



HAL
open science

**Fragilisation du Zircaloy-4 par l'hydrogène :
comportement, mécanismes d'endommagement,
interaction avec la couche d'oxyde, simulation numérique**

Marjolaine Grange

► **To cite this version:**

Marjolaine Grange. Fragilisation du Zircaloy-4 par l'hydrogène : comportement, mécanismes d'endommagement, interaction avec la couche d'oxyde, simulation numérique. Mécanique [physics.med-ph]. École Nationale Supérieure des Mines de Paris, 1998. Français. NNT : . tel-00005648

HAL Id: tel-00005648

<https://pastel.hal.science/tel-00005648>

Submitted on 5 Apr 2004

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.



ECOLE DES MINES
DE PARIS

Collège doctoral

N° attribué par la bibliothèque
/---/---/---/---/---/---/---/---/

THESE

pour obtenir le grade de
Docteur de l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris
Spécialité Science et Génie des Matériaux
présentée et soutenue publiquement par

Marjolaine GRANGE

le 17 décembre 1998

FRAGILISATION DU ZIRCALOY-4 PAR L'HYDROGENE :
Comportement, Mécanismes d'endommagement,
Interaction avec la couche d'oxyde, Simulation numérique.

Directeurs de thèse : Eric ANDRIEU et Jacques BESSON

Jury

M. A. PINEAU	Président	Ecole des Mines de Paris
M. C. PRIOUL	Rapporteur	Ecole Centrale Paris
M. A. POITOU	Rapporteur	ENS Cachan
M. X. FEAUGAS	Examineur	UTC
M. D. GILBON	Examineur	CEA Saclay
M. J. DIZ	Examineur	FRAMATOME
M. J. BESSON	Directeur de thèse	Ecole des Mines de Paris
M. E. ANDRIEU	Directeur de thèse	ENS Chimie Toulouse

Centre des Matériaux P.M. FOURT de l'Ecole des Mines de Paris,
B.P. 87, 91003 EVRY Cedex

Table des matières

I	Introduction	5
I.1	La fragilisation par l'hydrogène : un problème industriel majeur	6
I.2	Démarche de l'étude	7
I.3	Plan du mémoire	8
 Partie A Présentation du matériau		
Caractérisation mécanique		11
II	Le Zircaloy-4	13
II.1	Quelques généralités	15
II.1.1	Le zirconium	15
II.1.2	Le Zircaloy-4	15
II.2	Le matériau de l'étude	17
II.2.1	Présentation	17
II.2.2	Caractérisation métallurgique	19
II.3	Orientation	22
III	Le Zircaloy-4 hydruré	23
III.1	Le Zircaloy-4 et l'hydrogène	25
III.1.1	Les différents hydrures de zirconium	25
III.1.2	Mécanismes de formation d'un hydrure δ	27
III.1.3	Les facteurs influençant la précipitation	29
III.2	Le surchargement	30
III.2.1	Mise en évidence	30
III.2.2	Chargement artificiel en hydrogène	31
III.2.3	Teneurs obtenues	32
III.3	Caractérisation des hydrures	33
III.3.1	Morphologie et répartition	35
III.3.2	Discussion	39
IV	Comportement du Zircaloy-4 hydruré	43
IV.1	Comportement en traction	45
IV.1.1	Rappel des mécanismes de déformation	45
IV.1.2	Description des essais	45

IV.2	Résultats	49
IV.2.1	Elasticité – Plasticité – Ecrouissage	49
IV.2.2	Effets de l’hydrogène	51
IV.3	Anisotropie plastique	55
IV.3.1	Origine	55
IV.3.2	Anisotropie de contrainte	55
IV.3.3	Anisotropie de déformation	57
IV.3.4	Identification d’un critère de comportement anisotrope	58
IV.4	Sensibilité à la vitesse de sollicitation	62
IV.4.1	Caractérisation	62
IV.4.2	Identification d’un comportement élasto-visco-plastique	62
IV.5	Etude de la localisation	64
IV.5.1	Rappels	64
IV.5.2	Localisation dans le Zircaloy-4	64
IV.5.3	Discussion	66
 Partie B Etude approfondie de l’effet des hydrures		69
 V Etude mécanique de la rupture du Zircaloy-4 hydruré		71
V.1	Rappels	72
V.1.1	Structures massives	72
V.1.2	Produits minces	73
V.2	Approche locale de la rupture	74
V.2.1	Caractérisation mécanique de la rupture	74
V.2.2	Etude de l’endommagement	76
V.3	Essais sur éprouvettes lisses	76
V.4	Essais sur éprouvettes entaillées	79
V.4.1	Paramètres de l’essai	79
V.4.2	Résultats	81
V.4.3	Remarques	85
V.5	Résistance à l’amorçage et à la propagation de fissure	86
V.5.1	Dispositif et conditions expérimentales	86
V.5.2	Résultats	89
 VI Etude de l’endommagement du Zircaloy-4 hydruré		99
VI.1	Caractérisation de la germination des cavités	101
VI.1.1	Origine	101
VI.1.2	Morphologie	101
VI.1.3	Réorientation des hydrures	106
VI.2	Rupture de l’hydrure	106
VI.2.1	Rappels	106
VI.2.2	Les hydrures se déforment-ils?	106
VI.2.3	Transition ductile-fragile	108
VI.3	Quantification de la germination de cavités	111
VI.3.1	Méthodologie	111

VI.3.2	Résultats	112
VI.3.3	Remarques	115
VII	Effet mécanique d'une couche d'oxyde	117
VII.1	Oxydation du Zircaloy-4	119
VII.1.1	Cinétiques	119
VII.1.2	Morphologie de l'oxyde post-transition	120
VII.2	L'oxyde de l'étude	124
VII.2.1	Traitements et épaisseurs	124
VII.2.2	Caractérisation microstructurale	126
VII.3	Influence mécanique	128
VII.3.1	Déroulement des essais	128
VII.3.2	Courbes de traction	128
VII.3.3	Contraintes-Ductilités	133
VII.4	Mécanismes de rupture	135
VII.4.1	Fractographies	135
VII.4.2	Coupes longitudinales	135
VII.4.3	Discussion	137
VIII	Modélisation de la rupture du Zircaloy-4 hydruré	141
VIII.1	Synthèse Comportement-Endommagement du Zircaloy-4 hydruré	143
VIII.1.1	Comportement Elasto-Visco-Plastique	143
VIII.1.2	Anisotropie	143
VIII.1.3	Endommagement	143
VIII.2	Choix d'un modèle	144
VIII.2.1	Rappels	144
VIII.2.2	Potentiel de Gurson-Tvergaard-Needleman	145
VIII.2.3	Paramètres fixés	145
VIII.2.4	Paramètres ajustables	146
VIII.3	Propagation de fissure	148
VIII.3.1	Rappels	148
VIII.3.2	Effet de la taille de maille	148
VIII.3.3	Identification de la taille de maille	155
VIII.3.4	Remarques	157
VIII.4	Application à une structure	161
VIII.4.1	Description des essais	161
VIII.4.2	Résultats	161
VIII.4.3	Simulation	165
IX	Conclusions – Perspectives	171
IX.1	Synthèse	172
IX.2	Perspectives	175

Partie C	Annexes	179
A-I	Conditions expérimentales	181
A-I.1	Préparation des échantillons pour l'observation en microscopie	181
A-I.2	Calcul des déformations dans le plan d'une éprouvette lisse	182
A-I.2.1	Grilles	182
A-I.2.2	Jauges de déformation	184
A-I.3	Identification d'une loi de comportement viscoplastique	185
A-I.4	Essais in situ dans le MEB	186
A-I.5	Conditions expérimentales relatives à l'oxydation	186
A-I.5.1	Procédure de détermination des cinétiques d'oxydation par analyse thermogravimétrique	186
A-I.5.2	Procédure d'oxydation des éprouvettes en four AET	187
A-I.5.3	Procédure d'observation en SIMS	187
A-II	Eprouvettes entaillées	189
A-II.1	Choix d'une géométrie	189
A-II.1.1	Géométries testées	189
A-II.1.2	Paramètres du calcul	191
A-II.1.3	Résultats	191
A-II.2	Choix d'une vitesse de déplacement du vérin	191
A-II.3	Identification des porosités critiques	191
A-II.4	Apparition de bandes de localisation	193

Chapitre -I-

Introduction

Les Assemblages de Combustible des Réacteurs à Eau sous Pression (REP) sont constitués en quasi-totalité de composants en alliages de zirconium. Leur intégrité structurelle est assurée par 24 tubes, appelés tubes-guides qui sont reliés aux grilles et aux embouts inférieurs et supérieurs (Figure I.1). Ces tubes permettent aussi de faire coulisser les barres de contrôle. Le tube central sert à l'instrumentation (température...). Les autres tubes, appelés gaines, contiennent les pastilles d'oxyde d'uranium. Ils sont maintenus dans les grilles par des ressorts.

L'irradiation due à la proximité du combustible, l'oxydation par l'eau du circuit primaire à la température de fonctionnement (de 280 à 320° C) ainsi que la pénétration d'hydrogène provenant de cette oxydation entraînent des modifications des propriétés mécaniques du matériau de base de ces assemblages.

La prolongation du temps de séjour en réacteur, visant à augmenter le taux de combustion de l'uranium, passe par la justification de la tenue mécanique des tubes-guides après vieillissement. On cherche donc à comprendre l'origine des changements observés pour mieux adapter le matériau et la structure, mais aussi pour déterminer les limites d'utilisation mécaniques et métallurgiques.

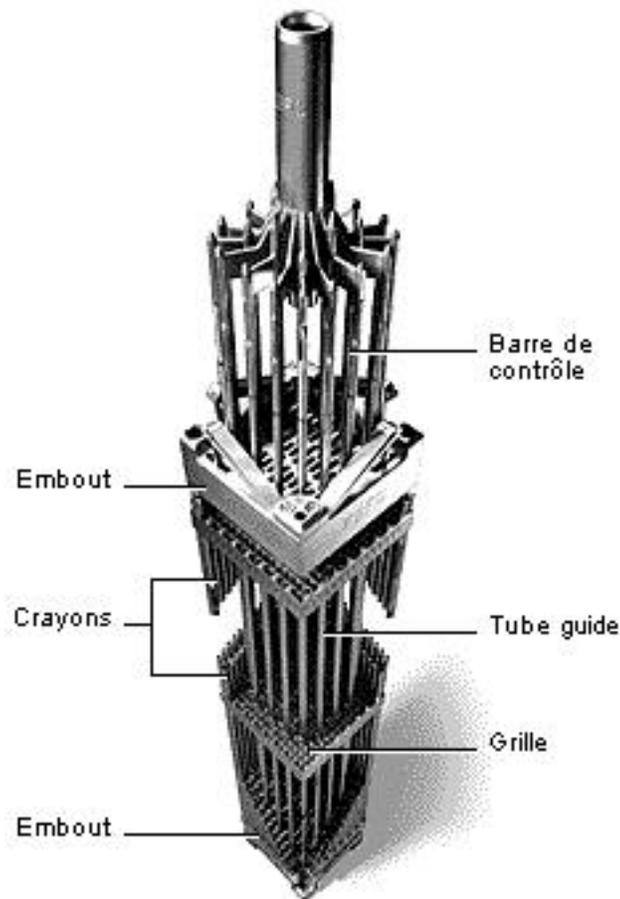


Figure I.1 : Assemblage de combustible des Réacteurs à Eau sous Pression.

I.1 La fragilisation par l'hydrogène : un problème industriel majeur

En août 1974, l'unité 3 de Pickering (Canada) a été arrêtée pendant 8 mois par suite de fuites dans 17 des 390 tubes de force (AECL-5261, 1976). Les tubes de force, dont la durée de vie avait été évaluée à une trentaine d'années, fissurèrent après moins de deux ans d'exploitation. Ces tubes, d'une longueur de 6 m, d'une épaisseur de 4.1 mm et de diamètre intérieur de 103 mm sont constitués de ZrNb2.5 écroui.

La fissuration a eu lieu dans les zones d'usure (raccord avec les embouts en acier), alors que ces parties sont très peu soumises à l'irradiation lors du fonctionnement. En fait, l'état d'oxydation de la surface des fissures a permis de conclure que la fissuration avait eu lieu en début d'utilisation.

La technique de dudgeonnage des tubes a rapidement été mise en cause. Le positionnement erroné de l'outil lors de la mise en forme a produit en ces endroits de très fortes contraintes résiduelles. Ces contraintes ont eu pour conséquence la formation d'hydrures d'orientation radiale. Ces hydrures massifs et fragiles à la température ambiante, ont provoqué des amorces de fissures lors des refroidissements du réacteur.

La présence de ces fissures a favorisé ensuite la diffusion de l'hydrogène vers ces régions lors du fonctionnement. Il s'est alors produit de nouvelles précipitations, radiales. Au cours des refroidissements suivants la fissure s'est propagée par rupture des hydrures nouvellement formés. Ce mécanisme a conduit à créer des fissures de 15 à 20 mm de long et débouchant à travers l'épaisseur du tube. Les tubes ont dû être retirés du réacteur.

Afin de se prémunir contre de tels incidents, il est fondamental pour les fabricants et les exploitants de comprendre et maîtriser la précipitation des hydrures, la fragilisation liée à cette précipitation et son interaction avec les autres vieillissements du matériau.

I.2 Démarche de l'étude

L'étude conjointe des différents facteurs du vieillissement est rendue difficile par le caractère radioactif des structures, qui nécessite des conditions d'expérimentation spécifiques et coûteuses. De plus, les différents vieillissements sont souvent corrélés. Par exemple, les zones les plus fortement hydrurées sont aussi celles qui possèdent une couche d'oxyde plus épaisse. Il est alors délicat de séparer les effets de chaque vieillissement.

C'est pourquoi des études en laboratoire ont été lancées, afin de traiter de l'oxydation et de l'hydruration hors irradiation. Les connaissances acquises concernant ces deux facteurs permettent ensuite de mieux interpréter les essais mécaniques effectués sur le matériau issu des assemblages combustibles (irradié, oxydé et hydruré) et de conclure quant aux effets de l'irradiation.

C'est dans cette perspective que s'inscrit le travail effectué au cours de cette thèse. L'objectif est donc de comprendre d'où provient la fragilisation par la précipitation de l'hydrogène, de conclure quant aux effets mécaniques de la couche d'oxyde et de proposer un modèle prédictif de comportement et rupture du matériau hydruré (et oxydé si nécessaire).

L'utilisation de tubes rendant délicate la mise en place des essais, l'étude a été réalisée sur des tôles. Les différents teneurs en hydrogène et épaisseurs d'oxyde étudiées ont été obtenues à l'aide de traitements artificiels d'hydruration et d'oxydation. Les précédents résultats concernant l'effet de l'hydrogène sur la rupture du Zircaloy-4 ont montré qu'il se produisait une fragilisation brutale par l'hydrogène aux environs de 600 ppm (Bai et al., 1994b). Nous avons donc choisi d'hydrurer le matériau depuis 200 jusqu'à 1200 ppm, afin d'encadrer cette valeur. En ce qui concerne les épaisseurs d'oxyde, nous avons essayé d'étudier des couches du même ordre de grandeur que celles observées en réacteur (30 à 35 μm).

Nous avons ensuite cherché à caractériser l'effet de ces deux vieillissements sur le comportement et la rupture du Zircaloy-4. Nous avons limité l'étude à des sollicitations de traction quasi-statique (situation dimensionnante), à la température ambiante qui est la température la plus critique du point de vue de la fragilisation par l'hydrogène pour les matériaux non irradiés (Prat et al., 1998).

Les résultats ont montré que la couche d'oxyde ne jouait qu'un rôle secondaire dans la fragilisation. La suite de l'étude s'est donc concentrée sur l'effet des hydrures.

L'approche locale de la rupture a été appliquée à l'étude du Zircaloy-4 hydruré. Les principales caractéristiques mécaniques ont été déterminées. L'anisotropie et la sensibilité à la vitesse de déformation ont été identifiées. L'effet d'entaille et la résistance à la propagation de fissure ont été caractérisées. Enfin, les mécanismes d'endommagement ont été étudiés quantitativement. Les résultats expérimentaux ont alors permis de construire un modèle de comportement et de rupture utilisable pour le matériau hydruré.

I.3 Plan du mémoire

Le mémoire est constitué de trois parties. La première concerne le comportement du Zircaloy-4 hydruré.

Le Chapitre II présente les principales caractéristiques du Zircaloy-4 en termes de composition, d'état métallurgique et de texture. Le Chapitre III traite en détails de la précipitation des hydrures dans ce matériau. Les différentes précipitations observées lors des précédentes études sont comparées à la précipitation obtenue sur le matériau de l'étude. Les variations de taille ou de lieu de précipitation des hydrures sont interprétées en relation avec l'état métallurgique et la texture.

Le Chapitre IV concerne la caractérisation du comportement du Zircaloy-4 hydruré. L'effet de l'hydrogène sur les propriétés mécaniques (limite d'élasticité, charge à rupture, allongement réparti...) est étudié à l'aide d'essais sur éprouvettes lisses. Le matériau présentant une anisotropie très marquée, cette caractérisation est effectuée pour trois directions de sollicitation dans le plan de la tôle. Des essais avec des jauges permettent d'identifier les paramètres d'un critère de Hill. La viscosité du matériau hydruré est ensuite déterminée à l'aide d'essais à différentes vitesses de déformation sur ces mêmes éprouvettes. Un dernier volet est consacré à l'apparition de la striction au cours de l'essai. L'effet de défauts structurels mais aussi de l'élévation de température du fait de la déformation plastique est étudié.

La deuxième partie concerne l'étude détaillée de la rupture du Zircaloy-4 hydruré à l'aide de l'approche locale de la rupture.

Le Chapitre V regroupe les résultats d'essais mécaniques. Trois géométries d'éprouvettes sont utilisées. Les éprouvettes lisses permettent de caractériser la rupture dans des conditions de triaxialité pratiquement constante. L'anisotropie de rupture est caractérisée dans le plan

des tôles pour trois directions de prélèvement. L'utilisation d'éprouvettes planes entaillées permet ensuite d'étudier l'effet de l'augmentation de la triaxialité. Enfin, des éprouvettes fissurées (Center Crack Panel) fournissent des informations concernant les problèmes singuliers que sont l'amorçage et la propagation de fissure.

Le Chapitre VI concerne ensuite la caractérisation des mécanismes d'endommagement. Dans le Zircaloy-4 hydruré, les hydrures sont des sites privilégiés d'apparition de fissures. La rupture des hydrures est alors étudiée afin de dégager les paramètres mécaniques permettant de la décrire. Enfin, les cinétiques d'endommagement en termes de densités de cavités sont déterminées par comptage direct des fissures sur des cartographies.

L'effet d'une couche d'oxyde sur le comportement et la rupture est alors présenté dans le Chapitre VII. Les résultats peuvent être interprétés à la lueur des chapitres précédents. Il est montré que l'oxyde n'a pas un rôle aussi important que celui des hydrures dans la fragilisation du Zircaloy-4.

Le dernier chapitre présente la construction du modèle de comportement et de rupture et son utilisation dans un code par éléments finis. Il s'agit du modèle de Gurson modifié par Tvergaard et Needleman, qui permet de traiter la plasticité des milieux poreux. L'utilisation d'une contrainte équivalente au sens de Hill permet de plus de représenter le caractère anisotrope du matériau. Les paramètres sont identifiés directement à partir des essais mécaniques et des cinétiques d'endommagement. Au cours de cette construction se pose le problème de la taille de maille, notamment pour la propagation de fissure. On montre que la solution consistant à ajuster ce paramètre permet de calculer par la suite toutes les structures, y compris celles contenant une fissure. Le modèle est donc validé sur une géométrie contenant des défauts, introduisant des hétérogénéités conduisant à l'amorçage puis à la propagation de fissure.

La dernière partie regroupe les annexes.

Partie A

Présentation du matériau : Caractérisation mécanique

Chapitre -II-

Le Zircaloy-4

C e chapitre regroupe, dans une première partie, les principales caractéristiques métallurgiques du Zircaloy-4. Il présente ensuite le matériau utilisé pour cette étude, depuis son élaboration jusqu'à sa caractérisation microstructurale.

Toute l'étude a été effectuée sur du Zircaloy-4 standard recristallisé afin de se rapprocher de l'élément de structure étudié qui est le tube guide.

On retiendra que le matériau de l'étude possède une texture cristallographique marquée qui va influencer la précipitation des hydrures (Chapitre III) et le comportement mécanique (Chapitre IV).

Masse Volumique à 20°C (g/cm^3)	6.5
Température de fusion (°C)	1850
Chaleur spécifique à 20°C (J/Kg/°C)	276
Conductivité thermique à 20°C (W/m/°C)	21.1
Diffusivité thermique à 20°C ($10^2 cm^2/s$)	11.8
Résistivité électrique à 20°C ($\mu\Omega cm$)	44
Module d'élasticité à 20°C (MPa)	98000
Module de cisaillement à 20°C (MPa)	36500
Coefficient de Poisson à 20°C	0.35

Tableau II.1 : Principales propriétés physiques du zirconium (Kaufmann et Baroch, 1974).

Elément	R _{p0.2}	R _m	Allongement
Si	+	-	
P	-	-	+
C	-		-
Sn	+	+	-
Fe + Cr	+	+	-

Tableau II.2 : Effet des éléments d'alliage sur les propriétés mécaniques du Zircaloy-4 en traction d'après (Kaufmann et Baroch, 1974). (+ : Augmentation, - : Diminution).

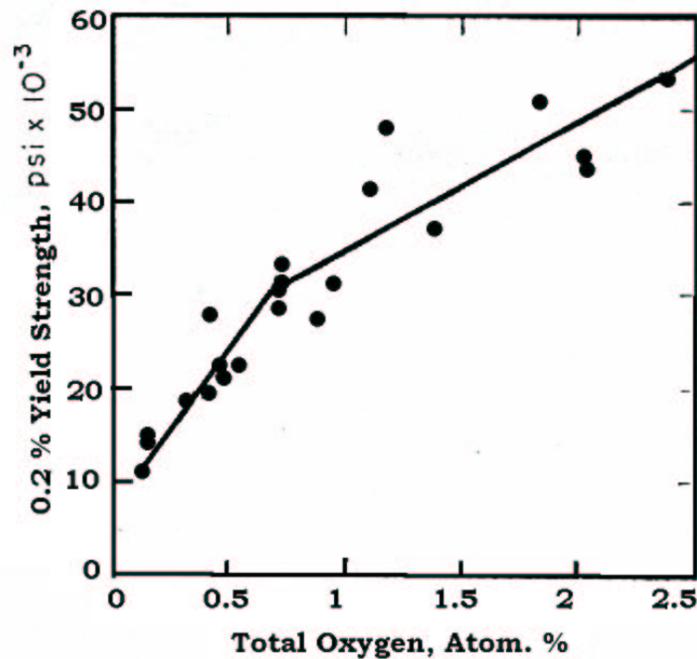


Figure II.1 : Evolution de la limite d'élasticité du zirconium avec la teneur en oxygène (Trego, 1953).

II.1 Quelques généralités

II.1.1 Le zirconium

Le zirconium (numéro atomique 40), constitue avec le titane et l'hafnium le groupe IV.a de la classification périodique des éléments. Ses propriétés sont très proches de celles de ces deux métaux. Il possède deux phases stables. Une phase haute température ($> 863^{\circ}\text{C}$) β qui est Cubique Centrée ($a=0.361$ nm) et une phase basse température ($< 863^{\circ}\text{C}$) α qui est Hexagonale Compacte avec un rapport c/a inférieur à 1.63 (à 25°C , $c/a = 1.594$, avec $a = 0.323$ nm, (Partridge, 1967)). Une autre phase est observée dans des conditions particulières de pression. C'est la phase ω .

Ses principales propriétés physiques sont reportées dans le Tableau II.1.

II.1.2 Le Zircaloy-4

a) Composition

Le Zircaloy-4 est un alliage de zirconium. Il résulte des évolutions des différents alliages élaborés pour l'industrie nucléaire. Ses éléments d'addition sont l'étain (de 1.3 à 1.5 %pds), le fer (0.2 %pds) et le chrome (0.1 %pds). Il contient en outre 1200 à 1300 ppm(pds) d'oxygène.

b) Influence de l'oxygène

L'oxygène est fortement lié au zirconium. Il est présent naturellement dans la matrice sous forme d'interstitiel occupant les sites octaédriques (Pujol, 1994). Rapidement, les études ont permis de mettre en évidence l'effet de renfort qu'il induisait sur le comportement du matériau. (Tresco, 1953) détermine qu'une augmentation d'environ 7000 ppm du taux d'oxygène permet, à la température ambiante, de tripler la limite d'élasticité du zirconium (Figure II.1).

De nombreux auteurs après lui ont caractérisé cet effet de renfort en essayant de l'expliquer en termes d'interaction avec les dislocations. (Ruano et Elssner, 1975) complètent les études de (Westlake, 1964), (Tyson, 1967), (DasGupta et Arunachalam, 1968) et (Kelly et Smith, 1973) en élargissant la gamme des températures étudiées. Ils expliquent le renfort par deux mécanismes qui sont actifs selon la température de sollicitation. Pour les faibles températures, c'est l'interaction entre les atomes d'oxygène et les dislocations qui serait responsable du renforcement (Interaction faible). Pour les hautes températures, ils observent que les atomes d'oxygène se regroupent en amas (taille d'environ 6nm) dont le franchissement est thermiquement activé (Interaction forte). Pour eux, ce dernier mécanisme permet aussi d'expliquer le palier athermique observé sur les courbes contrainte d'écoulement – température aux environs de 300°C .

Un autre phénomène dont l'oxygène semble être responsable est appelé Vieillesse après Déformation. Il se manifeste généralement par des crochets de traction sur les essais comportant une interruption du chargement et un maintien en température des échantillons. Ainsi, la contrainte pour laquelle la plastification apparaît lors de la reprise de l'essai est supérieure à la contrainte à laquelle l'essai a été interrompu (Figure II.2).

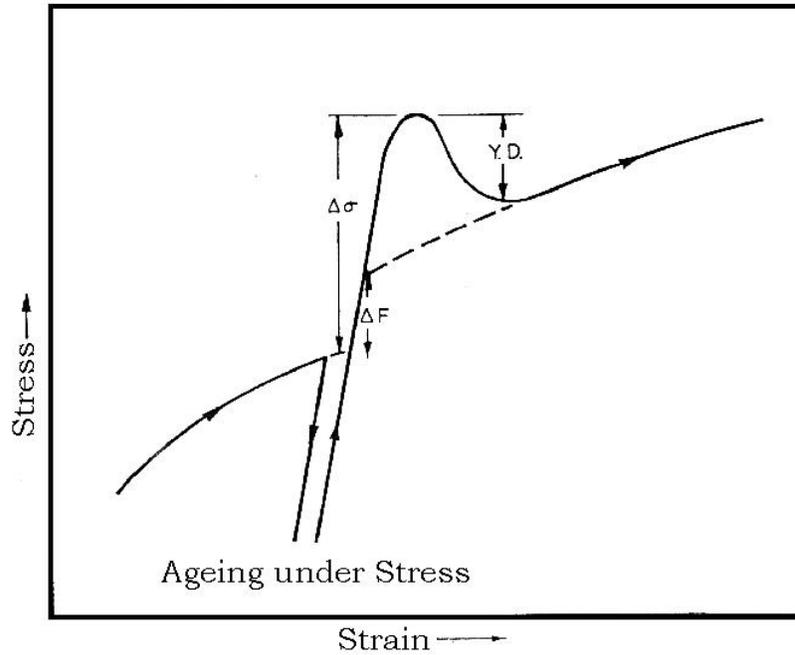


Figure II.2 : *Effet d'un vieillissement sous contrainte après déformation (Kelly et Smith, 1973).*

Coulée 1	Ambiante		315°C	
	Long	Travers	Long	Travers
Sens de prélèvement				
Limite élastique à 0.2 % (MPa)	383	432	132	141
Charge à rupture (MPa)	501	476	238	210
Allongement réparti (%)	11.5 - 12.9	8.4 - 8.7	-	-
Allongement sur 50 mm (%)	33.4	32.5	41.7 - 46.8	42.7 - 44.4

Coulée 2	Ambiante		315°C	
	Long	Travers	Long	Travers
Sens de prélèvement				
Limite d'élasticité à 0.2 % (MPa)	388	438	132	142
Charge à rupture (MPa)	513	492	238	213
Allongement réparti (%)	10.8 - 11.2	8.1 - 8.4	-	-
Allongement sur 50 mm (%)	30.0	28.3	40.6	-

Tableau II.3 : *Propriétés mécaniques en traction des deux coulées utilisées pour cette étude.*

Ce phénomène est expliqué, à haute température (450°C), par le piégeage des atomes d'oxygène dans les réseaux de dislocations (Kelly et Smith, 1973). Ceci conduirait à inhiber les sources de dislocations. A plus basse température, le regroupement des atomes d'oxygène en paires, bloquant à la fois le mouvement des dislocations vis et coin serait responsable de ce durcissement dynamique.

c) Effets des autres éléments d'alliage

- **L'étain** : Il est présent comme l'oxygène sous forme interstitielle. Il permettrait de stabiliser les amas d'oxygène présentés par (Ruano et Ellsner, 1975) et contribuerait ainsi à augmenter les caractéristiques mécaniques de l'alliage. Il influence aussi les cinétiques de corrosion (Thomazet et al., 1998).

- **Le fer et le chrome** : Ces deux éléments sont présents sous forme de précipités du type $Zr(Fe,Cr)_2$ avec, pour le Zircaloy-4 recristallisé, un rapport Fe/Cr égal à 2. Les précipités possèdent une structure hexagonale. Fe et Cr ont été ajoutés au zirconium afin d'améliorer sa tenue à la corrosion. Ils permettent aussi de limiter la croissance des grains lors des traitements de recristallisation. Enfin, ils stabilisent la phase β de l'alliage.

(Robinet, 1995) présente une synthèse des effets de ces éléments et des autres présents en tant qu'impuretés sur les propriétés mécaniques du Zircaloy-4 pour des essais de sollicitation uniaxiale à 315 °C et une vitesse de déformation de $8.33 \cdot 10^{-4} s^{-1}$ (Tableau II.2 page 14 d'après (Kaufmann et Baroch, 1974)).

II.2 Le matériau de l'étude

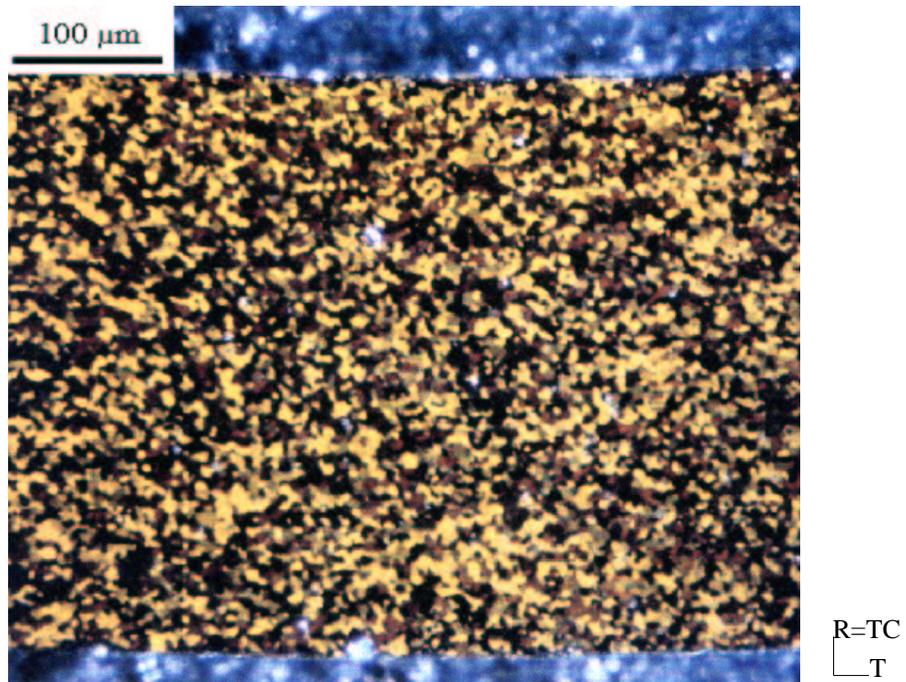
II.2.1 Présentation

Le matériau de l'étude est du Zircaloy-4 standard. Il a été fourni par **Cezus**. Deux coulées ont été étudiées :

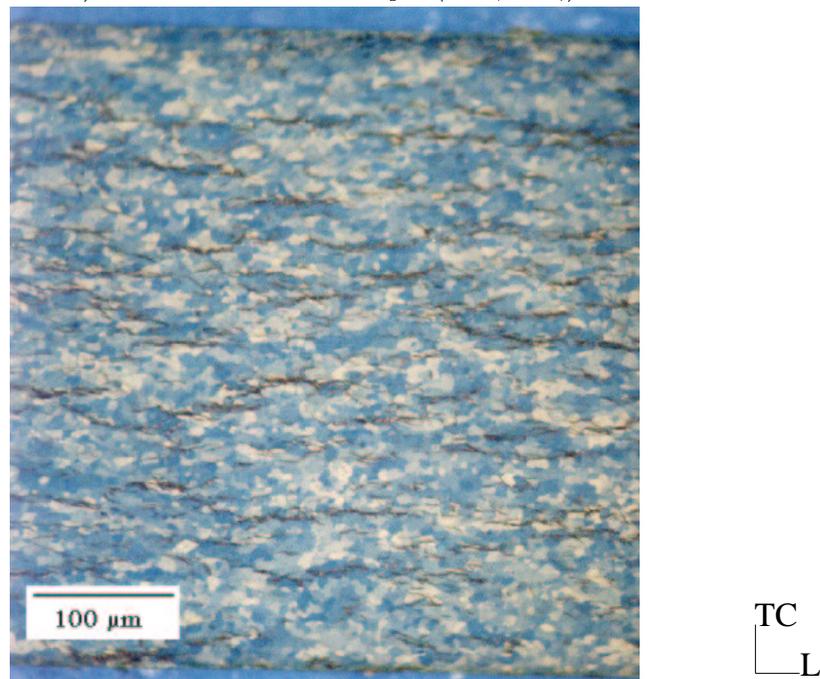
- Coulée 1 : Lot D829 - Coulée 267 876
- Coulée 2 : Lot D669 - Coulée 268 118

Le matériau se présente sous forme de tôles d'une épaisseur de 450 à 460 μm . Il a été obtenu par laminage à froid et a subi un traitement final de recristallisation. Les deux coulées ont des compositions chimiques très voisines ce qui leur confère des propriétés mécaniques de référence pratiquement identiques (Tableau II.3).

La première coulée a été utilisée pour caractériser le comportement mécanique du matériau, ainsi que l'influence de l'hydruration. Elle a servi à toute l'étude concernant l'oxydation et l'effet mécanique de la couche d'oxyde (Chapitre VII). La seconde coulée a servi de base à une étude plus approfondie du comportement et de la rupture du matériau avec et sans hydrures (Chapitres IV, V, VI). Les résultats obtenus sur cette coulée ont permis d'identifier les paramètres du modèle présenté dans le Chapitre VIII.



a) Microstructure observée par (Prat, 1994)



b) Microstructure observée sur les tôles de l'étude (Coulée 2)

Figure II.3 : Micrographies optiques en lumière polarisée permettant de révéler les grains de zirconium.

II.2.2 Caractérisation métallurgique

Le mode d'élaboration ainsi que le traitement thermique final permettent d'obtenir des tôles qui sont très proches des tubes-guides du point de vue de la texture et de la microstructure.

a) Microstructure

Taille de grain : La Figure II.3 présente les micrographies optiques obtenues pour les tubes guides utilisés par (Prat, 1994) au cours de sa thèse et pour les tôles de cette étude. Les conditions de polissage, d'attaque et d'observation sont décrites dans l'annexe A-I. On remarque que, grâce au traitement de recristallisation, les grains présentent une forme équiaxe. Leur taille est assez homogène et vaut environ $8 \mu\text{m}$ (12 ASTM pour la coulée 1 et 11.5 ASTM pour la coulée 2). Aucune différence n'est à noter entre les différents plans d'observation. La taille de grain semble indépendante du plan d'observation.

Une observation au MET réalisée par Lecallier (Lecallier, 1996) sur le matériau de l'étude a permis de mettre en évidence l'absence de dislocations à l'intérieur des grains de Zircaloy et autour des précipités (Figure II.4).

Caractérisation des précipités : On observe, au MEB ou au MET, deux populations de précipités. La première, constituée des plus gros précipités (de 0.3 à $0.5 \mu\text{m}$), regroupe les $\text{Zr}(\text{Fe},\text{Cr})_2$ mentionnées dans le paragraphe II.1.2 c). Une autre population formée de précipités beaucoup plus fins (de quelques dizaines de nanomètres) reste encore à identifier. (Geyer, 1996) a observé lui aussi cette précipitation plus fine (Figure II.5). Grâce à des analyses de diffraction au MET, il a déterminé leur structure qui est cubique.

b) Texture

L'apparition d'une texture dans les hexagonaux au cours de la déformation est un phénomène très courant (Cook et al., 1991; Philippe et al., 1984). (Cook et al., 1991) étudient l'influence des différentes réductions d'épaisseur lors des passes de laminage à froid sur l'orientation cristallographique des grains pour des tubes de Zircaloy. Ils montrent qu'il est possible, par une maîtrise du procédé, de produire des tubes dont la texture est plus ou moins radiale (axes \vec{c} colinéaires à cette direction).

Du fait du mode d'élaboration, les tôles de l'étude et les tubes utilisés par (Prat et al., 1998) présentent donc une forte texture cristallographique. Les axes \vec{c} sont orientés à plus ou moins 20° de la normale au plan de la tôle (direction radiale pour le tube) et perpendiculaires à la direction long. La texture est pratiquement radiale (pour les tubes) et normale (pour les tôles). On rencontre aussi des textures quasiment circonférentielles en particulier dans les alliages utilisés pour les tubes de force (système CANDU) (Huang et Mills, 1991). Les plans prismatiques sont orientés comme indiqué sur la Figure II.6. Contrairement à la texture des tubes, la texture des tôles n'a pas subi de rotation au cours de la recristallisation. Cette rotation de 30° des plans prismatiques autour des axes \vec{c} se produit habituellement en toute fin de traitement, lorsque les grains commencent à grossir.

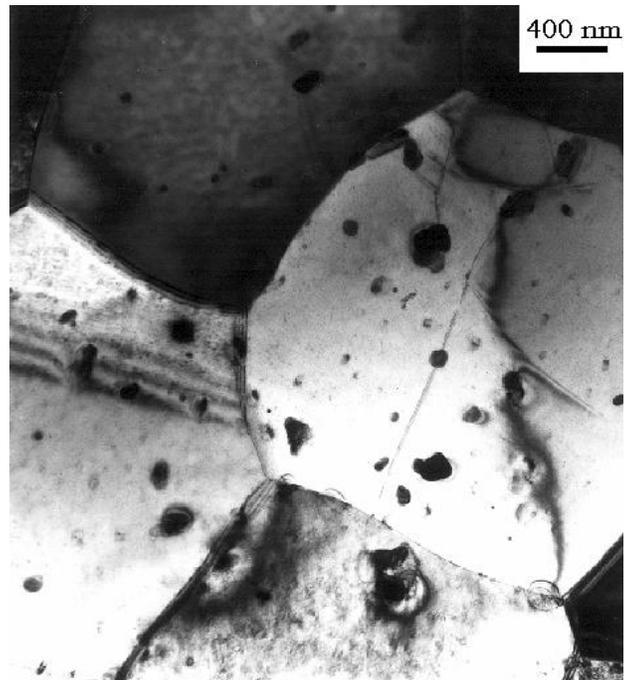


Figure II.4 : Grains de zircaloy-4 recristallisé (Coulée 1, matériau non hydruré). On remarque l'absence de dislocations aux joints de grains (Lecallier, 1996).

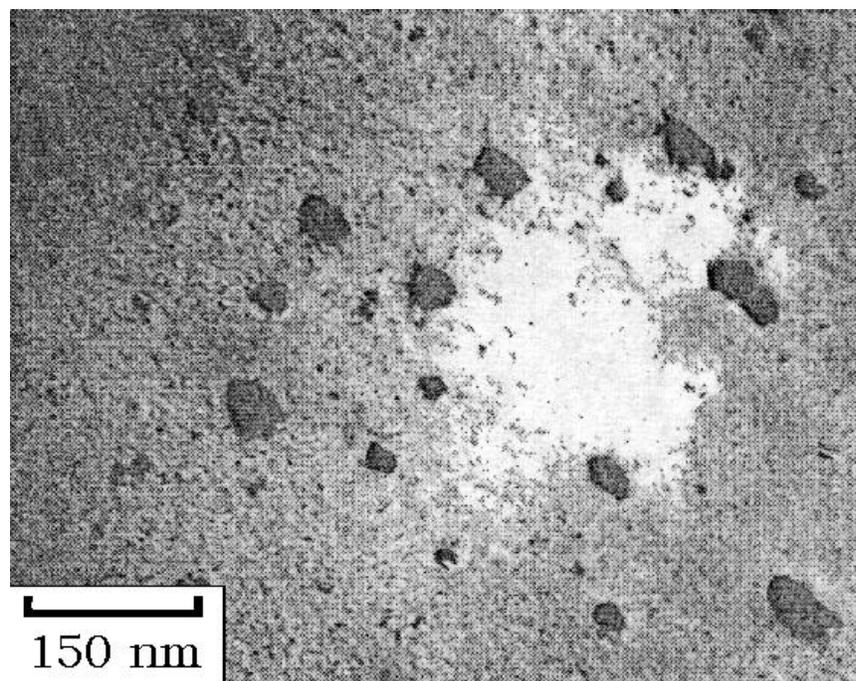
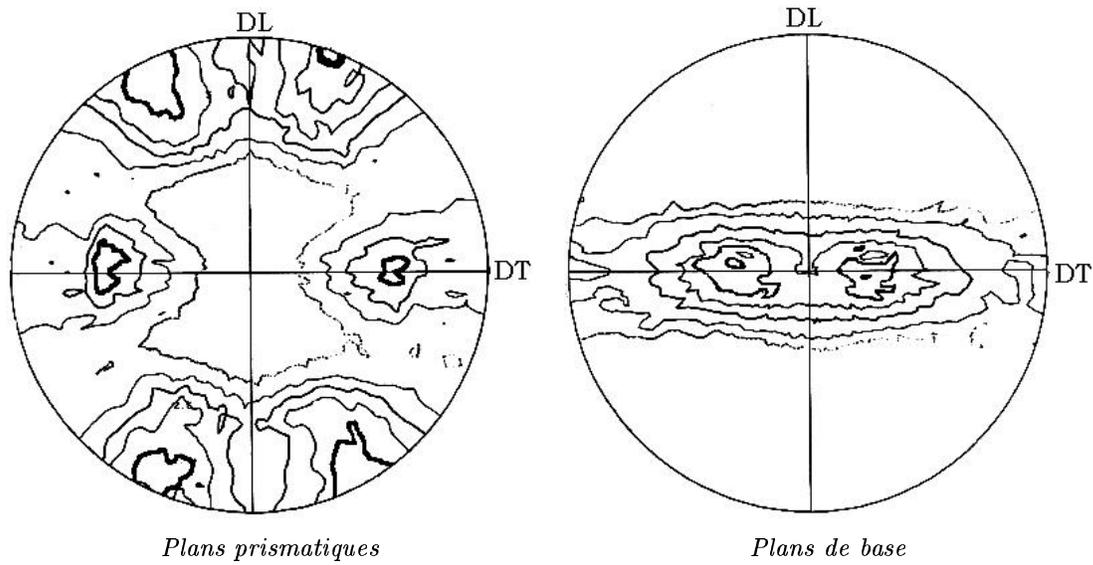
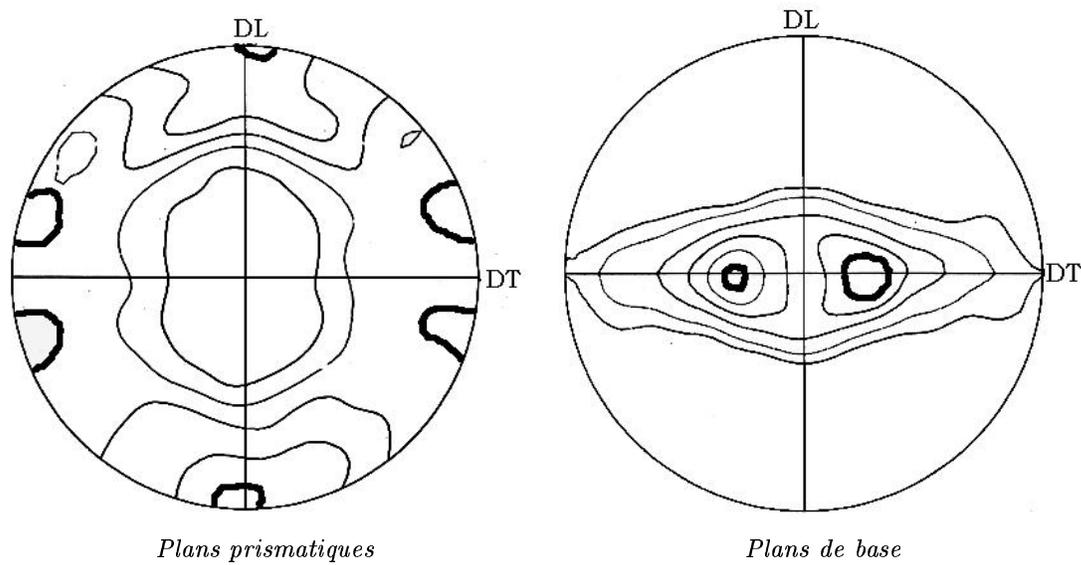


Figure II.5 : Précipités très fins (quelques dizaines de nanomètres) observés au MET sur du Zircaloy-4 recristallisé (Geyer, 1996).



a) Figure de pôles des tubes (Prat, 1994).



b) Figure de pôles des tôles de l'étude (Coulée 2).

Figure II.6 : Textures comparées des tubes et des tôles.

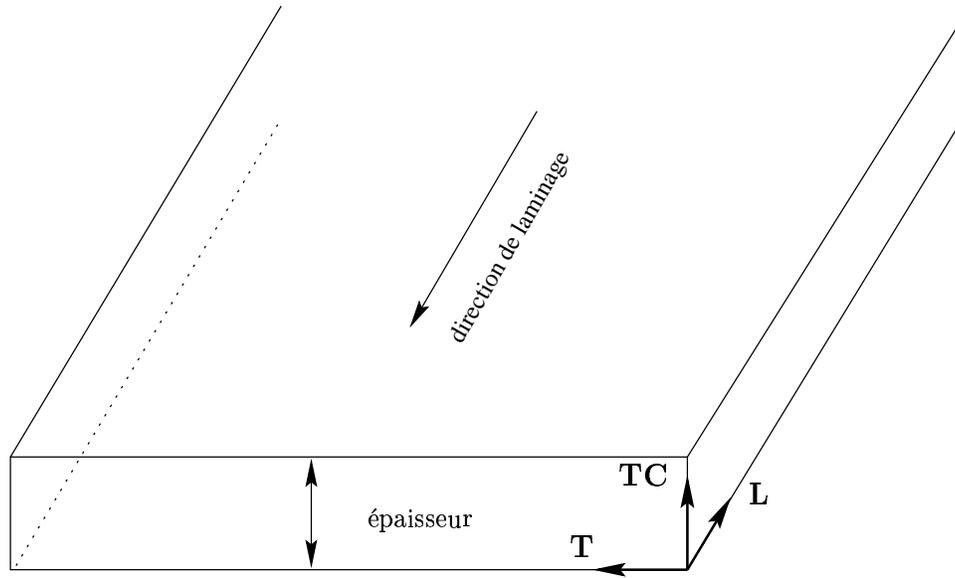
II.3 Orientation

Dans toute la suite de l'étude, on utilisera les notations suivantes pour le repérage des directions des tôles.

L sens long ou direction de laminage,

T sens travers,

TC épaisseur.



Chapitre -III-

Le Zircaloy-4 hydruré.

L' utilisation du Zircaloy-4 comme élément de structure de l'assemblage combustible a conduit à étudier son interaction avec l'hydrogène. En effet, lors de l'oxydation du zirconium par l'eau du circuit primaire, une partie de l'hydrogène dégagé par la réaction diffuse dans le matériau. Les observations micrographiques en fin de vie ont permis de mettre en évidence que l'hydrogène pénétrait en quantité suffisante pour conduire à la précipitation d'hydrures.

Avant d'étudier plus en détail les effets mécaniques liés à cette précipitation, ce chapitre présente les résultats concernant la formation et la caractérisation des hydrures.

Une étude comparative est menée entre différents matériaux utilisés habituellement dans l'industrie nucléaire et entre les différents traitements artificiels d'hydruration.

Pour une revue très complète de l'interaction entre l'hydrogène et le Zircaloy, on pourra se reporter à (Ells, 1968) ou, plus récemment, à (Northwood et Kosasih, 1983).

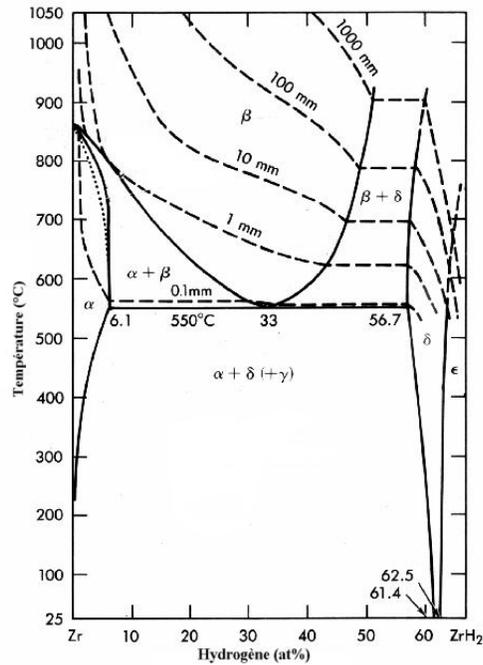


Figure III.1 : Diagramme d'équilibre zirconium - hydrogène (Mueller et al., 1968).

Hydrure	Teneur en H (Mueller et al., 1968)	Structure (Bradbrook et al., 1972)	Conditions de formation (Nath et al., 1973)
δ	61.4 à 62.5 % at. $ZrH_{1.5}$ à $ZrH_{1.66}$	Cubique Faces Centrées $a = 0.4773 - 0.4778$ nm	$V_{ref} < 2^\circ \text{ C /min}$
ϵ	> 63.5 % at. $ZrH_{1.7}$ à ZrH_2	Hexagonale compacte $a = 0.4980$ nm $c = 0.4445$ nm	Transformation martensitique de δ $2^\circ \text{ C /min} < V_{ref}$
γ	51 % at. ZrH	Quadratique Faces Centrées $a = 0.4596$ nm $c = 0.4969$ nm	Métastable $2^\circ \text{ C /min} < V_{ref}$ $V_{ref} < 10^\circ \text{ C /min}$

Tableau III.1 : Compositions et conditions de formation des hydrures de zirconium. V_{ref} représente la vitesse de refroidissement lors de la précipitation.

Hydrure	Morphologie	Précipitation	Transformation
δ	Plaquettes	Trans et intergranulaire	Bainitique
γ	Aiguilles	Transgranulaire	Martensitique

Tableau III.2 : Caractéristiques morphologiques des hydrures (Ells, 1968).

III.1 Le Zircaloy-4 et l'hydrogène.

III.1.1 Les différents hydrures de zirconium

Le diagramme de phases Zirconium / Hydrogène est présenté Figure III.1 (Mueller et al., 1968). La limite de solubilité de l'hydrogène dans le zirconium α à l'équilibre reste très faible, même pour des températures allant jusqu'à 400°C. Elle a été calculée par (Kearns, 1967) dans un premier temps. D'autres auteurs s'y sont ensuite intéressés et ont tenté de rendre compte de l'effet d'une contrainte extérieure (Puls, 1989; Nath et al., 1996), ou d'une modification de la concentration en éléments d'alliage (Yamanaka et al., 1997) sur le décalage de la solubilité. Le paragraphe III.1.3 traite plus en détail des facteurs influents sur la précipitation.

La saturation du matériau en hydrogène conduit ensuite à la formation de différentes phases appelées hydrures. La diagramme d'équilibre montre qu'il existe deux phases stables de l'hydrure de zirconium : l'hydrure δ et l'hydrure ϵ . Une autre forme d'hydrure est parfois observée lorsque la précipitation s'effectue dans des conditions hors équilibre. C'est l'hydrure γ . Les principales caractéristiques, les conditions de formation ainsi que les orientations d'orientation des hydrures avec la matrice zirconium sont reportées dans les Tableaux III.1, III.2 et III.3.

La précipitation conduit à une perturbation locale du réseau cristallin. (Espagno et al., 1960) utilisent la dilatation produite par la précipitation des hydrures pour déterminer la quantité de précipités formés. Le calcul des dilatations volumiques a été étendu aux axes cristallographiques du matériau (Bradbrook et al., 1972; Carpenter, 1973). Ces données sont consignées dans le Tableau III.3. L'hydrure ϵ est très rarement observé. Il n'a donc pas été étudié aussi complètement que les deux autres.

Hydrure	Orientations cristallographiques avec la matrice Zr α	Dilatation volumique moyenne (%)	Dilatation directionnelle (%)
δ	$\langle 1\bar{1}0 \rangle_{\delta} // \langle 11\bar{2}0 \rangle_{\alpha}$ $(111)_{\delta} // (0001)_{\alpha}$	17.2 %	$\langle 0001 \rangle_{\alpha}$ 7.20% $\langle 11\bar{2}0 \rangle_{\alpha}$ 4.58% $\langle 1\bar{1}00 \rangle_{\alpha}$ 4.58%
γ	$\langle 1\bar{1}0 \rangle_{\gamma} // \langle 11\bar{2}0 \rangle_{\alpha}$ $(111)_{\gamma} // (0001)_{\alpha}$	12.3 %	$\langle 0001 \rangle_{\alpha}$ 5.70% $\langle 11\bar{2}0 \rangle_{\alpha}$ 0.55% $\langle 1\bar{1}00 \rangle_{\alpha}$ 5.64%

Tableau III.3 : Relations d'orientation entre les hydrures et la matrice zirconium. Dilatations liées à la précipitation (Bradbrook et al., 1972; Perovic et al., 1992).

Au cours de cette étude, nous avons essayé autant que possible de nous rapprocher des conditions de précipitation observées en réacteur. Dans les tubes guides, les hydrures se forment en conditions isothermes (ou quasi-isothermes). On observe donc uniquement des hydrures δ . Dans la suite de ce chapitre, nous allons nous intéresser plus particulièrement à la formation et à la structure de cet hydrure.

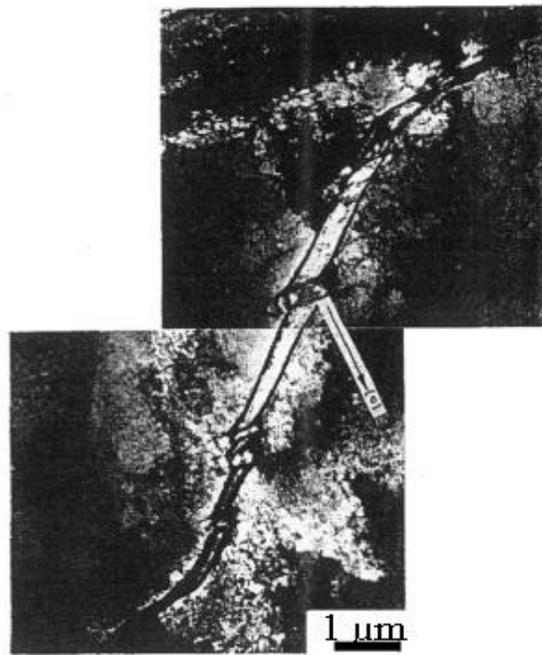


Figure III.2 : *Micro-plaquettes d'hydrures observées au MET par (Perovic et al., 1992) sur du Zircaloy-2 recristallisé.*

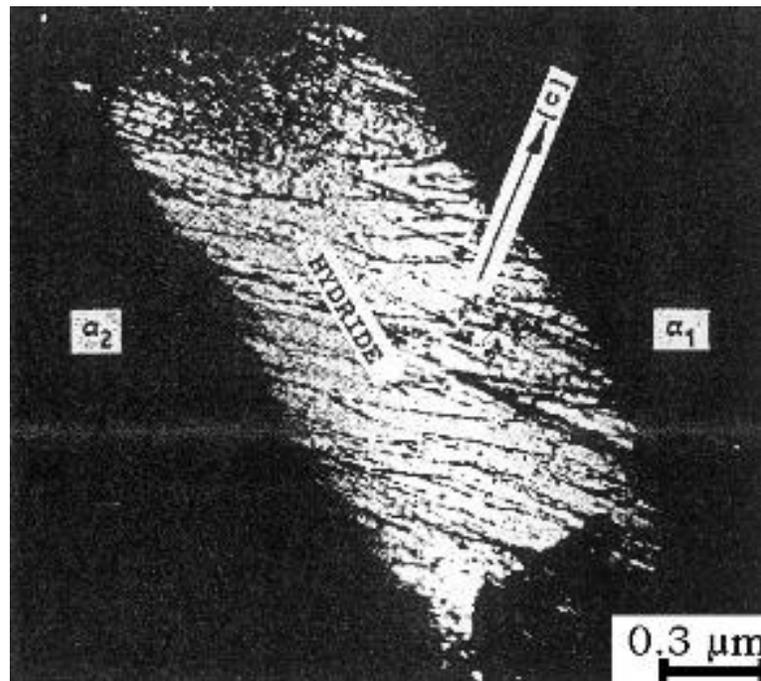


Figure III.3 : *Hydure "macroscopique" formé à un joint de grains par coalescence des micro-plaquettes et observé au MET par (Perovic et al., 1992) sur du Zircaloy-2 recristallisé. Les lignes de dislocations semblent suivre les anciennes faces des micro-plaquettes.*

III.1.2 Mécanismes de formation d'un hydrure δ

Le mécanisme de **formation de l'hydrure δ** dans les alliages de zirconium n'est pas encore complètement identifié. La précipitation a lieu lorsque la limite de solubilité du matériau est atteinte localement. Mais les sites de germination sont mal déterminés. (Northwood et Kosasih, 1983) pensent que la diffusion de l'hydrogène vers certaines régions du matériau pourrait être favorisée par des gradients de concentration, de température et de contrainte. (Perovic et al., 1992) indiquent que l'état des contraintes locales est le facteur prédominant lors de la germination des hydrures. Mais aucune analyse ne permet de conclure sur le fait que les joints de grains sont des sites privilégiés pour la formation des hydrures. La discussion reste d'autant plus ouverte à ce sujet, qu'aujourd'hui encore, selon le matériau étudié, les précipitations sont plus ou moins intergranulaires. L'effet des différents facteurs métallurgiques et leurs interactions sont encore mal connus. Les grandes tendances sont présentées dans le paragraphe III.1.3.

Pour ce qui est de la **croissance des précipités**, (Perovic et al., 1992) expliquent que la formation de l'hydrure est régie par un processus auto-catalytique. La formation d'une première plaquette très fine conduit à déformer localement la matrice de zirconium. Cela entraîne une augmentation de la contrainte autour de l'hydrure. Ce gradient de propriétés va conduire l'hydrogène à diffuser vers cette première plaquette. La teneur en hydrogène va donc augmenter encore et conduire à former un nouveau précipité proche de la première plaquette. Ce mécanisme est donc auto-entretenu. Il conduit à la formation d'empilements de petites plaquettes d'hydrures. Par la suite, si la teneur en hydrogène est suffisante, il peut y avoir coalescence de ces plaquettes pour former un hydrure plus massif.

Cette analyse de la précipitation permet de mettre en évidence les difficultés que l'on peut rencontrer lors de l'étude des hydrures de zirconium. En effet, il apparaît plusieurs **échelles d'observation** de ces précipités, qui peuvent conduire à des interprétations différentes quant à la structure étudiée. Par exemple, (Perovic et al., 1992) observent à l'échelle du MET des plaquettes de précipités qui sont alignées. A plus faible grandissement, elles semblent former un seul hydrure. Ils introduisent donc la notion **d'hydrure apparent**, qui est celui observé aux échelles des microscopes optique et à balayage (Figure III.2). Ils montrent aussi des hydrures dont la structure n'est plus constituée de plaquettes, car il s'est produit une coalescence des micro-précipités qui les constituaient (Figure III.3).

Cette difficulté à définir clairement la notion d'hydrure et leur taille caractéristique a rendu plus difficile encore l'étude des **plans de précipitation**. Ainsi, pendant longtemps les auteurs se sont contentés d'orienter les plaquettes macroscopiques. La tâche a été encore alourdie par le caractère intergranulaire de la précipitation. Dans une optique de clarification, (Westlake, 1968) a repris tous les matériaux étudiés par les différents auteurs ayant publié sur le sujet. Il leur a ensuite appliqué les mêmes méthodes d'observation pour déterminer les plans de précipitation.

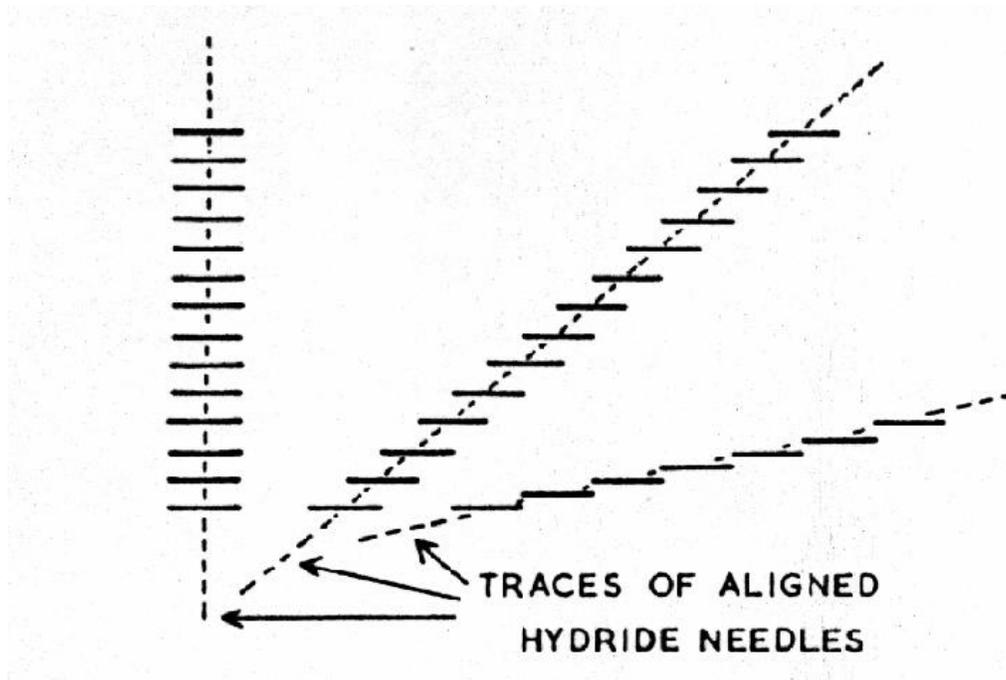


Figure III.4 : Orientations des macro-hydrures et des micro-plaquettes selon les conditions de contrainte et de déformation dans le plan de précipitation (Bradbrook et al., 1972).

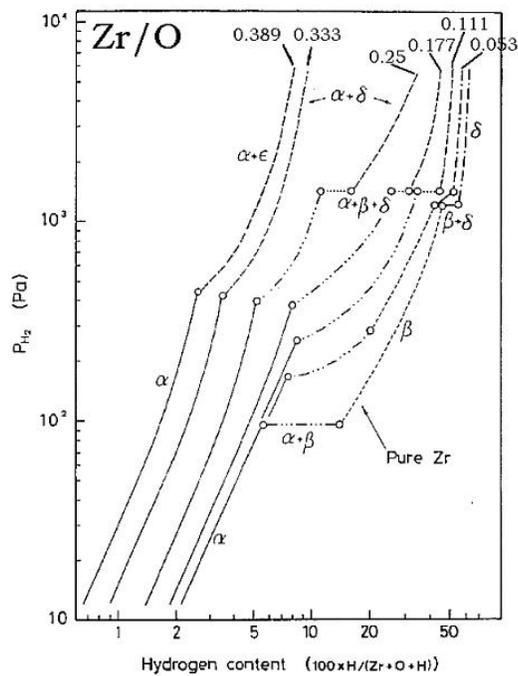


Figure III.5 : Evolution de la limite de solubilité de l'hydrogène en fonction de la teneur atomique en oxygène interstitiel pour le zirconium α à 700°C (Yamanaka et al., 1989).

Cette initiative intéressante a permis de démontrer que le plan prépondérant pour la précipitation des plaquettes était, pour le Zircaloy-4, le plan $(10\bar{1}7)$ du zirconium (proche du plan de base). Ce résultat permet d'expliquer les relations entre la texture cristallographique et l'orientation des plaquettes. Toutefois, (Bradbrook et al., 1972; Perovic et al., 1992) montrent que si les micro-plaquettes présentent bien cette relation d'orientation avec les grains de zirconium, les hydrures apparents peuvent, eux, s'orienter très différemment selon les conditions locales de déformation ou de contrainte dans le plan de précipitation (Figure III.4).

III.1.3 Les facteurs influençant la précipitation

Il existe de nombreux facteurs permettant de modifier les sites de précipitation et le mode de croissance des hydrures (Westlake, 1968). Il est possible d'en recenser deux types :

- Métallurgiques :
 - Concentration en interstitiels (oxygène, hydrogène...) (Yamanaka et al., 1989; Yamanaka et al., 1997)
 - Contraintes résiduelles et déformations plastiques résiduelles souvent liées à l'état métallurgique (recristallisé, détendu...) (Perovic et al., 1981; Puls, 1981; Perovic et al., 1982; Perovic et al., 1992; Bai et al., 1994a)
 - Texture (Östberg, 1971)
 - Phase (Perovic et al., 1983; Perovic et Weatherly, 1984; Bai et al., 1994a)
- Mécaniques :
 - Contrainte appliquée (Ells, 1970; Hardie et Shanahan, 1975) - Température (Bai, 1996)

L'interaction entre ces différents facteurs va conduire à déplacer les équilibres de solubilité de l'hydrogène dans la matrice. Ils vont aussi conduire à favoriser certains sites de précipitation. Enfin, ils vont orienter les hydrures dans le matériau. Pour une description détaillée de l'effet de chaque facteur, on se reportera aux références mentionnées ci-dessus et à (Northwood et Kosasih, 1983).

Retenons que l'oxygène en interstitiel modifie la **solubilité** de l'hydrogène (voir Figure III.5 à 700°C). L'effet des contraintes internes et des traitements thermomécaniques a été présenté par (Perovic et al., 1992). Ils semblent indiquer que si les contraintes sont bien relâchées dans le grain, celui-ci devient un **site de germination** acceptable. On retrouve cette compétition entre grains et joints de grains selon le traitement thermique final après laminage. Le matériau recristallisé aura une précipitation plus intergranulaire que le matériau détendu (Bai et al., 1994b).

En ce qui concerne l'**orientation des plaquettes**, notons l'effet de texture qui conduit à favoriser certains alignements (Westlake, 1968). Ces alignements peuvent être modifiés si la précipitation s'effectue sous une contrainte externe. Par exemple, si la contrainte est de traction, les hydrures ont tendance à s'orienter perpendiculairement à celle-ci (parallèlement si elle est de compression). Mais cette réorientation nécessite une contrainte très importante et ne se produit pas dans les éléments de structure.

Notons en dernier lieu que la présence de gradients de température peut conduire à des précipitations très hétérogènes au sein du matériau. Les zones les plus chaudes vont avoir tendance à dissoudre plus d'hydrogène et la première précipitation va avoir lieu dans la région froide. Entretienue par le mécanisme auto-catalytique et par la présence d'une source d'hydrogène (zone chaude), la précipitation va s'accroître encore dans cette région (Prat, 1994).

III.2 Le surchargement

III.2.1 Mise en évidence

Lorsque l'on cherche à étudier la précipitation de l'hydrogène dans le zirconium, on dispose des coefficients de diffusion de l'hydrogène dans la matrice et du diagramme de phase zirconium-hydrogène, éventuellement des lois d'évolution de la solubilité en fonction de différents paramètres. Le mécanisme attendu est que l'hydrogène va diffuser dans le matériau en suivant une loi classique de type Fick (Kearns, 1972). Puis, lorsque la solubilité est atteinte localement (tout d'abord en surface), des hydrures vont précipiter. Ce mécanisme doit donc conduire à la formation en surface d'une couche massive d'hydrures. Or, pour toutes les hydrurations artificielles, les hydrures sont présents au coeur du produit et aucune couche n'est observée en surface.

De nombreux auteurs ont étudié ce phénomène, l'attribuant tout d'abord à un effet de cyclage thermique. Par exemple, (Westlake et Ockers, 1970) réalisent des hydrurations artificielles à partir d'une couche massive d'hydrures formée en surface par électrolyse. Ils font ensuite subir au matériau des cycles successifs de chauffage, maintien puis refroidissement. Ils observent, pour chaque cycle, la proportion d'hydrures précipités dans le matériau. Ils montrent ainsi que plus le nombre de cycles est important, plus la quantité d'hydrogène absorbé augmente.

Pour eux, ce phénomène est lié au déplacement de la teneur d'équilibre en hydrogène du fait de la précipitation. La présence d'un hydrure permettrait à la matrice environnante d'absorber plus d'hydrogène que ne le prévoit le diagramme d'équilibre. La prise croissante d'hydrogène est donc associée à la non redissolution des hydrures lors du réchauffage.

D'autres auteurs (Marino, 1971; Hillner et al., 1972) ont montré par la suite que le cyclage thermique était superflu et que la simple précipitation d'hydrures dans la matrice permettait d'augmenter la quantité d'hydrogène absorbé. C'est ce qui est observé en réacteur. La précipitation de l'hydrogène dans les éléments de structure est assez uniforme alors que le nombre de cycles thermiques est réduit (arrêts du réacteur). Ils ont donc mis en évidence cette capacité que possède le zirconium d'accepter beaucoup plus d'hydrogène que ne le prévoit le diagramme d'équilibre, par un effet "bénéfique" de la précipitation des hydrures. C'est le **surcharge**.

Cette propriété a été largement exploitée par la suite pour étudier, dans les laboratoires, la fragilisation induite par cette précipitation d'hydrures (voir Chapitre V). Elle permet en

effet, par des traitements artificiels bien maîtrisés, d'obtenir assez rapidement des teneurs en hydrogène pouvant varier dans une large gamme (typiquement de 200 à plus de 2000 ppm).

III.2.2 Chargement artificiel en hydrogène

a) Les traitements disponibles

Plusieurs méthodes d'hydruration artificielle sont utilisées dans la littérature. Elles sont de deux sortes :

- Mise en présence de la matrice avec une quantité contrôlée d'hydrogène et cycle thermique sous vide jusqu'à absorption de tout l'hydrogène. Cette technique est utilisée par (Arsène, 1997; Puls, 1991; Westlake et Ockers, 1970)
- Immersion de la matrice dans une solution fournissant l'hydrogène (eau, vapeur, mélange gazeux...). La quantité absorbée est reliée directement au temps d'exposition. Cette méthode est utilisée par (Prat et al., 1998; Pegoud et Guillaumin, 1972; Yunchang et Koss, 1985; Huang et Huang, 1993; Bai et al., 1994b).

Ces deux méthodes conduisent à des précipitations qui sont semblables du point de vue de la répartition dans la matrice. Les hydrures précipitent de manière homogène dans l'épaisseur du matériau. Par contre, il est possible que ces traitements conduisent à des hydrures dont le comportement mécanique est différent (Bai, 1996).

b) Le chargement artificiel utilisé

L'ensemble des tôles de l'étude a été hydruré par **Zircotube**. La méthode utilisée est identique à celle décrite dans (Prat et al., 1998). Le matériau, placé dans un four à 400°C, est balayé par un flux constant d'Argon – Hydrogène. Le débit est suffisant pour éviter une trop forte pénétration d'air dans l'enceinte. Suite à ce traitement, le matériau est refroidi très lentement ($V_{ref} < 2^\circ \text{ C /min}$) afin de permettre la précipitation de l'hydrure δ .

Cette méthode a été caractérisée et permet d'obtenir une précipitation très proche de celle observée en réacteur. Elle présente l'avantage d'être rapide et permet de traiter simultanément un grand nombre d'échantillons dont la taille reste relativement importante ($240 \times 40 \text{ mm}^2$). Elle comporte tout de même quelques inconvénients.

- Malgré les précautions prises pour ne pas laisser pénétrer d'air, il se forme toujours une faible couche d'oxyde en surface des échantillons (quelques couches atomiques). La formation de cette couche ralentit la pénétration de l'hydrogène dans le matériau. Ce phénomène n'est gênant que pour les fortes teneurs, nécessitant un long maintien en four. Afin d'éviter des traitements trop longs, pour lesquels la diffusion de l'hydrogène serait bloquée par la présence de la couche d'oxyde, les plaques sont sorties du four pour leur ôter la couche parasite. L'enlèvement s'effectue par un polissage mécanique suivi d'un décapage dans une solution d'acide fluorhydrique. La teneur en hydrogène est ensuite déterminée sur des coupons par fusion du métal. Les plaques n'ayant pas atteint la teneur souhaitée sont remises en four. Ainsi, pour les teneurs dépassant les 400 ppm, les tôles ont subi au moins deux cycles d'hydruration.

Ceci conduit à une perte de matière dans l'épaisseur des tôles. Pour les teneurs de plus de 1000 ppm, il est possible de perdre 100 μm sur les 460 μm de départ. Cette perte peut s'avérer gênante pour l'étude du comportement du matériau, car habituellement, les effets d'épaisseur ne sont pas négligeables. C'est pourquoi un soin particulier a été apporté aux hydrurations afin de réduire au minimum la perte de matière. Notons toutefois que ((Prat, 1994)) a utilisé la même technique d'hydruration et n'a pas mis en évidence un effet de l'épaisseur sur le comportement et la rupture du matériau (sauf pour la propagation de fissure).

- Cette technique d'hydruration repose sur la connaissance a priori de la cinétique de prise en hydrogène. Si celle-ci a été largement caractérisée, elle reste incertaine pour les fortes teneurs. On observe donc de fortes variations pour les teneurs supérieures à 800 ppm. Ainsi, pour une teneur souhaitée de 1000 ppm, le traitement pourra conduire à des prises allant de 800 ppm à 1200 ppm, voire plus. Le nombre élevé d'échantillons traités permet de s'affranchir de ces dispersions. Il se trouve toujours parmi les plaques une teneur proche de celle souhaitée.

- Une dernière remarque peut être faite quant à la répartition des hydrures dans les tôles. Si on observe des dispersions entre différentes tôles, il n'est pas non plus surprenant d'observer, au sein d'une même plaque, des variations de concentration. C'est particulièrement le cas pour certaines plaques hydrurées à de très fortes teneurs (> 1000 ppm). Les dosages effectués en partie haute et en partie basse des tôles peuvent présenter jusqu'à 500 ppm d'écart. Ces dispersions ne sont pas très gênantes pour l'étude si on remarque que :

Les variations sont observées sur une longueur de 240 mm. Or toutes les éprouvettes testées par la suite ont une longueur utile qui ne dépasse pas les 60 mm. Il est donc probable que les hétérogénéités seront réduites sur cette longueur.

La zone où se produit la rupture est très petite. En général, la partie de l'éprouvette concernée est de 10 mm^2 . Il est donc possible, a posteriori, de déterminer la teneur locale en hydrogène par un dosage dans la zone rompue. C'est cette teneur qui sera retenue pour dépouiller les résultats.

Les nombreuses observations effectuées pour caractériser la répartition des hydrures après traitement n'ont pas permis de mettre en évidence des hétérogénéités aux échelles citées ci-dessus (de l'ordre du cm^2). Il est donc probable que les variations de composition dans une même éprouvette ne sont pas très importantes (de l'ordre de 200 à 300 ppm).

III.2.3 Teneurs obtenues

Les résultats obtenus lors des précédentes études concernant la fragilisation par l'hydrogène (Northwood et Kosasih, 1983; Bai et al., 1994b) ont mis en évidence une transition ductile-fragile pour une teneur en hydrogène de 600 ppm. Ceci a conduit les fabricants d'assemblages à imposer comme critère métallurgique de tenue mécanique des tubes guides que la teneur en hydrogène ne devait pas dépasser 600 ppm au cours de l'utilisation. Or, des études plus récentes (Arsène, 1997; Prat et al., 1998) semblent indiquer que la transition

ductile–fragile n’apparaît pas systématiquement ou alors se produit au-delà des teneurs étudiées (plus de 1000 ppm).

Il semble donc important d’utiliser pour cette étude des teneurs appartenant à cette gamme (0–1200 ppm) afin de déterminer si : (1) il existe réellement une transition ductile–fragile à 600 ppm, (2) cette transition se produit pour des teneurs plus élevées. Si cette transition n’apparaît pas, l’étude des fortes teneurs pourra servir de base à la justification de la suppression du critère métallurgique.

Toutes les hydrurations ont été réalisées dans cette optique. Sur la coulée 1, utilisée pour les essais préliminaires, cinq teneurs ont été étudiées (200, 400, 600, 800 et 1000 ppm). Pour la coulée 2, à partir des résultats de la première série d’essais, seules quatre teneurs ont été hydrurées (200, 600, 800 et plus de 1000). Les plaques hydrurées à plus de 1000 ppm peuvent atteindre des teneurs très importantes allant jusqu’à 1600 ppm.

III.3 Caractérisation des hydrures

Les méthodes de caractérisation des hydrures permettent de déterminer aussi bien la structure cristallographique et les relations d’orientation avec le zirconium (MET) que le caractère inter ou transgranulaire de la précipitation (MEB). Les précédentes études effectuées sur les hydrures dans le Zircaloy–4 ont montré que, selon l’échelle d’observation, les conclusions concernant la structure et l’orientation des hydrures pouvaient être très différentes (voir § III.1.2).

Jusqu’à présent, les études se sont attachées à décrire la morphologie des hydrures, leur structure de dislocations ainsi que leur sous-structure en empilement de plaquettes plus fines. Il n’existe pas de résultat concernant le dosage des hydrures en hydrogène, en oxygène ou en éléments d’alliage. Il n’a pas non plus été montré que la population d’hydrures était homogène, c’est à dire que tous les hydrures avaient les mêmes caractéristiques. Pourtant, lors du chargement en hydrogène, une partie des hydrures précipite en température, compte tenu de la faible solubilité de l’hydrogène à 400°C. Une autre partie précipite au refroidissement, donc dans des conditions légèrement différentes. Il est probable que ces deux populations ne possèdent pas exactement les mêmes propriétés.

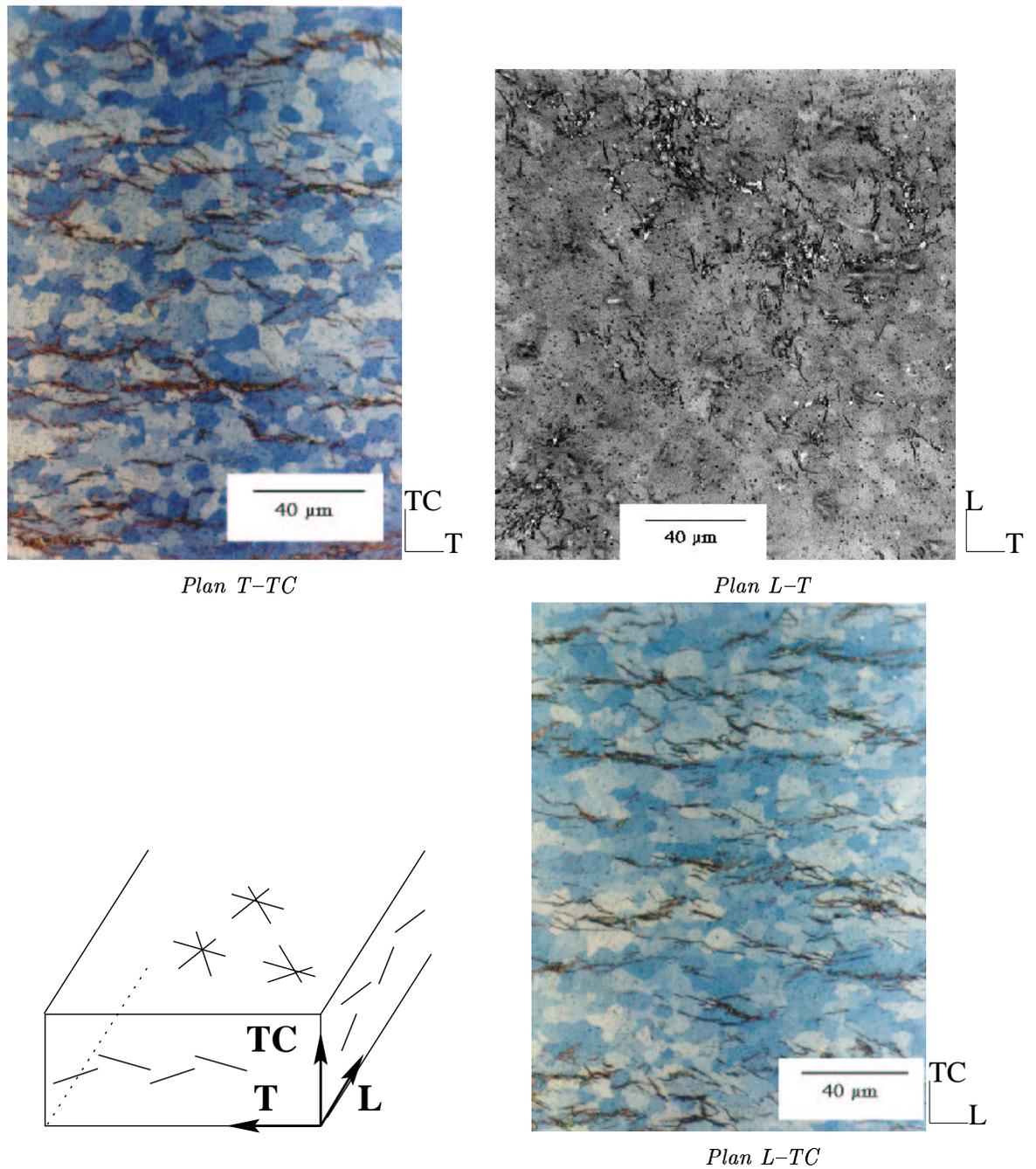


Figure III.6 : Micrographies optiques dans les trois plans de la tôle montrant la répartition et la morphologie des hydrures. Matériau de l'étude hydruré à 800 ppm.

Ces considérations concernant une caractérisation plus poussée des hydrures ne sont apparues qu'à la fin de ce travail. C'est pourquoi nous n'avons pas pu nous intéresser à cette tâche suffisamment tôt pour trouver quelle méthode d'analyse conviendrait à une telle étude.

III.3.1 Morphologie et répartition

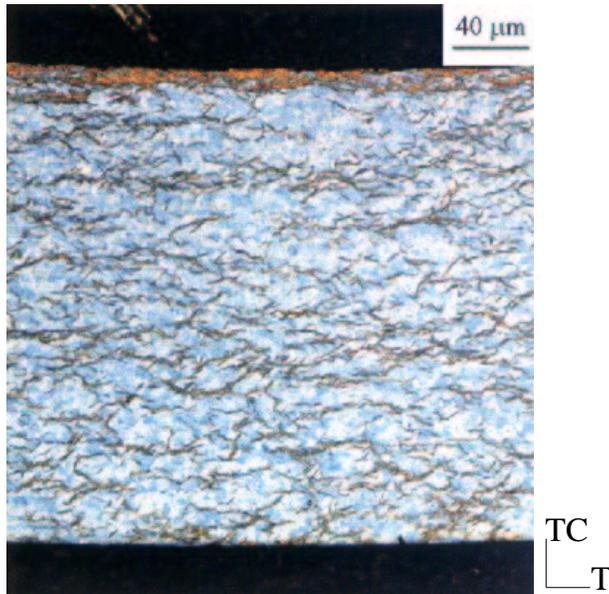
a) Macro-hydrures

Dans un premier temps, nous nous sommes intéressés aux hydrures observables au microscope optique. Ce type d'observation permet de caractériser la morphologie tridimensionnelle ainsi que la répartition des hydrures à l'échelle des éprouvettes.

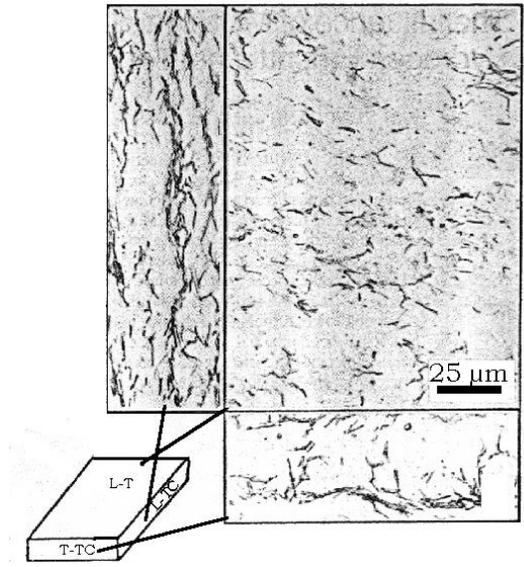
La précipitation obtenue suite au traitement artificiel est présentée Figure III.6 pour les trois plans de la tôle. Les hydrures apparaissent en orange, la matrice en bleu. Le contraste interférentiel permet de révéler les différentes orientations des grains. La répartition des hydrures est homogène dans l'épaisseur et dans le plan de la tôle. En particulier, aucune couche d'hydrures massifs ne se forme en surface. L'intersection d'un hydrure avec chacun des trois plans de l'espace correspond à un segment de droite. L'hydrure a donc une forme de plaquette. En première approximation, la plaquette macroscopique a une épaisseur de 200 à 300 nm pour une largeur et une longueur de 10 μm .

La précipitation est aussi bien inter que transgranulaire. Les hydrures macroscopiques peuvent traverser plusieurs grains. Ils semblent se répartir dans des zones privilégiées dans l'épaisseur de la tôle. La précipitation dans ces tôles est intermédiaire entre celles observées sur le matériau détendu et celles observées sur le matériau recristallisé. Ceci semble en accord avec les résultats présentés dans le Chapitre II qui montrent que le matériau possède des grains équiaxes signes de la recristallisation mais une texture qui n'a pas encore tourné.

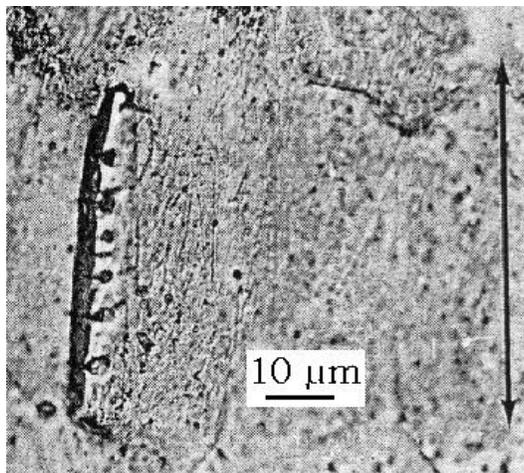
Les hydrures macroscopiques présentent un fort alignement dans le plan (L-TC). La normale aux plaquettes est pratiquement parallèle à la normale de la tôle. Cet alignement est moins marqué dans le plan (T-TC). Ce type de précipitation est à rapprocher de la texture cristallographique déterminée sur les tôles (voir Chapitre II) et des résultats obtenus par Westlake (Westlake, 1968) sur le Zircaloy-4. Il semble en effet acquis que la précipitation des hydrures s'effectue préférentiellement dans le plan $(10\bar{1}7)$ du zirconium, qui est proche du plan de base. La texture des tôles est telle qu'effectivement, les plans de base correspondent à peu près au plan de la tôle. Ceci permettrait d'expliquer pourquoi les hydrures sont alignés avec la direction de laminage.



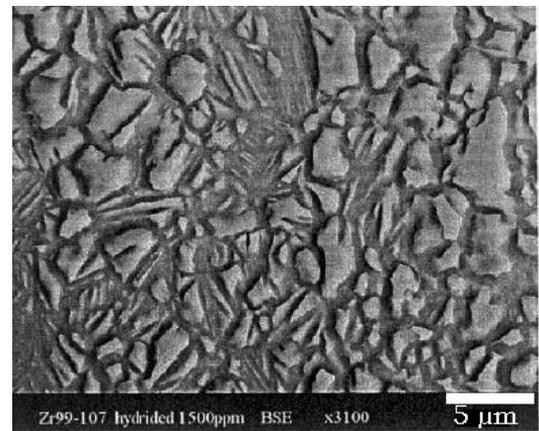
(Prat et al., 1998)
Tube Zy-4 recristallisé, 1200 ppm



(Yunchang et Koss, 1985)
Tôle Zy-2 recristallisée, 650 ppm



(Puls, 1991)
Tôle Zr épaisse (3 mm) détendue



(Arsène, 1997)
Tube Zy-4 recristallisé, 1500 ppm, plan L-TC

Figure III.7 : Différentes morphologies et répartitions d'hydrures.

La précipitation observée sur les tôles est très proche de celles rapportées par (Prat et al., 1998) et (Bai et al., 1994b) sur des tubes et des tôles de Zircaloy-4 recristallisé et (Yunchang et Koss, 1985) sur des tôles de Zircaloy-2 recristallisé. Elle se rapproche également des précipitations observées sur des tubes guide ayant séjourné en réacteur. Par contre, elle est assez différente des précipitations rapportées par (Puls, 1991) sur des tubes de force en Zr2.5%Nb. Les hydrures qu'il observe sont plus 'massifs'. Ils ont une longueur moyenne de 50 μm pour une épaisseur de 2 à 3 μm .

Elle est différente des précipitations observées par (Arsène, 1997) sur des tubes recristallisés en Zircaloy-4 (alliage ABB dont la taille de grain est d'environ 1 à 5 μm) pour les très fortes teneurs (2000 à 3000 ppm). Pour des teneurs identiques à celles de l'étude, les deux matériaux présentent une précipitation similaire même si la longueur des hydrures est plus faible (0.5 à 2 μm). Par contre, les hydrures observés pour les fortes teneurs sont beaucoup plus épais. Leur désorientation est également plus importante.

La Figure III.7 regroupe les différentes morphologies rapportées dans la littérature.

b) La structure des hydrures

Une observation à l'échelle du MEB permet de mettre en évidence que les alignements d'hydrures observés au microscope optique sont formés par l'empilement de plaquettes plus fines. Ceci est illustré par la Figure III.8. Ces observations semblent confirmer que le mécanisme de formation des hydrures est proche de celui décrit et proposé par (Perovic et al., 1992). La précipitation serait donc un phénomène autocatalytique entretenu par la diffusion de l'hydrogène dans les zones déformées plastiquement ou soumises à un champ de contraintes élastiques près des hydrures récemment formés.

Les observations réalisées au MET par (Bai, 1992; Perovic et al., 1992; Arsène, 1997) ne permettent pas de détecter réellement des sous-structures dans les hydrures. Perovic (Figure III.3) remarque que les structures de dislocations témoignent de la coalescence des micro-plaquettes (quand celle-ci a eu lieu). Arsène observe une transition dans le type d'hydrure entre les faibles et les fortes teneurs en hydrogène. Pour les faibles concentrations, les hydrures présentent assez peu de défauts. Par contre pour les hydrures formés aux fortes teneurs, il est possible de détecter des macles (Figure III.9). Aux teneurs intermédiaires, elle reporte deux types d'hydrures qui semblent témoigner d'un mélange entre les hydrures 'basse' et les hydrures 'haute' teneur.

Encore une fois, aucune étude n'a mis en évidence une éventuelle différence de caractéristiques entre les hydrures formés en température et les hydrures formés au refroidissement.

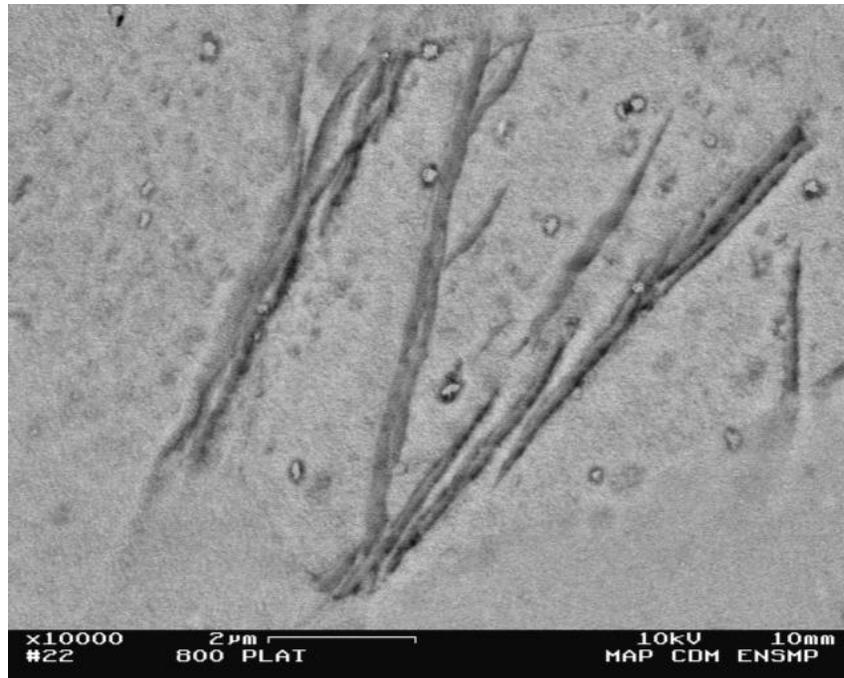


Figure III.8 : *Empilements des plaquettes d'hydrures observés sur le matériau de l'étude hydruré à 800 ppm.*

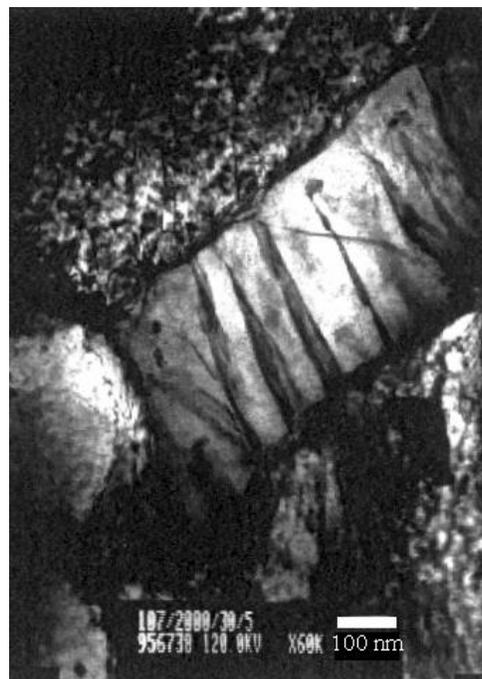


Figure III.9 : *Présence de macles dans un hydrure intergranulaire observé au MET sur du Zircaloy-4 recristallisé hydruré à 2000 ppm (Arsène, 1997).*

Les hydrures observés dans cette étude n'ont pas été caractérisés au MET. Le terme hydrure s'appliquera donc aux plaquettes observées au MEB, dont la taille caractéristique est de $10 \times 10 \times 0.3 \mu\text{m}^3$.

III.3.2 Discussion

Pour toute l'étude, le choix a été fait de n'étudier la précipitation que dans le matériau initial. Nous n'avons donc pas cherché à caractériser l'effet de la contrainte ou du traitement thermique sur la précipitation dans les tôles, ceci afin de réduire le champ d'investigation pour l'étude des propriétés mécaniques. La discussion traite donc uniquement de la précipitation sans charge dans un matériau recristallisé, non prédéformé.

a) Mécanisme de formation de l'hydrure

A partir des données rassemblées sur le matériau de l'étude mais aussi sur d'autres nuances très proches, il semble qu'un mécanisme de précipitation se dégage. Il est proche de celui proposé par (Perovic et al., 1992). Les hydrures obtenus pour les teneurs inférieures à 1500 ppm présentent des particularités laissant penser qu'effectivement, ils résultent d'un mécanisme auto-catalytique (voir §III.3.1 b). Ils sont assez fins et regroupés en amas. Ils sont alignés les uns avec les autres et en relation avec la texture de la matrice.

D'autre part, (Arsène, 1997) observe que pour des teneurs supérieures à 2000 ppm, les hydrures deviennent plus massifs. Ils ont alors tendance à se regrouper aux joints de grains pour former un "réseau continu". Cette évolution dans la précipitation semble confirmer que pour un temps de maintien assez long, ou pour des teneurs suffisantes, il y a coalescence des micro-plaquettes pour former des hydrures plus massifs. Ces hydrures plus importants comportent d'ailleurs un réseau interne de défauts laissant présager de l'existence d'une structure préliminaire.

Ce mécanisme de croissance puis coalescence des plaquettes semble en bon accord avec ce qui est observé sur le matériau de l'étude. Celui-ci ne présente pas le dernier stade pour lequel les hydrures deviennent très massifs car les teneurs étudiées sont sans doute trop faibles.

Ces considérations restent qualitatives et rien encore ne permet de déterminer la teneur pour laquelle il va y avoir coalescence des micro-plaquettes. Pour le matériau étudié par (Bai, 1992), il semblerait qu'elle se soit produite pour des teneurs assez faibles (la transition ductile-fragile à 600 ppm étant en fait une transition dans la précipitation).

b) Effet du traitement d'hydruration

(Bai, 1996) étudie l'effet de la température du traitement d'hydruration sur la population d'hydrures formés et sur leur influence sur la ductilité du Zircaloy-4 standard traité β . Il effectue les hydrurations en four sous balayage argon / hydrogène, à 400 °C et à 700 °C. Il caractérise ensuite l'effet de la précipitation à l'aide d'essais de traction sur éprouvettes lisses. Il montre que la fragilisation est plus importante, pour une même teneur en hydrogène, lorsque l'échantillon a été hydruré à 400 °C.

Selon lui, ces observations permettent de mettre en évidence l'effet du traitement d'hydruration sur les caractéristiques mécaniques des hydrures formés. Il explique qu'en effet, lors de la précipitation à 400 °C, les hydrures se forment tous pendant le maintien en température. Alors que pour le traitement à 700 °C, ils se forment en grande partie lors du refroidissement ($V_{ref} < 1.4^{\circ}\text{C}/\text{min}$). D'autre part, pour les teneurs en hydrogène de plus de 600 ppm, le second traitement s'effectue dans le domaine biphasé α/β . La précipitation des hydrures au refroidissement s'accompagne donc de la transformation de phase du zirconium. Toutefois, le traitement à 700°C peut avoir modifié le matériau de départ. Il est donc important pour ce type d'étude de rester en dessous des températures de transition de phase et de recristallisation.

Les premières études concernant la précipitation des hydrures avaient mis en évidence l'effet de la vitesse de refroidissement sur le type d'hydrure formé (δ ou ϵ). Les résultats présentés par Bai semblent compléter ces données en montrant que, pour l'hydrure δ , les conditions de formation (en température ou au refroidissement) vont avoir une influence sur la structure ou la composition de l'hydrure et, à travers elles, sur ses propriétés mécaniques, ce qui a déjà été étudié par (Barraclough et Beevers, 1969).

Par contre, l'effet de l'environnement d'hydruration (vide, gaz, eau...) n'a jamais été caractérisé. Pour ces différents traitements, les cinétiques de pénétration de l'hydrogène sont assez différentes. Il est fort probable que ceci aura un effet sur les hydrures formés et donc sur leurs propriétés mécaniques.

Des analyses réalisées au SIMS sur des échantillons hydrurés issus de cette étude ont mis en évidence un enrichissement en oxygène de la matrice autour des hydrures. Cet oxygène pourrait avoir été rejeté lors de la formation de l'hydrure. Les éléments d'alliage présentent eux aussi ce type de répartition. L'interface hydrure/matrice présentera donc des propriétés mécaniques modifiées par rapport à celles du métal de base.

Ces différentes observations mettent en lueur l'importance d'une étude plus approfondie du mécanisme de formation de l'hydrure afin de relier structure, comportement mécanique et interaction avec la matrice. Une meilleure connaissance de l'hydrure et de son environnement permettrait en effet de mieux comprendre quels sont les mécanismes mis en jeu lors de la rupture de l'hydrure.

En résumé

*L*es principaux résultats concernant la caractérisation de la précipitation des hydrures dans le Zircaloy-4 et en particulier dans le matériau de l'étude sont rappelés ici.

- ★ *Il existe trois hydrures de zirconium dont deux sont observés habituellement. Il s'agit de l'hydrure γ qui a une structure Quadratique à Faces Centrées et qui est obtenu pour des vitesses de refroidissement assez élevées. Il précipite plutôt dans les grains. L'autre est l'hydrure δ qui a une structure Cubique Faces Centrées et qui est obtenu pour des vitesses de refroidissement très faibles. Selon l'état métallurgique du matériau, il précipite dans les grains (état détendu) ou aux joints de grains (état recristallisé). C'est celui qui sera étudié.*
 - ★ *La solubilité de l'hydrogène dans le zirconium est contrôlée par de très nombreux facteurs, métallurgiques ou mécaniques.*
 - ★ *L'hydruration (précipitation d'hydrures) ne suit pas un schéma classique de diffusion / précipitation. En particulier, la matrice peut accepter beaucoup plus d'hydrogène que ne le prévoient les calculs de solubilité. Ce phénomène, appelé **superchargement**, est directement lié à la présence d'hydrures dans le matériau.*
 - ★ *Les sites de germination et les orientations des hydrures dépendent fortement du matériau étudié. Pour le Zircaloy-4 de l'étude, les hydrures précipitent aussi bien dans les grains qu'aux joints de grains. Leur orientation, pour les tôles de l'étude, est en forte corrélation avec la texture du matériau. Il semble que les plaquettes précipitent effectivement dans un plan proche du plan de base du zirconium.*
 - ★ *Le mécanisme proposé par Perovic (Perovic et al., 1992) semble être le mieux adapté pour décrire ce qui est observé sur le matériau de l'étude. Les hydrures sont alignés et regroupés en amas formés de petites plaquettes empilées. Une étude au MET permettrait d'affiner cette caractérisation.*
 - ★ *Lorsque la teneur en hydrogène augmente, les hydrures deviennent de plus en plus massifs, par coalescence des micro-plaquettes.*
 - ★ *La structure des hydrures et leur composition en éléments d'alliage restent à caractériser plus finement. Nous verrons l'importance de telles observations dans la deuxième partie de ce mémoire.*
-

Chapitre -IV-

Comportement du Zircaloy-4 hydruré

Ce chapitre présente la caractérisation du comportement mécanique en traction monotone pour le matériau de base, avec et sans hydrures et à la température ambiante. Il s'agit de la limite d'élasticité, de la charge à rupture, de l'allongement réparti. Il traite aussi de l'anisotropie et de la sensibilité à la vitesse de sollicitation.

La description des principales caractéristiques passe par la connaissance des mécanismes de déformation. Les différents systèmes activés ainsi que la texture cristallographique du matériau sont alors pris en compte pour expliquer de manière phénoménologique les comportements observés.

Après la présentation des essais réalisés, les résultats sont organisés comme suit :

- Etude des courbes contrainte-déformation. Apparition de la plasticité, présence d'un crochet de traction, écrouissage.
- Etude de l'anisotropie de contrainte et de déformation. Mise en évidence, calcul des coefficients de Lankford (Hill, 1950), évolution au cours de l'essai.
- Etude de la sensibilité à la vitesse de sollicitation. Effet sur la limite d'élasticité, sur la ductilité.

Ces résultats permettront d'identifier les paramètres du comportement élastoviscoplastique qui pourra être utilisé lors de la modélisation par éléments finis.

Un dernier paragraphe sera consacré à l'étude plus détaillée de la localisation de la déformation plastique dans les éprouvettes de traction lisse (Chapitre VIII).

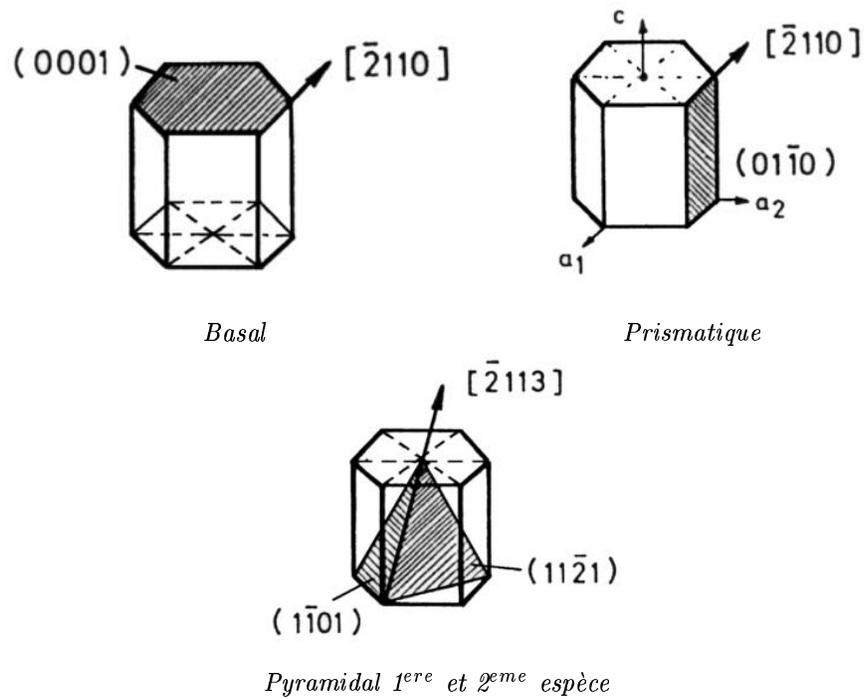


Figure IV.1 : Modes de déformation par glissement de la structure hexagonale compacte.

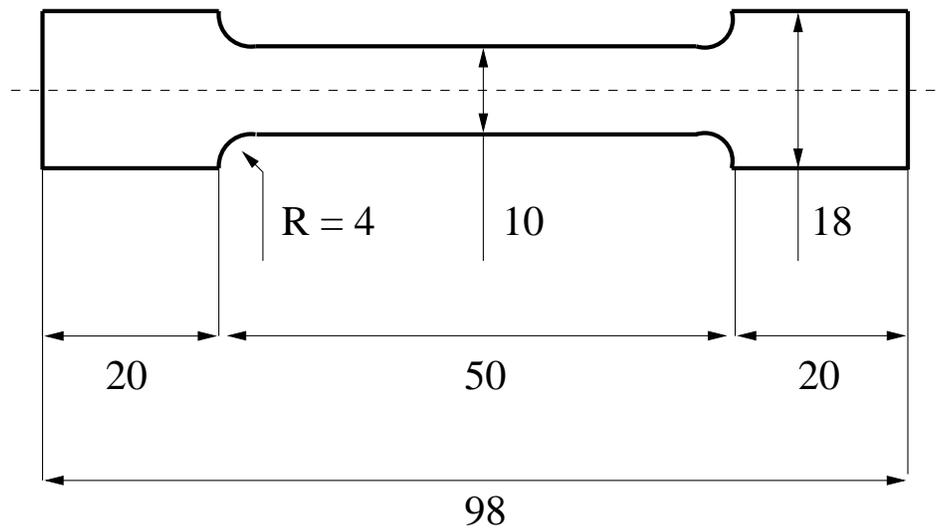


Figure IV.2 : Epreuve utilisée pour caractériser le comportement (cotes en mm).

IV.1 Comportement en traction

IV.1.1 Rappel des mécanismes de déformation

(Partridge, 1967) et (Tenckhoff, 1988) proposent une étude très complète des mécanismes de déformation pour les métaux à structure hexagonale compacte et en particulier pour le zirconium et les Zircaloy. On trouve trois systèmes de glissement : le basal, le prismatique et le pyramidal (première ou deuxième espèce) (Figure IV.1). On rencontre aussi du maclage qui intervient dans ces métaux pour permettre une déformation le long de l'axe \vec{c} (Tenckhoff, 1988; Ballinger et Pelloux, 1981).

L'activation de l'un ou l'autre de ces modes de déformation dépend de l'orientation du cristal par rapport à la direction de sollicitation, du mode de sollicitation (traction, compression...) (Tenckhoff, 1988), de la température d'essai (Ballinger et al., 1984), de la texture cristallographique qui détermine les interactions entre les grains (MacEwen et al., 1990) ainsi que de la vitesse de déformation (Song et Gray III, 1995).

Pour le Zircaloy-4, qui se présente très souvent sous forme de produits minces dont la texture est proche de celle des tôles de l'étude, la direction Travers Court n'est jamais sollicitée directement. C'est pourquoi, on observe rarement du maclage ou du glissement pyramidal. Pour ce type de matériaux, c'est **le glissement prismatique** qui est le plus souvent activé (Jensen et Backofen, 1972).

IV.1.2 Description des essais

La caractérisation de la loi d'écoulement (relation entre la contrainte et la déformation) en traction passe par la réalisation d'essais dont l'analyse mécanique est simple. Les éprouvettes lisses présentent l'avantage d'offrir une déformation homogène sur une grande partie de l'éprouvette, tant qu'il n'y a pas de localisation. Au-delà, la déformation plastique devient hétérogène et l'essai est difficile à analyser. Pour le début de la déformation, il est donc possible de relier simplement la contrainte (vraie ou conventionnelle) à la déformation (conventionnelle, plastique ou totale). Ainsi on calcule contrainte et déformation conventionnelles :

$$\begin{aligned}\sigma_c &= \frac{F}{S_0} \\ \epsilon_c &= \frac{\Delta L}{L_0}\end{aligned}$$

et contrainte vraie et déformation totale :

$$\begin{aligned}\sigma_v &= \frac{F}{S} = \frac{F}{S_0} \cdot \left(1 + \frac{\Delta L}{L_0}\right) \\ \epsilon_t &= \ln \left(1 + \frac{\Delta L}{L_0}\right)\end{aligned}$$

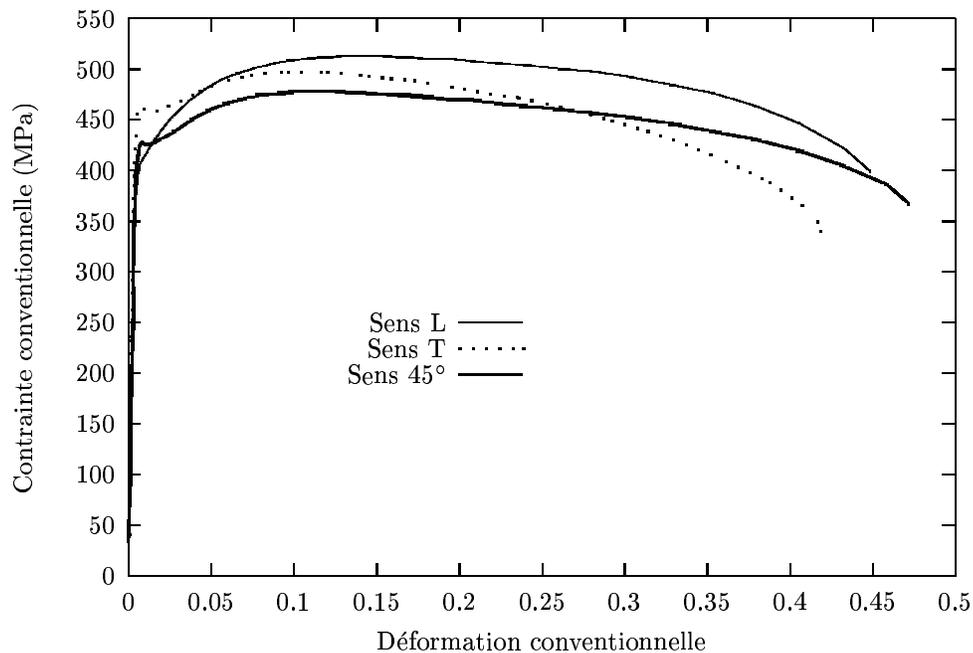
Comportement – Anisotropie

Essai	Teneurs(ppm)	Vitesses (s^{-1})	Remarques
Traction long	0	10^{-3}	Grilles + Jauges
Traction long	200 à 1100	10^{-3}	
Traction travers	0	10^{-3}	Grilles + Jauges
Traction travers	200 à 950	10^{-3}	
Traction 45°	0 à 1400	10^{-3}	

Effet de vitesse

Essai	Teneurs(ppm)	Vitesses (s^{-1})	Remarques
Traction long	0	10^{-4} , 5.10^{-4} , 10^{-3} , 5.10^{-3} , 10^{-2}	
Traction long	0	10^{-3} , 10^{-2}	Mesure de température
Traction long	300 à 1100	10^{-3} , 10^{-2}	
Traction travers	0	10^{-4} , 5.10^{-4} , 10^{-3} , 10^{-2}	

Tableau IV.1 : Essais réalisés sur le matériau de l'étude, Coulée 2.

Figure IV.3 : Courbes contrainte-déformation conventionnelles obtenues sur le matériau de l'étude pour trois directions de sollicitation. $T = 20^\circ C$, $\dot{\epsilon} = 10^{-3} s^{-1}$.

La déformation plastique s'écrit alors

$$\epsilon_p = \epsilon_t - \frac{\sigma_v}{E}$$

Dans les équations précédentes, F est la force appliquée à l'éprouvette, S_0 la section initiale, S la section réelle au cours de l'essai, ΔL l'allongement de l'éprouvette mesuré sur la base L_0 et E le module d'Young.

La **géométrie des éprouvettes** est présentée Figure IV.2. Elles sont sollicitées en traction monotone sur une machine servo-mécanique Zwick en contrôle de déplacement. Une cellule de charge de 500 daN a été ajoutée au montage pour s'adapter à la faible charge imposée (< 250 daN). L'effet des congés a été déterminé par éléments finis. On observe, au début de la plastification, une concentration des contraintes au niveau du raccord, mais celle-ci disparaît après 1 à 2 % de déformation totale.

Afin d'avoir accès à une détermination très précise de **la déformation**, un extensomètre a été placé au centre de l'éprouvette. Sa base de mesure est de 20 mm (L_0). Pour caractériser **l'anisotropie**, dans un premier temps, des grilles d'un pas de 1 mm ont été déposées sur la surface des éprouvettes. Les essais sont interrompus régulièrement pour effectuer une photographie des grilles. Ceci permet de visualiser la répartition des déformations. Le mode de dépouillement donnant accès aux déformations locales est présenté en Annexe A-I. Afin d'affiner l'observation, des essais ont aussi été réalisés avec des jauges de déformation ($< 15\%$) collées sur la surface. Elles donnent accès aux déformations dans le sens de sollicitation et dans le sens perpendiculaire dans le plan de la tôle. Le détail du calcul des déformations est donné en Annexe A-I.

La **vitesse de déformation** ($\dot{\epsilon}_{eq}$), imposée sur la longueur utile de l'éprouvette, détermine la vitesse de déplacement du vérin. Celle-ci est calculée en début d'essai et reste ensuite constante. Cette convention introduit une erreur de $\frac{1}{1+\epsilon_c}$ sur la vitesse de déformation réelle, ϵ_c étant la déformation équivalente comme définie ci-dessus. Cette divergence est acceptable tant que les déformations restent faibles ($< 10\%$). On peut donc considérer que toute la partie de l'essai avant la localisation macroscopique s'effectue à $\dot{\epsilon}_{eq}$ constant, ce qui facilite l'interprétation des résultats sans conduire à une mésestimation du comportement. La gamme que nous avons choisi d'étudier est limitée en valeur supérieure par les capacités de la machine (100 mm/min) et en valeur inférieure par l'apparition de déformation par fluage-relaxation et par la durée des essais (10^{-5}s^{-1}). Les essais de référence sont effectués à 10^{-3}s^{-1} et les essais permettant de déterminer l'influence de la vitesse de sollicitation balayent la gamme 10^{-4}s^{-1} à 10^{-2}s^{-1} .

Tous les essais ont été réalisés à la **température ambiante**, afin de se placer dans les conditions les plus défavorables en ce qui concerne la fragilisation induite par l'hydrogène. Un récapitulatif des essais effectués est présenté dans le Tableau IV.1. Dans la suite de ce manuscrit, on notera $R_{p0.2}$ la limite d'élasticité conventionnelle à 0.2% de déformation plastique et R_m la contrainte conventionnelle calculée au maximum de charge des courbes de traction.

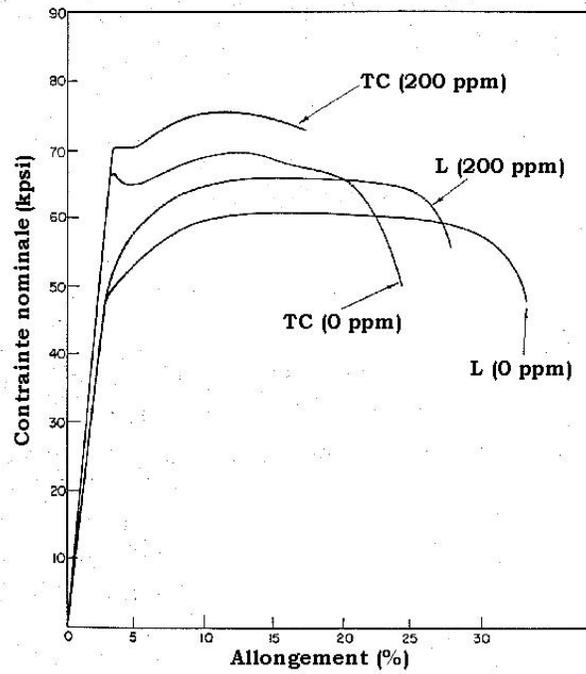


Figure IV.4 : Effet de la direction de sollicitation et de la teneur en hydrogène sur le comportement en traction du Zircaloy-2 (Evans et Parry, 1966).

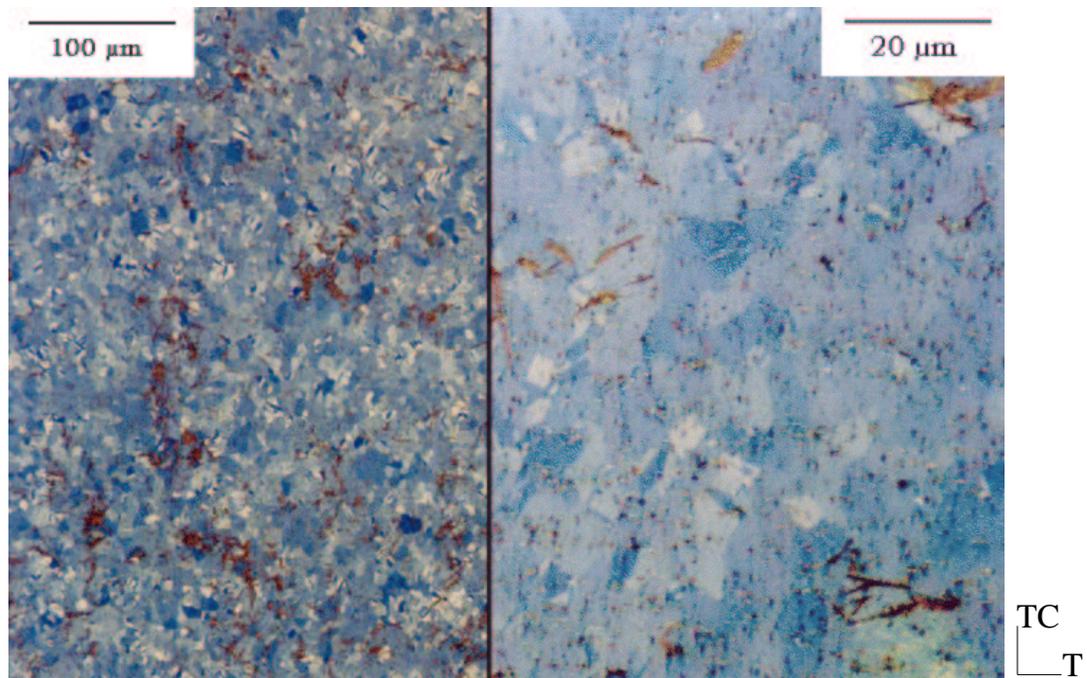


Figure IV.5 : Traces de macles observées dans le plan de la tôle, éprouvette sens travers, (C2E18T1, 958 ppm). $T = 20^{\circ}\text{C}$, $\dot{\epsilon} = 10^{-3}\text{s}^{-1}$.

IV.2 Résultats

IV.2.1 Élasticité – Plasticité – Ecoulement

L'allure des courbes contrainte-déformation ($\sigma_c - \epsilon_c$) est présentée sur la Figure IV.3, pour trois directions de sollicitation pour le matériau non hydruré. Le module d'élasticité n'a pas été déterminé exactement. Il vaut environ 100 000 MPa, pour toutes les directions de sollicitation. La direction travers présente une limite d'élasticité ($Rp_{0.2}$) beaucoup plus importante que les autres directions. Ceci est lié à l'apparition d'un crochet de traction. Il tend à disparaître lorsque l'axe de sollicitation se rapproche du sens long. Il disparaît aussi lorsque la teneur en hydrogène augmente. (Evans et Parry, 1966) observent des évolutions identiques sur du Zircaloy-2 dont la texture est similaire à celle des tôles de l'étude. La Figure IV.4 présente les courbes qu'ils obtiennent pour les sens long et travers court et pour deux teneurs en hydrogène.

Afin de clarifier la présence de ce crochet, certaines éprouvettes (sens travers) ont été polies puis observées en lumière polarisée au microscope optique après déformation. Pour l'éprouvette hydrurée à 1000 ppm environ, apparaissent des macles, particulièrement visibles dans les zones hors striction. Ce phénomène s'observe sur tous les grains (Figure IV.5). Or cette éprouvette n'a présenté aucun crochet de traction. En revanche, on n'observe aucune macle sur les autres éprouvettes, non hydrurées par exemple, alors qu'elles présentent un crochet de traction. D'autres résultats semblent confirmer que le maclage n'est pas responsable de l'apparition du crochet de traction. (Philippe et al., 1984), par exemple, étudient l'évolution de la texture de tôles de zirconium au cours de la déformation. Ils montrent que, s'il y a effectivement une réorientation des axes \vec{c} lors d'une traction dans le sens travers, celle-ci se produit très progressivement, ce qui laisse supposer que le maclage, phénomène rapide, ne joue qu'un rôle secondaire dans cette rotation.

Une origine plus probable est proposée par (Ruano et Elssner, 1975). Ils montrent que l'apparition du crochet de traction est directement reliée à la teneur en oxygène. Plus celle-ci augmente, plus le crochet est marqué. Ce phénomène semble dû à la formation d'amas d'oxygène qui gênent le mouvement des dislocations. (Weinstein, 1966) explique cette interaction avec l'oxygène par un modèle faisant intervenir les dislocations mobiles. Pour lui en effet, un mécanisme de type Cottrell ou barrière de dislocations ne permet pas d'expliquer la persistance du crochet lorsque la température augmente. Ces mécanismes prévoient en effet que le franchissement des obstacles est thermiquement activé. En ce qui concerne l'effet de l'hydrogène sur la disparition du crochet de traction, il explique que les hydrures se comportent comme des sources de dislocations, à leurs deux extrémités. Ils facilitent alors l'apparition de la plasticité.

L'origine physique du crochet de traction semble donc être dans les interactions entre les dislocations et les atomes d'oxygène en interstitiel. De plus, pour un même système de glissement activé, l'orientation du plan de glissement par rapport à la contrainte ainsi que la répartition des atomes d'oxygène dans le plan de glissement peuvent conditionner l'apparition du crochet. C'est ce qui est observé entre les sens long et travers. Il serait intéressant enfin de s'attarder sur l'effet des éléments d'alliage.

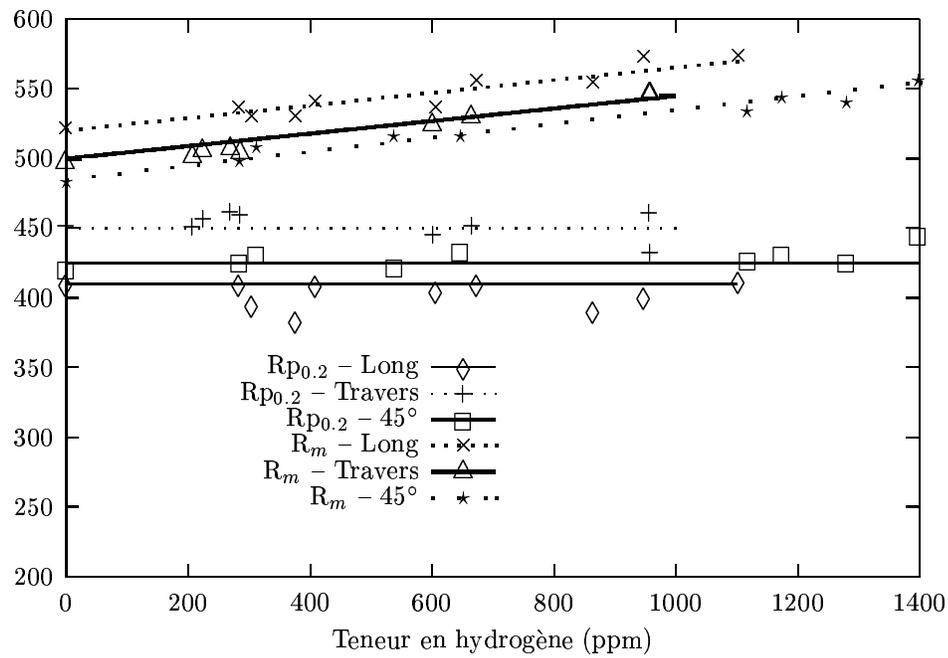


Figure IV.6 : Evolution de la limite d'élasticité conventionnelle et de la charge maximale avec la teneur en hydrogène pour trois directions de sollicitation. $T = 20^\circ C$, $\dot{\epsilon} = 10^{-3} s^{-1}$.

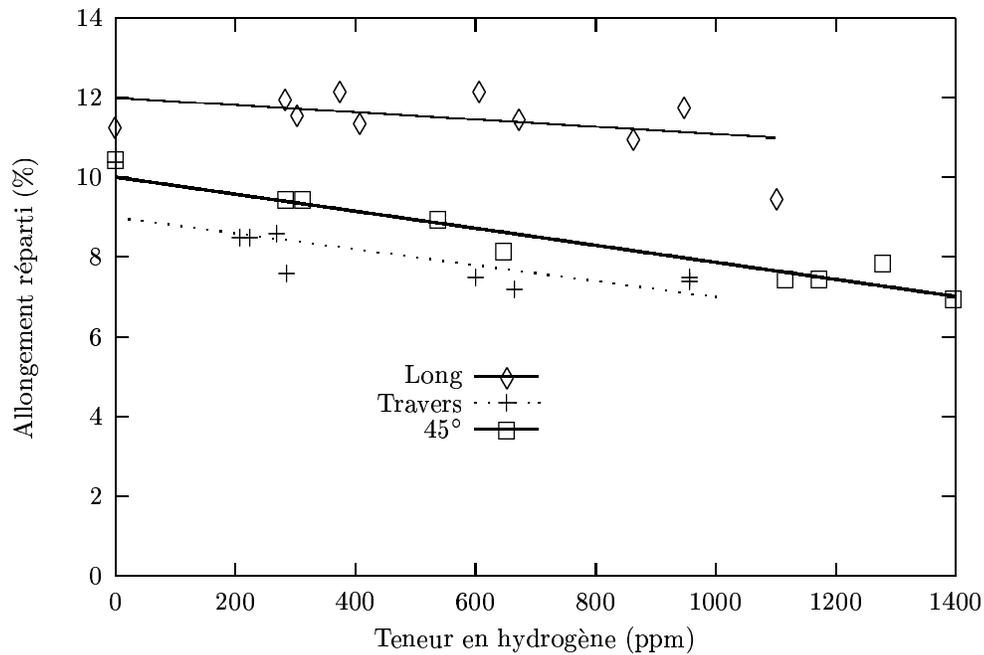


Figure IV.7 : Evolution de l'allongement réparti avec la teneur en hydrogène pour trois directions de sollicitation. $T = 20^\circ C$, $\dot{\epsilon} = 10^{-3} s^{-1}$.

IV.2.2 Effets de l'hydrogène

Les évolutions de la limite d'élasticité ($R_{p0.2}$), de la charge maximale (R_m) et de l'allongement réparti (A_{rep}) en fonction de la teneur en hydrogène et pour les différentes directions de sollicitation sont présentées dans le Tableau IV.2.

La limite d'élasticité conventionnelle (Figure IV.6) est peu affectée par la présence d'hydrogène. Seul le crochet de traction disparaît (voir § précédent),

La charge maximale (Figure IV.6), correspondant au critère de Considère ($\frac{dF}{dl} = 0$), augmente linéairement lorsque la teneur en hydrogène augmente. Cette augmentation est identique pour les trois directions testées.

Ce renforcement est couramment observé quelle que soit l'orientation des hydrures par rapport à la contrainte appliquée et quelle que soit la température d'essai jusqu'à 350°C (Arsène, 1997; Huang et Huang, 1994; Bai et al., 1994b; Marshall et Louthan Jr., 1963). (Evans et Parry, 1966) (Figure IV.4) par exemple, montrent que le renforcement est identique pour les deux sens de prélèvement testés alors que sur les éprouvettes testées sens long les hydrures sont parallèles à la contrainte et sur celles testées sens travers court ils sont perpendiculaires.

Les résultats obtenus par (Bai et al., 1994b) ou (Marshall et Louthan Jr., 1963) et montrant que la limite à rupture passe par un maximum puis diminue lorsque la teneur en hydrogène augmente ne sont pas contradictoires avec nos résultats. En fait, le maximum de cette courbe correspond à la teneur en hydrogène pour laquelle on observe une forte chute de ductilité. La rupture des éprouvettes se produit alors sans striction et avant la charge maximale. La limite à rupture mesurée ne correspond donc pas au critère de Considère et elle ne peut plus être comparée aux charges déterminées sur les essais à plus faibles teneurs.

(Prat et al., 1998; Huang et Huang, 1994) proposent d'expliquer le renforcement par un effet composite, les hydrures jouant le rôle de particules durcissantes. (Arsène, 1997) calcule par identification inverse, connaissant le comportement du matériau sans hydrures, et à partir du comportement du matériau hydruré, le comportement des hydrures. Elle suppose que les hydrures sont alignés parallèlement au sens de traction et applique le modèle de Voigt (déformation homogène dans le matériau). Connaissant la fraction volumique d'hydrures (V_H), calculée par :

$$C_H = \frac{1.66 \cdot 10^{-6} \cdot V_H}{91 + 1.66 \cdot V_H} \simeq \frac{1.66 \cdot 10^{-6} \cdot V_H}{91}$$

où C_H est la teneur en hydrogène (ppm), elle écrit :

$$\sigma_{eq} = V_H \cdot \sigma_H + (1 - V_H) \cdot \sigma_{Zr}$$

σ_{eq} est la contrainte totale déterminée sur le composite, σ_H la contrainte dans l'hydrure (c'est l'inconnue) et σ_{Zr} la contrainte dans le Zircaloy (déterminée sur le matériau non hydruré).

Sens Long

Eprouvette	Teneur (ppm)	R _{p0.2} (MPa)	R _m (MPa)	A _{rep} (%)
–	0 (*)	410	522	11.3
C2B10 L1	283	410	537	12.
C2B10 L2	304	395	530	11.6
C2C8 L2	376	384	530	12.2
C2C8 L1	408	409	541	11.4
C2D14 L2	607	405	537	12.2
C2D14 L1	673	410	556	11.5
C2E32 L1	864	391	555	11.
C2E34 L2	949	401	573	11.8
C2E34 L1	1103	412	574	9.5

Sens Travers

Eprouvette	Teneur (ppm)	R _{p0.2} (MPa)	R _m (MPa)	A _{rep} (%)
–	0 (*)	452	497	10.4
C2C20 T2	208	451	501	8.5
C2B7 T2	225	457	506	8.5
C2B7 T1	270	462	507	8.6
C2C20 T1	285	460	504	7.6
C2D26 T3	602	445	524	7.5
C2D26 T4	666	452	530	7.2
C2E18 T1	957	461	546	7.4
C2E18 T2	958	433	546	7.5

Sens 45°

Eprouvette	Teneur (ppm)	R _{p0.2} (MPa)	R _m (MPa)	A _{rep} (%)
–	0 (*)	421	483	10.5
C2B29 45 1	284	426	498	9.5
C2B29 45 2	312	432	508	9.5
C2C44 45 2	538	423	516	9.
C2C44 45 1	647	434	516	8.2
C2E38 45 2	1118	428	534	7.5
C2E38 45 1	1174	432	544	7.5
C2E43 45 2	1280	426	540	7.9
C2E43 45 1	1398	445	556	7.0

Tableau IV.2 : Evolution des propriétés mécaniques avec le sens de sollicitation et la teneur en hydrogène. (*) Valeurs moyennées sur trois ou quatre essais. $T = 20^\circ C$, $\dot{\epsilon} = 10^{-3} s^{-1}$.

Les résultats montrent que les hydrures ont, à 20 °C, un comportement élastoplastique, avec une limite d'élasticité de 700 MPa environ. Leur capacité d'érouissage est assez importante. La pente de la courbe contrainte-déformation plastique est de 13000 MPa. Le comportement obtenu à 350 °C témoigne d'un adoucissement des hydrures lorsque la température augmente. Ces valeurs sont très éloignées de celles présentées par (Barraclough et Beevers, 1969) qui étudient le comportement de l'hydrure massif δ en compression. Ils trouvent rarement des limites à rupture dépassant les 200 MPa. Cette contrainte augmente lorsqu'il existe des particules de l'hydrure γ dans l'hydrure δ , mais alors, elle n'atteint pas plus de 400 MPa. Dans tous les cas, ils n'observent aucune déformation plastique.

Cette différence de comportement entre les hydrures pourrait s'expliquer par un effet de taille. Pour le matériau de Barraclough, l'hydrure est massif et, si on se reporte aux théories sur les matériaux fragiles, plus le volume sollicité est important, plus la contrainte à rupture est faible, car la probabilité de trouver un défaut critique est alors plus importante. Pour le matériau étudié par Arsène, les hydrures sont très fins ($0.4 \cdot 10^{-20} \mu\text{m}^3$). Leur faible épaisseur pourrait leur permettre de mieux supporter la déformation et leur faible volume diminue la probabilité de trouver un défaut de taille critique.

En fait, le comportement de l'interface hydrures/matrice est aussi un élément déterminant à prendre en compte dans toute modélisation. En effet, il a été montré que les hydrures n'étaient toujours pas rompus après 20 % de déformation totale équivalente (Prat et al., 1998; Grange et al., 1997a; Yunchang et Koss, 1985). Ceci laisse supposer, connaissant le caractère fragile des hydrures, que la déformation plastique n'est pas uniformément répartie entre la matrice et les hydrures. Or l'interface n'a jamais été caractérisée. Les premières analyses effectuées au SIMS sur le matériau de l'étude semblent révéler des modifications de composition autour des précipités d'hydrure. Ce phénomène peut conduire à faire évoluer le comportement mécanique de la matrice environnante et par là à modifier son interaction avec les hydrures. Les différences entre le renforcement observé par (Prat et al., 1998) et les tôles de l'étude, qui ont un traitement d'hydruration identique et des textures très proches, mais des compositions chimiques légèrement différentes, semblent être des indices supplémentaires de l'effet de l'interface.

L'allongement réparti (Figure IV.7), défini comme la déformation conventionnelle correspondant à la charge maximale, diminue légèrement lorsque la teneur en hydrogène augmente. Cette mesure est assez délicate car les courbes présentent un plateau de contrainte très étendu avant la localisation. D'autre part, nous verrons dans le paragraphe IV.5 que ce paramètre dépend de la vitesse de sollicitation, mais aussi des imperfections géométriques de l'éprouvette. Il n'est donc pas uniquement lié au coefficient d'érouissage.

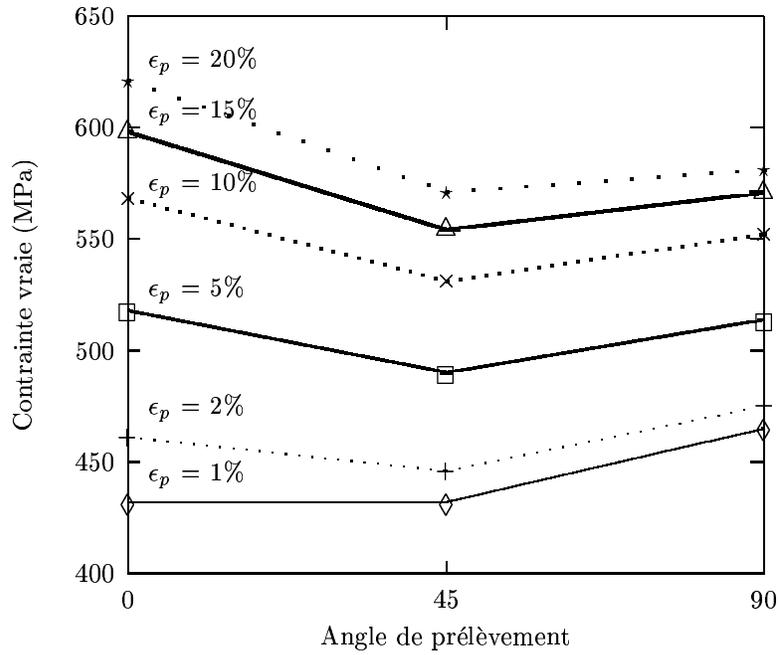


Figure IV.8 : Evolution des contraintes vraies en fonction de la direction de sollicitation, pour différents niveaux de de déformation plastique, Zircaloy-4 de l'étude. $T = 20^\circ C$, $\dot{\epsilon} = 10^{-3} s^{-1}$.

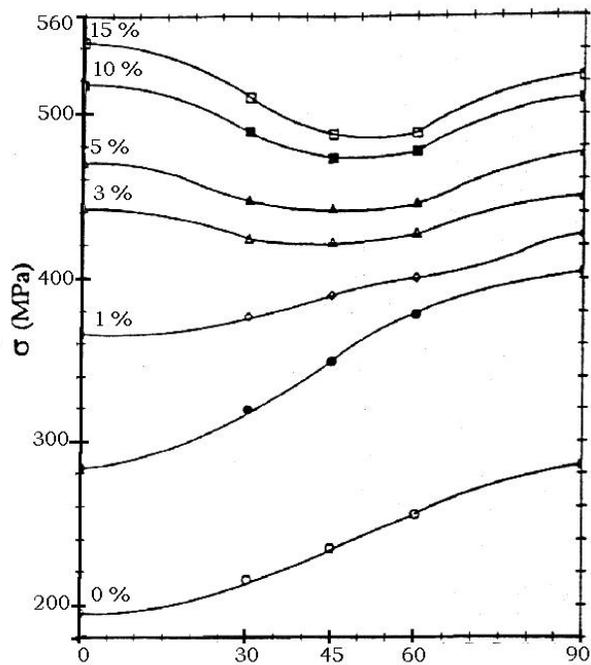


Figure IV.9 : Evolution des contraintes en fonction de la direction de la sollicitation, pour différents niveaux déformation plastique sens long, sur du zirconium 702 (Allais et al., 1996).

IV.3 Anisotropie plastique

IV.3.1 Origine

Les systèmes de glissement dans les hexagonaux étant peu nombreux, le matériau présente intrinsèquement un caractère anisotrope. De plus, nous avons vu que le mode d'élaboration lui conférerait une texture très marquée. La combinaison des deux facteurs conduit les structures à présenter des comportements très différents selon les directions de sollicitation.

(Geyer, 1996) étudie les différents systèmes de glissement activés lors de la traction axiale d'un tube en alliage de zirconium, dont la texture est proche de celle des tôles de l'étude. Il effectue des essais interrompus à différents niveaux de déformation plastique (de 1 à 4 %). Sur des lames minces issues du matériau déformé, il détermine le nombre et la nature des systèmes de glissement activés. Il montre que le glissement prismatique est majoritaire mais que le glissement pyramidal peut se manifester. En utilisant une approche polycristalline (Pilvin, 1994), il trace alors la surface de plasticité théorique. La comparaison avec l'expérience lui permet de déterminer si l'influence prévue des systèmes de glissement permet de bien reproduire le comportement réel. Les résultats qu'il obtient montrent bien que la plasticité est fortement anisotrope du simple fait du faible nombre des systèmes de déformation activés et de la présence d'une texture cristallographique.

IV.3.2 Anisotropie de contrainte

L'évolution des contraintes vraies pour différents niveaux de déformation plastique est présentée sur la Figure IV.8 en fonction de l'angle de la direction de sollicitation avec le sens de laminage. Allais (Allais et al., 1996) a étudié plus en détail cette anisotropie, sur du zirconium 702. Ses résultats sont présentés Figure IV.9. Les évolutions qu'il obtient peuvent être considérées comme représentatives de ce qui est habituellement observé sur les tôles de zirconium ou de Zircaloy.

On remarque que :

- l'évolution des contraintes dans le plan de la tôle n'est pas monotone,
- les tendances se modifient au cours de la déformation plastique. (Philippe et al., 1984) montrent que la texture peut subir de fortes variations au cours de la déformation. Ils observent par exemple, au cours d'une traction dans le sens travers ($\epsilon > 20\%$) pour une tôle ayant la même texture que celle de l'étude, que les axes \vec{c} subissent une rotation pour devenir pratiquement parallèles à la normale au plan. Cette modification n'est pas observée pour une traction dans le sens long.

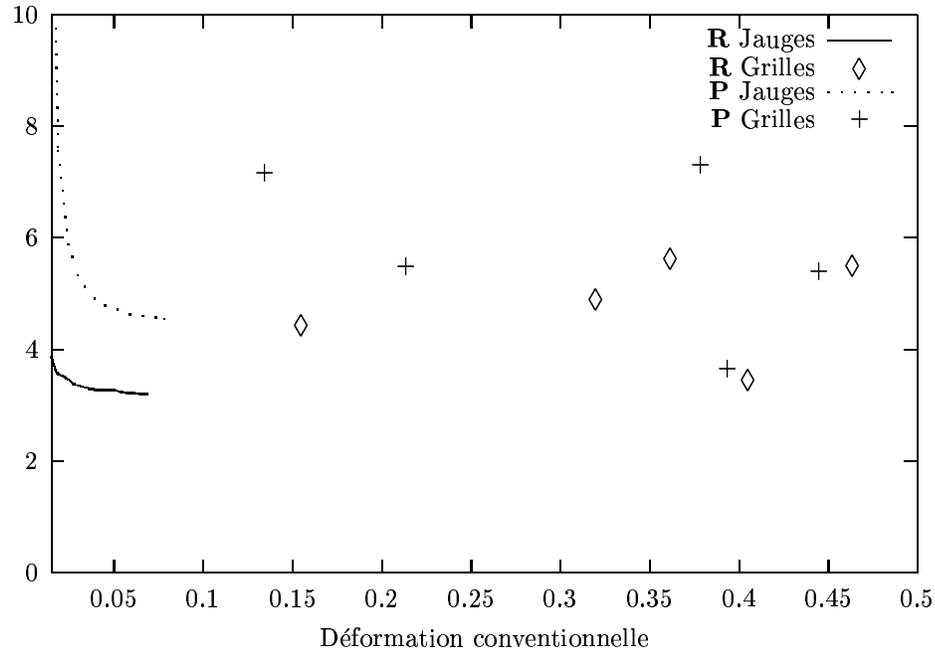


Figure IV.10 : Evolution des rapports de Lankford au cours de la déformation ($R = \frac{\epsilon_p^T}{\epsilon_p^C}$ et $P = \frac{\epsilon_p^L}{\epsilon_p^C}$). Mesures par jauges (jusqu'à 10%) et par grilles (entre 10% et 35%).

Sens Long		Sens Travers		Sens 45 °	
Teneur(ppm)	$\frac{\epsilon_p^T}{\epsilon_p^C}$	Teneur(ppm)	$\frac{\epsilon_p^L}{\epsilon_p^C}$	Teneur(ppm)	$\frac{\epsilon_p^{45+90}}{\epsilon_p^C}$
0	3.34	0	4.50	0	4.39
283	3.07	208	4.50	284	4.88
304	3.68	225	4.19	312	3.88
376	3.09	270	4.93	538	3.76
408	3.11	285	4.21	647	3.28
607	2.02	602	4.76	1118	3.94
673	2.62	666	3.92	1174	2.07
864	3.04	957	4.18	1280	3.85
949	3.24	958	3.90	1398	3.35
1103	2.02				

Tableau IV.3 : Rapports de Lankford mesurés en fin d'essai. $T = 20^\circ C$, $\dot{\epsilon} = 10^{-3} s^{-1}$. Les références des éprouvettes sont dans le Tableau IV.2, Page 52.

On retiendra que les variations de contrainte observées dans le plan sont en fait assez négligeables. L'anisotropie se manifeste principalement pour des sollicitations suivant la normale au plan de la tôle, c'est à dire presque colinéaires à l'axe \vec{c} . Cette direction n'a pas pu être caractérisée pour le matériau de l'étude car l'épaisseur est trop faible. D'autres auteurs (Ballinger et Pelloux, 1981) ont travaillé sur des produits plus épais (1.27 cm) et ont montré que le matériau sollicité dans le sens travers court présentait effectivement des contraintes d'écoulement plus élevées que lorsqu'il est sollicité dans les sens long ou travers.

Pour le matériau de l'étude, une approche polycristalline (Cailletaud, 1992; Pilvin, 1994) a été utilisée pour déterminer la contrainte d'écoulement dans l'épaisseur. Moyennant les hypothèses concernant les systèmes activés (prismatique et pyramidal), on trouve que celle-ci dépasse 800 MPa. Cette valeur est à utiliser avec prudence, car le maclage n'est pas pris en compte, alors qu'il participe souvent à la déformation lors de sollicitations le long de l'axe \vec{c} (Jensen et Backofen, 1972). Cette méthode permet aussi d'identifier les paramètres de l'anisotropie de déformation.

IV.3.3 Anisotropie de déformation

Les essais réalisés selon deux directions de prélèvement (Long et Travers) avec des jauges de déformation ont permis de déterminer les coefficients de Lankford, pour des déformations équivalentes allant jusqu'à 10% ($R = \frac{\epsilon_T}{\epsilon_P}$ et $P = \frac{\epsilon_L}{\epsilon_P}$). Ces résultats sont présentés sur la Figure IV.10. Pour le sens travers, la présence du crochet de traction gêne l'interprétation des résultats. La plastification détectée par les jauges apparaît après celle détectée par l'extensomètre. L'erreur commise n'est pas très importante, mais ce phénomène peut s'avérer pénalisant lors d'études plus fines de la plastification (surfaces de charge...). Les rapports déterminés sont très supérieurs à la valeur théorique en isotropie qui est 1. La déformation dans le sens travers court de la tôle reste très faible par rapport aux deux autres, ce qui est en accord avec la difficulté à activer des systèmes de déformation suivant l'axe \vec{c} .

L'analyse des grilles ne permet pas, du fait de la faible précision, de mesurer les déformations avant 8 à 10% de déformation axiale. L'évolution des coefficients calculés à partir des photographies est tracée sur la Figure IV.10 en fonction de la déformation axiale. On remarque que l'anisotropie évolue peu avec la déformation. Ceci semble confirmer que les mécanismes de déformation et la texture évoluent peu au cours de l'essai (Philippe et al., 1984). (Mahmood et Murty, 1989) utilisent une technique identique pour étudier la relation entre la texture et l'anisotropie au cours de la déformation. Ils trouvent aussi que l'anisotropie reste constante lors de la déformation. Ils montrent même que, lors de la striction, l'augmentation de la triaxialité permet de bloquer les rotations de texture et de conserver les rapports d'anisotropie.

Pour les tôles de l'étude, nous n'avons pas utilisé les grilles pour mesurer l'anisotropie plastique dans la striction. En effet, les résultats dépendent de la base de mesure utilisée car la déformation plastique est très hétérogène dans cette zone de l'éprouvette et les grilles sont trop grossières par rapport au gradient de déformation. Nous avons préféré mesurer

les déformations après rupture dans la zone de striction pour les directions travers (variation de la largeur totale) et travers court (réduction d'épaisseur déterminée au centre de l'éprouvette).

Ces mesures permettent de remonter au coefficient de Lankford final. Les résultats obtenus sont présentés dans le Tableau IV.3. Ils ne sont pas très différents des rapports calculés par les deux autres méthodes. Les différences peuvent provenir de l'apparition de bandes de localisation à la fin de l'essai, ou de l'erreur commise lors du calcul pour lequel on utilise la réduction de largeur totale et non la valeur locale au centre de la déformation (alors que les grilles ont montré que la déformation était hétérogène en fin d'essai, même dans la largeur).

Ces résultats permettent de confirmer que l'anisotropie n'est pas fondamentalement modifiée au cours de la striction. (Chan et Koss, 1983) étudient l'effet du rapport de Lankford initial sur l'évolution de la déformation dans le sens travers en fonction de la déformation axiale au cours d'un essai de traction pour un alliage de titane. Ils montrent que, plus ce rapport est grand, c'est à dire que plus la déformation dans la troisième direction est difficile, plus il reste constant lors de la striction. Ceci permettrait d'expliquer pourquoi nous n'observons pas de modification de ce rapport sur nos éprouvettes. On remarquera enfin que l'hydrogène ne modifie pas l'anisotropie mesurée en fin d'essai. Ceci a aussi été vérifié par des mesures en cours d'essai. Les hydrures ne changent donc pas les mécanismes de déformation.

IV.3.4 Identification d'un critère de comportement anisotrope

a) Rappels

Il existe plusieurs méthodes pour décrire l'anisotropie de comportement. Hill (Hill, 1950) a proposé une analyse mécanique macroscopique qui vise à décrire l'évolution des contraintes et des déformations avec la direction de sollicitation. Pour simplifier, il traite le cas où le matériau possède en tout point trois plans de symétrie. L'intersection de ces plans définit les axes principaux d'anisotropie. Il construit ensuite un critère qui se ramène à celui de Von Mises lorsque l'anisotropie diminue. Il montre que six coefficients (cinq indépendants) permettent de représenter l'anisotropie. La contrainte équivalente s'écrit :

$$\begin{aligned}\sigma_H^2 &= \frac{3}{2} \cdot (F \cdot (\sigma_{22} - \sigma_{33})^2 + G \cdot (\sigma_{33} - \sigma_{11})^2 + H \cdot (\sigma_{11} - \sigma_{22})^2 \\ &\quad + 2L \cdot \sigma_{23}^2 + 2M \cdot \sigma_{31}^2 + 2N \cdot \sigma_{12}^2) \\ &= \frac{3}{2} \cdot (h_{11} \cdot s_{11}^2 + h_{22} \cdot s_{22}^2 + h_{33} \cdot s_{33}^2 + 2 \cdot (h_{12} \cdot s_{12}^2 + h_{23} \cdot s_{23}^2 + h_{31} \cdot s_{31}^2))\end{aligned}$$

avec par convention 1 = Travers court, 2 = Travers, 3 = Long. La seconde relation est exprimée en fonction du déviateur des contraintes. C'est celle qui sera utilisée par la suite.

(Delobelle et al., 1996) a appliqué cette approche à des tubes de Zircaloy-4 en considérant que le matériau n'était pas orthotrope. Le tenseur comporte alors neuf coefficients. L'identification de ces coefficients passe par la réalisation d'essais de traction axiale, de pression interne, mais aussi de traction-torsion et traction-pression interne. Malgré cela, deux coefficients restent inconnus. Ils concernent l'anisotropie dans l'épaisseur du tube. Cette

indétermination est classique pour les matériaux dont l'épaisseur est très faible et ne peut pas être directement sollicitée. Mais l'utilisation du modèle pour reproduire le comportement montre, a posteriori, que ces coefficients n'ont pas d'influence sur les résultats pour la gamme des essais représentés (hors sollicitation dans l'épaisseur).

Face à ces modèles phénoménologiques, il existe des modèles qui s'intéressent plus directement aux origines de l'anisotropie. Ils utilisent une approche polycristalline qui permet de décrire le comportement global à partir de la connaissance de l'orientation des grains (texture), des mécanismes de déformation et des cisssions critiques (Geyer, 1996; Vogel, 1996; Tomé et Kocks, 1985). L'avantage de ces modèles est qu'ils décrivent de manière intrinsèque l'anisotropie. Par contre, leur mise en oeuvre est lourde car ils nécessitent la connaissance de données concernant les cisssions critiques réduites, les écrouissages des monocristaux... Le nombre de paramètres à déterminer est plus important.

b) Critère retenu

Pour cette étude, nous avons besoin de décrire simplement l'anisotropie, c'est à dire les tendances observées. Le modèle de comportement doit être rapidement identifiable et aisément utilisable dans un code de calcul couplé avec un modèle d'endommagement. C'est pourquoi nous avons utilisé une approche de type Hill avec l'hypothèse d'orthotropie dans le plan de la tôle. La procédure d'identification des coefficients est décrite par (Hill, 1950; Achon, 1994; Rivalin, 1998). Il n'y a en fait que cinq coefficients indépendants car on suppose que

$$\begin{aligned}\sigma_{eq}^2(\text{Long}) &= \sigma_H^2(\text{Long}) \\ \text{donc } h_{11} + h_{22} + 4 \cdot h_{33} &= 6\end{aligned}$$

Les cinq coefficients sont calculés à partir de cinq rapports de Lankford indépendants. Pour notre matériau, nous n'en connaissons que trois. Les rapports permettant de calculer les coefficients de Hill relatifs au cisaillement dans l'épaisseur restent indéterminés. Mais nous avons pu vérifier que ceci n'influçait pas les résultats (pour les sollicitations dans le plan de la tôle). Les valeurs de h_{12} et h_{13} sont donc fixées arbitrairement à 1. Pour les autres coefficients, nous avons utilisé les rapports de Lankford déterminés avec les jauges ($R = 3.28$ et $P = 4.7$) pour le matériau non hydruré et le rapport $\frac{\epsilon_p^{45+90}}{\epsilon_p^{TC}} = 3.86$ moyenne des rapports sur les éprouvettes sens 45° . On trouve alors :

h_{11} :	0.0103
h_{22} :	1.087
h_{33} :	1.225
h_{12} :	1.000
h_{23} :	1.140
h_{13} :	1.000

Ces coefficients, identifiés sur le matériau non hydruré sont utilisables pour le matériau hydruré car nous avons vu que les hydrures ne modifiaient pas l'anisotropie. Comme (Rivalin, 1998; Prat et al., 1998) le remarquent, cette méthode d'identification à partir des

déformations ne permet pas de représenter correctement les contraintes. Nous avons volontairement choisi de représenter correctement la déformation plutôt que la contrainte, car nous verrons dans la partie suivante que c'est elle qui gère l'évolution de l'endommagement.

Sens Long Non Hydruré

Vitesse (s^{-1})	$R_{p0.2}$ (MPa)	R_m (MPa)	A_{rep} (%)	R	Z (%)
10^{-4}	382	496	13.5	3.24	52.8
5.10^{-4}	–	–	11.5	3.16	49.9
10^{-3}	410	522	11.3	3.34	53.7
5.10^{-3}	429	527.5	10.5	3.33	51.1
10^{-2}	430	529	9	3.30	48.5

Sens Travers Non Hydruré

Vitesse (s^{-1})	$R_{p0.2}$ (MPa)	R_m (MPa)	A_{rep} (%)	P	Z (%)
10^{-4}	440	489	11.	5.15	61.2
5.10^{-4}	461	502	10.5	5.15	61.2
10^{-3}	452	497	10.4	4.50	58.4
10^{-2}	487	526	8.5	4.88	59.6

Tableau IV.4 : Evolution des paramètres du comportement avec la vitesse de sollicitation.
 $T = 20^{\circ}C$.

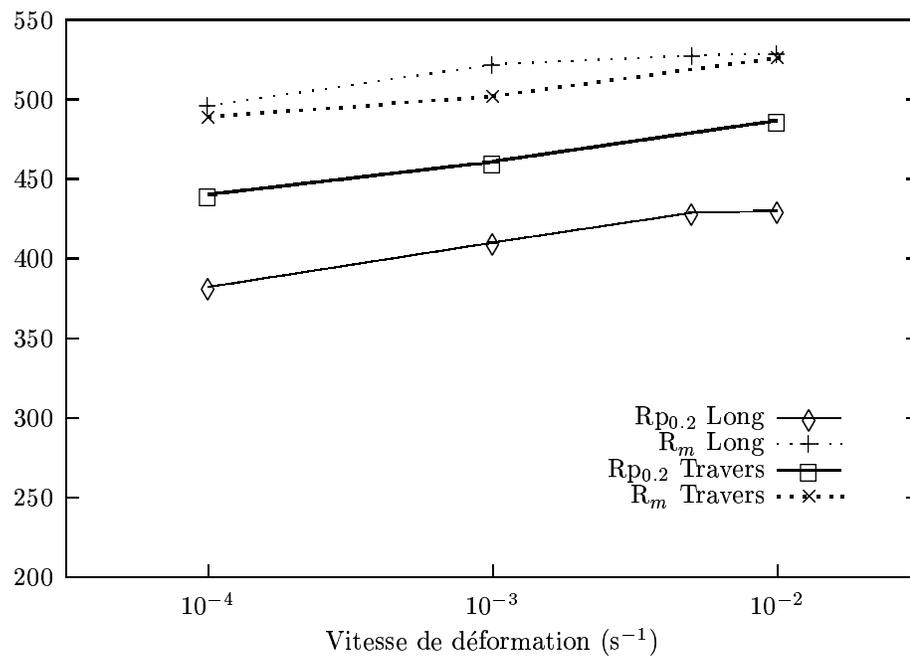


Figure IV.11 : Evolution des contraintes avec la vitesse et le sens de sollicitation. $T=20^{\circ}C$.

IV.4 Sensibilité à la vitesse de sollicitation

IV.4.1 Caractérisation

(Prat et al., 1998) ont mis en évidence, sur des essais de traction, que la contrainte présentait une dépendance non négligeable envers la vitesse de sollicitation. Ils montrent que cette dépendance est identique pour la limite d'élasticité et pour la contrainte maximale. Ils observent une augmentation de 80 MPa lorsque la vitesse de déformation passe de 10^{-3} à 5 s^{-1} . Les résultats obtenus par Sinha (Sinha et Asundi, 1977) sur un alliage biphasé α/β présentent une évolution identique (20 MPa par décade).

L'effet de la vitesse de sollicitation a été caractérisé sur les tôles de l'étude, pour deux directions de prélèvement et pour toutes les teneurs en hydrogène dans le sens long. Les résultats sont regroupés dans les Tableaux IV.4 et IV.5. La Figure IV.11 présente l'évolution de la limite élastique et de la charge maximale pour les sens long et travers. L'augmentation des contraintes est identique à celle observée par Prat. Ce phénomène s'accompagne d'une diminution de l'allongement réparti (voir § IV.5). L'introduction des hydrures ne modifie pas l'effet de la vitesse de sollicitation sur les paramètres mécaniques observés (Figure IV.12). Il est probable toutefois que les hydrures ont une influence sur les micromécanismes de plasticité et la limite d'élasticité vraie.

Dans la gamme des vitesses étudiées, l'évolution des paramètres mécaniques est linéaire (avec $\ln(\dot{\epsilon})$) et l'anisotropie reste constante. Ceci laisse supposer que les mécanismes de déformation ne sont pas modifiés.

IV.4.2 Identification d'un comportement élasto-visco-plastique

Les résultats précédents permettent d'identifier une loi d'écoulement du matériau représentant aussi bien les effets de l'hydrogène que la sensibilité à la vitesse de sollicitation. Afin de simplifier la détermination des paramètres, une forme simple a été proposée. La contrainte vraie d'écoulement dans le sens long s'écrit :

$$\sigma_v = K \cdot \epsilon_{eq}^n + K' \cdot \dot{\epsilon}_{eq}^{1/n'} \quad (\text{IV.1})$$

Les paramètres n et K représentent la partie plastique de la déformation et les paramètres n' et K' la partie viscoplastique. n et K sont identifiés directement à partir des charges à rupture expérimentales et des allongements répartis. Ils dépendent de la teneur en hydrogène. n' et K' sont identifiés numériquement. Ils sont constants. Le détail des calculs est donné en Annexe A-I. On trouve par cette méthode :

$$\begin{cases} n & = & -1.1964 \cdot 10^{-5} \cdot C_H + 0.1224 \\ K & = & 0.0509 \cdot C_H + 708. \text{ MPa} \\ n' & = & 4.165 \\ K' & = & 201.53 \text{ MPa} \cdot \text{s}^{1/n'} \end{cases}$$

C_H étant la teneur en hydrogène exprimée en ppm.

Eprouvette	Teneur (ppm)	Vitesse (s^{-1})	$R_{p0.2}$ (MPa)	R_m (MPa)	A_{rep} (%)	R
C2B10 L2	304	10^{-3}	395	530	11.6	3.68
C2B10 L3	323	10^{-2}	442	562	10.2	3.06
C2C8 L1	408	10^{-3}	409	541	11.4	3.11
C2C37 L1	468	10^{-2}	443	571	10.2	3.4
C2D14 L3	489	10^{-2}	443	563	10.3	3.12
C2E32 L1	864	10^{-3}	391	555	11.	3.04
C2E32 L2	866	10^{-2}	449	586	8.5	2.75
C2E34L1	1103	10^{-3}	412	574	9.5	2.02
C2E34L3	1147	10^{-2}	452	608	8.4	4.18

Tableau IV.5 : Evolution des paramètres du comportement avec la vitesse de sollicitation pour les éprouvettes hydrurées sollicitées dans le sens long. $T = 20^{\circ}C$.

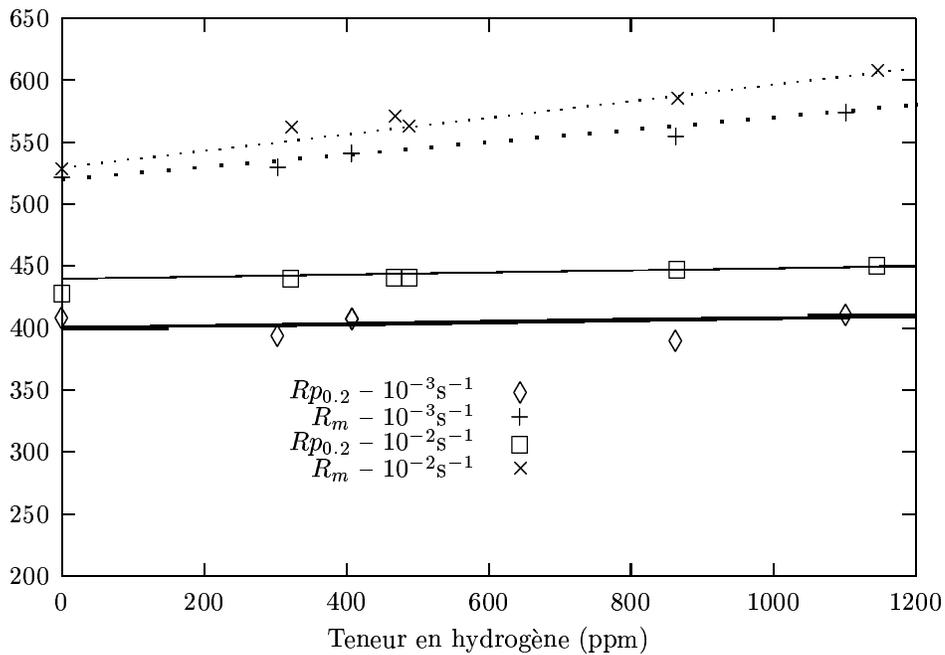


Figure IV.12 : Evolution des contraintes avec la vitesse de sollicitation. $T=20^{\circ}C$.

IV.5 Etude de la localisation

IV.5.1 Rappels

a) Critère

On entend par localisation l'instant pour lequel la déformation devient hétérogène dans la partie utile de l'éprouvette. Les analyses de la stabilité d'une perturbation sur un barreau lisse non endommageable soumis à une traction ont mis en évidence que le seul critère admissible était le critère de Considère (Nichols, 1980; Ghosh, 1974). Mais ce critère n'est pas suffisant. Il indique uniquement que la localisation peut se produire à partir de ce point. L'apparition réelle de la localisation dépend ensuite des caractéristiques intrinsèques au matériau. L'effet de l'érouissage et de la sensibilité à la vitesse a été largement étudié (Hart, 1967; Hutchinson et Neale, 1977; Ghosh, 1977). L'augmentation de ces deux paramètres conduit à augmenter l'allongement réparti, et après cela, retarde l'apparition de la localisation.

b) Effets liés à la température

Les analyses précédentes sont simplifiées et ne permettent pas de prendre en compte des phénomènes physiques liés au matériau et à sa plastification (endommagement, échauffement...). Par exemple, même lorsque la température de l'échantillon est supposée constante au cours de l'essai, l'écoulement plastique peut entraîner un échauffement non négligeable. L'apparition de la localisation va dépendre des conditions de conduction et de convection de cette chaleur. Ainsi, Ferron (Ferron, 1981; Ferron, 1982) étudie l'apparition de la localisation dans un acier en modifiant ces conditions. Il montre que, lorsque la chaleur peut diffuser par les têtes de l'éprouvette, il s'établit un gradient de température à partir du centre qui force la localisation en cet endroit. Il montre aussi que, lorsque les échanges thermiques par convection à la surface sont trop faibles, la localisation se produit plus tôt.

IV.5.2 Localisation dans le Zircaloy-4

Les analyses précédentes (§ IV.5.1a) appliquées aux éprouvettes de l'étude ne permettent pas d'expliquer la diminution de l'allongement réparti lorsque la vitesse de déformation augmente. En effet, le simple effet de renforcement lié à la viscosité devrait conduire au résultat inverse. Il est donc probable que d'autres phénomènes entrent en jeu. Pour le Zircaloy-4, les études récentes (Grange et al., 1997a) ont montré que l'endommagement apparaissait bien après la localisation. Il n'est donc pas à prendre en compte dans notre analyse.

Par contre, les essais de traction de notre étude se déroulent dans l'air (échanges thermiques faibles), avec une fixation utilisant des mors qui conduisent la chaleur. Il est donc probable que l'on retrouve les effets signalés par Ferron. D'autant que le Zircaloy-4 a une sensibilité à la température marquée comme le remarquent (Derep et al., 1980) qui étudient l'évolution des propriétés mécaniques du Zircaloy-4 entre 77 et 900 K. Dans la gamme 0–100°C, l'évolution des contraintes d'écoulement est pratiquement linéaire avec la température (–1 MPa/°C), quelle que soit la vitesse de sollicitation.

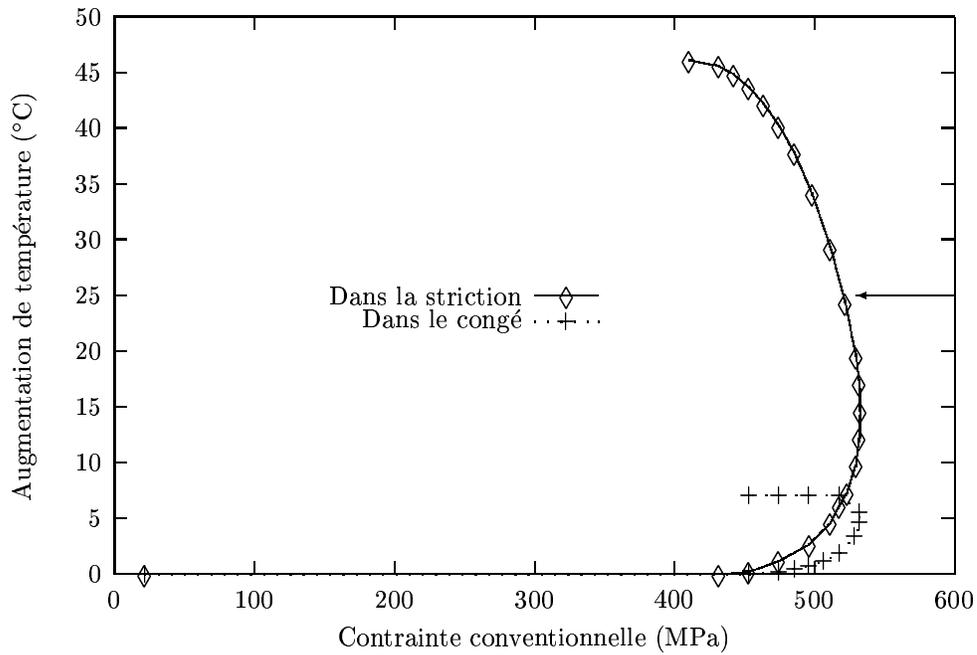


Figure IV.13 : Evolution de la température au cours de l'essai de traction. Epreuve sens long, $T = 20^\circ\text{C}$, $\dot{\epsilon} = 10^{-2}\text{s}^{-1}$.

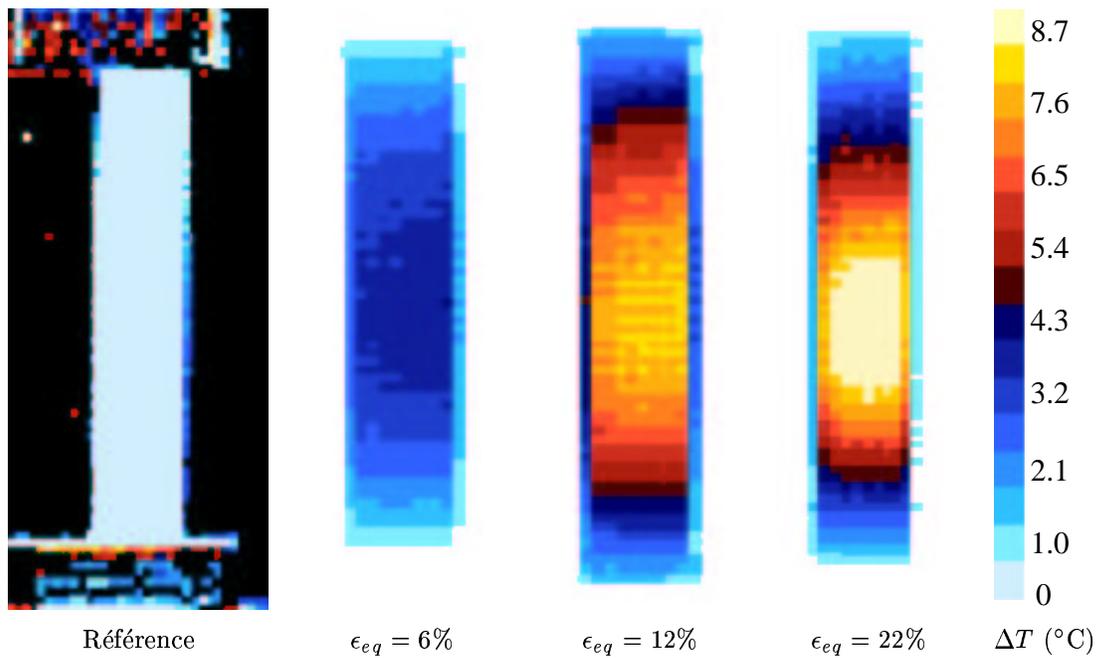


Figure IV.14 : Isovaleurs de variation de température au cours d'un essai de traction. Epreuve sens long, acquisition Deltatherm, $T = 20^\circ\text{C}$, $\dot{\epsilon} = 10^{-3}\text{s}^{-1}$. Les images sont obtenues par soustraction avec l'image de départ, alors que l'éprouvette change de taille. La seule partie exploitable est donc la zone de $10 \times 50\text{ mm}^2$ correspondant aux dimensions initiales.

Nous avons donc cherché à caractériser l'évolution de la température le long de l'éprouvette au cours de l'essai. Pour cela, nous avons utilisé deux techniques :

- **Thermocouples** fixés sur la surface en trois points (au centre et près des congés),
- **Caméra infra-rouge** (Deltatherm 1000 par Stress Photonics) permettant une acquisition toutes les 4 secondes pour une image de $100 \times 100 \text{ mm}^2$. Cette méthode donne accès aux températures rayonnées le long de l'éprouvette. L'image de l'éprouvette au début de l'essai constitue la référence thermique. Les cartographies d'augmentation de température sont obtenues en soustrayant les images à l'image de référence.

L'augmentation de température au cours de l'essai est présentée sur la Figure IV.13 pour une vitesse de 10^{-2} s^{-1} . La flèche correspond à l'apparition de la striction macroscopique. On remarque que la température est hétérogène dès le début de l'essai. Elle reste inférieure près des congés car la proximité des têtes permet d'évacuer plus de chaleur par conduction. Ainsi, il s'établit un gradient à partir du centre de l'échantillon. On remarquera que l'apparition de la striction conduit à une augmentation de température encore plus importante.

Il est possible de calculer l'élévation de température en considérant que 90 % de la plasticité est transformée en chaleur et que cette chaleur n'est pas dissipée au cours de l'essai (hypothèse d'échauffement adiabatique). On obtient ainsi une borne supérieure. Par exemple, pour une déformation correspondant à l'allongement réparti, on calcule :

$$C_p \cdot \Delta T = 0.9 \cdot R_m \cdot \epsilon_u$$

avec $C_p = 1.794$, capacité calorifique volumique exprimée en MPa/K , $R_m = 520$, charge à rupture exprimée en MPa et $\epsilon_u = 0.12$, allongement réparti. On trouve $\Delta T \simeq 30^\circ C$, ce qui est assez proche de la valeur de $25^\circ C$ déterminée expérimentalement pour une vitesse de 10^{-2} s^{-1} , qui est assez importante pour considérer que les effets de convection et conduction sont limités.

Les résultats obtenus grâce à la caméra infra-rouge sont présentés Figure IV.14 pour une vitesse de sollicitation de 10^{-3} s^{-1} . Ce type d'image permet de visualiser de manière évidente le gradient de température qui s'établit le long de l'éprouvette dès le début de la déformation plastique. Même avant l'allongement réparti, le centre de l'éprouvette est plus chaud. Ceci peut entraîner une localisation dans cette région s'il n'existe pas d'autres défauts.

IV.5.3 Discussion

Les résultats semblent confirmer que l'essai de traction ne se déroule pas dans des conditions isothermes. La chaleur dégagée par la plastification conduit à la formation d'un gradient de température à partir du centre de l'éprouvette et conduit à la localisation de la déformation en ce point car la capacité d'écroutissage du matériau est réduite par l'augmentation de température. Les essais effectués sur les éprouvettes avec des grilles en surface semblent confirmer que la température joue un rôle important dans cette localisation. En effet, ils ont été interrompus régulièrement permettant à la température de s'uniformiser et ils présentent un allongement réparti plus important que celui mesuré lors des essais en continu. De plus, l'augmentation de température est d'autant plus importante que la vitesse

de déformation est élevée. Ceci permettrait d'expliquer pourquoi la localisation se produit de plus en plus tôt lorsque la vitesse augmente.

Pour les résultats concernant le matériau hydruré, il faut aussi noter que les éprouvettes présentent des défauts d'épaisseur dus au traitement d'hydruration (de 10 à 20 μm). Ces variations constituent des perturbations pouvant conduire à avancer le moment de la localisation. Ainsi, si la rupture se produit toujours au centre des éprouvettes pour le matériau non ou faiblement hydruré, ce n'est plus le cas pour le matériau fortement hydruré. Des mesures de l'épaisseur le long de l'axe de sollicitation avant essai ont permis de montrer que la localisation avait effectivement lieu dans la zone où l'épaisseur était la plus faible. Il y a donc combinaison des deux phénomènes.

Ces résultats permettent de comprendre de manière qualitative les évolutions observées sur les allongements répartis. Il est encore difficile de prévoir le moment réel de la localisation (apparition de la bande de cisaillement par exemple pour le matériau faiblement hydruré Figure IV.15).

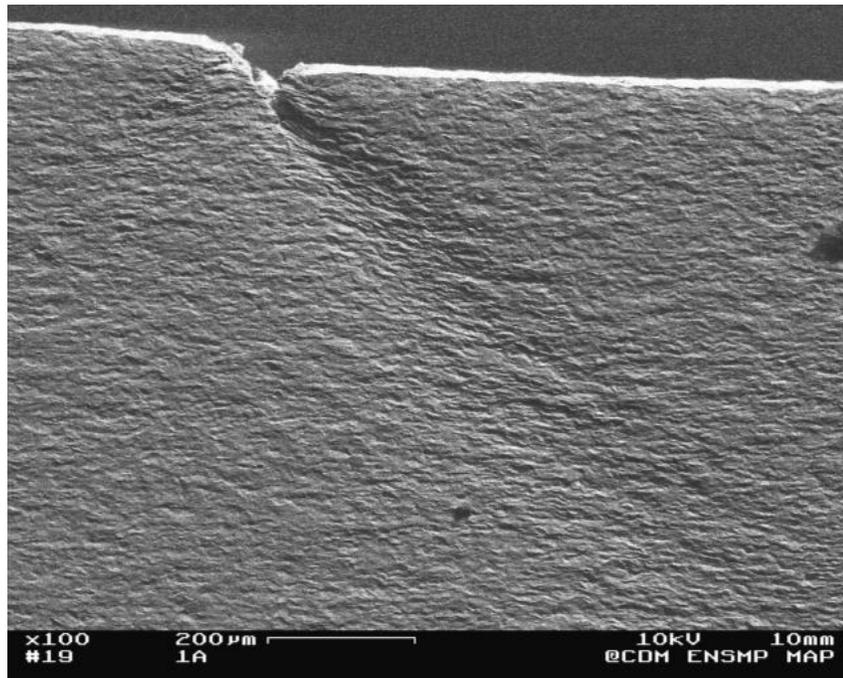


Figure IV.15 : Bande de cisaillement apparaissant juste avant la rupture. Eprouvette MEB sollicitée dans le sens long, Teneur = 284 ppm, $T = 20^\circ\text{C}$, $\dot{\epsilon} = 10^{-3}\text{s}^{-1}$.

En résumé

*C*e chapitre nous a permis de présenter les caractéristiques du comportement mécaniques du matériau de l'étude, avec et sans hydrures.

En ce qui concerne le matériau de base :

- * le comportement est en relation directe avec la texture cristallographique et avec la composition de l'alliage. En particulier, l'oxygène pourrait être à l'origine du crochet de traction observé sur le sens travers.*
- * le matériau présente une forte anisotropie qui se manifeste principalement dans la direction travers court de la tôle. Elle est pratiquement constante au cours de la déformation et ne dépend pas de la vitesse de sollicitation.*
- * les contraintes d'écoulement dépendent de la vitesse de sollicitation, témoignant du caractère viscoplastique de la déformation.*
- * la localisation dans les éprouvettes est favorisée par l'augmentation de la vitesse de sollicitation car celle-ci conduit à un échauffement au centre de l'échantillon. Mais elle peut être aussi liée à la présence de défauts de la géométrie.*

En ce qui concerne l'effet de l'hydrogène et des hydrures :

- * l'introduction d'hydrures dans le matériau conduit à une disparition du crochet de traction et à une augmentation de la capacité d'écrouissage, probablement par effet composite.*
 - * l'anisotropie, principalement contrôlée par la texture et les modes de déformation du matériau de base, n'est pas affectée par la précipitation.*
 - * la viscosité du matériau de base n'est pas modifiée non plus.*
 - * la localisation dans les éprouvettes hydrurées se produit plus tôt car elles comportent plus de défauts géométriques.*
-

Partie B

Etude approfondie de l'effet des hydrures

Chapitre -V-

Etude mécanique de la rupture du Zircaloy-4 hydruré

C e chapitre présente l'étude mécanique de la rupture du matériau, avec et sans hydrures et à température ambiante. Les essais réalisés concernent :

- l'effet des hydrures sur la ductilité d'éprouvettes de traction lisses. Trois directions de sollicitation sont étudiées. Pour le sens long, l'effet de la vitesse de déformation est également caractérisé.
- l'influence de la triaxialité sur la rupture. Des éprouvettes entaillées mettent en évidence l'effet néfaste d'une concentration de la déformation.
- la résistance à la propagation de fissure.

Les résultats de cette partie serviront de base à l'identification du modèle de comportement et de rupture du Zircaloy-4 hydruré dont la construction est présentée dans le Chapitre VIII.

V.1 Rappels

La précipitation des hydrures dans les alliages de zirconium utilisés dans l'industrie nucléaire conduit à une fragilisation du matériau de base. Selon l'élément de structure étudié, cette dégradation des propriétés se manifeste de différentes manières.

V.1.1 Structures massives

Les tubes de forces CANDU (Simpson, 1981) sont des structures massives dont l'épaisseur est de plusieurs millimètres. Ils sont généralement en alliage biphasé α - β de zirconium à 2.5 %pds de niobium. Le principal problème sur ces tubes est lié à la présence de fissures dont il faut garantir la stabilité au cours du temps. L'hydrogène intervient alors doublement. Tout d'abord, la présence d'hydrures sur le chemin de la fissure facilite sa propagation. Ils entraînent un décalage de la température de transition ductile – fragile vers les hautes températures (Coleman et Hardie, 1966; Evans et Parry, 1966; Fearnough et Cowan, 1967). Dans un deuxième temps, il se produit une interaction entre l'hydrogène et le champ de contrainte en pointe de fissure qui conduit à faire diffuser les atomes vers cette région et à faciliter ainsi la précipitation des hydrures en avant de la fissure lors des refroidissements du coeur. Lorsque ces hydrures atteignent une taille critique, ils rompent et permettent à la fissure de se propager. Ce mécanisme est appelé *Delayed Hydride Cracking* (DHC) (Dutton et al., 1977; Simpson et Puls, 1979; Milss et Huang, 1991; Huang et Mills, 1991).

Les études menées sur ce type de matériau se classent en deux catégories. La première regroupe les modèles décrivant le phénomène DHC. Les auteurs supposent que la propagation est uniquement due à la rupture des hydrures qui se forment en fond de fissure. Le traitement de ce problème consiste à résoudre l'équation de diffusion de l'hydrogène dans le champ de contrainte en avant de la fissure, à déterminer la limite de solubilité de l'hydrogène dans ces conditions et à utiliser un critère de rupture de l'hydrure formé pour simuler ensuite la propagation de fissure (Dutton et al., 1977; Simpson et Puls, 1979). Le modèle reproduit toutefois encore assez mal ce qui est mesuré expérimentalement. Les sources d'erreurs sont multiples. On notera, par exemple, la difficulté à déterminer correctement le champ de contrainte en pointe de fissure et à connaître l'effet de la précipitation des hydrures sur les contraintes internes (Ellyin et Wu, 1994). Mais, même en supprimant cette singularité (Sagat et al., 1994), les auteurs manquent de données quant aux mécanismes de rupture des hydrures. Ils supposent généralement des contraintes critiques. Mais aucune mesure réelle ne vient appuyer cette hypothèse.

La détermination des critères de rupture des hydrures constitue donc l'objectif de l'autre catégorie d'études. (Shi et Puls, 1994; Shi et al., 1994) étudient l'influence de paramètres morphologiques (taille de l'hydrure, rayon en fond d'entaille) sur la ténacité. Il montrent que, lorsque l'hydrure atteint une longueur critique, le champ de contrainte est tel que l'hydrure va rompre. Les travaux les plus complets ont été réalisés par Simpson (Simpson, 1981) puis Puls (Puls, 1988; Puls, 1991; Choubey et Puls, 1994; Sagat et al., 1994). Ils ont utilisé des éprouvettes de traction, lisses ou avec des entailles dans l'épaisseur, afin de déterminer des seuils de rupture d'hydrures par la technique d'émission acoustique. Ils ont trouvé qu'un minimum de déformation plastique était nécessaire à la rupture de l'hydrure (de

l'ordre de quelques %). Ce seuil dépend de l'état de contrainte (uni ou multi-axial) et de la taille de l'hydrure. La contrainte critique de rupture de l'hydrure dépend de son orientation par rapport à la sollicitation, mais aussi de la contrainte d'écoulement du matériau de base ou de la température. Aucun critère plus général n'a pu être tiré de leurs travaux et Simpson remarque que l'amélioration de ces modèles passe par une meilleure connaissance de l'hydrure.

V.1.2 Produits minces

Les tubes guides utilisés dans les centrales de la filière REP ont des épaisseurs qui dépassent rarement 700 μm . Ils sont composés de Zircaloy-4 monophasé α . Les hydrures existent sur ces éléments, à froid et à chaud, et sont généralement répartis assez uniformément dans l'épaisseur. La fragilisation par l'hydrogène va se manifester principalement par une réduction de la ductilité et éventuellement une modification de la charge à rupture.

Les conséquences de la précipitation sont caractérisées par des essais sous sollicitation monotone. Les hydrures ont un effet beaucoup plus marqué à température ambiante pour le matériau non irradié (Prat, 1994). Pour certains auteurs, leur présence conduit à une transition ductile-fragile sur le comportement en traction dans la gamme étudiée. Cette transition disparaît lorsque la température augmente, conduisant à penser que les hydrures peuvent alors se déformer (Evans et Parry, 1966). La teneur de transition varie selon les études. (Marshall et Louthan Jr., 1963), qui étudient l'effet d'hydrures orientés perpendiculairement à la contrainte, déterminent une teneur critique de 50 ppm. (Bai et al., 1991) utilisent des tôles ayant subi différents traitements thermiques et sans orientation préférentielle des hydrures. Ils trouvent que la teneur de transition dépend de l'état métallurgique. Pour le Zircaloy-4 recristallisé, à 20°C, elle est de 760 ppm (taille de grains de 8 μm). Sur un Zircaloy-4 recristallisé dont la taille de grains a été réduite à 1 μm , (Arsène, 1997) montre que la transition se produit pour des teneurs encore plus élevées, de l'ordre de 1200 ppm, à température ambiante. Ces résultats se rapprochent de ceux de (Prat et al., 1998; Grange et al., 1997a) qui ne mettent pas en évidence de chute de ductilité même pour des teneurs de 1300 ppm.

Pour mieux comprendre d'où proviennent ces différences, il faut s'intéresser aux mécanismes de fragilisation et aux paramètres qui peuvent être déterminants. (Bai et al., 1994b; Marshall et Louthan Jr., 1963) semblent relier la fragilisation à une distance critique entre les hydrures. Bai propose même un modèle permettant de calculer la teneur de transition. Les hydrures sont intergranulaires et considérés comme fragiles au vu des résultats déjà obtenus par d'autres auteurs (Barraclough et Beevers, 1969). Dès lors qu'ils forment un réseau continu dans le matériau, ils contrôlent le comportement. Le modèle consiste à calculer la teneur en hydrogène pour laquelle il y a percolation des hydrures. Les paramètres morphologiques intervenant dans le calcul sont déterminés par analyse d'image. Les teneurs déterminées par ce modèle appliqué au matériau de Bai ou d'Arsène surestiment la teneur de transition. L'erreur est encore plus importante pour le matériau dans l'état détendu pour lequel les hydrures ne sont pas intergranulaires. Il convient donc, pour améliorer le modèle, de définir une fraction surfacique équivalente d'hydrures. En effet, pour une même

teneur en hydrogène, la répartition des hydrures va avoir une grande influence sur la ductilité (Marshall et Louthan Jr., 1963).

De plus, il semble que la chute de ductilité corresponde à une modification de la morphologie des hydrures. Lorsque la teneur augmente, les précipités obtenus par Bai et Arsène deviennent plus massifs (Chapitre III). Enfin, on peut noter que les hydrures intergranulaires semblent plus nocifs que les hydrures précipités dans les grains. En effet, le matériau détendu, qui possède une précipitation transgranulaire, supporte mieux l'introduction d'hydrogène que le matériau dans l'état recristallisé. Ceci serait confirmé par les résultats de (Prat et al., 1998). Les tubes recristallisés présentent une précipitation majoritairement transgranulaire et leur transition ductile–fragile semble effectivement se situer à d'assez fortes teneurs (>1200 ppm).

V.2 Approche locale de la rupture

Pour les éléments de structure REP, deux directions d'étude peuvent se dégager.

V.2.1 Caractérisation mécanique de la rupture

La première concerne l'étude détaillée de l'effet des hydrures sur les propriétés mécaniques du Zircaloy-4. Elle est nécessaire à l'établissement des critères de tenue mécanique des éléments de structure. Jusqu'à aujourd'hui, cette caractérisation a été effectuée sur des éprouvettes lisses en traction ou sur des tubes en traction et en éclatement. Mais l'utilisation de ces seules éprouvettes ne suffit pas à décrire complètement les propriétés mécaniques et le domaine d'utilisation des éléments. Par exemple, (Yunchang et Koss, 1985) montrent que la modification de l'état de contraintes (uni à bi-axiale) diminue les ductilités à rupture d'un facteur deux à trois. Dans un premier temps, nous avons donc déterminé quelles étaient les sollicitations dimensionnantes sur les tubes guides. Nous avons ensuite défini un plan d'expérience donnant accès aux paramètres décrivant le comportement à rupture dans le domaine considéré. Les essais réalisés sont présentés dans le Tableau V.1.

Température ambiante			
Essai	Sens	Teneur (ppm)	Vitesse (s^{-1})
Traction lisses	Long	0 à 1100	10^{-3} , 10^{-2}
	Travers	0 à 1100	10^{-3}
	45°	0 à 1100	10^{-3}
Traction entaillées	Long	0 à 950	10^{-3}
Traction fissurées	Long	0 à 1300	10^{-4}
	Long	0	10^{-4} , 10^{-3} , 10^{-2}

Tableau V.1 : Essais réalisés sur le matériau de l'étude pour caractériser la rupture.

a) Traction sur éprouvettes lisses

La traction sur éprouvettes lisses suivant trois directions et pour deux vitesses de sollicitation dans le sens long permet de situer les résultats par rapport aux autres études. Ces essais donnent accès aux informations concernant la rupture pour des sollicitations dans le plan de la tôle. Ils ont permis de montrer que l'endommagement était isotrope dans ce plan. C'est pourquoi, par la suite, la caractérisation de la rupture a été effectuée suivant une seule direction.

b) Traction sur éprouvettes entaillées

Il est nécessaire de caractériser la rupture pour différents taux de triaxialité (χ = rapport entre la pression hydrostatique et la contrainte équivalente au sens de Von Misès). En effet, l'approche locale de la rupture a montré que les mécanismes d'endommagement et de rupture pouvaient dépendre fortement de ce paramètre (Rice et Tracey, 1969; Beremin, 1981; Huez, 1996).

Pour les tôles de l'étude, leur faible épaisseur permet de faire l'hypothèse que la contrainte dans le sens travers court est pratiquement nulle (contraintes planes). Le domaine des triaxialités est alors l'intervalle $[0..2/3]$, la valeur $1/3$ étant obtenue pour une traction sur éprouvette lisse avant striction. Les essais pour lesquels la triaxialité est inférieure à $1/3$ comportent une composante de compression. Ils sont très délicats à réaliser, particulièrement sur les tôles minces (problèmes de flambage).

Pour décrire les triaxialités supérieures à $1/3$, il existe plusieurs types d'essais.

- Essais biaxiés. La contrainte axiale étant σ , la contrainte imposée perpendiculairement vaut $\alpha \cdot \sigma$ avec α entre 0 et 1,
- essais d'enfoncement (Bourcier et Koss, 1982),
- essais uniaxiaux sur éprouvettes entaillées (Beremin, 1981). La présence des entailles permet de modifier localement l'état de contraintes.

La dernière méthode permet de simplifier l'appareillage expérimental. C'est celle que nous avons retenue. Cette procédure d'essai n'a jamais été réalisée sur des produits minces. Une étude préliminaire a donc été nécessaire pour définir les géométries à utiliser et la gamme des triaxialités décrites.

A l'aide du comportement identifié dans le Chapitre IV, nous avons pu calculer, par éléments finis, les valeurs de triaxialité sur trois géométries. Celles-ci ont été inspirées des éprouvettes axisymétriques. Le détail des calculs est fourni en Annexe A-II. Les trois géométries testées conduisent en fait à de très faibles variations ($\chi=0.46$ pour un rayon d'entaille de 10 mm et $\chi=0.58$ pour un rayon de 2 mm). Nous n'avons retenu qu'une seule géométrie qui est celle qui donne la plus grande valeur de la triaxialité.

c) Traction sur éprouvettes fissurées

Le dernier volet de la caractérisation de la rupture concerne la propagation de fissure. (Prat, 1994) a effectué ce type d'essai sur des tubes et sur des tôles de Zircaloy-4. Il montre que la résistance à la propagation est diminuée par l'introduction d'hydrures dans le matériau. Pour les fortes teneurs (plus de 1300 ppm), la rupture est quasi-fragile. La géométrie la plus adaptée à l'étude de la propagation de fissure sur tôles minces est l'éprouvette Plaque à Fissure Centrale ou Center Crack Panel (CCP).

V.2.2 Etude de l'endommagement

Les remarques du § V.1.2 montrent que le comportement de l'hydrure dans la matrice est un paramètre essentiel pour caractériser la fragilisation. Après chaque essai nous avons donc effectué des analyses du mode de rupture. Nous nous sommes attachés à dégager les paramètres mécaniques déterminant l'apparition et l'évolution de l'endommagement et à répondre aux questions soulevées par les précédentes études concernant la capacité des hydrures à se déformer. Cette partie est présentée dans le Chapitre VI. Pour une meilleure compréhension des résultats du présent chapitre, il faut tout de même noter que l'endommagement est fortement lié à la déformation plastique de la matrice.

V.3 Essais sur éprouvettes lisses

Les conditions ont été décrites dans le § IV.1.2. Sur ces éprouvettes sont mesurées les réductions de largeur (Δl) et d'épaisseur (Δe) au niveau de la rupture (Tableau V.3). Ces valeurs permettent de calculer la réduction moyenne de section (Z) qui caractérise la ductilité macroscopique du matériau :

$$Z = \frac{S_0 - S}{S_0}$$

Avec $S = (e_0 - \Delta e) \cdot (l_0 - \Delta l)$

S_0 étant la section initiale des éprouvettes. L'évolution du paramètre Z avec la teneur en hydrogène est présentée Figure V.1 pour les trois directions de sollicitation (valeurs dans le Tableau V.2).

- On ne remarque pas de transition ductile-fragile dans la gamme de teneurs étudiée. La ductilité diminue linéairement lorsque la teneur en hydrogène augmente. La teneur de transition pour ce matériau est donc supérieure à 1200 ppm. Ce résultat est en accord avec les conclusions de la bibliographie qui semblent montrer que les hydrures transgranulaires sont les moins nocifs. Et nous avons vu que sur les tôles de l'étude, la précipitation était majoritairement transgranulaire, assez proche de celle observée par (Arsène, 1997; Bai et al., 1994b) sur le matériau détendu dont les teneurs de transition dépassent aussi les 1000 ppm.

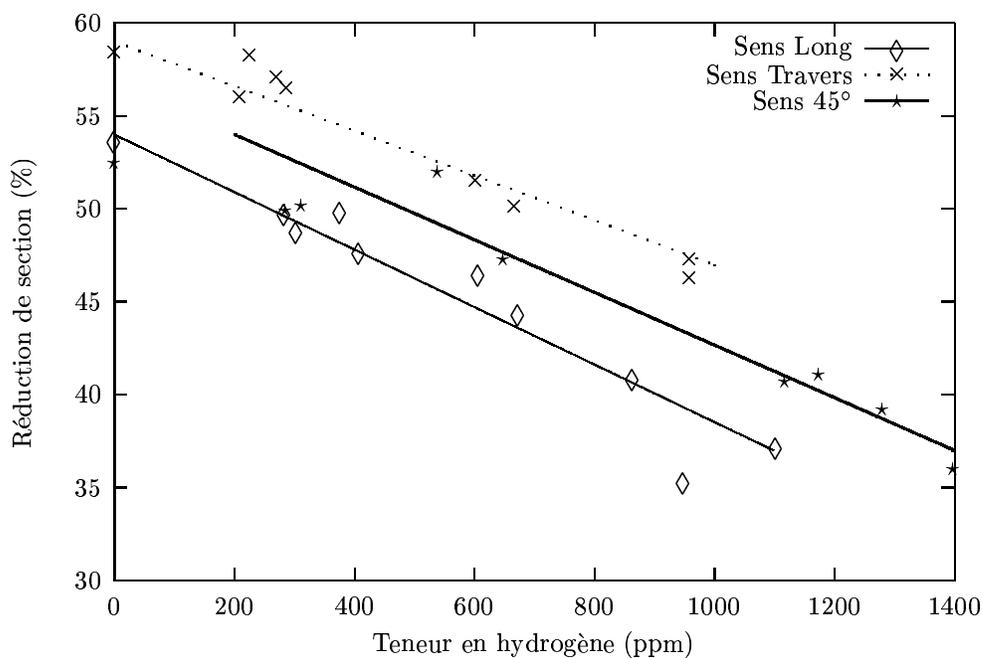


Figure V.1 : Evolution de la ductilité des éprouvettes lisses avec la teneur en hydrogène, pour trois directions de sollicitation dans le plan de la tôle. $T = 20^{\circ} C$, $\dot{\epsilon} = 10^{-3} s^{-1}$.

Sens Long		Sens Travers		Sens 45 °	
Teneur (ppm)	Z (%)	Teneur (ppm)	Z (%)	Teneur (ppm)	Z (%)
0	53.7	0	58.4	0	52.5
283	49.8	208	56.0	284	49.9
304	48.8	225	58.3	312	50.2
376	49.9	270	57.1	538	52.0
408	47.7	285	56.5	647	47.3
607	46.5	602	51.5	1118	40.7
673	44.4	666	50.1	1174	41.1
864	40.9	957	47.3	1280	39.2
949	35.3	958	46.3	1398	36.0
1103	37.2				

Tableau V.2 : Réductions de section mesurées après rupture. Eprouvettes lisses, $T = 20^{\circ} C$, $\dot{\epsilon} = 10^{-3} s^{-1}$. Les références des éprouvettes sont dans le Tableau IV.2, Page 52.

Sens Long		Sens Travers		Sens 45 °	
Teneur (ppm)	Δl (%)	Teneur (ppm)	Δl (%)	Teneur (ppm)	Δl (%)
0	42.5	0	51.0	0	45.3
283	40.6	208	49.0	284	43.7
304	40.9	225	50.6	312	42.5
376	40.7	270	50.5	538	44.0
408	38.8	285	46.9	647	38.8
607	37.4	602	45.0	1118	34.0
673	34.7	666	42.5	1174	32.9
864	32.7	957	40.3	1280	32.6
949	28.3	958	39.0	1398	29.1
1103	26.8				

Tableau V.3 : Réductions de largeur mesurées après rupture au niveau de la striction. Eprouvettes lisses, $T = 20^\circ C$, $\dot{\epsilon} = 10^{-3} s^{-1}$. Les références des éprouvettes sont dans le Tableau IV.2, Page 52.

Eprouvette	–	C2B10 L3	C2C37 L1	C2D14 L3	C2E32 L2	C2E34 L3
Teneur (ppm)	0	323	468	489	866	1147
Z (%)	48.5	44.8	41.2	43.1	35.7	33.2
Δl (%)	41.0	36.1	33.7	34.8	27.7	27.8

Tableau V.4 : Réductions de section mesurées au niveau de la rupture. Eprouvettes lisses, $T = 20^\circ C$, $\dot{\epsilon} = 10^{-2} s^{-1}$.

- L'effet des hydrures ne semble pas dépendre de la direction de sollicitation. Ceci est lié à la faible anisotropie de comportement dans le plan et à l'orientation particulière des hydrures. Les plaquettes ont leur normale pratiquement parallèle à la normale au plan de la tôle. Quelle que soit la sollicitation dans ce plan, l'orientation des hydrures par rapport à la contrainte est identique (pour une représentation plus schématique on se reportera à la Figure III.6 page 34). Il n'est donc pas surprenant d'obtenir un effet identique de l'hydrogène pour les trois directions testées.
- La variation de section a aussi été mesurée sur les éprouvettes sollicitées à différentes vitesses de déformation (Tableau V.4). On retrouve le résultat déjà établi par (Prat, 1994) qui est que la vitesse n'a pas d'influence sur la ductilité. L'augmentation de contrainte qui en résulte n'a donc pas d'effet sur la rupture des hydrures.

V.4 Essais sur éprouvettes entaillées

Les résultats obtenus sur les éprouvettes lisses ont montré que la vitesse de déformation avait une faible influence sur l'évolution de la ductilité et que l'effet des hydrures était le même pour des sollicitations dans le plan. Ceci permet de réduire le champ d'investigation. Nous nous sommes donc limités à une géométrie, une vitesse et un sens de prélèvement, dans ce cas, le sens long.

V.4.1 Paramètres de l'essai

a) Géométrie

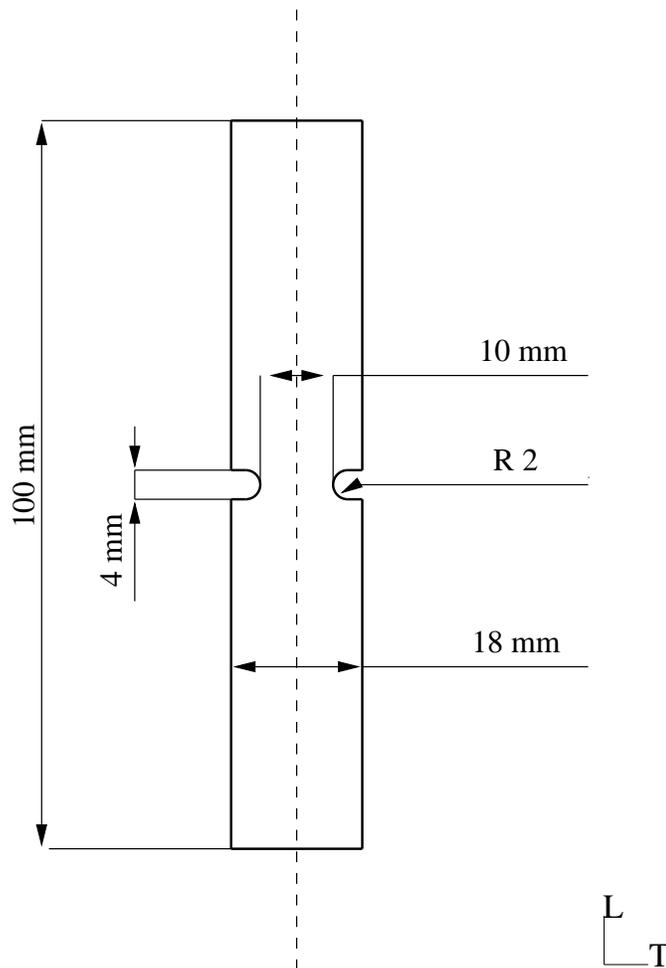
La géométrie des éprouvettes est présentée Figure V.2. Elle est directement inspirée des éprouvettes utilisées pour l'approche locale (Beremin, 1981). La longueur hors mors est de 50 mm. La largeur minimale est de 10 mm, comme pour les éprouvettes lisses. Les calculs par éléments finis présentés dans l'Annexe A-II ont montré que la triaxialité au centre variait entre 0.54 et 0.58.

b) Mesures de la déformation

Pour les éprouvettes axisymétriques entaillées, la réduction diamétrale est généralement mesurée en continu à l'aide d'un extensomètre. Pour les éprouvettes planes entaillées, ce type de dispositif n'est plus adapté car la pression de l'extensomètre sur la tôle gêne le bon déroulement de l'essai. De plus, le positionnement de l'appareillage est pratiquement impossible du fait de la faible épaisseur. Nous avons donc utilisé deux autres méthodes, nécessitant l'arrêt régulier des essais. Des grilles (pas d'1 mm) ont été déposées sur la surface et l'éprouvette a été photographiée à chaque interruption. Une mesure directe a aussi été effectuée à l'aide d'une lunette optique montée sur une vis micrométrique. La précision de ce type de mesure est de 100 μm . Les réductions de largeur minimales mesurées peuvent être aussi faibles que 800 μm à 1 mm. L'erreur introduite par le mode de mesure atteint 10% pour ces éprouvettes. L'épaisseur a aussi été mesurée en différents points de la section minimale à l'aide d'un palmer.



a) *Eprouvettes axisymétriques entaillées (Bauvineau, 1996)*



b) *Eprouvette plane entaillée*

Figure V.2 : Géométrie des éprouvettes entaillées.

c) Vitesse de sollicitation

Sur ces essais, il n'est pas aisé de définir une vitesse de déformation, car celle-ci est hétérogène dans la section de l'éprouvette. (Bauvineau, 1996) relie la vitesse de déplacement du vérin à la vitesse de déformation diamétrale qu'il souhaite imposer par

$$V_{\text{verin}} = \rho \cdot \dot{\epsilon} \quad (\text{V.1})$$

ρ étant le rayon d'entaille. En utilisant la formule V.1, nous avons déterminé la vitesse de déplacement du vérin à imposer afin d'obtenir une vitesse de réduction de largeur identique à celle mesurée sur les éprouvettes lisses (de 10^{-4} à 10^{-2} s $^{-1}$). Nous avons ensuite utilisé les éléments finis pour valider cette valeur. Les calculs ont montré que la vitesse de déformation réelle de la largeur était très différente de celle que nous souhaitions imposer. Nous avons donc déterminé numériquement la vitesse de déplacement à imposer au vérin (Annexe A-II).

d) Conditions d'essai

Les éprouvettes ont été sollicitées en traction monotone sur la même machine servo-mécanique que les éprouvettes lisses (Zwick), avec la même cellule de charge de 500 daN. Les essais ont été réalisés à température ambiante. La vitesse de déplacement du vérin est de 1mm/min.

V.4.2 Résultats

a) Contraintes

Les résultats sont présentés en contrainte conventionnelle (F/S_0) et réduction de largeur ($\Delta l/l_0$). Les évolutions sont présentées sur la Figure V.3. On remarque l'augmentation du niveau de contrainte par rapport aux éprouvettes lisses par simple effet mécanique des entailles. On retrouve aussi l'anisotropie de déformation car la déformation selon la direction travers court est très faible comparée à la réduction de largeur.

b) Mode de rupture

Quelle que soit la teneur en hydrogène, une fissure s'amorce à partir du fond des entailles. Elle se propage ensuite de manière stable et conduit à la rupture finale. Ce mécanisme est illustré sur la Figure V.4 pour une éprouvette hydrurée à 283 ppm. La première image correspond à l'instant juste après l'amorçage et la seconde présente l'allure de l'éprouvette après rupture. Les grilles permettent de mettre en évidence que la déformation dans cet échantillon est très fortement localisée au bord des entailles.

Le lieu d'amorçage, ne correspond pas systématiquement au fond de l'entaille. Cette dispersion expérimentale peut être liée aux difficultés d'alignement axial des produits minces, au mode d'usinage par fraisage qui est susceptible d'introduire des défauts de surface dans l'entaille et aux variations d'épaisseur. Le polissage du plan des éprouvettes, après rupture, met en évidence de nombreuses amorces de fissures dans le congé proche du fond de l'entaille (Figure V.5) pour une teneur de 384 ppm. La simulation de l'éprouvette par éléments finis (Annexe A-II) montre qu'il peut se produire une localisation de la déformation juste au dessus de l'entaille (200 μm environ). Cette bande n'apparaît que pour de très grandes

déformations plastiques. Pour les éprouvettes faiblement hydrurées, la rupture peut donc s'amorcer à partir de ce point.

La propagation de la fissure s'effectue rarement dans le plan perpendiculaire à la direction de sollicitation. Pour les éprouvettes faiblement hydrurées des zones plus claires apparaissent sur la surface, de part et d'autre des entailles, au cours de la déformation (Figure V.6). Elles mettent en évidence l'intense cisaillement subi par ces zones. Un calcul par éléments finis (voir Annexe A-II) montre que la déformation par cisaillement dans ces régions n'est pas négligeable devant la déformation plastique de traction. La fissure se propage donc dans un champ de contraintes complexe ce qui explique ses bifurcations.

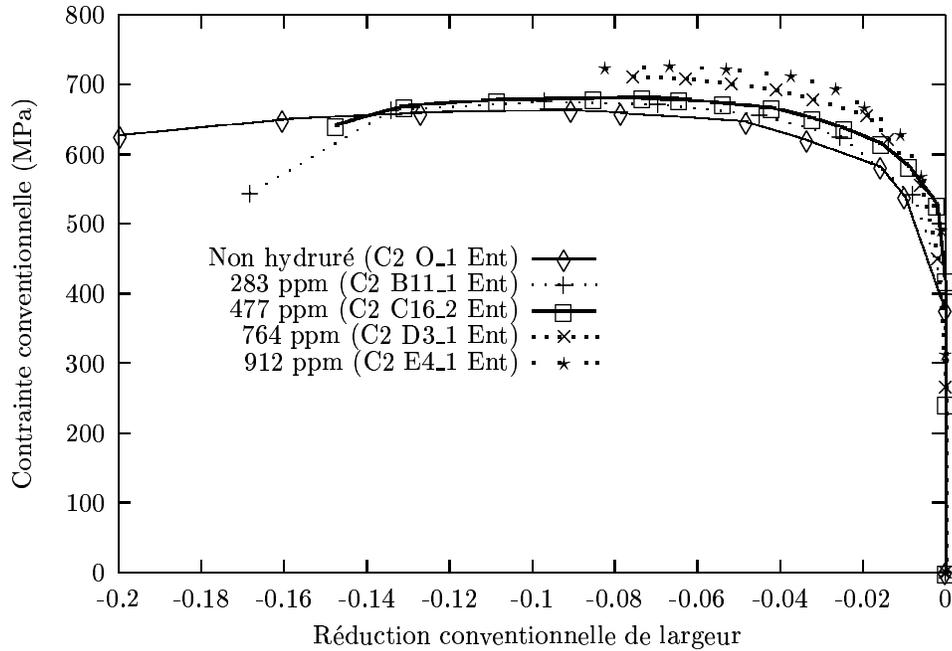
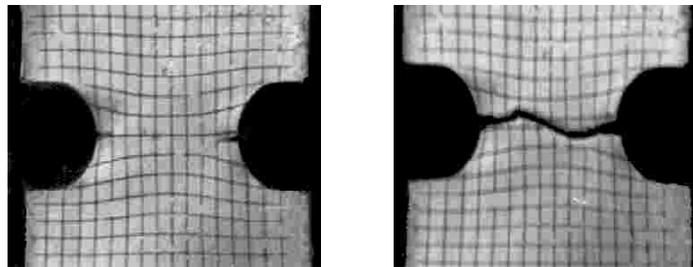


Figure V.3 : Courbes contrainte conventionnelle- réduction de largeur. Epreuves entaillées, $T = 20^{\circ}C$.



a) Instant consécutif à l'amorçage b) Aspect de la rupture

Figure V.4 : Déroulement de l'essai de traction sur éprouvettes entaillées. 283 ppm (C2 B11_1 Ent).

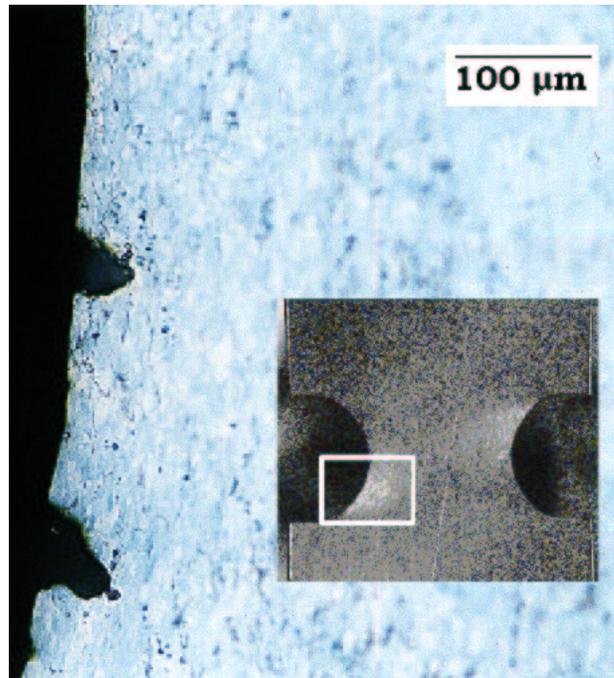


Figure V.5 : Amorces de fissures dans l'entaille (C2 C16_1 Ent, 384 ppm).

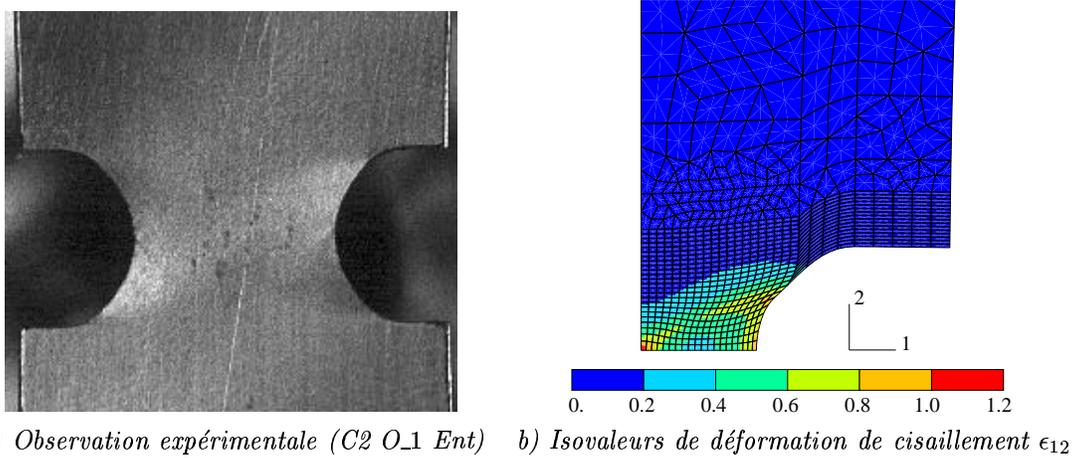


Figure V.6 : Apparition d'une zone de déformation par cisaillement. Comparaison entre le calcul et les observations expérimentales. Matériau non hydruré.

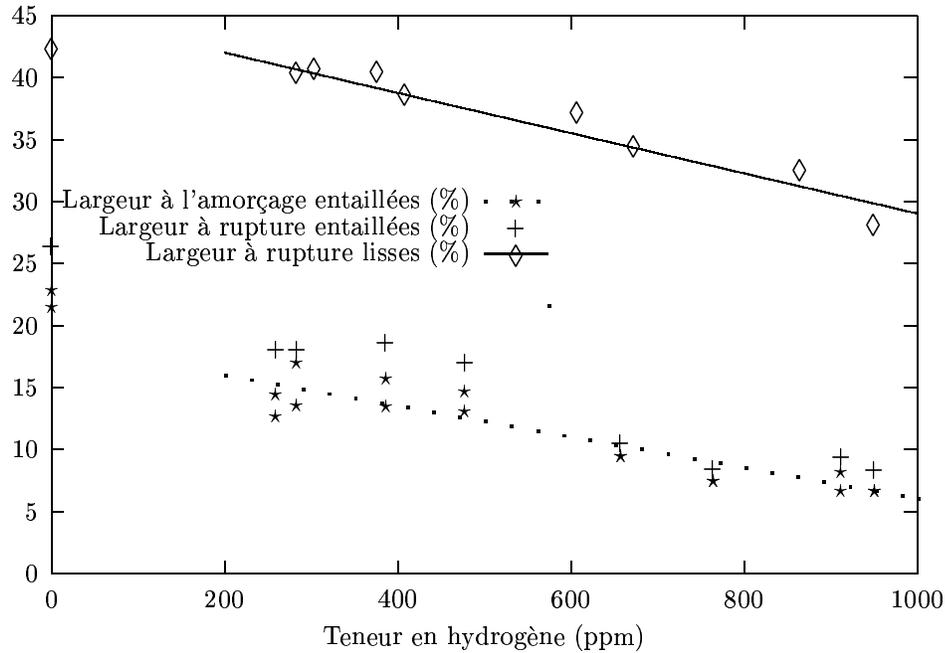


Figure V.7 : Evolution des largeurs à l'amorçage et à rupture avec la teneur en hydrogène. Comparaison avec les réductions de largeur mesurées sur éprouvettes lisses.

Eprouvette	Teneur (ppm)	l_0 (mm)	l_a (mm)	l_r (mm)	Δl_a (%)	Δl_r (%)	R_m (MPa)
C2 O_1 Ent	0	10.26	8.06–7.91	7.55	21.5–22.9	26.4	658.
C2 B11_2 Ent	259	10.26	8.96–8.77	8.4	12.7–14.5	18.1	675.
C2 B11_1 Ent	283	10.26	8.86–8.51	8.4	13.6–17.0	18.1	661.
C2 C16_1 Ent	386	10.2	8.82–8.60	8.3	13.5–15.7	18.6	694.
C2 C16_2 Ent	477	10.24	8.90–8.73	8.5	13.1–14.7	17.0	682.
C2 D3_2 Ent	657	10.17	9.20	9.1	9.5	10.5	711.
C2 D3_1 Ent	764	10.05	9.29	9.2	7.5	8.5	717.
C2 E4_1 Ent	912	10.21	9.53–9.37	9.25	6.7–8.2	9.4	726.
C2 E4_2 Ent	950	10.25	9.56	9.24	6.7	8.3	717.

Tableau V.5 : Evolution des largeurs à l'amorçage et à rupture avec la teneur en hydrogène. Lorsque deux valeurs sont données, elles constituent un encadrement de la largeur réelle à rupture (avant et après). Ceci est lié au mode de mesure qui est discontinu. La charge maximale observée (R_m) est aussi donnée.

c) Réductions de largeur

Le Tableau V.5 présente les réductions de largeur à l'amorçage (Δl_a) de la fissure et à rupture (Δl_r). Pour les largeurs à rupture, la mesure est effectuée en fin d'essai. Par contre, pour la largeur à l'amorçage, il n'est pas toujours évident de détecter la fissuration et de stopper l'essai. Les mesures en discontinu ne donnent donc qu'un encadrement, parfois très large.

Les évolutions de ces deux paramètres sont tracées sur la Figure V.7 et comparées aux réductions de largeur mesurées sur les éprouvettes lisses. La localisation de la déformation dans les zones entaillées conduit à réduire les ductilités macroscopiques. Si on s'intéresse aux largeurs à l'amorçage, l'effet de l'hydrogène est pratiquement identique à celui obtenu sur les éprouvettes lisses (les pentes sont égales).

En ce qui concerne les largeurs à rupture, deux effets se combinent. Leurs influences respectives sont délicates à déterminer. Le premier est lié à la propagation de fissure. On teste la ténacité du matériau, qui diminue lorsque la teneur en hydrogène augmente (Prat, 1994) et (§ V.5). Le deuxième effet est lié à l'augmentation de triaxialité au centre de l'éprouvette. Cette augmentation accélère la croissance des cavités formées sur les hydrures en avant de la fissure et peut accélérer la germination (Yunchang et Koss, 1985). Plus le matériau est riche en hydrogène, plus l'endommagement va être important en avant de la fissure et plus la triaxialité va permettre de faire croître les cavités. Le ligament central va donc être d'autant plus affaibli que la teneur en hydrogène est importante.

V.4.3 Remarques

L'effet de la triaxialité n'a donc pas été expliqué car il est délicat, pour les éprouvettes entaillées, de découpler les phénomènes intervenant dans la rupture. Il convient donc, pour compléter ces essais, d'effectuer :

- des essais caractérisant la résistance à la propagation de fissure (§ V.5),
- des essais pour lesquels le maximum de déformation correspond au maximum de triaxialité. Ceci ne peut être réalisé qu'au moyen de sollicitations biaxiées. Même si la triaxialité reste faible (hypothèses de contraintes planes), (Yunchang et Koss, 1985) ont montré, par des essais d'enfoncement, que la déformation plastique équivalente à rupture diminuait fortement lorsque l'état de contrainte devenait biaxial. Ils montrent que l'effet de l'hydrogène est alors très accentué (voir la Figure VI.1 page 100). Pour eux, l'endommagement apparaît alors plus rapidement et la croissance des cavités est plus rapide.

V.5 Résistance à l'amorçage et à la propagation de fissure

V.5.1 Dispositif et conditions expérimentales

a) Quelques rappels

Géométrie. Le choix d'une éprouvette type ainsi que la mise en place de l'essai ont été facilités par les travaux de (Prat, 1994). Celui-ci a travaillé sur des tubes de Zircaloy-4 recristallisé et sur des tôles de Zircaloy-4 détendu. La géométrie CCP (Figure V.8) permet une analyse simplifiée des résultats. Prat a étudié l'effet de quelques paramètres de l'essai.

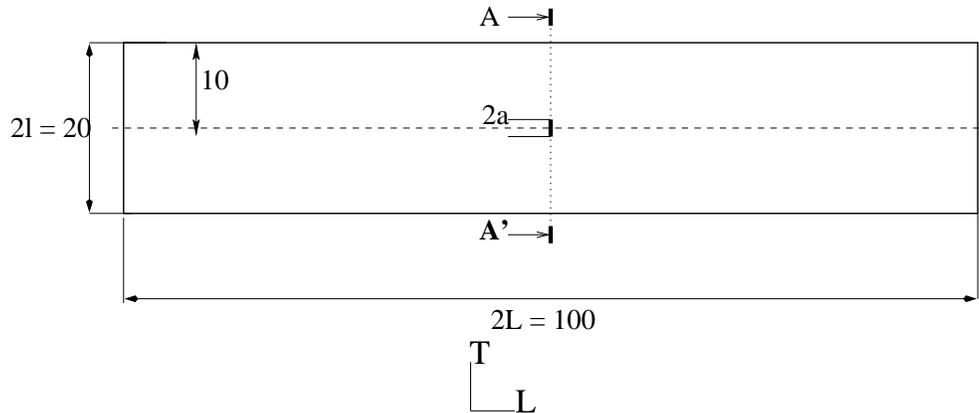


Figure V.8 : Géométrie des éprouvettes CCP. $2l$ = largeur, $2a$ = longueur de fissure, $2L$ = longueur totale (cotes en mm).

La longueur initiale de fissure n'influence pas les énergies à l'amorçage mais peut affecter fortement les énergies à la propagation. Il trouve que pour a/l compris entre 0.08 et 0.14 ($2a$ = longueur de fissure et $2l$ = circonférence du tube ou largeur de l'éprouvette), l'effet de la longueur initiale est négligeable. On cherchera donc à se situer dans cette gamme.

L'épaisseur de l'éprouvette (e_0) modifie elle aussi les énergies mesurées. En particulier, plus l'épaisseur diminue, plus les énergies nécessaires à l'amorçage et à la propagation augmentent. Ce résultat montre que les essais que nous allons réaliser ne donnent pas accès à des paramètres intrinsèques au matériau.

b) Conditions expérimentales

Dimensions

La largeur ($2l_0$) des éprouvettes a été fixée à 20 mm (Figure V.8) afin d'optimiser la découpe des tôles de départ. La longueur ($2L$) correspondant à la distance entre les deux points d'application de la charge doit vérifier $L > 3l_0$. Nous avons choisi de réserver 20 mm de part et d'autre pour la fixation dans les mors. La longueur totale de l'éprouvette est de 100 mm.

Taille de fissure

Comme expliqué précédemment, nous avons cherché à nous situer dans la gamme a/l entre 0.08 et 0.14. C'est pourquoi nous avons fixé la longueur initiale de fissure à 2 mm ($a/l=0.1$). Afin d'obtenir une telle fissure, les plaques sont entaillées en leur centre par électroérosion avec un outil de largeur 1 mm et d'épaisseur 200 μm environ. L'entaille ainsi obtenue est en biseau dans l'épaisseur, c'est-à-dire que sa longueur varie d'une face à l'autre de la plaque. Ceci permet d'avoir une épaisseur pratiquement nulle en fond d'entaille (Figure V.9) et facilite l'amorçage des fissures de fatigue lors de la préfissuration. La longueur initiale de l'entaille obtenue par électroérosion est notée $2a_p$.

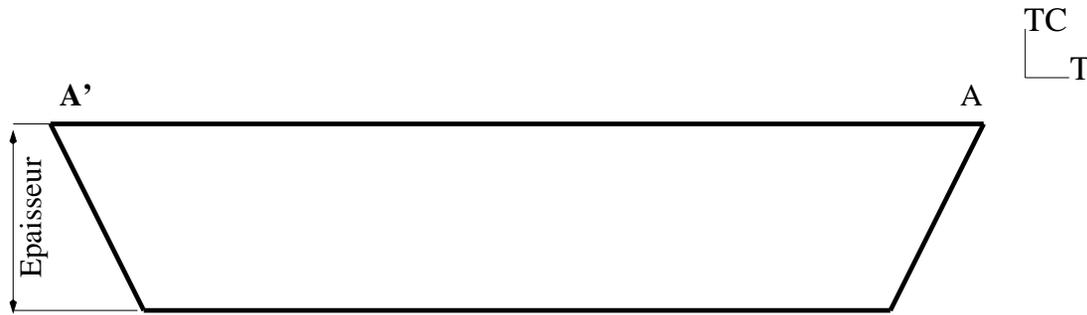


Figure V.9 : Aspect de l'entaille effectuée par électroérosion. Coupe de l'éprouvette suivant AA', voir Figure V.8.

Préfissuration

Afin d'obtenir une véritable fissure, dont la longueur est contrôlée, les plaques sont préfissurées sur une machine servo-hydraulique MTS équipée d'une cellule de charge d'une capacité de 100 kN. L'éprouvette est cyclée à 10 Hz en traction en élasticité autour d'une valeur moyenne de contrainte. Le cyclage doit vérifier:

- $\Delta K < K_I$ (K_I étant le facteur d'intensité de contraintes appliqué lors de l'essai de fissuration). Les formulaires permettent de calculer la valeur de K_I qui est obtenue pour une contrainte égale à la limite d'élasticité conventionnelle.

$$K_I = f\left(\frac{a}{l}\right) \cdot \sigma \sqrt{2 \cdot \pi \cdot a} \quad (\text{V.2})$$

$\pi \cdot a$ en m. Avec $a/l=0.05$, $f(a/l) \simeq 1$ et $\sigma_{0.2} \simeq 350$ MPa on trouve $K_I = 14 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$. On prend en général $\Delta K < 10 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$.

- **Le rapport de charge est fixé à 0.1**, par analogie avec les éprouvettes CT. Les essais préliminaires de Prat ont montré qu'une préfissuration avec $\sigma_{max} = 1/3 R_{p0.2}$ permettait d'avoir des vitesses de propagation assez élevées. On prendra donc $P_{max} \simeq 1000 \text{ N}$ et $P_{min} \simeq 100 \text{ N}$, modulables selon les sections portantes et les longueurs initiales des fissures. Les conditions de préfissuration sont données dans le Tableau V.6, avec les dimensions caractéristiques des plaques.
- La préfissuration est arrêtée lorsque la fissure atteint $2a_0 \simeq 2 \text{ mm}$.

Eprouvette	Teneur (ppm)	l_0 (mm)	e_0 (mm)	$2a_p$ (mm)	P_{max} (N)	P_{min} (N)	ΔK_0 (MPa \sqrt{m})	$2a_0$ (mm)
C2LE_3	0	19.73	0.44	1.395	980	60	4.96	1.92
C2LE_4	0	19.78	0.445	1.525	1020	90	5.05	2.05
C2LEBH22	241	19.94	0.45	1.145	1010	98	4.38	2.12
C2LEBB22	274	19.97	0.45	1.235	1010	96	4.43	2.09
C2LECH42	346	20.04	0.385	1.030	850	80	4.07	2.00
C2LECB42	530	19.97	0.37	1.005	840	74	4.12	2.01
C2LEDB24	865	19.955	0.34	1.380	760	60	4.80	2.01
C2LEDH24	1109	19.975	0.35	1.184	760	70	4.37	2.06
C2LEEH5	1209	19.95	0.40	1.160	900	78	4.39	2.05
C2LEEB5	1309	19.92	0.34	1.605	750	70	5.04	2.03
C2LEEH2	1310	19.6	0.40	0.980	850	80	3.90	2.02

Tableau V.6 : Dimensions caractéristiques des éprouvettes CCP et paramètres de la préfissuration.

Mesure de la longueur de fissure

Afin d'avoir accès à la longueur et à l'avancée de fissure en cours d'essai, deux méthodes ont été utilisées. La première est *le suivi électrique*. L'éprouvette est soumise à ses extrémités à un courant d'intensité constante (6A). Deux fils de platine soudés à 1 mm de la fissure, de part et d'autre, permettent de mesurer le potentiel entre les deux lèvres. L'augmentation de la taille de la fissure modifie ce potentiel. Cette méthode comporte de nombreux inconvénients. Le principal est que le potentiel est fortement affecté par l'apparition de plasticité non localisée. Or ce phénomène se produit systématiquement lors des essais de fissuration. La mesure du potentiel a donc été utilisée uniquement en préfissuration pour avoir une bonne représentation de la vitesse de fissuration.

La seconde méthode est *le suivi optique* à l'aide d'une lunette, dont le grandissement peut aller de 10 à 100. Elle est montée sur une vis micrométrique (précision de 10 μm) qui autorise des déplacements parallèles à la surface de l'échantillon. La mesure de la longueur de fissure s'effectue en arrêtant régulièrement l'essai. Cette méthode suppose que la fissure est identique sur les deux faces de l'éprouvette, ce qui a été systématiquement vérifié. Les arrêts conduisent à une relaxation de la contrainte en pointe de fissure. Sur la courbe de chargement, cela se traduit par une diminution de la charge appliquée. Prat recommande, comme pour les CT, de diminuer la charge de 10 % lors des arrêts. Ici, la relaxation est trop rapide pour effectuer cette décharge. La charge diminue continuellement au cours de l'arrêt. Ceci est lié au caractère fortement viscoplastique du Zircaloy-4.

Fissuration

Après la préfissuration, l'éprouvette est sollicitée en traction axiale sans être démontée. On conserve ainsi l'alignement dans les mors, et on n'introduit pas de déformation de torsion lors des montages-démontages. Le déplacement axial est relevé sur le bâti et sur l'éprouvette, de part et d'autre de la fissure grâce à un extensomètre d'une base de 20 mm. La charge

est mesurée directement par la cellule. La vitesse de sollicitation est conventionnellement calculée sur la longueur utile entre les mors (60 mm). Elle est fixée à 10^{-4} s^{-1} . Ceci permet d'éliminer partiellement les effets liés à la viscosité du matériau. En effet, des essais ont été effectués à 10^{-3} s^{-1} et 10^{-2} s^{-1} . Sur ces éprouvettes, l'arrêt du vérin ne correspondait pas à l'arrêt de la fissure, qui continuait à se propager. De plus, la relaxation en pointe de fissure pouvait alors atteindre 30 % de la charge imposée. L'essai est arrêté lorsque la fissure a progressé de 2 à 3 mm.

V.5.2 Résultats

La plasticité est généralisée à toute l'éprouvette, quelle que soit la teneur testée. Il est donc impossible d'utiliser la formule (V.2) valable en élasticité. Il est préférable d'utiliser des approches telles que celles proposées par (Devaux et al., 1989).

a) Courbes de chargement

Nous nous sommes intéressés aux courbes de chargement adimensionnelles $\text{Force}/S_0/Rp_{0.2} - d_{20}/2(l_0 - a_0)$ avec S_0 section initiale, $2l_0$ largeur initiale, $2a_0$ longueur initiale de fissure après préfiissuration et d_{20} ouverture de l'extensomètre de base 20 mm. Il est important d'utiliser la force normalisée car la section initiale varie entre les éprouvettes du fait des différentes épaisseurs. Les courbes sont présentées sur la Figure V.10. Le décalage progressif vers la gauche lorsque la teneur en hydrogène augmente est lié à la fragilisation par les hydrures et non à un effet de taille initiale de fissure.

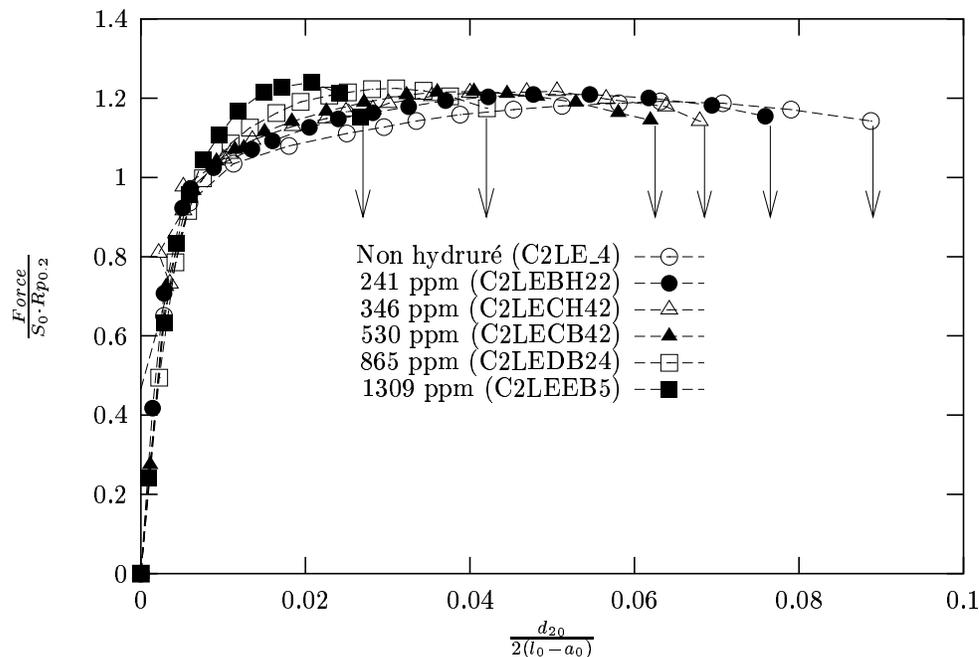


Figure V.10 : Courbes $\text{Force}/S_0/Rp_{0.2} - d_{20}/2(l_0 - a_0)$ pour les différentes teneurs en hydrogène. $T = 20^\circ \text{ C}$, $\dot{\epsilon} = 10^{-4} \text{ s}^{-1}$.

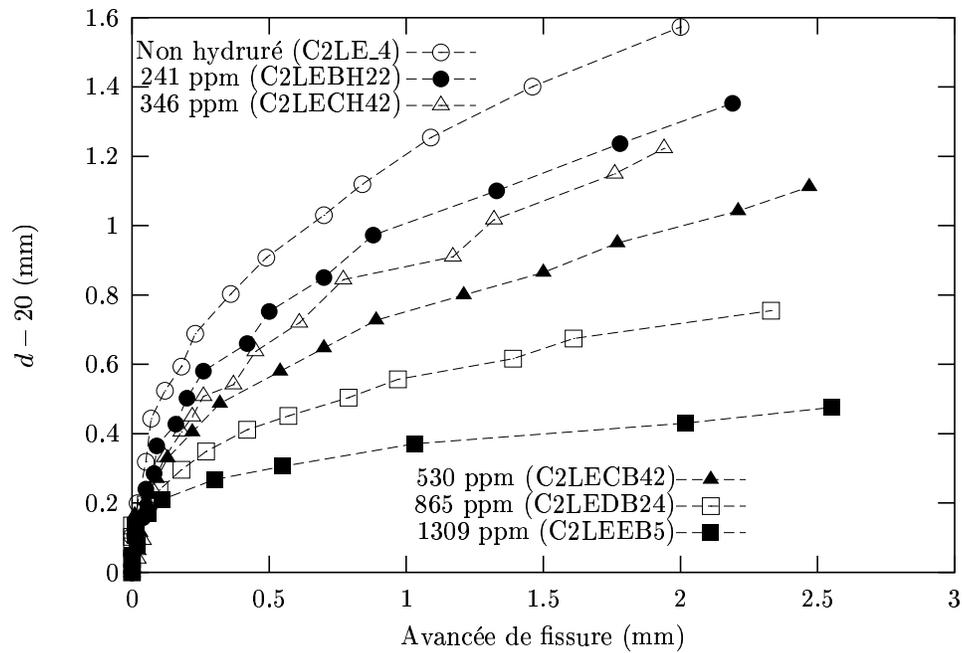


Figure V.11 : Courbes $d_{20} - \Delta a$ pour les différentes teneurs en hydrogène. $T = 20^\circ C$, $\dot{\epsilon} = 10^{-4} s^{-1}$.

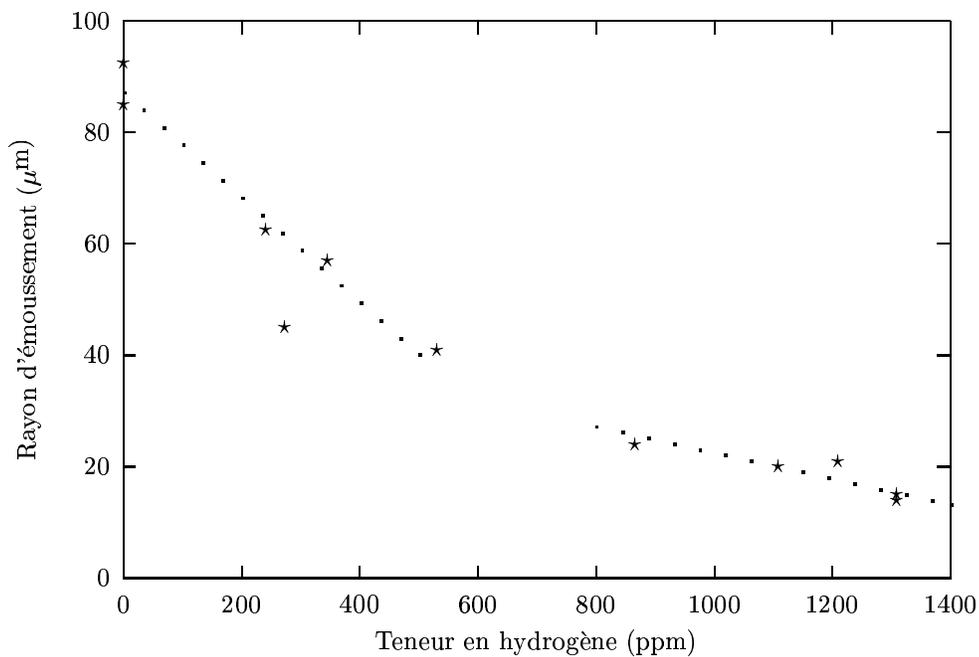


Figure V.12 : Rayons d'érousement avant amorçage. $T = 20^\circ C$, $\dot{\epsilon} = 10^{-4} s^{-1}$.

b) Ouverture de l'extensomètre – Émoussement

Tableau V.7

Les courbes $d_{20} - \Delta a$ (Δa avancée de fissure) (Figure V.11) montrent que la fissuration comporte deux stades (Figure V.13). Il se produit tout d'abord un émoussement de la pointe de fissure. Puis la fissure s'amorce au fond de l'émoussement et propage ensuite sans s'émousser.

L'évolution du rayon d'émoussement (ρ_c) en fonction de la teneur en hydrogène est tracée sur la Figure V.12. On remarque que, pour les faibles teneurs, celui-ci peut atteindre $60\mu\text{m}$. Il diminue lorsque la teneur en hydrogène augmente, signe que l'amorçage de la fissure nécessite de moins en moins de déformation plastique.

L'ouverture de l'extensomètre à l'amorçage (d_c) peut être déduite des mesures de l'émoussement en considérant que la fissure s'amorce lorsque sa progression vaut $2 \cdot \rho_c$. Les valeurs de d_c normalisées par le d_c obtenu pour le matériau non hydruré ($d_c = 0.6 \text{ mm}$) sont tracées sur la Figure V.14. L'amorçage se produit de plus en plus tôt lorsque la teneur en hydrogène augmente. L'ouverture de l'extensomètre est liée à la fois à l'émoussement de la fissure, mais aussi à la déformation plastique de l'éprouvette dans la base de mesure. Ainsi, pour les éprouvettes faiblement hydrurées, une grande partie de cette ouverture provient de cette plasticité.

On détermine de la même manière l'ouverture d_1 qui correspond à une propagation réelle d'1 mm (émoussement déduit). On observe alors l'évolution du paramètre $d_{p1} = d_1 - d_c$ (Figure V.11). Ce paramètre ne tient plus compte de la déformation plastique de la base extensométrique. En effet, après amorçage, toute la déformation s'effectue dans les bandes de cisaillement en avant de la fissure (Figure V.15). Le reste de l'éprouvette ne plastifie plus.

La diminution de d_{p1} est linéaire avec la teneur en hydrogène. Pour une augmentation de 1400 ppm, ce paramètre est réduit de 80%. Mais la rupture reste ductile même pour les fortes teneurs.

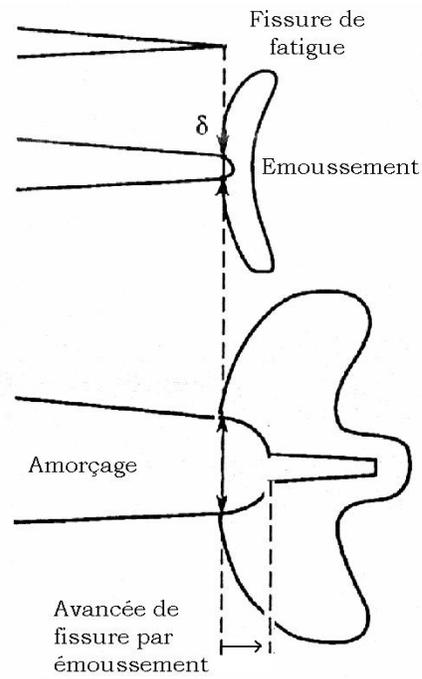


Figure V.13 : Description de l'émoussement de la fissure avant amorçage d'après (François et al., 1993).

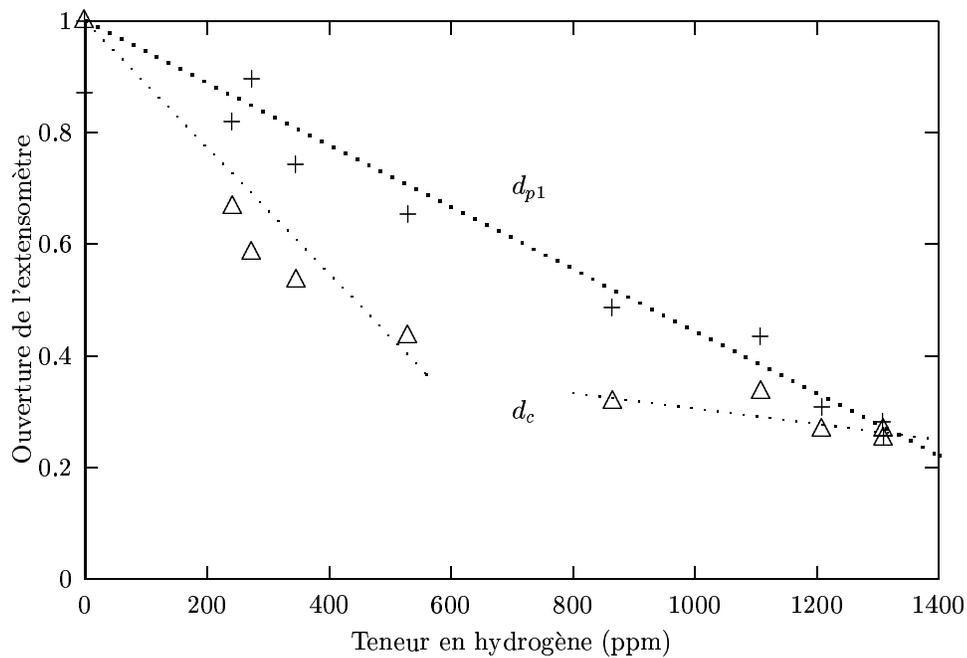


Figure V.14 : Evolution de l'ouverture de l'extensomètre à l'amorçage et à la propagation ($d_{p1} = d_1 - d_c$) normalisées par les ouvertures respectives pour le matériau non hydruré en fonction de la teneur en hydrogène. $T = 20^\circ C$, $\dot{\epsilon} = 10^{-4} s^{-1}$.

Eprouvette	Teneur (ppm)	ρ_c (μm)	d_c (mm)	d_1 (mm)	d_{p1} (mm)
C2LE_3	0	85.	0.60	1.38	0.78
C2LE_4	0	92.5	0.61	1.29	0.68
C2LEBH22	241	62.5	0.40	1.04	0.64
C2LEBB22	274	45.	0.35	1.05	0.70
C2LECH42	346	57.	0.32	0.90	0.58
C2LECB42	530	41.	0.26	0.77	0.51
C2LEDB24	865	24.	0.19	0.57	0.38
C2LEDH24	1109	20.	0.20	0.54	0.34
C2LEEH5	1209	21.	0.16	0.40	0.24
C2LEEB5	1309	15.	0.15	0.37	0.22
C2LEEH2	1310	14.	0.16	0.36	0.20

Tableau V.7 : Rayons d'érousement (ρ_c) et ouverture de l'extensomètre à l'amorçage et à la propagation. $T = 20^\circ\text{C}$, $\dot{\epsilon} = 10^{-4}\text{ s}^{-1}$.

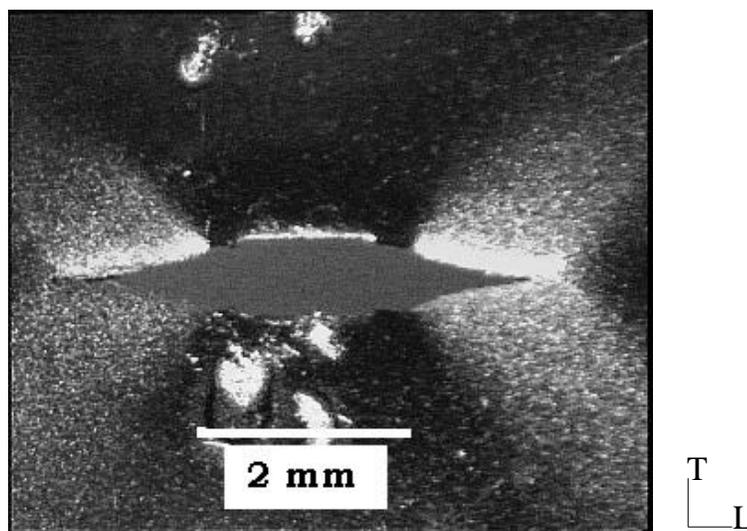


Figure V.15 : Lobes de déformation plastique en avant de la fissure (C2LEEH2, 1310 ppm). $T = 20^\circ\text{C}$, $\dot{\epsilon} = 10^{-4}\text{ s}^{-1}$.

c) Mode de rupture

La déformation plastique dans ces éprouvettes est observable sur des éprouvettes polies avant essai. On remarque qu'elle se répartit dans deux bandes de cisaillement en avant de la fissure (Figure V.15).

L'étude de l'endommagement a été effectuée sur la surface après essai et après polissage mécanique et chimique. On remarque que très peu d'hydrures sont rompus en avant de la fissure (Figure V.16) et dans les bandes de déformation. Ceci est à rapprocher des observations de la répartition de la déformation plastique. Même pour les éprouvettes fortement hydrurées, l'endommagement est très localisé et très faible comparativement à ce qui peut être observé sur des éprouvettes de traction lisse (Figure V.17).

La morphologie de l'endommagement en front de fissure (Figure V.16) laisse penser que le mécanisme de rupture par fissuration est légèrement différent de celui observé sur les deux précédents types d'éprouvette. Les cavités n'ont pratiquement aucun volume et le passage de la fissure semble s'effectuer par cisaillement de la matrice entre les micro-fissures (Figure V.18). Ceci peut être rapproché de la coalescence. Cette étape de la rupture ductile joue ici un rôle prépondérant, la croissance et la germination étant moins importantes.

Le mécanisme de fissuration peut se décomposer en trois phases :

- plastification intense de l'avant de la fissure, sur une faible distance,
- endommagement de cette zone par rupture des hydrures sous l'effet de la déformation,
- coalescence entre les fissures formées par cisaillement des ligaments de matrice.

D'autres observations ont été effectuées au MEB sur une éprouvette non hydrurée, sollicitée à 10^{-2}s^{-1} . On remarque que le matériau s'est déformé par maclage en avant de la fissure (Figure V.19). Ceci est le signe d'un champ de contrainte très particulier engendré par la singularité. En effet, aucune macle n'a été observée sur les éprouvettes lisses sens long.



Figure V.16 : Endommagement dans la zone de propagation de la fissure. Observation au microscope optique, dans le plan de la tôle, après polissage (C2LEEH2, 1310 ppm).

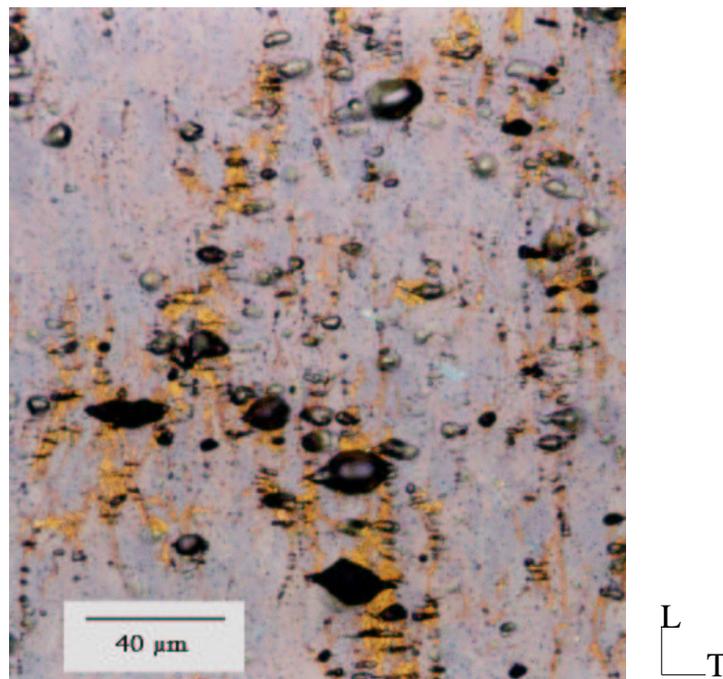


Figure V.17 : Endommagement au niveau de la rupture observé sur une éprouvette lisse. Observation au microscope optique, dans le plan de la tôle, après polissage (C2E34L1, 1103 ppm).

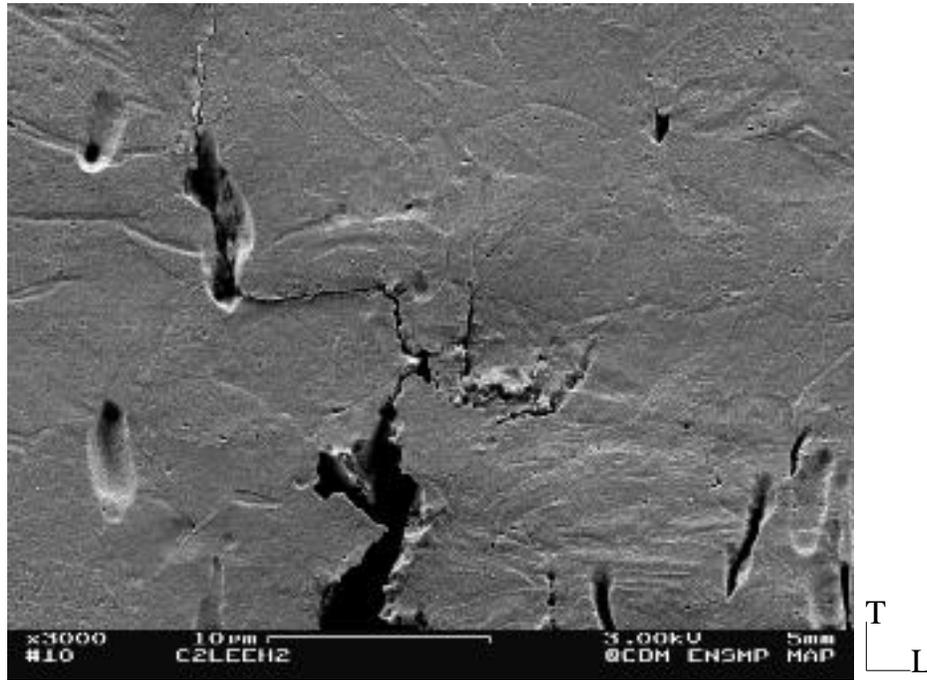


Figure V.18 : *Coalescence des cavités formées sur les hydrures par cisaillement de la matrice. Observation au MEB dans le plan de l'éprouvette CCP, après polissage. (C2LEEH2 1310 ppm), $T = 20^\circ C$, $\dot{\epsilon} = 10^{-4} s^{-1}$.*

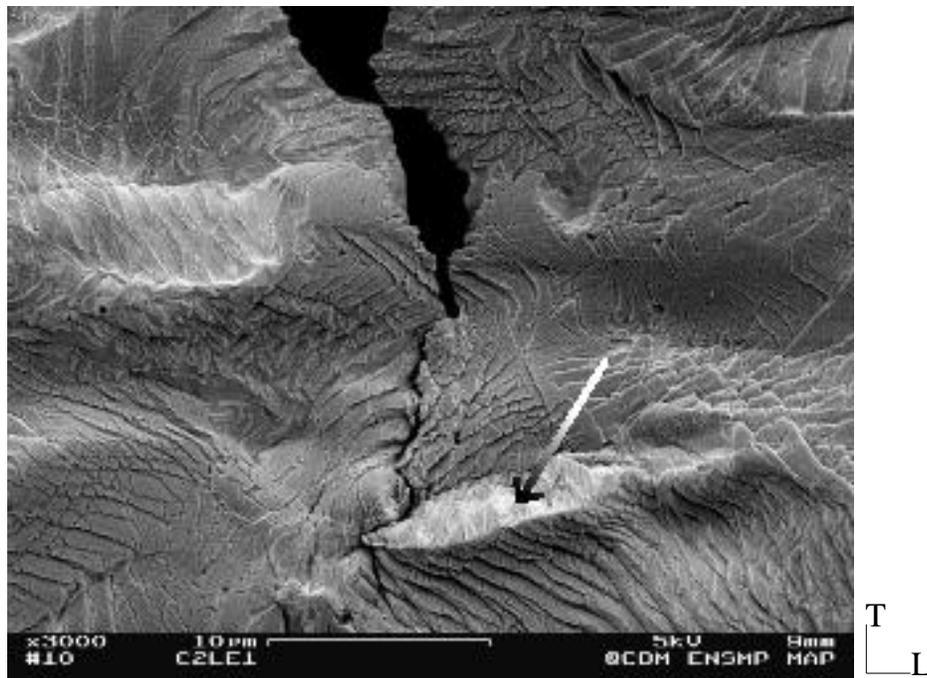


Figure V.19 : *Macle formée en avant de la fissure. Observation au MEB dans le plan de la tôle, sur une éprouvette polie avant essai. Eprouvette non hydrurée sollicitée à $10^{-2} s^{-1}$.*

En résumé

C e chapitre nous a permis de construire une base expérimentale concernant la rupture du Zircaloy-4 hydruré.

- ★ *Les essais de traction sur éprouvettes lisses ont montré que l'effet des hydrures était le même pour toutes les directions de sollicitation dans le plan. La réduction de la ductilité, définie comme la variation de section des éprouvettes, est linéaire lorsque la teneur en hydrogène augmente. Il n'y a pas de transition ductile-fragile, même jusqu'à 1200 ppm. De plus, la vitesse de déformation n'a aucune influence sur la ductilité.*
 - ★ *Les essais sur éprouvettes entaillées ont montré que dans ce cas l'influence de la déformation plastique était prépondérante sur l'apparition de l'endommagement par rapport à l'effet de la triaxialité dans la gamme étudiée (1/3-2/3).*
 - ★ *Les essais sur éprouvettes fissurées ont permis de caractériser la résistance à la propagation de fissure. Celle-ci diminue lorsque la teneur en hydrogène augmente. Aucune éprouvette, même très hydrurée, n'a présenté de rupture du type fragile. Il semble que l'interaction entre la fissure et l'endommagement s'effectue à courte distance.*
-

Chapitre -VI-

Etude de l'endommagement du Zircaloy-4 hydruré

Les essais mécaniques ont mis en évidence un phénomène bien connu qui est la diminution de la ductilité des alliages de zirconium suite à la précipitation d'hydrures. Tant que l'on se situe en-deçà de la teneur de transition ductile-fragile, la rupture comporte trois stades bien identifiés. Le premier correspond à l'apparition de cavités dans la matrice par rupture des hydrures. Le second correspond à la croissance de ces cavités sous l'effet de la déformation plastique et de la triaxialité. Le dernier stade est la coalescence des cavités qui conduit rapidement à la rupture de l'élément étudié.

La description de ce mécanisme sur le Zircaloy est restée jusqu'à présent majoritairement qualitative. Seuls (Yunchang et Koss, 1985) effectuent des mesures de densité de cavités dans le plan $L-TC$ après rupture et les relient à la déformation plastique équivalente pour différentes teneurs et différentes triaxialités. Ils montrent que l'on peut dégager des évolutions rationnelles grâce à ce type de mesure. Par exemple, ils trouvent qu'il existe une déformation plastique minimale en-deçà de laquelle il n'y a pas de rupture d'hydrures. Ils montrent aussi que la germination est accélérée par l'augmentation de triaxialité (Figure VI.1).

Ce chapitre est composé de trois parties :

- description volumique qualitative de la germination de cavités,
- étude des critères de rupture des hydrures,
- description quantitative de l'évolution de l'endommagement par germination. Nous n'avons pas traité les phases de croissance et de coalescence. Nous reviendrons dans le Chapitre VIII sur les influences relatives de chacune des ces trois étapes dans la rupture ductile du Zircaloy-4 hydruré.

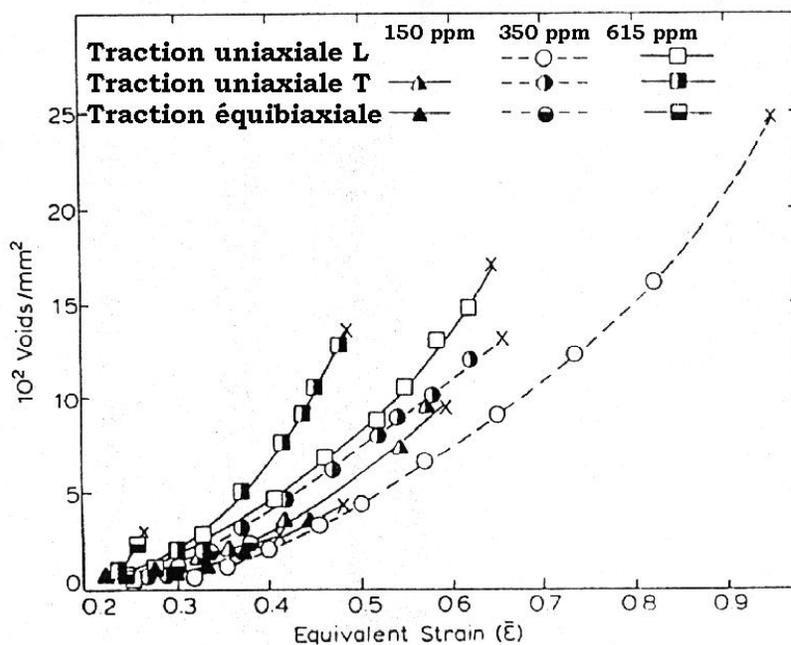


Figure VI.1 : Evolution du nombre de cavités par unité de surface, en fonction de la déformation plastique équivalente et pour plusieurs sollicitations d'après (Yunchang et Koss, 1985).

VI.1 Caractérisation de la germination des cavités

VI.1.1 Origine

L'étude de l'endommagement a été effectuée sur les éprouvettes lisses. Après fractographie, les éprouvettes ont été polies et attaquées pour être observées suivant trois plans (L-TC, T-TC et L-T).

Ces analyses ont permis de confirmer que la quasi-totalité de l'endommagement provenait de la rupture des hydrures. Une autre source d'endommagement, beaucoup moins importante, est la rupture des précipités $Zr(Fe,Cr)_2$ ou leur décohésion d'avec la matrice (Figure VI.2). Par contre, aucune décohésion hydrure/matrice n'est observée.

(Caré, 1995) montre, sur du zirconium- α polycristallin, que les cavités apparaissent aux joints de grains triples. La rupture des précipités intervient seulement ensuite. De plus, l'endommagement se produit plus tôt lorsque le matériau est sollicité dans le sens long. Ce résultat explique la ductilité supérieure du sens travers. Ces modes d'endommagement vont, pour le matériau de l'étude, influencer le dernier stade de la rupture, c'est à dire la coalescence entre les cavités, qui consiste à rompre les ligaments de matrice.

VI.1.2 Morphologie

La fissuration des hydrures se produit, pour le matériau de l'étude, dans leur largeur et dans leur épaisseur. La Photographie VI.3 présente une plaquette d'hydrure sur la surface de rupture. Ce type d'observation est assez rare car l'hydrure est pratiquement perpendiculaire à la direction de sollicitation, ce qui n'est généralement pas le cas. On remarque que l'hydrure est multi-fissuré dans sa largeur. Les fissures sont sinueuses et s'ouvrent au cours de la déformation plastique. La Photographie VI.4 présente ce qui est généralement observé. L'hydrure est vu en coupe suivant sa largeur.

Certaines éprouvettes ont été polies, rompues, puis observées dans le plan L-T. On retrouve les deux types de fissuration. Toutefois, la rupture de l'hydrure dans son épaisseur semble se produire lors des stades ultimes de la rupture, dans des conditions de sollicitation particulières (Photographie VI.5). Nous retiendrons donc que le mode de fissuration principal est la rupture suivant la largeur des plaquettes. Celle-ci peut être multiple au sein d'un même hydrure.

La Figure VI.6 présente schématiquement l'endommagement constaté sur les éprouvettes de l'étude, accompagné des cartographies obtenues pour les trois plans d'observation. L'étude des éprouvettes sollicitées dans le sens travers a permis de confirmer ce que nous avons déjà remarqué lors des essais mécaniques, c'est-à-dire que le mode d'endommagement est identique pour toutes les directions de sollicitation dans le plan de la tôle. Seule une traction perpendiculaire aux plaquettes pourrait conduire à des résultats discriminants en termes de rupture.



Figure VI.2 : Précipité rompu sous l'effet de la déformation de la matrice. Observation MEB, dans le plan d'une éprouvette lisse MEB sens long, teneur 1100 ppm.

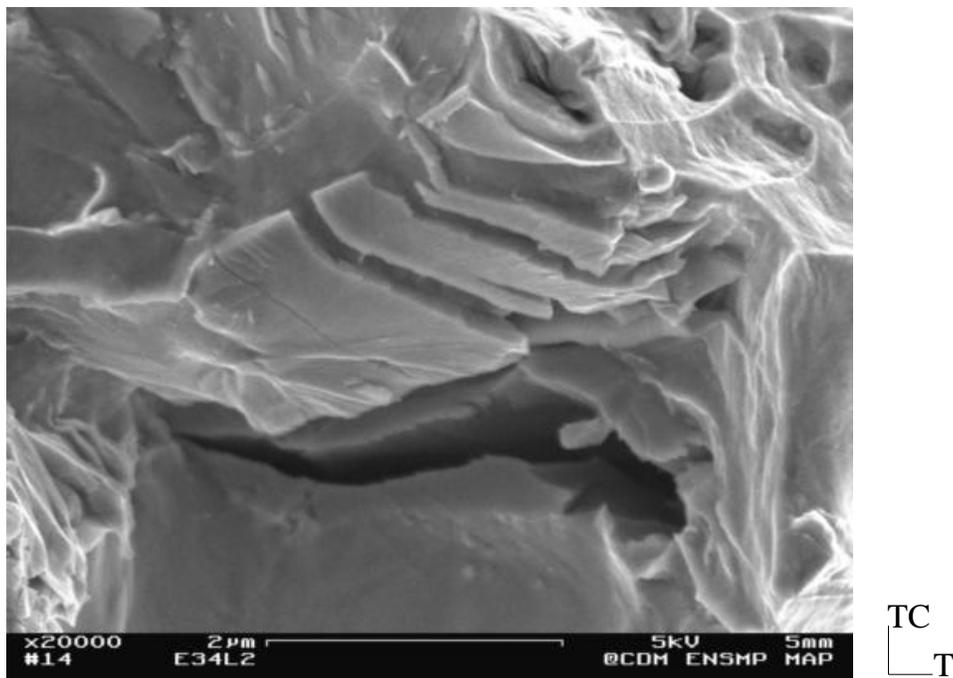


Figure VI.3 : Plaquette d'hydrure sur la surface de rupture d'une éprouvette lisse sens long (C2E34L2, 949 ppm).

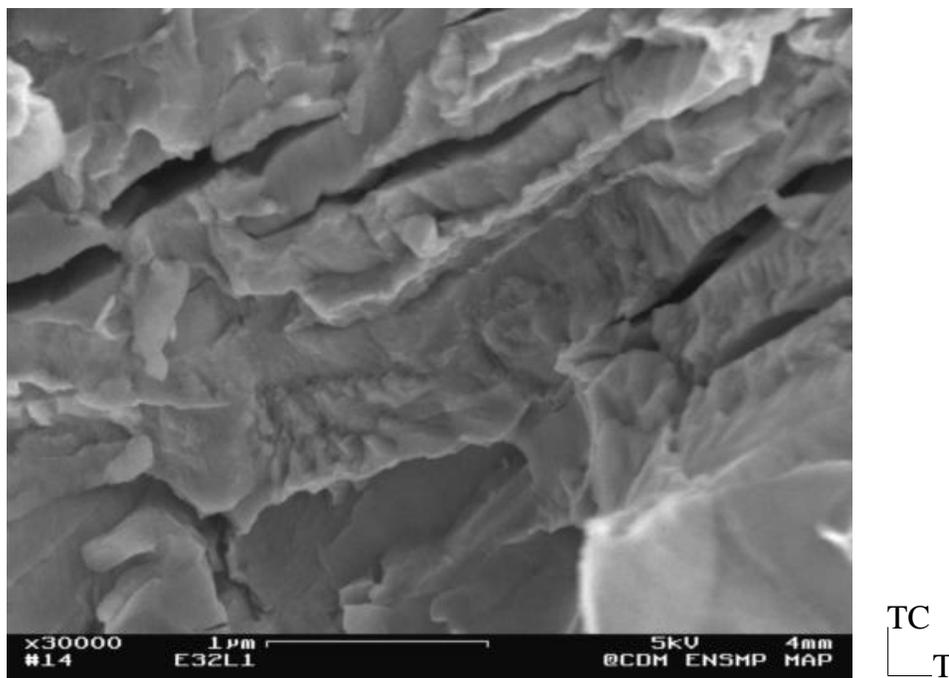


Figure VI.4 : *Hydrures sur la surface de rupture, rompus suivant leur épaisseur. Eprouvette lisse sens long (C2E32L1, 864 ppm).*

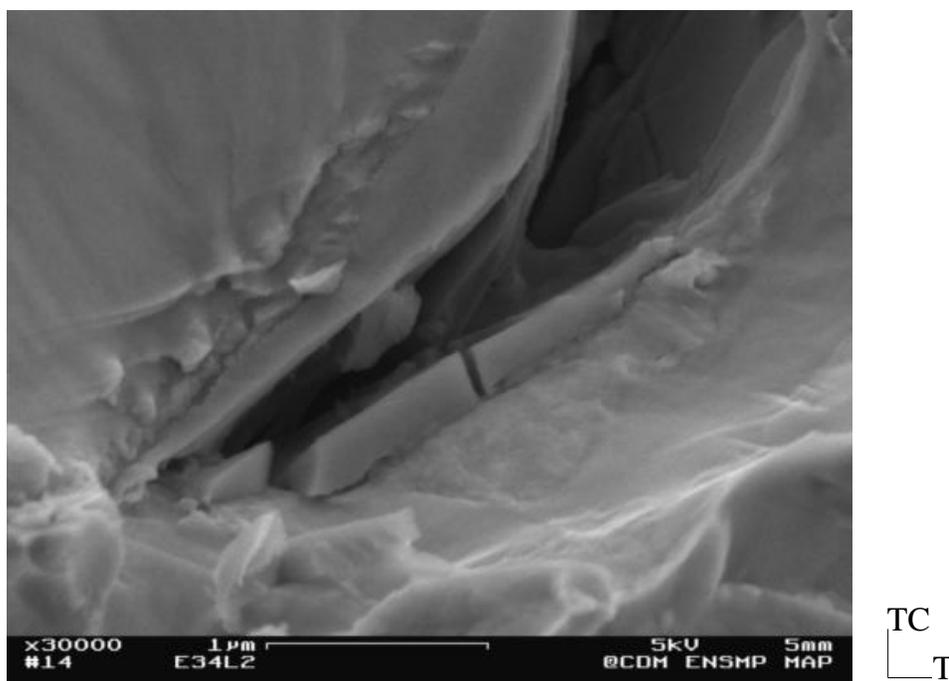


Figure VI.5 : *Observation sur la surface de rupture. Hydride rompu suivant son épaisseur et sa largeur. Eprouvette lisse sens long (C2E34L2, 949 ppm).*

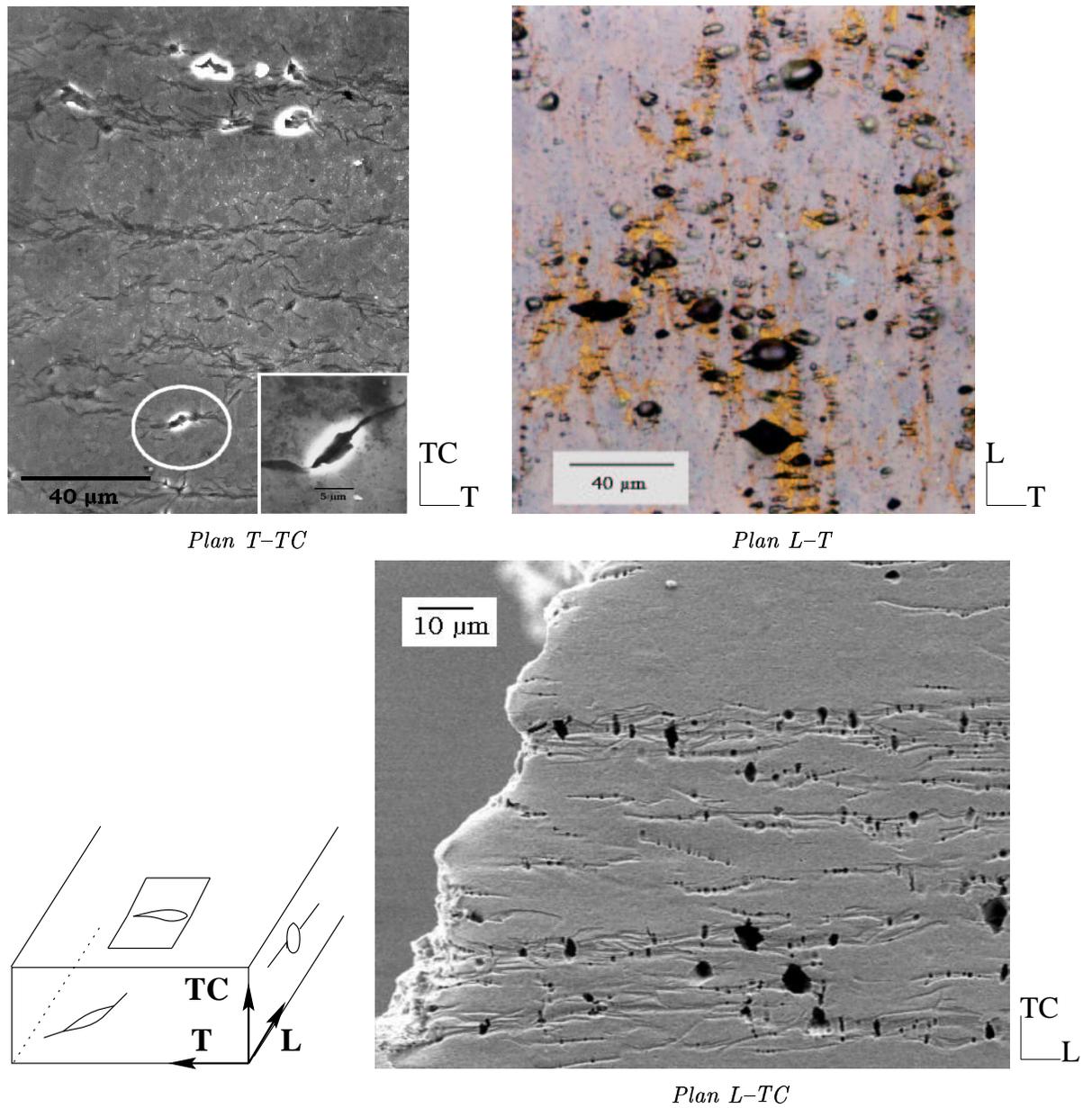
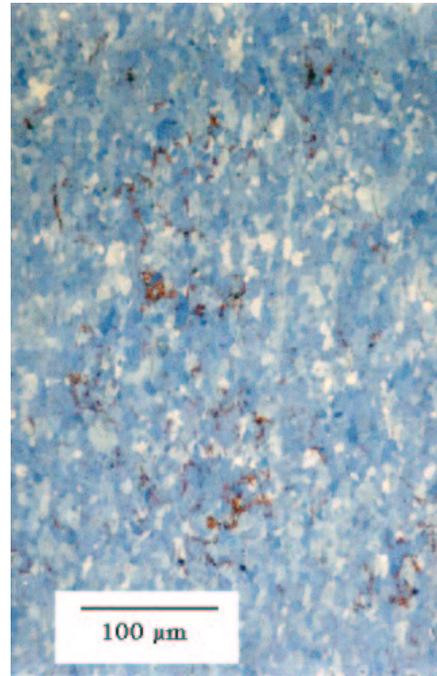
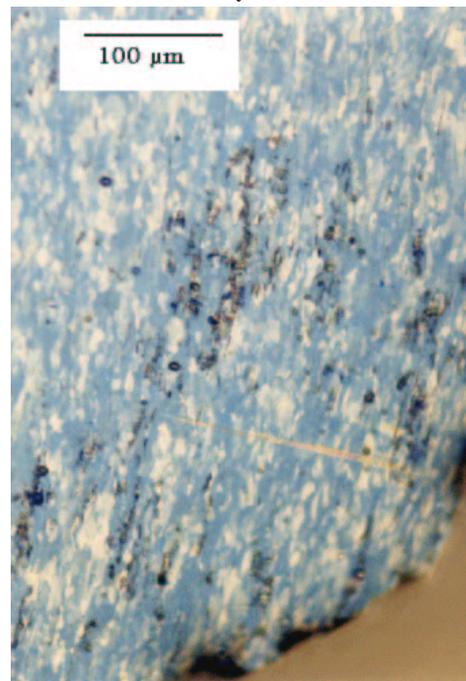


Figure VI.6 : Représentation de l'aspect de l'endommagement selon le plan d'observation (C2E34L2, 949 ppm).



Avant déformation



Au niveau de la rupture ($Z \simeq 50\%$)

Figure VI.7 : Evolution de l'orientation des hydrures avant et après déformation plastique, pour le plan L-T (C2C8L1, 408 ppm).

VI.1.3 Réorientation des hydrures

On remarque que les plaquettes d'hydrure ont subi une rotation au cours de la déformation. Leur normale a tendance à se positionner dans le plan perpendiculaire à l'axe de sollicitation. Dans les plans L-TC et L-T, cela conduit à un fort réalignement des plaquettes. Dans le plan T-TC, la réorientation est moins importante. La Figure VI.7 compare les orientations d'hydrures, pour le plans L-T, avant et après déformation. Cette rotation est à rapprocher des observations de (Philippe et al., 1984) concernant les modifications de texture au cours de la déformation. Il est probable que les hydrures, dont l'orientation cristallographique est en relation avec celle de la matrice, suivent la rotation des grains.

VI.2 Rupture de l'hydrure

La germination de l'endommagement dans les alliages de zirconium et en particulier dans les Zircaloy est principalement liée à la rupture des hydrures. Comprendre et maîtriser ce mécanisme devrait permettre de mieux déterminer les limites d'utilisation des éléments de structure.

VI.2.1 Rappels

(Barraclough et Beevers, 1969) qui ont étudié des hydrures δ massifs montrent que leur comportement est fragile, même pour les plus hautes températures. Les hydrures précipités sous forme de plaquettes dans une matrice de Zircaloy-4 semblent eux aussi fragiles, mais les auteurs montrent que la température a un effet bénéfique sur leur capacité à se déformer (Evans et Parry, 1966). Plus récemment, (Simpson, 1981) ou (Puls, 1991) ont trouvé que les hydrures pouvaient subir quelques % de déformation plastique avant de rompre, même à température ambiante. Cette capacité disparaît lorsque l'hydrure est orienté perpendiculairement à la contrainte (Choubey et Puls, 1994). Leurs études portent sur les matériaux utilisés dans le système CANDU.

Les auteurs qui ont travaillé sur des produits plus minces (REP) ont montré que la capacité des hydrures à accommoder la déformation plastique de la matrice environnante pouvait être encore plus importante à température ambiante. (Yunchang et Koss, 1985) trouvent qu'il faut une déformation plastique macroscopique de 20% avant d'observer des ruptures d'hydrures. Ceci est confirmé par nos mesures (Grange et al., 1997a).

Deux questions se posent : d'où proviennent de telles différences dans le comportement des hydrures et comment des précipités supposés fragiles peuvent-ils accommoder les déformations plastiques de la matrice environnante?

VI.2.2 Les hydrures se déforment-ils?

Un critère discriminant pourrait être **les dimensions des hydrures**. Plus l'hydrure est massif, plus il semble avoir du mal à supporter la déformation plastique de la matrice. En effet, pour les matériaux utilisés dans les réacteurs CANDU, les précipités ont une largeur d'un à deux microns pour une longueur de plus de 30 μm et leur comportement est

presque fragile. Par contre, sur les produits minces, deux configurations sont possibles. Pour les teneurs inférieures à la valeur de transition ductile–fragile, les hydrures sont assez fins (200 nm pour une longueur de 10 μm) et probablement constitués de sous-structures encore mal définies. Pour les teneurs plus importantes, ils deviennent plus massifs et perdent alors leur capacité à accommoder la déformation.

Concernant les modalités d'accommodation de la déformation plastique, (Arsène, 1997) a cherché à mettre en évidence le fait que les hydrures se déforment. Pour cela elle réalise des essais de traction sous MEB, en observant le plan (T–TC). Les résultats qu'elle obtient sont présentés sur la Figure VI.8. Il semble effectivement que la plaquette s'allonge en suivant la déformation de la matrice. Mais les échantillons ont été attaqués avant l'essai et il est possible que l'on observe en fait la déformation d'une cavité en surface et non d'un hydrure. Nous avons effectué des essais similaires, avec observation du plan de la tôle (L–T). L'éprouvette a été polie puis décapée avant l'essai. Cette méthode de préparation conduit effectivement à dissoudre partiellement les hydrures en surface. Mais les observations en contraste chimique au MEB ont permis de confirmer que les plaquettes étaient encore présentes. Deux teneurs ont été testées. La géométrie et les conditions expérimentales utilisées pour cet essai sont présentées en Annexe A-I.

La faible résolution du microscope ainsi que la difficulté à distinguer les hydrures lorsque la déformation plastique devient trop importante ne permettent pas d'observer des évolutions aussi importantes que celle rapportées par Arsène. On observe toutefois une augmentation de la longueur des hydrures et une diminution de leur épaisseur au cours de l'essai. On remarque aussi que, sauf rares exceptions, aucun hydrure n'est rompu avant l'apparition d'une striction. Enfin, le stade de coalescence est très rapide et très localisé. Il conduit pratiquement immédiatement à la rupture de l'éprouvette.

Afin d'avoir des informations plus fines, nous avons sollicité des éprouvettes polies jusqu'à rupture et nous les avons observées à l'aide d'un MEB haute résolution équipé d'un canon à émission de champ (Zeiss DSH982 Gemini). Nous avons déjà utilisé cette procédure sur des structures plus importantes (éprouvettes lisses, éprouvettes fissurées), mais la surface avait été oxydée par une attaque colorante utilisée pour révéler les hydrures. La couche formée était de quelques nanomètres, mais elle gênait très fortement les interprétations concernant les continuités du glissement entre les hydrures et la matrice. En fait, cette couche d'oxyde peut avoir un autre intérêt qui est de marquer la déformation.

Sur la surface, on distingue deux types d'hydrures selon leur comportement à rupture. Les hydrures transgranulaires suivent parfaitement l'évolution de la déformation avec le grain et permettent le passage des lignes de glissement. L'hydrure présenté sur la Photographie VI.9 se situe dans un grain très proche de la surface. Ce grain mesure par endroits moins de 4 μm de largeur. Il a donc subi une déformation travers de plus de 100 %. L'hydrure situé dans ce grain a suivi les modifications de forme du grain et a permis le passage du glissement. Par contre, si on s'éloigne de la surface de rupture, en cherchant à observer les hydrures ayant rompu en premier, on remarque qu'ils sont tous intergranulaires. La Photographie VI.10 présente un tel hydrure, situé entre deux grains pour lesquels les plans de glissement sont

différents. A l'intérieur de l'un de ces grains, se situe un autre hydrure, qui, lui, n'est pas rompu.

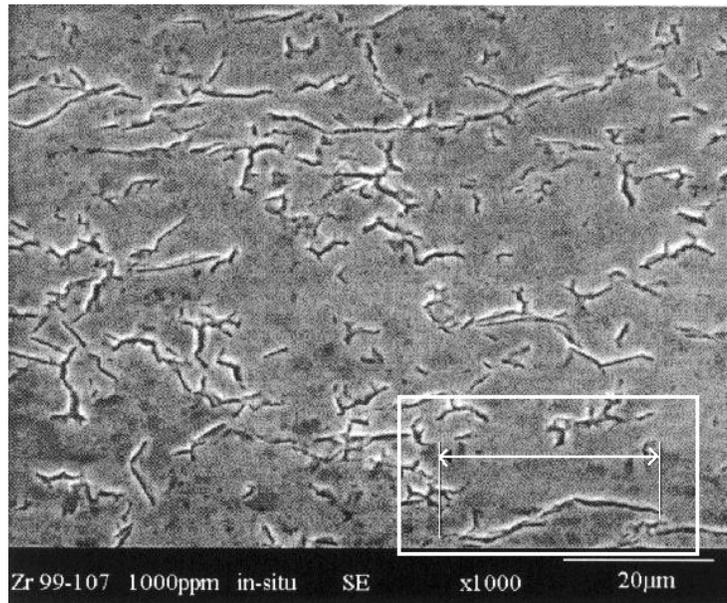
Un autre facteur permettant de caractériser la tenue mécanique des hydrures sur les produits minces serait donc **leur lieu de précipitation**. Les hydrures intergranulaires seraient moins aptes à accepter la déformation plastique de la matrice. Cette constatation est en accord avec les résultats de (Bai et al., 1994b) et de (Arsène, 1997) qui montrent que le matériau détendu, qui possède une précipitation transgranulaire est moins fragilisé par les hydrures que le matériau recristallisé qui possède une précipitation intergranulaire. Arsène détermine sur le Zircaloy-4 recristallisé les plans de glissement potentiels des hydrures. Elle montre que, du fait des relations de cohérence entre les précipités et la matrice, il existe des possibilités de transmission du glissement. Il est alors probable que les hydrures intergranulaires, ne possédant pas de relation de cohérence, soient mal orientés pour se déformer. Il ne faut pas non plus oublier que le joint de grains est le lieu où se manifestent les incompatibilités de déformation entre les grains. Les sollicitations en ces points sont certainement très différentes de celles du grain et probablement moins facilement accommodables par la structure de l'hydrure.

Une dernière explication de cette différence pourrait être purement métallurgique. Le mécanisme de précipitation des hydrures restant à éclaircir, il est possible que les hydrures intergranulaires résultent d'un mécanisme de formation particulier et différent de celui des hydrures transgranulaires. (Arsène, 1998; Arsène, 1997) distingue effectivement des structures différentes, les hydrures intergranulaires pouvant comporter des macles. Ce sont aussi ceux qui ont tendance à devenir massifs lorsque la teneur en hydrogène augmente. On retrouve alors la notion de taille critique présentée au début de ce paragraphe.

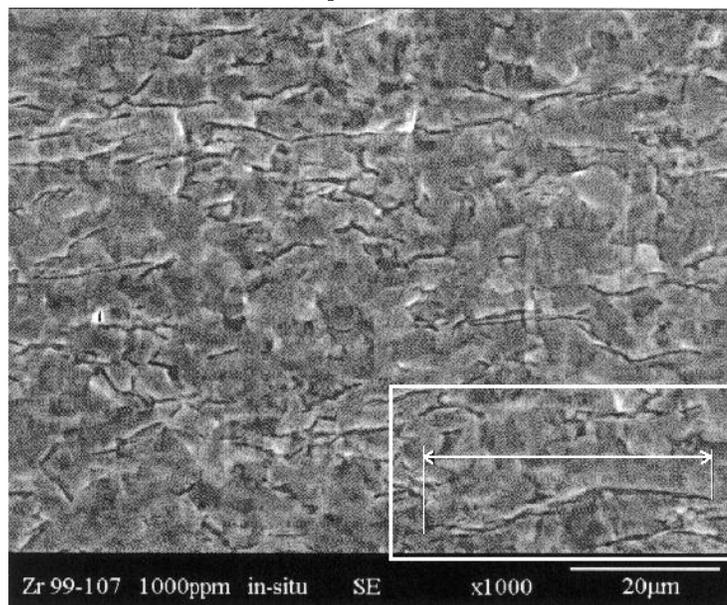
VI.2.3 Transition ductile–fragile

A la lumière de ces observations, il est maintenant possible de mieux comprendre l'origine des transitions ductile–fragile dont il est question dans (Bai et al., 1994b) par exemple.

- Lorsque les hydrures ont une faible capacité à se déformer, c'est leur fraction surfacique, leur orientation et leur répartition qui vont déterminer la teneur critique de fragilité. Les études concernant ce type d'hydrures visent donc à élaborer des modèles permettant de rendre compte de ces trois facteurs en terme de contrainte critique de rupture de l'hydrure (Bai et al., 1994a; Shi et Puls, 1994; Shi et al., 1994; Sagat et al., 1994; Choubey et Puls, 1994).
- Lorsque les hydrures peuvent se déformer, c'est en fait la transition dans le mécanisme de précipitation qui va déterminer la teneur critique. Elle correspond soit à la formation d'hydrures plus massifs, soit à l'augmentation du nombre d'hydrures intergranulaires, les deux n'étant pas indépendants.



Aspect initial



Après 25 % de déformation totale

Figure VI.8 : Evolution de la morphologie de l'hydrure au cours d'un essai de traction. Matériau recristallisé sens travers 1000 ppm (Arsène, 1997).

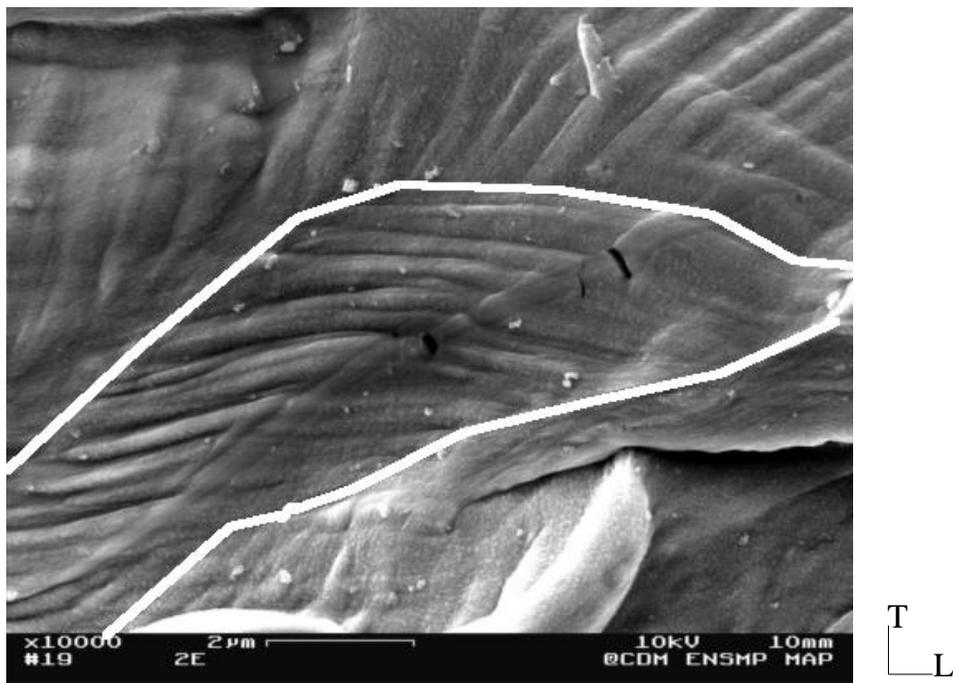


Figure VI.9 : *Hydrure situé dans un grain proche de la zone de rupture (à moins de 10 µm). Observation MEB, dans le plan L-T, éprouvette lisse MEB sens long, teneur 1100 ppm.*

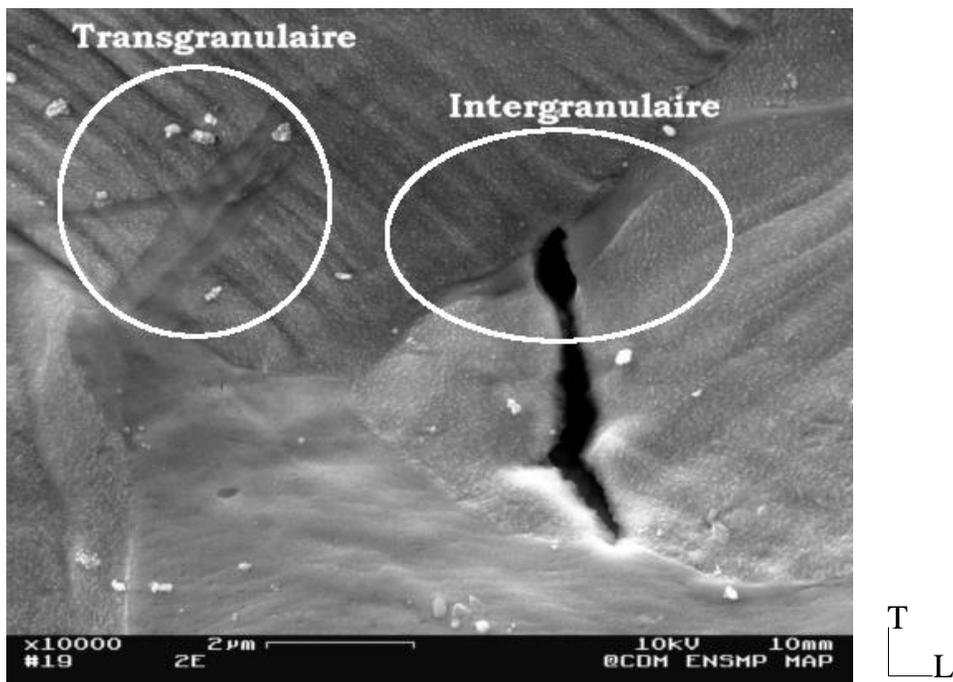


Figure VI.10 : *Hydrure intergranulaire rompu, situé à côté d'un hydrure transgranulaire non rompu. Observation MEB, dans le plan L-T, éprouvette lisse MEB sens long, teneur 1100 ppm.*

VI.3 Quantification de la germination de cavités

Le type d'endommagement, sa morphologie ainsi que sa répartition spatiale ont été décrits dans le premier paragraphe. Dans le deuxième, nous avons cherché à approfondir les paramètres contrôlant la rupture des hydrures. Afin de disposer d'une loi phénoménologique utilisable pour le calcul par éléments finis, nous avons donc cherché à effectuer des mesures plus quantitatives du nombre de cavités formées en fonction des paramètres mécaniques.

VI.3.1 Méthodologie

(Beremin, 1981) propose d'effectuer des essais interrompus sur des éprouvettes axi-symétriques entaillées (AE) et de mesurer l'endommagement dans les parties déformées. Il est possible alors de relier les paramètres mécaniques (déformation, triaxialité...) aux endommagements observés. L'approche de Beremin est séduisante mais elle suppose que la rupture s'effectue à partir du centre des éprouvettes entaillées, ce qui n'est pas le cas ici (voir § V.4).

Nous avons utilisé une démarche similaire mais sur les éprouvettes lisses. Nous n'avons pas interrompu les essais. Les observations ont été effectuées après rupture. Les réductions de largeur et d'épaisseur de ces éprouvettes ont été mesurées le long de l'axe de sollicitation. Les éprouvettes ont ensuite été découpées suivant cet axe et polies dans l'épaisseur pour être observées au MEB. Le grandissement a été choisi de manière à pouvoir détecter les ruptures d'hydrures ($\times 1000$). La résolution permet de visualiser des fissures de 500 nm (largeur de l'hydrure).

Pour différentes positions axiales, à partir de la rupture, des cartographies d'endommagement ($100 \times 400 \mu\text{m}^2$) ont pu être réalisées dans ce plan (L-TC). Sur ces cartographies, le nombre de fissures a été compté manuellement. Pour les zones proches de la rupture, les cavités ont parfois coalescé. Ceci introduit une erreur lorsque l'on cherche à déterminer les cinétiques de fissuration car ne compter alors qu'une cavité sous-estime la valeur réelle du nombre de fissures formées. Toutefois, ce phénomène n'apparaît que sur les cartographies très proches de la surface de rupture et le nombre de ces macro-cavités reste très faible (typiquement 30 pour un total de 1500). L'erreur introduite lors du comptage reste donc faible.

Nous avons ensuite relié ces mesures à la déformation plastique équivalente locale, déterminée à partir des réductions de largeur (Δl) et d'épaisseur (Δe). Dans ce cas (traction uniaxiale), cette déformation correspond à la déformation axiale locale. Elle est calculée par la formule VI.1 (on utilise l'incompressibilité car la variation de volume due à l'endommagement est négligeable) :

$$\epsilon_p^{eq} = -(\epsilon_p^{Travers} + \epsilon_p^{TCourt}) \quad (\text{VI.1})$$

avec

$$\begin{aligned} \epsilon_p^{Travers} &= \ln \left(1 + \frac{\Delta l}{l_0} \right) \\ \epsilon_p^{TCourt} &= \ln \left(1 + \frac{\Delta e}{e_0} \right) \end{aligned}$$

l_0 largeur initiale et e_0 épaisseur initiale. L'utilisation des éprouvettes lisses permet de balayer un large intervalle de déformations. La détermination de la déformation plastique doit demeurer expérimentale, le calcul par éléments finis de la forme de la striction et des bandes de localisation de la déformation dépendant fortement de la taille de maille (Tvergaard et Needleman, 1995) et des cinétiques d'endommagement (Rivalin, 1998).

Cette caractérisation n'a été effectuée que sur les éprouvettes sens long, car l'endommagement est identique pour les trois directions étudiées dans la tôle (§ VI.1.2).

VI.3.2 Résultats

a) Nombre de fissures par unité de surface (N_a)

A partir des mesures précédentes il est donc possible de calculer le nombre de fissures par unité de surface (connaissant la surface de comptage). Les évolutions de ce paramètre avec la déformation plastique équivalente sont présentées sur la Figure VI.11 pour différentes teneurs en hydrogène.

On retrouve une dépendance exponentielle assez proche de celle rapportée par (Yunchang et Koss, 1985), Figure VI.1 page 100 ou par (Huez, 1996) sur des hydrures de titane. Ces mesures mettent en évidence un seuil de déformation plastique en-deçà duquel il n'y a pas de rupture d'hydrures. Ceci est vrai quelle que soit la teneur en hydrogène. Ce seuil dépasse les valeurs d'allongement réparti. L'apparition de la striction n'est donc pas liée à l'endommagement mais à une instabilité mécanique, comme exposé dans le Chapitre IV.

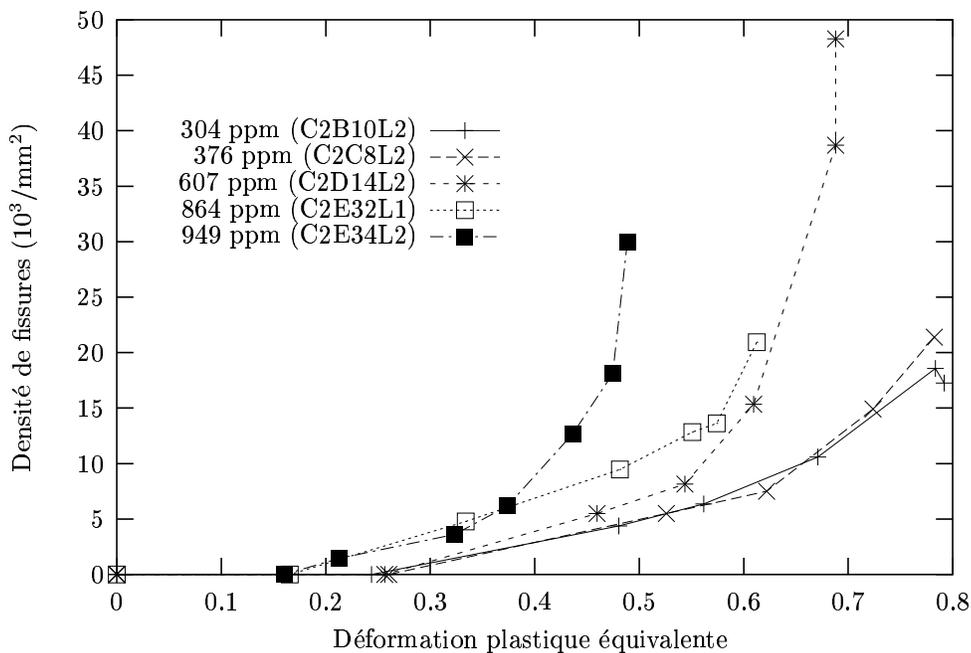


Figure VI.11 : Evolution du nombre de fissures par unité de surface avec la déformation plastique pour différentes teneurs en hydrogène. Eprouvettes sens long.

L'augmentation de la teneur en hydrogène conduit à accélérer la formation des cavités. Ces mesures montrent que, même pour les fortes teneurs, l'apparition des cavités est un phénomène continu et progressif au cours de l'essai.

b) Densité de cavités

Pour la simulation (Chapitre VIII), il est nécessaire de disposer d'une densité volumique de cavités de germination. Or la rupture des hydrures conduit à la formation de fissures sans volume. Il faut donc leur associer un volume fictif (Devillers-Guerville et al., 1997).

Pour cela on détermine une porosité effective de germination en remplaçant la fissure (longueur d dans le plan L-TC, largeur l dans le plan T-TC) par une cavité cylindrique ayant la même surface projetée (dl) dans le plan perpendiculaire à la direction de traction (plan T-TC). Le volume de cette cavité vaut $\frac{\pi \cdot d^2 \cdot l}{4}$. On en déduit une porosité effective par :

$$f_{germination} = \frac{N_a \cdot \pi \cdot d^2 \cdot l}{4 \cdot l_e} \quad (\text{VI.2})$$

Où N_a est le nombre de cavités par unité de surface (en $/\text{mm}^2$), d et l en mm et l_e en mm est la largeur de l'éprouvette.

L'endommagement observé dans le plan L-TC est supposé représentatif de l'endommagement dans l'éprouvette. C'est à dire que quel que soit le plan de coupe axial, la densité surfacique de fissures sera la même (on suppose que l'endommagement est homogène dans la largeur des éprouvettes, ce qui est pratiquement vérifié). On peut donc écrire $l = l_e$. On a donc :

$$f_{germination} = \frac{N_a \cdot \pi \cdot d^2}{4} \quad (\text{VI.3})$$

Le diamètre du cylindre quant à lui est pris égal à $1 \mu\text{m}$, qui correspond à la taille moyenne des fissures mesurées sur les cartographies.

L'évolution de la densité de cavités avec la déformation plastique dans le sens long est présentée sur la Figure VI.12. Il est impossible par ces mesures de déterminer une fraction critique de porosité conduisant à la rupture de l'échantillon. Tout d'abord, ces courbes ne tiennent pas compte du phénomène de croissance des cavités. D'autre part, la coalescence est brutale et liée à l'apparition d'instabilités locales des ligaments séparant les cavités. Il existe donc une dispersion sur les porosités mesurées au niveau de la rupture. On observe même des éprouvettes avec deux striction et qui ont rompu dans la zone la moins endommagée (Figure VI.13).

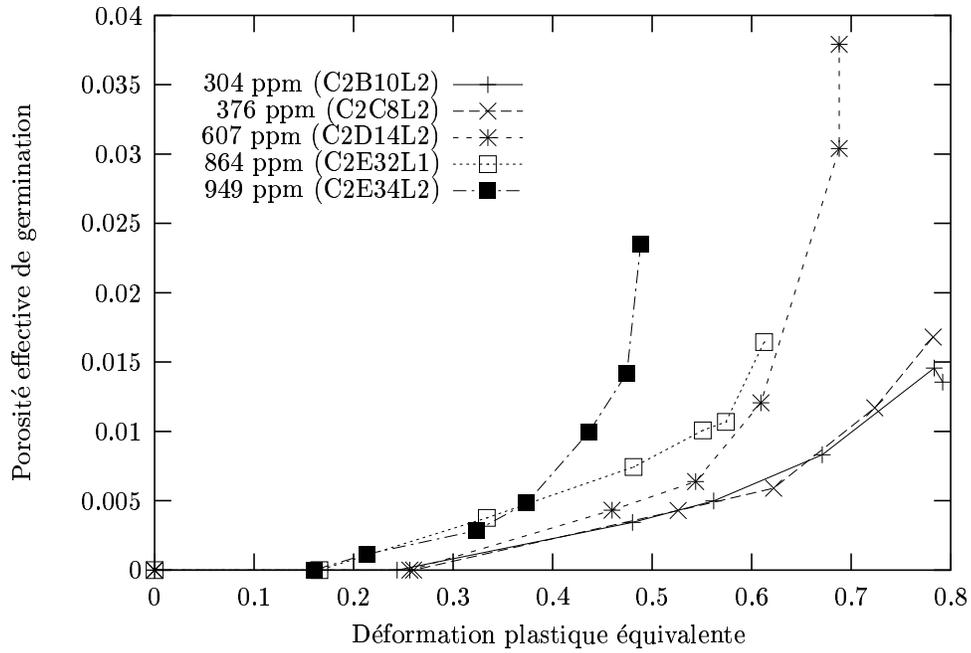


Figure VI.12 : Evolution de la porosité effective de germination en fonction de la déformation plastique équivalente pour différentes teneurs en hydrogène. Eprouvettes sens long.

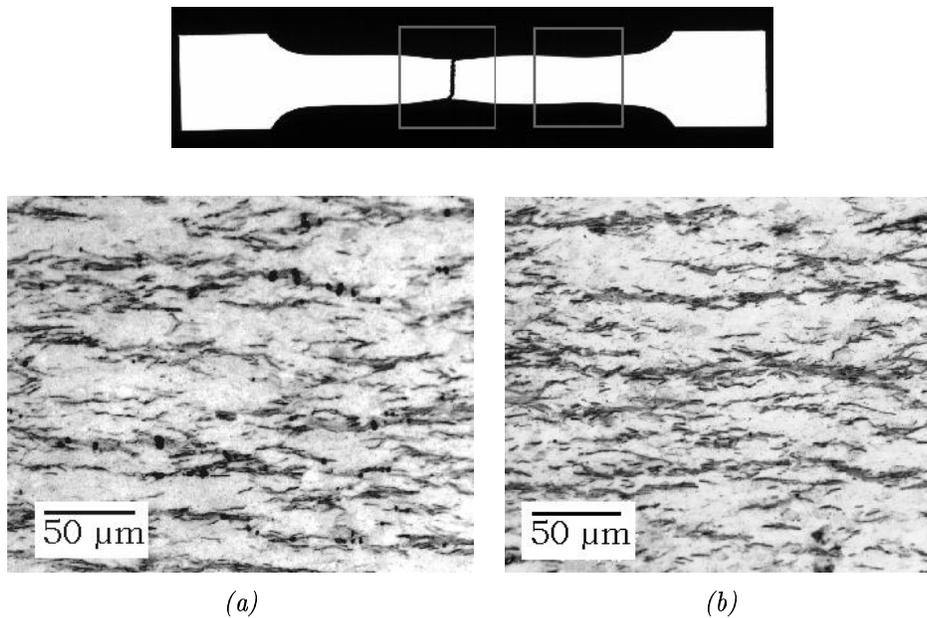


Figure VI.13 : Eprouvette sens long présentant deux zones de striction (C2E34L2, 949 ppm). On observe de l'endommagement dans la striction non rompue (a), alors que la zone entre les deux strictions est très peu endommagée (b).

VI.3.3 Remarques

On retrouve le fait que l'endommagement est principalement gouverné par la déformation plastique sur les éprouvettes entaillées. En effet, la densité de cavités est plus importante au bord des entailles.

Sur les CCP, il est plus délicat de conclure quant au mode principal d'endommagement. En effet, les observations post-mortem ne permettent pas de rendre bien compte du mécanisme de rupture. De plus, en pointe de fissure, le champ de contraintes est assez différent de ceux observés sur les deux autres types d'éprouvettes. Nous avons essayé d'utiliser une caméra optique, dont le grossissement peut aller jusqu'à 1000, pour visualiser en cours d'essai l'apparition des cavités et la progression de la fissure. Mais la profondeur de champ est trop faible pour visualiser de tels phénomènes, compte tenu de la déformation subie par la surface. Il serait intéressant d'effectuer ces essais sous microscope à balayage.

En résumé

Nous nous sommes intéressés de plus près à la rupture des hydrures. Cette analyse a permis de dégager les facteurs influents.

- ★ La taille des hydrures joue un rôle important sur leur capacité à se déformer. Plus ils deviennent massifs, plus ils ont du mal à accommoder la déformation.*
- ★ Parmi les hydrures qui ont la capacité de se déformer, il faut distinguer ceux qui sont inter de ceux qui sont transgranulaires. Ces derniers peuvent accommoder une déformation plastique presque aussi importante que la matrice.*

L'analyse qualitative et quantitative des mécanismes d'endommagement a montré que :

- ★ L'apparition de cavités est uniquement liée à la rupture des hydrures suivant leur largeur. En particulier, aucune décohésion n'est observée à l'interface avec la matrice.*
 - ★ Le paramètre mécanique permettant de décrire l'évolution de cette porosité semble être la déformation plastique. Nous avons donc déterminé, par comptage, les cavités dues à la rupture des hydrures, pour différents niveaux de déformation. Les mesures montrent qu'il existe un seuil de déformation avant lequel on n'observe pas de rupture et que la germination est un phénomène continu au cours de la déformation.*
-

Chapitre -VII-

Effet mécanique d'une couche d'oxyde

Dans les réacteurs à eau sous pression, la corrosion entraîne la pénétration d'hydrogène dans le matériau et la formation d'une couche d'oxyde épaisse en surface (de $5\ \mu\text{m}$ à quelques dizaines de μm). Pourtant, rares sont les auteurs qui ont abordé l'effet mécanique d'une couche d'oxyde, combiné aux effets des hydrures. (Bai, 1993) montre que la couche d'oxyde, formée lors de l'hydruration artificielle en four, conduit à une diminution de la ductilité des éprouvettes lisses lors des essais de traction. Il semble alors que la transition ductile-fragile soit décalée vers les basses teneurs. D'environ 500 ppm pour le Zircaloy-4 hydruré, elle passe à 200 ppm pour le même matériau, hydruré et oxydé (Figure VII.1).

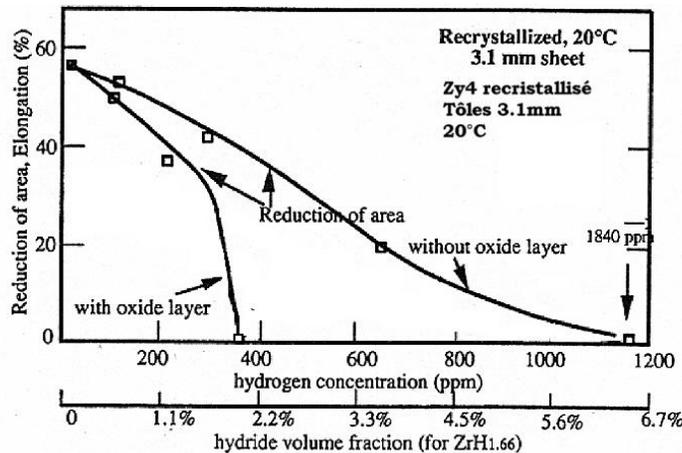


Figure VII.1 : Evolution de la réduction de section avec la teneur en hydrogène. Eprouttes lisses hydrurées et hydrurées-oxydées, température ambiante (Bai, 1993).

Au vu de ces résultats, il semble intéressant d'étudier plus en détail l'effet mécanique de cette couche et son éventuelle interaction avec les hydrures.

Ce chapitre regroupe tout d'abord les principaux résultats concernant la formation de la couche d'oxyde (structure, morphologie...). Cette étude bibliographique permet de choisir un traitement d'oxydation artificiel.

La deuxième partie concerne les essais mécaniques réalisés sur le matériau hydruré-oxydé. Des éprouvettes lisses, découpées dans les tôles hydrurées (sens long), sont oxydées puis sollicitées en traction jusqu'à rupture. Les mécanismes de rupture et d'endommagement sont caractérisés et permettent d'interpréter les résultats en termes d'interaction hydrures-oxyde.

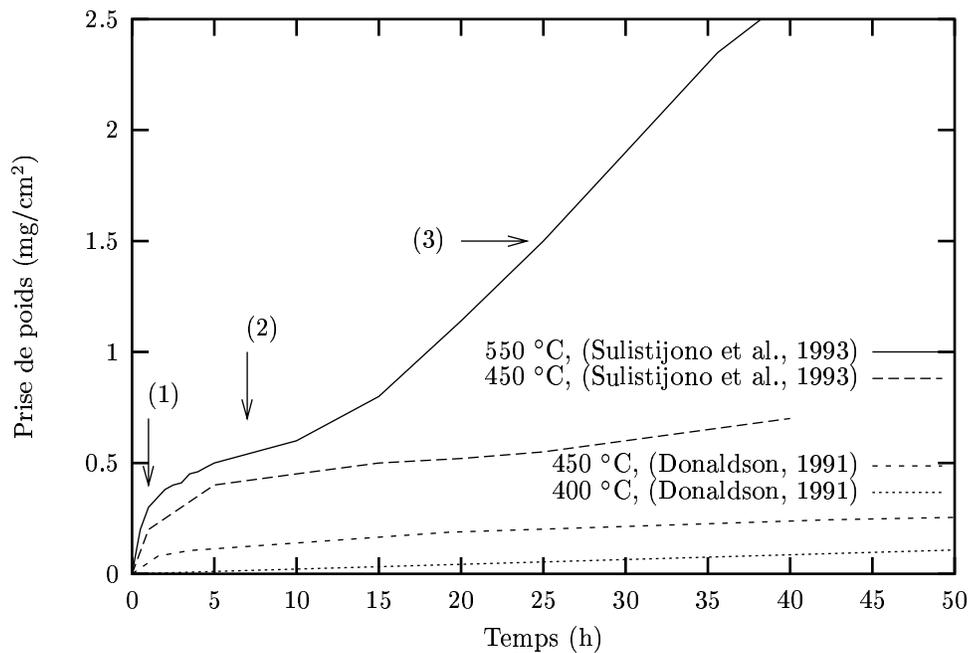


Figure VII.2 : Cinétiques d'oxydation des alliages de zirconium dans différentes conditions d'exposition. Les oxydations ont été réalisées en four sous air synthétique.

VII.1 Oxydation du Zircaloy-4

VII.1.1 Cinétiques

Les cinétiques d'oxydation sont caractérisées par les courbes gain de masse/surface exposée en fonction du temps d'exposition. Quel que soit le mode d'oxydation (air, eau, vapeur...), pour une corrosion uniforme, ces courbes présentent deux régimes distincts (Figure VII.2).

Le premier régime, observé au début des oxydations, se manifeste par une prise de poids rapide (1) puis une saturation (2), signe d'une passivation de la couche formée. Il correspond à la formation d'une couche de zircone ZrO_2 dense, noire et sous-stoechiométrique (Cox, 1969; Garzarolli et al., 1991; Beie et al., 1994). Le mécanisme de croissance anionique de cette couche s'accompagne d'une dilatation volumique de 56% pouvant introduire de fortes contraintes résiduelles de croissance, de traction dans le métal et de compression dans l'oxyde.

(Tanabe et al., 1993) montrent que l'apparition des premiers nanomètres de couche s'effectue par saturation en surface du zirconium par l'oxygène (solution solide). La diffusion en profondeur n'apparaît qu'ensuite. La cinétique initiale n'est donc gouvernée que par la quantité d'oxygène disponible à la surface. Ceci permet d'expliquer la rapidité de l'oxydation initiale.

Pour une épaisseur critique, qui dépend du matériau de base, de la température d'oxydation et du milieu oxydant entre autres, la couche perd son caractère protecteur en se fissurant. L'oxydation reprend et le régime devient linéaire (3). La zircone formée est blanche et stoechiométrique.

Deux explications sont proposées pour expliquer cette transition de régime.

– La première est en relation avec la structure de l'oxyde formé. La couche noire contient de la zircone monoclinique, stable, mais aussi de la zircone quadratique, métastable, en grandes proportions. Cette dernière serait stabilisée par les fortes contraintes de compression dans l'oxyde. Lorsque l'épaisseur de la couche augmente, il semble que les contraintes diminuent. La zircone quadratique serait alors destabilisée et subirait une transformation martensitique. La variation de volume mise en jeu lors de cette transformation expliquerait l'apparition de cavités dans la couche, sous formes de pores ou fissures. Ainsi, l'oxyde perdrait son caractère protecteur (Cox, 1969; Sulistijono et al., 1993; Wadman et al., 1994).

Les études concernant la concentration de la couche d'oxyde en phase quadratique montrent en effet que la proportion diminue lorsque l'on s'éloigne de l'interface métal-oxyde (Lemaignan et Noël, 1998). De plus, il existe effectivement un pic de contrainte dans l'oxyde pour l'épaisseur critique correspondant à la transition (Bradhurst et Heuer, 1970).

– Une autre explication est proposée, en relation avec les contraintes de compression dans l'oxyde (dont la valeur est difficilement mesurable). La transition correspondrait effectivement à la fissuration de la couche sous l'effet direct de ces contraintes et non plus à cause

de la transformation de la zircone (Garzarolli et al., 1991). Ceci permet aussi d'expliquer les pics de contrainte observés pour les épaisseurs de transition.

Quelle que soit l'explication de la transition, le régime linéaire est interprété comme la superposition de deux mécanismes concurrents, la formation d'une couche dense à l'interface et la détérioration de cette couche. Certains auteurs montrent que l'on retrouve en fait des régimes paraboliques (ou cubiques) après la transition (Foord et Newcomb, 1993).

Les facteurs influents pour les régimes de corrosion sont très nombreux. Pour une revue détaillée, on se reportera à (Lemaignan et Noël, 1998; Thomazet et al., 1998; Nakamura et al., 1993).

VII.1.2 Morphologie de l'oxyde post-transition

Quel que soit le mode d'oxydation (en domaine monophasé Zr- α), les grandes caractéristiques de la couche d'oxyde formée sont présentées ci-après. Les couches post-transition ont toutes une épaisseur supérieure à quelques microns.

a) Aspect macroscopique (MEB)

- Le métal de base n'est pas affecté en profondeur. Il existe une zone enrichie en oxygène, à partir de l'interface oxyde-métal. Elle correspond à la diffusion de l'oxygène dans le matériau. La profondeur de pénétration augmente avec la température d'oxydation et avec le temps de maintien (Béranger, 1967).
- L'interface oxyde-métal présente un aspect ondulé (Hutchinson et Lehtinen, 1994). L'ondulation correspond à une déstabilisation du front d'oxydation par la présence des hydrures ou des précipités. (Parise et al., 1998) expliquent que les contraintes mises en jeu lors de la formation de l'oxyde vont ensuite permettre d'entretenir ces instabilités, en facilitant l'oxydation dans les zones les plus avancées dans le métal (bosses). Le mécanisme est donc entretenu naturellement. La fissuration de la couche ne va pas à l'encontre de cette tendance.
- Proche de l'interface oxyde-métal, dans l'oxyde, on observe une couche dense, vierge de fissures. Elle correspond à l'oxyde noir sous-stoechiométrique et passivant, (Wadman et al., 1994) par exemple.
- Lorsque l'on s'éloigne de l'interface oxyde-métal, dans l'oxyde on remarque que la couche est multifissurée. Il existe deux types de fissures. Les plus nombreuses sont parallèles à l'interface (Abrudeanu et al., 1993; Van Swam et Shann, 1991). Les autres, observées particulièrement pour les couches très épaisses (plus de $50\mu\text{m}$) sont perpendiculaires à l'interface (Hutchinson et Lehtinen, 1994). L'étude de la répartition spatiale de ces fissures a permis de mettre en évidence une certaine périodicité, dépendant du matériau de base (Parise, 1996).

b) Structure (MET)

– A l'interface oxyde-métal, se forme le zirconium- ω , phase métastable du zirconium (Ford et Newcomb, 1993). Cette phase est hexagonale compacte avec un rapport $c/a = 0.62$. Elle est habituellement observée pour de hautes pressions. Elle pourrait être stabilisée ici par les atomes d'oxygène en solution solide saturée. Elle se présente sous forme de triangles, dont la base repose sur l'interface et qui pénètrent dans le métal (Figure VII.3).

– La structure de la couche évolue progressivement depuis l'interface oxyde-métal. Les grains sont tout d'abord colonnaires, perpendiculaires à l'interface. Leur largeur varie de 10 à 20 nm. Puis on remarque que cet arrangement disparaît pour laisser la place à des grains équiaxes (Grange, 1996). Cette transformation est expliquée par une recristallisation (Beie et al., 1994; Wadman et al., 1994).

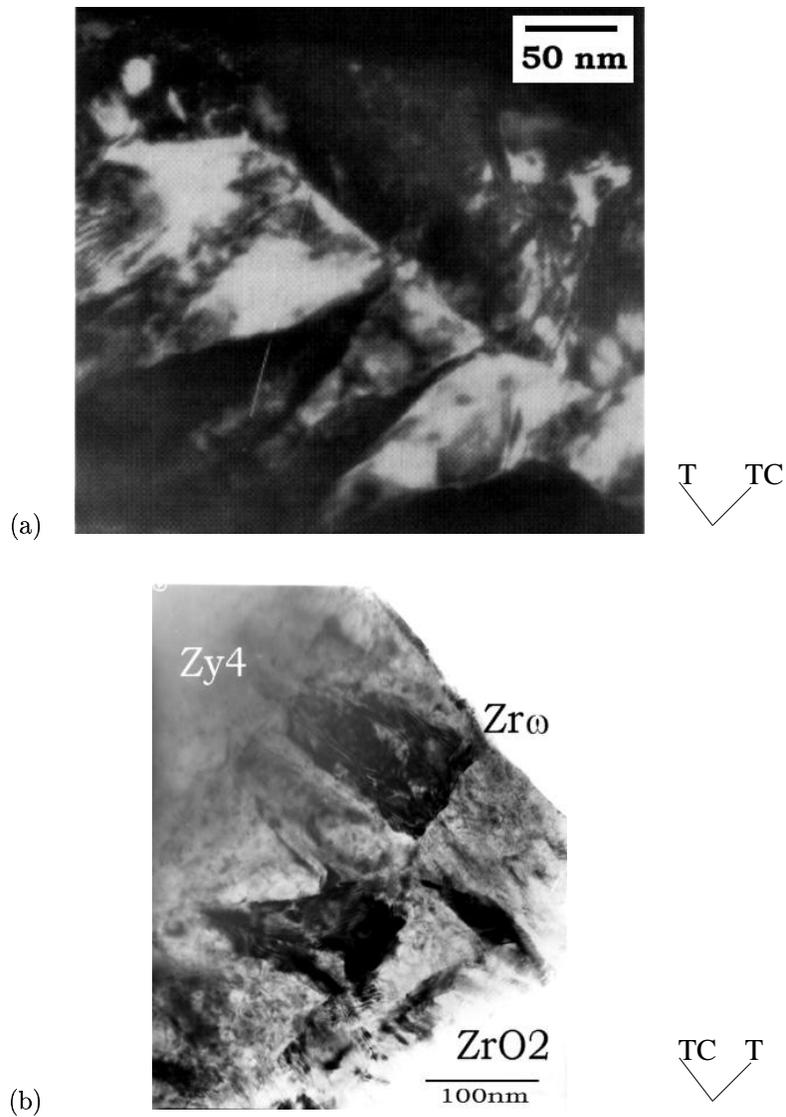


Figure VII.3 : (a) Phase ω du zirconium à l'interface métal-oxyde (Foord et Newcomb, 1993). (b) Des observations similaires ont été réalisées par (Grange, 1996; Grange et al., 1997b) sur un matériau oxydé en autoclave à 400 °C pendant 602 jours.

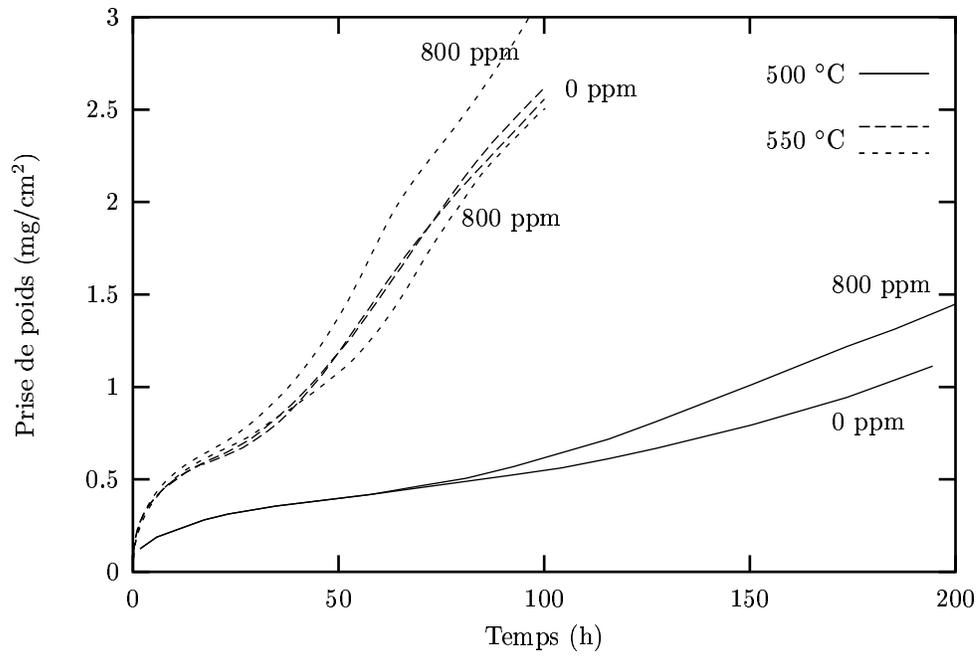


Figure VII.4 : Cinétiques d'oxydation du matériau de l'étude à 500 et 550 °C. Teneurs de 0 et 800 ppm.

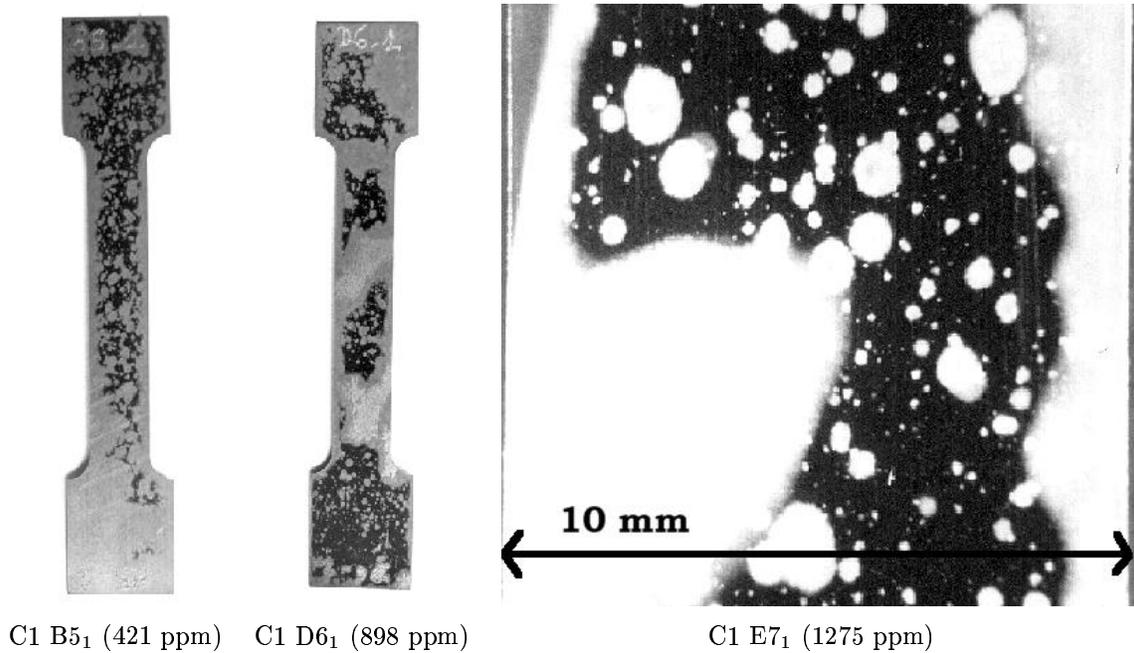


Figure VII.5 : Aspect de l'oxyde formé sur les éprouvettes lors du traitement à 500 °C.

VII.2 L'oxyde de l'étude

VII.2.1 Traitements et épaisseurs

a) Etude thermogravimétrique

Cette étude a été réalisée afin de choisir les traitements d'oxydation et les temps d'exposition utilisés par la suite pour oxyder les éprouvettes. Les résultats bibliographiques ont mis en évidence qu'au dessous de 500 °C l'oxydation était lente (Antoni-Le Guyadec, 1990). La nécessité d'obtenir rapidement une couche d'oxyde dont l'épaisseur est mécaniquement significative nous a donc amenés à étudier l'oxydation du matériau de l'étude pour deux températures 500 °C et 550 °C. Au delà, on se situe trop près de la température de recristallisation.

Les traitements sont donc réalisés sous air synthétique, dans un four, car les autoclaves ne permettent pas de dépasser 450 °C. La procédure utilisée pour l'analyse thermogravimétrique est décrite en Annexe A-I. Les essais ont été réalisés sur le matériau non hydruré, mais aussi sur le matériau hydruré.

Les courbes obtenues pour les deux températures de traitement sont présentées Figure VII.4. On remarque que la transition est plus tardive pour 500 °C. L'oxydation est plus rapide pour 550 °C. Deux durées d'exposition ont été choisies à partir de ces cinétiques de prise de poids : 200 heures à 500 °C, de façon à former une couche de 5 μm d'oxyde par face (traitement 1), et 100 heures à 550 °C, de façon à former une couche de 20 μm d'oxyde par face (traitement 2).

On remarquera que la présence d'hydrures n'affecte ni le temps de transition, ni les prises de poids. On ne retrouve donc pas l'effet néfaste des hydrures observé par (Kido, 1993; Garde, 1991).

b) Eprouvettes

Deux séries d'éprouvettes ont été oxydées. Pour les conditions expérimentales on se reportera à l'Annexe A-I. La vitesse de refroidissement n'a été contrôlée que pour le premier traitement. Elle est inférieure à 1°C/min. Pour le second, les éprouvettes ont subi un refroidissement à l'air. Une éprouvette (1000 ppm) a aussi été oxydée sous vide statique (10^{-7} bars à 20°C) à 550 °C, 100 heures afin de caractériser l'effet du maintien en température sur le matériau de base hydruré.

Les teneurs et les prises de poids sont présentées dans le Tableau VII.1. On notera la forte dispersion des résultats liée à la difficulté de réaliser des oxydations sur de grandes surfaces. En particulier, pour les éprouvettes du traitement 1, la couche blanche commence juste à apparaître et on remarque que sa germination sur la surface est hétérogène (Figure VII.5). Ceci est observé quelle que soit la teneur en hydrogène de l'éprouvette. Les éprouvettes du traitement 2 sont toutes recouvertes de l'oxyde blanc. Les mesures d'épaisseur ne mettent pas en évidence d'hétérogénéités sur ces éprouvettes.

Traitement 1 – 500 °C

Eprouvette	Teneur (ppm)	G_m (mg/mm ²)	$R_{p0.2}$ (MPa)	R_{pic} (MPa)	A_{pic} (%)	A_{tot} (%)	$\Delta L_t/L_t$ (%)
C1 O ₁₀	7	0.705					
C1 O ₁₁	42	0.905	415.	*	*	17.2	36.1
C1 B5 ₁	421	1.149	351.	520.	2.7	24.5	28.8
C1 B5 ₂	≈ 250	1.153					
C1 C6 _{1b}	≈ 500	1.160					
C1 C6 _{2b}	≈ 500	1.179					
C1 D6 ₁	898	1.217	407.	556.	2.0	16.2	20.7
C1 D6 ₂	≈ 800	1.148					
C1 E7 ₃	≈ 100	1.080					
C1 E7 ₄	1275	1.048	441.	576.	1.8	14.5	18.5

Traitement 2 – 550 °C

Eprouvette	Teneur (ppm)	G_m (mg/mm ²)	$R_{p0.2}$ (MPa)	R_{pic} (MPa)	A_{pic} (%)	A_{tot} (%)	$\Delta L_t/L_t$ (%)
C1 O ₁	7	3.109	405.	480.	1.08	30.	40.
C1 O ₂	97	2.924	417.	484.	0.96	25.	42.
C1 A4 ₁	348	2.600	400.	509.	1.25	22.	32.
C1 A4 ₂	298	2.775	415.	528.	1.20	18.	35.
C1 B7 ₁	380	2.720	410.	527.	1.11	19.	35.
C1 B7 ₂	347	2.750	399.	510.	1.0	15.	34.4
C1 C6 ₁	561	2.801	446.	553.	1.20	12.	30.
C1 C6 ₂	554	2.753	420.	505.	0.90	12.	35.
C1 D3 ₁	877	2.767	383.	541.	1.20	8.	15.
C1 D3 ₂	1015	3.008	395.	538.	1.35	10.	13.
C1 E6 ₁	1421	3.001	410.	556.	1.36	3.	7.
C1 E6 ₂	1228	2.947	411.	551.	1.18	5.	15.

Tableau VII.1 : Prises de poids des éprouvettes pour les deux traitements. Seules les éprouvettes testées ont été dosées en hydrogène. Principaux résultats des essais. (*) pas de crochet de traction.

VII.2.2 Caractérisation microstructurale

Aux échelles de caractérisation utilisées, aucune différence n'a pu être dégagée entre les couches formées et les couches habituellement observées.

a) MEB

L'allure de la couche formée lors du traitement 2 et observée en coupe est présentée Figure VII.6. La couche formée lors du traitement 1 est pratiquement identique. Son épaisseur est plus faible.

- On remarque, dans le métal, juste sous l'interface, une zone plus claire (contraste chimique). Elle met en évidence un enrichissement en oxygène. Toutefois, elle ne permet pas de conclure quant à la profondeur de pénétration.
- L'interface est ondulée avec des vagues d'une amplitude d'1 à 2 μm .
- Au niveau de l'interface, il existe une couche d'oxyde dense, d'une épaisseur d'1 μm environ.
- Au delà, la couche est multifissurée. Les fissures sont parallèles à l'interface. Plus rarement, on observe des fissurations perpendiculaires.

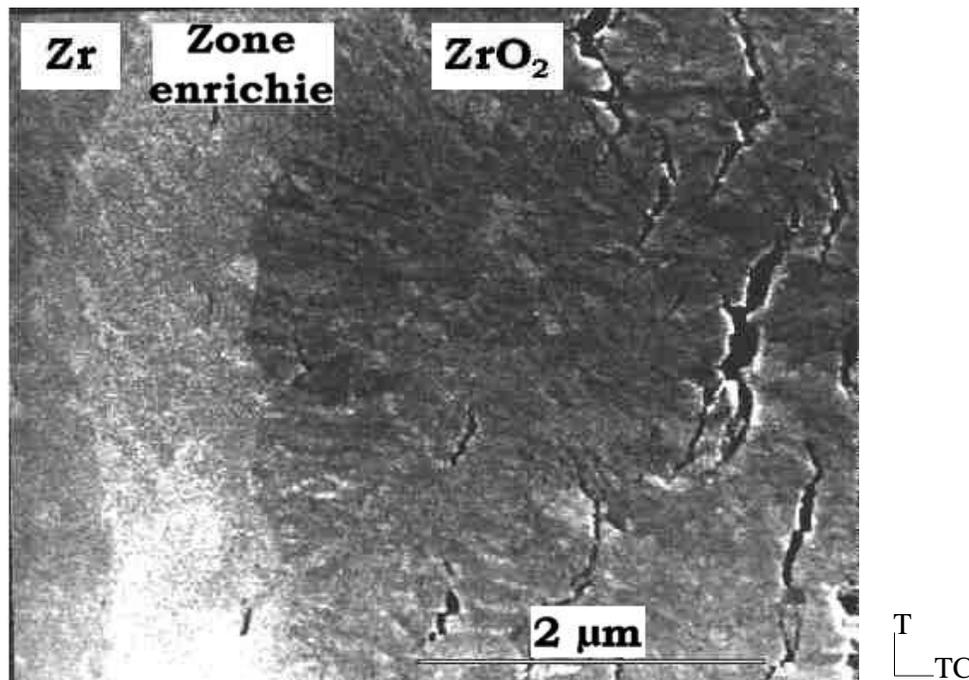


Figure VII.6 : Couche d'oxyde observée en coupe (MEB). Traitement à 550 °C, matériau non hydruré.

b) SIMS

Les analyses SIMS (voir Annexe A-I) ont pour but de déterminer la répartition des éléments depuis la couche jusque dans le matériau. Les analyses ont été effectuées sur des échantillons des deux traitements, avec différents teneurs en hydrogène et comparées aux analyses sur le matériau de base non oxydé.

Les analyses sont effectuées par un balayage de surface dans l'épaisseur de l'éprouvette ou sur une coupe biaisée (4° d'inclinaison environ). La coupe biaisée permet d'étudier les gradients de concentration depuis l'interface jusqu'à quelques microns de profondeur. L'observation dans l'épaisseur permet de décrire les évolutions dans toute l'épaisseur. La méthode habituelle d'observation est inutilisable sur les éprouvettes de l'étude car le temps d'abrasion de la couche d'oxyde dépasse la journée.

Les résultats des analyses de ce type doivent être examinés avec précaution car de nombreux artefacts peuvent être interprétés comme des évolutions propres au matériau. En particulier on retiendra, le changement d'intensité de rayonnement des éléments selon la structure dont ils sont extraits (effet de matrice), l'influence du relief qui peut créer des effets d'ombre et les problèmes d'orientation de la surface par rapport au détecteur.

En tenant compte des remarques énoncées ci-dessus, on observe un gradient de concentration en oxygène dans le matériau à partir de l'interface. La profondeur de pénétration dépend du traitement. Pour le premier traitement, l'épaisseur affectée ne dépasse pas 5 à 10 μm . Pour le second, elle atteint une vingtaine de microns. Les analyses n'ont pas mis en évidence de pénétration d'oxygène en profondeur. Ces profondeurs sont cohérentes avec les coefficients de diffusion de l'oxygène aux températures considérées (Parise, 1996).

En résumé

Les couches d'oxyde formées n'ont pas été caractérisées au MET. Toutefois, elles présentent les aspects macroscopiques des couches habituellement formées sur le Zircaloy-4. Nous nous reposons donc sur les études bibliographiques pour supposer qu'elles possèdent une structure identique à celle décrite dans le paragraphe VII.2.2.

VII.3 Influence mécanique

Après oxydation, les éprouvettes ont été sollicitées en traction à 10^{-3} s^{-1} suivant la procédure décrite dans le Chapitre IV-§ IV.1.2. Afin d'assurer un bon maintien dans les mors, l'oxyde a préalablement été retiré des têtes par sablage.

VII.3.1 Déroulement des essais

Les éprouvettes des deux traitements ne se distinguent que pour les teneurs supérieures à 800 ppm.

Pour les faibles teneurs, le déroulement de l'essai est présenté sur les Photographies VII.7. Après quelques % de déformation (1 à 2), l'oxyde desquamé à partir des congés qui sont des régions soumises à des concentrations de contrainte. La desquamation se répand ensuite à toute la longueur utile, rappelant la propagation des bandes de Piobert-Lüders. La rupture se produit généralement au centre de l'éprouvette. Pour les fortes teneurs du traitement 1 (500 °C), l'essai se déroule comme décrit ci-dessus. Par contre, pour le traitement 2 (550 °C), la desquamation entraîne la localisation de la déformation plastique dans cette région, où, par la suite, se produit la rupture (Figure VII.8).

VII.3.2 Courbes de traction

Les courbes $F/S_0 - \Delta L/L_0$, S_0 étant la section de métal de l'éprouvette après oxydation, sont présentées sur la Figure VII.9. Leurs sont comparés les résultats obtenus sur matériau hydruré. L'épaisseur utilisée pour le calcul des contraintes est estimée en considérant qu'une partie du métal a été consommée lors de l'oxydation (environ $1 \mu\text{m}$ de métal pour $2 \mu\text{m}$ d'oxyde). Il est délicat de déterminer quelle est la section portante réelle.

Les courbes présentent un pic de contrainte pour une déformation plastique d'environ 1%. Ce pic correspond au début de la desquamation de l'oxyde observée expérimentalement. Les contraintes mesurées avant ce pic sont nettement supérieures à celles obtenues sur le matériau non oxydé (même si on corrige la section portante en prenant en compte l'oxyde). Il y a donc un effet composite marqué lié à la présence de la couche d'oxyde qui reprend une partie des efforts, malgré son aspect fissuré.

Le plateau de contrainte observé pour les faibles teneurs en hydrogène (<800 ppm) du traitement 2 et pour toutes les teneurs du traitement 1, correspond à la propagation de la desquamation. L'essai se déroule ensuite comme un essai de traction classique.



Figure VII.7 : *Déroulement de l'essai de traction sur éprouvette oxydée. Traitement à 550 °C, (C1 O₂, non hydruré).*

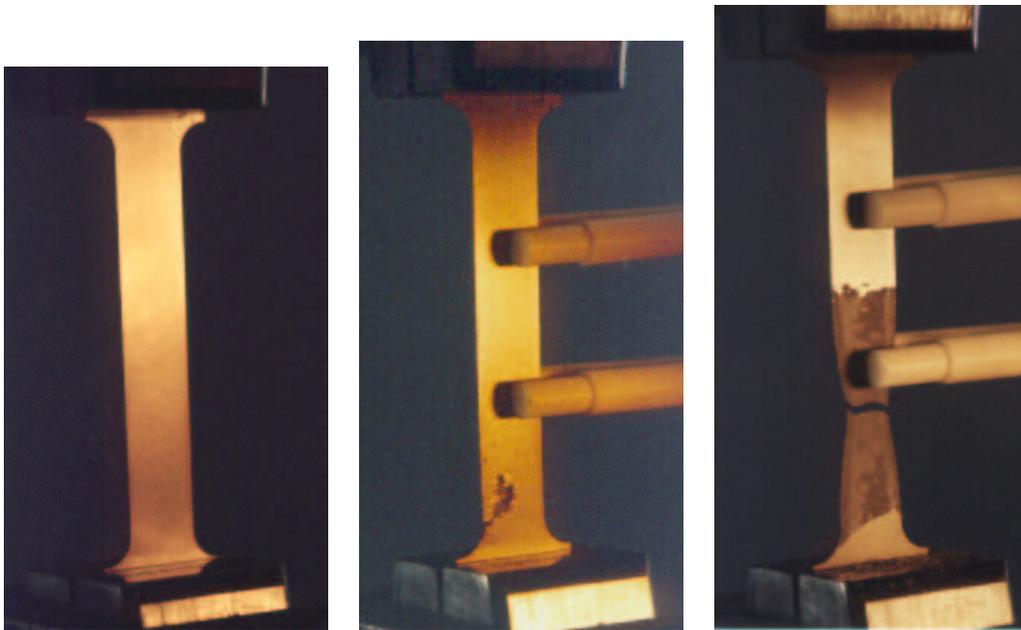


Figure VII.8 : *Déroulement de l'essai de traction sur éprouvette hydrurée-oxydée. Traitement à 550 °C (C1 D3₁, 877 ppm).*

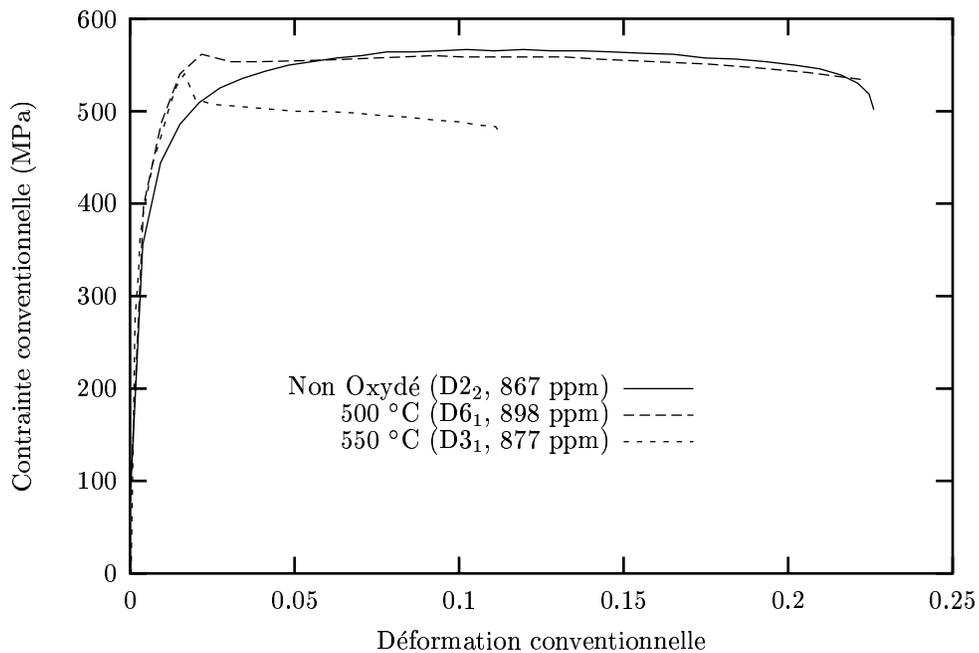
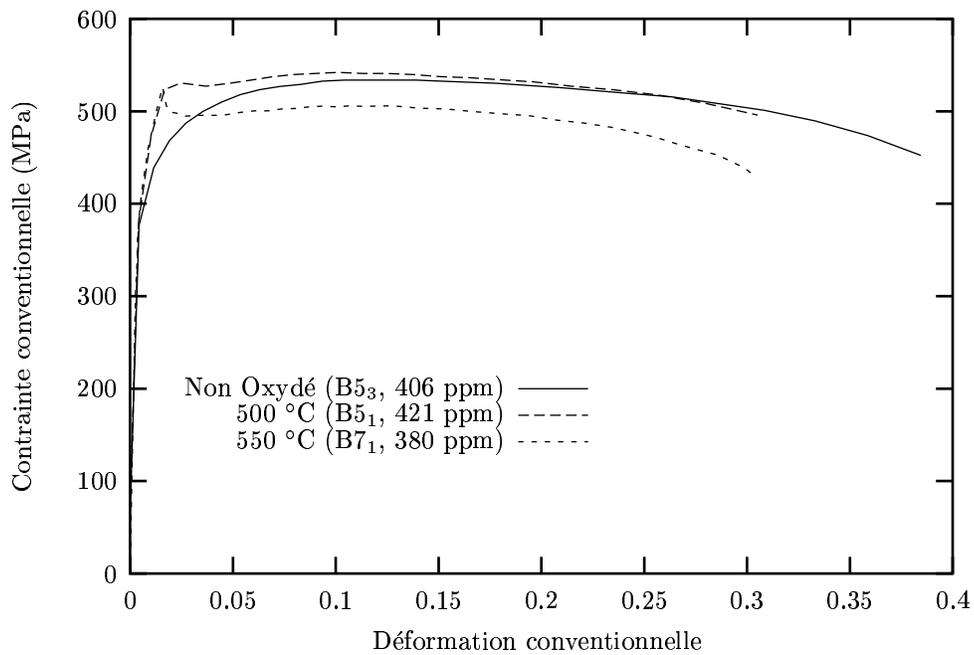


Figure VII.9 : Courbes $F/S_0 - \Delta L/L_0$ obtenues pour deux teneurs et pour les deux traitements, comparées aux courbes sur matériau non oxydé.

Matériau non oxydé (Référence)

Eprouvette	Teneur (ppm)	$R_{p0.2}$ (MPa)	R_m (MPa)	A_{rep} (%)	A_{tot} (%)	$\Delta L_t/L_t$ (%)
C1 O ₁	7	370.	490.	15.9	28.	44.1
C1 O ₂	7	382.	526.	13.4	32.	44.1
C1 A ₂ ₂	298	377.	516.	12.2	26.	35.6
C1 B ₃ ₂	299	377.	516.	12.2	24.	35.0
C1 B ₃ ₁	304	364.	518.	12.0	23.0	35.0
C1 A ₂ ₁	326	382.	516.	13.4	25.	35.6
C1 B ₅ ₃	406	370.	530.	12.5	27.5	39.0
C1 C ₄ ₂	439	364.	500.	*	20.	40.
C1 D ₆ ₃	797	387.	564.	10.6	22.1	27.9
C1 D ₂ ₂	867	374.	517.	10.0	21.0	27.0
C1 E ₆ ₁	938	371.	547.	10.8	*	29.0
C1 E ₂ ₂	1014	400.	571.	10.2	24.9	28.0
C1 E ₆ ₂	1085	380.	546.	10.7	18.	29.0
Traitement sous vide – 550 °C						
C1 E ₇ ₁	601	412.	556.	9.5	21.1	30.7

Tableau VII.2 : Propriétés mécaniques des éprouvettes non oxydées de la Coulée 1.

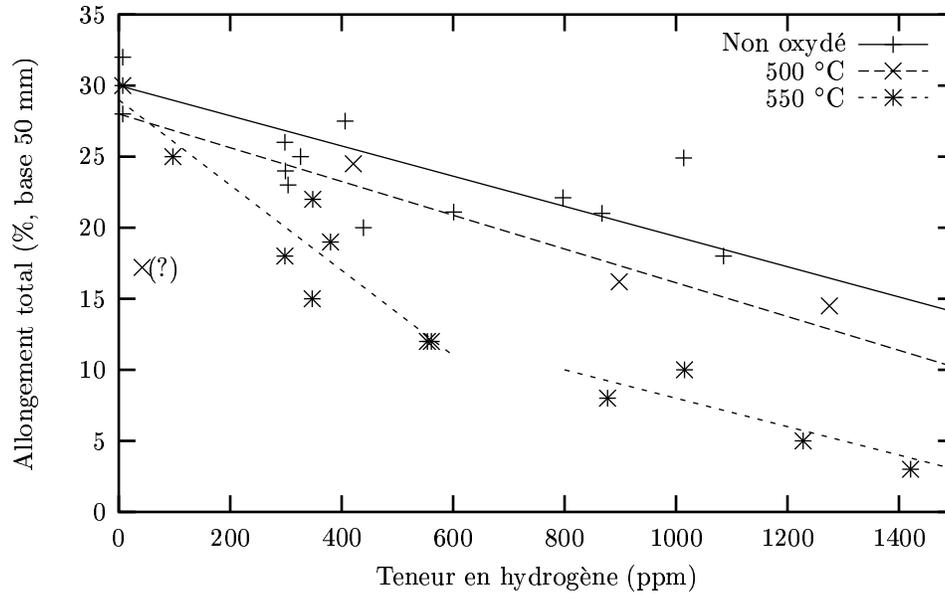


Figure VII.10 : Evolution de l'allongement total avec la teneur en hydrogène, pour les deux traitements et pour le matériau non oxydé.

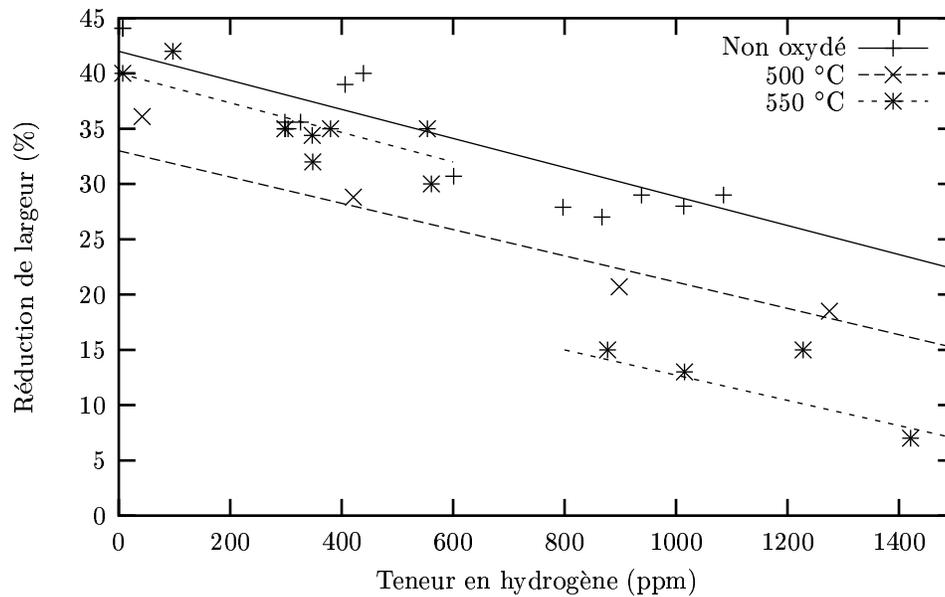


Figure VII.11 : Evolution de la réduction de largeur avec la teneur en hydrogène, pour les deux traitements et pour le matériau non oxydé.

Pour les fortes teneurs (>800 ppm) du traitement 2, l'amplitude du plateau est plus faible. Il y a localisation de la déformation dès le début de la desquamation. Pour ces teneurs, l'essai est difficilement assimilable à un essai de traction classique puisqu'à aucun moment la déformation n'est homogène dans la partie utile.

VII.3.3 Contraintes–Ductilités

Les résultats sont présentés dans les Tableaux VII.1 (page 125) et VII.2 (page 131).

La forme des courbes ainsi que les phénomènes qui leur sont rattachés incitent à une grande précaution lors du dépouillement conventionnel de l'essai. Comment déterminer un allongement réparti? A quoi correspond la limite d'élasticité conventionnelle? Quelle charge à rupture choisir?

La limite d'élasticité déterminée à 0.2 % augmente par effet composite de l'oxyde sur le métal. La charge à rupture calculée sur le matériau hydruré est très proche de la contrainte déterminée sur le pic de traction pour le matériau hydruré - oxydé (R_{pic}). Après la desquamation, on observe que la charge chute du fait de la diminution de section portante.

L'allongement réparti n'est significatif que lorsque la déformation est homogène ce qui n'est pas le cas ici. Nous nous sommes plutôt intéressés à la déformation plastique correspondant au pic de traction (A_{pic}). On remarque que celle-ci évolue très peu avec la teneur en hydrogène pour un même traitement. Elle correspond à la déformation supportée par l'oxyde avant desquamation. La couche plus fine du traitement 1, semble pouvoir mieux accommoder cette déformation.

Après l'essai, l'allongement (ΔL_t) de la partie utile ($L_t = 50$ mm) est déterminé. A_{tot} est calculé comme $\Delta L_t/L_t$. On remarque que la diminution de cet allongement avec la teneur en hydrogène est très importante pour les éprouvettes hydrurées–oxydées alors qu'elle reste limitée pour les éprouvettes hydrurées (Figure VII.10). On met ainsi bien en évidence la tendance à localiser plus rapidement pour le matériau hydruré–oxydé.

On détermine ensuite la réduction de largeur au niveau de la rupture. Ce paramètre est caractéristique de la ductilité, car la déformation s'effectue principalement dans le plan de la tôle (Figure VII.11). On retrouve la distinction entre les basses et les fortes teneurs en hydrogène pour le traitement 2. En effet, il apparaît que la fragilisation est plus marquée au-delà de 800 ppm. En particulier, si l'écart avec les ductilités mesurées sur le matériau simplement hydruré semble constant avant 800 ppm, celui-ci chute lorsque les teneurs dépassent ce seuil.

Pour le traitement 1, l'écart reste constant, quelle que soit la teneur en hydrogène. Par contre, même sur le matériau non hydruré, la réduction de ductilité est plus importante que pour le second traitement.

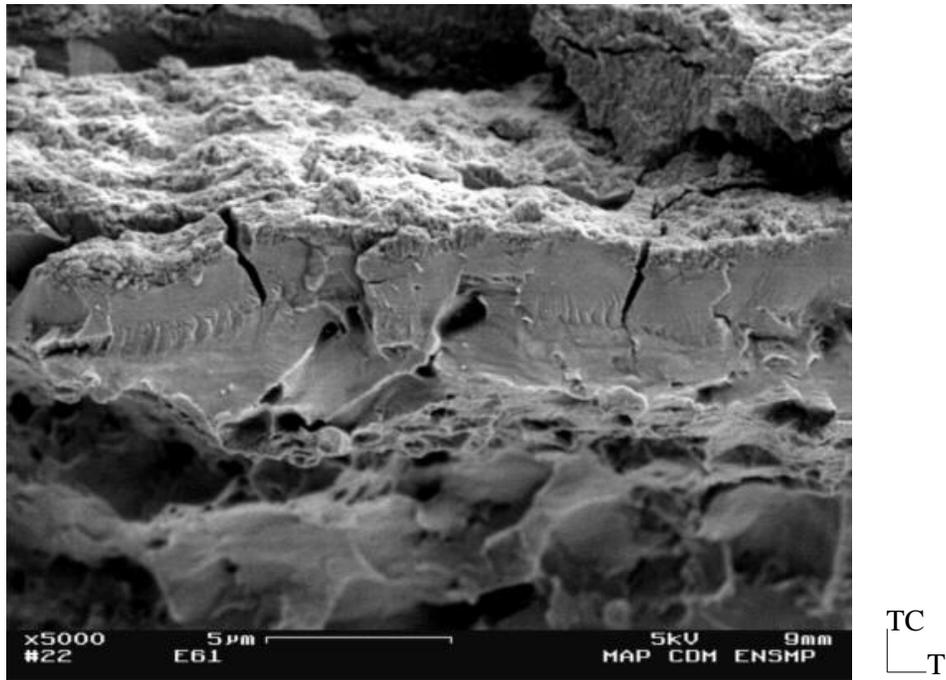


Figure VII.12 : *Faciès de rupture observé sur une éprouvette traitée à 550 °C (C1 E6₁, 1421 ppm).*

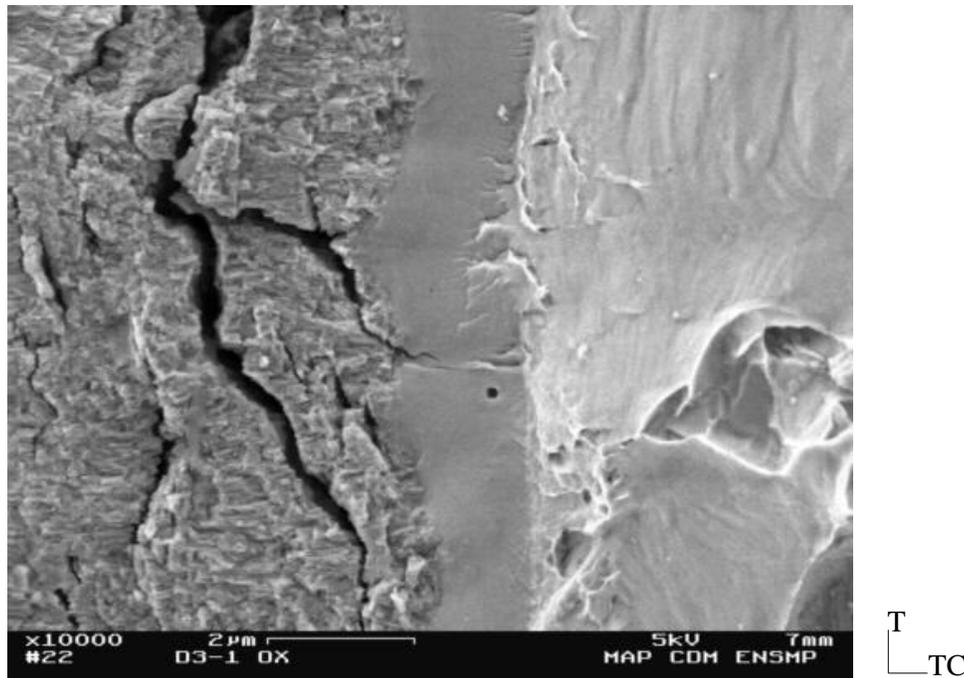


Figure VII.13 : *Faciès de rupture observé sur une éprouvette traitée à 550 °C (C1 D3₁, 877 ppm).*

Il semble donc qu'il y ait une interaction entre les hydrures et la couche d'oxyde. Elle se manifeste principalement pour les teneurs supérieures à 800 ppm sur le matériau oxydé à 550 °C. Il existe aussi une fragilisation du matériau par le traitement d'oxydation, indépendamment des hydrures.

VII.4 Mécanismes de rupture

Le mécanisme de rupture a été étudié à l'aide de fractographies et de coupes longitudinales. Une attention particulière a été apportée à la caractérisation de l'endommagement.

VII.4.1 Fractographies

L'analyse des faciès de rupture a montré que la rupture restait de type ductile à coeur. On retrouve les larges fissures dues à la rupture des hydrures.

Par contre, la région proche de l'interface présente un aspect de clivage (Figure VII.12). La largeur de ces plages est plus grande pour le traitement 2 (5 μm) que pour le traitement 1 (2 μm). Cette zone correspond à la partie du matériau fortement enrichie en oxygène. (Tresco, 1953) montre que l'insertion d'oxygène permet d'augmenter la contrainte d'écoulement du zirconium (60 % pour 1000 ppm). En contrepartie, elle réduit la ductilité du matériau d'autant.

Une partie de la couche d'oxyde est restée adhérente au matériau (Figure VII.13). L'épaisseur de cette couche correspond à la couche dense observée à l'interface. Elle est fissurée perpendiculairement à l'interface. Les fissures débouchent dans le matériau, mais elles sont rapidement arrêtées.

VII.4.2 Coupes longitudinales

- La surface du métal est constellée de micro-fissures provenant de l'oxyde et pénétrant dans le métal. Ces fissures sont présentes même dans les régions où l'oxyde n'a pas desquamé (Figure VII.14). Lorsque l'on se rapproche de la surface de rupture, leur longueur devient plus importante.

La desquamation s'effectue donc en deux temps. Lors de la montée en charge, la couche se déforme élastiquement jusqu'à une déformation critique ou contrainte critique, car la couche est fragile à la température d'essai (Donaldson, 1991). Une fissuration perpendiculairement à la contrainte de traction permet alors à la couche d'accommoder la déformation. Dans un deuxième temps, les fissures formées ne suffisent plus et l'oxyde se décolle par plaques. C'est la desquamation observée expérimentalement. La desquamation s'effectue par rupture de l'oxyde dans son épaisseur et non par décohérence de la couche avec le métal (Figure VII.15).

- D'autre part, l'étude des hydrures sur les éprouvettes du traitement à 550 °C a montré qu'ils présentaient une morphologie très différente de la morphologie initiale. Ils sont massifs et répartis aux joints de grains (Figure VII.16).

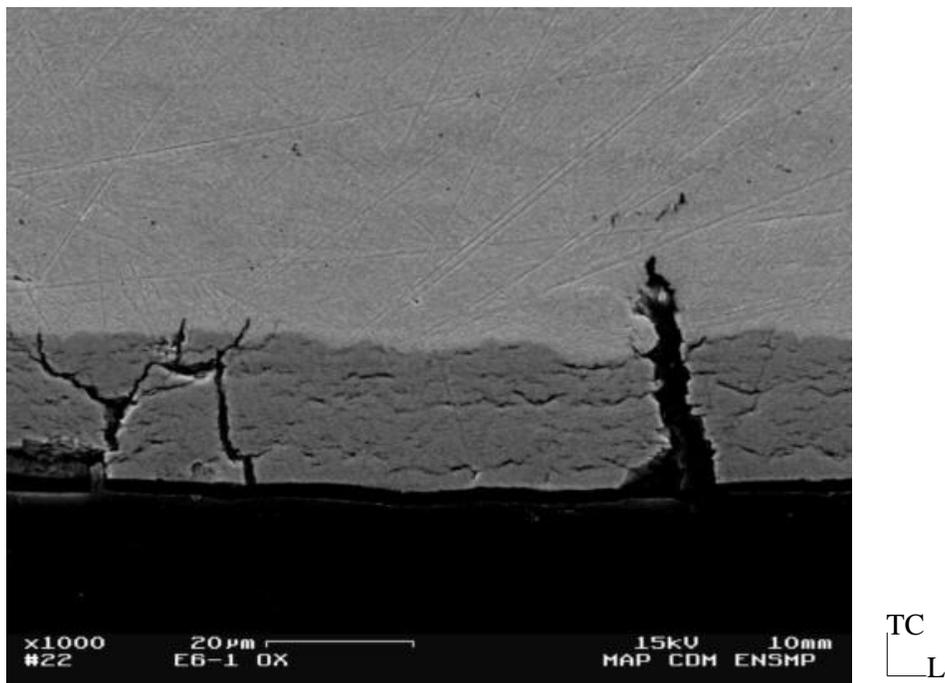


Figure VII.14 : Coupe longitudinale d'une éprouvette traitée à 550 °C (C1 E6₁, 1421 ppm). Les fissures créées par la rupture de la couche pénètrent dans le métal.

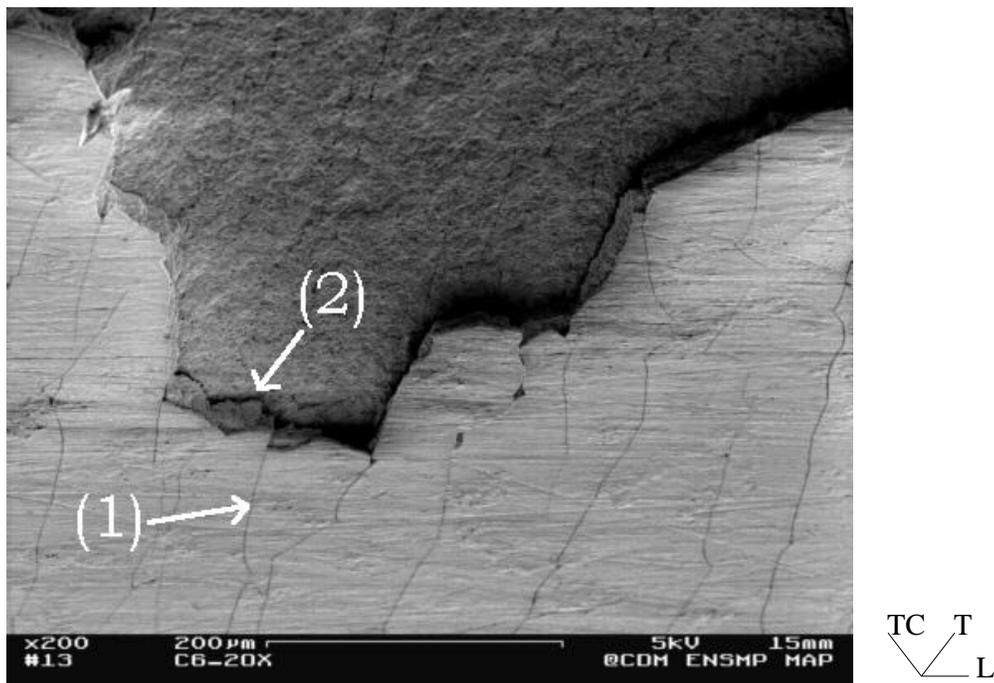


Figure VII.15 : Aspect de la surface d'une éprouvette traitée à 550 °C (C1 C6₂, 554 ppm). On remarque la double fissuration de la couche d'oxyde, l'une permettant d'accommoder la déformation (1), l'autre entraînant sa desquamation (2).

L'endommagement sur ces éprouvettes reste localisé près de la zone de rupture, alors que pour les éprouvettes du traitement 1, il est similaire à celui observé sur le matériau simplement hydruré.

VII.4.3 Discussion

La précipitation anormale des hydrures sur les éprouvettes très hydrurées du traitement 2 s'explique par la température de traitement. L'hydrogène est une espèce β -gène qui conduit à abaisser la température de transformation jusqu'à 546 °C, pour les teneurs supérieures à 600 ppm environ (voir Figure III.1 Chapitre III). Les éprouvettes ont donc subi un début de transformation en phase β . Or (Bai et al., 1994b) montrent que les éprouvettes traitées β sont beaucoup moins ductiles que le matériau recristallisé. De plus (Fréchet, 1998) trouve que les joints de grains sont des sites privilégiés d'apparition de cette phase (Figure VII.17) et (Perovic et al., 1983) montrent que la précipitation des hydrures s'effectue aux joints de phase dans les alliages α/β . L'hydrogène remis en solution lors du traitement a donc précipité aux joints de grains lors du refroidissement d'autant plus facilement que les éprouvettes ont subi une trempe à l'air, permettant de piéger l'hydrogène. Enfin, les cinétiques de formation des hydrures prévoient alors que ce n'est plus l'hydrure δ qui se forme, mais les hydrures γ ou ϵ qui sont plus nocifs pour la ductilité.

Les faibles teneurs ont subi la trempe à l'air conduisant à une précipitation intergranulaire mais pas le passage en β . Les hydrures formés sur les éprouvettes sont fort probablement des hydrures γ ou ϵ . Mais il ne semble pas que la ductilité soit particulièrement affectée.

Il est difficile aujourd'hui de conclure quant aux influences relatives du passage en β et de la teneur en hydrogène, qui sont deux facteurs de fragilisation (Bai, 1993). En effet, pour des précipitations intergranulaires, (Bai, 1993) montre que la transition ductile-fragile se situe à 600 ppm environ pour le matériau recristallisé, ce qui correspond aussi à la teneur permettant une transformation en β ! Toutefois, l'éprouvette traitée sous vide (1000 ppm avant traitement, 601 ppm après traitement), n'a pas présenté de diminution de ductilité par rapport au matériau hydruré alors qu'elle a probablement subi les mêmes modifications métallurgiques que le matériau hydruré-oxydé. Il semble donc que le facteur fragilisant soit la précipitation intergranulaire et non seulement le passage en phase β .

Pour les éprouvettes du traitement 1, la précipitation n'a pas été modifiée. Il faudra donc chercher ailleurs les causes de la baisse de ductilité par rapport au matériau non oxydé. Même si les analyses SIMS n'ont pas permis de détecter de gradient de concentration en oxygène dans le coeur du matériau, il est probable que celui-ci a subi des modifications de propriétés, en relation avec l'oxygène. Des mesures de dureté dans l'épaisseur ont montré par exemple qu'elle variait d'un facteur 1 à 3 sur une distance de 200 μm , entre le coeur et le bord des tôles. Ces mesures n'ont pas été approfondies.

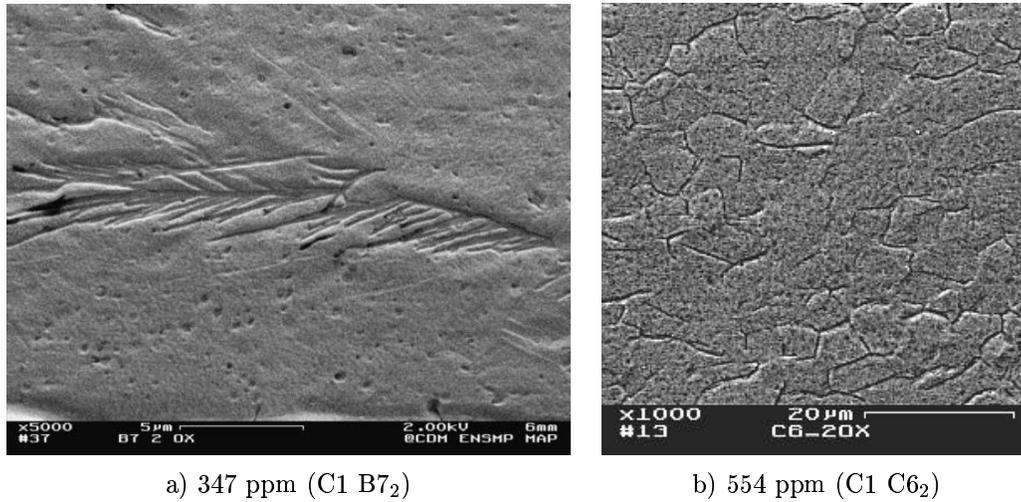


Figure VII.16 : Coupe longitudinale d'une éprouvette traitée à 550 °C. Les hydrures sont répartis aux joints de grains.

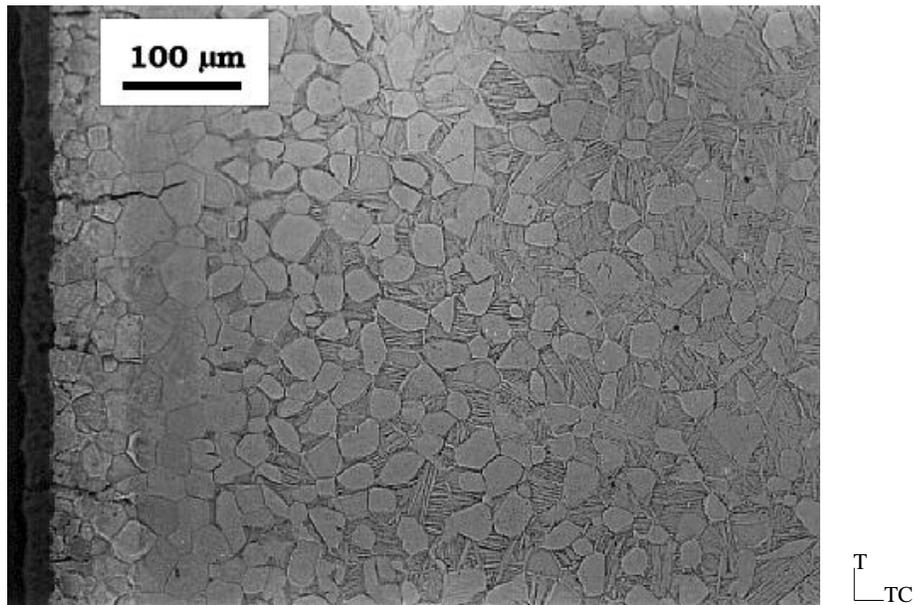


Figure VII.17 : Epaisseur d'une tôle de Zircaloy-4 après transformation partielle en phase β (Argon, 890° C, 4 heures puis trempe argon). La phase β apparaît aux joints de grains. La surface du tube, enrichie en oxygène (α -gène), ne se transforme pas (Fréchet, 1998).

En résumé

*L*es observations effectuées ont permis de dégager quelques explications quant à l'effet d'une couche d'oxyde sur le comportement mécanique du Zircaloy-4 hydruré. Les mécanismes mis en jeu peuvent être décrits comme suit.

- ★ La couche d'oxyde a un caractère fragile. Elle se fissure progressivement sous l'effet de la déformation. Elle desquame ensuite en rompant au niveau de son interface avec l'oxyde dense. La fissuration de la couche introduit des micro-fissures en surface du matériau. La pénétration de ces fissures est facilitée par la présence d'une couche enrichie en oxygène dont la ténacité est réduite.*

 - ★ Les perturbations introduites par les variations de section (desquamation, fissuration de la couche), vont faciliter l'apparition de la localisation (Chapitre IV). On retiendra que l'effet de l'oxyde est plus marqué sur les éprouvettes fortement hydrurées car l'épaisseur de celles-ci est plus faible. Lors de la desquamation, la variation relative de section portante sera plus grande.*

 - ★ La rupture finale est gouvernée par l'apparition d'un endommagement dû aux hydrures. La présence des fissures facilite la rupture car elle augmente la densité de défauts. Pour les éprouvettes traitées à 550 °C, il est possible que le passage en phase β ait fragilisé les joints de grains. De plus, le refroidissement rapide conduit à former des hydrures intergranulaires, plus nocifs du point de vue de la ductilité.*

 - ★ Aucune interaction mécanique n'a été mise en évidence entre la couche d'oxyde et les hydrures pour le matériau dont la microstructure n'avait pas été affectée par le traitement car la réduction de la ductilité par rapport au matériau non oxydé ne dépend pas de la teneur en hydrogène. Mais aucune explication n'a été proposée pour la réduction de ductilité observée indépendamment des hydrures sur le matériau oxydé.*
-

Chapitre -VIII-

Modélisation de la rupture du Zircaloy-4 hydruré

A fin de connaître l'évolution des propriétés mécaniques des éléments de structures, au cours du maintien en réacteur, il est important de disposer de modèles prédictifs de comportement et de rupture. Dans le cadre de cette étude, le modèle doit permettre de calculer les déformations admissibles sur les tubes guides d'un assemblage en fin de vie. Il se limite donc aux sollicitations de traction quasi-statiques. D'autre part, les résultats des Chapitres V, VI et VII ont montré que la précipitation des hydrures était le principal responsable de la fragilisation du matériau. Nous nous limiterons donc au matériau hydruré et à la température ambiante. Cette modélisation constitue une première étape vers une représentation plus complète des vieillissements en réacteur.

Ce chapitre présente le choix d'un modèle de comportement et de rupture ainsi que son utilisation dans un code de calcul par éléments finis. Les paramètres sont identifiés à partir des résultats des Chapitres IV, V et VI. La simulation numérique de la propagation de fissure permet ensuite de fixer la taille de maille. Le modèle est validé sur deux géométries d'éprouvettes contenant des défauts macroscopiques, afin de créer des hétérogénéités de contrainte, déformation et triaxialité. La rupture de ces éprouvettes comporte de plus une phase d'amorçage et de propagation de fissure. Les résultats de la simulation sont comparés aux résultats expérimentaux en termes de lieu de rupture et de courbe charge-déplacement.

Le modèle ainsi construit permet de décrire le comportement anisotrope et la rupture de type ductile du Zircaloy-4 hydruré. Il concerne le matériau dont la teneur en hydrogène est inférieure à la teneur de transition ductile-fragile.

Elasticité linéaire	
	$E = 98000 \text{ MPa}$ $\nu = 0.3$
Plasticité	
$\sigma_{long} = K \cdot \epsilon_{eq}^n$	$n = -1.1964 \cdot 10^{-5} \cdot C_H + 0.1224$ $K = 0.0509 \cdot C_H + 708. \text{ MPa}$
Viscoplasticité	
$\sigma_{eq} = K \cdot \epsilon_{eq}^n + K' \cdot \dot{\epsilon}_{eq}^{1/n'}$	$n' = 4.165$ $K' = 201.53 \text{ MPa} \cdot \text{s}^{1/n'}$
Anisotropie	
$\sigma_{eq} = \sigma_H$	$h_{11} = 0.0103$ $h_{22} = 1.087$ $h_{33} = 1.225$ $h_{12} = 1.000$ $h_{23} = 1.140$ $h_{13} = 1.000$
Germination des cavités	
$f_{germination} = A \cdot \exp(p \cdot p_0)$	$A = 5 \cdot 10^{-5}$ $p_0 = 0.006 \cdot C_H + 5.37$

Tableau VIII.1 : Paramètres du comportement et de l'endommagement du Zircaloy-4 hydruré (C_H = teneur en hydrogène exprimée en ppm). $T = 20^\circ \text{ C}$.

VIII.1 Synthèse Comportement–Endommagement du Zircaloy–4 hydruré

Ce paragraphe regroupe les données expérimentales concernant le comportement et la rupture du Zircaloy–4 hydruré (Tableau VIII.1).

VIII.1.1 Comportement Elasto–Visco–Plastique

(Chapitre IV)

- L'élasticité est linéaire isotrope et caractérisée par un module d'Young et un coefficient de Poisson. Ces valeurs sont considérées comme indépendantes de la teneur en hydrogène (pour la gamme étudiée).
- L'érouissage dans le sens long est décrit de manière phénoménologique. Il est considéré comme isotrope. Cette hypothèse ne permet pas de représenter le caractère cinématique du comportement du zirconium. (Vogel, 1996) montre par exemple la nécessité de prendre en compte l'érouissage cinématique pour modéliser des sollicitations cycliques. Le cadre de notre étude et la portée du modèle se limitent aux sollicitations monotones sans déchargement. Nous avons donc opté pour un modèle de moins grande ampleur mais plus simple à mettre en œuvre.
- La sensibilité à la vitesse de sollicitation est représentée par une loi de type Norton (VIII.1).

$$\dot{\epsilon}_{eq} = \left(\frac{\sigma_{eq} - R(\epsilon)}{K'} \right)^{n'} \quad (\text{VIII.1})$$

Où $R(\epsilon)$ est la limite d'écoulement du matériau déterminée ci-dessus.

VIII.1.2 Anisotropie

(Chapitre IV)

La texture des tôles, combinée au faible nombre des systèmes de glissement dans les hexagonaux, conduit le matériau de l'étude à présenter une plasticité très anisotrope. La direction travers court se différencie fortement des deux autres car elle se déforme assez peu. Les paramètres ne dépendent pas de la teneur en hydrogène (dans la gamme étudiée).

VIII.1.3 Endommagement

(Chapitre VI)

La rupture de ce matériau suit le schéma classique de la rupture ductile. Le mode principal d'endommagement du Zircaloy–4 hydruré est la rupture des hydrures. Deux modes secondaires apparaissent lors du stade final de la rupture. Il s'agit de la rupture des précipités et de la germination de cavités aux joints triples.

La germination des cavités par rupture des hydrures a été caractérisée de manière quantitative. Les mesures ont permis de dégager des lois d'évolution de la porosité effective en fonction de la teneur en hydrogène C_H et de la déformation plastique équivalente p . Aucun effet de la triaxialité n'a pu être mis en évidence.

La forme numérique utilisée pour représenter la germination ne comporte pas de seuil de déformation plastique. On préfère ce type de formulation à une fonction non-continument dérivable (type heaviside), car elle facilite la convergence des calculs. De plus, l'erreur introduite par cette formulation est négligeable car la croissance des cavités reste limitée du fait des faibles triaxialités.

La croissance et la coalescence n'ont pas été étudiées. (Huez et al., 1998; Helbert et al., 1996), qui travaillent sur des alliages de titane, ont montré que les modèles classiques de croissance de cavités du type (Rice et Tracey, 1969) ou (Gurson, 1977) reproduisaient mal ce qui était observé expérimentalement. Ils trouvent aussi que la taille critique des cavités dépend du taux de triaxialité. Ces résultats témoignent de l'importance des études expérimentales pour la compréhension et la modélisation de l'endommagement et de la rupture.

VIII.2 Choix d'un modèle

VIII.2.1 Rappels

Afin de représenter la rupture ductile de manière phénoménologique, il existe plusieurs modèles. Une revue détaillée est proposée par (Rousselier, 1987) et (Bauvineau, 1996). Ces modèles peuvent se décomposer en deux groupes (couplés ou découplés) selon qu'ils tiennent compte ou non de l'adoucissement causé par l'endommagement dans le calcul de la contrainte d'écoulement.

Les modèles découplés (McClintock, 1968; Rice et Tracey, 1969) reposent sur la croissance de cavités dans une matrice supposée incompressible. Les variables décrivant l'endommagement sont calculées a posteriori et permettent l'application d'un critère de rupture (post-processeur). Ces modèles sont rapidement mis en œuvre. Toutefois, ils ne permettent pas de reproduire des phénomènes tels que la localisation de la déformation liée à l'adoucissement du matériau par l'endommagement.

On leur préfère souvent les modèles couplés. Les principaux sont (Lemaitre, 1985), (Rousselier, 1981) et Gurson (Gurson, 1977; Tvergaard, 1981; Tvergaard et Needleman, 1984). Les deux premiers reposent sur une approche thermodynamique. Lemaitre propose un couplage d'état endommagement-élasticité et un couplage d'évolution endommagement-plasticité, Rousselier un couplage endommagement-plasticité. Le modèle de Gurson est phénoménologique avec couplage endommagement-plasticité. Les modèles de Rousselier et de Gurson sont souvent considérés comme donnant des résultats similaires. En fait (Bauvineau, 1996) montre qu'il existe des conditions particulières de triaxialité et d'écroutissage qui permettent de les différencier. Par exemple, pour un coefficient d'écroutissage important ($n = 0.27$), les modèles vont se distinguer pour les faibles triaxialités ($\chi < 1$).

Le potentiel de Gurson, modifié par Tvergaard et Needleman permet de relier physiquement les paramètres du modèle aux variables observables expérimentalement et notamment l'endommagement en termes de densité volumique de cavités. Le nombre de paramètres ajustables peut donc être très réduit (Rivalin, 1998). C'est ce potentiel que nous avons choisi pour représenter le comportement et la rupture du Zircaloy-4 hydruré.

VIII.2.2 Potentiel de Gurson–Tvergaard–Needleman

La forme retenue est celle proposée par (Tvergaard et Needleman, 1984) (VIII.2).

$$\left(\frac{\sigma_{eq}}{\sigma_0}\right)^2 + 2 \cdot q_1 \cdot f_* \cdot \cosh\left(q_2 \cdot \frac{3}{2} \cdot \frac{\sigma_m}{\sigma_0}\right) - 1 - q_3 \cdot f_*^2 = 0 \quad (\text{VIII.2})$$

σ_0 étant la contrainte d'écoulement du matériau sans adoucissement dû à l'endommagement.

(Brunet et al., 1996) puis (Benzerga et al., 1997) ont étendu le modèle à un matériau anisotrope en calculant σ_{eq} comme la contrainte équivalente au sens de Hill (§ VIII.1.2). Le terme $3/2$ dans le \cosh est remplacé par $3/h$. h est calculé grâce à :

$$h = \left[\frac{8}{15}(h_{11} + h_{22} + h_{33}) + \frac{4}{5}(h_{12} + h_{23} + h_{13}) \right]^{\frac{1}{2}} \quad (\text{VIII.3})$$

Avec les coefficients identifiés sur le Zircaloy de l'étude, on trouve $h = 1.996 \simeq 2$ donc $3/h \simeq 3/2$. (Prat et al., 1998) montrent l'importance de la prise en compte de l'anisotropie pour bien reproduire les déformées à rupture. Pour la présente étude, l'introduction de l'anisotropie permet par exemple de reproduire correctement les courbes réduction de largeur–contrainte conventionnelle pour les éprouvettes entaillées.

La porosité est représentée par le paramètre f_* introduit par (Tvergaard et Needleman, 1984) pour tenir compte de l'accélération de l'apparition de cavités lors de la coalescence (Equation VIII.4).

$$f_* = \begin{cases} f & \text{pour } f < f_c \\ f_c + \delta \cdot (f - f_c) & \text{sinon} \end{cases} \quad (\text{VIII.4})$$

f_c représente la porosité critique conduisant à la coalescence, f la porosité totale produite par germination et croissance et δ le terme accélérateur.

Les paramètres q_1 , q_2 et q_3 permettent de rendre compte du fait que la rupture se produit pour des porosités inférieures à 100% (Tvergaard, 1981). La rupture apparaît pour $f_* = 1/q_1$. (Perrin et Leblond, 1990) montrent, par un calcul analytique, que l'on peut utiliser : $q_1 = 4/e \simeq 1.47$, $q_2 = 1$ et $q_3 = q_1^2$.

Sous cette forme, le modèle comporte de nombreux paramètres. Nous allons voir qu'en fait un seul est indéterminé et ajustable.

VIII.2.3 Paramètres fixés

a) Contrainte d'écoulement

σ_0 est la contrainte d'écoulement du matériau sans adoucissement. L'étude de l'endommagement a montré que celui-ci n'apparaissait qu'après 20% de déformation plas-

tique équivalente. Le comportement identifié avant allongement réparti est donc sans adoucissement. On fait ensuite l'hypothèse que ce comportement est le même pour les déformations plus importantes. On écrit donc $\sigma_0 = \sigma_{long}$ (§ VIII.1.1).

b) Porosité f_*

Avant coalescence, la porosité totale peut être calculée comme la somme des deux contributions : la germination de cavités par rupture des hydrures et la croissance de ces cavités par déformation plastique de la matrice (VIII.5).

$$\dot{f} = \dot{f}_{germination} + \dot{f}_{croissance} \quad (\text{VIII.5})$$

Le traitement effectué dans le Chapitre VI a permis de calculer une densité volumique de germination. Ce sont ces lois (§ VIII.1.3) qui sont utilisées dans le calcul.

La croissance des cavités est obtenue par conservation de la masse (VIII.6) :

$$\dot{f}_{croissance} = (1 - f_{croissance}) \cdot tr(\dot{\epsilon}_p) \quad (\text{VIII.6})$$

On remarque que le volume fictif créé par germination n'est pas pris en compte pour le calcul de la croissance. Seule intervient la porosité provenant de la croissance de ces cavités (Devillers-Guerville et al., 1997).

VIII.2.4 Paramètres ajustables

L'utilisation de f_* pour représenter la porosité introduit deux paramètres qui sont f_c et δ . L'identification de ce type de paramètres s'effectue habituellement sur des éprouvettes axisymétriques entaillées (Devaux et al., 1989). Par analogie, nous nous sommes servi des résultats obtenus sur éprouvettes planes entaillées.

a) Coefficient δ

Ce paramètre représente la cinétique de coalescence. Les observations in-situ au MEB ont montré que la coalescence conduisait pratiquement immédiatement à la rupture. Nous avons donc choisi de conserver le paramètre f_* , mais nous avons modifié son expression pour tenir compte du fait que la coalescence conduit simultanément à la rupture. On considère en fait :

$$f_* = \begin{cases} f & \text{pour } f < f_c \\ 1 & \text{ensuite} \end{cases} \quad (\text{VIII.7})$$

b) Porosité critique f_c

Le paramètre f_c correspond à la porosité critique conduisant à la rupture. Pour chaque teneur, on effectue un calcul des géométries entaillées avec le modèle sans valeur de porosité critique afin de déterminer les isovaleurs de porosité totale au cours de l'essai.

Les mesures expérimentales nous donnent la largeur de l'éprouvette lors de l'amorçage de la fissure dans l'entaille. Numériquement, on se place à la même largeur et on peut lire la valeur de la porosité au point de Gauss le plus proche de l'entaille. C'est f_c .

La taille de maille n'a pas, pour ce type d'éprouvettes, une grande influence (voir Annexe A-II). Nous avons donc choisi une taille assez faible pour bien représenter les gradients de contraintes, mais conduisant à des temps de calcul raisonnables ($x_1 = 500 \mu\text{m}$, $x_2 = 250 \mu\text{m}$). La taille de maille étant fixée, on détermine f_c pour chaque teneur. On effectue ensuite une régression sur les valeurs. On trouve $f_c = 0.008 \cdot \exp(-10^{-3} \cdot C_H)$. La fraction critique diminue avec la teneur en hydrogène. Numériquement, le point de Gauss est cassé lorsque $f_* = f_c$. Afin de ne pas avoir à remailler la structure lorsque les points de Gauss sont rompus, on leur associe un comportement infiniment mou et élastique. Leur module d'Young vaut 0.1 MPa et leur coefficient de Poisson est nul.

En résumé

Les paramètres identifiés au cours de ce Chapitre sont récapitulés dans le Tableau VIII.2.

Comportement	
σ_{eq}	$= \sigma_H$
σ_0	$= \sigma_{long}$
Endommagement	
q_1	$\simeq 1.47$
q_2	$\simeq 1.$
q_3	$= q_1^2$
f_c	$= 0.008 \cdot \exp(-10^{-3} \cdot C_H)$

Tableau VIII.2 : Paramètres du modèle de Gurson. (C_H = teneur en hydrogène exprimée en ppm). $T = 20^\circ \text{C}$.

Le domaine d'application de ce modèle est limité par les hypothèses que nous avons posées. Il concerne les sollicitations monotones de traction à température ambiante, les sollicitations quasi-statiques (de 10^{-4} s^{-1} à 10 s^{-1}) et les matériaux hydrurés dont la teneur en hydrogène est inférieure à la teneur de transition ductile fragile ($\simeq 1500 \text{ ppm}$) et supérieure à 200 ppm .

Tous les calculs sont effectués en deux dimensions avec l'hypothèse des contraintes planes dans la troisième direction. Les éléments sont quadratiques à intégration réduite (8 nœuds, 4 points de Gauss). Une formulation en petites déformations avec réactualisation de géométrie, permet de prendre en compte les variations de géométrie tout en gardant le formalisme simple des petites déformations. Les résultats sont similaires en grandes déformations mais les temps de calcul sont nettement plus importants.

VIII.3 Propagation de fissure

VIII.3.1 Rappels

La modélisation numérique de la propagation de fissure repose sur plusieurs hypothèses. On suppose que le mécanisme de rupture en pointe de fissure peut être assimilé au mécanisme classique de la rupture ductile et que l'apparition de l'endommagement est gouvernée par les paramètres usuels. C'est à dire que l'on peut utiliser en pointe de fissure, région de forts gradients, le comportement et l'endommagement du matériau déterminés sur des éprouvettes avec de moins forts gradients de paramètres mécaniques. On suppose donc que la ténacité du matériau découle uniquement du comportement et de l'endommagement du matériau. On suppose aussi qu'il est possible de traiter les phénomènes locaux de la pointe de fissure à l'aide de la Mécanique de Milieux Continus.

Le problème est que le champ de contraintes en pointe de fissure n'est pas déterminé. Aucune expression analytique n'est disponible pour les matériaux viscoplastiques endommageables. Numériquement, les champs dépendent de la taille de maille et du comportement du matériau. (Besson, 1998) montre qu'en diminuant la taille de maille à l'infini, l'amorçage de la fissure aura lieu pour une charge nulle. Les résultats obtenus par (Liu et al., 1994) montrant que la taille de maille n'a pas d'influence sur la propagation sont à utiliser avec précaution. Il semble en fait que les différences entre les résultats obtenus avec différentes tailles de mailles soit moins importantes lors de la propagation que lors de l'amorçage.

(D'Escatha et Devaux, 1979; Rousselier, 1986) proposent de considérer la taille de maille comme un paramètre matériau. Fixer ce paramètre revient donc à fixer l'allure du champ de contrainte. Pratiquement, étant donné qu'il n'existe pas d'expression analytique approchée de ce champ pour les milieux poreux, cette approche permet de proposer un champ de contrainte approché numérique, dépendant du comportement plastique du matériau. On suppose donc qu'il existe une représentation donnant, pour le modèle utilisé, une bonne corrélation avec l'expérience.

VIII.3.2 Effet de la taille de maille

Les résultats qui suivent concernent l'application de cette procédure au Zircaloy-4 hydruré. Une première série de calculs est effectuée avec la taille de maille utilisée sur les éprouvettes entaillées ($500 \mu\text{m} \times 250 \mu\text{m}$). Ces calculs permettent de comprendre d'où proviennent les divergences entre le modèle et l'expérience. Il montrent aussi la nécessité d'ajuster la taille de maille.

a) Maillage

Le maillage de l'éprouvette CCP est présenté Figure VIII.1. Une demie éprouvette est représentée. Seule la longueur utile est maillée (60 mm). (Devillers-Guerville, 1998) montre qu'il est important de ne pas effectuer de symétrie suivant le plan de propagation de la fissure, car l'énergie nécessaire pour rompre un point de Gauss est alors doublée (par symétrie, il faut rompre en fait deux points de Gauss).

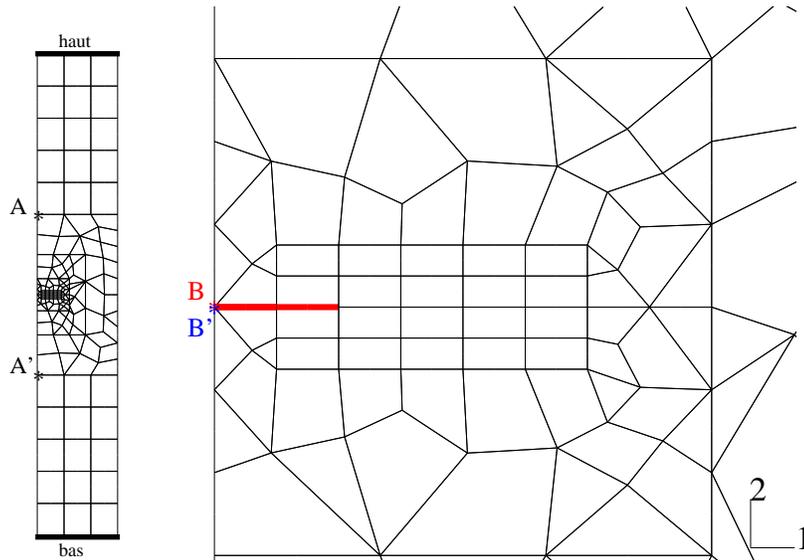


Figure VIII.1 : Maillage $500\ \mu\text{m} \times 250\ \mu\text{m}$ et agrandissement de la zone de propagation. La fissure initiale apparaît en gras.

b) Conditions de calcul

Le déplacement est imposé aux nœuds du haut et du bas afin de reproduire les conditions de sollicitation expérimentales (vitesse de déformation de 10^{-4}s^{-1}). Les nœuds du bord gauche sont bloqués suivant la direction 1. La fissure initiale (en gras) a une longueur d'1 mm. La taille de maille est maintenue constante sur une longueur de 2 mm en avant de la pointe initiale de la fissure. On cherche en effet à reproduire la fissuration sur les premiers millimètres. Cette taille de maille est conservée pour les éléments situés en arrière de la pointe de fissure car ils permettent de contrôler l'émoussement numérique (Devillers-Guerville et al., 1997).

c) Paramètres observés

On relève le déplacement des points A et A' espacés de 20 mm et situés de part et d'autre de la fissure. La demi longueur de fissure est calculée comme la distance entre la pointe de fissure (point de gauss) et l'axe central. Ce calcul tient compte de la déformation de la structure (déplacement des nœuds). Par contre, la simulation numérique ne reproduit pas le phénomène d'émoussement de la fissure comme décrit sur la Figure V.13, page 92. Numériquement, l'émoussement de la fissure ne conduit pas à son avancée. Il n'est donc pas nécessaire de retrancher l'émoussement lors du calcul de la longueur de fissure.

On note aussi la distance entre les nœuds B et B' , confondus au début de l'essai, lorsque le premier point de Gauss en avant de la fissure est rompu. Elle correspond à l'ouverture de la fissure lors de l'amorçage. Elle est comparée aux rayons d'émoussement déterminés expérimentalement.

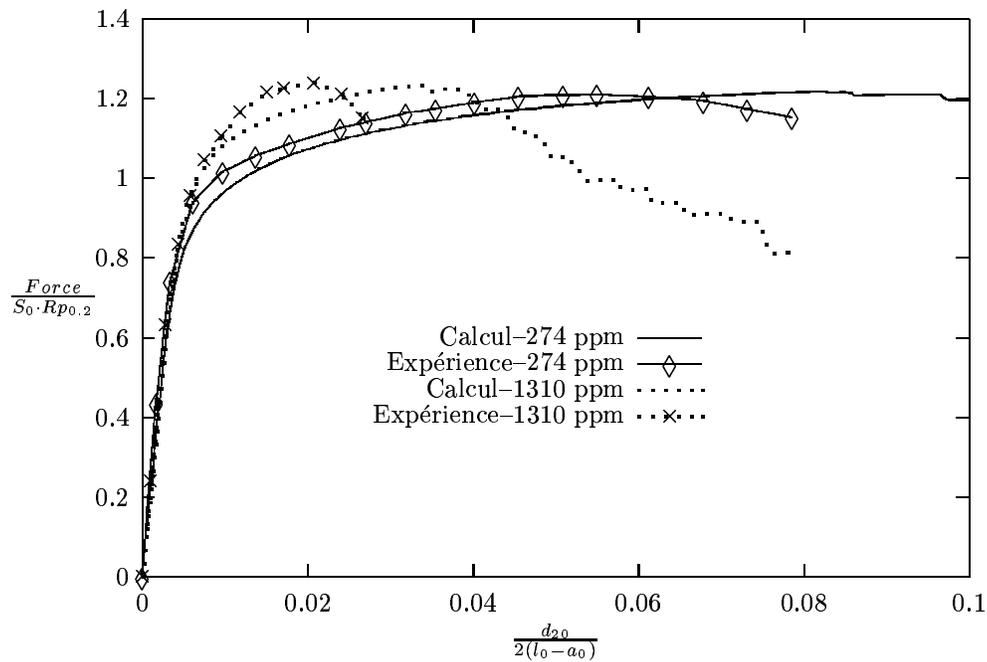


Figure VIII.2 : Courbes de chargement numériques comparées à l'expérience. Mailles $500 \times 250 \mu m^2$.

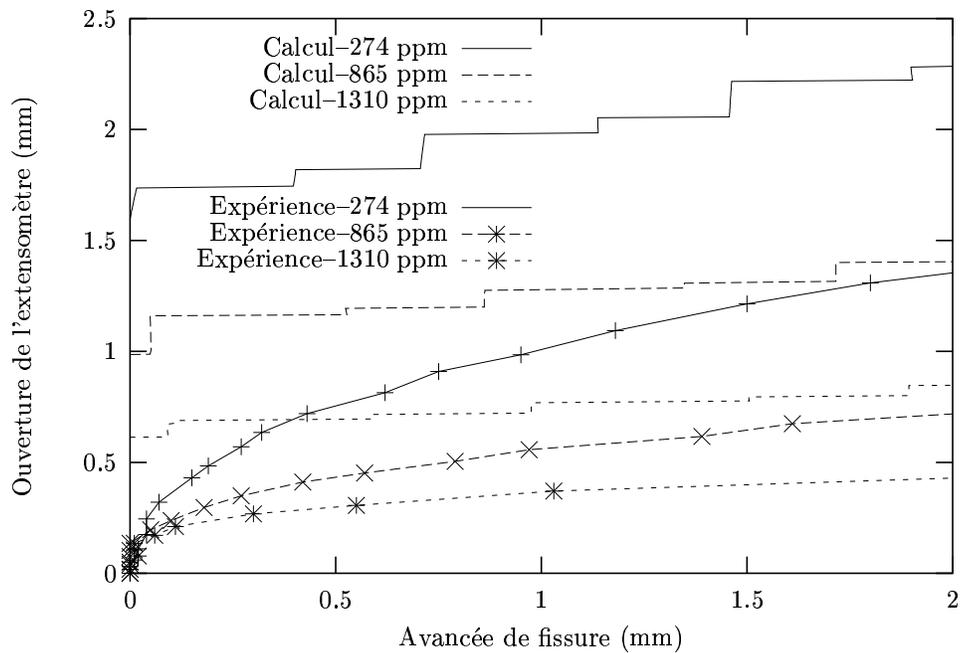


Figure VIII.3 : Courbes $d_{20} - \Delta a$ numériques comparées à l'expérience. Mailles $500 \times 250 \mu m^2$.

d) Résultats

La Figure VIII.2 montre les courbes de chargement obtenues pour deux teneurs (274 et 1310 ppm) comparées aux courbes expérimentales. On remarque que la simulation reproduit assez mal ce qui est observé expérimentalement. Les courbes numériques sont décalées vers les grandes déformations par rapport aux courbes expérimentales. Le calcul surestime donc la ductilité des éprouvettes. Seule la tendance entre les teneurs est respectée.

Les courbes de propagation ($d_{20} - \Delta a$, Figure VIII.3) montrent effectivement que l'ouverture de l'extensomètre lors de l'amorçage de la fissure est largement surestimée par le calcul (Tableau VIII.3). L'amorçage numérique se produit lorsque le point de Gauss en avant de la fissure a atteint la déformation plastique équivalente critique ou la porosité critique, ce qui est pratiquement équivalent pour ce modèle. Plus la taille de maille est grande, plus le volume de ce point de Gauss est important. L'énergie à fournir pour plastifier ce volume jusqu'à la déformation critique sera donc d'autant plus élevée.

Pour la taille de maille utilisée, la déformation avant amorçage de l'éprouvette est tellement importante, que lorsque le premier point de Gauss est rompu, les autres sont déjà largement plastifiés. La Figure VIII.4 présente le champ de déformation en avant de la fissure à l'instant précédant la rupture du premier point de Gauss pour une teneur de 274 ppm. Le ligament en avant de la fissure a déjà atteint 10% de déformation plastique équivalente. La propagation de la fissure, c'est à dire la rupture du deuxième point de Gauss nécessite alors moins de déformation macroscopique. Ceci explique pourquoi le paramètre d_{p1} est fortement sous-estimé. L'erreur commise sur ce paramètre est d'autant plus importante que la teneur en hydrogène est faible.

La taille de maille utilisée ne permet pas de bien reproduire l'échelle des hétérogénéités observées expérimentalement. (Pineau, 1981) montre qu'effectivement la déformation est très intense en avant de la fissure lors de l'éroussissement. On remarque bien que les lobes plastiques déterminés numériquement sont très étendus (Figure VIII.5-a, teneur de 1310 ppm). Or, expérimentalement, la déformation avant amorçage est beaucoup plus confinée (Figure VIII.5-b).

	Teneur (ppm)	$\rho_c(\mu m)$	$d_c(mm)$	$d_1(mm)$	$d_{p1}(mm)$
C2LEBB22	274	45.	0.35	1.05	0.70
Numérique	274	420.	1.55	1.98	0.43
C2LEDB24	865	24.	0.19	0.57	0.38
Numérique	865	255.	0.99	1.28	0.29
C2LEEH2	1310	14.	0.16	0.36	0.20
Numérique	1310	164.	0.61	0.77	0.16

Tableau VIII.3 : Ouverture de l'extensomètre à l'amorçage et à la propagation déterminées numériquement comparées aux ouvertures expérimentales. Mailles $500 \times 250 \mu m^2$.

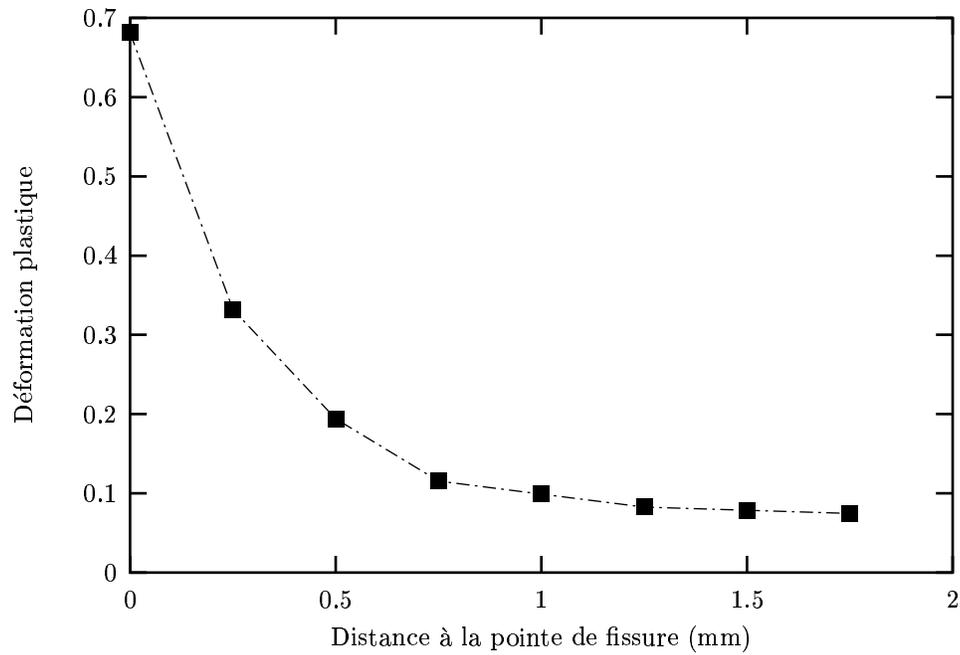


Figure VIII.4 : Evolution de la déformation plastique équivalente aux nœuds en avant de la pointe de la fissure. 274 ppm, maille $500 \times 250 \mu\text{m}^2$.

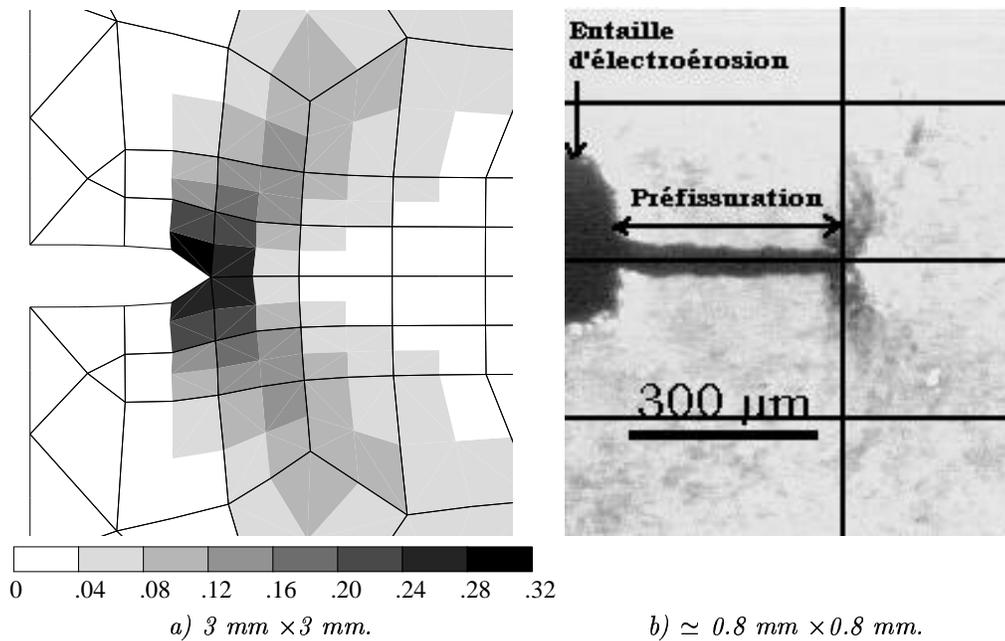


Figure VIII.5 : a) Calcul : déformation plastique équivalente en avant de la fissure juste avant l'amorçage, (mailles $500 \times 250 \mu\text{m}$). b) Expérience, les mailles utilisées pour le calcul sont représentées sur la photographie. 1310 ppm.

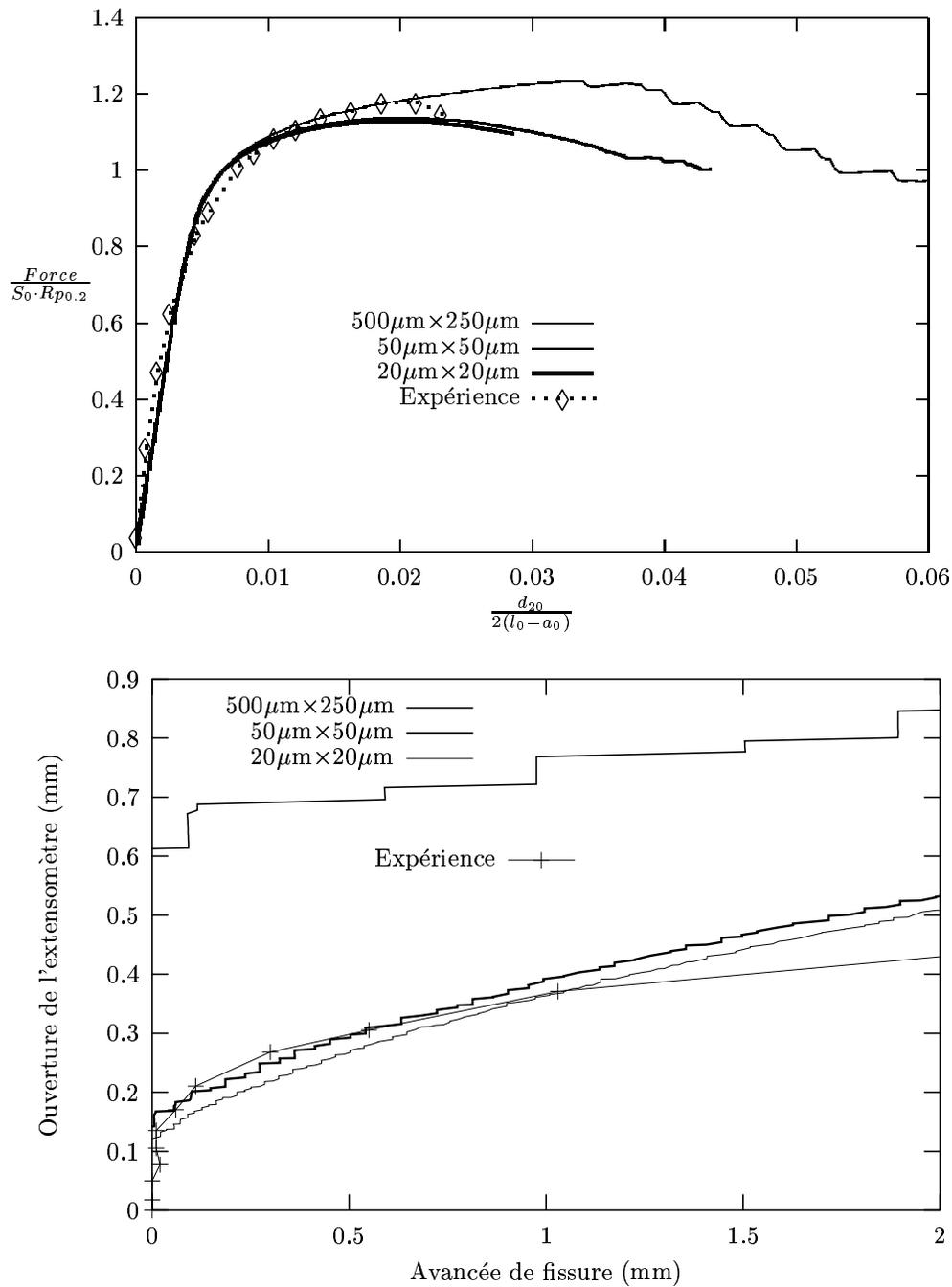


Figure VIII.6 : Courbes numériques de chargement et de propagation pour différentes tailles de maille, comparées à l'expérience. 1310 ppm, mailles $500 \times 250 \mu\text{m}^2$, $50 \times 50 \mu\text{m}^2$ et $20 \times 20 \mu\text{m}^2$.

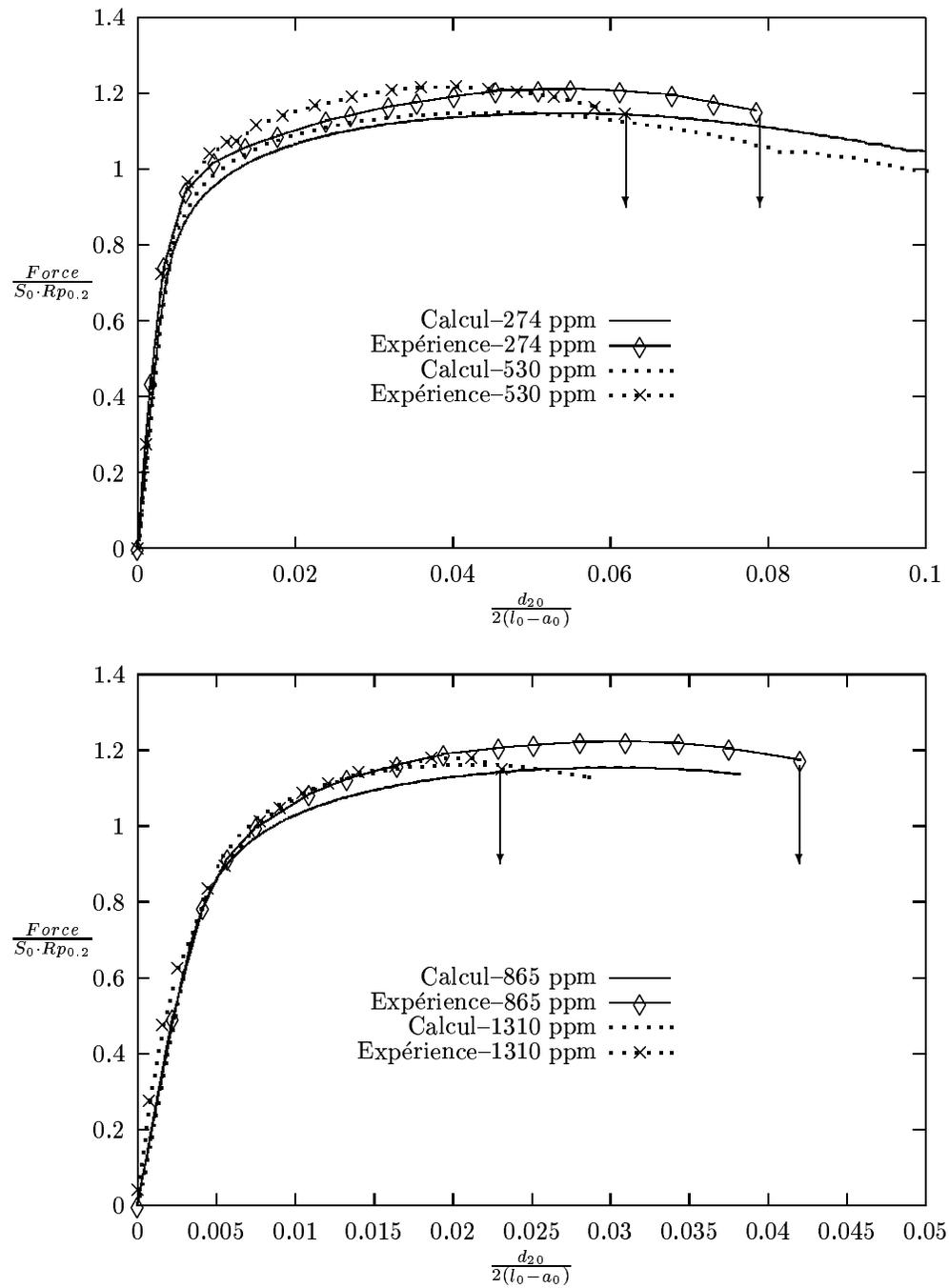


Figure VIII.7 : Courbes numériques de chargement comparées à l'expérience (Mailles $50 \times 50 \mu m^2$).

VIII.3.3 Identification de la taille de maille

a) Identification

Nous avons donc cherché à identifier une taille de maille permettant de mieux reproduire les expériences. L'identification s'effectue tout d'abord sur une teneur, la plus élevée (1310 ppm), car la déformation à rupture est plus faible. Le temps de calcul est donc réduit.

La diminution de la taille de maille permet de faciliter l'amorçage – et la propagation – de la fissure, en confinant de plus en plus la plasticité en pointe de fissure. Les courbes de chargement et de propagation obtenues pour les différentes tailles testées sont présentées sur la Figure VIII.6.

La diminution de la taille de maille permet de décaler les courbes de chargement vers la gauche et de réduire l'ouverture de l'extensomètre à l'amorçage. Les calculs effectués avec une taille de maille de $50 \times 50 \mu\text{m}^2$ donnent des résultats plus proches de l'expérience, au moins pour les premiers stades de la fissuration. Nous avons donc choisi de travailler avec cette taille de maille ($50 \times 50 \mu\text{m}^2$).

b) Résultats

Les autres teneurs sont calculées avec cette taille de maille. Les courbes de chargement obtenues pour les différentes teneurs sont présentées sur la Figure VIII.7. Les courbes de chargement numériques fournissent une bonne représentation de l'expérience.

Sur les courbes d'ouverture de l'extensomètre en fonction de l'avancée de fissure (Figure VIII.8), la partie expérimentale avant amorçage réel n'est pas modélisée. Elle correspond à l'émoussement de la fissure. Par contre, après amorçage, les courbes expérimentales sont correctement reproduites.

Les résultats en termes d'ouverture de l'extensomètre à l'amorçage et à la propagation sont présentés Figure VIII.9 (Tableau VIII.4). La taille de maille ajustée permet de bien corréler les calculs et l'expérience, pour toutes les teneurs.

Une dernière comparaison a porté sur les angles d'ouverture de la fissure (Figures VIII.10 et VIII.11). Le calcul permet de reproduire le fait que cet angle diminue lorsque la teneur en hydrogène augmente. On retrouve le résultat obtenu par (Lautridou, 1980) qui dit que plus le matériau s'endommage rapidement, plus l'angle d'ouverture est petit.

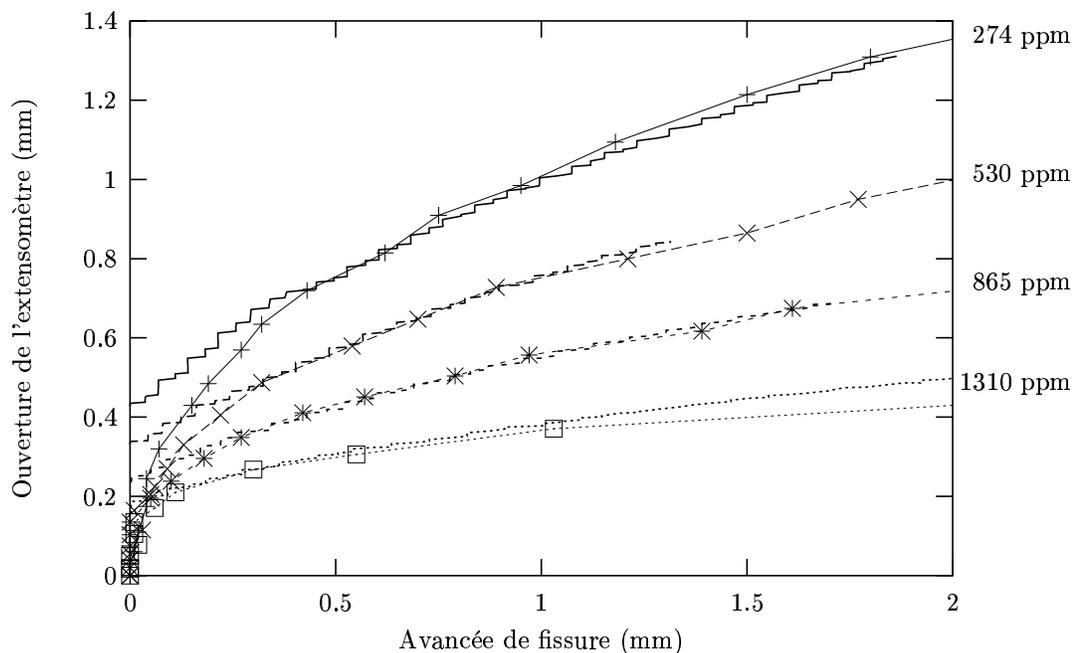


Figure VIII.8 : Courbes numériques de propagation comparées à l'expérience (courbes avec des symboles, mailles $50 \times 50 \mu\text{m}^2$).

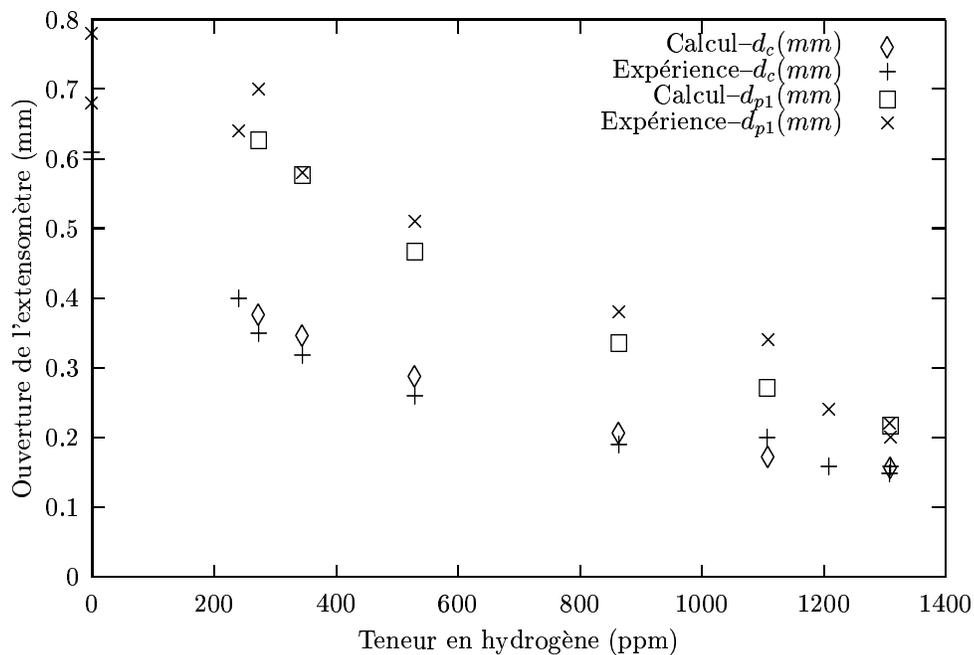


Figure VIII.9 : Evolution de d_c et d_{p1} avec la teneur en hydrogène, comparaison entre le calcul et l'expérience (Mailles $50 \times 50 \mu\text{m}^2$).

	Teneur (ppm)	$\rho_c(\mu m)$	$d_c(mm)$	$d_1(mm)$	$d_{p1}(mm)$
C2LEBB22	274	45.	0.35	1.05	0.70
Numérique	274	85.	0.38	1.01	0.63
C2LECH42	346	57.	0.32	0.90	0.58
Numérique	346	77.	0.35	0.93	0.58
C2LECB42	530	41.	0.26	0.77	0.51
Numérique	530	63.	0.29	0.76	0.47
C2LEDB24	865	24.	0.19	0.57	0.38
Numérique	865	42.	0.21	0.55	0.34
C2LEDH24	1109	20.	0.20	0.54	0.34
Numérique	1109	34.	0.175	0.45	0.275
C2LEEB5	1309	15.	0.15	0.37	0.22
C2LEEH2	1310	14.	0.16	0.36	0.20
Numérique	1310	30.	0.16	0.38	0.22

Tableau VIII.4 : Rayon d'émoussement (ρ_c) et ouverture de l'extensomètre à l'amorçage et à la propagation déterminés numériquement comparés aux valeurs expérimentales. Mailles $50 \times 50 \mu m^2$.

VIII.3.4 Remarques

Il semble donc possible de simuler numériquement la propagation de fissure en ajustant une taille de maille. Cette méthode permet de calculer les courbes de chargement et l'ouverture de l'extensomètre à l'amorçage et à la propagation. Les déformées à rupture et la taille des lobes plastiques sont aussi assez bien décrites.

Si on remarque que $50 \times 50 \mu m^2$ est une taille de maille relativement faible (elle correspond au volume de 25 grains), on peut se demander si, à cette échelle, la mécanique des milieux continus reste applicable. On ne peut donc pas prétendre représenter les phénomènes locaux du type champ de déformation, endommagement, coalescence... On ne cherchera pas non plus à en déduire des particularités du matériau concernant un volume minimum représentatif en relation avec la microstructure.

La ténacité (résistance à la fissuration) ne peut donc pas être déterminée directement à partir du comportement et de l'endommagement, car elle dépend aussi de la taille de maille dans ce type de modèles.

Afin d'affiner la modélisation, les éprouvettes entaillées sont calculées avec cette nouvelle taille de maille (Annexe A-II). Les valeurs de f_c déterminées sont peu différentes des précédentes ($f_c = 0.009 \cdot \exp(-10^{-3} \cdot C_H)$). Elles ne modifient pas la bonne corrélation obtenue entre le calcul et l'expérience pour la taille de maille choisie.

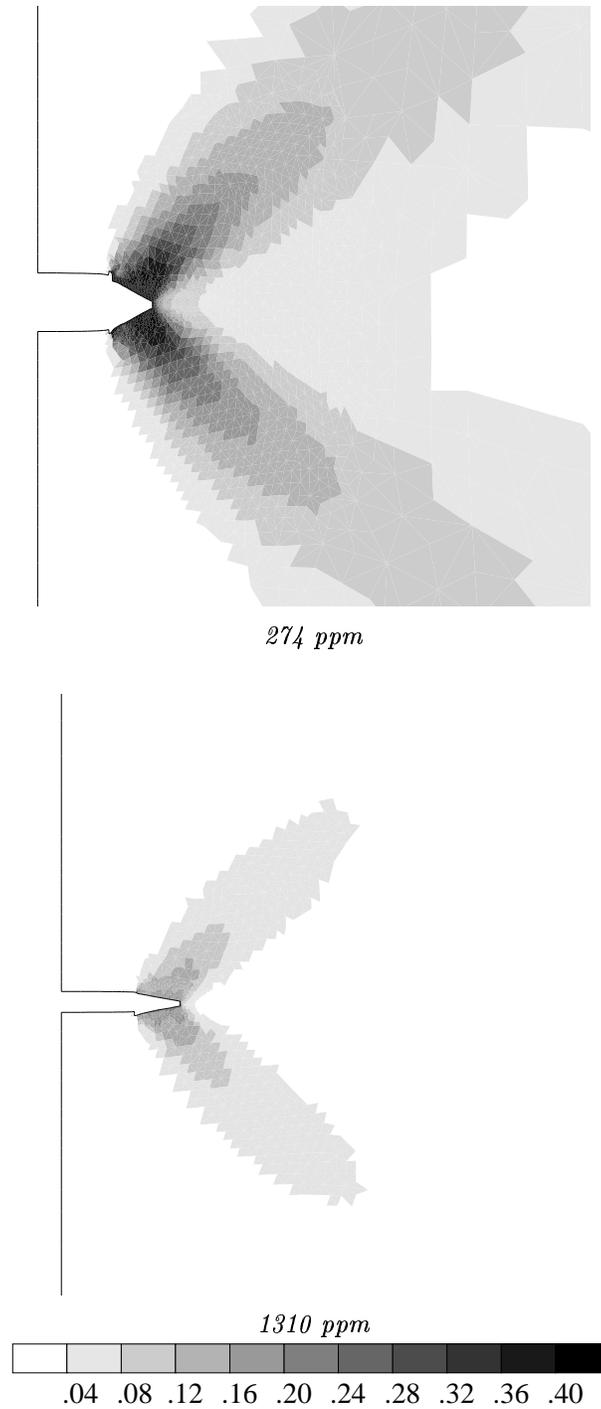
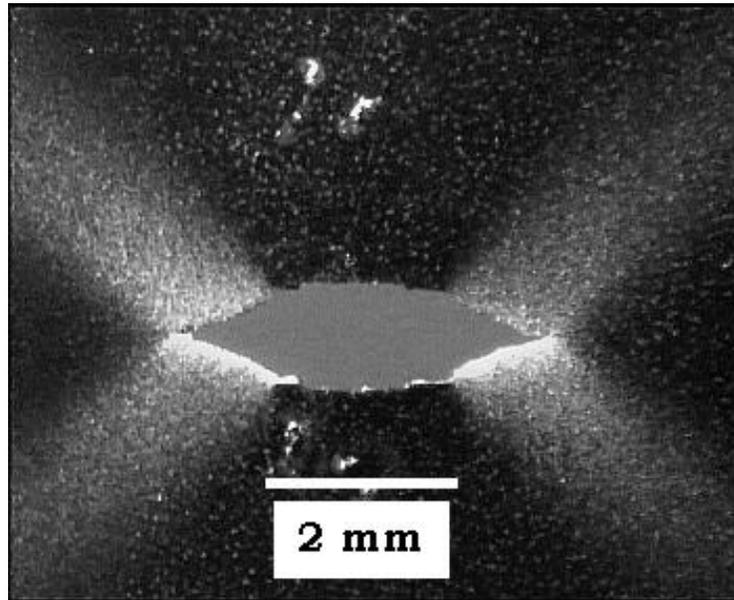
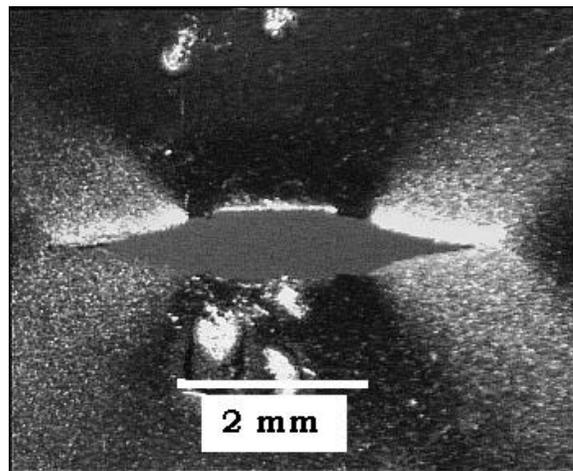


Figure VIII.10 : Angles d'ouverture de la fissure déterminés numériquement après 1 mm de propagation. Isovaleurs de déformation plastique équivalente. Les éléments dont une partie des points de Gauss est rompue ne sont pas représentés. Mailles $50 \times 50 \mu\text{m}^2$.



274 ppm (C2LEBB22)



1310 ppm (C2LEEH2)

Figure VIII.11 : *Angles d'ouverture constatés expérimentalement après 2 à 3 mm de propagation.*

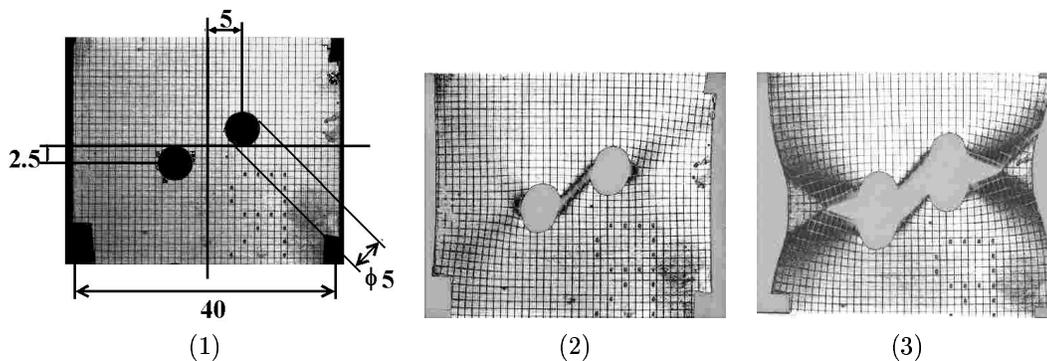


Figure VIII.12 : Déroulement de l'essai, pour une teneur de 361 ppm (C2B12C1). Géométrie 1 (Cotes en mm).

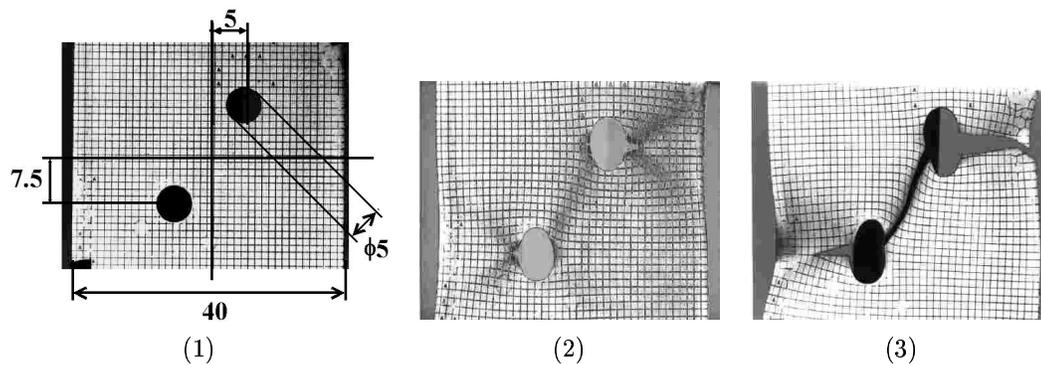


Figure VIII.13 : Déroulement de l'essai, pour une teneur de 312 ppm (C2B12C2). Géométrie 2 (Cotes en mm).

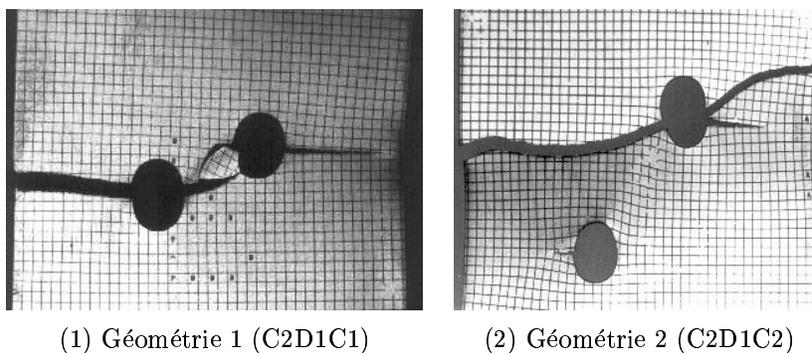


Figure VIII.14 : Ruptures dissymétriques observées pour les fortes teneurs en hydrogène.

VIII.4 Application à une structure

Afin de valider le modèle, deux géométries complexes incluant amorçage et propagation de fissure ont été testées expérimentalement puis simulées à l'aide du modèle de Gurson.

VIII.4.1 Description des essais

Les deux géométries sont présentées sur les Figures VIII.12 et VIII.13. Les trous ont été usinés par fraisage. Pour la première, les trous sont rapprochés et susceptibles d'interagir. Pour la seconde, ils sont éloignés. L'interaction sera plus faible.

Ces géométries ont été testées sur le matériau de l'étude (Coulée 2) dans le sens long et pour des teneurs variant de 0 à 960 ppm.

Les éprouvettes ne comportant pas de têtes, elles ont été collées à leurs extrémités entre deux plaques de duralumin perforées pour être fixées avec une goupille. Ce système de fixation permet d'aligner les plaques et évite des ruptures parasites dans les têtes (observées pour des fixations par mors). La longueur utile est d'environ 60 mm pour une longueur totale de 100 mm.

Les plaques sont sollicitées en déplacement sur la machine Zwick utilisée pour les essais de caractérisation du comportement (Chapitre IV). La vitesse de déformation, calculée sur la longueur utile, est fixée à 10^{-3} s^{-1} , ce qui correspond à une vitesse de déplacement du vérin de $v_v = 3.6 \text{ mm/min}$.

La déformation axiale est relevée grâce à un extensomètre de base $L_0 \simeq 50 \text{ mm}$. Des grilles d'un pas d'1 mm ont été déposées sur la surface. Les essais sont interrompus régulièrement afin d'effectuer une photographie de la surface. Ceci permet de visualiser la répartition de la déformation dans l'éprouvette. Les essais sont réalisés à température ambiante.

VIII.4.2 Résultats

a) Déroulement de l'essai

Géométrie 1 (Figure VIII.12 (1)) : la déformation plastique se concentre au bord des trous conduisant à la fissuration de ces zones. Les trous étant proches, la fissure se propage tout d'abord dans le ligament central, qui rompt (2). Le ligament latéral se fissure et rompt ensuite (3). Lorsque la teneur en hydrogène augmente, la propagation de la fissure devient de plus en plus rapidement instable. Pour certaines éprouvettes, la rupture est dissymétrique (Figure VIII.14 (1)).

Géométrie 2 (Figure VIII.13 (1)) : cette fois, c'est le ligament latéral qui se fissure en premier (2) car les trous sont éloignés. La rupture de celui-ci conduit à la rupture de l'éprouvette (3). L'effet de l'hydrogène est identique à celui observé sur la première géométrie (Figure VIII.14 (2)).

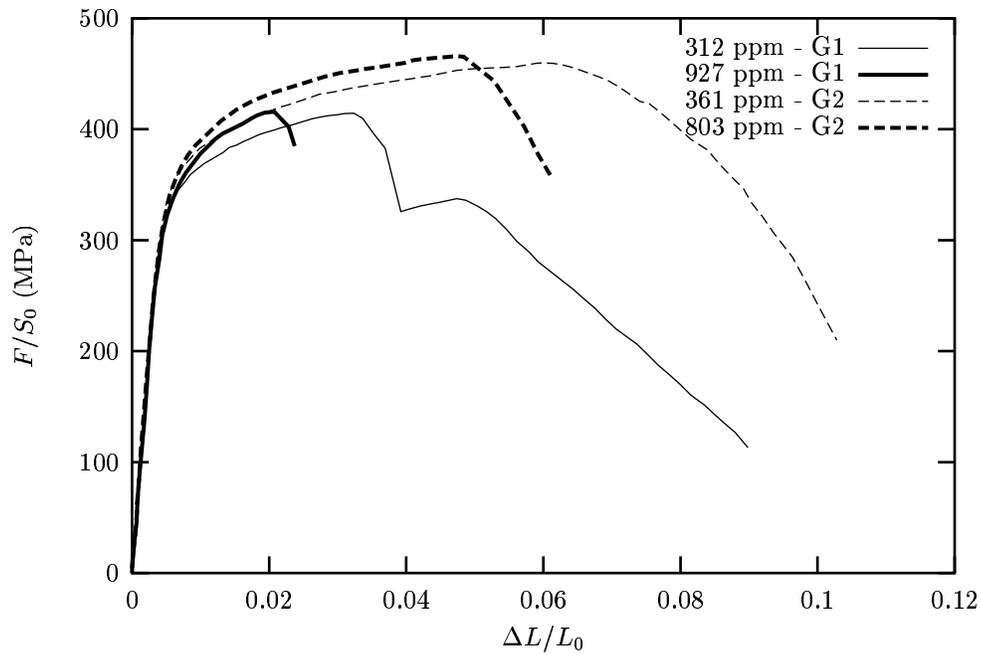


Figure VIII.15 : Courbes Force/ S_0 – $\Delta L/L_0$ pour les deux géométries et deux teneurs en hydrogène.

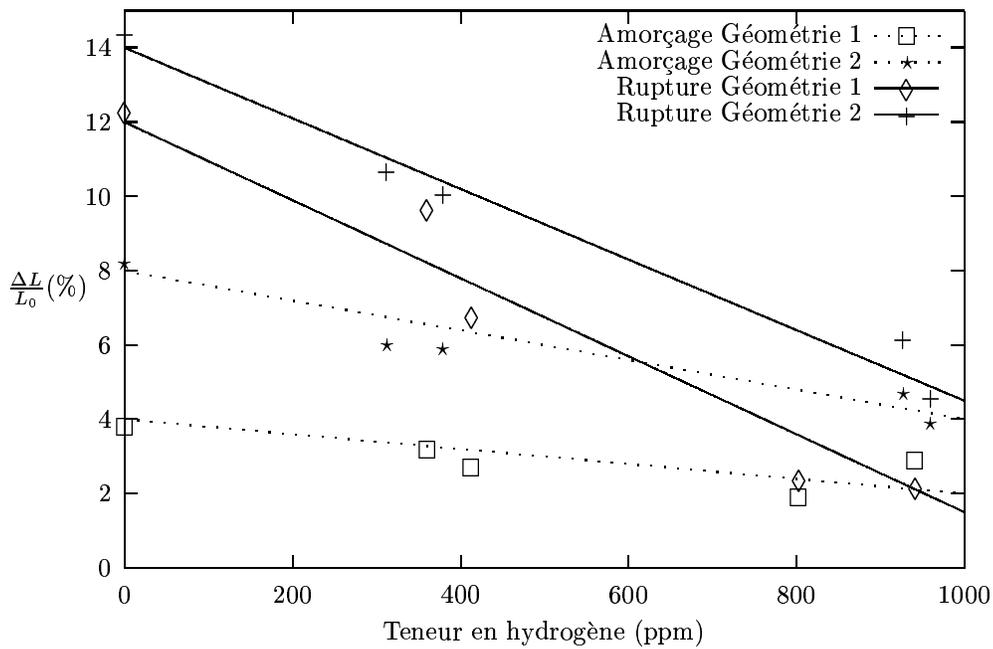


Figure VIII.16 : Evolution des allongements ($\Delta L/L_0$ en % sur une base de 50 mm) relevés lors de l'amorçage et après rupture pour les deux géométries en fonction de la teneur en hydrogène.

b) Courbes Force–Déplacement

Les essais sont analysés au travers de courbes Force/ $S_0-\Delta L/L_0$. S_0 est la section portante des plaques qui ne tient pas compte de la présence des trous et L_0 la base de mesure de l'extensomètre.

La Figure VIII.15 présente l'allure de ces courbes pour les deux géométries et deux teneurs en hydrogène. On retrouve les caractéristiques de chaque essai. La chute brutale de charge observée sur la géométrie 1 pour les faibles teneurs correspond à la rupture du ligament central. Elle disparaît lorsque la teneur en hydrogène augmente, car la rupture instable finale se produit avant la rupture du ligament central. Pour la seconde géométrie, la perte de charge est régulière et témoigne de la propagation stable de la fissure. Cette partie est réduite lorsque la teneur en hydrogène augmente.

La Figure VIII.16 présente les allongements ($\Delta L/L_0$) relevés à l'amorçage et à la rupture (Tableau VIII.5). L'augmentation de la teneur en hydrogène conduit à de fortes réductions de ces paramètres. La géométrie 1 s'avère plus critique du point de vue de la rupture.

Géométrie 1				
Eprouvette	Teneur (ppm)	$A_{fis}(\%)$	$A_{tot}(\%)$	R_m (MPa)
C2LC1	0	3.8	12.3	475.
C2B12C1	361	3.2	9.7	473.
C2C35C1	413	2.7	6.8	480.
C2D1C1	803	1.9	2.4	475.
C2E30C1	942	1.9	2.2	488.

Géométrie 2				
Eprouvette	Teneur (ppm)	$A_{fis}(\%)$	$A_{tot}(\%)$	R_m (MPa)
C2LC2	0	8.2	14.4	513.
C2B12C2	312	6.0	10.7	526.
C2C35C2	379	5.9	10.1	528.
C2D1C2	927	4.7	6.2	534.
C2E30C2	960	3.9	4.6	543.

Tableau VIII.5 : Allongements lors de l'amorçage de la première fissure et allongements totaux (mesurés sur la base de l'extensomètre). Charges maximales calculées sur la section minimale (prise en compte des trous). Plaques trouées sens long.

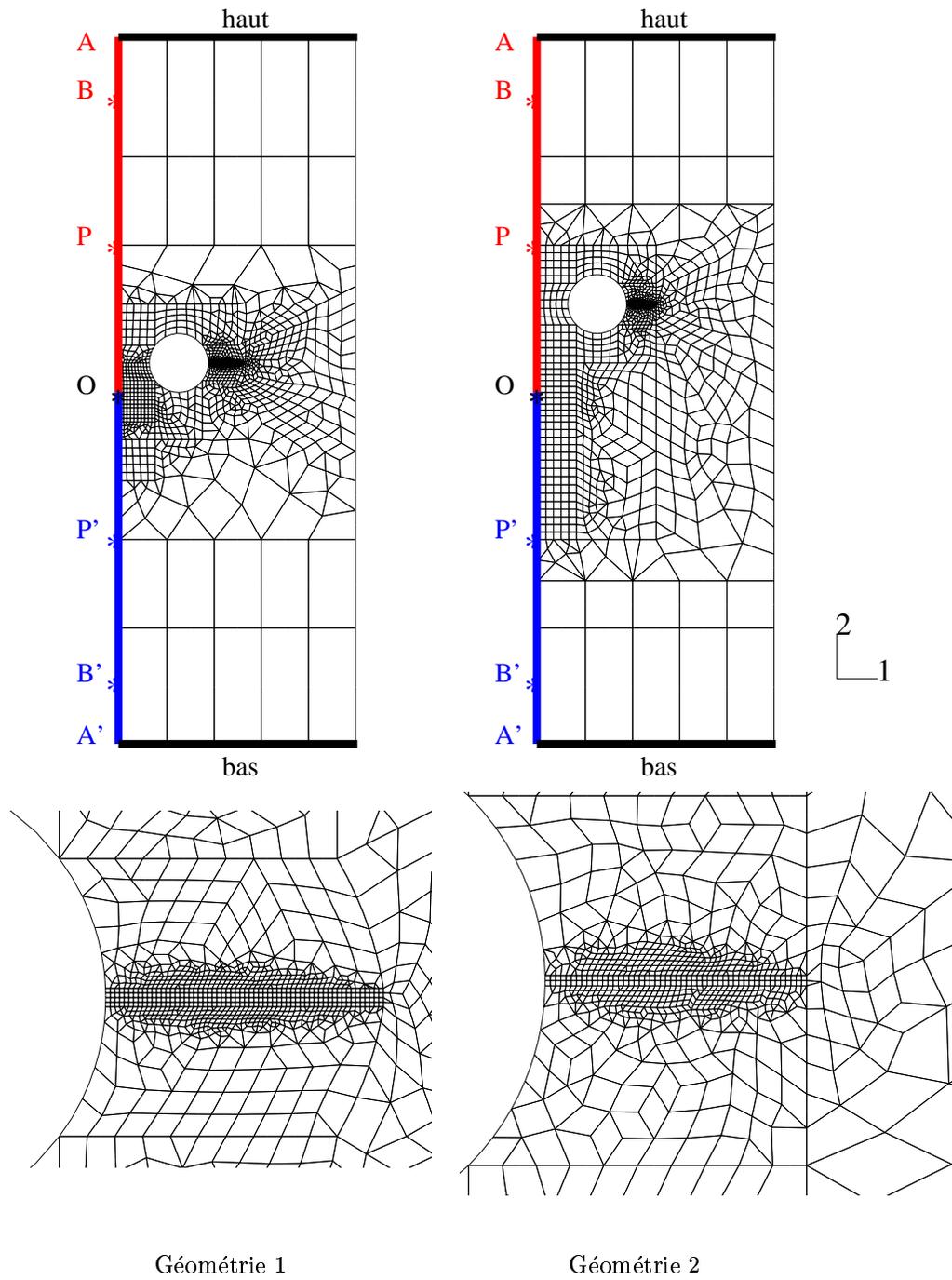


Figure VIII.17 : Maillages des plaques trouées. Agrandissement du ligament latéral.

VIII.4.3 Simulation

a) Conditions de calcul

Les maillages sont présentés Figure VIII.17. La taille de maille est fixée à partir des résultats du § VIII.3. Elle est constante et vaut $50 \mu\text{m}$ dans les zones de propagation de fissure. En dehors, elle est augmentée jusqu'à $500 \mu\text{m}$ afin de réduire la taille du calcul. Pour la géométrie 1, le centre de l'éprouvette n'est pas maillé aussi finement, car la taille du calcul devient alors trop importante.

Seule la longueur utile (60 mm) est maillée. Une demi éprouvette est représentée grâce à une relation d'antisymétrie des déplacements le long de l'axe AA' autour du point central O . Si un point $P (x_1 = 0, x_2)$ situé sur le ligament supérieur a un déplacement (u_1, u_2) , le point image $P' (x_1 = 0, -x_2)$ situé sur le ligament inférieur aura un déplacement $(-u_1, -u_2)$.

Le calcul s'effectue en imposant un déplacement suivant l'axe 2 aux nœuds du haut ($u_2(t) = v_v/60/2 \cdot t = 0.03 \cdot t$) et du bas de la plaque ($-u_2(t) = -0.03 \cdot t$). Les nœuds situés à l'intersection de l'axe et des têtes (A et A') sont bloqués suivant la direction 1. Les calculs sont menés jusqu'à rupture complète (ou presque) de la structure.

b) Mode de rupture

L'aspect des éprouvettes rompues numériquement est présenté sur les Figures VIII.18 et VIII.19 pour deux teneurs en hydrogène. Les calculs permettent de reproduire correctement le processus de rupture jusqu'à l'apparition de la rupture instable. Au delà, la dissymétrisation et la propagation brutale ne sont pas représentées.

La fissure bifurque dans les lobes plastiques lorsqu'elle sort de la zone maillée à $50 \times 50 \mu\text{m}^2$. Des calculs effectués avec une taille de maille constante dans le ligament ont montré que la fissure ne bifurque qu'en toute fin de propagation (Besson, 1998).

Cette première convergence entre le calcul et l'expérience constitue une validation de la loi d'endommagement, puisque celle-ci permet de reproduire correctement le chemin de fissuration. Cela semble confirmer que les variations de triaxialité ont une influence assez faible sur l'endommagement (pour des sollicitations uniaxiales).

c) Courbes Force-Déplacement

Les déplacements des nœuds B et B' permettent de calculer $\Delta L/L_0$. Ils sont distants de 50 mm, ce qui correspond à la base de l'extensomètre expérimental.

La comparaison entre le calcul et l'expérience est présentée sur les Figures VIII.20 et VIII.21 pour les deux géométries. Les calculs sont arrêtés lorsque la fissure sort de la zone maillée finement. Les courbes numériques sont donc tronquées.

La simulation reproduit très correctement l'expérience en ce qui concerne la contrainte et l'ouverture de l'extensomètre aussi bien pour l'amorçage de la fissure que pour sa propagation.

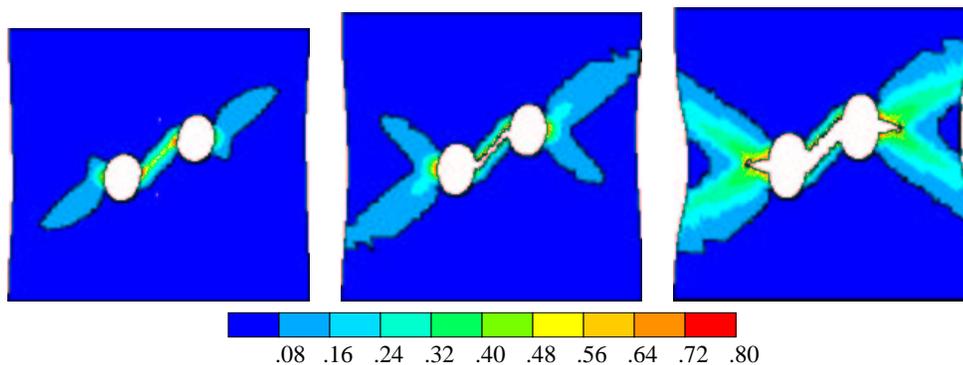


Figure VIII.18 : Déroulement numérique de l'essai, pour une teneur de 274 ppm. Géométrie 1. Isovaleurs de déformation plastique équivalente (Mailles $50 \times 50 \mu\text{m}^2$).

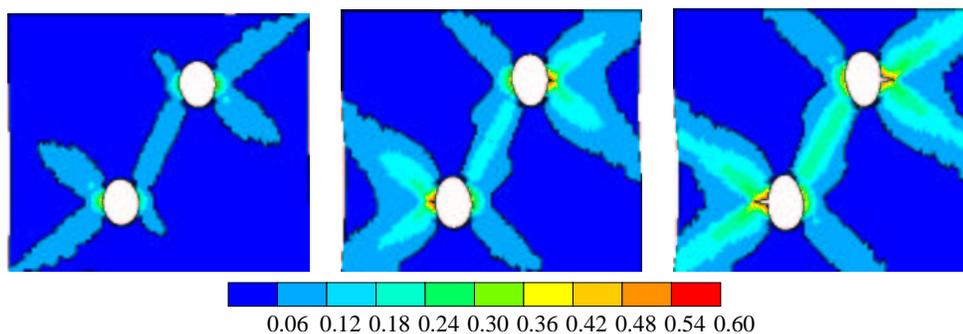


Figure VIII.19 : Déroulement numérique de l'essai, pour une teneur de 380 ppm. Géométrie 2. Isovaleurs de déformation plastique équivalente (Mailles $50 \times 50 \mu\text{m}^2$).

D'autres calculs de ces géométries ont été effectués avec une taille de maille d'environ $1 \times 1 \text{ mm}^2$ (Grange et al., 1997a; Grange, 1998). La comparaison entre les deux séries de simulations permet de tirer les conclusions suivantes :

- la taille de maille dans le ligament central a peu d'influence sur l'évolution macroscopique de la rupture,
- l'utilisation d'une taille de maille adaptée est nécessaire pour bien représenter la fissuration du ligament latéral, pour les deux géométries,
- la réduction de la taille de maille permet de rendre moins abrupts les changements de pentes lors de la fissuration.

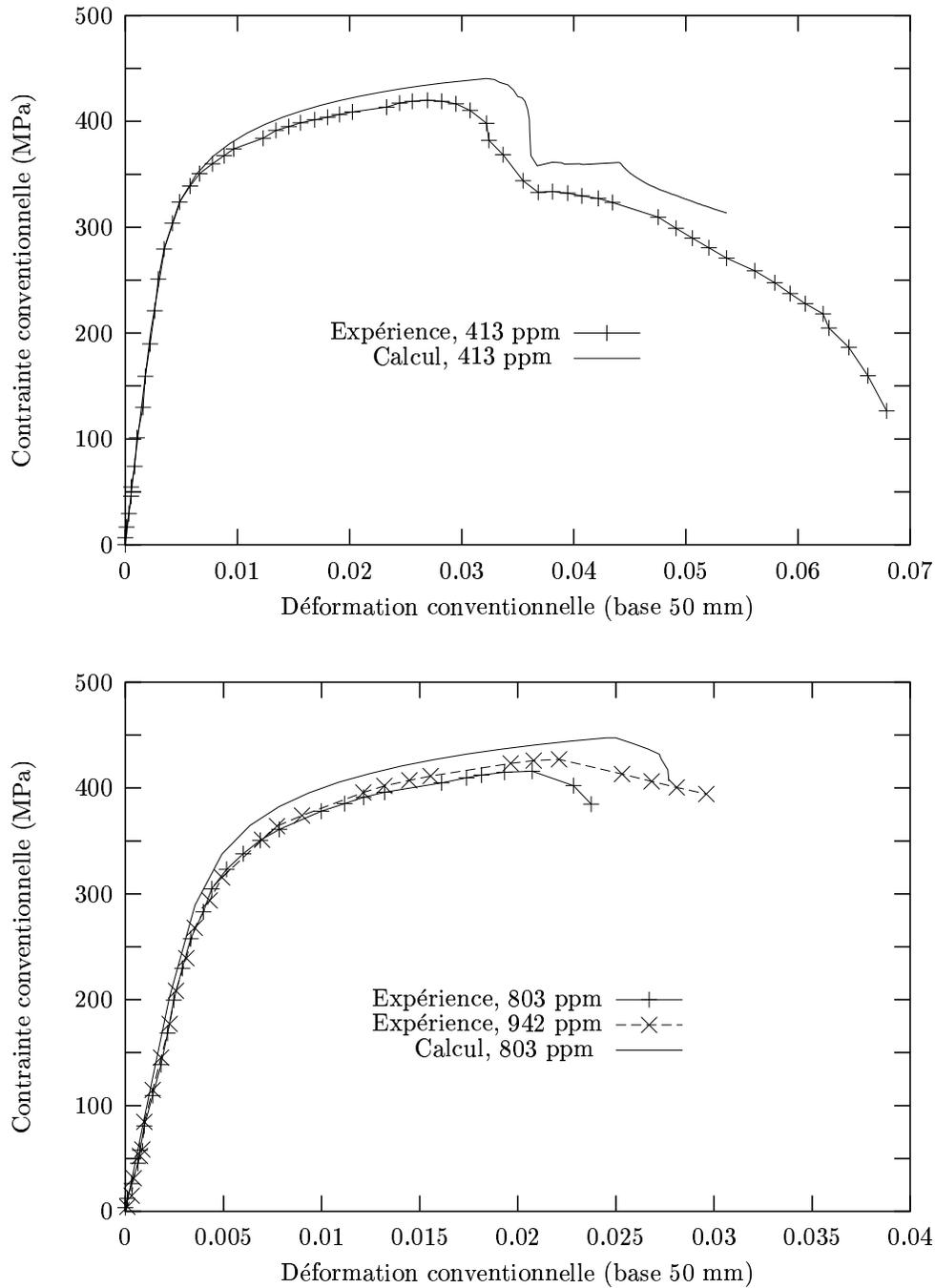


Figure VIII.20 : Courbes Force/ $S_0 - \Delta L/L_0$ pour la géométrie 1. Comparaison entre le calcul et l'expérience (Mailles $50 \times 50 \mu m^2$).

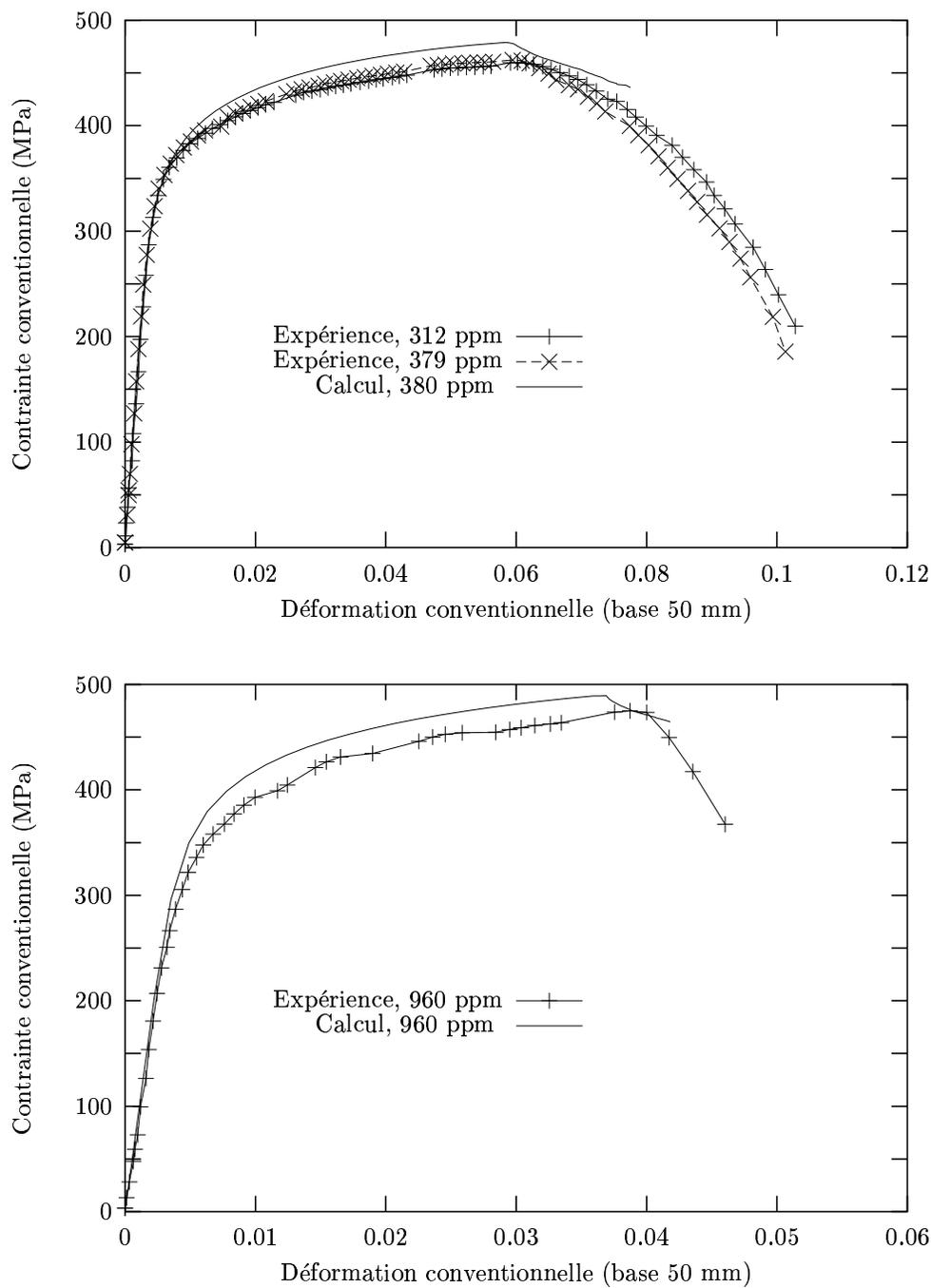


Figure VIII.21 : Courbes $Force/S_0 - \Delta L/L_0$ pour la géométrie 2. Comparaison entre le calcul et l'expérience (Mailles $50 \times 50 \mu m^2$).

En résumé

- ★ *Le modèle de Gurson, modifié par Tvergaard, peut être identifié à partir de la connaissance du comportement, des cinétiques d'endommagement et des largeurs critiques des éprouvettes entaillées.*
 - ★ *L'introduction de l'anisotropie par le biais de la contrainte équivalente au sens de Hill permet de reproduire l'évolution des déformations au cours de la rupture (Prat et al., 1998).*
 - ★ *Il est possible, en ajustant la taille de maille, de représenter la propagation (et l'amorçage) de fissures en termes de courbes de chargement et d'ouverture d'extensomètre (paramètres globaux). Par contre, on ne peut pas considérer que la ténacité est reliée uniquement au comportement et à l'endommagement, car elle dépend numériquement de la taille de maille.*
 - ★ *La taille de maille étant fixée, le modèle permet de prédire la rupture de tous types de structures (2D) sollicitées en monotone. Afin de valider le modèle pour les fortes triaxialités (jusqu'à 2/3), il conviendrait d'effectuer des essais en sollicitation biaxiée (enfoncement par exemple).*
-

Chapitre -IX-

Conclusions – Perspectives

L' objectif industriel de prolongement du temps de maintien des assemblages de combustibles en réacteur a suscité de nombreuses études concernant la modification des propriétés mécaniques des alliages de zirconium en milieu primaire. Les principales causes de dégradation sont l'irradiation, l'oxydation par l'eau du circuit et l'hydruration qui en résulte. Le comportement sous irradiation est étudié dans des structures spécifiques et coûteuses. C'est pourquoi on cherche, dans un premier temps, à étudier les autres facteurs du vieillissement, hors irradiation.

En ce qui concerne la tenue mécanique du tube guide, on s'intéresse plus en détails à la résistance à la corrosion qui conduit à une réduction de section portante et à la modification des propriétés mécaniques du fait de la précipitation des hydrures. On recherche en particulier les paramètres permettant de décrire la fragilisation (teneur en hydrogène, orientation des hydrures, température, sollicitation, épaisseur d'oxyde...). Ces études menées hors irradiation entrent en compte lors de la justification des assemblages.

Dans le cadre de ce travail, nous nous sommes intéressés à l'effet des hydrures et de la couche d'oxyde sur le comportement et la rupture du Zircaloy-4.

Pour cela, le comportement du matériau hydruré a été caractérisé suivant différentes directions de sollicitation, pour des vitesses de déformation variables. L'endommagement et la rupture ont été étudiés en utilisant l'approche locale. La résistance à la fissuration a elle aussi été déterminée. Nous avons cherché ensuite à détecter s'il existait une interaction mécanique entre la présence de la couche d'oxyde et l'endommagement lié aux hydrures.

Enfin, nous avons proposé un modèle de comportement et rupture permettant de représenter par élément finis les résultats obtenus sur le matériau hydruré. Ces calculs permettent notamment de reproduire l'anisotropie et la résistance à la fissuration observées expérimentalement.

IX.1 Synthèse

Précipitation des hydrures

L'étude comparative du type de précipitation observé sur plusieurs alliages de zirconium (Zircaloy-2, Zircaloy-4 ou Zr 2.5Nb) et pour plusieurs traitements thermiques finaux (détentionnement, recristallisation) ont permis de dégager les tendances suivantes :

- ★ Les hydrures formés en conditions normales de fonctionnement dans les alliages de zirconium sont les hydrures δ . Dans les Zircaloy, ils précipitent sous forme de fines plaquettes.
- ★ En relation avec la texture cristallographique, les plaquettes sont plus ou moins alignées avec la direction de laminage (leur normale est proche de la normale aux tôles ou aux tubes).
- ★ Lorsque le matériau est dans l'état détendu, les hydrures sont uniquement transgranulaires. Lorsque le matériau est recristallisé, ils sont tous intergranulaires.
- ★ Le Zircaloy-4 de l'étude a été recristallisé, mais la rotation des plans prismatiques des grains de 30° autour de l'axe \vec{c} habituellement observée n'a pas eu lieu. Le matériau a conservé en partie la mémoire du laminage et les hydrures sont aussi bien inter- que transgranulaires.
- ★ Lorsque la teneur en hydrogène augmente, les hydrures tendent à s'épaissir. Cette tendance est plus marquée pour les hydrures intergranulaires.

Effet des hydrures sur le comportement mécanique du Zircaloy-4

A l'aide d'essais de traction sur éprouvettes lisses, nous avons pu caractériser le comportement du matériau de manière très complète pour les sollicitations monotones et à la température ambiante. L'attention s'est portée ensuite sur l'évolution de ces propriétés avec la teneur en hydrogène. Les principaux résultats sont les suivants :

- ★ **Caractéristiques mécaniques** : La limite d'élasticité n'est pas modifiée par la présence des hydrures, même pour les fortes teneurs en hydrogène ($C_H < 1400$ ppm). La charge à rupture augmente linéairement avec la teneur en hydrogène. Le renfort observé semble dépendre de la métallurgie du matériau de base (composition, traitement thermique final...).
L'allongement réparti diminue linéairement avec la teneur en hydrogène.
Ces résultats sont valables pour toutes les directions de sollicitation dans le plan de la tôle.
- ★ **Anisotropie** : Le Zircaloy-4 sous forme de produits laminés (tôles ou tubes) présente une forte anisotropie de comportement. Celle-ci se manifeste surtout dans l'épaisseur des éprouvettes (direction travers court) qui se déforme très peu. Cette anisotropie provient de la texture des structures. Les axes \vec{c} , suivant lesquels la déformation est difficile, sont pratiquement alignés avec la direction travers court.

L'anisotropie est presque constante au cours de la déformation. Elle ne dépend pas non plus de la vitesse de sollicitation.

L'introduction d'hydrures dans le matériau ne modifie pas l'anisotropie.

Il a été possible de décrire l'anisotropie de déformation du Zircaloy-4 à l'aide d'un critère de Hill simple (5 paramètres), utilisable pour le matériau hydruré ou non.

- ★ **Sensibilité à la vitesse de sollicitation** : Les caractéristiques mécaniques du matériau présentent une dépendance à la vitesse de déformation. La limite d'élasticité et la charge à rupture augmentent d'environ 20 MPa par décade.

L'augmentation est identique pour les sollicitations dans le sens long et le sens travers.

La présence des hydrures ne modifie pas ce résultat, même pour les fortes teneurs.

L'allongement réparti diminue lorsque la vitesse de sollicitation augmente. Cette perte de stabilité est probablement liée à l'échauffement des éprouvettes au cours de la déformation. Des mesures de température au cours de l'essai ont permis de montrer qu'il s'établissait un gradient de température le long de l'éprouvette, bien avant la striction. Or l'écroûissage du zirconium est particulièrement sensible à la température.

Effet des hydrures sur la rupture du Zircaloy-4

A l'aide d'essais de traction sur éprouvettes lisses, mais aussi sur éprouvettes entaillées et sur éprouvettes fissurées, nous avons pu caractériser l'influence de la précipitation des hydrures sur la rupture du Zircaloy-4 pour différentes conditions locales de sollicitation.

- ★ L'effet des hydrures est le même pour toutes les directions de sollicitation dans le plan. La réduction de la ductilité, définie comme la variation de section des éprouvettes, est linéaire lorsque la teneur en hydrogène augmente. Il n'y a pas de transition ductile-fragile, même jusqu'à 1200 ppm. De plus, la vitesse de déformation n'a aucune influence sur la ductilité dans la gamme étudiée.
- ★ Les essais sur éprouvettes entaillées ont montré que, dans ce cas, l'influence de la déformation plastique était prépondérante sur l'apparition de l'endommagement par rapport à l'effet de la triaxialité dans la gamme étudiée.
- ★ Les essais sur éprouvettes fissurées ont permis de caractériser la résistance à la propagation de fissure. Celle-ci diminue lorsque la teneur en hydrogène augmente. Aucune éprouvette, même très hydrurée, n'a présenté de rupture du type fragile. Il semble que l'interaction entre la fissure et l'endommagement s'effectue à courte distance.

Etude de l'endommagement et de la rupture des hydrures

- ★ L'apparition de cavités dans le matériau est uniquement liée à la rupture des hydrures suivant leur largeur. En particulier, aucune décohésion n'est observée à l'interface avec la matrice.
- ★ Le paramètre mécanique permettant de décrire l'évolution de cette porosité semble être la déformation plastique. Nous avons donc déterminé, par comptage, les cavités dues à la rupture des hydrures, pour différents niveaux de déformation. Les mesures

montrent qu'il existe un seuil de déformation avant lequel on n'observe pas de rupture et que la germination est un phénomène continu au cours de la déformation.

- ★ Il semble que les hydrures peuvent accommoder la déformation plastique de la matrice environnante.
- ★ Il faut distinguer les hydrures inter- et les hydrures transgranulaires. Les hydrures intergranulaires sont ceux qui se fissurent en premier au cours de la déformation. Les hydrures transgranulaires semblent pouvoir accommoder des déformations plastiques beaucoup plus importantes.
- ★ La taille des hydrures joue aussi un rôle important sur leur capacité à se déformer. Plus ils deviennent massifs, plus ils ont du mal à accommoder la déformation.

Effet d'une couche d'oxyde sur les propriétés mécaniques du Zircaloy-4 hydruré

Des éprouvettes lisses hydrurées ont été oxydées en four sous air synthétique. Les couches formées vont de 5 à 20 μm par face. Les éprouvettes sont ensuite sollicitées en traction jusqu'à rupture. Les résultats peuvent être interprétés comme suit :

- ★ La couche d'oxyde a un caractère fragile. Elle se fissure progressivement sous l'effet de la déformation. Elle desquame ensuite en rompant au niveau de son interface avec l'oxyde dense. La fissuration de la couche introduit des micro-fissures en surface du matériau. La pénétration de ces fissures est facilitée par la présence d'une zone de matériau enrichie en oxygène dont la ténacité est réduite.
- ★ Les perturbations introduites par les variations de section (desquamation, fissuration de la couche), vont faciliter l'apparition de la localisation. On retiendra que l'effet de l'oxyde est plus marqué sur les éprouvettes fortement hydrurées car l'épaisseur de celles-ci est plus faible. Lors de la desquamation, la variation relative de section portante sera plus grande.
- ★ La rupture finale est gouvernée par l'apparition de l'endommagement dû aux hydrures. La présence des fissures facilite la rupture car elle augmente la densité de défauts.
- ★ Aucune interaction mécanique n'a été mise en évidence entre la couche d'oxyde et les hydrures. Mais aucune explication n'a été proposée pour la réduction de ductilité observée indépendamment des hydrures sur le matériau oxydé.

Utilisation de la mécanique de milieux poreux pour représenter la rupture du Zircaloy-4 hydruré

Les résultats des essais de caractérisation ainsi que la connaissance des cinétiques d'endommagement ont permis d'identifier les paramètres du modèle de Gurson-Tvergaard. Ce modèle permet de représenter l'effet de renfort de l'hydrogène, le caractère anisotrope de la déformation, la sensibilité à la vitesse de déformation, l'apparition continue de cavités dans le matériau et la rupture finale par coalescence.

De plus, nous avons montré qu'il était possible de représenter la résistance à la fissuration en identifiant la taille de maille utilisée pour les calculs. Les identifications ont montré que celle-ci était indépendante de la teneur en hydrogène.

La taille de maille étant fixée, le modèle permet de prédire la rupture de tous types de structures (2D) sollicitées en monotone.

IX.2 Perspectives

Fragilisation par l'hydrogène des alliages de zirconium.

Il est important d'assurer la transférabilité des résultats de l'étude à d'autres alliages de zirconium tels que le M5. L'étude de l'influence de l'hydrogène sur le comportement mécanique du Zircaloy-4 a montré qu'il était possible de déterminer l'impact de la précipitation des hydrures en effectuant :

- ★ Une analyse micrographique de la précipitation, afin de détecter si les hydrures sont inter- ou transgranulaire.
- ★ Des essais de traction simple, à la température ambiante, pour des teneurs allant jusqu'à plus de 1000 ppm.

Cette démarche a été appliquée au M5 recristallisé (Bruneteau, 1998).

- ★ La précipitation est majoritairement intergranulaire. Les hydrures sont regroupés en bandes dans l'épaisseur du matériau.
- ★ L'effet de l'hydrogène sur les propriétés mécaniques est similaire à celui observé sur le Zircaloy-4. La limite d'élasticité et la charge à rupture évoluent peu. L'allongement réparti diminue légèrement lorsque la teneur en hydrogène augmente. La diminution de l'allongement total est identique à celle observée sur le Zircaloy-4.

L'alliage M5 se comporte vis-à-vis de la fragilisation par l'hydrogène comme le Zircaloy-4. Les résultats de cette étude sont donc directement utilisables pour ce matériau.

Pour compléter l'étude mécanique, il serait intéressant de procéder à des essais biaxiés.

Rupture des hydrures

Caractérisation de l'endommagement.

Nos observations permettent d'expliquer les transitions ductile–fragile observées habituellement sur différents alliages de zirconium en termes de morphologie des hydrures ou de lieu de précipitation. Toutefois, les mécanismes sous-jacents restent à déterminer.

- ★ Pourquoi les hydrures perdent-ils leur capacité à se déformer lorsque leur taille augmente? (Prioul, 1998) pense que lorsque l'épaisseur des hydrures est suffisamment faible (quelques centaines de nanomètres), il se produit des effets de force image, permettant de transmettre la déformation dans le grain.
- ★ Pourquoi les hydrures intergranulaires ont-ils plus de difficultés à se déformer? Les explications en termes d'incompatibilités entre grains sont-elles suffisantes? Ne faut-il pas s'attarder aussi sur les différences métallurgiques entre les deux types d'hydrures?
- ★ Quel critère physique retenir pour décrire la rupture des hydrures? La réponse à cette question passe par la caractérisation de l'interface avec la matrice. Il faudra aussi s'intéresser à la zone autour de l'hydrure, dont le comportement peut être affecté par la précipitation (enrichissements en éléments d'alliage par exemple).

Afin de compléter les mesures d'endommagement, il faudrait :

- ★ intégrer l'effet de la triaxialité en effectuant des essais biaxiés. (Yunchang et Koss, 1985) ont en effet montré que ce paramètre avait une influence non négligeable sur la cinétique de germination.
- ★ observer les cinétiques de croissance des cavités, sous différents taux de triaxialité. (Huez et al., 1998) qui travaillent sur du titane biphasé, montrent en effet que les lois usuelles de croissance (Rice et Tracey...) sous-estiment les cinétiques réelles.
- ★ caractériser l'étape de coalescence. Habituellement, les éprouvettes axisymétriques entaillées permettent d'avoir un ordre de grandeur de la cinétique de coalescence (Devaux et al., 1989). Pour les tôles de l'étude, cette détermination est plus délicate compte tenu du mode de rupture des éprouvettes entaillées.

Modélisation de la rupture ductile par éléments finis.

La procédure d'identification du modèle de comportement et rupture du Zircaloy-4 hydruré reste assez longue. Les mesures des cinétiques d'endommagement sont, en particulier, assez fastidieuses. D'autre part, si le matériau évolue, la quasi-totalité des paramètres doit être identifiée à nouveau. On conçoit donc que les modèles du type Gurson sont assez mal adaptés pour les matériaux susceptibles d'évoluer rapidement.

Par contre, l'emploi de ces modèles pour représenter la rupture d'un matériau prédéfini offre de large possibilités de calage des paramètres. De plus, il est possible de prendre en compte les phénomènes tels qu'ils sont observés. Par exemple, l'endommagement traité par le modèle est l'endommagement réellement observé en termes de densité de cavités. La fraction critique correspond effectivement à l'apparition de la première fissure dans le matériau.

Mais cette souplesse est aussi la faiblesse du modèle. En effet, il convient pour compléter la modélisation d'effectuer des essais biaxiés afin d'identifier la dépendance des cinétiques d'endommagement à la triaxialité. Ceci implique de nouvelles mesures de densité de cavités, une nouvelle identification des fractions critiques qui dépendent probablement aussi de la triaxialité (Benzerga et al., 1997) et, éventuellement, une modification de la taille de maille. Ce problème est classique avec ce type d'approche en forte relation avec la microstructure et les modes d'endommagement. Après des mesures micrographiques de l'endommagement, (Devillers-Guerville, 1998) propose de s'affranchir de ce type de mesures en effectuant une identification mécanique de l'endommagement par comparaison entre le comportement en traction (avec adoucissement du à l'endommagement) et en compression (sans adoucissement).

Pour le Zircaloy-4 ou le M5, il est impossible d'effectuer des essais de compression au delà de quelques % (flambage). De plus, les taux d'endommagement sont tellement faibles que l'adoucissement serait indétectable. En fait, l'endommagement reste très faible au cours des essais, d'une part parce que la germination est faible et d'autre part parce que la croissance des cavités est réduite du fait de la faible triaxialité. Ceci est vérifié numériquement. Les calculs pourraient être effectués en utilisant un modèle non couplé, voire un modèle sans endommagement. Le critère serait alors pris en termes de déformation plastique critique. Ce type de modélisation permettrait de s'affranchir des mesures d'endommagement et rendrait plus simple l'identification des valeurs critiques de rupture.

Partie C

Annexes

Annexe -A-I-

Conditions expérimentales

Cette annexe regroupe les conditions d'étude expérimentales ainsi que les modes de dépouillement spécifiques à certains essais :

- Préparation des échantillons pour l'observation micrographique.
- Calcul des déformations dans le plan d'une éprouvette lisse.
- Identification d'une loi de comportement viscoplastique.
- Essais in-situ au MEB.
- Conditions expérimentales relatives à l'oxydation.

A-I.1 Préparation des échantillons pour l'observation en microscopie

- Les éprouvettes sont polies au papier SiC (400, 600 et 1200), puis à la pâte diamantée (6 μm , 3 μm et 1 μm).
- Elles subissent ensuite un polissage-attaque chimique qui permet de révéler les hydrures et les grains en dissolvant partiellement le zirconium. Le bain est composé de glycérol, d'acide nitrique et d'acide fluorhydrique dans les proportions 10:9:1. La solution est étalée sur la surface à polir à l'aide d'un pinceau comportant une tête en papier optique.
- Pour les observations au microscope optique, (Prat, 1994) a proposé d'effectuer ensuite une attaque colorante permettant de mieux distinguer les hydrures. Il s'agit d'un traitement d'anodisation. L'échantillon est immergé dans le bain et soumis à une tension de 30 V, à température ambiante, pendant une vingtaine de secondes.

La solution est composée de :

60 ml d'éthanol
 35 ml d'eau
 20 ml de glycérine
 10 ml d'acide lactique
 5 ml d'acide phosphorique
 2 g d'acide citrique

Cette attaque permet de former sur la surface une couche d'oxyde de zirconium nanométrique qui reflète une lumière bleue. Les hydrures apparaissent en orange. Cette attaque peut s'avérer gênante lors des observations au MEB car la couche d'oxyde masque les phénomènes de surface (lignes de glissement par exemple). Par contre elle peut être utilisée comme marqueur de la déformation car elle est très fragile et se fissure rapidement.

A-I.2 Calcul des déformations dans le plan d'une éprouvette lisse

Deux méthodes ont été utilisées faisant respectivement appel à des grilles d'un pas de 1 mm et à des jauges de déformation.

A-I.2.1 Grilles

– Les grilles carrées se déforment pour devenir rectangulaires au cours de l'essai. Lorsqu'apparaît la striction, elles perdent leur rectitude (Photographies A-I.1). De plus, la base de mesure (pas de la grille) est alors trop grande pour bien représenter les phénomènes de localisation. Cette méthode est donc utilisée uniquement avant la striction.

Les grilles restant rectangulaires, si on appelle $l_0=1$ mm leur longueur de départ, l_s et l_p leurs longueurs à un instant donné respectivement dans la direction de sollicitation et dans la direction perpendiculaire à la traction, on peut déterminer la déformation conventionnelle dans le sens de traction (ϵ_s) et dans le sens perpendiculaire (ϵ_p) :

$$\epsilon_s = \frac{l_s - l_0}{l_0}$$

$$\epsilon_p = \frac{l_p - l_0}{l_0}$$

Les essais sont interrompus tous les 1% de déformation totale dans la direction de traction et la surface est photographiée. Il est possible alors de calculer les rapports de Lankford. Cette procédure a été utilisée pour montrer que l'anisotropie présente de faibles variations au cours de la déformation.

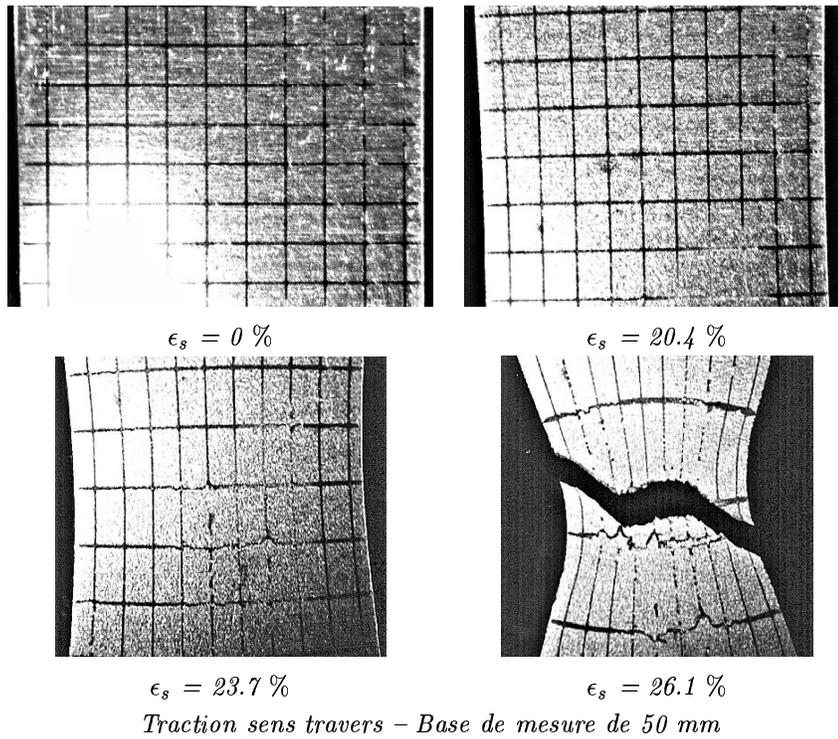
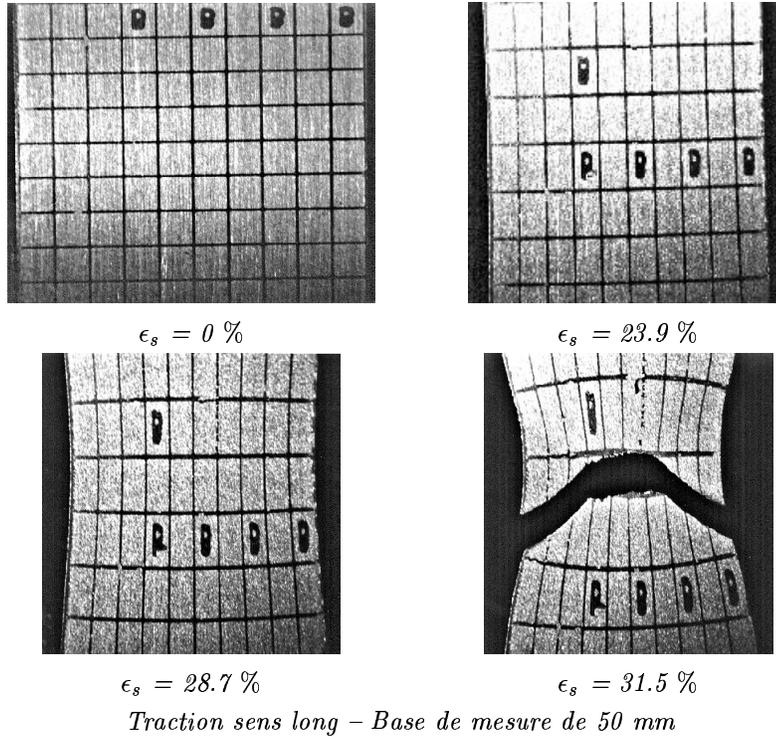


Figure A-I.1 : Evolution des grilles au cours de l'essai de traction. Eprouvettes non hydrurées. $T = 20^\circ C$, $\dot{\epsilon} = 10^{-3} s^{-1}$.

A-I.2.2 Jauges de déformation

– Il existe plusieurs types de jauges. Nous avons utilisé un modèle comportant deux rosettes perpendiculaires, donnant accès aux déformations dans le sens de traction (ϵ_s) et dans le sens travers (ϵ_p). Ce sont des jauges Micro-Measurements Division Vishay, type EP-08-125TM-120, numéros de lot R-A19AP81 et R-A19AP82, résistance 120 Ohms, facteurs de jauge $F_s = 2.03$, $F_p = 2.045$, facteurs de correction transverse $K_s = 2.2$, $K_p = 1.4$.

Le principe du montage et le détail des calculs sont décrits dans (Vishay, pp. 233-239). Les grandes lignes sont présentées ici.

– L'étalonnage du pont s'effectue en plaçant une résistance en court-circuit avec la jauge. La résistance utilisée est de 120 k Ω afin de créer artificiellement une variation de résistance de 0.5%. On note alors la variation de tension du conditionneur ΔV_0 qui permet de relier la déformation plastique à la tension mesurées pendant l'essai, moyennant les facteurs de jauge $F_{(s,p)}$:

$$\epsilon_{j(s,p)} = \frac{\Delta V}{\Delta V_{0(s,p)}} \cdot \frac{1}{F_{(s,p)}}$$

$\epsilon_{j(s,p)}$ en ‰. Cette relation est établie pour chaque rosette.

– Pour les grandes déformations le pont devient non-linéaire. Il est important de corriger les valeurs de déformation en prenant :

$$\epsilon_{c(s,p)} = \epsilon_{j(s,p)} + \frac{F_{(s,p)} \cdot \epsilon_{j(s,p)}^2 \cdot 10^{-6}}{1 - F_{(s,p)} \cdot \epsilon_{j(s,p)} \cdot 10^{-6}}$$

– Les jauges ont été étalonnées par le constructeur sur un matériau dont le coefficient de Poisson vaut $\nu = 0.285$. Pour le matériau de l'étude $\nu_0 = 0.35$, il faut donc corriger les valeurs. Les facteurs correctifs relatifs à chaque rosette (sens traction K_s et sens perpendiculaire K_p) sont fournis par le constructeur.

$$\epsilon_s = \frac{\epsilon_{cs} \cdot (1 - \nu_0 \cdot K_s) - K_s \cdot \epsilon_{cp} \cdot (1 - \nu_0 \cdot K_p)}{1 - K_s \cdot K_p}$$

$$\epsilon_p = \frac{\epsilon_{cp} \cdot (1 - \nu_0 \cdot K_p) - K_p \cdot \epsilon_{cs} \cdot (1 - \nu_0 \cdot K_s)}{1 - K_s \cdot K_p}$$

Sur les courbes obtenues pour les tractions dans le sens travers, les déformations mesurées par jauges sont décalées par rapport à l'extensomètre, lors de l'apparition de la plasticité. Ce décalage est reproductible d'une éprouvette à l'autre. Il est en relation directe avec le crochet de traction observé dans cette direction. Ces résultats semblent indiquer que l'apparition du crochet est lié à des phénomènes hétérogènes dans le matériau, puisque des mesures locales (jauges) donnent des résultats différents des mesures globales (extensomètre).

A-I.3 Identification d'une loi de comportement viscoplastique

Le comportement est modélisé par la relation entre contrainte et déformation :

$$\sigma_{eq} = K \cdot \epsilon_{eq}^n + K' \cdot \dot{\epsilon}_{eq}^{1/n'} = \frac{F}{S} = \frac{F}{S_0 \cdot \exp(-\epsilon_{eq})} \quad (\text{A-I.1})$$

F étant la force appliquée sur la surface S de l'échantillon. S_0 est la surface initiale, ϵ_{eq} la déformation totale équivalente et $\dot{\epsilon}_{eq}$ la vitesse de déformation. n et K représentent la partie plastique de la déformation et n' et K' la partie viscoplastique.

Dans un premier temps, on identifie les quatre paramètres du comportement pour le matériau non hydruré (n , K , n' et K'), à partir des essais à quatre vitesses différentes. Les essais de caractérisation de la sensibilité à la vitesse de déformation ont montré que la viscosité du matériau n'était pas affectée par la précipitation des hydrures. n' et K' ainsi déterminés sont donc valables pour toutes les teneurs.

Ensuite, n et K pour le matériau hydruré peuvent être identifiés numériquement ou analytiquement. Nous avons préféré la solution analytique qui donne directement les paramètres du comportement à partir des données expérimentales. n et K s'expriment en fonction de n' , K' , σ_m (contrainte vraie correspondant au maximum de charge), et ϵ_r (déformation totale correspondant à σ_m) en résolvant à vitesse de déformation constante :

$$\begin{cases} \frac{d\sigma_{eq}}{d\epsilon_{eq}} = \sigma_{eq} \\ \sigma_{eq} = \sigma_m \end{cases}$$

On écrit alors :

$$\begin{cases} -\sigma_{eq} + n \cdot K \cdot \epsilon_{eq}^{n-1} = 0 \\ \sigma_{eq} = \sigma_m \end{cases}$$

qui se simplifie en notant $B = K' \cdot \dot{\epsilon}_{eq}^{1/n'}$ et en remarquant que pour $\sigma_{eq} = \sigma_m$ on a $\epsilon_{eq} = \epsilon_r$,

$$\begin{cases} n \cdot K \cdot \epsilon_r^{n-1} - \sigma_m = 0 \\ K \cdot \epsilon_r^n + B = \sigma_m \end{cases}$$

On trouve finalement :

$$\begin{aligned} n &= \frac{\epsilon_r \cdot \sigma_m}{\sigma_m - B} \\ K &= \frac{\sigma_m - B}{\epsilon_r^n} \end{aligned}$$

A partir des droites de régression donnant σ_m et ϵ_r en fonction de la teneur en hydrogène, on déduit les évolutions de n et K en fonction de ce même paramètre. On remarque que l'extrapolation de la droite pour la teneur de 0 ppm permet de retrouver les valeurs identifiées numériquement.

A-I.4 Essais in situ dans le MEB

Les éprouvettes, dont la géométrie est présentée Figure A-I.2, sont polies comme décrit ci-dessus (A-I.1). Elles ne sont pas oxydées.

La vitesse de déformation est imposée sur 28 mm à l'aide de goupilles, pour une longueur utile de 8 mm. Elle est fixée à 10^{-3} s^{-1} .

L'essai est interrompu régulièrement et la surface est parcourue afin d'observer l'endommagement. Quelques zones privilégiées sont photographiées à chaque arrêt, afin de mettre en évidence des phénomènes de réorientation ou de déformation des hydrures.

Cette méthode attrayante est toutefois limitée par les capacités du microscope, dont le grandissement maximal est de 5000.

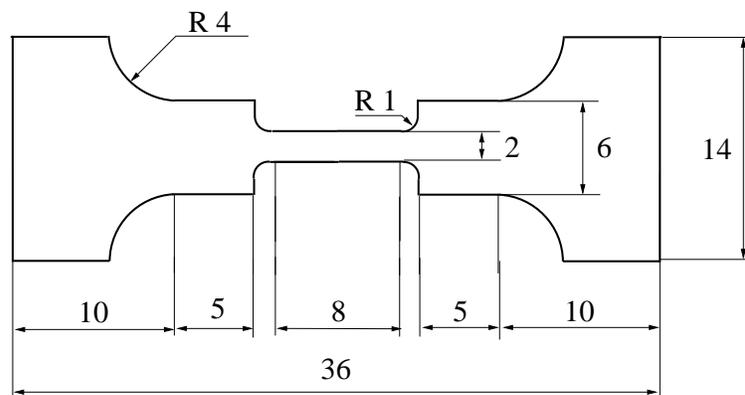


Figure A-I.2 : Géométrie des éprouvettes de traction in situ dans le MEB (Cotes en mm).

A-I.5 Conditions expérimentales relatives à l'oxydation

A-I.5.1 Procédure de détermination des cinétiques d'oxydation par analyse thermogravimétrique

- La taille des échantillons introduits dans la thermo-balance est d'environ 20 mm×5 mm. Ils ont été décapés à l'acétone, à l'alcool puis trempés dans de l'eau distillée. Afin de les relier à la balance gravimétrique, un trou est percé en haut des plaques ($\Phi=1.4 \text{ mm}$).
- La rampe de température est contrôlée grâce à un régulateur PID. Le chauffage et le refroidissement sont rapides pour éviter des oxydations parasites pendant ces deux étapes. L'enceinte du four de la balance est balayé par un flux d'air synthétique, assurant l'apport d'oxygène.
- Les mesures s'effectuent en continu. La précision de mesure est de 0.01 mg.

A-I.5.2 Procédure d'oxydation des éprouvettes en four AET

- Les éprouvettes subissent un nettoyage à l'acétone, à l'alcool puis à l'eau distillée. Elles sont ensuite disposées sur un montage permettant de les maintenir alignées dans le four. Il est ainsi possible d'oxyder simultanément une dizaine d'éprouvettes. Sur ce montage, deux éprouvettes en FeCrAl sont ajoutées, avec des thermocouples à leurs extrémités afin de contrôler la température au cours du traitement.
- Le four est porté en température. Les thermocouples donnent une indication de la température le long des éprouvettes. Le gradient est inférieur à 5 °C.
- Le refroidissement fixé à -1 °C/min est programmé directement sur le four par réglage du PID. Le suivi de la température des thermocouples permet de s'assurer de la bonne vitesse de refroidissement.

A-I.5.3 Procédure d'observation en SIMS

- L'observation en SIMS nécessite une surface très lisse. Les échantillons sont polis jusqu'à l'OPS (silice colloïdale). Ils sont ensuite rincés à l'alcool puis à l'eau.
- La méthode habituelle d'analyse par abrasion est irréalisable sur les éprouvettes de l'étude car le temps d'abrasion de la couche d'oxyde dépasse la journée. De plus, lorsque les cratères deviennent profonds, il existe des parasites provenant des effets de bord.

Nous avons donc effectué des balayages de surface. Deux types sont utilisés : suivant l'épaisseur de l'éprouvette ou suivant une coupe bise (4° d'inclinaison environ). La coupe bise permet de décrire ce qui se passe à l'interface. La coupe dans l'épaisseur permet d'observer des phénomènes plus profonds. Ainsi, il est possible, très rapidement, de décrire des gradients de quelques dizaines de microns.

Avant l'analyse, la surface est donc systématiquement décapée par abrasion ionique, afin de s'affranchir des pollutions du polissage.

- Pour les observations dans l'épaisseur, un montage permet de fixer plusieurs plaques afin de les polir conjointement et de les observer ensuite sans les séparer. Cette méthode permet de rendre la surface d'observation parallèle au porte échantillon.

Annexe -A-II-

Eprouvettes entaillées

Cette annexe regroupe les calculs effectués sur les géométries entaillées :

- Calcul de la triaxialité au centre de l'éprouvette, pour trois géométries.
- Détermination d'une vitesse de sollicitation.
- Identification des f_c .
- Calcul des bandes de localisation.

Tous les calculs présentés dans ce manuscrit sont effectués en deux dimensions avec l'hypothèse des contraintes planes dans la troisième direction. Les éléments sont quadratiques à intégration réduite (8 noeuds, 4 points de Gauss). La formulation utilisée est celle des petites déformations avec réactualisation de la géométrie.

A-II.1 Choix d'une géométrie

A-II.1.1 Géométries testées

Les éprouvettes testées sont inspirées des géométries des éprouvettes axisymétriques entaillées. La largeur portante de l'éprouvette est fixée à 10 mm et sa largeur totale vaut 18 mm. La longueur entre les mors est de 50 mm pour une épaisseur de 400 μm .

On étudie trois types d'éprouvettes : $E2$, $E4$ et $E10$. correspondant à trois rayons en fond d'entaille : 2, 4, et 10 mm.

Les maillages utilisés sont présentés Figure A-II.1. Les mailles sont carrées de 0.5×0.5 mm². Seul un quart de l'éprouvette est maillé. Le déplacement suivant U2 est imposé sur le haut, le bas est bloqué dans cette direction. Le côté gauche est bloqué suivant la direction U 1.

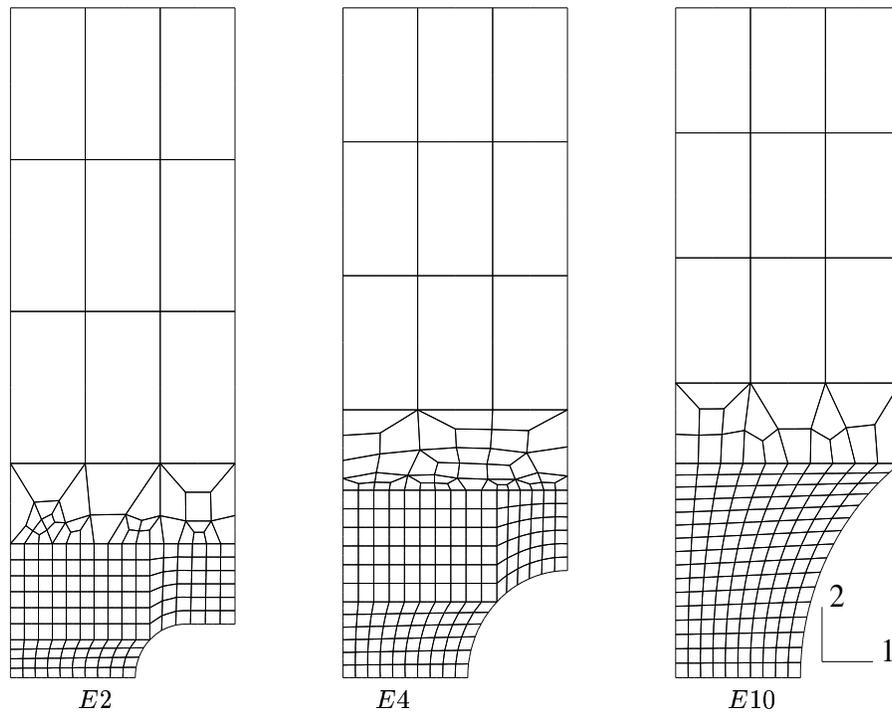


Figure A-II.1 : Géométries et maillages utilisés.

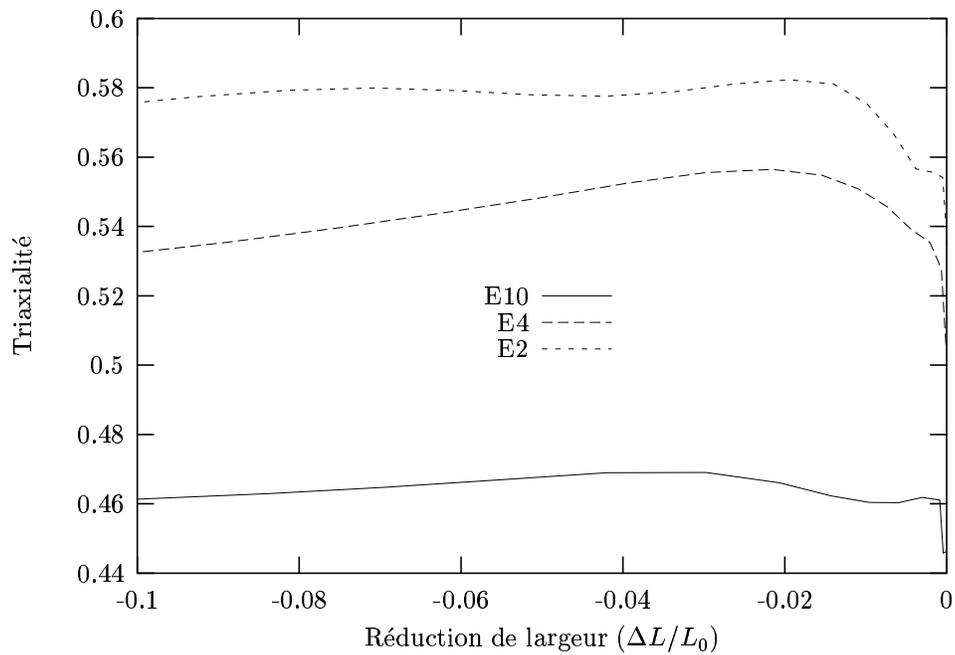


Figure A-II.2 : Evolution de la triaxialité au centre de l'éprouvette en fonction de la réduction de largeur. Matériau non hydruré, sens long.

A-II.1.2 Paramètres du calcul

Le calcul est effectué sans endommagement avec un critère de plasticité de Hill. La contrainte d'écoulement du matériau est la contrainte identifiée dans le Chapitre IV. Pour ces calculs, la vitesse de déformation est calculée par (vitesse de déplacement/longueur utile) et vaut $10^{-3} s^{-1}$.

A la fin du calcul, on trace pour chaque géométrie la courbe d'évolution de la triaxialité au centre en fonction de la réduction de largeur (Figure A-II.2).

A-II.1.3 Résultats

La triaxialité dépend du rayon en fond d'entaille. Elle vaut 0.46 pour les $E10$, 0.54 pour les $E4$ et 0.58 pour les $E2$. Elle est maximale pour cette dernière géométrie. C'est celle qui est retenue.

Le comportement, la taille de maille ou la vitesse de sollicitation n'ont pas d'effet sur cette hiérarchie entre les différentes éprouvettes. C'est pourquoi nous nous sommes contentés de ces trois simples calculs pour choisir l'éprouvette qui sera testée expérimentalement.

On remarque que la triaxialité n'est pas constante le long de l'axe 1 (Figure A-II.3). Elle vaut 1/3 au bord de l'entaille.

A-II.2 Choix d'une vitesse de déplacement du vérin

La vitesse de déformation telle que calculée dans le premier paragraphe ne donne pas une bonne approximation de la vitesse de réduction de largeur, qui est, sur les éprouvettes entaillées, le paramètre déterminant.

Plusieurs calculs ont été effectués en imposant différentes vitesses de déplacement sur le haut de l'éprouvette. Pour chacun, on relève la vitesse de déformation de la largeur. Celle-ci n'est pas constante au cours de l'essai (Figure A-II.4). Nous avons retenu la vitesse de déplacement du vérin qui donnait en une vitesse moyenne de déformation de la largeur de $10^{-3} s^{-1}$ ($V_v=1\text{mm}/\text{min}$).

A-II.3 Identification des porosités critiques

Les premières identifications sont effectuées pour une taille de maille de $500 \times 250 \mu\text{m}^2$. La déformation et la porosité totale sont maximales au point de Gauss le plus proche de l'entaille. C'est à ce point qu'on lit la valeur de f_c .

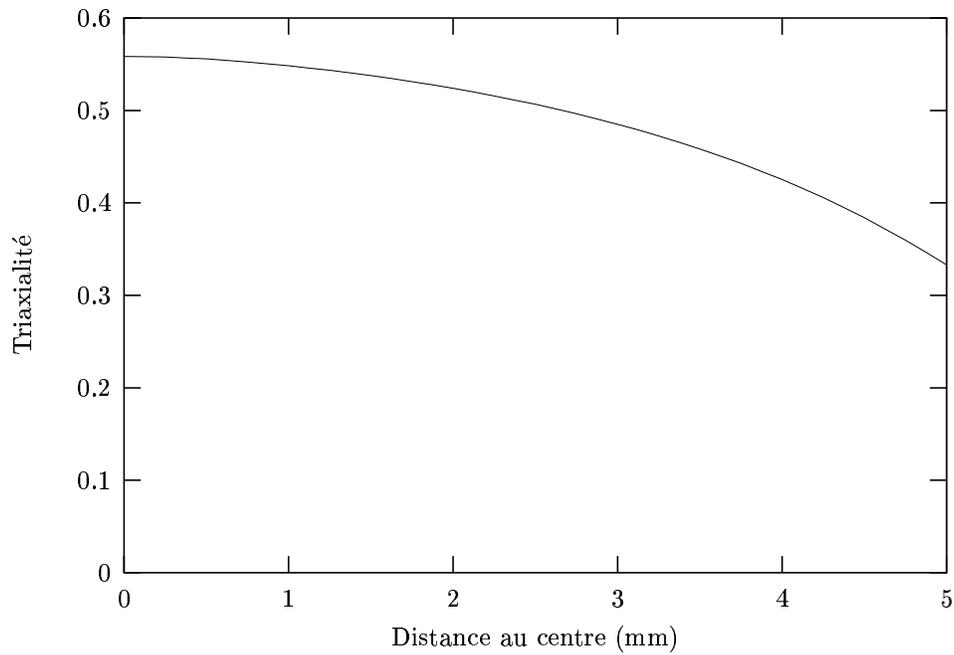


Figure A-II.3 : Evolution de la triaxialité le long de l'axe 1 sur l'éprouvette E2 pour une réduction de largeur de 10 %. Matériau non hydruré, sens long.

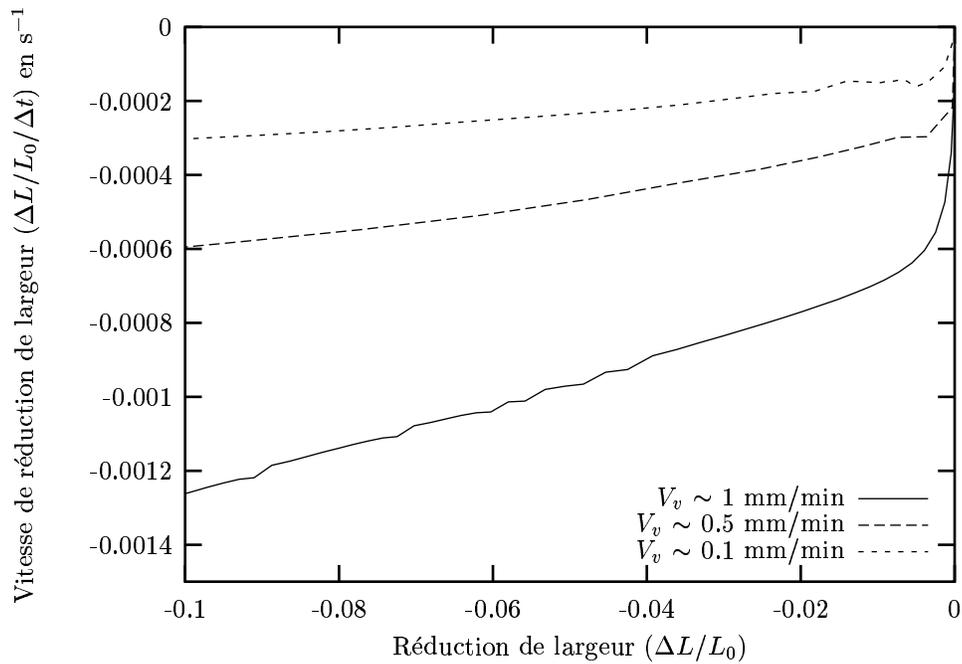


Figure A-II.4 : Evolution de la vitesse de déformation de largeur en fonction de la réduction de largeur pour trois vitesses de déplacement du vérin (V_v). Matériau non hydruré, sens long, (Simulation).

Les calculs de propagation de fissure montrent qu'il est nécessaire d'utiliser une taille de maille de $50 \times 50 \mu\text{m}^2$ afin de représenter correctement les énergies de fissuration. Les valeurs de f_c sont à nouveau identifiées, sur des maillages plus fins ($50 \times 50 \mu\text{m}^2$). Pour les fortes teneurs, la déformation plastique est maximale au point de Gauss le plus proche de l'entaille. Par contre, pour les plus faibles teneurs en hydrogène, allant jusqu'à des déformations importantes, la déformation plastique est maximale au dessus de l'entaille (voir § A-II.4). On prend donc la valeur de f_c à ce point.

A-II.4 Apparition de bandes de localisation

Si on effectue un calcul de l'éprouvette sans endommagement (critère de plasticité de Hill), on voit apparaître des bandes de cisaillement au-dessus de l'entaille (Figure A-II.5). Lorsque l'on pousse le calcul plus loin, cette bande rejoint le centre de l'éprouvette et il se produit une localisation de la déformation dans cette bande (Figure A-II.6).

Si on effectue le même calcul avec endommagement (potentiel de Gurson), pour une faible teneur en hydrogène, les résultats sont similaires pour le début de la déformation. Par contre, la fissure s'amorce ensuite dans l'entaille, gênant l'apparition de la bande. Néanmoins, lorsque la fissure se propage, la bande a tendance à s'intensifier. (Needleman et Tvergaard, 1984) proposent une étude complète des conditions de localisation dans les éprouvettes entaillées, en fonction de paramètres tels que l'hypothèse de comportement de la troisième direction (contrainte plane, déformation plane ou axisymétrie), le rayon d'entaille ou la loi d'endommagement.

Expérimentalement, pour les faibles teneurs en hydrogène, les déformations à rupture étant importantes, la bande de cisaillement est bien visible lors de l'amorçage de la fissure.

Enfin, pour les faibles teneurs et une taille de maille assez petite (50 ou $100 \mu\text{m}$), une bande de localisation apparaît au-dessus de l'entaille (Figure A-II.7). La rupture se produit à partir de ce point. Il est délicat de déterminer si, expérimentalement, une localisation de ce type se produit, car l'échelle du phénomène est très faible (100 à $200 \mu\text{m}$).

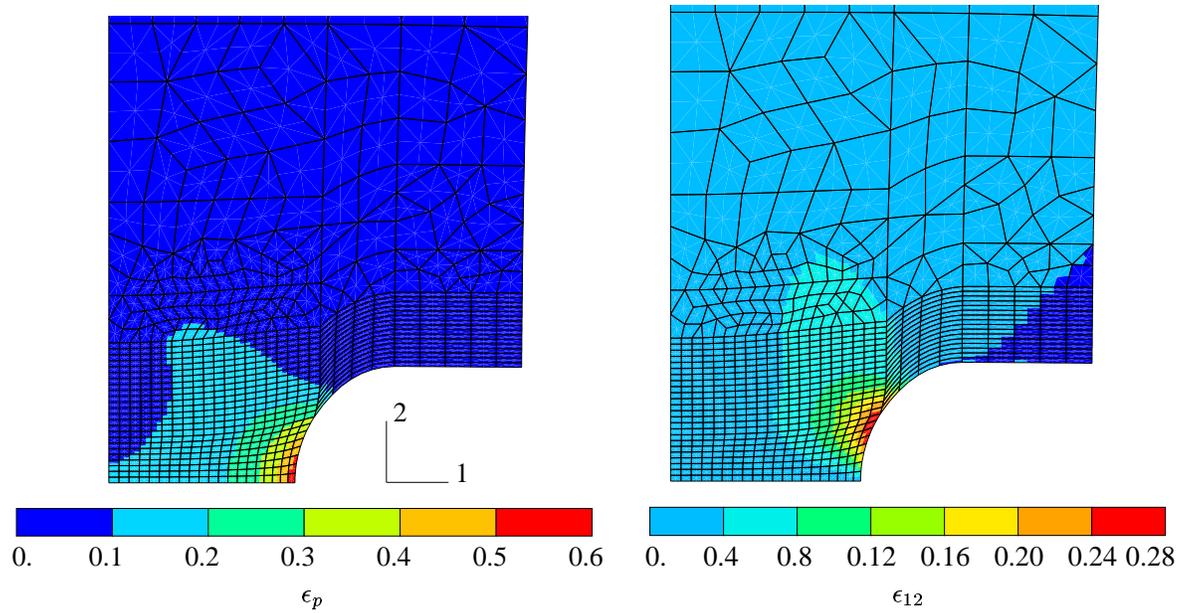


Figure A-II.5 : Isovaleurs de déformation plastique équivalente et de déformation de cisaillement, pour une réduction de largeur de 12 %. Matériau non hydruré, sens long, taille de maille $250 \times 125 \mu\text{m}^2$.

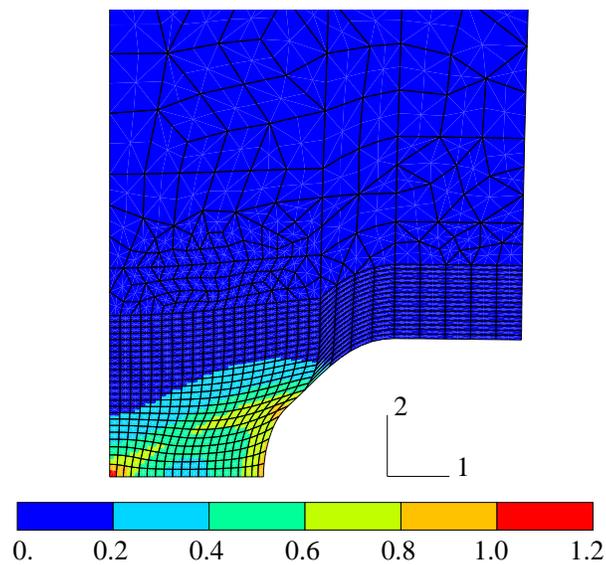
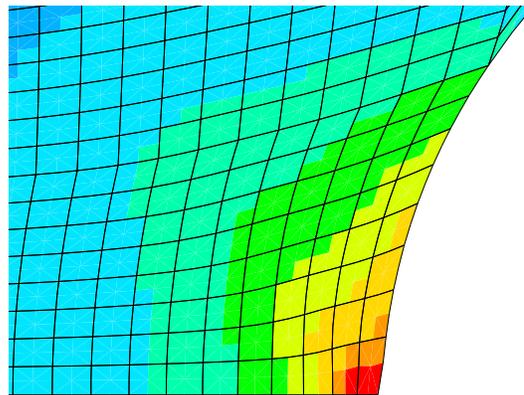
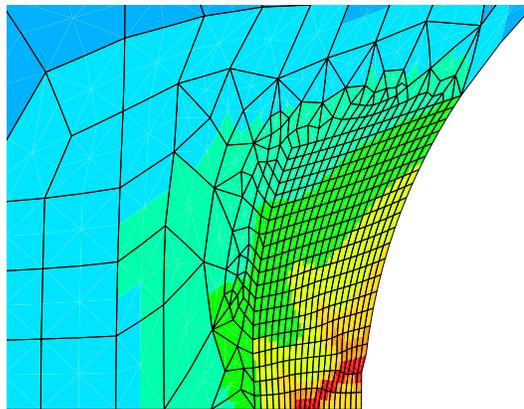


Figure A-II.6 : Isovaleurs de déformation plastique équivalente pour une réduction de largeur de 27 %. Matériau non hydruré, sens long, taille de maille $250 \times 125 \mu\text{m}^2$.



Taille de maille $250 \times 125 \mu\text{m}^2$



Taille de maille $50 \times 50 \mu\text{m}^2$

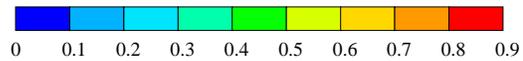


Figure A-II.7 : Isovaleurs de déformation plastique équivalente. Teneur de 283 ppm , sens long, Agrandissement de la zone de l'entaille ($1.5 \times 1.5 \text{ mm}^2$).

Bibliographie

- ABRUDEANU M., VUCU I., DUMITRESCU V., PETOT C., PETOT-ERVAS C., ARCHAMBAULT P., PETRESCU M, ET PETRESCU N. (1993). *Microstructure and electron microprobe study of oxide obtained on Zircaloy-4 by oxidation at high temperature*. In : Microscopy of oxydation 2 – Proceedings of the second international conference, Selwyn College, University of Cambridge, Mar 29–31, pp 387–395.
- ACHON P. (1994). *Comportement et ténacité d'alliages d'aluminium à haute résistance*. Thèse de Doctorat, Ecole des Mines de Paris.
- AECL-5261 (1976). *Some engineering aspects of the investigation into the cracking of pressure tubes in the Pickering reactor*.
- ALLAIS V., VAUBERT V., ET TOURNIÉ I. (1996). *Anisotropie de comportement d'une tôle de zirconium α* . In : Le zirconium – Journées d'études propriétés-microstructures, éd. Cailletaud G. et Lemoine P., pp 257–266. Les éditions de physique.
- ANTONI-LE GUYADEC F. (1990). *Approche mécano-chimique de l'oxydation du Zircaloy-4*. Thèse de Doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble.
- ARSÈNE S. (1997). *Effet de la microstructure et de la température sur la transition ductile-fragile des Zircaloy hydrurés*. Thèse de Doctorat, Ecole Centrale Paris.
- ARSÈNE S. (1998). *Communication personnelle*. In : Forum FIRTECH, 4 Juillet 1998, Ecole Centrale de Paris.
- BAI J. (1992). *Nocivité des hydrures dans le Zircaloy-4*. Thèse de Doctorat, Ecole Centrale Paris.
- BAI J.B. (1993). *Influence of an oxide layer on the hydride embrittlement in Zircaloy-4*. Scripta Met. et Mat, vol. 29, pp 617–622.
- BAI J.B. (1996). *Effect of hydriding temperature and strain rate on the ductile-brittle transition in β treated Zircaloy-4*. Journal of Nuclear Science and Technology, vol. 33 n° 2, pp 141–146.
- BAI J.B., JI N., GILBON D., PRIOUL C., ET FRANÇOIS D. (1994a). *Hydride embrittlement in Zircaloy-4 : Part II. Interaction between the tensile stress and the hydride morphology*. Met. and Mat. Trans. A, vol. 25, pp 1199–1208.
- BAI J.B., PRIOUL C., ET FRANÇOIS D. (1994b). *Hydride embrittlement in Zircaloy-4 : Part I. Influence of Microstructure on the hydride embrittlement in Zircaloy-4 at 20 °C and 350 °C*. Met. and Mat. Trans. A, vol. 25, pp 1185–1197.

- BAI J.B., PRIOUL C., LANSIART S., ET FRANÇOIS D. (1991). *Brittle fracture induced by hydrides in Zircaloy-4*. Scripta Met. et Mat., vol. 25, pp 2559–2563.
- BALLINGER R.G., LUCAS G.E., ET PELLOUX R.M. (1984). *The effect of plastic strain on the evolution of crystallographic texture in Zircaloy-2*. Journal of Nuclear Materials, vol. 126, pp 53–69.
- BALLINGER R.G. ET PELLOUX R.M. (1981). *The effect of anisotropy on the mechanical behavior of Zircaloy-2*. Journal of Nuclear Materials, vol. 97, pp 231–253.
- BARRACLOUGH K.G. ET BEEVERS C.J. (1969). *Some observations on the deformation characteristics of bulk polycrystalline zirconium hydrides. Part I : The deformation and fracture of hydrides based on the δ phase*. Journal of Materials Science, vol. 4, pp 518–525.
- BAUVINEAU L. (1996). *Approche locale de la rupture ductile. Application à un acier Carbone-Manganèse*. Thèse de Doctorat, Ecole des Mines de Paris.
- BEIE H.J., MITWALSKY A., GARZAROLLI F., RUHMANN H., ET SELL H.J. (1994). *Examination of the corrosion mechanism of zirconium alloys*. In : Zirconium in the Nuclear Industry : Tenth International Symposium, pp 615–643. ASTM STP 1245.
- BENZERGA A. A., BESSON J., ET PINEAU A. (1997). *Modèle couplé comportement-endommagement ductile de tôles anisotropes*. In : Actes du Troisième Colloque National en Calcul des Structures, éd. Peseux B., Aubry D., Pelle J.P., et Touratier M., pp 673–678. Presses Académiques de l'Ouest.
- BÉRANGER G. (1967). *Première thèse : Relation entre la cinétique d'oxydation du zirconium α et les phénomènes de diffusion de l'oxygène dans le film d'oxyde et le métal sous-jacent*. Thèse de Doctorat, Faculté des Sciences de l'Université de Paris.
- BEREMIN F.M. (1981). *Cavity formation from inclusions in ductile fracture of A508 steel*. Met. Trans. A, vol. 12, pp 723–731.
- BESSON J. (1998). *Mémoire d'habilitation à diriger des recherches*.
- BOURCIER R.J. ET KOSS D.A. (1982). *A fracture limit diagram for determining hydrogen embrittlement of sheet under multiaxial loading conditions*. Scripta Metallurgica, vol. 16, pp 515–518.
- BRADBROOK J.S., LORIMER G.W., ET RIDLEY N. (1972). *The precipitation of zirconium hydride in zirconium and Zircaloy-2*. Journal of Nuclear Materials, vol. 42, pp 142–160.
- BRADHURST D.H. ET HEUER P.M. (1970). *The influence of oxide stress on the breakaway oxidation of Zircaloy-2*. Journal of Nuclear Materials, vol. 37, pp 35–47.
- BRUNET M., SABOURIN F., ET MGUIL-TOUCHAL S. (1996). *The prediction of necking and failure in 3D sheet forming analysis using damage variable*. In : 1st European mechanics of materials conference on local approach to fracture, éd. Pineau A. et Rousselier G., pp C6.473–C6.482.

- BRUNETEAU E. (1998). *Etude de l'évolution des propriétés mécaniques en traction du tube-guide M5 en fonction de la teneur en hydrogène*. In : Rapport Interne Framatome – TF.JD/DC/1083 –Rev A.
- CAILLETAUD G. (1992). *A mechanical approach to inelastic behavior of metals*. International Journal of Plasticity, vol. 8, pp 55–73.
- CARÉ S. (1995). *Plasticité et endommagement du zirconium- α déformé en traction à température ambiante*. Thèse de Doctorat, Ecole Polytechnique.
- CARPENTER G.J.C. (1973). *The dilatational misfit of zirconium hydrides precipitated in zirconium*. Journal of Nuclear Materials, vol. 48, pp 264–266.
- CHAN K.S. ET KOSS D.A. (1983). *Deformation and fracture of strongly textured Ti alloy sheets in uniaxial tension*. Met. Trans. A, vol. 14, pp 1333–1342.
- CHOUBEY R. ET PULS M.P. (1994). *Crack initiation at long radial hydrides in Zr-2.5 Nb pressure tube material at elevated temperatures*. Met. and Mat. Trans. A, vol. 25, pp 993–1004.
- COLEMAN C.E. ET HARDIE D. (1966). *The hydrogen embrittlement of α -zirconium – A review*. Journal of the Less Common Metals, vol. 11, pp 168–185.
- COOK C.S., SABOL G.P., SEKERA K.R., ET RANDALL S.N. (1991). *Texture control in Zircaloy tubing through processing*. In : Zirconium in the Nuclear Industry : Ninth International Symposium, pp 80–95. ASTM STP 1132.
- COX B. (1969). *Processes occurring during the breakdown of oxide films on zirconium alloys*. Journal of Nuclear Materials, vol. 29, pp 50–66.
- DASGUPTA P. ET ARUNACHALAM V.S. (1968). *Thermally activated deformation in dilute zirconium/oxygen alloys*. Journal of Material Science, vol. 3, pp 271–281.
- DELOBELLE P., ROBINET P., GEYER P., ET BOUFFIOUX P. (1996). *Etude du comportement viscoplastique anisotrope du Zircaloy-4 dans deux états métallurgiques, recristallisé et détendu*. In : Le zirconium – Journées d'études propriétés-microstructures, éd. Cailletaud G. et Lemoine P., pp 111–121. Les éditions de physique.
- DEREP J.L., IBRAHIM S., ROUBY R., ET FANTOZZI G. (1980). *Deformation behavior of Zircaloy-4 between 77 and 900 K*. Acta Metallurgica, vol. 28, pp 607–619.
- D'ESCATHA Y. ET DEVAUX J.C. (1979). *Numerical study of initiation, stable crack growth, and maximum load, with a ductile fracture criterion based on the growth of holes*. In : Elastic-Plastic Fracture, éd. Landes J.D., Begley J.A., et Clarke G.A., pp 229–248. ASTM STP 668.
- DEVAUX J.C., MUDRY F., PINEAU A., ET ROUSSELIER G. (1989). *Experimental and numerical validation of a ductile fracture criterion based on a simulation of cavity growth*. In : Nonlinear Fracture Mechanics : Volume II – Elastic-Plastic Fracture, éd. Landes J.D., Saxena A., et Merkle J.G., pp 7–23. ASTM STP 995.

- DEVILLERS-GUERVILLE L. (1998). *Rupture d'aciers inoxydables austéno-ferritiques moulés, fragilisés par vieillissement à 350–400°C : Aspects microstructuraux – Simulation numérique de la dispersion et des effets d'échelle*. Thèse de Doctorat, Ecole des Mines de Paris.
- DEVILLERS-GUERVILLE L., BESSON J., ET PINEAU A. (1997). *Notch fracture toughness of a cast duplex stainless steel: modelling of experimental scatter and size effect*. Nuclear Engineering and Design, vol. 168, pp 211–225.
- DONALDSON A.T. (1991). *Growth in Zircaloy-4 fuel clad arising from oxidation at temperatures in range 623 to 723 K*. In : Zirconium in the Nuclear Industry : Ninth International Symposium, pp 177–197. ASTM STP 1132.
- DUTTON R., NUTTALL K., PULS M.P., ET SIMPSON L.A. (1977). *Mechanisms of hydrogen induced delayed cracking in hydride forming materials*. Met. Trans. A, vol. 8, pp 1553–1562.
- ELLS C.E. (1968). *Hydride precipitates in zirconium alloys (a review)*. Journal of Nuclear Materials, vol. 28, pp 129–151.
- ELLS C.E. (1970). *Stress orientation of hydride in zirconium alloys*. Journal of Nuclear Materials, vol. 35, pp 306–315.
- ELLYIN F. ET WU J. (1994). *Effect of hydride precipitation on the elastoplastic stress field near a crack tip*. Acta Metall. Mater., vol. 42 n° 8, pp 2709–2717.
- ESPAGNO L., AZOU P., ET BASTIEN P. (1960). *Etude dilatométrique du système zirconium-hydrogène*. Mémoires Scientifiques Rev. Métallurg., vol. 57 n° 4, pp 254–260.
- EVANS W. ET PARRY G.W. (1966). *The deformation behavior of Zircaloy-2 containing directionally oriented zirconium hydride precipitates*. Electrochemical Technology, vol. 4 n° 5–6, pp 225–231.
- FEARNEHOUGH G.D. ET COWAN A. (1967). *The effect of hydrogen and strain rate on the ductile-brittle behaviour of Zircaloy*. Journal of Nuclear Materials, vol. 22, pp 137–147.
- FERRON G. (1981). *Influence of heat generation and conduction on plastic stability under uniaxial tension*. Mat. Sci. Eng., vol. 49, pp 241–248.
- FERRON G. (1982). *The effect of the interruption of straining on non-uniform plastic flow in tension*. Mat. Sci. Eng., vol. 52, pp 133–138.
- FOORD D.T. ET NEWCOMB S.B (1993). *Instabilities in the oxidation behavior of Zircaloy-4*. In : Microscopy of oxydation 2 – Proceedings of the second international conference, Selwyn College, University of Cambridge, Mar 29–31, pp 374–386.
- FRANÇOIS D., PINEAU A., ET ZAOUÏ A. (1993). *Comportement mécanique des matériaux. Viscoplasticité, endommagement, mécanique de la rupture, mécanique du contact*. Hermès.
- FRÉCHINET S. (1998). *Communication personnelle*. In : Comportement mécanique et transformation de phase dans les alliages de zirconium – à venir.

- GARDE A.M. (1991). *Enhancement of aqueous corrosion of Zircaloy-4 due to hydride precipitation at the metal-oxide interface*. In : Zirconium in the Nuclear Industry : Ninth International Symposium, pp 566-594. ASTM STP 1132.
- GARZAROLLI F., SEIDEL H., TRICOT R., ET GROS J.P. (1991). *Oxide growth mechanism on zirconium alloys*. In : Zirconium in the Nuclear Industry : Ninth International Symposium, pp 395-415. ASTM STP 1132.
- GEYER P. (1996). *Etude et modélisation du comportement élastoviscoplastique de tubes en Zircaloy par une approche polycristalline*. Présentation à l'ENSMP.
- GHOSH A.K. (1974). *Strain localization in diffuse neck in sheet metal*. Met. Trans., vol. 5, pp 1607-1616.
- GHOSH A.K. (1977). *Tensile instability and necking in materials with strain hardening and strain-rate hardening*. Acta Metall., vol. 25, pp 1413-1424.
- GRANGE M. (1996). *Etude de l'influence d'une couche d'oxyde sur le comportement mécanique du Zircaloy-4 hydruré*. In : Rapport Interne Framatome - TFJD/DC/520 -Rev 0.
- GRANGE M. (1998). *Endommagement et rupture du Zircaloy-4 hydruré*. In : Compte rendu de réunion sur le séminaire des doctorants et post-doctorants sur le zirconium dans l'industrie nucléaire -Session II - Cadarache - 30-31 Mars 1998.
- GRANGE M., BESSON J., MOLINS R., ANDRIEU E., ET DIZ J. (1997a). *Damage and rupture of hydrided Zircaloy-4 sheets*. In : Trans. of the 14th International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology (SMIRT 14) - Section L - Lyon, Aug 17-22, pp 149-156.
- GRANGE M., DIZ J., BESSON J., MOLINS R., ET ANDRIEU E. (1997b). *Combined effects of oxide and hydride on the mechanical behavior of Zircaloy-4*. In : Eighth International Symposium on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems - Water Reactors. Vol. 2. Amelia Island, Florida, Aug 10-14, pp 990-996. American Nuclear Society, Inc.
- GURSON A.L. (1977). *Continuum theory of ductile rupture by void nucleation and growth: Part I - Yield criteria and flow rules for porous ductile media*. Journal of Engineering Materials and Technology, vol. 99, pp 2-15.
- HARDIE D. ET SHANAHAN M.W. (1975). *Stress reorientation of hydrides in zirconium-2.5 % Niobium*. Journal of Nuclear Materials, vol. 55, pp 1-13.
- HART E.W. (1967). *Theory of the tensile test*. Acta Metallurgica, vol. 15, pp 351-355.
- HELBERT A.L., FEAUGAS X., ET CLAVEL M. (1996). *The influence of stress triaxiality on the damage mechanisms in an equiaxed $\alpha - \beta$ Ti-6Al-4V alloy*. Met. and Mat. Trans. A, vol. 27, pp 3043-3057.
- HILL R. (1950). In : The mathematical theory of plasticity, éd. Clarendon Press.

- HILLNER E., KASS J.N., ET KEARNS J.J. (1972). *Hydrogen supercharging during corrosion of Zircaloy*. Journal of Nuclear Materials, vol. 45, pp 175–178.
- HUANG F.H. ET MILLS W.J. (1991). *Delayed hydride cracking behavior for Zircaloy-2 tubing*. Met. Trans. A, vol. 22, pp 2049–2060.
- HUANG J.H. ET HUANG S.P. (1994). *Effect of hydrogen contents on the mechanical properties of Zircaloy-4*. Journal of Nuclear Materials, vol. 208, pp 166–179.
- HUANG J. H. ET HUANG S.P. (1993). *Hydriding of zirconium alloys in hydrogen gas*. Mat. Sci. Eng. A, vol. 161, pp 247–253.
- HUEZ J. (1996). *Influence de l'hydrogène sur les mécanismes d'endommagement du titane alpha et d'un alliage de titane biphasé alpha/bêta*. Thèse de Doctorat, Université de Technologie de Compiègne.
- HUEZ J., FEAUGAS X., HELBERT A.L., GUILLOT I., ET CLAVEL M. (1998). *Damage process in commercially pure α -Titanium alloy without (Ti_4O) and with (Ti_4OH) hydrides*. Met. and Mat. Trans. A, vol. 29, pp 1615–1628.
- HUTCHINSON B. ET LEHTINEN B. (1994). *A theory of the resistance of Zircaloy to uniform corrosion*. Journal of Nuclear Materials, vol. 217, pp 243–249.
- HUTCHINSON J.W. ET NEALE K.W. (1977). *Influence of strain-rate sensitivity on necking under uniaxial tension*. Acta Metall., vol. 25, pp 839–846.
- JENSEN J.A. ET BACKOFEN W.A. (1972). *Deformation and fracture of alpha zirconium alloys*. Can. Metall. Quart., vol. 11 n° 1, pp 39–51.
- KAUFMANN P.D. ET BAROCH E.F. (1974). *Potential for improvement of mechanical properties in Zircaloy Cold-Rolled strip and sheet*. In : Zirconium in Nuclear Applications, pp 129–139. ASTM STP 551.
- KEARNS J.J. (1967). *Terminal solubility and partitioning of hydrogen in the alpha phase of zirconium, Zircaloy-2 and Zircaloy-4*. Journal of Nuclear Materials, vol. 22, pp 292–303.
- KEARNS J.J. (1972). *Diffusion coefficient of hydrogen in alpha zirconium, Zircaloy-2 and Zircaloy-4*. Journal of Nuclear Materials, vol. 43, pp 330–338.
- KELLY P.M. ET SMITH P.D. (1973). *Strain-ageing in zirconium alloys*. Journal of Nuclear Materials, vol. 46, pp 23–34.
- KIDO T. (1993). *A study on uniform corrosion of Zircaloy-4 cladding during high burnup operation in PWR*. In : Sixth International Symposium on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems–Water Reactors. San Diego, Aug 1–5, éds. Gold R.E. et Simonen E.P, pp 449–455. The Minerals, Metals & Materials Society.
- LAUTRIDOU J.C. (1980). *Etude de la déchirure ductile d'aciers à faible résistance. Influence de la teneur inclusionnaire*. Thèse de Doctorat, Ecole des Mines de Paris.
- LECALLIER I. (1996). *Etude de l'influence d'une couche d'oxyde sur le comportement mécanique du Zircaloy-4 hydruré*. Rapport de DEA, Ecole des Mines de Paris.

- LEMAIGNAN C. ET NÖEL D. (1998). *La corrosion des alliages de zirconium*. In : Endomagement des matériaux dans les centrales nucléaires à eau pressurisée, éd. Berge P. et Zacharie P., pp 91–104. Eyrolles.
- LEMAITRE J. (1985). *A continuous damage mechanics model for ductile fracture*. J. of Eng. Materials and Technology, Trans. ASME, vol. 107, pp 83–89.
- LIU Y., MURAKAMI S., ET KANAGAWA Y. (1994). *Mesh-dependance and stress singularity in finite element analysis of creep crack growth by the continuum damage mechanics approach*. European Journal of Mechanics and Solids, vol. 13 n° 3, pp 395–417.
- MACEWEN S.R., CHRISTODOULOU N., ET SALINAS-RODRIGUEZ A. (1990). *Residual grain-interaction stresses in zirconium alloys*. Met. Trans. A, vol. 20, pp 1083–1095.
- MAHMOOD S.T. ET MURTY K.L. (1989). *Localized plastic flow, anisotropic mechanical properties and crystallographic texture in Zircaloy sheet*. J. Mater. Eng., vol. 11, pp 315–329.
- MARINO G.P. (1971). *Hydrogen supercharging in Zircaloy*. Mat. Sci. Eng., vol. 7, pp 335–341.
- MARSHALL R.P. ET LOUTHAN JR. M.R. (1963). *Tensile properties of Zircaloy with oriented hydrides*. Trans. of ASM, vol. 56, pp 693–700.
- MCCLINTOCK F.A. (1968). *A criterion for ductile fracture by the growth of holes*. Journal of Applied Mechanics, vol. 35, pp 363–371.
- MILSS J.W. ET HUANG F.H. (1991). *Delayed hydride cracking behavior for Zircaloy-2 plate*. Engineering Fracture Mechanics, vol. 39 n° 2, pp 241–257.
- MUELLER W.M., BLACKLEDGE J.P., ET G.G LIBOWITZ (1968). *Metal Hydrides*. Academic Press.
- NAKAMURA J., HASHIMOTO M., OTOMO T., ET KAWASKI S. (1993). *Effects of oxygen partial pressure on oxidation of Zircaloy*. Journal of Nuclear Materials, vol. 200, pp 256–264.
- NATH B., LORIMER G.W., ET RIDLEY N. (1973). *The relationship between gamma and delta hydrides in zirconium-hydrogen alloys of low hydrogen concentration*. Journal of Nuclear Materials, vol. 49, pp 262–280.
- NATH B., LORIMER G.W., ET RIDLEY N. (1996). *The terminal solid solubility of hydrogen and deuterium in Zr-2.5Nb alloys*. Journal of Nuclear Materials, vol. 228, pp 227–237.
- NEEDLEMAN A. ET TVERGAARD V. (1984). *An analysis of ductile rupture in notched bars*. J. Mech. Phys. Solids, vol. 32 n° 6, pp 461–490.
- NICHOLS F.A. (1980). *Plastic instabilities and uniaxial tensile ductilities—Overview no. 7*. Acta Metallurgica, vol. 28, pp 663–673.
- NORTHWOOD D.O. ET KOSASIH U. (1983). *Hydrides and delayed hydrogen cracking in zirconium and its alloys*. International Metals Reviews, vol. 28 n° 2, pp 92–121.

- ÖSTBERG G. (1971). *On the relationship between texture and hydride orientation in zirconium*. Journal of Nuclear Materials, vol. 40, pp 53–56.
- PARISE M. (1996). *Mécanismes de corrosion des alliages de zirconium. Etude des cinétiques initiales d'oxydation et du comportement du système métal-oxyde*. Thèse de Doctorat, Ecole des Mines de Paris.
- PARISE M., SICARDY O., ET CAILLETAUD G. (1998). *Modelling of the mechanical behavior of the metal-oxide system during Zr alloy oxidation*. Journal of Nuclear Materials, vol. 256, pp 35–46.
- PARTRIDGE P.G. (1967). *The crystallography and deformation modes of hexagonal close-packed metals*. Metallurgical Reviews, vol. 118, pp 169–194.
- PEGOUD J. ET GUILLAUMIN J. (1972). *Orientations cristallographiques de l'hydrure dans le Zircaloy-2 polycristallin*. Journal of Nuclear Materials, vol. 45, pp 69–72.
- PEROVIC V., PURDY G.R., ET BROWN L.M. (1981). *The role of shear transformation strains in the formation of linear arrays of precipitates*. Scripta Met., vol. 15, pp 217–221.
- PEROVIC V. ET WEATHERLY G.C. (1984). *The nucleation of hydrides in a Zr-2.5wt% Nb alloy*. Journal of Nuclear Materials, vol. 126, pp 160–169.
- PEROVIC V., WEATHERLY G.C., MACEWEN S.R., ET LEGER M. (1992). *The influence of prior deformation on hydride precipitation in Zircaloy*. Acta Metall. Mater., vol. 40 n° 2, pp 363–372.
- PEROVIC V., WEATHERLY G.C., ET SIMPSON C.J. (1982). *The role of elastic strains in the formation of stacks of hydrides precipitates in zirconium alloys*. Scripta Met., vol. 16, pp 409–412.
- PEROVIC V., WEATHERLY G.C., ET SIMPSON C.J. (1983). *Hydride precipitation in α/β zirconium alloys*. Acta Metall., vol. 31 n° 9, pp 1381–1391.
- PERRIN G. ET LEBLOND J.B. (1990). *Analytical study of a hollow sphere made of plastic porous material and subjected to hydrostatic tension – Application to some problems in ductile fracture of metals*. International Journal of Plasticity, vol. 6, pp 677–699.
- PHILIPPE M.J., ESLING C., ET HOCHÉID B. (1984). *Evolution de la texture du titane et du zirconium au cours de la déformation et influence de cette évolution sur l'aptitude au formage*. Mémoire et Etudes Scientifiques Revue de Métallurgie, vol. 81 n° 2, pp 71–79.
- PILVIN P. (1994). *The contribution of micro mechanical approaches to the modelling of inelastic behavior of polycrystals*. In : International Conference on biaxial / multiaxial Fatigue. FRANCE - ESIS/SF2M., pp 31–46.
- PINEAU A. (1981). *Review of fracture micromechanisms and local approach to predicting crack resistance in low strength steels*. In : Advances in Fracture Research, Trans. of the 5th International Conference on Fracture. Volume 2. Cannes, Mar 29–Apr 3, éd. François D., pp 553–577.

- PRAT F. (1994). *Etude et modélisation de l'effet de l'hydruration sur le comportement mécanique de composants de structure en Zircaloy-4*. Thèse de Doctorat, Ecole des Mines de Paris.
- PRAT F., GRANGE M., BESSON J., ET ANDRIEU E. (1998). *Behavior and rupture of hydrided Zircaloy-4 tubes and sheets*. Met. and Mat. Trans A., vol. 29, pp 1643–1652.
- PRIOUL C. (1998). *Questions à l'exposé : Endommagement et rupture du Zircaloy-4 hydruré par M. Grange*. In : Compte rendu de réunion sur le séminaire des doctorants et post-doctorants sur le zirconium dans l'industrie nucléaire –Session II – Cadarache – 30–31 Mars 1998.
- PUJOL C. (1994). *Etude des mécanismes de déformation en traction et fluage du Zr α entre 20 et 300° C*. Thèse de Doctorat, Ecole des Mines de Paris.
- PULS M.P. (1981). *The effects of misfit and external stresses on the terminal solid solubility in hydride-forming metals*. Acta Metall., vol. 29, pp 1961–1968.
- PULS M.P. (1988). *The influence of hydride size and matrix strength on fracture initiation at hydrides in zirconium alloys*. Met. Trans. A, vol. 19, pp 1507–1522.
- PULS M.P. (1989). *On the consequences of hydrogen supersaturation effects in zirconium alloys to hydrogen ingress and delayed hydride cracking*. Journal of Nuclear Materials, vol. 165, pp 128–141.
- PULS M.P. (1991). *Fracture initiation at hydrides in zirconium*. Met. Trans. A, vol. 22, pp 2327–2337.
- RICE J.R. ET TRACEY D.M. (1969). *On the ductile enlargement of voids in triaxial stress fields*. Journal of the Mechanics and Physics of Solids, vol. 17, pp 210–217.
- RIVALIN F. (1998). *Développement d'aciers pour gazoducs à haute limite d'élasticité et ténacité élevée. Mécanique et mécanismes de la rupture ductile à grande vitesse*. Thèse de Doctorat, Ecole des Mines de Paris.
- ROBINET P. (1995). *Etude expérimentale et modélisation du comportement viscoplastique anisotrope du Zircaloy-4 dans deux états métallurgiques*. Thèse de Doctorat, Université de Franche-Comté.
- ROUSSELIER G. (1981). *Finite deformation constitutive relations including fracture damage*. In : Three Dimensional Constitutive Relations and Ductile Fracture, éd. Neman-Nasser, pp 331–355. North Holland Publishing Company.
- ROUSSELIER G. (1986). *Les modèles de rupture ductile et leurs possibilités actuelles dans le cadre de l'approche locale de la rupture*. In : Séminaire International sur l'approche locale de la rupture. 3–5 juin 1986, EDF Les Renardières, France.
- ROUSSELIER G. (1987). *Ductile fracture models and their potential in local approach of fracture*. Nuclear Engineering and Design, vol. 105, pp 97–111.
- RUANO O. ET ELSSNER G. (1975). *On solid solution hardening in the zirconium-oxygen system*. Journal of the Less Common Metals, vol. 40, pp 121–128.

- SAGAT S., SHI S.Q., ET PULS M.P. (1994). *Crack initiation at notches in Zr-2.5 Nb alloys*. Mat. Sci. Eng. A, vol. 176, pp 237-247.
- SHI S.Q. ET PULS M.P. (1994). *Criteria for fracture initiation at hydrides in zirconium alloys. I. Sharp crack tip*. Journal of Nuclear Materials, vol. 208, pp 232-242.
- SHI S.Q., PULS M.P., ET SAGAT S. (1994). *Criteria for fracture initiation at hydrides in zirconium alloys. II. Shallow notch*. Journal of Nuclear Materials, vol. 208, pp 243-250.
- SIMPSON L.A. (1981). *Criteria for fracture initiation at hydrides in zirconium 2.5 % niobium alloy*. Met. Trans. A, vol. 12, pp 2133-2124.
- SIMPSON L.A. ET PULS M.P. (1979). *The effects of stress, temperature and hydrogen content on the hydride-induced crack growth in Zr-2.5 pct Nb*. Met. Trans. A, vol. 10, pp 1093-1105.
- SINHA T.K. ET ASUNDI M.K. (1977). *Effect of strain rate and temperature on tensile properties of heat-treated zirconium 2.5wt% niobium alloy*. Journal of Nuclear Materials, vol. 67, pp 311-314.
- SONG S.G. ET GRAY III G.T. (1995). *Influence of temperature and strain rate on slip and twinning behavior of Zr*. Met. and Mat. Trans. A, vol. 26, pp 2665-2675.
- SULISTIJONO, BOUDEN A., CHERFAOUI M., BERANGER G., ET LAMBERTIN M. (1993). *Oxydation du Zircaloy-4 dans l'air à haute température*. Journal de Physique IV - Colloque C9, supplément au Journal de Physique III, vol. 3, pp 439-445.
- TANABE T., MORI K., ET TOMITA M. (1993). *Surface oxydation and oxygen diffusion in zirconium and titanium*. Defect and Diffusion Forum, vol. 95, pp 1083-1088.
- TENCKHOFF (1988). *Deformation mechanisms, texture, and anisotropy in zirconium and Zircaloy*. pp 1-77. ASTM STP 966.
- THOMAZET J., CHARQUET D., SENEVAT J., BILLOT P., ET AMANRICH H (1998). *Comportement à la corrosion des alliages de zirconium hors et sous irradiation*. In : Endommagement des matériaux dans les centrales nucléaires à eau pressurisée, éd. Berge P. et Zacharie P., pp 79-90. Eyrolles.
- TOMÉ C. ET KOCKS U.F. (1985). *The yield surface of H.C.P. crystals*. Acta Metallurgica, vol. 33 n° 4, pp 603-621.
- TRECO R.M. (1953). *Some properties of high purity zirconium and dilute alloys with oxygen*. Transactions of the ASME, vol. 45, pp 872-892.
- TVERGAARD V. (1981). *Influence of voids on shear band instabilities under plane strain condition*. International Journal of Fracture, vol. 17 n° 4, pp 389-407.
- TVERGAARD V. ET NEEDLEMAN A. (1984). *Analysis of the cup-cone fracture in a round tensile bar*. Acta Metall., vol. 32 n° 1, pp 157-169.
- TVERGAARD V. ET NEEDLEMAN A. (1995). *Effect of nonlocal damage in porous plastic solids*. International J. Solids Structures, vol. 32 n° 8, pp 1063-1077.

- TYSON W.R. (1967). *Strengthening of HCP Zr, Ti and Hf by interstitial solutes – a review*. Canadian Metallurgical Quarterly, vol. 6 n° 4, pp 301–332.
- VAN SWAM L.F.P. ET SHANN S.H. (1991). *The corrosion of Zircaloy-4 fuel cladding in pressurized water reactor*. In : Zirconium in the Nuclear Industry : Ninth International Symposium, pp 758–781. ASTM STP 1132.
- VOGEL C. (1996). *Modélisation du comportement et de l'endommagement en fatigue-fluage du zirconium α à 200° C*. Thèse de Doctorat, Ecole des Mines de Paris.
- WADMAN B., LAI Z., H.O. ANDREN, NYSTROM A.L., RUDLING P., ET PETTERSSON H. (1994). *Microstructure of oxide layers formed during autoclave testing of zirconium alloys*. In : Zirconium in the Nuclear Industry : Tenth International Symposium, pp 579–598. ASTM STP 1245.
- WEINSTEIN D. (1966). *Yield point occurrence in polycrystalline alpha-zirconium*. Electrochemical Technology, 7–8, vol. 4, pp 307–312.
- WESTLAKE D.G. (1964). *Precipitation strengthening in crystals of zirconium-hydrogen alloys containing oxygen as an impurity*. Acta Metall., vol. 12, pp 1373–1380.
- WESTLAKE D.G. (1968). *The habit planes of zirconium hydride in zirconium and Zircaloy*. Journal of Nuclear Materials, vol. 26, pp 208–216.
- WESTLAKE D.G. ET OCKERS S.T. (1970). *Hydrogen supercharging during thermal cycling of zirconium*. Journal of Nuclear Materials, vol. 37, pp 236–242.
- YAMANAKA S., MIYAKE M., ET KATSURA M. (1997). *Study on the hydrogen solubility in zirconium alloys*. Journal of Nuclear Materials, vol. 247, pp 315–321.
- YAMANAKA S., TANAKA T., ET MIYAKE M. (1989). *Effect of oxygen on hydrogen solubility in zirconium*. Journal of Nuclear Materials, vol. 167, pp 231–237.
- YUNCHANG F. ET KOSS D.A. (1985). *The influence of multiaxial states of stress on the hydrogen embrittlement of zirconium alloy sheet*. Met. Trans. A, vol. 16, pp 675–681.