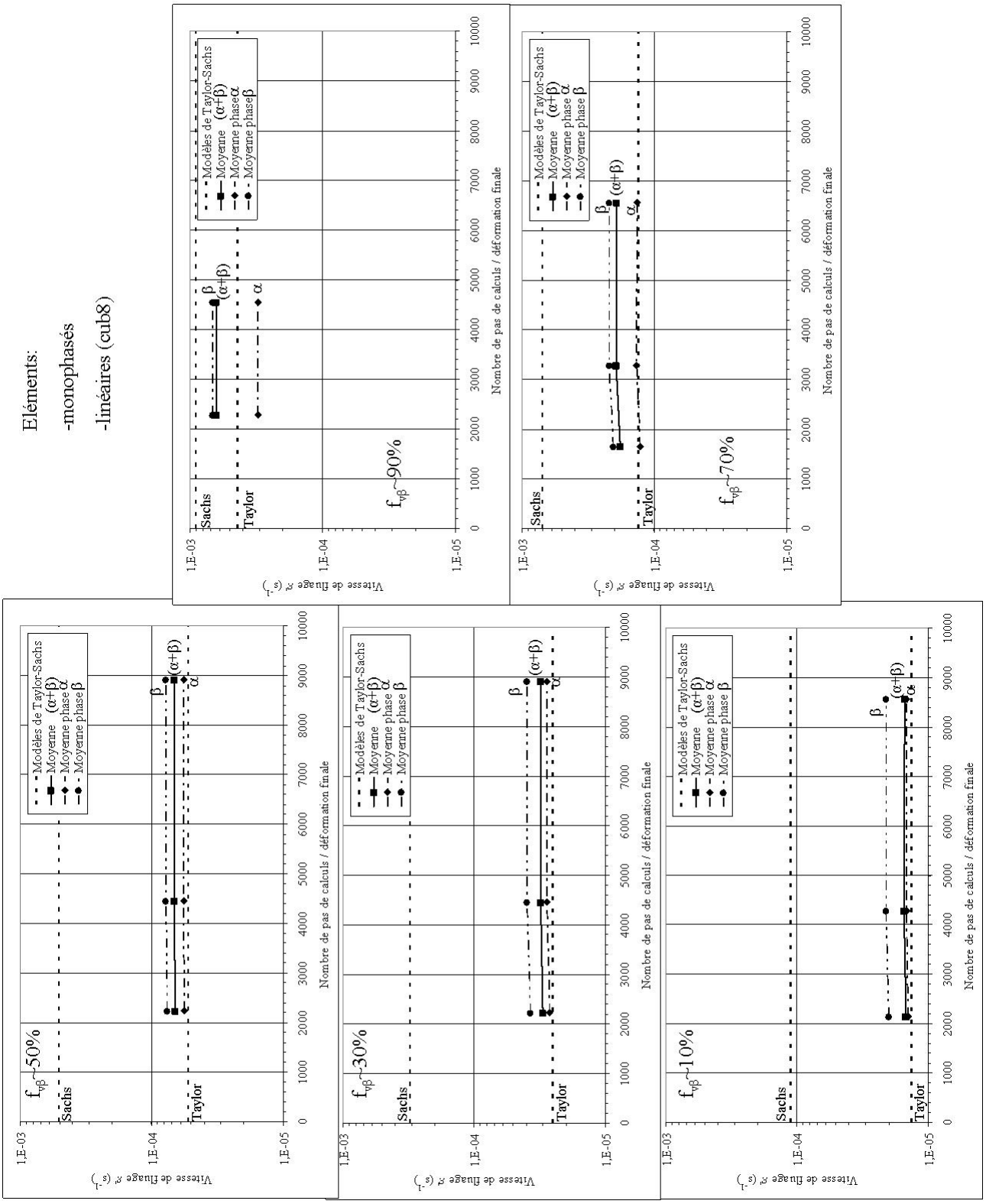


Figure C.1 – *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) moyenne et moyennes par phase en fonction de la discrétisation temporelle pour les microstructures maillées par des éléments cubiques linéaires monophasés (cub8), les paramètres matériau sont détaillés dans le tableau 4.1*

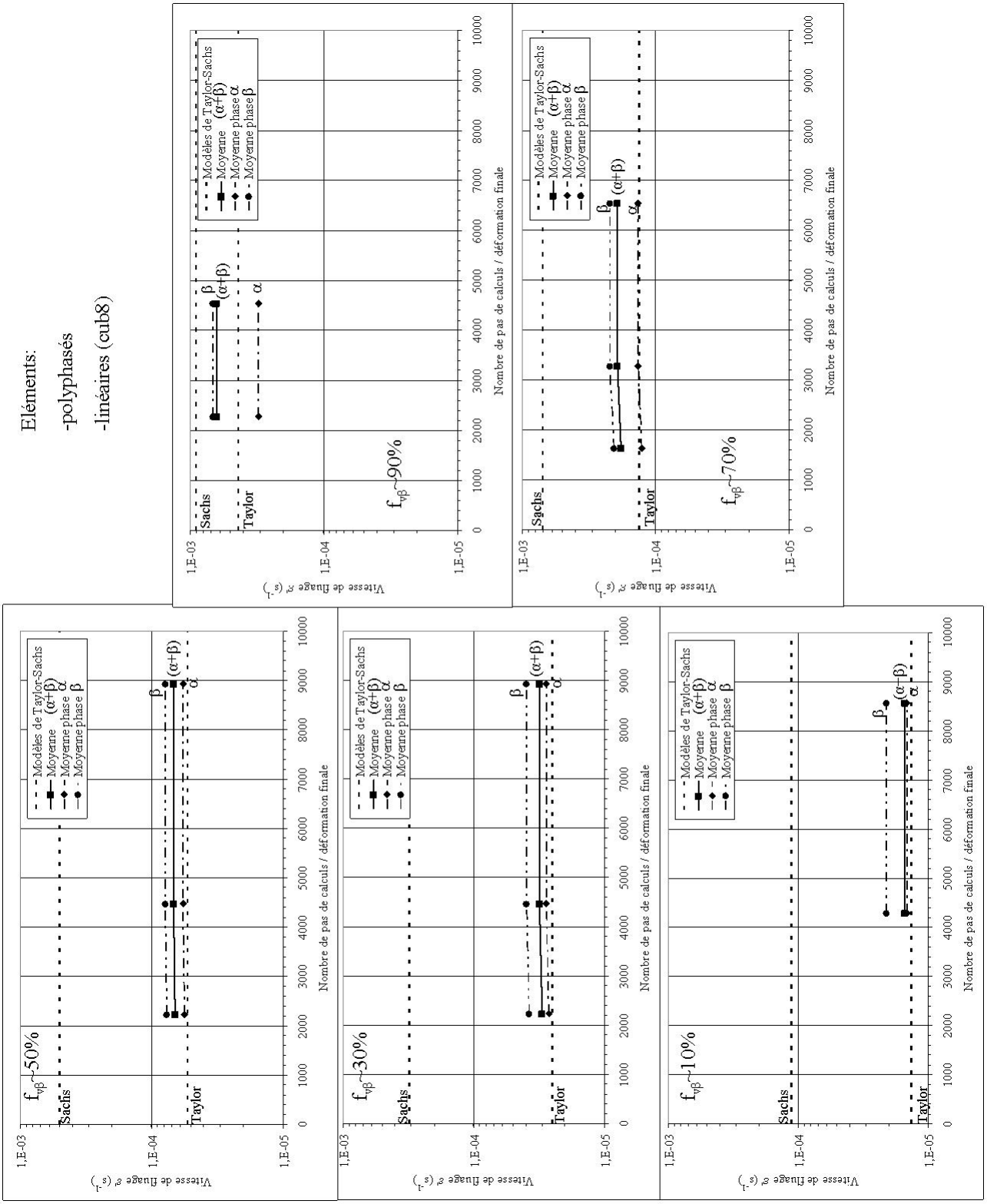


Figure C.2 – *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) moyenne et moyennes par phase en fonction de la discrétisation temporelle pour les microstructures maillées par des éléments cubiques linéaires polyphasés (cub8), les paramètres matériau sont détaillés dans le tableau 4.1*

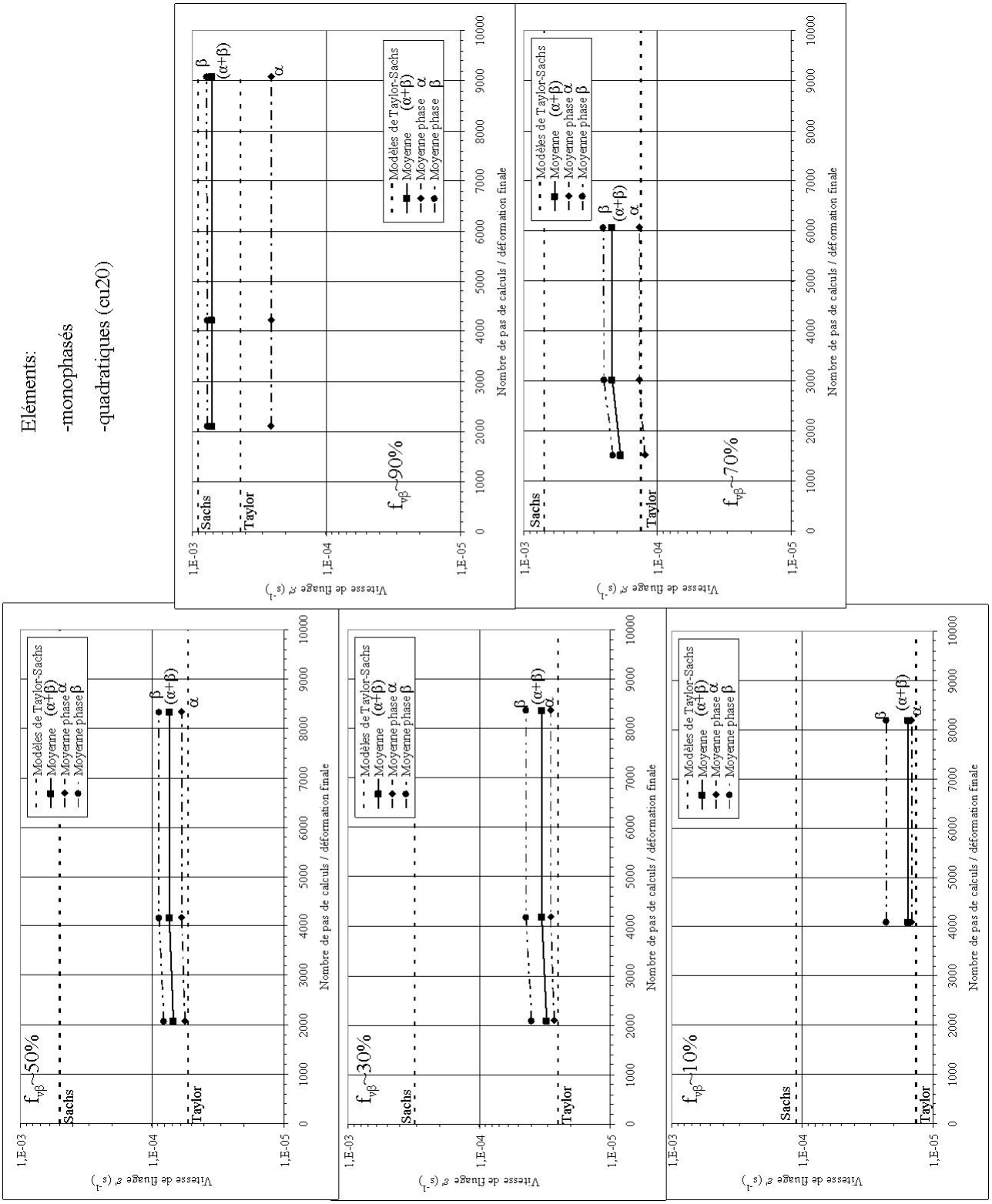


Figure C.3 – *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) moyenne et moyennes par phase en fonction de la discrétisation temporelle pour les microstructures maillées par des éléments cubiques quadratiques monophasés (cu20), les paramètres matériau sont détaillés dans le tableau 4.1*

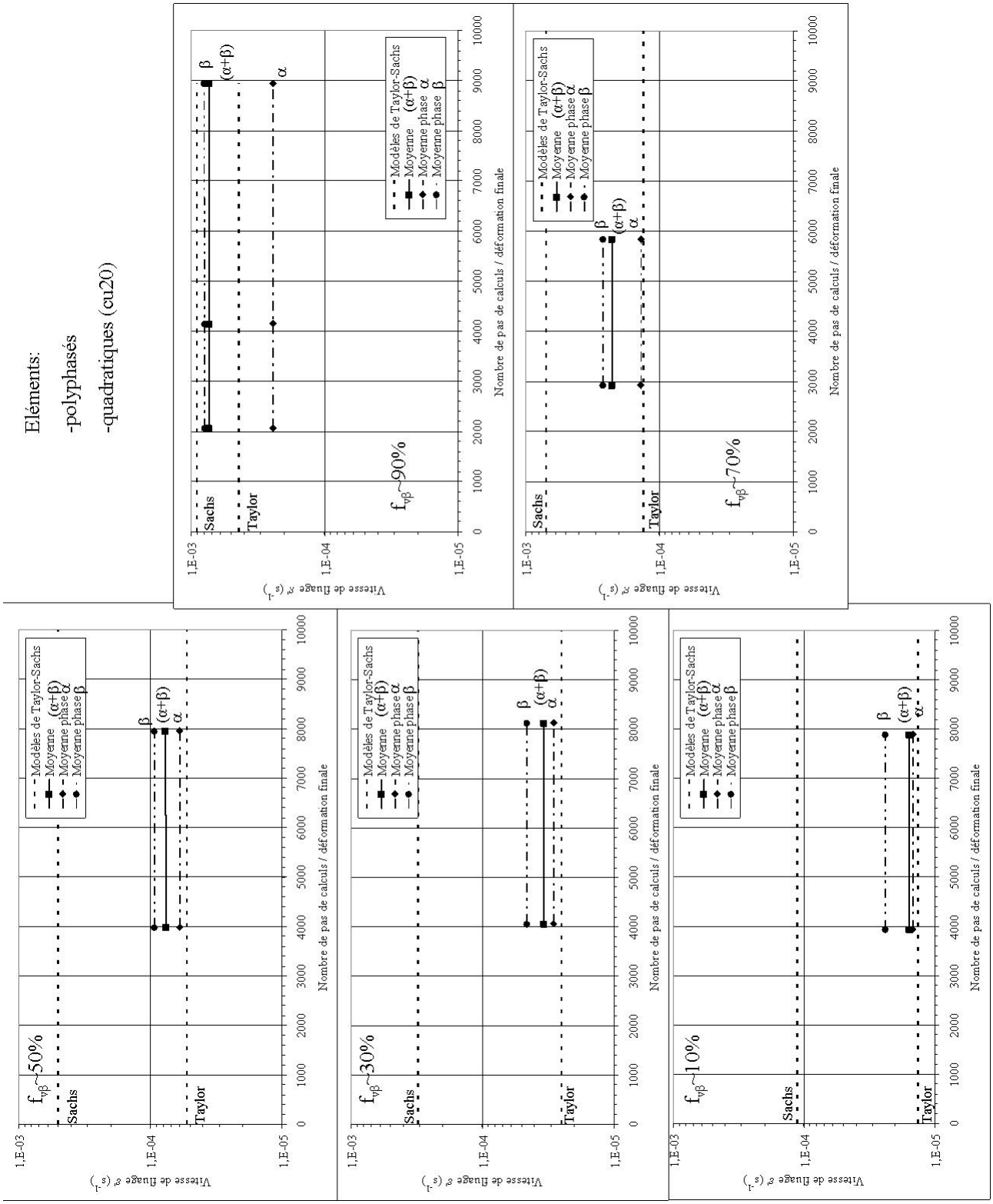


Figure C.4 – *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) moyenne et moyennes par phase en fonction de la discrétisation temporelle pour les microstructures maillées par des éléments cubiques quadratiques polyphasés (cu20), les paramètres matériau sont détaillés dans le tableau 4.1*

En conclusion, il faut choisir un minimum d'environ 40 pas de calcul par pourcent de déformation finale pour s'assurer dans tous les cas de la convergence temporelle des calculs. Ne connaissant pas *a priori* la déformation finale avant de réaliser la simulation, il convient d'utiliser l'estimation du modèle de Sachs (1928), qui est dans la plupart des cas rencontrés une valeur majorante. Cette estimation est possible à partir de la donnée de la fraction volumique de phase β de la microstructure à simuler. Cette approche permet de choisir une discrétisation temporelle robuste vis-à-vis des différentes fractions volumiques et microstructures.

Les figures C.5 et C.6 présentent pour les différentes fractions volumiques l'évolution respectivement des déformations et vitesses de fluage moyenne et moyennes par phase en fonction du temps pour un découpage de la simulation en 160 pas de calcul et un maillage avec des éléments quadratiques polyphasés (cu20). Le régime permanent est atteint assez rapidement. Des résultats analogues sont observés dans les autres cas de maillage.

Si on compare pour les différentes fractions volumiques les temps de fluage pour atteindre le régime stationnaire au sens de la réponse macroscopique, le paramètre important ne semble pas être la déformation mais plutôt la déformation moyenne de la phase α, *i.e.* de la phase dure. Si la phase α s'est déformée d'environ 0,5%, on observe que le régime stationnaire est atteint.

Afin de s'assurer *a priori* que la durée totale de la simulation permette bien d'atteindre le régime stationnaire, on considère, dans le cas le plus défavorable le temps mis par une microstructure monophasée, uniquement constituée de phase dure pour atteindre la déformation de 0,5%. Cette surestimation ne porte pas préjudice au temps de calcul car ce dernier est en fait interrompu dès que l'on détecte, au cours du calcul, que le régime permanent est considéré comme atteint.

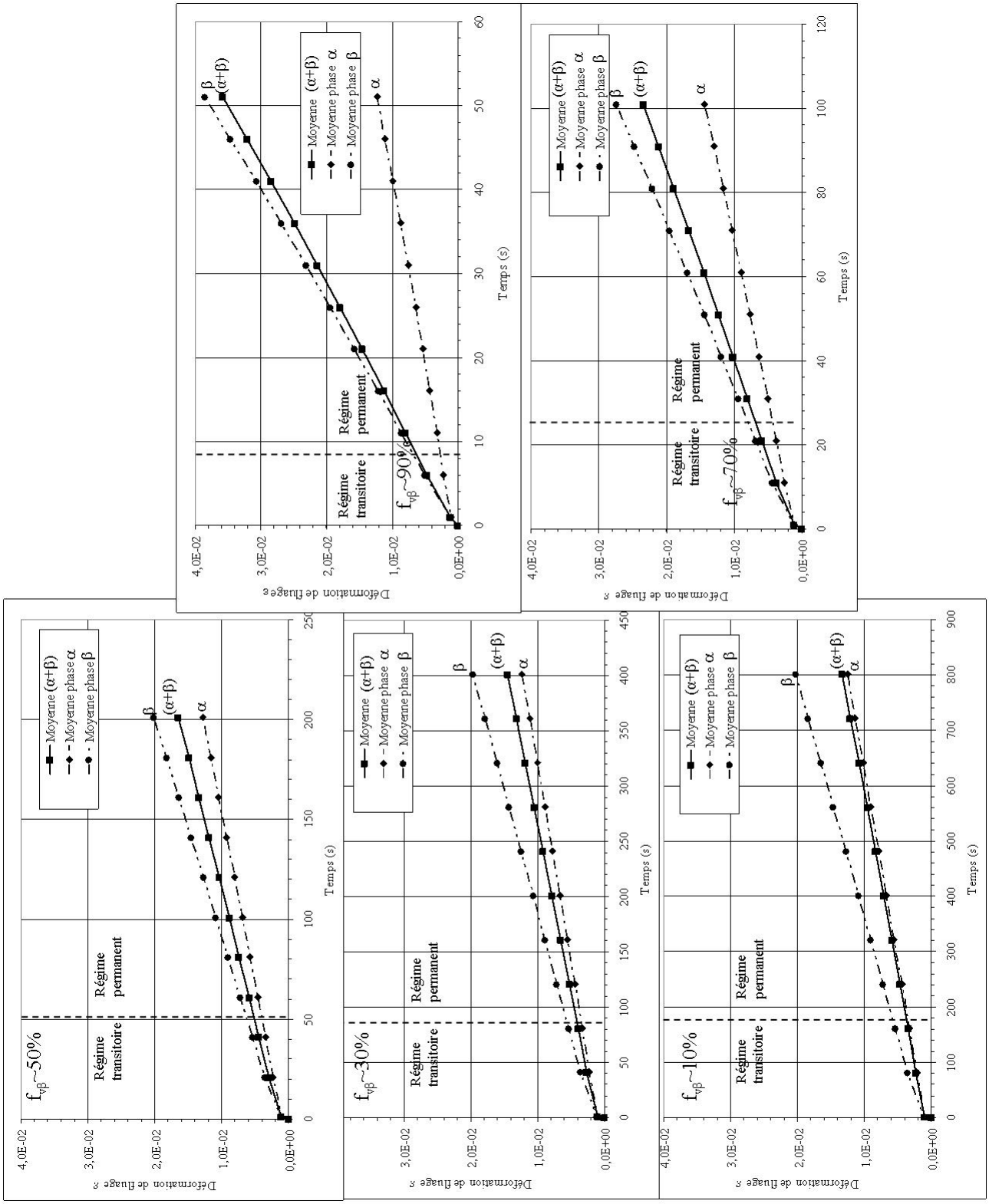


Figure C.5 – *Evolution des déformations de fluage (100MPa) moyenne et moyennes par phase en fonction du temps pour un découpage de la simulation en 160 pas de calcul et un maillage avec des éléments quadratiques polyphasés (cu20), les paramètres matériau sont détaillés dans le tableau 4.1*

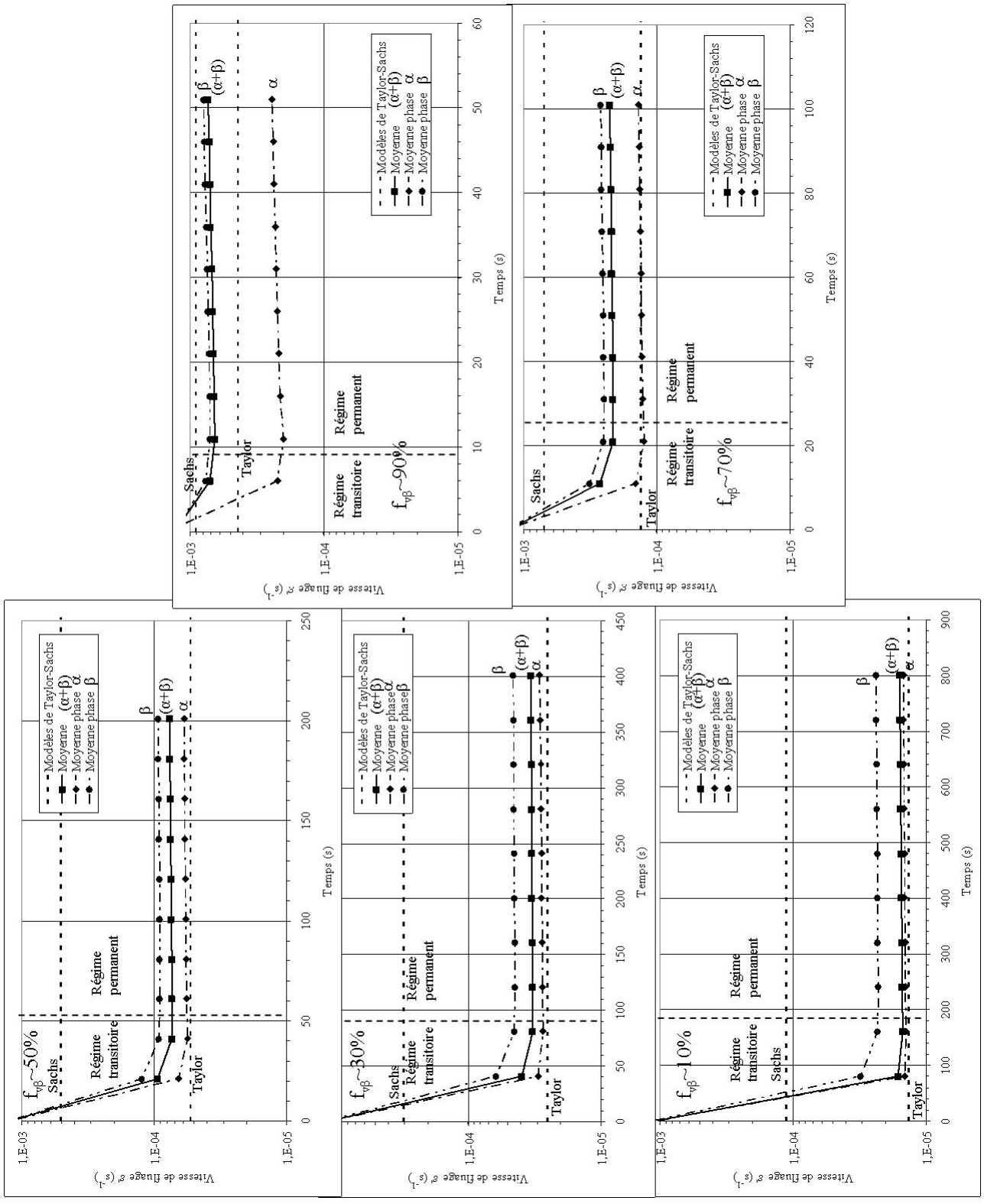


Figure C.6 – *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) moyenne et moyennes par phase en fonction du temps pour un découpage de la simulation en 160 pas de calcul et un maillage avec des éléments quadratiques polyphasés (cu20), les paramètres matériau sont détaillés dans le tableau 4.1*

En effet, au cours du calcul, la fin du régime transitoire est détectée en se basant sur la linéarité par rapport au temps de la déformation totale. Dans le régime transitoire, la courbe de déformation totale en fonction du temps (figure C.5) est incurvée vers le bas et sa courbure diminue quand le temps augmente, en tendant vers zéro quand le régime permanent est atteint.

La figure C.7 illustre le critère de détection du régime permanent. Celui-ci est adimensionné par rapport aux pas de temps de calcul afin de ne pas dépendre de la discrétisation temporelle. Le critère limite utilisé pour la détection du régime permanent est 0,0001. Les vitesses de fluage obtenues au moment de la détection du régime permanents sont peu sensibles à la valeur de ce critère.

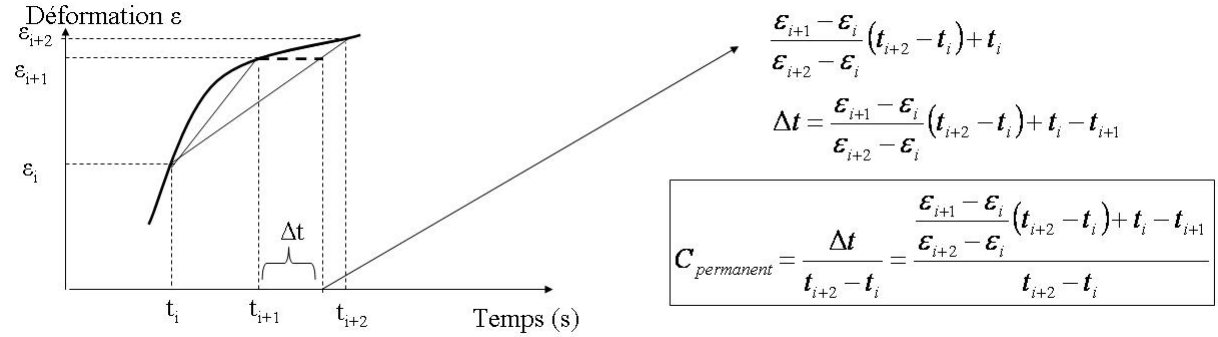


Figure C.7 – *Calcul du critère de détection du régime permanent (fin du régime transitoire)*

Il a été montré que la mise en charge d'une seconde n'avait pas d'influence sur les vitesses moyenne et moyenne par phase du régime permanent. Même si cette mise en charge est conservée dans l'étude de la discrétisation spatiale, par la suite, la charge de fluage est appliquée dès le premier pas de calcul.

C.1.2 Discrétisation spatiale

Le calcul par éléments finis nécessite également une discrétisation spatiale de la géométrie. Dans le cas de notre étude, il s'agit d'un maillage cubique régulier. Des éléments linéaires (cub8) et quadratiques (cu20), monophasés et polyphasés ont été utilisés. L'objectif de ce paragraphe est, d'une part, de choisir parmi ces éléments le type le plus approprié à l'étude numérique envisagée ici. De plus, le degré de raffinement du maillage assurant la convergence spatiale est aussi étudié.

Comme précédemment, le modèle de microstructure des polycristaux biphasés de Voronoï a été utilisé pour cette étude. La même tesselation que précédemment, contenant 36 germes (30 germes visés), a permis de générer cinq microstructures biphasées contenant environ respectivement 10-30-50-70 et 90% de phase β. Les lois de comportement décrites dans le paragraphe 4.2.1 ont été attribuées aux phases α et β.

De même, le chargement de fluage de 100MPa est appliqué avec une mise en charge d'une seconde, discrétisée en dix pas, selon les conditions aux limites périodiques (CLPC). De façon à atteindre le régime de fluage stationnaire, des temps de simulation de 800-400-200-100 et 50s ont été choisis respectivement pour 10-30-50-70 et 90% de phase β. 80 pas fractionnent les temps de simulations, ce qui est suffisant pour assurer la convergence temporelle d'après le

paragraphe précédent.

Un nombre croissant d'éléments constituant le maillage est choisi :
- pour les éléments linéaires (cub8) : 27, 216, 729, 1728, 3375, 5832, 9261, 13824 et 19683 éléments ;
- pour les éléments quadratiques (cu20) : 27, 216, 729, 1728, 3375 éléments.

La géométrie des microstructures à simuler étant susceptible d'être dégradée par la discrétisation spatiale, on s'intéresse tout d'abord à la fraction de phase β dans la structure maillée en fonction du nombre d'éléments. La figure C.8 représente ces évolutions en fonction du nombre de points de Gauss, ce qui met en évidence l'intérêt d'utiliser des éléments polyphasés : à nombre égal de points de Gauss (*i.e.* sans augmentation sensible des temps de calcul), les valeurs obtenues avec les maillages polyphasés sont généralement plus proches de la valeur « asymptote » (pour plus de 100000 points de Gauss) que celles obtenues avec les maillages monophasés. On choisira donc d'utiliser des éléments polyphasés pour la suite de l'étude.

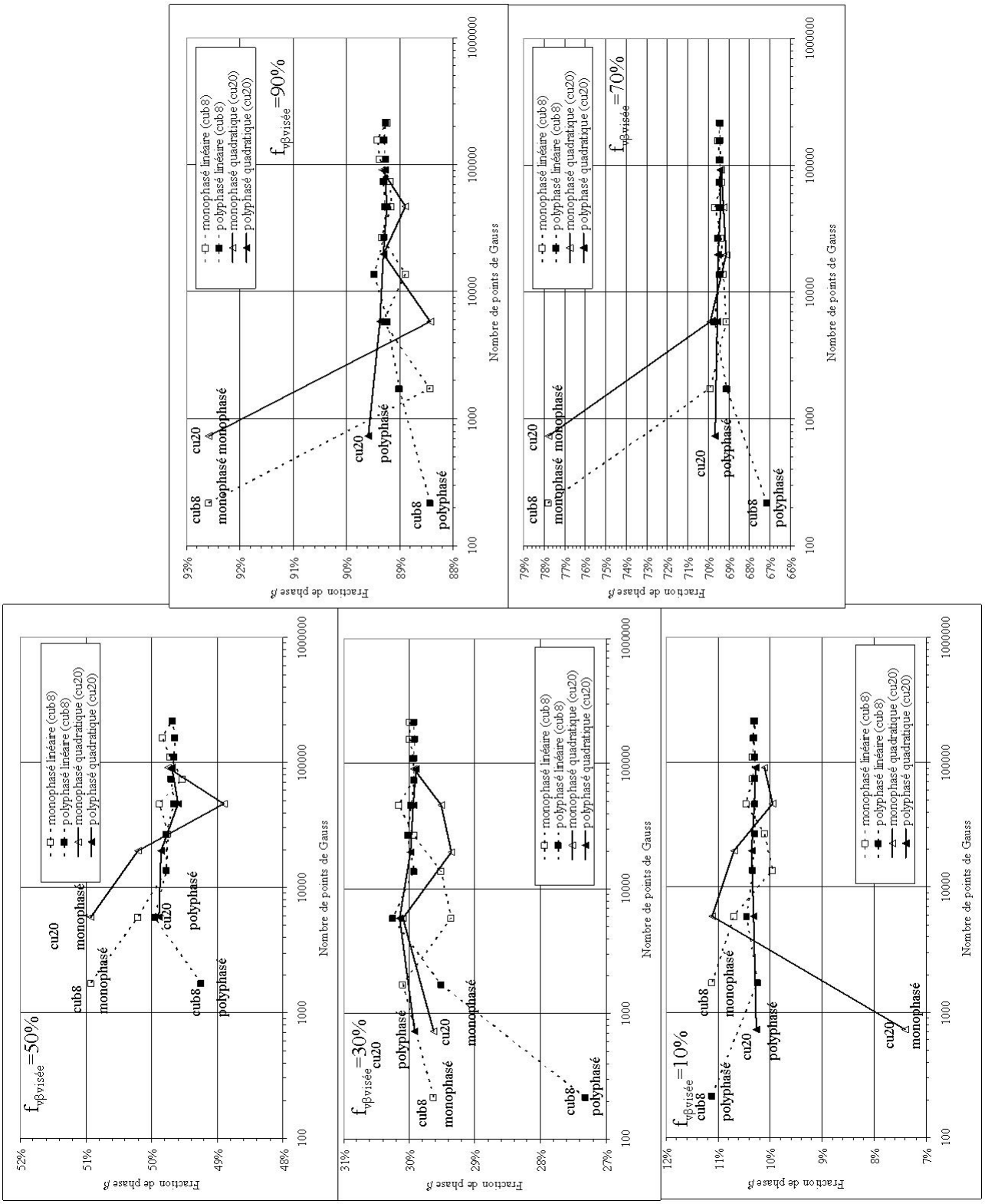


Figure C.8 – *Evolution des différentes fractions de phase β en fonction de la discrétisation spatiale*

Pour les quatre types de maillage, les figures C.9, C.10, C.11 et C.12 regroupent les résultats des simulations de fluage en fonction du nombre de points de Gauss.

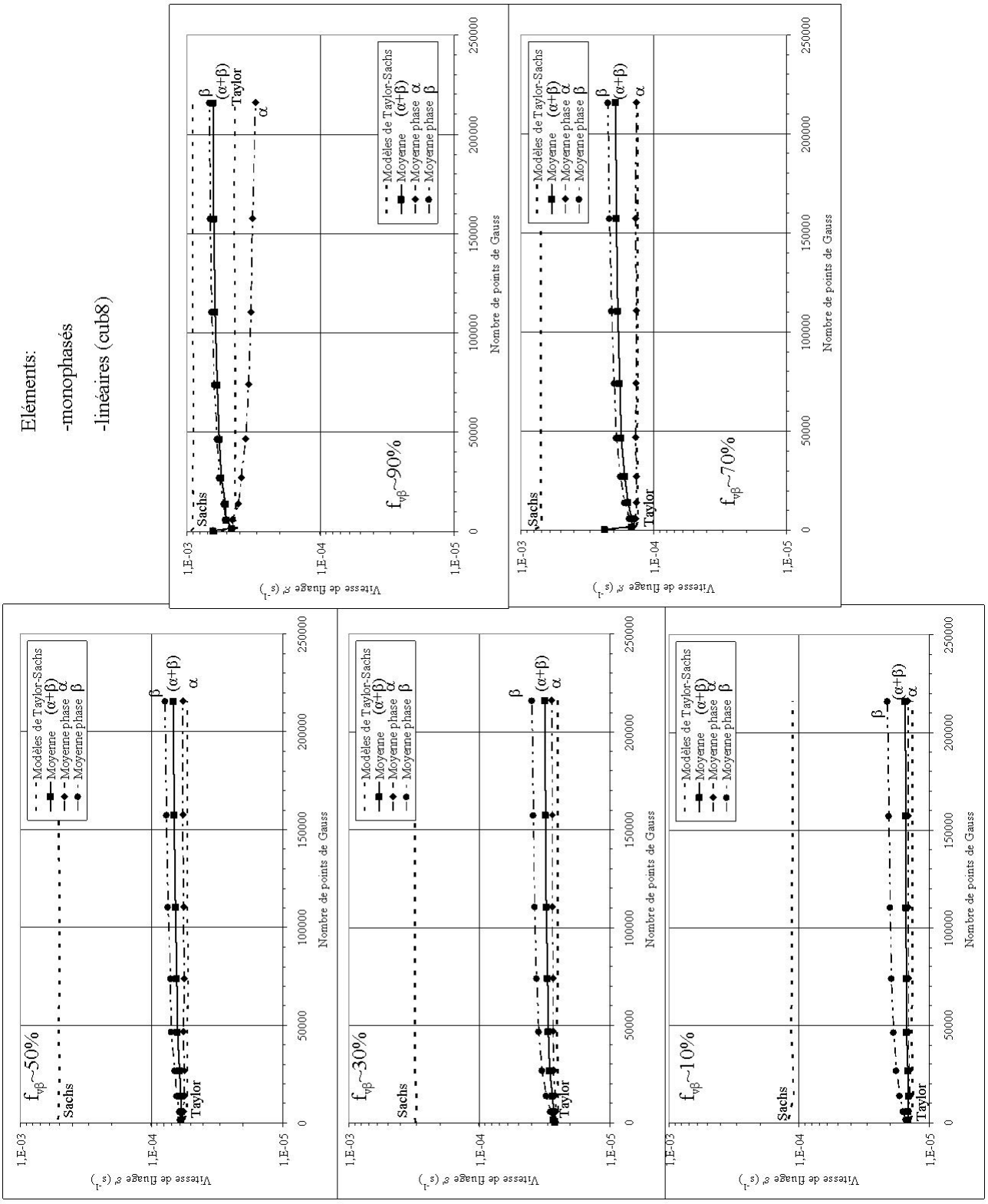


Figure C.9 – *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) moyenne et moyennes par phase en fonction de la discrétisation spatiale pour les microstructures maillées par des éléments cubiques linéaires monophasés (cub8), les paramètres matériau sont détaillés dans le tableau 4.1*

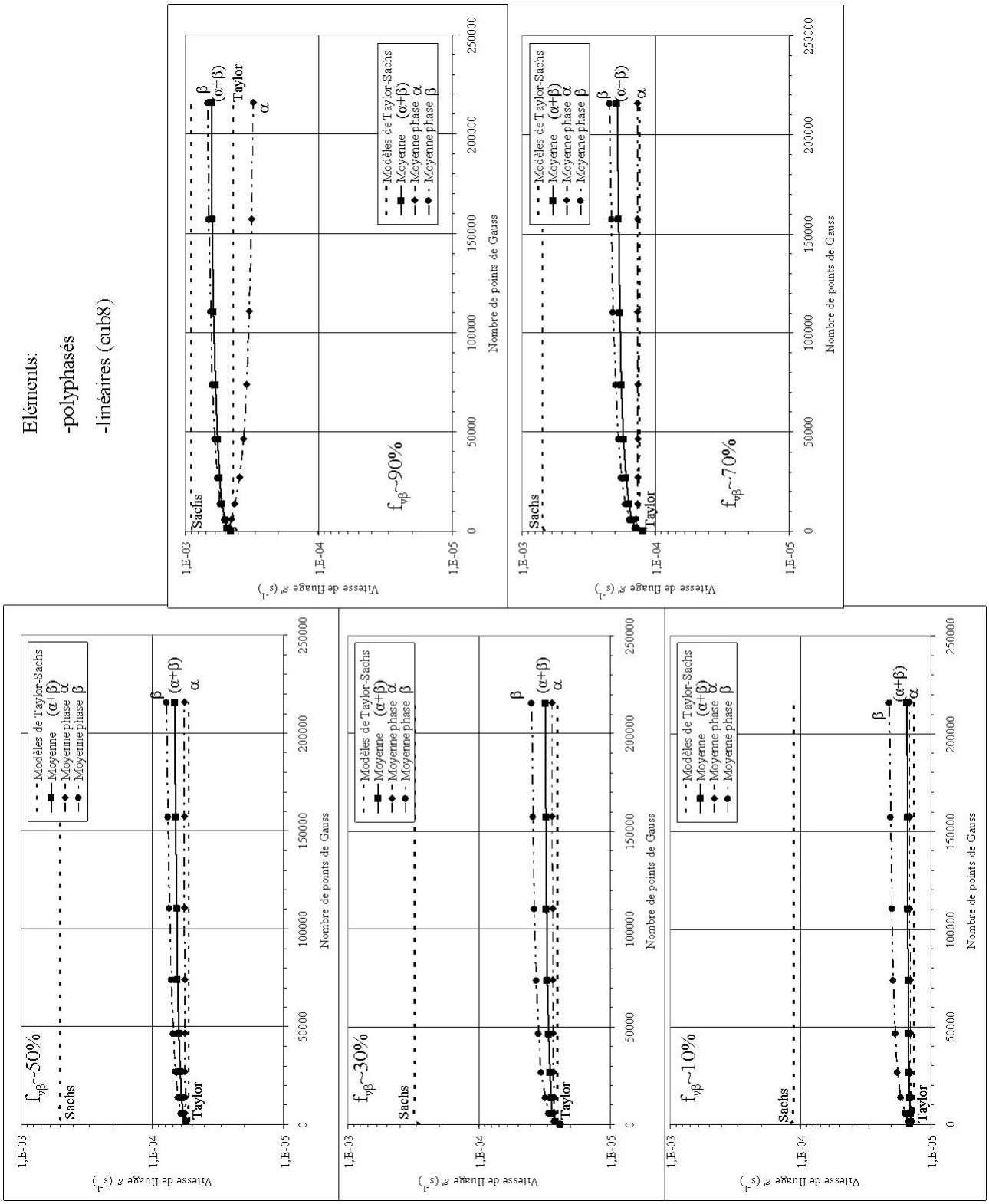


Figure C.10 – *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) moyenne et moyennes par phase en fonction de la discrétisation spatiale pour les microstructures maillées par des éléments cubiques linéaires polyphasés (cub8), les paramètres matériau sont détaillés dans le tableau 4.1*

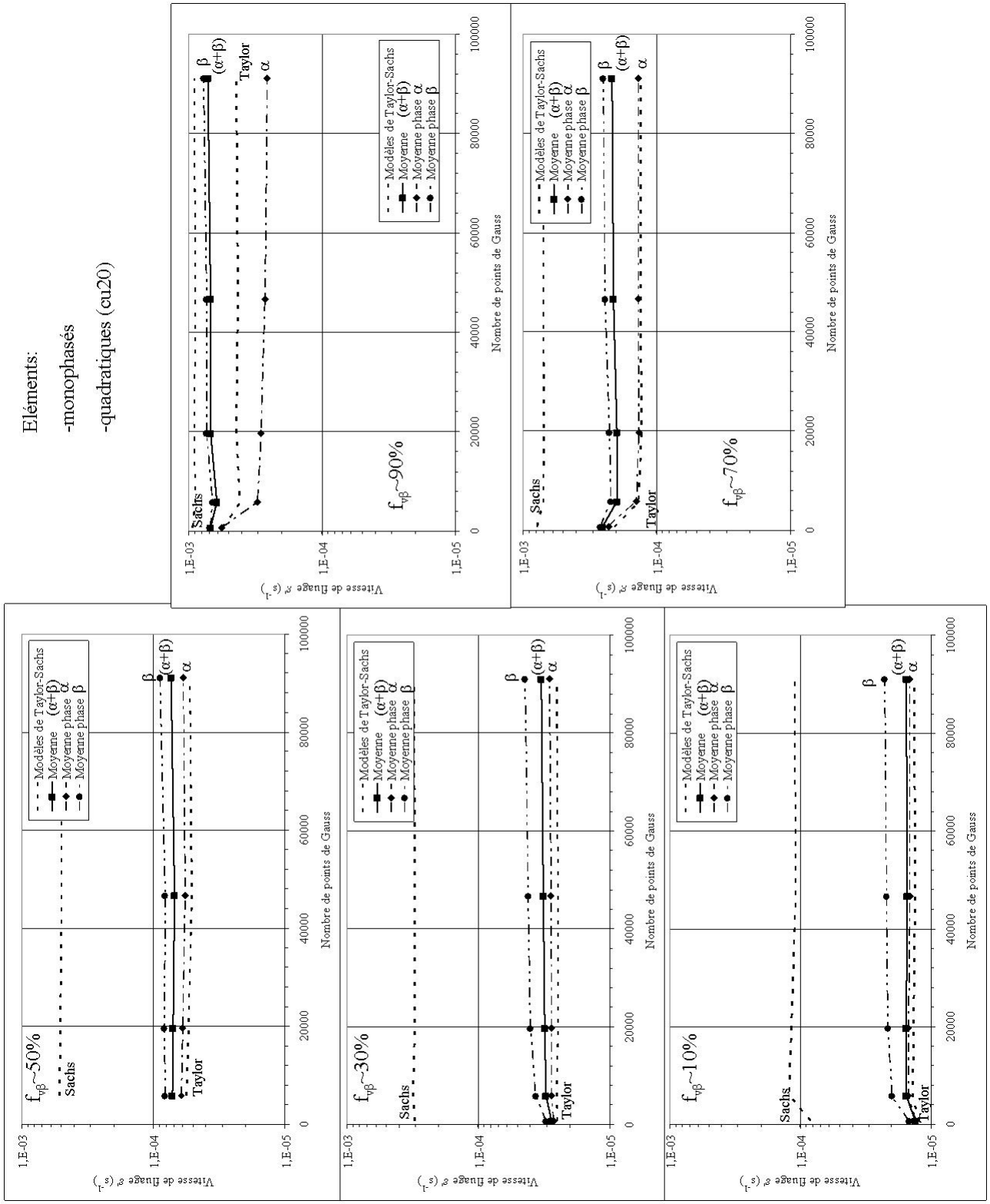


Figure C.11 – *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) moyenne et moyennes par phase en fonction de la discrétisation spatiale pour les microstructures maillées par des éléments cubiques quadratiques monophasés (cu20), les paramètres matériau sont détaillés dans le tableau 4.1*

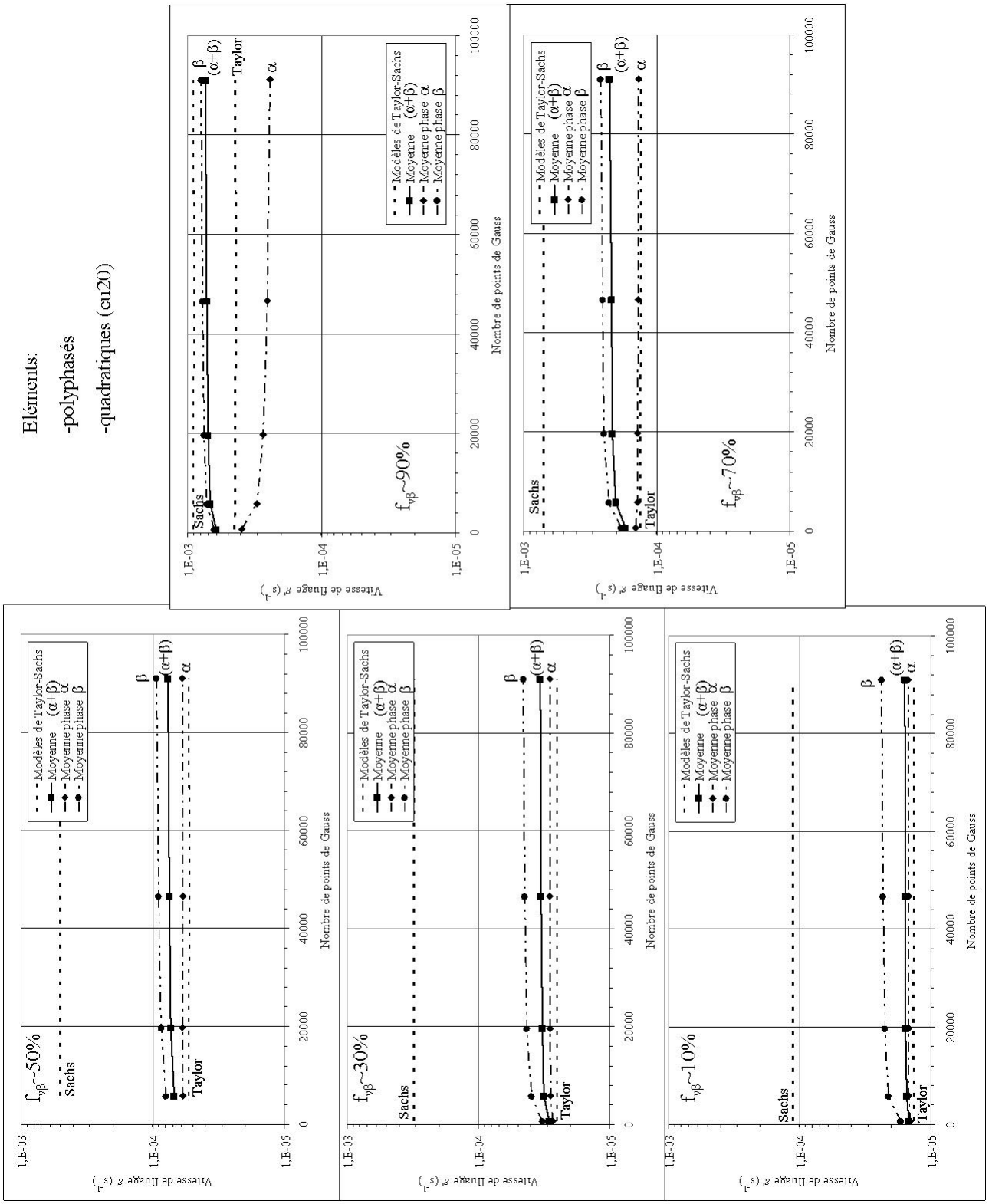


Figure C.12 – *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) moyenne et moyennes par phase en fonction de la discrétisation spatiale pour les microstructures maillées par des éléments cubiques quadratiques polyphasés (cu20), les paramètres matériau sont détaillés dans le tableau 4.1*

D'une manière générale, plus le maillage est raffiné, plus le contraste de vitesses de fluage entre phases est important. Par ailleurs, plus la fraction volumique de phase molle β est élevée, plus la convergence spatiale est difficile. Les maillages linéaires fournissent des vitesses de fluage plus faibles que celles obtenues avec les maillages quadratiques. Si ces derniers sont suffisamment raffinés pour atteindre la convergence spatiale, cela montre qu'il faudrait raffiner davantage les maillages linéaires pour obtenir une convergence vis-à-vis de la taille de maille avec ces éléments. Comme les temps de calcul pour les maillages linéaires les plus raffinés sont supérieurs à ceux requis par l'utilisation des éléments quadratiques, on choisit donc d'utiliser des éléments quadratiques polyphasés. Dans le cas du modèle des polycristaux biphasés de Voronoï, indépendamment de la fraction de phase β, une densité de maillage de 125 éléments quadratiques polyphasés (soit 3375 points de Gauss) en moyenne par germe est choisie.

Pour la fraction de phase β visée d'environ 30%, des simulations ont été effectuées avec les trois types de conditions aux limites sur des maillages d'éléments quadratiques polyphasés pour chaque modèle de microstructures étudié :

- pour le modèle des polyèdres biphasés de Voronoï, on a visé une microstructure contenant en moyenne 27 germes,
- pour le modèle des sphères booléennes, on a visé une microstructure contenant en moyenne 8 germes,
- pour le modèle des arêtes de Voronoï, on a visé une microstructure contenant en moyenne 1 germe,
- pour le modèle des facettes de Voronoï, on a visé une microstructure contenant en moyenne 1 germe,
- pour le modèle de microstructures biphasées du M5®, on a visé une microstructure contenant en moyenne 1 germe.

Des maillages de plus en plus raffinés ont été utilisés. La figure C.13 détaille les évolutions des vitesses de fluage moyenne et moyennes par phase en fonction de la discrétisation spatiale.

En analysant ces résultats, le raffinement nécessaire à la convergence spatiale a été choisi. Par germe contenu dans la microstructure, on a donc dû utiliser :

- pour le modèle des polyèdres biphasés de Voronoï, 125 éléments (soit 3375 points de Gauss),
- pour le modèle des sphères booléennes, 216 éléments (soit 5832 points de Gauss),
- pour le modèle des arêtes de Voronoï, 3375 éléments (soit 91125 points de Gauss),
- pour le modèle des facettes de Voronoï, 8000 éléments (soit 216000 points de Gauss),
- pour le modèle de microstructures biphasées du M5®, 8000 éléments (soit 216000 points de Gauss).

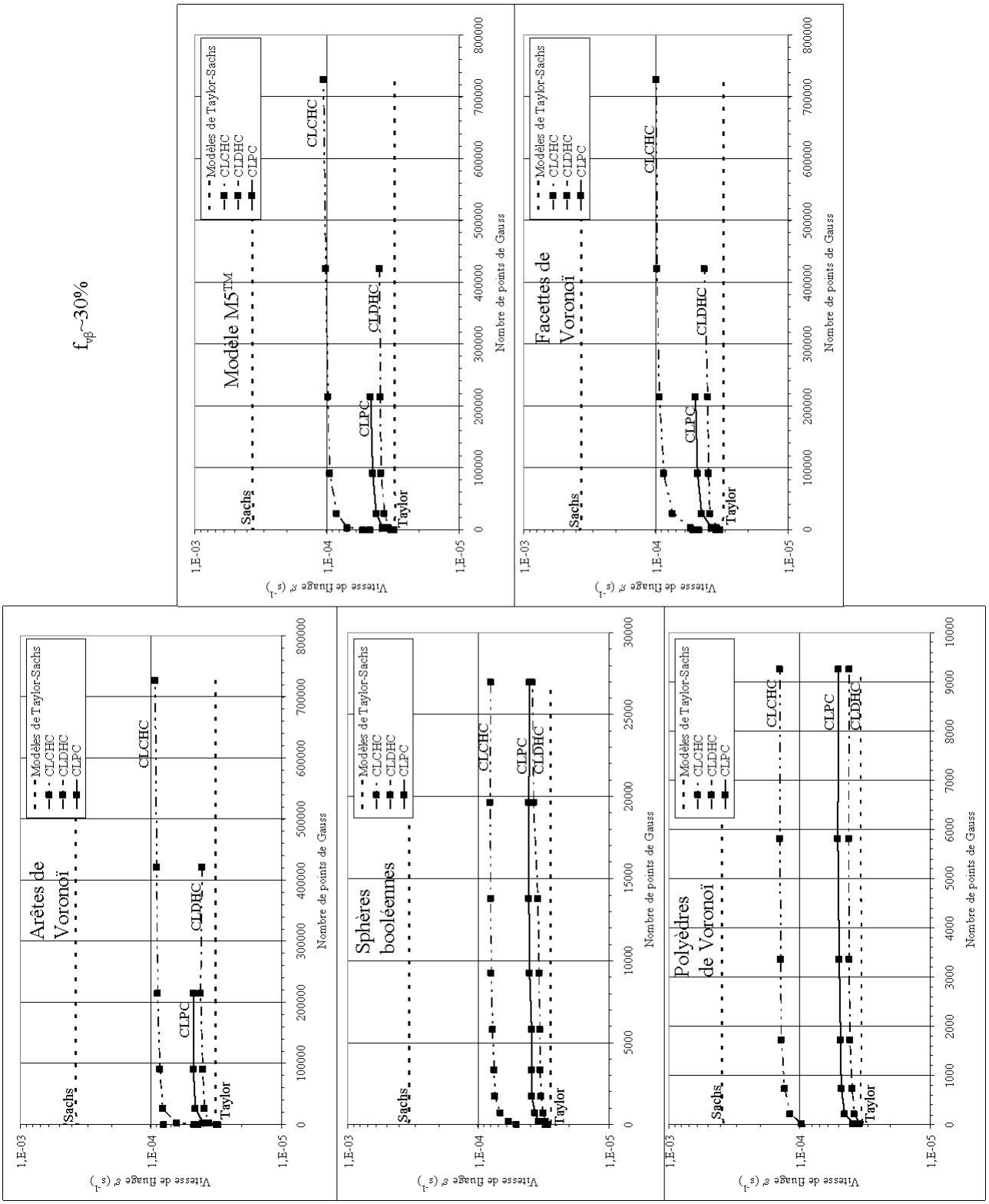


Figure C.13 – *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) moyenne et moyennes par phase en fonction de la discrétisation spatiale pour toutes les morphologies étudiées, pour les trois types de conditions aux limites ($f_{v\beta} \approx 30\%$)*

C.2 Evaluation de l'effet morphologique sur le comportement en fluage

C.2.1 Modèles analytiques

C.2.1.1 Modèle de Berveiller-Zaoui

Dans une première approche, le modèle de Berveiller et Zaoui (1979), récemment par Onimus et Béchade (2009) en plasticité polycristalline, implémenté sous SiDoLo (Pilvin (2003)), a été appliqué dans notre cas en considérant un comportement élasto-viscoplastique à seuil nul lors du fluage d'un matériau biphasé. Cette première approche est issue d'une collaboration informelle avec F. Onimus (Laboratoire d'Analyses Métallurgiques des Matériaux, Service de Recherches Métallurgiques Appliquées, CEA).

La figure C.14 présente les courbes de vitesses données par le modèle de Berveiller et Zaoui (1979). Aux faibles fractions de phase β, ce modèle est très proche du modèle de Taylor puis s'en éloigne un peu lorsque la fraction augmente, tout en restant plus éloigné du modèle de Sachs.

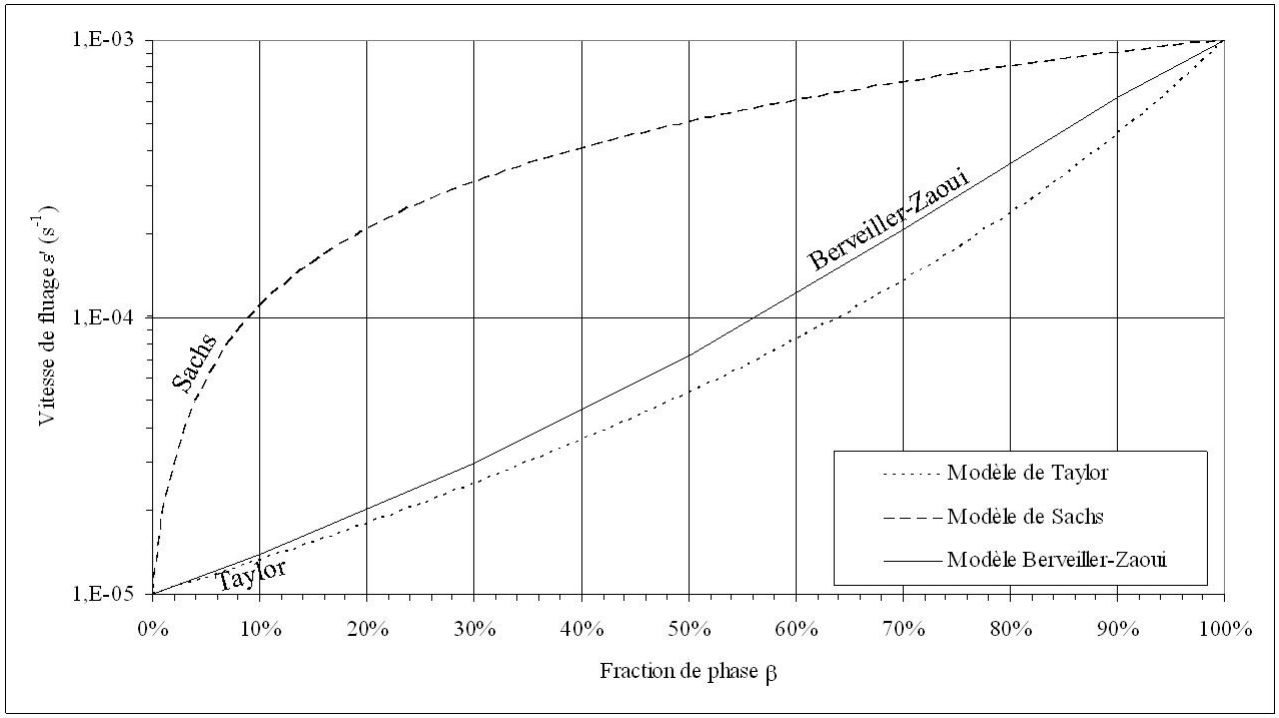


Figure C.14 – *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la fraction volumique de phase β, évaluées par le modèle de Berveiller et Zaoui (1979) (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)*

Les vitesses de fluage obtenues sont sensiblement plus faibles que celles obtenues par l'approche au second-ordre (modèle auto-cohérent sur la figure 4.13) mais très proches de celles obtenues par l'approche affine (modèle auto-cohérent, présentée ci-après sur la figure C.15).

C.2.1.2 Approche affine

La figure C.15 présente les courbes de vitesses données par l'approche affine, le modèle auto-cohérent, ainsi que les estimations d'Hashin-Shtrikman. L'estimation inférieure d'Hashin-

Shtrikman est relativement proche du modèle de Taylor alors que l'estimation supérieure est nettement inférieure au modèle de Sachs. Jusqu'à environ 30% de phase β, le modèle auto-cohérent est très proche de l'estimation inférieure d'Hashin-Shtrikman. A partir d'environ 90% de phase β, il est au contraire proche de l'estimation supérieure.

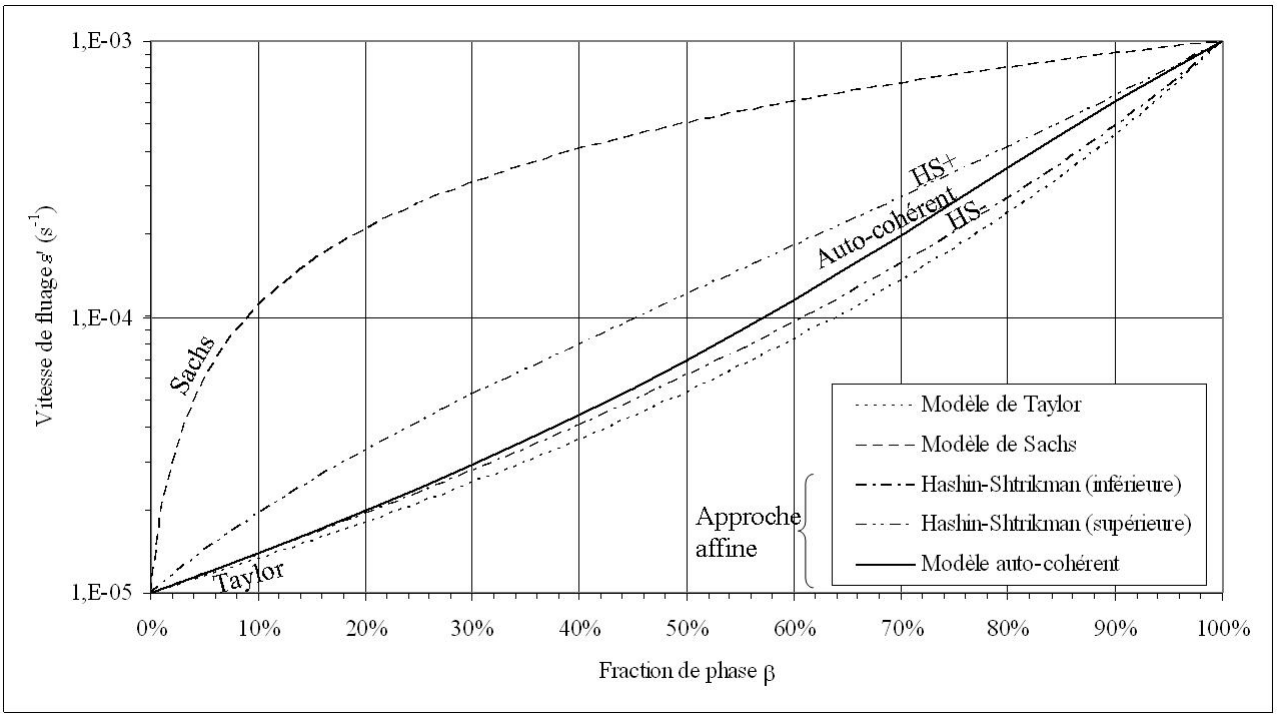


Figure C.15 – *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la fraction volumique de phase β évaluées par l'approche affine (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)*

Les vitesses de fluage obtenues par l'approche affine sont sensiblement plus faibles que celles obtenues par l'approche au second-ordre (figure 4.13).

C.2.2 Etude d'une microstructure de type polycristaux biphasés de Voronoï

C.2.2.1 Résultats des simulations par éléments finis sur des VES de « petite » taille, périodiques ou non périodiques

La figure C.16 présente les vitesses de fluage moyennes entre les VES obtenues pour les trois types de conditions aux limites pour deux tailles de VES correspondant à 27 et 8 germes en moyenne par VES. Le nombre de VES nécessaire pour estimer la vitesse moyenne à $\pm 5\%$ est également indiqué sur la figure. Le nombre de VES à simuler est plus important, mais cela nécessite globalement un temps de calcul plus faible. Pour ces petits VES, de faibles écarts ont été relevés en CLPC et CLDHC alors que des vitesses sensiblement plus élevées sont obtenues en CLCHC, en particulier pour des fractions de 10, 30 et 50% de phase β. Ces VES présentent donc une plus forte sensibilité aux conditions aux limites et sont donc moins représentatifs du comportement effectif du matériau.

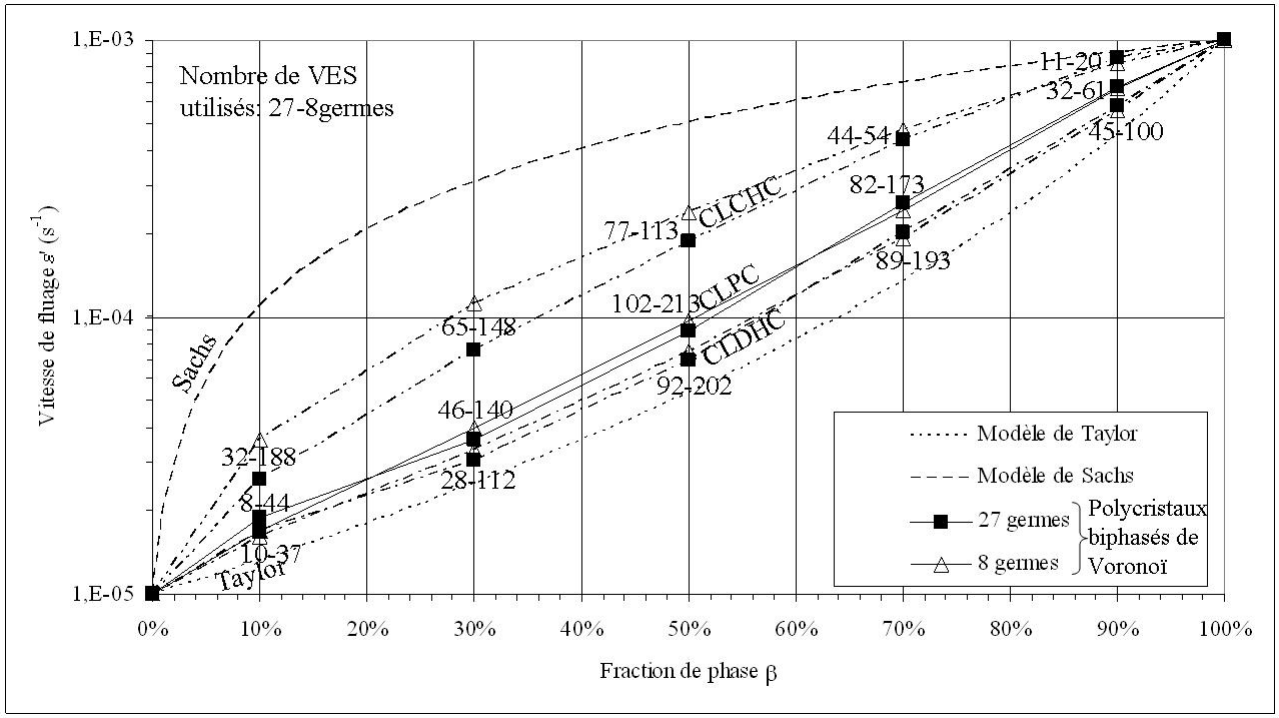


Figure C.16 – *Comparaison des évolutions des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la fraction volumique de phase β évaluées par approche numérique statistique sur des polycristaux biphasés de Voronoï de 27 et 8 germes (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)*

Des simulations ont également été menées sur des VES périodisés (8 et 27 germes). Les dispersions entre VES sont nettement plus élevées pour les microstructures périodiques. Pour les VES de 8 germes (figure C.17), un biais apparaît également en CLPC et CLDHC, les microstructures périodiques présentant des vitesses de fluage plus élevées alors que les résultats obtenus en CLCHC sont sensiblement les mêmes.

Ce biais, lié à la périodisation de la morphologie du matériau, s'atténue pour une taille de VES plus importante (27 germes sur la figure C.18) en terme de vitesse de fluage même si la dispersion entre VES reste plus élevée que pour les microstructures non périodisées. Il est donc préférable d'utiliser des microstructures non périodisées, qui sont plus représentatives à une taille donnée.

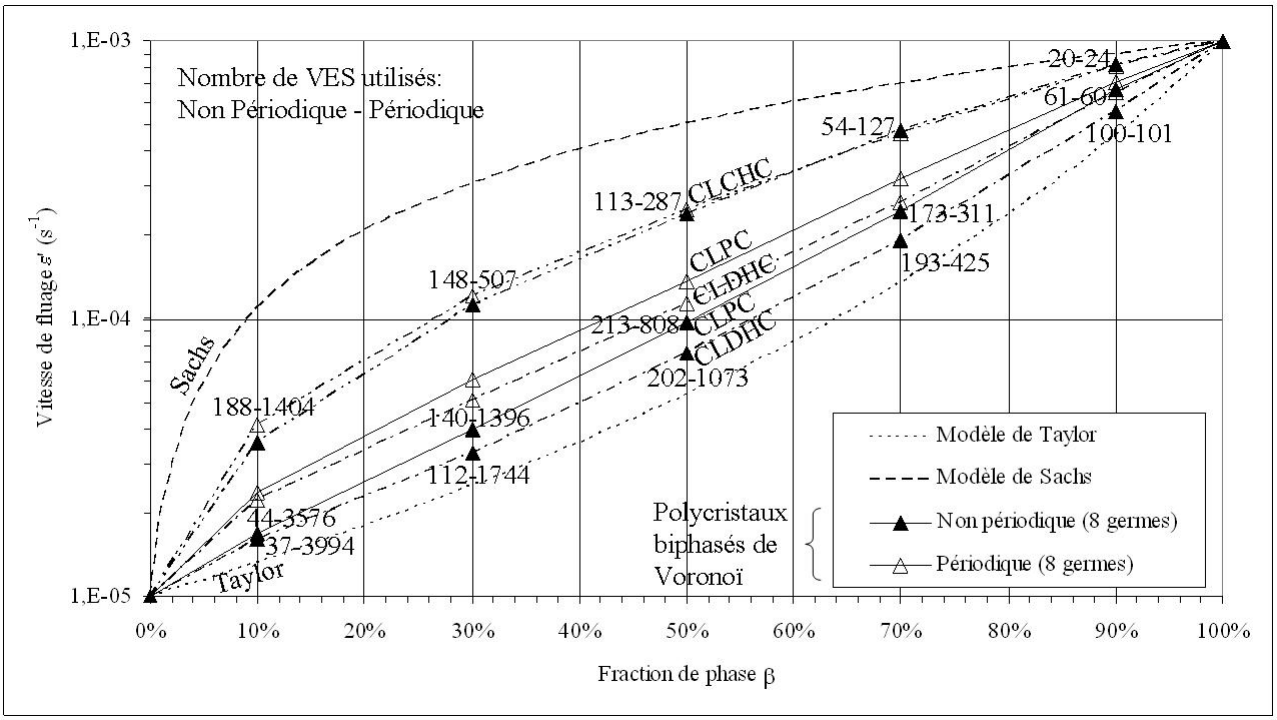


Figure C.17 – *Comparaison des évolutions des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la fraction volumique de phase β évaluées par approche numérique statistique sur des polycristaux biphasés, périodiques ou non, de Voronoï de 8 germes (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)*

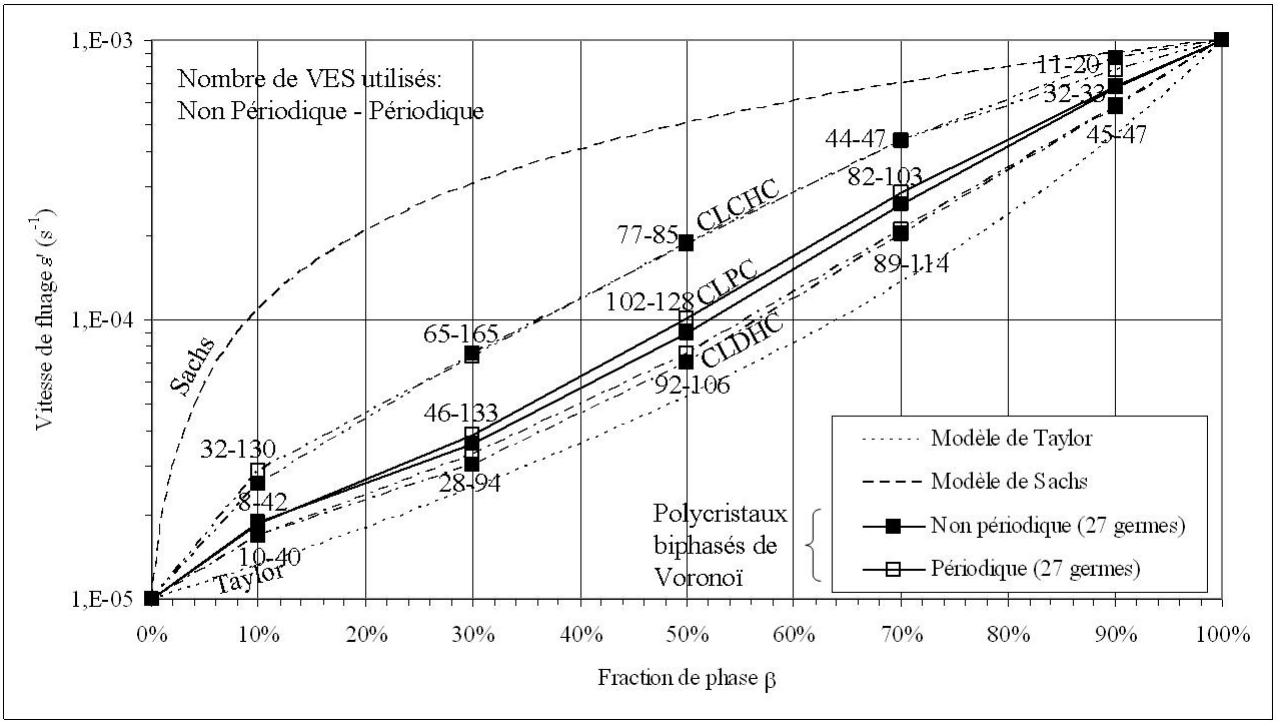


Figure C.18 – *Comparaison des évolutions des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la fraction volumique de phase β évaluées par approche numérique statistique sur des polycristaux biphasés, périodiques ou non, de Voronoï de 27 germes (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)*

C.2.2.2 Comparaison avec les modèles analytiques

La figure C.19 compare les résultats obtenus par éléments finis en CLPC pour des VES de 27 germes en moyenne avec ceux provenant de la modélisation analytique par approche affine. Les estimations hautes et basses d'Hashin-Shtrikman encadrent les résultats obtenus par éléments finis. Le modèle auto-cohérent estime des vitesses de fluage inférieures aux moyennes prédites par les simulations par éléments finis. En échelle logarithmique, cet écart est maximum pour 10% et à peu près constant de 30 à 70%.

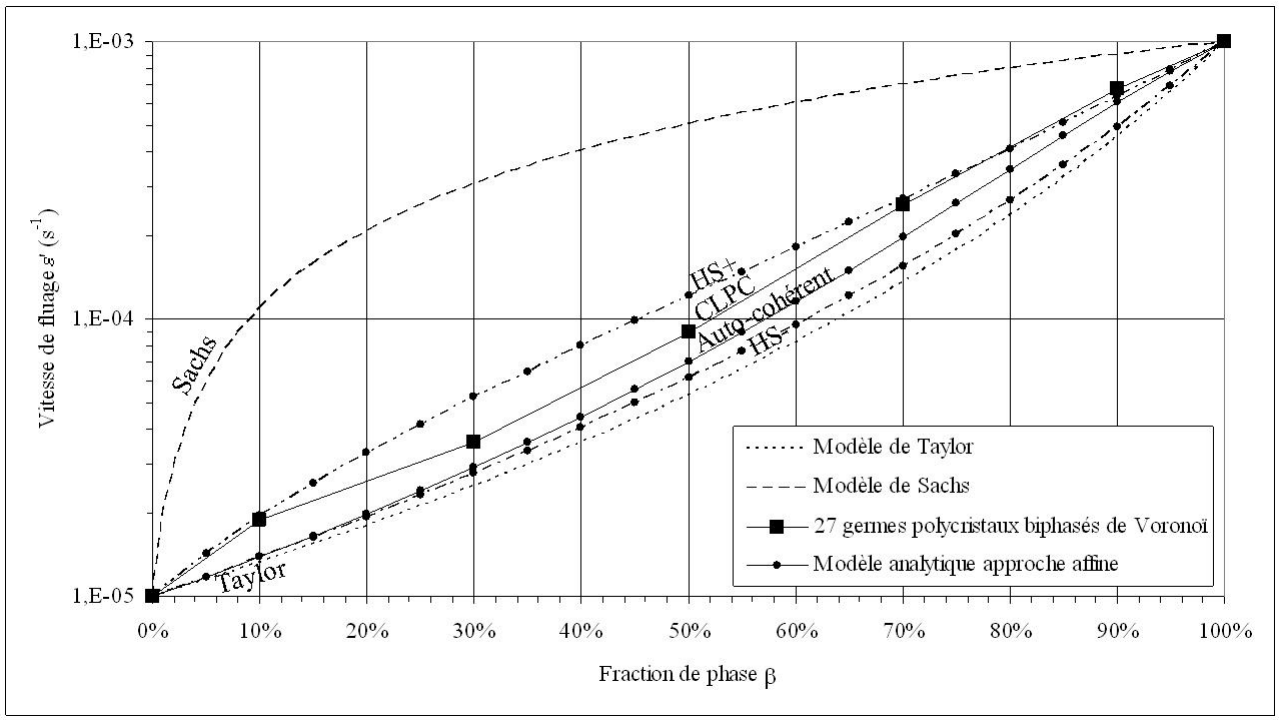


Figure C.19 – *Comparaison des évolutions des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la fraction volumique de phase β évaluées par approche numérique statistique sur des polycristaux biphasés de Voronoï de 27 germes et par approche analytique affine (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)*

La figure C.20 compare les résultats obtenus par éléments finis en CLPC pour des VES de 27 germes en moyenne avec ceux provenant de la modélisation analytique de Berveiller et Zaoui (1979). Comme pour l'approche affine (et celle au second-ordre), le modèle de Berveiller et Zaoui (1979) estime des vitesses de fluage inférieures aux moyennes prédites par les simulations par éléments finis. En échelle logarithmique, cet écart est maximum pour 10% et à peu près constant de 30 à 70%.

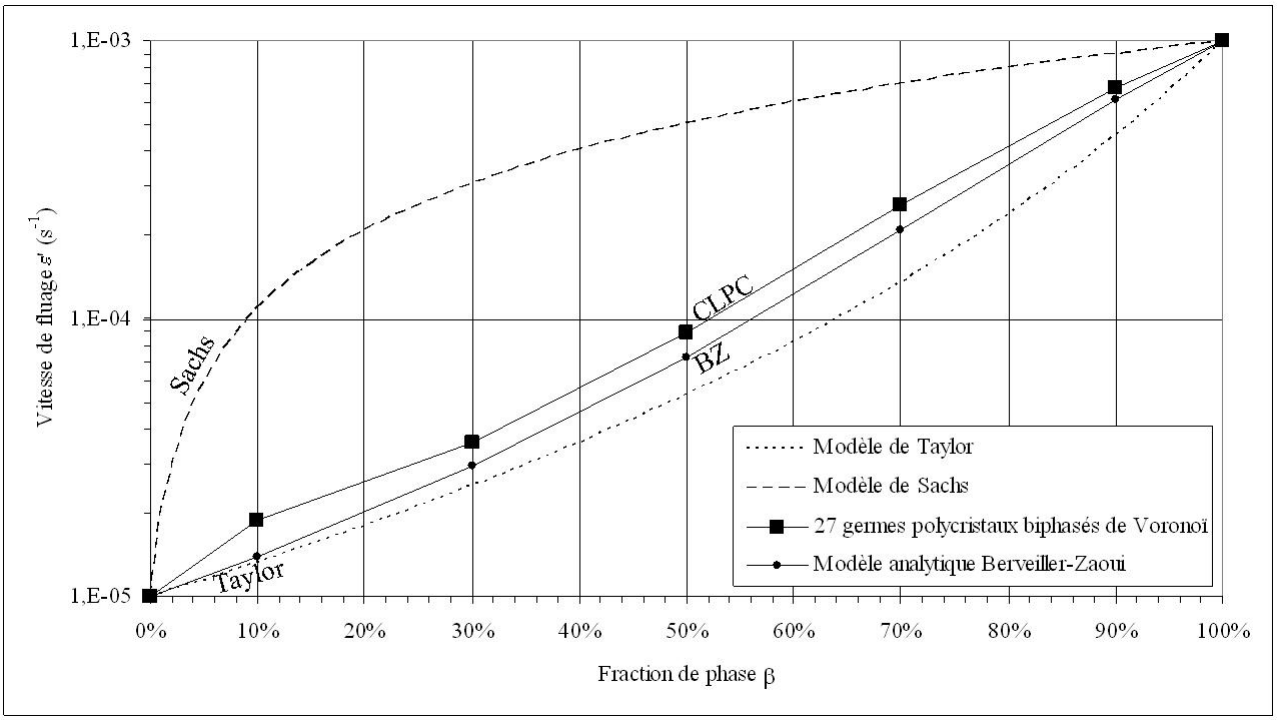


Figure C.20 – *Comparaison des évolutions des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la fraction volumique de phase β évaluées par approche numérique statistique sur des polycristaux biphasés de Voronoï de 27 germes et par le modèle analytique de Berveiller et Zaoui (1979) (paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)*

C.2.3 Etude de la sensibilité à la morphologie

Pour chaque modèle de microstructures, des tailles croissantes de VES sont employées, pour chaque type de conditions aux limites. Les vitesses de fluage obtenues pour ces différentes tailles de VES sont présentées :

- sur la figure C.21 pour le modèle de microstructure des polycristaux biphasés,
- sur la figure C.22 pour le modèle de microstructure des sphères booléennes,
- sur la figure C.23 pour le modèle de microstructure des arêtes de Voronoï,
- sur la figure C.24 pour le modèle de microstructure des facettes de Voronoï,
- sur la figure C.25 pour le modèle de microstructure biphasées du M5®.

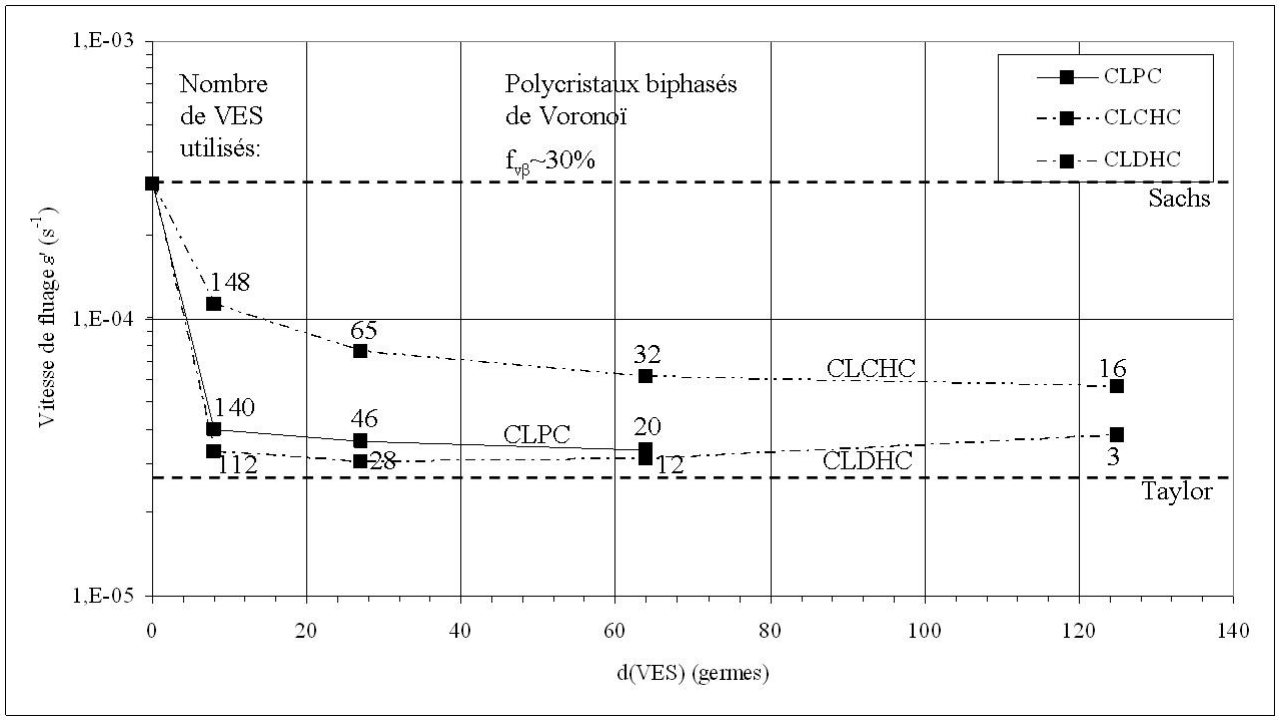


Figure C.21 – *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la taille des VES évaluées par approche numérique statistique sur le modèle de microstructure des polycristaux biphasés ($f_{v\beta} \approx 30\%$, paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)*

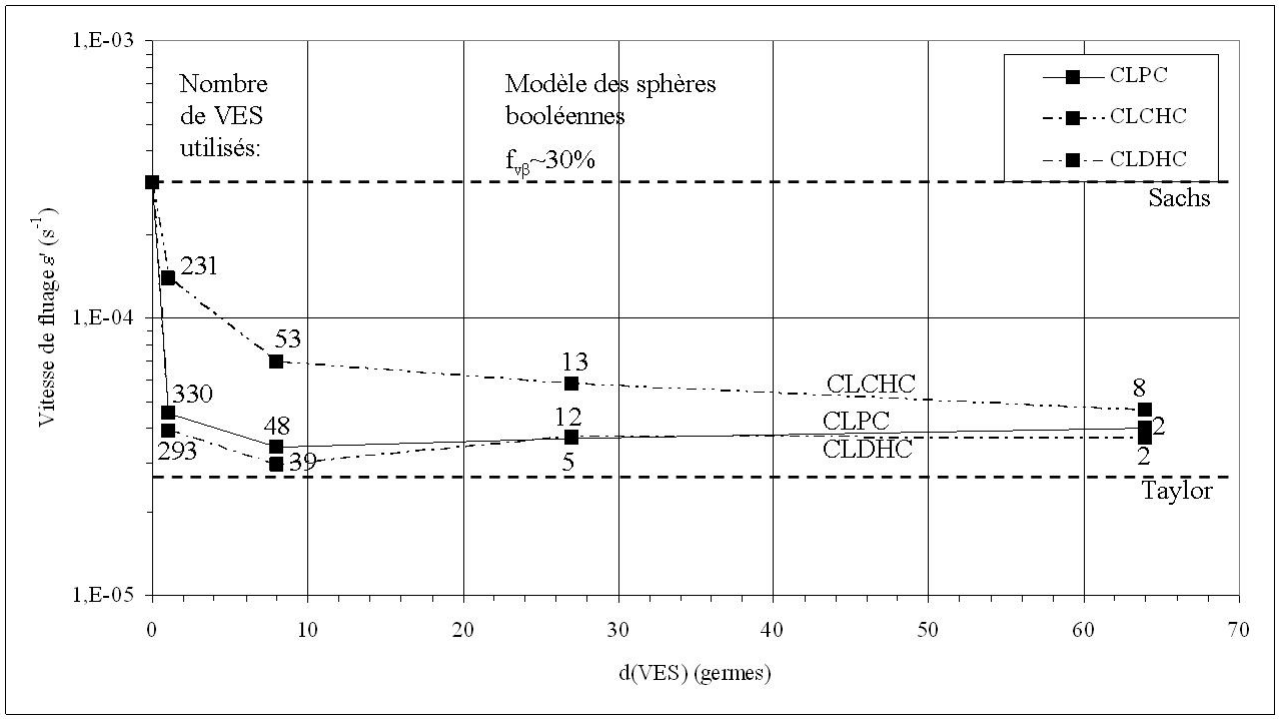


Figure C.22 – *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la taille des VES évaluées par approche numérique statistique sur le modèle de microstructure des sphères booléennes ($f_{v\beta} \approx 30\%$, paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)*

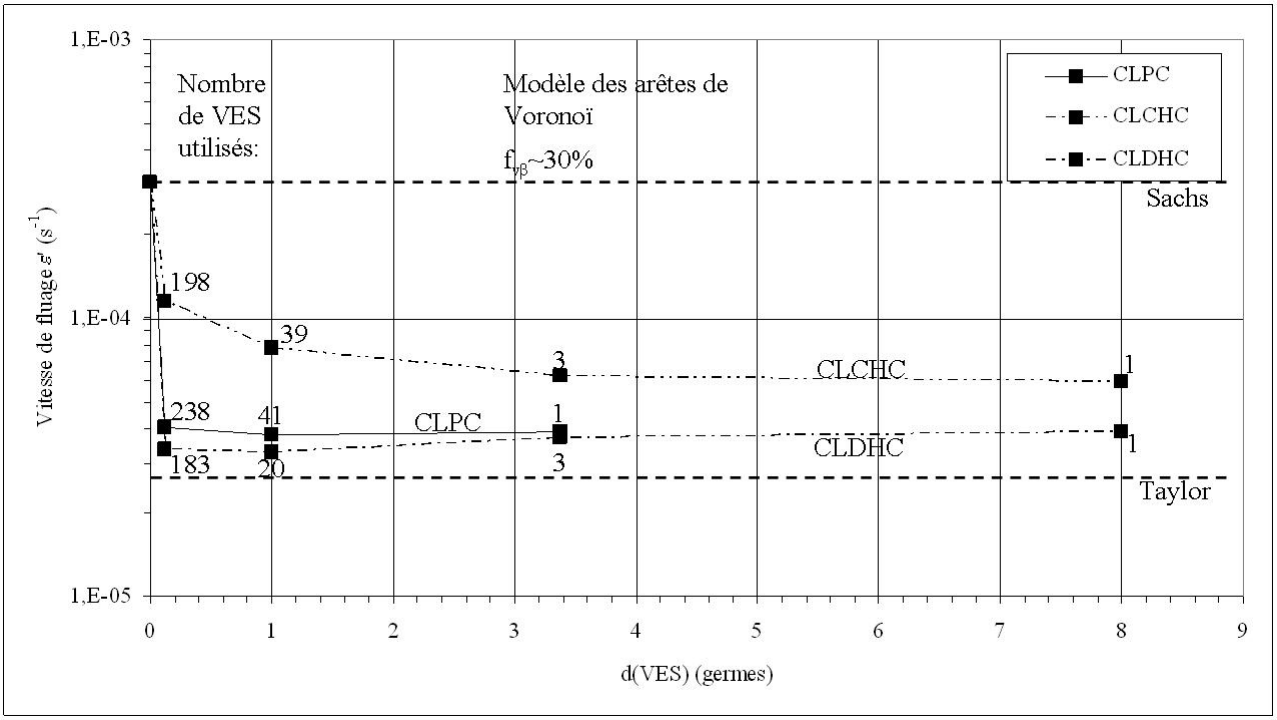


Figure C.23 – *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la taille des VES évaluées par approche numérique statistique sur le modèle de microstructure des arêtes de Voronoï ($f_{v\beta} \approx 30\%$, paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)*

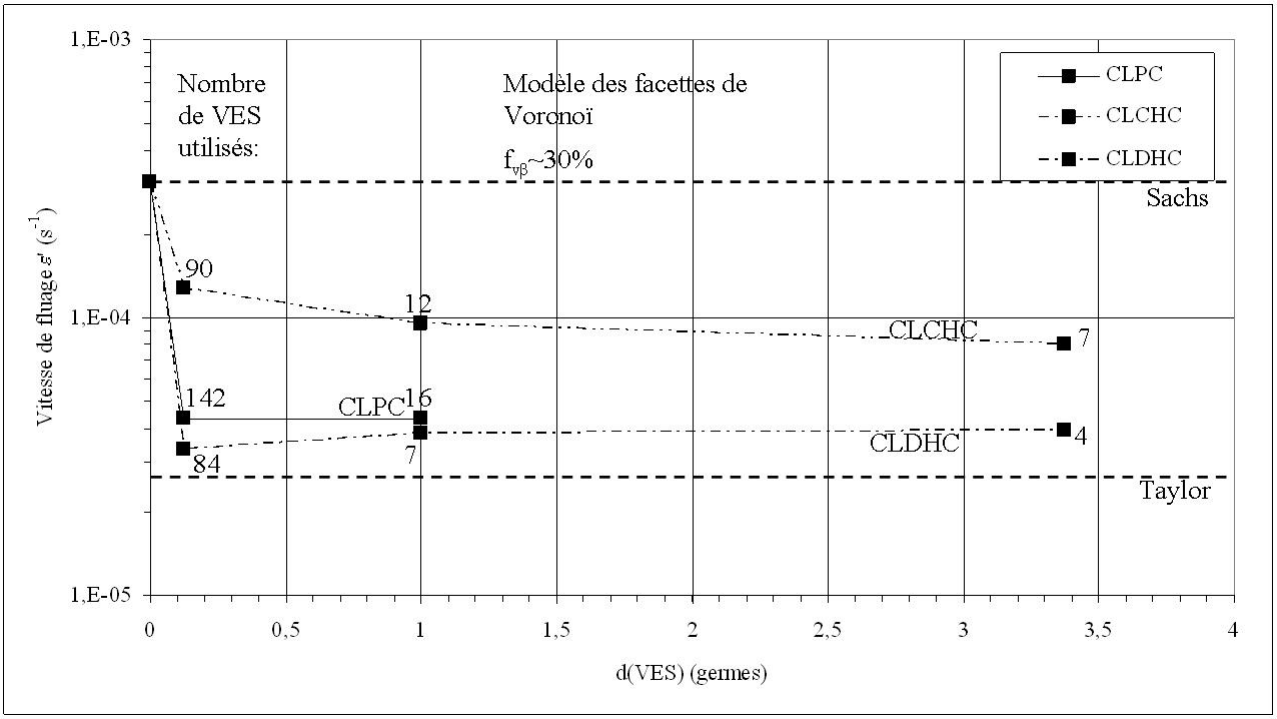


Figure C.24 – *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la taille des VES évaluées par approche numérique statistique sur le modèle de microstructure des facettes de Voronoï ($f_{v\beta} \approx 30\%$, paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)*

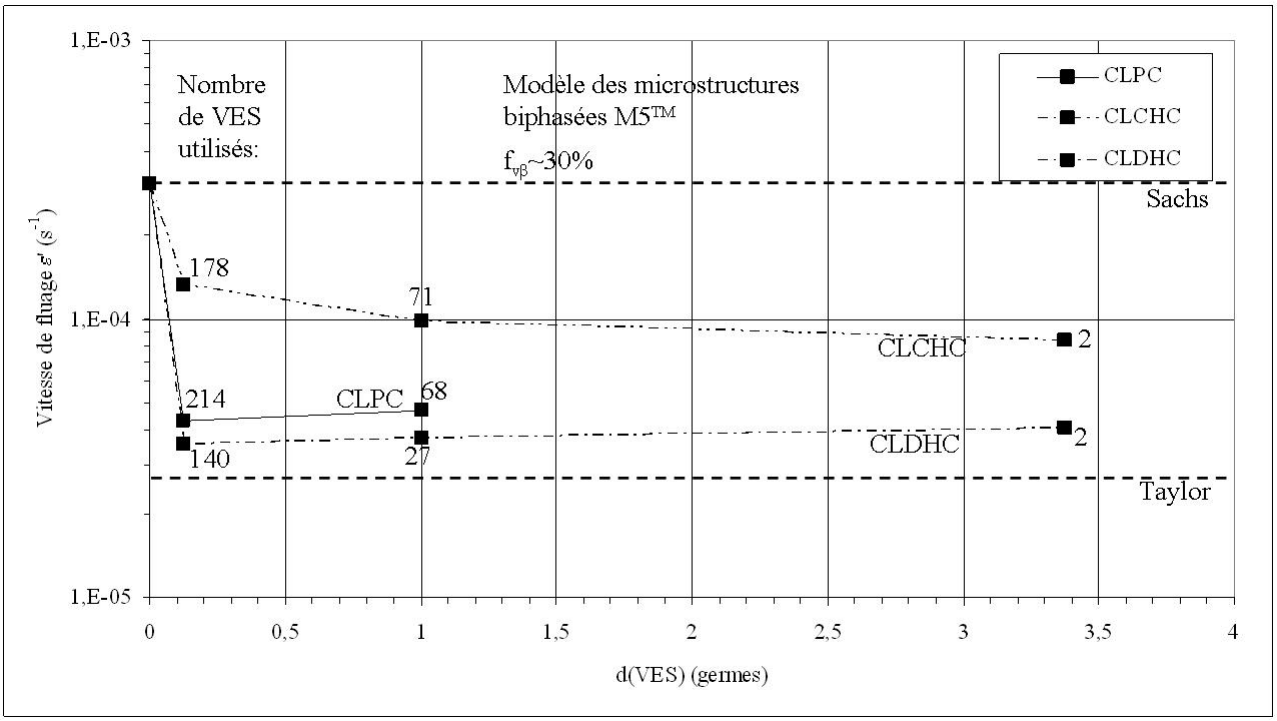


Figure C.25 – *Evolution des vitesses de fluage (100MPa) en fonction de la taille des VES évaluées par approche numérique statistique sur le modèle de microstructure biphasées du M5® ($f_{v\beta} \approx 30\%$, paramètres matériau détaillés dans le tableau 4.1)*

Bibliographie

Abramyan, E.A., Ivanov, L.I., Kudryavtsev, N.S., et Yanushkevich, V.A. (1967). Effect of vacuum on the creep of β-zirconium at elevated temperatures. *Materials Science*, 2 :302–304.

Abriata, J.P. et Bolcich, J.C. (1982). The Zr (zirconium) system. *Bulletin of Alloy Phase Diagrams*, 3 :28.

Abriata, J.P., Garcès, J., et Versaci, R. (1986). The O-Zr (Oxygen-Zirconium) system. *Bulletin of Alloy Phase Diagrams*, 7 :116–124.

Adam, E., Hallau, B., et Wetzel, L. (1985). Untersuchungen zum sekundären Kriechverhalten von Brennelementhüllrohren aus ZrNb1 unter Extrembelastungen. *Kernenergie*, 28 :233–236.

Adam, E., Stephan, M., et Wetzel, L. (1987). Dehnverhalten von ZrNb1 - Brennelementhüllrohren eines WWER-Reaktors beim Kühlmittelverluststörfall. *Kernenergie*, 30 :382–384.

Adam, E., Stephan, M., et Wetzel, L. (1988). Kriechverhalten von ZrNb1 - Brennelementhüllrohren in Argon und Wasserdampf. *Kernenergie*, 31 :461–464.

Adam, E., Stephan, M., et Wetzel, L. (1989). Standzeit von ZrNb1-Brennelementhüllrohren unter Störfallbedingungen. *Kerntechnik*, 54 :169–172.

Akhtar, A. (1976a). The allotropic transformation bcc$\rightleftharpoons$hcp in zirconium. *Metallurgical Transactions A*, 7 :1735–1745.

Akhtar, A. (1976b). Rapid growth of α-Zr single crystals using a massive transformation. *Journal of Nuclear Materials*, 60 :344–346.

Akhtar, A. et Teghtsoonian, A. (1971). Plastic deformation of zirconium single crystals. *Acta Metallurgica*, 19 :655–663.

Alymov, M.I., Pirogov, E.N., et Artyukhina, L.L. (1987a). Steady-state creep of the N-1 alloy in the 650-870K range. *Soviet Atomic Energy*, 62 :441–444.

Alymov, M.I., Pirogov, E.N., Artyukhina, L.L., et Komarov, O.V. (1987b). N-1 alloy creep at 1170-1370K. *Soviet Atomic Energy*, 65 :791–792.

Ardell, A.J. (1964). *Creep and atomic mobility in polycrystalline zirconium*. Thèse de doctorat, Université de Stanford, Californie, USA.

Ardell, A.J. et Sherby, O.D. (1967). The steady-state creep of polycrystalline alpha zirconium at elevated temperatures. *Transactions of the Metallurgical Society of the American Institute of Mining, Metallurgical, and Petroleum Engineers*, 239 :1547–1556.

Arias, D. et Roberti, L. (1983). The solubility of tin in α and β zirconium below 1000°C. *Journal of Nuclear Materials*, 118 :143–149.

Armand, M., Charquet, D., Syre, R., et Tricot, R. (1977). Le zirconium et ses applications à l'industrie nucléaire. *Revue de Métallurgie*, 74 :471–482.

Arns, C.H., Kanckstedt, M.A., et Mecke, K.R. (2002). Characterising the morphology of disordered materials. *Lecture Notes in Physics, K.R. Mecke and D. Stoyan Editions, Springer*, 600 :37–74.

Arzt, E., Ashby, M.F., et Verrall, R.A. (1983). Interface controlled diffusional creep. *Acta Metallurgica*, 31 :1977–1989.

Ashby, M.F. (1972). A first report on deformation-mechanism maps. *Acta Metallurgica*, 20 :887–897.

Ashby, M.F. et Verrall, R.A. (1973). Diffusion-accommodated flow and superplasticity. *Acta Metallurgica*, 21 :149–163.

Bacher, P. (2005). Réacteurs nucléaires. Généralités. *Techniques de l'ingénieur*, bn3020.

Bacroix, B., Béchade, J.L., Zhu, K., Chaubet, D., Barcelo, F., et Crépin, J. (2006). Elaboration et croissance de multicristaux à gros grains en Zr. *Matériaux 2006, Dijon, 13-17 Novembre.*

Barbe, F., Decker, L., Jeulin, D., et Cailletaud, G. (2001a). Intergranular and intragranular behavior of polycrystalline aggregates. Part I : F.E. model. *International Journal of Plasticity*, 17 :513–536.

Barbe, F., Forest, S., et Cailletaud, G. (2001b). Intergranular and intragranular behavior of polycrystalline aggregates. Part II : Results. *International Journal of Plasticity*, 17 :537–563.

Barberis, P. (2009). Propriétés du zirconium et du hafnium. *Techniques de l'ingénieur*, m4785.

Barbu, A. et Massoud, J.P. (2008). Comportement des matériaux dans le cœur des REP. *Techniques de l'ingénieur*, bn3760.

Béchade, J.L. (1993). *Texture et écrouissage de tôles en Zircaloy-4 : évolutions en fonction des paramètres de laminage à froid, influence sur le comportement élastique, la dilatation thermique et l'anisotropie plastique.* Thèse de doctorat, Université de Nantes, Ecole Centrale de Nantes.

Béchade, J.L. et Pelé, J. (1994). Caractérisation en texture d'échantillons en Zr écrouis en traction au voisinage de l'écrouissage critique puis recristallisés. Note technique SRMA 1994-1466, CEA.

Bein, S. et Béchet, J. (1996). Phase transformation kinetics and mechanisms in titanium alloys Ti-6.2.4.6, β-CEZ and Ti-10.2.3. *Journal de Physique IV, colloque C1, supplément au Journal de Physique III*, 6 :99–108.

Benites, G.M. et Fernández Guillermet, A. (2000). Structural properties of metastable phases in Zr-Nb alloys - II. Systematics of the atomic volumes and interatomic distances. *Journal of Alloys and Compounds*, 302 :192–198.

Benites, G.M., Fernández Guillermet, A., Cuello, G.J., et Campo, J. (2000). Structural properties of metastable phases in Zr-Nb alloys - I. Neutron diffraction study and analysis of lattice parameters. *Journal of Alloys and Compounds*, 299 :183–188.

Bernstein, I.M. (1967). Diffusion creep in zirconium and certain zirconium alloys. *Transactions of the Metallurgical Society of the American Institute of Mining, Metallurgical, and Petroleum Engineers*, 239 :1518–1522.

Berveiller, M. et Zaoui, A. (1979). An extension of the self-consistent scheme to plastically-flowing polycrystals. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 26 :325–344.

Besson, J., Cailletaud, G., Chaboche, J.L., et Forest, S. (2001). Mécanique non-linéaire des matériaux. *Hermès*.

Bethune, I.T. et Williams, C.D. (1969). The $\alpha/(\alpha+\beta)$ boundary in the Zr-Nb system. *Journal of Nuclear Materials*, 29 :129–132.

Biausser, H., Choquet, P., et Delaneau, P. (2000). Métallurgie des tôles laminées sur train continus. *Techniques de l'ingénieur*, m3060.

Boiron, P. (2008). Réacteurs à eau ordinaire pressurisée. *Techniques de l'ingénieur*, bn3100.

Bokros, J.C. (1960). Critical recrystallisation of zirconium. *Transactions of the Metallurgical Society of the American Institute of Mining, Metallurgical, and Petroleum Engineers*, 218 :351–353.

Bonnier, G. et Devin, E. (1997). Couples thermoélectriques - Caractéristiques et mesure de température. *Techniques de l'ingénieur*, r2590.

Boček, M., Hofman, P., et Petersen, C. (1977). Superplasticity of Zircaloy-4. *Zirconium in the Nuclear Industry : Fourth International Symposium, ASTM STP 633, A.L. Lowe Jr. and G.W. Parry Editors, American Society for Testing and Materials*, pages 66–81.

Bozzolo, N., Dewobroto, N., Grosdidier, T., et Wagner, F. (2005). Texture evolution during grain growth in recrystallized commercially pure titanium. *Materials Science and Engineering A*, 397 :346–355.

Brachet, J.C., Gavard, L., Boussidan, C., Lepoittevin, C., Denis, S., et Servant, C. (1998). Modelling of phase transformations occuring in low activation martensitic steels. *Journal of Nuclear Materials*, 258-263 :1307–1311.

Brachet, J.C., Portier, L., Forgeron, T., Hivroz, J., Hamon, D., Guilbert, T., Bredel, T., Yvon, P., Mardon, J.P., et Jacques, P. (2002). Influence of hydrogen content on the α-β phase transformation temperatures and on the thermal-mechanical behavior of Zy-4, M4 (ZrSnFeV), and M5^{TM} (ZrNbO) alloys during the first phase of LOCA transient. *Zirconium in the Nuclear Industry : Thirteenth International Symposium, ASTM STP 1423, G.D. Moan and P. Rudling Editors, American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA*, pages 673–701.

Brenner, R., Béchade, J.L., Castelnau, O., et Bacroix, B. (2002). Thermal creep of Zr-Nb1%-O alloys : experimental analysis and micromechanical modelling. *Journal of Nuclear Materials*, 305 :175–186.

Brenner, R. et Masson, R. (2005). Improved affine estimates for nonlinear viscolelastic composites. *European Journal of Mechanics A/ Solids*, 24 :1002–1015.

Bruneseaux, F., Aeby-Gautier, E., Geandier, G., Da Costa Teixeira, J., Appolaire, B., Weisbecker, P., et Mauro, A. (2008). In situ characterizations of phase transformations kinetics in the Ti17 titanium alloy by electrical resistivity and high temperature synchrotron X-ray diffraction. *Materials Science and Engineering A*, 476 :60–68.

Bunge, H.J. (1997). Texture et anisotropie des matériaux. *Techniques de l'ingénieur*, m605.

Burgers, W.G. (1934). On the process of transition of the cubic-body-centered modification into the hexagonal close-packed modification of zirconium. *Physica*, 1 :561–586.

Burton, B. et Reynolds, G.L. (1995). In defense of diffusionnal creep. *Materials Science and Engineering A*, 191 :135–141.

Burton, B., Reynolds, G.L., et Barnes, J.P. (1978). Tensile creep of beta-phase Zircaloy-2. *Journal of Nuclear Materials*, 73 :70–76.

Calmon, J.C. et Cenac, J. (1994). Laminage à froid des produits plats. *Techniques de l'ingénieur*, m7950.

Canay, M., Danón, C.A., et Arias, D. (2000). Phase transition temperature in the Zr-rich corner of Zr-Nb-Sn-Fe alloys. *Journal of Nuclear Materials*, 280 :365–371.

Cannon, W.R. et Langdon, T.G. (1983). Review Creep of ceramics - Part 1 Mechanical characteristics. *Journal of Materials Science*, 18 :1–11.

Caré, S. et Bretheau, T. (1993). Plastic flow and damage of α-zirconium polycrystals. *Journal de Physique IV, colloque C7, supplément au Journal de Physique III*, 3 :533–536.

Caré, S. et Bretheau, T. (1995). Mécanismes de rupture du zirconium alpha polycristalin déformé en traction à la température ambiante. *Le zirconium, journées d'étude propriétés-microstructure, CEA-CEREM, Firtech Mécanique et Matériaux, SF2M, éditeurs G. Cailletaud et P. Lemoine, éditions de Physique*, pages 3–12.

Castelnau, O., Brenner, R., et Lebensohn, R.A. (2006). The effect of strain heterogeneity on the work hardening of polycrystals predicted by mean-field approaches. *Acta Materialia*, 54 :2745–2756.

CEA-SEMT (2009). Notice de Cast3M en ligne. http ://www-cast3m.cea.fr/cast3m/.

Chabretou, V., Hoffmann, P.B., Trapp-Pritsching, S., Garner, G., Barberis, P., Rebeyrolle, V., et Vermoyal, J.J. (2011). Ultra low tin quaternary alloys PWR performance impact of tin content on corrosion resistance, irraditaion growth, and mechanical properties. *Journal of ASTM International*, 8 :5.

Chakravartty, J.K., Kapoor, R., Banerjee, S., et Prasad, Y.V.R.K. (2007). Characterization of hot deformation behavior of Zr-1Nb-1Sn alloy. *Journal of Nuclear Materials*, 362 :75–86.

Charit, I. et Murty, K.L. (2008). Creep behavior of niobium-modified zirconium alloys. *Journal of Nuclear Materials*, 374 :354–363.

Charquet, D. (1985a). Propriétés du zirconium et du hafnium. *Techniques de l'ingénieur*, cor360.

Charquet, D. (1985b). Traitements thermiques du zirconium et du hafnium. *Techniques de l'ingénieur*, m1345.

Charquet, D. (2000). Microstructure and properties of zirconium alloys in the absence of irradiation. *Zirconium in the Nuclear Industry : Twelfth International Symposium, ASTM STP 1354, G.P. Sabol and G.D. Moan Editors, American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA*, pages 3–14.

Charquet, D., Hahn, R., Ortlieb, E., Gros, J.P., et Wadier, J.F. (1988). Solubility limits and formation of intermetallic precipitates in ZrSnFeCr alloys. *Zirconium in the Nuclear Industry : Eighth International Symposium, ASTM STP 1023, L.F.P. Van Swam and C.M. Eucken Editors, American Society for Testing and Materials, Philadelphia*, pages 405–422.

Charquet, D., Senevat, J., et Mardon, J.P. (1998). Influence of sulfur content on the thermal creep of zirconium alloy tubes at 400°C. *Journal of Nuclear Materials*, 255 :78–82.

Chaubet, D., Bacroix, B., et Béchade, J.L. (2002). An EBSD study of static recrystallisation of cold-rolled Zircaloy-4 sheets. *Materials Science Forum*, 408-412 :797–802.

Chaubet, D., Fondère, J.P., et Bacroix, B. (2001). Strain-anneal growth of Zr 701 large crystals. *Materials Science and Engineering A*, 300 :245–253.

Chirkin, A.V. et El-Yazgi, A. (1990). On the critical deformation of Zr-Nb alloys with Nb contents up to 2.5%. *Journal of Nuclear Materials*, 172 :297–303.

Chokshi, A.H. (2001). On the emergence of new surface grains during superplastic deformation. *Scripta Materialia*, 44 :2611–2615.

Chokshi, A.H. et Langdon, T.G. (1991). Characteristics of creep deformation in ceramics. *Materials Science and Technology*, 7 :577–584.

Chun, Y.B., Hwang, S.K., Kim, M.H., Kwun, S.I., et Kim, Y.S. (1999a). Abnormal grain growth of Zr-1wt.%Nb alloy and the effect of Mo addition. *Scripta Materialia*, 40 :1165–1170.

Chun, Y.B., Hwang, S.K., Kim, M.H., Kwun, S.I., et Kim, Y.S. (1999b). Effect of Mo on recrystallization characteristics of Zr-Nb-(Sn)-Mo experimental alloys. *Journal of Nuclear Materials*, 265 :28–37.

Chung, H.M., Garde, A.M., et Kassner, T.F. (1975). Mechanical properties of Zircaloy containing oxygen. Argonne National Report ANL-75-58, Argonne National Laboratory, Argonne, IL.

Chung, H.M., Garde, A.M., et Kassner, T.F. (1977). Deformation and rupture behavior of Zircaloy cladding under Loss-Of-Coolant Accident conditions. *Zirconium in the Nuclear Industry : Fourth International Symposium, ASTM STP 633,A.L. Lowe Jr. and G.W. Parry Editors, American Society for Testing and Materials*, pages 82–97.

Chung, H.M. et Kassner, T.F. (1979). Pseudobinary Zircaloy-oxygen phase diagram. *Journal of Nuclear Materials*, 84 :327–339.

Clay, B.D. et Redding, G.B. (1976). Creep rupture properties of alpha-phase Zircaloy cladding relevant to the loss-of-coolant accident. *Journal of the British Nuclear Energy Society*, 15 :253–256.

Clay, B.D. et Stride, R. (1978). The creep rupture properties of beta-phase Zircaloy-2 cladding in the region 1000-1050°C. *Nuclear Engineering and Design*, 48 :497–504.

Clendening, W.R. (1975). Primary and secondary creep properties for zircaloy cladding at elevated temperatures of interest in accident analyses. *Third International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology, London*, C 2/6 :1–9.

Coble, R.L. (1963). A model for boundary diffusion controlled creep in polycrystalline materials. *Journal of Applied Physics*, 34 :1679–1682.

Coleman, C.E. et Rumball, W.M. (1971). Inducing a critical strain for grain growth in a duplex zirconium alloy. *Journal of Nuclear Materials*, 39 :345–347.

Corchia, M. et Righini, F. (1981). Kinetic aspects of the phase transformations in Zircaloy-2. *Journal of Nuclear Materials*, 97 :137–148.

Coriette, D. (1997). Etude par calorimétrie, analyse d'images, dilatométrie et résistivité de la transformation de phases $\alpha \leftrightarrow \beta$ d'alliages de base Zr : Zr-1%Nb, Zr-0,Sn-(Fe.V). Note technique SRMA 1997-1578, CEA.

Couterne, J.C. et Cizeron, G. (1966). Détermination des coefficients principaux d'expansion thermique du Zr α. *Journal of Nuclear Materials*, 20 :75–82.

Couterne, J.C. et Cizeron, G. (1969). Comportement dilatométrique de monocristaux de zirconium α et application à la mesure des coefficients moyens d'expansion thermique suivant les axes principaux. *Journal of Nuclear Materials*, 32 :310–321.

Cui, M.X. et Oikawa, H. (1985). Deformation behavior of polycristalline alpha-titanium at high temperature. *Journal of the Japan Institute of Metals*, 49 :195–202.

Da Costa Teixeira, J., Appolaire, B., Aeby-Gautier, E., Denis, S., Cailletaud, G., et Späth, N. (2007). Transformation kinetics and microstructures of Ti17 titanium alloy during continuous cooling. *Materials Science and Engineering A*, 448 :135–145.

Darchis, L. et Lemoine, P. (1984). EDGAR froid - Gaines Framatome : Modélisation de la déformation des gaines en Zircaloy dans des conditions d'un accident de perte de réfrigérant primaire, critère de rupture. Note technique SRMA 1984-1346, CEA.

Decker, L. et Jeulin, D. (2000). Simulation 3D de matériaux polycristallins. *La Revue de Métallurgie-CIT/Science et Génie des Matériaux*, pages 271–275.

Decours, J. (1989). Le zirconium, vertus et défauts. *Clefs CEA*, 14 :17–27.

Devin, E. (1999). Couples thermoélectriques - Données numériques d'emploi. *Techniques de l'ingénieur*, r2594.

Diard, O., Leclercq, S., Rousselier, G., et Cailletaud, G. (2005). Evaluation of finite element based analysis of 3D multicrystalline aggregates plasticity. Application to crystal plasticity model identification and the study of stress and strain fields near grain boundary. *International Journal of Plasticity*, 21 :691–722.

Dobromyslov, A.V. et Kazantseva, N.V. (1997). Formation of metastable ω-phase in Zr-Fe, Zr-Co, Zr-Ni, and Zr-Cu alloys. *Scripta Materialia*, 37 :615–620.

Donaldson, A.T. et Ecob, R.C. (1985). A transition stress in the creep of an alpha phase zirconium alloy et high temperature. *Scripta Metallurgica*, 19 :1313–1318.

Duco, J., Negro, R. D., Pelcé, J., Réocreux, M., Chagrot, M., et Janvier, J.C. (1982). Comportement du combustible en situation accidentelle - Le programme Phébus. *Revue Générale Nucléaire*, 4 :338–348.

Dupin, N., Ansara, I., Servant, C., Toffolon, C., Lemaignan, C., et Brachet, J.C. (1999). A thermodynamic database for zirconium alloys. *Journal of Nuclear Materials*, 275 :287–295.

Evans, H.E. et Knowles, G. (1978). On the creep characteristics of β-Zircaloy. *Journal of Nuclear Materials*, 78 :43–48.

Fan, Z. (1995). A new approach to the electrical resistivity of two-phase composites. *Acta Metallurgica et Materialia*, 43 :43–49.

Fiala, J., Kloc, L., et Čadek, J. (1991a). Creep in metals at intermediate temperatures and low stresses : a review. *Materials Science and Engineering*, A137 :163–172.

Fiala, J., Kloc, L., et Čadek, J. (1991b). On the low stress creep in Cu-14Al alloy and α-zirconium at intermediate temperatures. *Materials Science and Engineering*, A136 :9–15.

Fiala, J. et Čadek, J. (1985). Creep in zirconium at low stresses and temperatures from 748 to 973K. *Materials Science and Engineering*, 75 :117–126.

Forgeron, T., Brachet, J.C., Barcelo, F., Castaing, A., Hivroz, J., Mardon, J.P., et Bernaudat, C. (2000). Experiment and modeling of advanced fuel rod cladding behavior under LOCA conditions : $\alpha - \beta$ phase transformation kinetics and EDGAR methodology. *Zirconium in the Nuclear Industry : Twelfth International Symposium, ASTM STP 1354 G.P. Sabol and G.D. Moan Editors, American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA*, pages 256–278.

Fotedar, R., Kishore, R., Kashyap, B.P., et Banerjee, S. (1997). Superplastic forming of Zircaloy-2 pressure tube material. *Materials Science Forum*, 243-245 :663–668.

Francillette, H., Bacroix, B., Gaspérini, M., et Béchade, J.L. (1998). Grain orientation effects in Zr702α polycrystalline samples deformed in channel die compression at room temperature. *Acta Materialia*, 46 :4131–4142.

Franklin, D.G., Lucas, G.E., et Bement, A.L. (1983). Creep of zirconium in nuclear reactors. *American Society for Testing and Materials STP 815*.

Fréchinet, S. (2001). *Transformations et comportements du Zy-4 en conditions anisothermes*. Thèse de doctorat, Ecole des Mines de Paris.

Frost, H.J. et Ashby, M.F. (1982). Deformation-mechanism maps - The plasticity and creep of metals and ceramics. *Pergamon press*.

Garde, A.M. (1979). Strain aging in α-zirconium and α-Zircaloy at 1000K. *Journal of Nuclear Materials*, 80 :195–206.

Garde, A.M., Chung, H.M., et Kassner, T.F. (1978). Micrograin superplasticity in Zircaloy at 850°C. *Acta Metallurgica*, 26 :153–166.

Garofalo, F. (1967). Fundamentals of creep and creep-rupture in metals. *MacMillan Editions*.

Garofalo, F., Domis, W.F., et von Gemmingen, F. (1964). Effect of grain size on the creep behavior of an austenitic iron-base alloy. *Transactions of the Metallurgical Society of the American Institute of Mining, Metallurgical, and Petroleum Engineers*, 230 :1460–1467.

Gaunt, P. et Christian, J.W. (1959). The cristallography of the β-α transformation in zirconium and in two titanium-molybdenum alloys. *Acta Metallurgica*, 7 :534–543.

Gey, N., Gautier, E., Humbert, M., Cerqueira, A., Béchade, J.L., et Archambault, P. (2002). Study of the α/β phase transformation of Zy-4 in presence of applied stresses at heating : analysis of the inherited microstructures and textures. *Journal of Nuclear Materials*, 302 :175–184.

Gilbert, E.R., Duran, S.A., et Bement, A.L. (1969). Creep of zirconium from 50 to 850°C. *Applications-Related Phenomena for Zirconium and its Alloys, ASTM STP 458, American Society for Testing and Materials*, pages 210–225.

Gilbert, R.W., Griffiths, M., et Carpenter, G.J.C. (1985). Amorphous intermetallics in neutron irradiated Zircaloys after high fluences. *Journal of Nuclear Materials*, 135 :265–268.

Grandjean, C. (2005). A state-of-the-art review of past programs devoted to fuel behavior under LOCA conditions. Part one. Clad swelling and rupture assembly flow blockage. Technical Report SEMCA 2005-313, IRSN.

Grandjean, C. (2006). A state-of-the-art review of past programs devoted to fuel behavior under LOCA conditions. Part two. Impact of clad swelling upon assembly cooling. Technical Report SEMCA 2006-183, IRSN.

Grandjean, C. et Hache, G. (2008). A state-of-the-art review of past programs devoted to fuel behaviour under Loss-Of-Coolant conditions. Part 3. Cladding oxidation. Resistance to quench and post-quench loads. Technical Report SEMCA 2008-093, IRSN.

Greenwood, G.W. (2005). Deformation mechanism maps and microstructural influences. *Materials Science and Engineering A*, 410-411 :12–15.

Guering, P.H. (1985). *Etude structurale des microémulsions par effet Kerr et résonance magnétique nucléaire*. Thèse de doctorat, Université de Paris-Sud.

Gueussier, A. (1956). Les essais de fluage. *Techniques de l'ingénieur*, m140.

Guilbert, T., Pelé, J., et Urvoy, S. (2005). Synthèse des propriétés thermophysiques de l'alliage M5^{TM} (coefficient de dilatation thermique, capacité calorifique et conductivité thermique). Note technique SRMA 2005-2721, CEA.

Hamata, N. (1992). *Modélisation du couplage entre l'élasto-viscoplasticité anisotherme et la transformation de phase d'une fonte G.S. ferritique*. Thèse de doctorat, Université Paris VI.

Hardy, D.G. (1973). High temperature expansion and rupture behavior of Zircaloy tubing. *American Nuclear Society, Topical Meeting on Water Reactor Safety*, page 254.

Harper, J. et Dorn, J.E. (1957). Viscous creep of aluminum near its melting temperature. Theory of steady-state. *Acta Metallurgica*, 5 :654–665.

Hayes, T.A. et Kassner, M.E. (2002). Steady-state creep of α-zirconium at temperatures up to 850°C. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 33A :337–343.

Hayes, T.A. et Kassner, M.E. (2006). Creep of zirconium and zirconium alloys. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 37A :2389–2396.

Hazanov, S. et Huet, C. (1994). Order relationships for boundary conditions effect in heterogeneous bodies smaller than the representative volume. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 42 :1995–2011.

Herer, C. et Gallori, D. (2000). Thermohydraulique des réacteurs à eau sous pression. *Techniques de l'ingénieur*, bn3050.

Herring, C. (1950). Diffusional viscosity of a polycrystalline solid. *Journal of Applied Physics*, 21 :437–445.

Higgins, G.T. (1966). Secondary recrystallization in alpha zirconium. *Transactions of the Metallurgical Society of the American Institute of Mining, Metallurgical, and Petroleum Engineers*, 236 :1758–1760.

Higgins, G.T. et Soo, P. (1967). The development of large zirconium crystals by the alpha-beta thermal cycling technique. *Journal of Nuclear Materials*, 22 :285–291.

Hill, P.S., Ridley, N., et Todd, R.I. (2001). Investigation of superplastic behaviour and solid state bonding of Zircaloy-4. *Materials Science Forum*, 357-359 :99–104.

Holt, R.A. (1970). The beta to alpha phase transformation in Zircaloy-4. *Journal of Nuclear Materials*, 35 :322–334.

Holt, R.A. (1973). Comments on the beta to alpha phase transformation in Zircaloy-4. *Journal of Nuclear Materials*, 47 :262–264.

Holt, R.A. (1980). IAEA. *Specialists Meeting, IWGFPT/7, Blackpool, UK*.

Hood, G.M. et Schultz, R.J. (1989). Diffusion of 3D transition elements in α-Zr and zirconium alloys. *Zirconium in the Nuclear Industry : Eighth International Symposium, ASTM STP 1023, L.F.P. Van Swam and C.M. Eucken Editors, American Society for Testing and Materials, Philadelphia*, pages 435–450.

Huet, C. (1990). Application of variational concepts to size effects in elastic hetrogenous bodies. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 38 :813–841.

Huet, C. (1999). Coupled size and boundary-condition effects in viscoelastic heterogeneous and composite bodies. *Mechanic of Materials*, 31 :787–829.

Huet, C. (2001a). Comparison and minimum theorems in the time domain for viscoelasticity and other convolutive initial-boundary value problems with applications to random inhomogeneous materials. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 49 :1569–1602.

Huet, C. (2001b). Extended Clapeyron formulae for viscoelasticity problems in the time domain and application to the boundary-condition effect in random composite bodies. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 49 :675–706.

Hunt, C.E.L. et Foote, D.E. (1977). High temperature strain behavior of Zircaloy-4 and Zr-2.5Nb fuel sheaths. *Zirconium in the Nuclear Industry : Fourth International Symposium, ASTM STP 633, A.L. Lowe Jr. and G.W. Parry Editors, American Society for Testing and Materials*, pages 50–65.

Hunt, C.E.L. et Niessen, P. (1970). The effect of oxygen on the equilibrium $\beta/\alpha+\beta$ transformation temperature of zirconium-niobium alloys. *Journal of Nuclear Materials*, 35 :134–136.

Hunt, C.E.L. et Niessen, P. (1971). The continous cooling transformation behaviour of zirconium-niobium-oxygen alloys. *Journal of Nuclear Materials*, 38 :17–25.

Jeulin, D. et Moreaud, M. (2005). Multi-scale simulation of random spheres aggregates - application to nanocomposites. *Nineth European congress on Stereology and Image Analysis, Zakopane, Poland, 10-13 May*, 1 :341–348.

Jiang, L., Pérez-Prado, M.T., Gruber, P.A., Arzt, E., Ruano, O.A., et Kassner, M.E. (2008). Texture, microstructure and mechanical properties of equiaxed ultrafine-grained Zr fabricated by accumulative roll bonding. *Acta Materialia*, 56 :1228–1242.

Jones, R.B. (1966). Diffusion-creep in zirconium alloys. *Journal of Nuclear Materials*, 19 :204–207.

Kaddour, D. (2004). *Fluage isotherme et anisotherme dans les domaines monophasés (α et β) et biphasé ($\alpha+\beta$) d'un alliage $Zr-1\%Nb-O$.* Thèse de doctorat, Ecole des Mines de Paris.

Kaddour, D., Fréchinet, S., Gourgues, A.F., Brachet, J.C., Portier, L., et Pineau, A. (2004). Experimental determination of creep properties of zirconium alloys together with phase transformation. *Scripta Materialia*, 51 :515–519.

Kanit, T. (2003). *Notion de volume élémentaire représentatif pour les matériaux hétérogènes : approche statistique et numérique.* Thèse de doctorat, Ecole des Mines de Paris.

Kanit, T., Forest, S., Galliet, I., Mounoury, V., et Jeulin, D. (2003). Determination of the size of the representative volume element for random composites : statistical and numerical approach. *International Journal of Solids and Structures*, 40 :3647–3679.

Kapoor, R., Chakravartty, J.K., Gupta, C.C., et Wadekar, S.L. (2005). Characterization of superplastic behaviour in the ($\alpha+\beta$) phase field of Zr-2.5 wt.%Nb alloy. *Materials Science and Engineering A*, 392 :191–202.

Kassner, M.E., Kumar, P., et Blum, W. (2007). Harper-Dorn creep. *International Journal of Plasticity*, 23 :980–1000.

Kearns, J.J. (2001). On the relationship among 'f' texture factors for the principal planes of zirconium, hafnium and titanium alloys. *Journal of Nuclear Materials*, 299 :171–174.

Kim, H.G., Kim, Y.H., Choi, B.K., et Jeong, Y.H. (2006). Effect of alloying elements (Cu, Fe, and Nb) on the creep properties of zr alloys. *Journal of Nuclear Materials*, 359 :268–273.

Kim, S.J., Hong, H.S., et Oh, Y.M. (2002). Study of thermoelectric power evolution of Zr-based alloys with Nb additions. *Journal of Nuclear Materials*, 306 :194–201.

Kutty, T.R.G., Jarvis, T., et Ganguly, C. (1997). Hot hardness and indentation creep studies on Zr-1Nb-1Sn-0.1Fe alloy. *Journal of Nuclear Materials*, 246 :189–195.

Langdon, T.G. (1994). A unified approach to grain boundary sliding in creep and superplasticity. *Acta Metallurgica et Materialia*, 42 :2437–2443.

Langdon, T.G. (2000). Identifying creep mechanisms at low stress. *Materials Science and Engineering A*, 283 :266–273.

Langdon, T.G. (2002). Creep at low stress : an evaluation of diffusion creep and Harper-Dorn creep as viable creep mechanisms. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 33A :249–259.

Langeron, J.P. et Lehr, P. (1959). Etude de la transformation $\alpha \leftrightarrow \beta$ du zirconium. *Mémoires Scientifiques de la revue de Métallurgie*, LVI, 3 :307.

Lee, B.S. et Kim, M.H. (2006). Annealing behavior of Zr702 fabricated by ECAP. *Materials Science and Engineering A*, 416 :150–154.

Lee, B.S., Kim, M.H., Hwang, S.K., Kwun, S.I., et Chae, S.W. (2007). Grain refinement of commercially pure zirconium by ECAP and subsequent intermediate heat treatment. *Materials Science and Engineering A*, 449-451 :1087–1089.

Lee, D. (1970). Recrystallisation and mechanical behavior of Zircaloy-2 tubing. *Journal of Nuclear Materials*, 37 :159–170.

Lee, D. et Backofen, W.A. (1967). Superplasticity in some titanium and zirconium alloy. *Transactions of the Metallurgical Society of the American Institute of Mining, Metallurgical, and Petroleum Engineers*, 239 :1034–1040.

Lee, S.Y., Kim, K.T., et Hong, S.I. (2009). Circumferential creep properties of stress-relieved Zircaloy-4 and Zr-Nb-Sn-Fe cladding tubes. *Journal of Nuclear Materials*, 392 :63–69.

Lelievre, G. (1998). *Etude du rôle des précipités intermétalliques dans l'absorption d'hydrogène lors de la corrosion aqueuse d'alliages de zirconium.* Thèse de doctorat, Université Grenoble I.

Lemaignan, C. et Motta, A.T. (1994). Zirconium alloys in nuclear applications. *Chapter 7 from Nuclear materials, Part 2, B.R.T. Frost Editions, reprint from volume 10B from Materials Science and Technology, a Comprehensive Treatment, R.W. Cahn, P. Haasen and E.J. Kramer Editors.*

Li, P. (1992). On grain-size dependence of minimum creep rate. *Chinese Journal of Metal Science and Technology*, 8 :119–122.

Loucif, K., Borrelly, R., et Merle, P. (1992). Study by thermoelectric power and resistivity measurements of the precipitation kinetics in zirconium alloys between 450 and 600°C. *Journal of Nuclear Materials*, 189 :34–45.

Luton, M.J. (1971). *High temperature deformation of zirconium and zirconium-tin alloys.* Thèse de doctorat, Université McGill, Montréal, Québec, Canada.

MacEwen, S.R., Fleck, R.G., Ho, E.T.C., et Woo, O.T. (1981). Deformation of α-zirconium in the vicinity of $0.5T_m$. *Metallurgical Transactions A*, 12A :1751–1759.

Madi, K. (2006). *Influence de la morphologie tridimensionnelle des phases sur le comportement mécanique de réfractaires électrofondus.* Thèse de doctorat, Ecole des Mines de Paris.

Madi, K., Forest, S., Cordier, P., et Boussuge, M. (2005). Numerical study of creep in two-phase aggregates with a large rheology contrast : implications for the lower mantle. *Earth and Planetary Science Letters*, 237 :223–238.

Madi, K., Forest, S., Jeulin, D., et Boussuge, M. (2006). Estimating RVE sizes for 2D/3D viscoplastic composite materials. *Matériaux 2006, Dijon, 13-17 Novembre.*

Malakondaiah, G., Prasad, N., et Rama Rao, P. (1982). On the evaluation of activation energy for viscous creep through temperature change tests. *Scripta Metallurgica*, 16 :421–426.

Malakondaiah, G., Prasad, N., Sundararajan, G., et Rama Rao, P. (1988). An analysis of the transient stage in low stress viscous creep. *Acta Metallurgica*, 36 :2167–2181.

Malakondaiah, G. et Rama Rao, P. (1981). Creep of alpha-titanium at low stresses. *Acta Metallurgica*, 29 :1263–1275.

Mardon, J.P. (2008). Matériaux des tubes de gainage pour réacteurs à eau pressurisée. *Techniques de l'ingénieur*, bn3700.

Mardon, J.P., Brachet, J.C., Portier, L., Maillot, V., Forgeron, T., Lesbros, A., et Waeckel, N. (2005). Influence of hydrogen simulating burn-up effects on the metallurgical and thermal-mechanical behavior of M5^{TM} and Zircaloy-4 alloys under LOCA conditions. *13th International Conference on Nuclear Engineering, ICONE 13, Fuji Technology Press.*

Mardon, J.P., Charquet, D., et Senevat, J. (2000). Influence of composition and fabrication process on out-of-pile and in-pile properties of M5 alloy. *Zirconium in the Nuclear Industry : Twelfth International Symposium, ASTM STP 1354, G.P. Sabol and G.D. Moan Editors, American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA*, pages 505–524.

Masson, R., Bornert, M., Suquet, P., et Zaoui, A. (2000). An affine formulation for the prediction of the effective-properties of nonlinear composites and polycrystals. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 48 :1203–1227.

Masson, R. et Zaoui, A. (1999). Self-consistent estimates for the rate-dependent elastoplastic behaviour of polycrystalline materials. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 47 :3543–3568.

Matheron, G. (1975). Random sets and integral geometry. *J. Wiley, New York*.

Matsuura, N., Hood, G.M., et Zou, H. (1996). The correspondence between self-diffusion properties and melting temperatures for α-Zr and α-Ti. *Journal of Nuclear Materials*, 238 :260–263.

McInteer, W.A., Baty, D.L., et Stein, K.O. (1989). The influence of tin content on the thermal creep of Zircaloy-4. *Zirconium in the Nuclear Industry : Eighth International Symposium, ASTM STP 1023, L.F.P. Van Swam and C.M. Eucken Editors, American Society for Testing and Materials, Philadelphia*, pages 621–640.

McNee, K.R., Greenwood, G.W., et Jones, H. (2002). Observation and interpretation of some microstructural features of low stress creep. *Scripta Materialia*, 47 :619–623.

Meng, X. et Northwood, D.O. (1989). Intermetallic precipitates in zirconium-niobium alloys. *Zirconium in the Nuclear Industry : Eighth International Symposium, ASTM STP 1023, L.F.P. Van Swam and C.M. Eucken Editors, American Society for Testing and Materials, Philadelphia*, pages 478–486.

Merle, P., Loucif, K., et Borrelly, R. (1993). Microstructural evolution of α or β quenched zirconium alloys during isothermal agings, between 20°c and 750°C. *Journal de Physique IV, colloque C7, supplément au Journal de Physique III*, 3 :519–522.

Milošević, N.D. et Maglić, K.D. (2006). Thermophysical properties of solid phase zirconium at high temperatures. *International Journal of Thermophysics*, 27 :1140–1159.

Montmitonnet, P. et Aubin, J.L. (2009). Formage des tubes métalliques. Procédés - Analyse détaillée du laminage à pas de pélerin. *Techniques de l'ingénieur*, m3068.

Murty, K.L. (2000a). Deformation mechanisms and transients in creep of Zircaloys : applications to nuclear technology. *Transactions of the Indian Institute of Metals*, 53 :107–120.

Murty, K.L. (2000b). The internal pressurization creep of Zr alloys for spent-fuel dry storage feasability. *Journal of Materials*, 62 :34–38.

Murty, K.L., Dentel, G., et Britt, J. (2005). Effect of temperature on transitions in creep mechanisms in class-A alloys. *Materials Science and Engineering A*, 410-411 :28–31.

Murty, K.L., Ravi, J., et Wiratmo (1995). Transitions in creep mechanisms and creep anisotropy in Zr-1Nb-1Sn-0.2Fe sheet. *Nuclear Engineering and Design*, 156 :359–371.

Nabarro, F.R.N. (1948). Report of a conference on the strength of solids. *The Physical Society, London, UK*, page 77.

Nakai, K., Kinoshita, C., et Kitajima, S. (1981). Effects of oxygen and/or nitrogen on phase transformations above the monotectoid temperature in Nb-Zr alloys. *Journal of Nuclear Materials*, 98 :131–143.

Northwood, D.O. et Dosen, K. (1980). A metallographic study of abnormal grain growth during aging of a β-quenched Zr-1.14wt%Cr-0.08wt%Fe alloy. *Metallography*, 13 :249–266.

Northwood, D.O., Meng-Burnay, X., et Warr, B.D. (1991). Microstructure of Zr-2.5Nb alloy pressure tubing. *Zirconium in the Nuclear Industry : Twelfth International Symposium, ASTM STP 1132, C.M. Eucken and A.M. Garde Editors, American Society for Testing and Materials, Philadelphia*, pages 156–176.

Novotny, J., Fiala, J., et Čadek, J. (1985). Harper-Dorn creep in alpha-zirconium. *Acta Metallurgica*, 33 :905–911.

Nowikov, A. et Pfeiffer, I. (1957). Shmelzen, Verarbeitung und mechanische Eigenschaften von Zircaloy-2. *Zeitschrift Fur Metallkunde*, 48 :479–483.

Onimus, F. et Béchade, J.L. (2009). A polycrystalline modeling of the mechanical behavior of neutron irradiated zirconium alloys. *Journal of Nuclear Materials*, 384 :163–174.

Ortlieb, E., Cheliotis, G., et Weidinger, H.G. (1987). Influence of the initial material condition on the deformation behavior of Zircaloy cladding tubes in the high-α-phase region. *Zirconium in the Nuclear Industry : Seventh International Symposium, ASTM STP 939, R.B. Adamson and L.F.P. Van Swam Editors, American Society for Testing and Materials, Philadelphia*, pages 539–554.

Ostoja-Starzewski, M. (1998). Random field models of herogeneous materials. *International Journal of Solids and Structures*, 35 :2429–2455.

Ostoja-Starzewski, M. (2006). Material spatial randomness : from statistical to representative volume element. *Probabilistic Engineering Mechanics*, 21 :112–132.

Pahutová, M., Kuchařová, K., et Čadek, J. (1985). Martensitic zirconium alloys : influence of chemical composition on creep characteristics. *Journal of Nuclear Materials*, 131 :20–31.

Pahutová, M. et Čadek, J. (1973). Interpretation of high temperature creep in alpha-zirconium in terms of effective stress and dislocations dynamics. *Materials Science and Engineering*, 11 :151–162.

Pahutová, M., Čadek, J., et Černý, V. (1976a). Steady state creep of Zr-Nb alloys in a temperature interval 350 to 550°C. *Journal of Nuclear Materials*, 61 :285–296.

Pahutová, M., Černý, V., et Čadek, J. (1976b). Creep slitin Zr-Nb v intervalu teplot 623 až 823K - Část 2 - Stacionárí creep slitin Zr-0,5%Nb a Zr-4,5%Nb. *Kovové Materiály*, 14 :252–274.

Paradis, P.F. et Rhim, W.K. (1999). Thermophysical properties of zirconium at high temperature. *Journal of Materials Research*, 14 :3713–3719.

Peletsky, V.E. et Musayeva, Z.A. (1995). Effect of oxidation on transport properties of Zirconium-1%Niobium alloy. *International Journal of Thermophysics*, 16 :1481–1487.

Perovic, V. et Weatherly, G.C. (1989). The β to α transformation in a Zr-2.5 wt% Nb alloy. *Acta Metallurgica*, 37 :813–821.

Pialla, D. (2005). Calcul APRP - Grosse brèche pour un combustible vierge avec une gaine AFA-2G. Note technique SSTH 2005-024, CEA.

Pilvin, P. (2003). SiDoLo, version 2.4495, notice d'utilisation.

Pirogov, E.N., Komarov, O.V., et Alymov, M.I. (1989). Creep of fully recrystallized and cold-worked Zr-1%Nb alloys upon rapid heating. *Soviet Atomic Energy*, 66 :271–274.

Ponte Castañeda, P. (2002a). Second-order homogenization estimates for nonlinear composites incorporating field fluctuations. I-Theory. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 50 :737–757.

Ponte Castañeda, P. (2002b). Second-order homogenization estimates for nonlinear composites incorporating field fluctuations. II-Applications. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 50 :759–782.

Porter, L.F. et Rosenthal, P.C. (1959). Effect of applied tensile stress on phase transformations in steel. *Acta Metallurgica*, 7 :504–514.

Portier, L., Bredel, T., Brachet, J.C., Maillot, V., Mardon, J.P., et Lesbros, A. (2005). Influence of long service exposures on the thermal-mechanical behavior of Zy-4 and M5^{TM} alloys in LOCA conditions. *Zirconium in the Nuclear Industry : Fourteenth International Symposium, ASTM STP 1467, B. Kamenzind and P. Rudling Editors, American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA*, pages 896–919.

Prasad, N., Malakondaiah, G., et Rama Rao, P. (1989). Low stress creep behaviour of zirconium. *Transactions of the Indian Institute of Metals*, 42 :S165–S174.

Prasad, N., Malakondaiah, G., et Rama Rao, P. (1992). Low stress creep behaviour of Zircaloy-2 vis-a-vis zirconium. *Scripta Metallurgica et Materialia*, 26 :541–543.

Pérez-Prado, M.T., Barrabes, S.R., Kassner, M.E., et Evangelista, E. (2005). Dynamic restoration mechanisms in α-zirconium at elevated temperatures. *Acta Materialia*, 53 :581–591.

Rama Rao, P. (1998). Viscous creep in metals. *Current Science*, 75 :564–579.

Ranganath, S. et Mishra, R.S. (1996). Steady state creep behaviour of particulate-reinforced titanium matrix composites. *Acta Materialia*, 44 :927–935.

Renucci, L. et Langeron, J.P. (1967a). Sur l'écrouissage par laminage, à la température ambiante, d'échantillons de zirconium de différentes puretés. *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences de Paris*, t. 264 :954–957.

Renucci, L. et Langeron, J.P. (1967b). Sur les deux critères de pureté du zirconium. *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences de Paris*, t. 264 :673–676.

Rizkalla, A.S., Holt, R.A., et Jonas, J.J. (1979). Effect of oxygen on the deformation of Zircaloy-2 at elevated temperatures. *Zirconium in the Nuclear Industry : Fourth International Symposium, ASTM STP 681, American Society for Testing and Materials*, pages 497–513.

Réocreux, M. et Scott de Martinville, E.F. (1990). A study of fuel behavior in PWR design basis accident : an analysis of results from the PHEBUS and EDGAR experiments. *Nuclear Engineering and Design*, 124 :363–378.

Rodchenkov, B.S. et Semenov, A.N. (2005). High temperature mechanical behavior of Zr-2.5%Nb alloy. *Nuclear Engineering and Design*, 235 :2009–2018.

Rodriguez, N., Dickinson, T., Huy Nguyen, D., Park, E., Foyos, J., Sutherlin, R., Sparkowich, S., Hogue, F., Stoyanov, P., Ogren, J., Plotkin, E., et Es-Said, O.S. (2008). On the bimodal grain growth in zirconium grade 702 alloy. *Engineering Failure Analysis*, 15 :440–444.

Romero, J., Preuss, M., et Quinta da Fonseca, J. (2009). Capturing the texture changes in a zirconium alloy during the allotropic phase transformation. *Scripta Materialia*, 61 :399–402.

Rose, K.M. et Hindle, E.D. (1973). The deformation of Zircaloy-2 fuel cladding under loss of coolant accident transients. *British Nuclear Energy Society Conference*.

Rose, K.M. et Hindle, E.D. (1977). Diameter increases in steam generating heavy water reactor Zircaloy cans under Loss-of-Coolant accident conditions. *Zirconium in the Nuclear Industry : Fourth International Symposium, ASTM STP 633, A.L. Lowe Jr. and G.W. Parry Editors, American Society for Testing and Materials*, pages 24–35.

Rosinger, H.E., Bera, P.C., et Clendening, W.R. (1979). Steady-state creep of Zircaloy-4 fuel cladding from 940 to 1873K. *Journal of Nuclear Materials*, 82 :286–297.

Rougier, Y., Stolz, C., et Zaoui, A. (1993). Représentation spectrale en viscoélasticité linéaire des matériaux hétérogènes. *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences de Paris*, t. 316 :1517–1522.

Rousseau, J.C. (1978). Thermohydraulique des réacteurs. *Techniques de l'ingénieur*, b3050.

Rösner-Kuhn, M., Drewes, K., Franz, H., et Frohberg, M.G. (2001). Enthalpy measurements of the solid high-temperature β-phase of titanium and zirconium by levitation drop calorimetry. *Journal of Alloys and Compounds*, 316 :175–178.

Sab, K. (1992). On the homogenization and the simulation of random materials. *European Journal of Mechanics A/ Solids*, 11 :585–607.

Sachs, G. (1928). Zur Ableitung einer Fliessbedingung. *Zeitschrift Verein Deutscher Ingenieure*, 72 :734–736.

Saint-Antonin, F. (1995). Essais de fluage. *Techniques de l'ingénieur*, m140.

Sargent, P.M. et Ashby, M.F. (1982). Deformation maps for titanium and zirconium. *Scripta Metallurgica*, 16 :1415–1422.

Sarrail, B., Schrupp, C., Babakhanyan, S., Muscare, K., Foyos, J., Ogren, J., Sparkowich, S., Sutherlin, R., Hilty, J., Jr., R. C., et Es-Said, O.S. (2007). Annealing and anomalous (bimodal) grain growth of Zr 702. *Engineering Failure Analysis*, 14 :652–655.

Saylor, D.M., Fridy, J., El-Dasher, B.S., Jung, K.Y., et Rollett, A.D. (2004). Statistically representative three-dimensional microstructures based on orthogonal observation sections. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 35A :1969–1979.

Schatz, B. (1997). Instruments usuels de mesure de longueur. *Techniques de l'ingénieur*, r1260.

Schober, H.R., Van Echo, J.A., Marsh, L.L., et Keeler, J.R. (1957). The mechanical properties of zirconium and Zircaloy-2. *Battelle (USA), Report BMI*, 1168.

Seward, G.G.E., Celotto, S., Prior, D.J., Wheeler, J., et Pond, R.C. (2004). In situ SEM-EBSD observations of the hcp to bcc phase transformation in commercially pure titanium. *Acta Materialia*, 52 :821–832.

Shahinian, P. et Lane, J.R. (1953). Influence on grain size on high-temperature properties of monel. *Transactions of the Metallurgical Society of the American Institute of Mining, Metallurgical, and Petroleum Engineers*, 45 :177–199.

Shewfelt, R.S.W. et Lyall, L.W. (1985). A high temperature longitudinal strain rate equation for Zr-2.5wt%Nb pressure tubes. *Journal of Nuclear Materials*, 132 :41–46.

Shewfelt, R.S.W., Lyall, L.W., et Godin, D.P. (1984). A high temperature creep model for Zr-2.5wt%Nb pressure tubes. *Journal of Nuclear Materials*, 125 :228–235.

Sills, H.E. et Holt, R.A. (1979). Predicting high temperature transient deformation from microstructural models. *Zirconium in the Nuclear Industry : Fourth International Symposium, ASTM STP 681, American Society for Testing and Materials*, pages 324–341.

Singh, R.N., Kishore, R., Singh, A.K., Sinha, T.K., et Kashyap, B.P. (2001). Microstructural instability and superplasticity in a Zr-2.5 wt pct Nb pressure-tube alloy. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 32A :2827–2840.

Song, S.G. et Gray III, G.T. (1995). Influence of temperature and strain rate on slip and twinning behavior of Zr. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 26A :2665–2675.

Östberg, G. (1961). Metallographic study of isothermal transformation of beta phase in Zircaloy-2. *Jernkontorets Annaler*, 145 :119–142.

Östberg, G. et Attermo, R. (1962). Structure transformation in Zircaloy-2 during hot working process. *Journal of Nuclear Materials*, 5 :120–127.

Stephan, M., Adam, E., et Wetzel, L. (1992). Activation energies for thermal creep of the Zr1%Nb alloy in the α-Zr and β-Zr phase regions. *Kerntechnik*, 57 :129–132.

Stern, A. (2007). *Comportements métallurgique et mécanique des matériaux de gainage du combustible REP oxydés à haute température*. Thèse de doctorat, Ecole des Mines de Paris.

Tanikella, B.V. (1998). *Anisotropic biaxial creep of Zircaloy-4 and Cp-titanium tubing*. Phd, University of North Carolina, USA.

Taylor, G.I. (1938). Plastic strain in metals. *Journal Institute of Metals*, 62 :307–424.

Terai, T., Takahashi, Y., Masumura, S., et Yoneoka, T. (1997). Heat capacity and phase transition of Zircaloy-4. *Journal of Nuclear Materials*, 247 :222–226.

Thorpe, W.R. et Smith, I.O. (1978a). Creep properties of Zr-1wt%Nb alloy. *Journal of Nuclear Materials*, 75 :209–219.

Thorpe, W.R. et Smith, I.O. (1978b). Tensile properties of Zr-1wt%Nb alloy. *Journal of Nuclear Materials*, 78 :49–57.

Toffolon, C. (2000). *Etude métallurgique et calculs des diagrammes de phases des alliages base zirconium du système : Zr-Nb-Fe-(O,Sn)*. Thèse de doctorat, Université Paris VI.

Toffolon-Masclet, C., Barberis, P., Brachet, J.C., Mardon, J.P., et Legras, L. (2005). Study of Nb and Fe precipitation in α-phase temperature range (400 to 550°C) in Zr-Nb-(Fe-Sn) alloys. *Zirconium in the Nuclear Industry : Fourteenth International Symposium, ASTM STP 1467, B. Kamenzind and P. Rudling Editors, American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA*, pages 81–101.

Traccucci, R. et Leclercq, J. (1996). Thermomécanique du combustible des réacteurs à eau sous pression. *Techniques de l'ingénieur*, b3060.

Tricot, R. (1994). Zirconium et Hafnium - Métallurgie. *Techniques de l'ingénieur*, m2360.

van Effenterre, P. (1972). *Etude du diagramme d'équilibre et des transformations structurales obtenues par trempe à vitesse variable ou par revenu dans les alliages zirconium niobium (0-55 % Nb)*. Thèse de doctorat, Université Paris Sud.

Van Ginneken, A.J.J. et Burgers, W.G. (1952). The habit plane of the zirconium transformation. *Acta Crystallographica*, 5 :548–549.

Vincent, L. (2007). Identification inverse de paramètres matériau par simulations d'essais en parallèle avec Cast3M : notice d'utilisation de scripts basés sur le logiciel d'identification SiDoLo. Note technique SRMA 2007-2869, CEA.

Vitikainen, E. et Nenonen, P. (1978). Transmission electron microscopy studies on intermetallics in some zirconium alloys. *Journal of Nuclear Materials*, 78 :362–373.

Wadekar, S.L., Banerjee, S., Raman, V.V., et Asundi, M.K. (1991). Correlation of microstructure and mechanical properties of Zr-Sn alloys. *Zirconium in the Nuclear Industry : Twelfth International Symposium, ASTM STP 1132, C.M. Eucken and A.M. Garde Editors, American Society for Testing and Materials, Philadelphia*, pages 140–155.

Wadsworth, J., Ruano, O.A., et Sherby, O.D. (2002). Denuded zones, diffusional creep, and grain boundary sliding. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 33A :219–229.

Wagner, F., Bozzolo, N., van Landuyt, O., et Grosdidier, T. (2002). Evolution of recrystallisation texture and microstructure in low alloyed titanium sheets. *Acta Materialia*, 50 :1245–1259.

Warda, R.D., Fidleris, V., et Teghtsoonian, E. (1973). Dynamic strain aging during creep of α-Zr. *Metallurgical Transactions*, 4 :1201–1206.

Wenk, H.R., Lonardelli, I., et Williams, D. (2004). Texture changes in the hcp→bcc→hcp transformation of zirconium studied in situ by neutron diffraction. *Acta Materialia*, 52 :1899–1907.

Woo, O.T. et Griffiths, M. (2009). The role of Fe on the solubility of Nb in α-Zr. *Journal of Nuclear Materials*, 384 :77–80.

Woo, O.T. et Tangri, K. (1979). Transformation characteristics of rapidly heated and quenched Zircaloy-4-Oxygen alloys. *Journal of Nuclear Materials*, 79 :82–94.

Yu, S.H., Chun, Y.B., et Hwang, S.K. (2005). Texture development and Monte-Carlo simulation of microstructure evolution in pure Zr grain-refined by equal channel angular pressing. *Philosophical Magazine*, 85 :345–371.

Zhou, Y., Devarajan, B., et Murty, K.L. (2004). Short-term rupture studies of Zircaloy-4 and Nb-modified Zircaloy-4 tubing using closed-end internal pressurization. *Nuclear Engineering and Design*, 228 :3–13.

Zhu, K.Y., Bacroix, B., Chauveau, T., Chaubet, D., et Castelnau, O. (2007). Mechanism of texture evolution during primary recrystallization and grain growth in a Zr-2Hf alloy. *Materials Science Forum*, 550 :545–550.

Zhu, K.Y., Chaubet, D., Bacroix, B., et Brisset, F. (2005). A study of recovery and primary recrystallisation mechanisms in a Zr-2Hf alloy. *Acta Materialia*, 53 :5131–5140.

Zhu, Y.T. et Devletian, J.H. (1991). Determination of equilibrium solid-phase transition temperature using DTA. *Metallurgical Transactions A*, 22A :1993–1998.

Zil'Bershteyn, V.A., Nosova, G.I., et Estrin, E.I. (1973). Alpha-Omega transformation in titanium and zirconium. *Physics of Metals and Metallography*, 35 :128–133.

Comportement en fluage à haute température dans le domaine biphasé $(\alpha + \beta)$ de l'alliage M5®

Résumé : Le comportement en fluage isotherme de tôles en alliage de M5® a été étudié à haute température dans le domaine biphasé $(\alpha + \beta)$, sous vide, dans le domaine des faibles contraintes (1-10MPa). Une première approche consiste en l'identification des lois de fluage des phases α et β dans leur domaine monophasé respectif puis en l'extrapolation de ces lois dans le domaine biphasé. Cette approche ne permet malheureusement pas de reproduire le comportement expérimental. Une amélioration de ce modèle est développée dans cette étude en prenant en compte deux effets microstructuraux :
(i) la taille de grains : des tailles de grains spécifiques contrôlées ont été obtenues en appliquant des traitements thermo-mécaniques au matériau. Des essais de fluage dans les domaines quasi-α et quasi-β ont ainsi mis en évidence un fort effet de la taille de grains, en particulier dans le régime de fluage diffusionnel.
(ii) le contraste micro-chimique entre les phases α et β dans le domaine biphasé : d'après des calculs thermodynamiques et des analyses microstructurales, la phase β est enrichie en Nb et appauvrie en O (inversement pour la phase α). Des essais de fluage ont alors été mis en œuvre sur des alliages Zr-Nb-O dont les teneurs en Nb et O sont représentatives de chaque phase dans le domaine biphasé. Cette base expérimentale a permis de d'identifier de nouvelles lois de fluage pour les phases α et β. Ces lois ont été ensuite implémentées dans un modèle éléments finis afin de simuler le comportement du matériau biphasé. La morphologie 3D des phases (en particulier la germination de la phase β aux joints de grains α) est introduite explicitement dans les simulations afin de mettre en évidence son effet sur le comportement macroscopique.

M5® est une marque déposée d'AREVA-NP

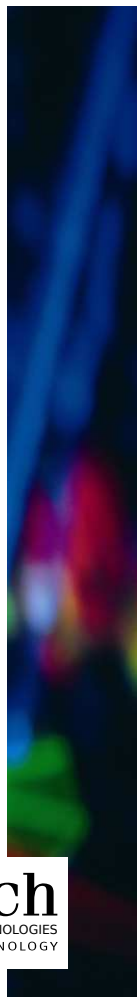
Mots clés : fluage, alliages de zirconium, haute température, transformation de phases, effets de taille de grains, M5®

High temperature creep behavior in the $(\alpha + \beta)$ phase temperature range of M5® alloy

Abstract: The isothermal steady-state creep behavior of a M5® thin sheet alloy in a vacuum environment was investigated in the $(\alpha + \beta)$ temperature, low-stress (1-10MPa) range. To this aim, the simplest approach consists in identifying α and β creep flow rules in their respective single-phase temperature ranges and extrapolating them in the two-phase domain. However, the $(\alpha + \beta)$ experimental behavior may fall outside any bounds calculated using such creep flow data. Here, the model was improved for each phase by considering two microstructural effects:
(i) Grain size: Thermo-mechanical treatments applied on the material yielded various controlled grain-size distributions. Creep tests in near-α and near-β ranges evidenced a strong grain-size effect, especially in the diffusional creep regime.
(ii) Chemical contrast between the two phases in the $(\alpha + \beta)$ range: From thermodynamic calculations and microstructural investigations, the β phase is enriched in Nb and depleted in O (the reverse being true for the α phase). Thus, creep tests were performed on model Zr-Nb-O thin sheets with Nb and O concentrations representative of each phase in the considered temperature range.
New α and β creep flow equations were developed from this extended experimental database and used to compute, via a finite element model, the creep rates of the two-phase material. The 3D-morphology of phases (β grains nucleated at α grain boundaries) was explicitly introduced in the computations. The effect of phase morphology on the macroscopic creep flow was shown using this specific morphology, compared to other typical morphologies and to experimental data.

M5® is a registered trademark of AREVA-NP

Keywords: Creep, zirconium alloys, high temperature, phase transformation, grain size effects, M5®



MINES ParisTech

ParisTech
INSTITUT DES SCIENCES ET TECHNOLOGIES
PARIS INSTITUTE OF TECHNOLOGY