



HAL
open science

Étude du comportement visco-plastique du dioxyde d'uranium : quantification par analyse EBSD et ECCI des effets liés aux conditions de sollicitation et à la microstructure initiale

Mariem Ben Saada

► **To cite this version:**

Mariem Ben Saada. Étude du comportement visco-plastique du dioxyde d'uranium : quantification par analyse EBSD et ECCI des effets liés aux conditions de sollicitation et à la microstructure initiale. Matériaux. Université de Lorraine, 2017. Français. NNT : 2017LORR0270 . tel-01810127

HAL Id: tel-01810127

<https://theses.hal.science/tel-01810127v1>

Submitted on 7 Jun 2018

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.



AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

THESE

Pour obtenir le grade de :

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE LORRAINE

Spécialité : Science des Matériaux : Mécanique des matériaux

Mariem BEN SAADA

**Etude du comportement visco-plastique du dioxyde d'uranium :
Quantification par analyse EBSD et ECCI des effets liés aux conditions de
sollicitation et à la microstructure initiale**

*Thèse préparée au CEA Cadarache et au laboratoire LEM3
Laboratoire LCU, CEA, DEN, DEC, Cadarache, 13108 Saint-Paul-Lez-Durance, France
Laboratoire LEM3, UMR CNRS 7239, Université de Lorraine, 57073 Metz Cedex 3, France*

Soutenue le 12 Décembre 2017 à Metz

Membres du jury :

Thierry CHOTARD	Professeur, Université de Limoges	Président
Jean-Marc CHAIX	Directeur de recherche, Grenoble INP	Rapporteur
Guy ANTOU	Maître de Conférences - Université de Limoges	Rapporteur
Muriel VERON	Professeur, Grenoble INP	Examinatrice
Xavière ILTIS	Ingénieur de recherche, CEA Cadarache	Encadrante, Examinatrice
Nabila MALOUFI	Maître de Conférences HDR, Université de Lorraine	Directrice
Nathalie GEY	Chargée de recherche CNRS, Université de Lorraine	Codirectrice, Invitée
Philippe GARCIA	Ingénieur de recherche, CEA Cadarache	Invité

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier ma directrice de thèse, Mme Nabila MALOUFI, ainsi que mes encadrantes, Mme Nathalie GEY et Mme Xavière ILTIS, pour la confiance qu'elles m'ont accordée en acceptant d'encadrer ce travail de thèse, pour leurs multiples conseils et pour toutes les heures qu'elles ont consacrées à diriger cette recherche. J'aimerais également leur dire à quel point j'ai apprécié leur grande disponibilité et leur respect sans faille des délais serrés de relecture des documents que je leur ai adressés. Enfin, j'ai été extrêmement sensible à leurs qualités humaines d'écoute et de compréhension tout au long de ce travail.

Je tiens ensuite à remercier M. Jean-Marc CHAIX et M. Guy ANTOU qui ont accepté d'être les rapporteurs de cette thèse. Mme Muriel VERON et MM. Thierry CHOTARD et Philippe GARCIA m'ont fait l'honneur de participer au Jury de soutenance, je les en remercie profondément.

Mes remerciements vont également à M. Mikhail LEBEDKIN, le directeur du Laboratoire d'Etude des Microstructures et de Mécanique des Matériaux (LEM3), à l'Université de Lorraine, et à M. Jérôme LAMONTAGNE, le chef du Laboratoire des Combustibles Uranium (LCU), au CEA Cadarache, pour m'avoir accueillie au sein de ces deux institutions. Merci également à Mme Marjorie BERTOLUS et à M. Pascal BROS qui ont soutenu cette thèse financièrement et l'ont suivie avec intérêt et bienveillance, dans le cadre des projets dont ils ont la charge au CEA.

Je remercie tous ceux sans qui cette thèse ne serait pas ce qu'elle est, aussi bien par les discussions que j'ai eu la chance d'avoir avec eux, que par leurs suggestions ou contributions. Je pense en particulier ici à Julien GUYON, Haithem MANSOUR, Antoine GUITTON et Benoit BEAUSIR au LEM3, et à Philippe GARCIA, Audrey MIARD, Nicolas TARISIEN, Hélène ROUQUETTE, Joseph SANCHEZ, Andréa SANCHEZ, Philippe SORNAY, Pierre MATHERON, Florent GAREL, Laetitia SILVESTRE et Corinne DRUESNE au LCU, sans oublier tous les autres membres de ces deux laboratoires.

J'adresse une dédicace spéciale à tous mes amis de Metz et de Cadarache qui m'ont apporté leur soutien moral pendant ces années d'études. Je les en remercie sincèrement.

Enfin, un très grand MERCI à toute ma famille qui m'a gratifiée de son amour et m'a fourni les motivations qui ont permis l'aboutissement de mes objectifs. Je leur adresse toute ma gratitude du fond du cœur.

Principales abréviations

A-GOS : Average Grain Orientation Spread

BS : Bande Slope

BSE : Back-Scattered Electrons

CSC : Corrosion Sous Contrainte

DCE : Diamètre Circulaire Equivalent

DVC : Déformation à Vitesse imposée Constante

EBSD : Electron BackScatter Diffraction (Diffraction des électrons rétrodiffusés)

EBSP : Electron BackScatter Pattern

ECCI : Electron Channeling Contrast Imaging (Imagerie par Contraste de Canalisation des électrons)

ECP : Electron Channeling Pattern

FIB : Focused Ion Beam

FSD : ForeScatter Detector

GNDs : Geometrically Necessary Dislocations (Dislocations Géométriquement Nécessaires)

HBS : High Burn-up Structure

HR-SACP : High Resolution Selected Area Channeling Pattern

IPG : Interaction Pastille-Gaine

IQ : Indice de Qualité

JG : Joint de Grain

LVDT : Linear Variable Differential Transformer

MEB : Microscopie Electronique à Balayage

MET : Microscopie Electronique à Transmission

M-GOS : Maximum Grain Orientation Spread

PF : Produits de Fission

PWR : Pressurized Water Reactor

REB : Réacteurs à Eau Bouillante

REP : Réacteur à Eau Pressurisée

SE : Secondary Electrons

SACP : Selected Area Channeling Pattern

S-JG : Sous-Joints de Grains

SSDs : Statistically Stored Dislocations

Table des matières

Introduction générale	11
Chapitre I	15
Contexte et problématique	15
I. 1. Introduction	17
I. 2. UO₂ : Propriétés générales	17
I. 2. 1. Caractéristiques structurales	17
I. 2. 1. 1. Le système U-O	17
I. 2. 1. 2. Structure cristallographique de l'UO ₂	19
I. 2. 1. 3. Nature de la liaison dans l'UO ₂ ou caractère ionique de l'UO ₂	20
I. 2. 2. Quelques propriétés thermo-physiques	21
I. 2. 2. 1. Propriétés thermiques	21
I. 2. 2. 2. Propriétés de diffusion	22
I. 2. 3. Propriétés mécaniques	23
I. 2. 3. 1. Transition d'un comportement fragile vers un comportement viscoplastique	23
I. 2. 3. 2. Le comportement élastique	24
I. 2. 3. 3. Comportement viscoplastique et nature des dislocations	25
I. 3. Le combustible nucléaire UO₂	26
I. 3. 1. Fabrication du combustible	26
I. 3. 1. 1. Procédé de frittage des pastilles	26
I. 3. 1. 2. Le crayon combustible	27
I. 3. 1. 3. Maîtrise de la microstructure des pastilles	28
I. 3. 2. Comportement du combustible en réacteur, en régime nominal	31
I. 3. 2. 1. Aspects thermiques, évolution du jeu pastille-gaine	31
I. 3. 2. 2. Effets de l'irradiation sur la microstructure du combustible	33
I. 3. 3. 1. Interaction Pastille-Gaine	34
I. 3. 3. 2. Evolution de la microstructure de l'UO ₂	35
I. 4. Comportement viscoplastique macroscopique de l'UO₂ hors irradiation	37
I. 4. 1. Essais mécaniques réalisés sur les pastilles d'UO₂	38
I. 4. 2. Influence des conditions de sollicitation sur le comportement viscoplastique	39
I. 4. 2. 1 Influence de la contrainte	39
I. 4. 2. 2. Influence de la température	41
I. 4. 3. Influence des paramètres structuraux et microstructuraux	41
I. 4. 3. 1. Influence de l'écart à la stœchiométrie	41
I. 4. 3. 3. Influence de la porosité	43
I. 5. Evolution des microstructures et mécanismes associés	44
I. 5. 1. Apparition de cavités	45
I. 5. 2. Formation de sous-structures de déformation	46
I. 6. Bilan, axes d'étude	47
Chapitre II	51
Fabrication et caractéristiques microstructurales des matériaux étudiés - Mise en œuvre et résultats des essais mécaniques	51
II. 1. Introduction	53

II. 2. Fabrication de pastilles d'UO₂ de microstructures contrôlées.....	53
II. 2. 1. Cahier des charges.....	53
II. 2. 2. Conditions de fabrication des deux lots de pastilles d'UO ₂	54
II. 2. 3. Caractéristiques générales des pastilles d'UO ₂	55
II. 3. Techniques et méthodologie pour la caractérisation microstructurale	56
II. 3. 1. Préparation des échantillons	56
II. 3. 2. Acquisition et analyse d'images électroniques.....	57
II. 3. 2. 1 Microscopie électronique à balayage	57
II. 3. 2. 2. Analyse d'images : quantification de la porosité inter- et intra-granulaire	58
II. 3. 3. Acquisition de cartographies d'orientations par EBSD	60
II. 3. 3. 1. Présentation succincte de la technique EBSD	60
II. 3. 3. 2. Conditions d'acquisition et de pré-traitement des cartes EBSD	61
II. 3. 3. 3. Analyse de la taille de grains par EBSD	63
II. 4. Caractéristiques des deux lots de pastilles	65
II. 4. 1. Analyse des cartographies EBSD	65
II. 4. 2. Analyse comparative de la taille des grains	67
II. 4. 3. Analyse comparative de la répartition et de la taille des pores.....	69
II. 5. Conditions de réalisation et d'exploitation des essais mécaniques de compression	71
II. 5. 1. Choix des conditions d'essais mécaniques	71
II. 5. 1. 1. Température des essais	71
II. 5. 1. 2. Gammes de contrainte appliquée et de vitesse de déformation	72
II. 5. 2. Présentation de la machine d'essai.....	74
II. 5. 3. Types d'essais et protocoles de réalisation	75
II. 5. 3. 1. Essais de Déformation à Vitesse Constante (DVC)	75
II. 5. 3. 2. Essais de fluage à contrainte imposée	76
II. 5. 3. 3. Conditions de refroidissement.....	77
II. 5. 3. 4. Reproductibilité des essais.....	78
II. 5. 4. Détermination de la vitesse de fluage et de la contrainte appliquée à partir des courbes des essais de compression.....	79
II. 6. Synthèse.....	82
 Chapitre III.....	 83
<i>Développement d'une méthodologie d'analyse des microstructures de déformation par fluage des pastilles d'UO₂.....</i>	<i>83</i>
III. 1. Introduction	85
III. 2. L'EBSD : Optimisation de l'acquisition et du traitement des données pour l'étude de la sous-structure de déformation de l'UO ₂	85
III. 2. 1. Rappel des notions de base pour la détection et l'indexation des clichés de Kikuchi	85
III. 2. 2. Optimisation des conditions d'acquisition des données EBSD	87
III. 2. 3. Optimisation du pré-traitement des données EBSD acquises sur matériaux poreux	88
III. 2. 3. 1. Correction des désorientations artificielles au voisinage des pores	88
III. 2. 3. 2. Filtrage des données	91
III. 3. « A-ECCI » Méthode innovante d'analyse des dislocations dans l'UO ₂ massif	91
III. 3. 1. Principe de la technique « Accurate-ECCI ».....	91
III. 3. 2. Détermination de l'orientation précise du cristal : ECP et SACP.....	93
III. 4. Exemple d'application à l'UO ₂ déformé - Validation de la méthodologie	95
III. 4. 1. Carte EBSD en mode « résolution angulaire améliorée » pour la détection de sous-joints désorientés jusqu'à 0,1°	95

III. 4. 2. Analyse par ECCI des arrangements de dislocations en sous-joints.....	98
III. 5. Analyse quantitative par EBSD de la sous-structure induite par fluage : cartes EBSD "larges"	102
III. 5. 2. Quantification des sous-joints de grains induits par fluage	105
III. 5. 3. Quantification de la taille moyenne des sous-grains	106
III. 6. Evaluation de la densité des Dislocations Géométriquement Nécessaires.....	107
III. 6. 1. Considérations générales.....	107
III. 6. 2. Application du calcul des densités de GNDs aux données EBSD acquises sur l'UO ₂	108
III. 6. 3. Analyse et discussion des résultats	109
III. 7. Conclusion.....	111
 Chapitre IV	113
<i>Effet des conditions de déformation viscoplastique sur le comportement mécanique et sur l'évolution de la microstructure L1</i>	113
IV. 1. Introduction.....	115
IV. 2. Comportement mécanique macroscopique	115
IV. 2. 1. Nomenclature des échantillons testés en compression	115
IV. 2. 2. Courbes de fluage.....	118
IV. 2. 3. Courbes de DVC.....	119
IV. 2. 4. Mécanismes de fluage : diffusionnel/dislocationnel.....	120
IV. 2. 4. 1. Contrainte de transition.....	120
IV. 2. 4. 2. Exposants de contrainte et mécanismes de fluage	120
IV. 3. Analyse de l'évolution microstructurale en fluage diffusionnel	122
IV. 3. 1. Absence de sous-structuration au sein des grains.....	122
IV. 3. 2. Absence d'évolution de la porosité avec la déformation	124
IV. 3. 3. Transition entre les domaines de fluage diffusionnel et dislocationnel	124
IV. 4. Analyse de l'évolution microstructurale en fluage dislocationnel	125
IV. 4. 1. Influence du taux de déformation sur la microstructure.....	125
IV. 4. 2. Influence de la vitesse de déformation.....	128
IV. 4. 2. 1. Cas du groupe G2_L1(d7).....	129
IV. 4. 2. 2. Cas du groupe G3_L1(d11).....	132
IV. 4. 3. Cas d'une pastille déformée à vitesse et taux de déformation élevés.....	137
IV. 4. 4. Quantités additionnelles déduites des données EBSD	138
IV. 4. 4. 1. Evolution de la taille des sous-grains avec la déformation.....	139
IV. 4. 4. 2. Evolution de la densité des GNDs avec la déformation	140
VI. 5. Effet de différents paramètres expérimentaux sur les grandeurs déterminées par EBSD.....	142
IV. 5. 1. Localisation de la zone la plus déformée dans les pastilles testées mécaniquement	142
IV. 5. 2. Reproductibilité des essais mécaniques et des résultats des caractérisations par EBSD	144
IV. 5. 3. Comparaison d'un essai de fluage et d'un essai de DVC, réalisés dans des conditions similaires	145
IV. 5. 4. Influence de la vitesse de refroidissement sur les microstructures obtenues après essais mécaniques	148
IV. 5. 5. Bilan	150
IV. 6. Analyse des réseaux de dislocation dans les sous-joints de grains	151
IV. 6. 1. Etude comparative par EBSD et par ECCI de S-JG	151
IV. 6. 2. Analyse d'un réseau de dislocations par Accurate-ECCI	155
IV. 7. Conclusion	161
 Chapitre V	163

<i>Influence de la microstructure sur le comportement visco-plastique de l'UO₂</i>	163
V. 1. Introduction	165
V. 2. Comportement mécanique macroscopique : Analyse comparative des microstructures L1 et L2	165
V. 2. 1. Rappel des principales caractéristiques microstructurales des lots L1 et L2	165
V. 2. 2. Campagne d'essais de compression uniaxiale	165
V. 2. 3. Courbes de comportement mécanique	167
V. 2. 4. Régimes diffusionnel et dislocationnel : influence de la microstructure	169
V. 2. 4. 1. Exposant de la contrainte et contrainte de transition	169
V. 2. 4. 2. Domaine de fluage diffusionnel	171
V. 2. 4. 3. Domaine de fluage dislocationnel	173
V. 3. Evolution de la microstructure de déformation : Effet de la microstructure initiale	173
V. 3. 1. Influence du taux de déformation	173
V. 3. 1. 1. Influence du taux de déformation sur la microstructure L2	173
V. 3. 1. 2. Effet du taux de déformation dans les deux lots	178
V. 3. 2. Influence de la vitesse de déformation dans les deux lots	179
V. 3. 3. Evolution de la taille des sous-grains dans les deux microstructures en fonction des conditions de sollicitation	182
V. 3. 4. Répartition spatiale des sous-joints de grains : influence de la porosité	184
V. 4. Discussion : Comportement des microstructures L1 et L2 dans le domaine du fluage dislocationnel	188
V. 4. 1. Rappel des principaux résultats obtenus	188
V. 4. 2. La sous-structuration	188
V. 4. 2. Rôle des pores	191
V. 4. 3. Quelques points à retenir en vue d'optimiser le comportement en service de l'UO₂	192
V. 5. Conclusion	193
 Conclusion et perspectives	195
 Références	201
 Annexes	213
Annexe A : Systèmes de glissement dans l'UO₂	215
A. 1. Système {001} <110>	215
A. 2. Système {011} <110>	217
A. 3. Système {111} <110>	217
Annexe B : Quelques modèles de fluage	219
B. 1. Fluage diffusionnel	219
B. 2. Fluage dislocationnel	220
B. 2. 1. Modèle de Weertman	220
B. 2. 2. Modèle de Nabarro	221
B. 3. Modèle unifié de Dherbey	221
Annexe C : Détermination de la masse volumique et de la porosité ouverte et fermée des pastilles par pesée hydrostatique dans l'éthanol	223
Annexe D : Effet de la vitesse de déformation sur la microstructure L2	225

Introduction générale

Le dioxyde d'uranium est utilisé en tant que combustible, sous forme de pastilles élaborées par métallurgie des poudres, dans les Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) du parc électronucléaire français. Ces pastilles sont empilées dans un tube métallique en alliage de zirconium, appelé gaine, qui assure, entre autres, le rôle de première barrière de confinement de la matière nucléaire. L'ensemble pastilles + gaine constitue le crayon combustible.

Le domaine de fonctionnement des cœurs des REP est défini sur la base de la prise en compte de différents scénarios correspondant aux fonctionnements normal, incidentel et accidentel. En fonctionnement normal, du fait de la faible conductivité thermique de l' UO_2 , le cœur des pastilles atteint environ 1000°C et leur périphérie 500°C . Ce gradient de température conduit à la fragmentation des pastilles et contribue à la fermeture progressive du jeu pastille-gaine. Lors de transitoires de puissance, la température atteinte au cœur du combustible est susceptible d'atteindre 1500°C , voire 2000°C . Un phénomène d'Interaction entre la Pastille et la Gaine (IPG) peut alors intervenir et induire un risque de rupture de gaine, qui n'a jamais eu lieu dans les réacteurs nucléaires français car il est parfaitement pris en compte dans les marges de fonctionnement. L'IPG met en jeu à la fois un chargement mécanique de la gaine et de la corrosion sous contrainte par des produits de fission agressifs. L'écoulement visco-plastique du combustible, dans la partie centrale des pastilles contribue à relaxer les contraintes exercées sur la gaine, donc à réduire le risque de rupture des crayons.

L'IPG est étudiée dans des réacteurs expérimentaux, au cours d'essais dits de « rampe de puissance ». Il s'agit d'essais coûteux en temps et en argent, donc limités en nombre. La déformation plastique du combustible, en conditions de rampe, peut être partiellement reproduite hors irradiation en réalisant des essais de compression uniaxiale sur des pastilles, à des températures de l'ordre de 1500°C . Ce type d'essais, de mise en œuvre plus légère, permet de tester l'influence des conditions de sollicitation et de la microstructure des pastilles sur leur comportement mécanique. A l'échelle globale, ils ont permis d'aboutir à une description « classique » de la déformation visco-plastique de l' UO_2 mettant en jeu un mécanisme de fluage diffusionnel, à basses contraintes et un mécanisme de fluage dislocationnel, à fortes contraintes (la contrainte de transition entre ces deux domaines étant fonction, entre autres, de la taille des grains).

A l'échelle de la microstructure, des examens par Microscopie Electronique à Transmission (MET), ont permis de constater la mise en jeu de glissements et l'apparition de sous-joints de grains, dans le domaine dislocationnel. Ces examens, relativement rares et effectués sur des zones minces limitées à quelques grains, n'ont permis ni de faire le lien entre les conditions d'essai (température, contrainte ou vitesse de déformation, taux de déformation atteint...) et la microstructure initiale (taille de grain, porosité...), ni de quantifier les évolutions microstructurales au sein des grains d' UO_2 (en particulier leur subdivision en sous-grains). Etablir ce type de lien pourrait permettre d'aller vers une modélisation plus raffinée et plus physique du comportement visco-plastique du combustible, à l'échelle du grain, lors d'un transitoire de puissance.

C'est dans ce cadre global que s'inscrivent les travaux effectués dans cette thèse. Au CEA, elle se positionne dans deux projets complémentaires qui sont respectivement le projet RCOMB, dont l'un des objectifs majeurs est la compréhension et la modélisation des phénomènes induits dans le combustible sous irradiation, et le projet PERCOX, à vocation plus appliquée, qui s'intéresse à l'amélioration des performances du combustible.

L'objectif général de cette thèse est de parvenir à une meilleure description des mécanismes de déformation à chaud de l' UO_2 , et en particulier de sa sous-structuration dans le domaine du fluage dislocationnel, en lien avec sa microstructure initiale et ses conditions de sollicitation, en

ayant recours à des outils de caractérisation microstructurale adaptés à l'obtention de données quantifiées, à l'échelle de plusieurs centaines (voire plusieurs milliers) de grains.

Ce travail est articulé en cinq chapitres.

Le premier chapitre est consacré au contexte et à la problématique générale de la thèse. Les phénomènes impliqués dans la déformation visco-plastique de l' UO_2 , sous irradiation et hors irradiation, sont décrits sur la base d'une littérature abondante mais relativement ancienne (beaucoup de travaux datant des années 1960-1970). Il en ressort que les mécanismes mis en jeu sont peu étayés par des observations microstructurales adaptées, et donc relativement controversés. En particulier, le rôle des pores de fabrication sur le mouvement des dislocations et leur agencement en sous-joints de grains n'est pas du tout appréhendé dans la littérature propre à l' UO_2 . Le besoin de mettre en œuvre une nouvelle démarche de caractérisation des microstructures déformées est également clairement identifié. Pour y répondre, deux techniques sont choisies comme pertinentes : l'EBS (Electron BackScatter Diffraction), qui est une technique de choix pour l'étude de matériaux déformés, et l'ECCI (Electron Channeling Contrast Imaging), qui permet de caractériser des défauts dans un matériau massif, avec une définition proche de celle du MET.

Le deuxième chapitre est consacré à la fabrication et aux caractéristiques microstructurales initiales des matériaux étudiés, puis à la mise en œuvre des essais mécaniques réalisés sur ces matériaux. Notre étude porte sur deux lots de pastilles d' UO_2 qui ont été fabriqués de façon à obtenir des répartitions différentes des pores au sein des grains, après frittage. La gamme de sollicitations mécaniques balayée dans cette étude est définie sur la base de l'exploitation d'un calcul de rampe de puissance, réalisé à l'aide d'un code développé au CEA. Enfin, les caractéristiques de la machine d'essais mécaniques, les types d'essais réalisés et leur exploitation sont détaillés.

Le troisième chapitre porte sur le développement d'une méthodologie d'analyse des microstructures de déformation par fluage des pastilles d' UO_2 . Cette dernière repose principalement sur l'acquisition et le post-traitement de données EBS, de façon à optimiser la détection des très faibles désorientations dans un matériau poreux. L'ECCI est utilisé en complément au niveau de sous-joints de grains très faiblement désorientés, pour imager et éventuellement caractériser l'arrangement des dislocations en leur sein. Enfin, des grandeurs quantifiées permettant de décrire l'état du matériau déformé sont déterminées à partir de cartes EBS étendues. Les principales grandeurs retenues sont la fraction linéaire de sous-joints de grains et la densité de dislocations géométriquement nécessaires (ou GNDs, pour « Geometrically Necessary Dislocations »).

Le quatrième chapitre consiste en une étude systématique des effets des conditions de déformation viscoplastique sur le comportement mécanique et l'évolution de la microstructure du premier lot de pastilles, au moyen de la méthode décrite dans le troisième chapitre. L'influence du taux de déformation et de la vitesse de déformation sur la sous-structuration des grains d' UO_2 est étudiée. L'impact de divers paramètres extrinsèques sur les grandeurs mesurées à partir des cartes EBS est évalué, dans le but de porter un regard critique sur ces grandeurs. Enfin, des images réalisées par ECCI sur différents sous-joints de grains apportent des informations sur l'arrangement des dislocations.

Le dernier chapitre est le pendant du précédent, en ce qui concerne le second lot de pastilles. Comparé au lot précédent, ce second lot se caractérise surtout par une distribution différente de la porosité au sein des grains. La comparaison des deux lots permet de dégager des tendances relatives à l'impact des pores sur la déformation visco-plastique de l' UO_2 et, en particulier, sur la fragmentation des grains en sous-grains.

Chapitre I

Contexte et problématique

I. 1. Introduction

Le comportement thermomécanique des pastilles d' UO_2 , obtenues par métallurgie des poudres et utilisées en tant que combustible dans les centrales nucléaires, influe sur les phénomènes d'interaction pastille-gaine ayant lieu sous irradiation, en particulier lors de transitoires de puissance au cours desquels la partie centrale de la pastille est le siège de mécanismes de déformation viscoplastique. Ces mécanismes peuvent être partiellement reproduits par des essais de fluage en compression sur des pastilles non irradiées. Grâce à ces essais, on a pu mettre en évidence, dans la plupart des cas, le développement d'un endommagement sous la forme de cavités inter-granulaires, associé à la présence de dislocations s'organisant ou non en sous-joints. Toutefois, de nombreuses questions demeurent en ce qui concerne les liens entre la microstructure initiale de la céramique, les conditions de sollicitation et les évolutions microstructurales résultant de cette sollicitation. Répondre au moins partiellement à ces questions constitue l'objectif général de ce travail de thèse.

A cette fin, nous avons mené une recherche bibliographique qui fait l'objet de ce chapitre et qui porte sur les points suivants : les propriétés cristallographiques, thermo-physiques et mécaniques de l' UO_2 sont abordées en premier lieu. On s'intéresse ensuite à l' UO_2 , en tant que combustible nucléaire, et l'on aborde sa fabrication et la maîtrise de sa microstructure. Son comportement en réacteur est appréhendé, aux échelles macroscopiques et microstructurales, en conditions nominales puis lors de transitoires de puissance qui donnent lieu à des élévations de température suffisamment importantes pour déclencher des phénomènes d'écoulement plastique. Les essais mécaniques destinés à reproduire au moins partiellement ces phénomènes, hors irradiation, sont ensuite décrits. L'influence de différents paramètres macroscopiques, structuraux et microstructuraux est alors appréhendée. On se concentre pour finir sur les mécanismes de déformation mis en jeu, tels qu'ils apparaissent sur la base d'examen microstructuraux.

Ces différents éléments permettent de dégager les grandes lignes du programme d'étude qui sera mené dans cette thèse.

I. 2. UO_2 : Propriétés générales

I. 2. 1. Caractéristiques structurales

I. 2. 1. 1. Le système U-O

La composition des oxydes d'uranium s'étend sur une large gamme de sur- et sous-stœchiométrie. Différents oxydes d'uranium peuvent se former suivant la température et le potentiel oxygène du combustible (qui fixe son rapport O/U). Le diagramme de phase du système U-O est décrit sur le domaine U- UO_3 sur la figure I.1 [Keim 1977]. Il montre que la plage des valeurs extrêmes de ratios O/U s'étend de 1,6 à 2,3, autour de la composition stœchiométrique UO_2 . Au-delà de 400°C, le dioxyde d'uranium possède un large domaine de sur-stœchiométrie : la phase fluorine UO_{2+x} s'étend entre les compositions O/U = 2 et O/U = 2,22 à 1125°C. Un domaine de sous-stœchiométrie apparaît aussi lorsque les températures s'élèvent au-dessus de 1125°C : il s'étend entre O/U = 1,6 et O/U = 2,3 à 2400°C.

L'oxyde stœchiométrique est très réfractaire : son point de fusion est situé à 2860°C [Keim 1977]. A température ambiante et à l'équilibre, le dioxyde d'uranium n'existe qu'à l'état stœchiométrique.

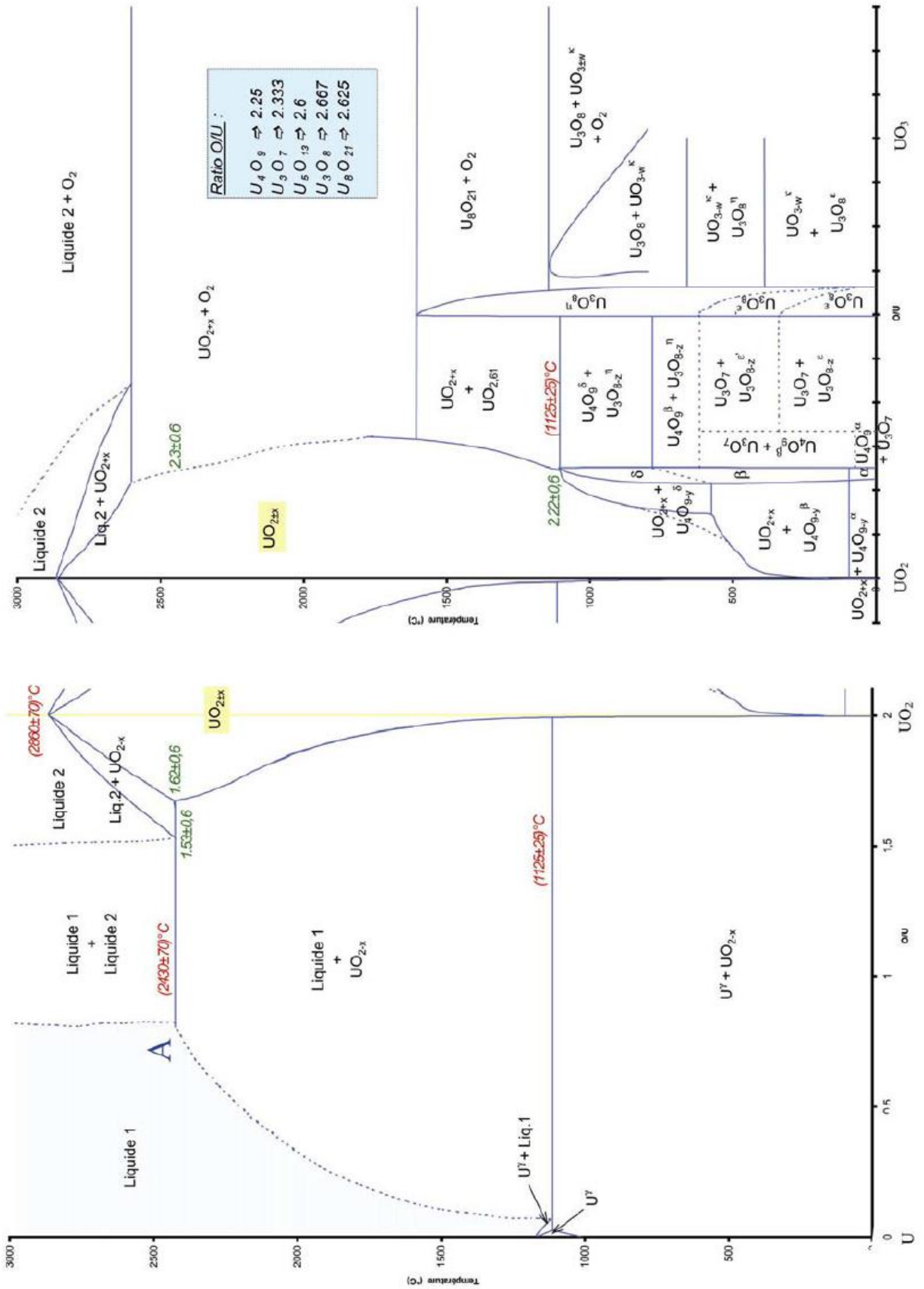


Figure I.1 : Diagrammes de phases des systèmes U-UO₂ et UO₂-UO₃ [Keim 1977].

Le combustible réel a une structure et une microstructure très complexes, et de très nombreux paramètres (taille de grains, porosité, stœchiométrie, impuretés...) participent au comportement mécanique de la pastille dans son ensemble. Toutefois, nous nous concentrerons sur l'étude des propriétés du dioxyde d'uranium stœchiométrique, qui est le matériau sur lequel portera notre étude.

I. 2. 1. 2. Structure cristallographique de l'UO₂

Le dioxyde d'uranium cristallise dans une structure cubique de type fluorine CaF₂ de paramètre de maille (noté a) égal à $5,470 \pm 0,001 \text{ \AA}$ [Belbéoch 1961] et sa masse volumique théorique est de $10,952 \text{ g.cm}^{-3}$ [Bailly 1996]. Il appartient au groupe d'espace Fm $\bar{3}$ m (225). Cette structure est le plus souvent décrite comme la combinaison d'un sous-réseau anionique et d'un sous-réseau cationique.

Sa maille élémentaire, présentée sur la figure I.2, peut être décrite de deux manières :

- soit par un réseau cubique à faces centrées d'ions U⁴⁺ dans lequel les ions O²⁻ occupent tous les sites tétraédriques,
- soit par un sous-réseau cubique simple d'ions O²⁻ dans lequel les ions U⁴⁺ occupent la moitié des sites situés au centre des cubes.

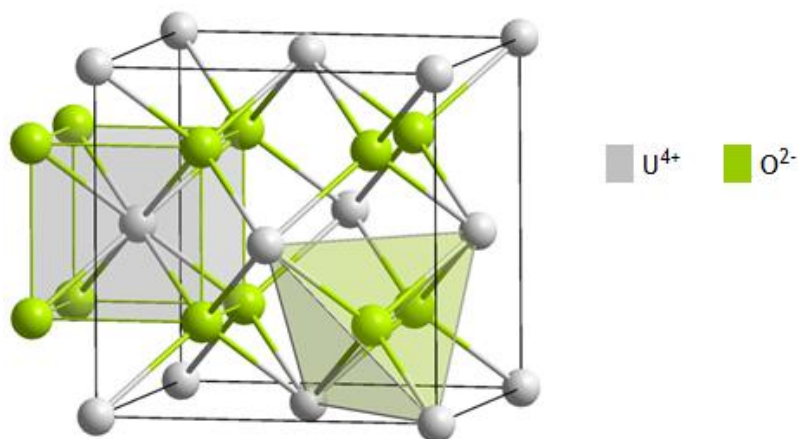


Figure I.2 : Structure cristallographique du dioxyde d'uranium.

Sur cette figure, les dimensions des atomes sont fixées arbitrairement pour plus de lisibilité. Les rayons atomiques réels sont respectivement $0,97 \text{ \AA}$ pour U⁴⁺ et $1,37 \text{ \AA}$ pour O²⁻ [Sawbridge 1970].

Les distances entre atomes, ainsi que le nombre et la nature des plus proches voisins, dans l'UO₂, sont récapitulés dans le Tableau I.1 [Goldschmidt 1965, Sawbridge 1970] :

Tableau I.1 : Premiers voisins dans le cristal UO₂

Ions	Premiers voisins	Distances
U ⁴⁺	12 U ⁴⁺ 8 O ²⁻	U ⁴⁺ - U ⁴⁺ : $a \cdot \sqrt{2} / 2 = 3,868 \text{ \AA}$ U ⁴⁺ - O ²⁻ : $a \cdot \sqrt{3} / 4 = 2,369 \text{ \AA}$
O ²⁻	4 U ⁴⁺ 6 O ²⁻	O ²⁻ - U ⁴⁺ : $a \cdot \sqrt{3} / 4 = 2,369 \text{ \AA}$ O ²⁻ - O ²⁻ : $a / 2 = 2,735 \text{ \AA}$

Afin de mieux comprendre les caractéristiques des dislocations et les systèmes de glissement, il est souvent utile de décrire les structures cristallines par une suite d'empilements d'atomes plus ou moins denses. Ainsi, la Figure I.3 présente l'arrangement des ions oxygène (sphères rouges) et uranium (sphères grises) suivant les deux plans $\{100\}$ et $\{110\}$ [Blank 1969].

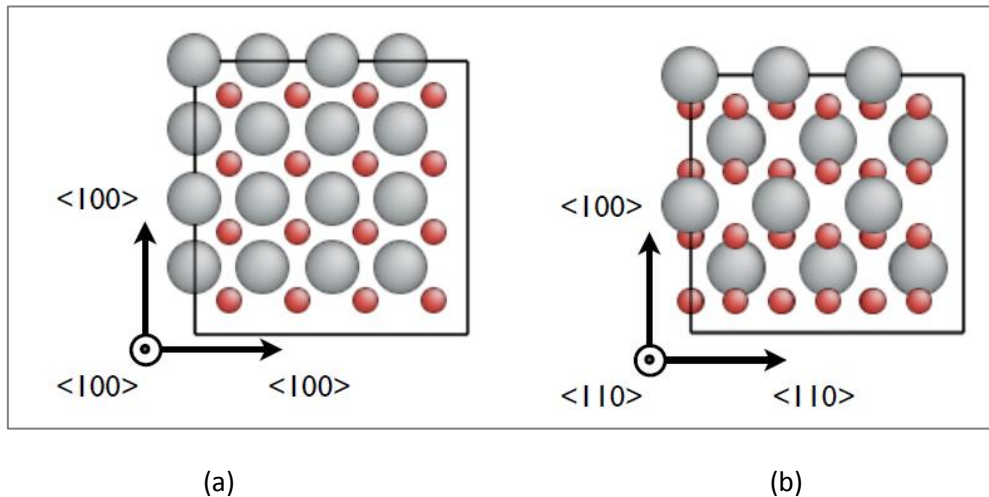


Figure I.3 : Projections particulières du dioxyde d'uranium dans sa structure stable $Fm\bar{3}m$: a) plans $\{100\}$ et b) plan $\{110\}$ (d'après [Blank 1969]).

Dans sa projection selon les plans $\{100\}$ (Figure I.3a), la structure fluorine peut être décrite selon une séquence de quatre plans $\{100\}$: ...AbAcAb... où les plans A forment le réseau cubique d'ions O²⁻, les plans b et c composant le réseau cubique à faces centrées de cations U⁴⁺.

Une autre coupe intéressante est présentée sur la Figure I.3b, selon les plans de type $\{110\}$. Une simple séquence de type ...AbAb... correspond aux plans denses où le rapport stœchiométrique est respecté.

La structure cristalline du dioxyde d'uranium permet d'accommoder un grand nombre de défauts sans changement de phase, et c'est ce qui permet au dioxyde d'uranium d'adopter de larges variations de stœchiométrie.

I. 2. 1. 3. Nature de la liaison dans l'UO₂ ou caractère ionique de l'UO₂

L'un des problèmes les plus fondamentaux rencontrés dans toute étude des propriétés physiques des oxydes d'uranium est la nature exacte de la liaison entre les atomes d'uranium et d'oxygène. En 1958, Childs a fait un calcul théorique de la chaleur de formation de l'UO₂, basé sur un cycle de Born-Haber conventionnel, en supposant que la liaison était principalement ionique [Childs 1958]. L'accord avec l'expérience s'est avéré très bon. En appliquant la relation de Pauling (équation I.1 [Pauling 1960]), on trouve que l'uranium a une électronégativité de 1,5 (comparable à celle du béryllium ou de l'aluminium), tandis que la valeur pour l'oxygène est de 3,5. Cette différence d'électronégativité de 2,0 suggère que la liaison entre les atomes d'uranium et d'oxygène dans UO₂ est ionique à environ 63%.

$$I = 1 - \exp \left[-\frac{1}{4} (\chi_A - \chi_B)^2 \right] \quad (I.1)$$

avec χ_A et χ_B les électronégativités respectives des atomes A et B.

Selon Sawbridge, la liaison atomique dans UO_2 est partiellement ionique, partiellement covalente [Sawbridge 1970]. Elle dépend de la stœchiométrie. En effet, le caractère covalent croît avec l'écart à la stœchiométrie x dans UO_{2+x} .

Les oxydes de plus grand intérêt pour la technologie des réacteurs nucléaires sont ceux proches de la composition stœchiométrique UO_2 . Sur la base des arguments exposés précédemment, il est raisonnable d'admettre la possibilité que des dislocations puissent être chargées dans le matériau stœchiométrique, ce qui aura une incidence importante sur les systèmes de glissement, qui sont présentés dans l'annexe A.

I. 2. 2. Quelques propriétés thermo-physiques

I. 2. 2. 1. Propriétés thermiques

L'expansion thermique de l' UO_2 peut être calculée à l'aide des relations empiriques suivantes :

$$L = L_{273} (9,9734 \cdot 10^{-1} + 9,802 \cdot 10^{-6} T - 2,705 \cdot 10^{-10} T^2 + 4,391 \cdot 10^{-13} T^3) \text{ pour } 273K \leq T \leq 923K \quad (I.2)$$

$$L = L_{273} (9,9672 \cdot 10^{-1} + 1,179 \cdot 10^{-5} T - 2,429 \cdot 10^{-9} T^2 + 1,219 \cdot 10^{-12} T^3) \text{ pour } 923K \leq T \leq 3120K \quad (I.3)$$

où L et L_{273} correspondent respectivement à des longueurs prises à T (en K) et à 273 K [Catalogue 1990]. Pour fixer les idées, une pastille d' UO_2 d'une hauteur standard de 13,5 mm, portée de l'ambiante à 1500°C, va ainsi s'allonger d'environ 230 μm .

Le coefficient de dilatation thermique α de l' UO_2 stœchiométrique peut être déterminé par la dérivée par rapport à la température des équations (I.2 et I.3). Il s'exprime à l'aide des relations suivantes [Catalogue 1990] :

$$\alpha_{(2,00)} = 9,9828 \cdot 10^{-6} - 6,390 \cdot 10^{-10} T + 1,330 \cdot 10^{-12} T^2 - 1,757 \cdot 10^{-17} T^3 \text{ pour } 273K \leq T \leq 923K \quad (I.4)$$

$$\alpha_{(2,00)} = 1,1833 \cdot 10^{-5} - 5,013 \cdot 10^{-9} T + 3,756 \cdot 10^{-12} T^2 - 6,125 \cdot 10^{-17} T^3 \text{ pour } 923K \leq T \leq 3120K \quad (I.5)$$

La conductivité thermique de l' UO_2 a fait l'objet de nombreuses études, compte-tenu de l'importance de la détermination de cette grandeur pour la modélisation du comportement du combustible. Elle dépend de nombreux paramètres tels que la stœchiométrie, la porosité, les produits de fission et le dommage d'irradiation. Pour l' UO_2 stœchiométrique, non irradié et 100% dense, on retiendra parmi les lois disponibles celle proposée par Harding [Harding 1989] :

$$\lambda = \frac{1}{0,0375 + 2,165 \cdot 10^{-4} T} + 4,715 \cdot 10^9 T^{-2} \exp\left[-\frac{16361}{T}\right] \quad (I.6)$$

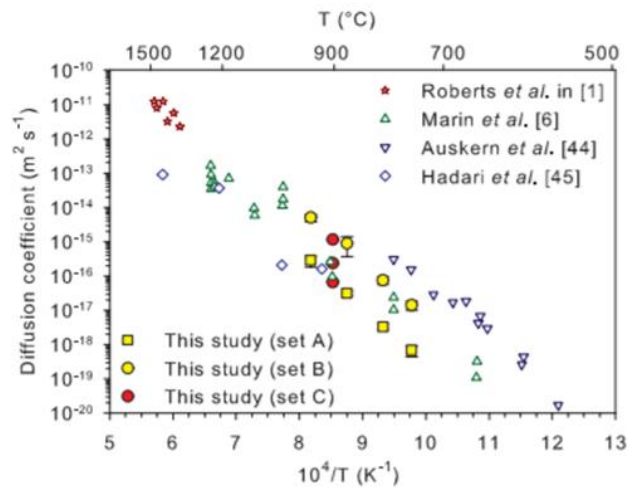
avec λ la conductivité thermique ($\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$) et T la température (K). Pour tenir compte de la porosité, il est proposé d'appliquer à la formule précédente un facteur multiplicatif $(1-2,5p)$, où p est la fraction volumique de pores.

Ainsi, à 1500°C, un UO_2 d'une densité proche de 100%, se caractérise par une conductivité thermique de l'ordre de 2,5 $\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$. Cette valeur, plutôt faible, est voisine de celle de la zircone.

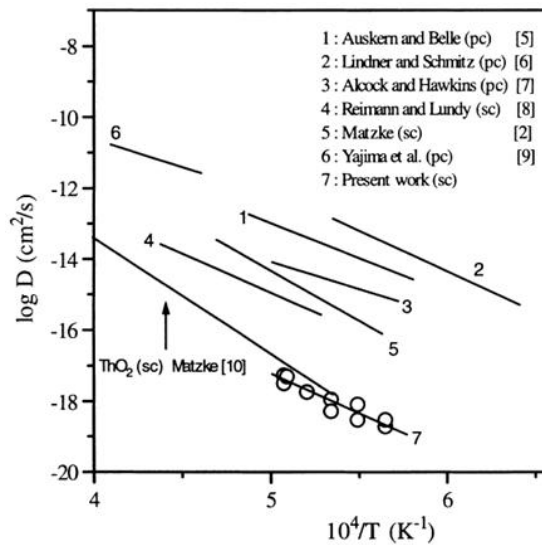
I. 2. 2. 2. Propriétés de diffusion

Compte-tenu de sa nature partiellement ionique, les propriétés de diffusion de l' UO_2 sont fortement dépendantes de sa stœchiométrie et de son degré de pureté, qui conditionnent la nature et le nombre de défauts présents. La détermination des coefficients d'autodiffusion de l'anion O^{2-} et du cation U^{4+} ont conduit à l'obtention de résultats très dispersés et font encore l'objet de travaux à ce jour. Nous allons donc nous limiter ici à dégager quelques ordres de grandeur.

La figure I.4 regroupe un certain nombre de résultats disponibles dans la littérature concernant les coefficients d'autodiffusion de l'oxygène et de l'uranium dans l' UO_2 . Elle confirme la très forte dispersion évoquée précédemment. Il est aussi important de noter l'énorme différence qui existe entre ces coefficients : elle est de l'ordre de 10^8 vers 1500°C et désigne donc indubitablement le cation U^{4+} comme l'espèce limitante dans tout processus mettant en jeu de la diffusion. L'influence des joints de grains sur les valeurs de ces coefficients de diffusion n'a pas été clairement déterminée à ce jour, tout au moins à notre connaissance.



(a)



(b)

Figure I.4 : Données disponibles concernant (a) le coefficient d'autodiffusion de l'oxygène dans l' UO_2 [Dorado 2011], (b) le coefficient d'autodiffusion de l'uranium dans l' UO_2 et du thorium dans ThO_2 [Sabioni 1998].

I. 2. 3. Propriétés mécaniques

I. 2. 3. 1. Transition d'un comportement fragile vers un comportement viscoplastique

De nombreux essais mécaniques ont été réalisés sur des polycristaux d' UO_2 depuis les années 1960, à différentes températures et pour différentes conditions de sollicitation. A titre d'exemple, la figure I.5 présente un ensemble de courbes de compression obtenues à différentes températures et à une vitesse de déformation imposée de $2,33 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$.

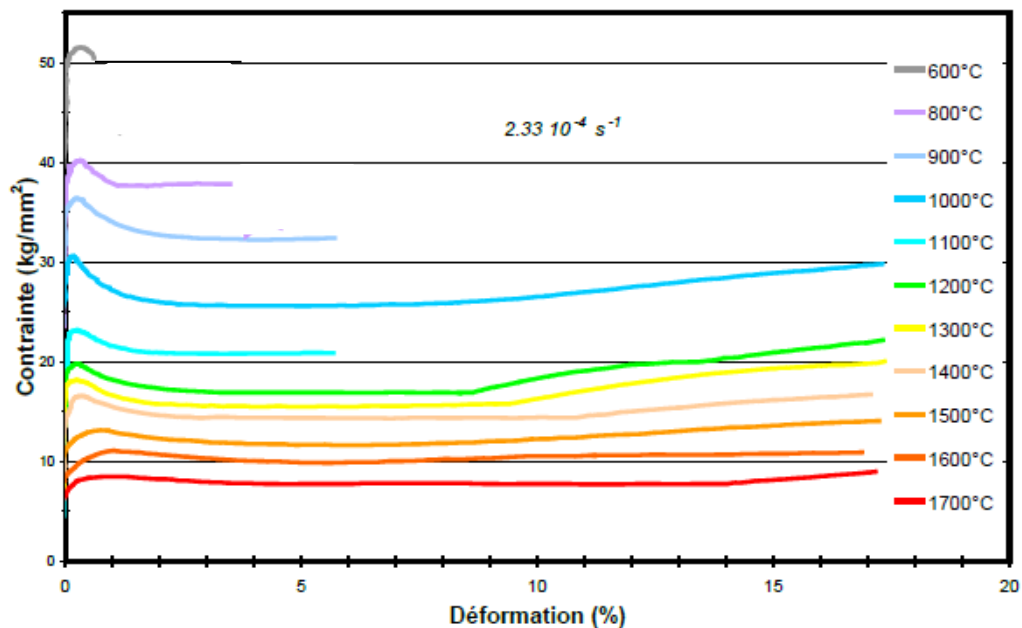


Figure I.5 : Courbes de compression de pastilles d' UO_2 à une vitesse imposée de $2,33 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ pour différentes températures (d'après [Guérin 1973]).

A température ambiante, le comportement de cette céramique est fragile. La température de transition fragile-ductile n'est pas nettement définie et se situe entre 900°C et 1000°C . Pour les tests réalisés en dessous de 1000°C , la déformation plastique est extrêmement faible. Ainsi, la rupture du matériau se produit pour 1% de déformation à 600°C . La contrainte d'écoulement mesurée est alors de l'ordre de l'ordre de 500 MPa. La déformation avant rupture augmente légèrement avec la température : elle atteint 3,5% à 800°C .

Au-delà de 1000°C - 1200°C , on observe un comportement viscoplastique avec des déformations macroscopiques de plus de 15%. Le domaine de température exploité pour l'utilisation de l' UO_2 en tant que combustible nucléaire se situe entre 500°C et 1000°C , en régime nominal, et augmente jusqu'à 1500°C , voire 2000°C , en cas de transitoire de puissance. Le comportement viscoplastique à ces températures est alors essentiel pour garantir l'intégrité du crayon combustible, comme cela est abordé dans le paragraphe I. 3. 3.

Nous allons maintenant nous intéresser aux caractéristiques principales de l' UO_2 dans le domaine élastique puis dans le domaine viscoplastique, en insistant sur la nature des dislocations mises en jeu.

I. 2. 3. 2. Le comportement élastique

L'UO₂ monocristallin stœchiométrique présente une forte anisotropie élastique. Ses constantes élastiques, mesurées à température ambiante par Wachtman sont les suivantes : C₁₁ = 395 GPa, C₁₂ = 121 GPa et C₄₄ = 64 GPa [Wachtman 1965]. On en déduit le facteur d'anisotropie de Zener, défini comme $A = \frac{2C_{44}}{C_{11} - C_{12}} = 0,466$ (A = 1 pour un matériau isotrope).

Par ailleurs, le module d'Young de l'UO₂ varie significativement avec l'orientation du cristal par rapport à l'axe de compression, comme l'illustre la figure I.6. Des essais de nanoindentation instrumentée ont permis de confirmer cette anisotropie [Radi 2016]. Elle peut engendrer des incompatibilités de déformation au niveau de certains joints de grains qui sont susceptibles de conduire à l'initiation de fissures.

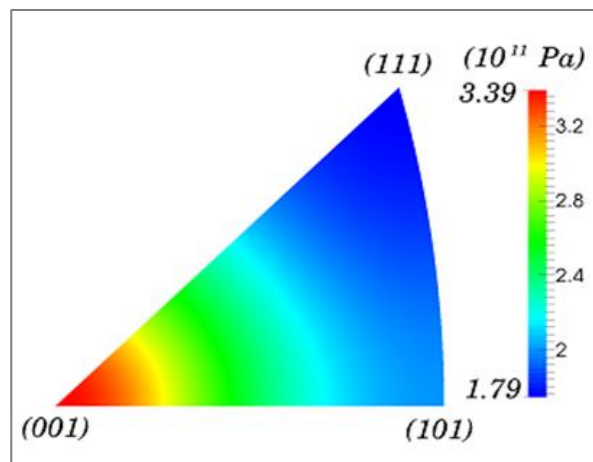


Figure I.6 : Module d'Young apparent d'un monocristal d'UO₂ en fonction de l'orientation du cristal par rapport à l'axe de compression simple, tracé en figure de pôle inverse [Wachtman 1965, Soulacroix 2014].

L'UO₂ polycristallin, obtenu par pressage puis frittage naturel (sans application d'une charge), ne présente pas de texture. Son comportement élastique macroscopique est isotrope. Ses deux modules élastiques ont été déterminés expérimentalement à température ambiante par de nombreux auteurs, dont Martin qui a synthétisé certains résultats [Martin 1989]. Ils se situent classiquement entre les bornes inférieure et supérieure calculées respectivement par les modèles de Reuss et de Voigt (indiquées dans le tableau I.2).

Tableau I.2 : Bornes supérieures et inférieures données respectivement par Reuss et Voigt pour le module d'Young et le module de cisaillement de l'UO₂ [Wachtman 1965]

	Module d'Young E (GPa)	Module de cisaillement G (GPa)
Bornes de Reuss	217	81,4
Bornes de Voigt	244	93,3

La figure I.7 illustre la baisse du module d'Young E en fonction de l'augmentation de la température et de la porosité pour l'UO₂ polycristallin isotrope et stœchiométrique. Sachant que le

combustible industriel présente une porosité de quelques pourcents, celle-ci influe modérément sur ses propriétés élastiques globales.

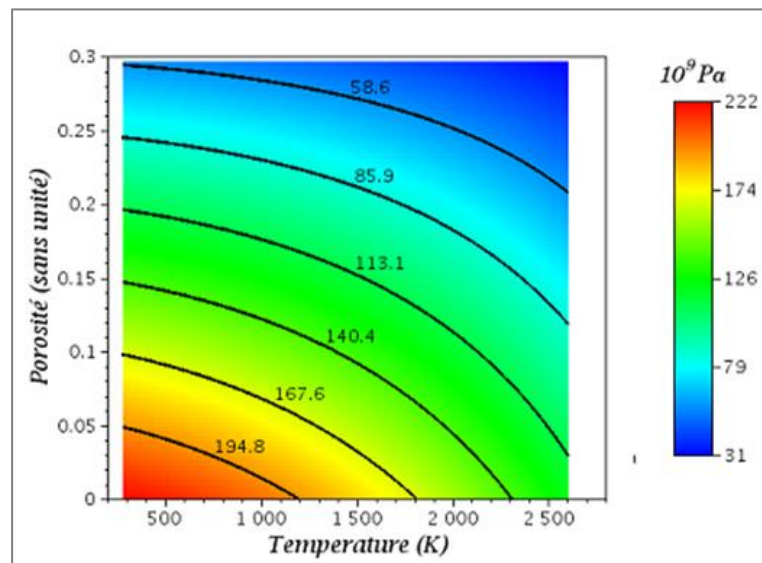


Figure 1.7 : Module d'Young macroscopique de l' UO_2 polycristallin (GPa) en fonction de la température et de la porosité (d'après [Martin 1989]).

I. 2. 3. 3. Comportement viscoplastique et nature des dislocations

A une température supérieure à 1000°C, la céramique présente, après le domaine purement élastique, un domaine de déformation visco-plastique avec un écrouissage plus ou moins marqué en fonction des conditions de sollicitation. Il met en jeu le glissement des dislocations, en priorité dans les grains favorablement orientés. Au cours de la déformation, ces dislocations se multiplient selon le mécanisme de Frank et Read. Elles se gênent mutuellement et sont de moins en moins mobiles, ce qui se traduit par l'augmentation de la contrainte.

Par ailleurs, dans le cas des essais de compression, certaines courbes « contrainte-déformation » présentent un crochet de compression (notamment à forte vitesse de déformation et à basse température) suivi d'un palier de relaxation (cf. figure I.5). Guérin interprète ce crochet de la manière suivante : il considère que l'empilement des dislocations aux joints de grains produit une concentration de contraintes suffisante dans les grains voisins pour activer de nouvelles sources de Frank et Read [Guérin 1973]. La déformation se propage alors de grains en grains et le nombre de dislocations mobiles augmente rapidement, d'où la chute de la contrainte.

La nature des dislocations mises en jeu lors de la déformation plastique de l' UO_2 a principalement été étudiée par microscopie électronique à transmission, suite à des essais de compression sur monocristaux [Rapperport 1960, Alamo 1978, Ashbee 1964, Blank 1969, Sawbridge 1970]. Le système de glissement le plus actif dans l' UO_2 stœchiométrique est $\{100\}\langle 110 \rangle$. Lorsque la température augmente, les systèmes secondaires $\{110\}\langle 110 \rangle$ et $\{111\}\langle 110 \rangle$ s'activent, le dernier s'activant par glissement dévié [Lefebvre 1976]. Le vecteur de Burgers commun à ces trois systèmes de glissement a été défini en 1963 par Ashbee comme $a/2\langle 110 \rangle = 0,387\text{nm}$, cette distance correspondant à la plus courte période du réseau fluorine [Ashbee 1964].

On peut noter que les plans primaires de glissement dans l' UO_2 ne sont pas les plans les plus denses de type $\{111\}$, comme observé dans les métaux de structure cubique à faces centrées. Cela

est lié à la structure ionique de la céramique, le système s'activant le plus facilement étant celui qui confère au cristal un minimum d'énergie électrostatique plutôt qu'un minimum d'énergie élastique.

La structure ionique de la céramique impose aussi que les dislocations coin possèdent au moins deux demi-plans supplémentaires pour assurer la neutralité électronique du cristal. La charge électrostatique résiduelle de ces dislocations, qui n'est pas facile à estimer, dépend du système considéré et du nombre de demi-plans supplémentaires. Par exemple, Brantley donne une projection dans le plan (110) d'une dislocation coin pour le système $\{100\}\langle 110\rangle$, illustrée par la Figure I.8 [Brantley 1970]. Cette dislocation est créée en introduisant deux demi-plans (110) adjacents supplémentaires. Au niveau du cœur de la dislocation, cet arrangement d'atomes assure la neutralité de l'ensemble. Deux autres types de dislocations coin, chargées respectivement positivement et négativement, peuvent exister, soit en supprimant les ions A ou A', soit en ôtant les ions A et B ou A' et B'. Il est également possible de décrire des dislocations ayant une alternance de crans positifs et négatifs. Ce type de défauts globalement neutre paraît énergiquement plus favorable. Différents types de dislocations coins possibles dans les différents systèmes de glissement de l' UO_2 sont décrits en annexe A, sur la base des travaux publiés par divers auteurs, dont principalement Evans [Evans 1969^a].

Il est beaucoup plus difficile de représenter des dislocations vis. Evans a remarqué qu'elles ne portent pas de charge électrostatique [Evans 1969^a]. De plus, en observant les points d'émergence, on constate que les dislocations vis se déplacent plus vite que les dislocations coin dans les plans $\{100\}$.

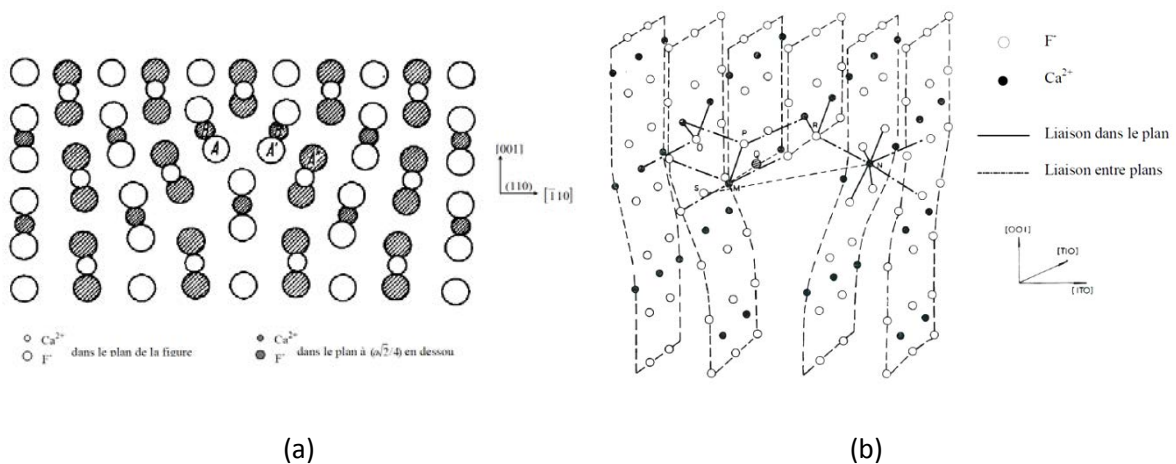


Figure I.8 : Dislocation coin non chargée dans le système $(001)[\bar{1}10]$:

(a) représentation bidimensionnelle selon Brantley [Brantley 1970], (b) modèle tridimensionnel d'Evans [Evans 1969^a].

I. 3. Le combustible nucléaire UO_2

I. 3. 1. Fabrication du combustible

I. 3. 1. 1. Procédé de frittage des pastilles

Le dioxyde d'uranium, utilisé dans les réacteurs de type REP, se présente sous la forme de pastilles cylindriques frittées, dont le diamètre et la hauteur sont respectivement de l'ordre de 8,2 et 13,5 mm. Ces pastilles sont élaborées par métallurgie des poudres à partir d'une poudre de dioxyde d'uranium enrichi, obtenues à partir de fluorure d'uranium par des procédés dits « de

conversion » (par voie sèche ou par voie humide), qui influent sur leurs caractéristiques, et en particulier leur aptitude à la compaction et au frittage. Les poudres issues de la conversion subissent différentes opérations destinées à ajuster leur granulométrie, telles que le tamisage, le broyage, et les mélanges, qui ont un rôle important sur leur frittabilité et, par conséquent, sur la microstructure obtenue après frittage. Différents adjuvants peuvent également être mélangés aux poudres, tels que :

- des lubrifiants secs, pour faciliter le pressage des pastilles crues,
- des produits porogènes, notamment de U_3O_8 (poudre très fine provenant de la calcination des rebuts de fabrication), pour assurer la densité spécifiée des pastilles.

Il est important de noter que quelques pourcents de porosité sont essentiels pour permettre à la pastille d'accommoder son propre gonflement lors de l'irradiation.

Ces poudres subissent d'abord un pré-compactage qui vise à obtenir des granulés dont la taille est de l'ordre de 0,5 mm, de coulabilité bien meilleure. Ensuite, ces granulés subissent une étape de pressage pour obtenir des pastilles nommées « crues » ou « vertes », dont la masse volumique est de l'ordre de 50% de la masse volumique théorique de UO_2 . Ces pastilles crues subissent par la suite un cycle de frittage qui est généralement de l'ordre de 4 h à 1700°C (il peut être adapté, selon la microstructure recherchée). Ce frittage est réalisé sous atmosphère réductrice (sous hydrogène ou argon + hydrogène), afin de garantir en fin de frittage un rapport O/U de l'oxyde très proche de 2,00. A la fin du frittage, les pastilles présentent une légère forme en diabolo. Une rectification permet d'assurer la cylindricité des pastilles ainsi que l'obtention d'un diamètre spécifique à \pm une dizaine de micromètres.

I. 3. 1. 2. Le crayon combustible

Une fois rectifiées, les pastilles sont empilées dans une gaine métallique étanche en alliage de zirconium destinée à confiner les produits de fission, à assurer le maintien mécanique des pastilles, et à évacuer vers le fluide caloporteur la chaleur produite par les réactions nucléaires. L'ensemble, appelé « crayon combustible », a une longueur d'environ 4 m pour un diamètre voisin de 1 cm. Ces crayons sont insérés dans des assemblages qui sont placés ensuite dans le réacteur (voir figure I.9).

La gaine en alliage de zirconium constitue la première barrière de confinement des produits de fission. Son intégrité doit être garantie. Par conséquent, l'interaction pastille-gaine (IPG) est un phénomène important dans la démarche de sûreté de l'élément combustible des réacteurs à eau (REP et REB). Cette interaction intervient en service suite à la fermeture progressive du jeu radial pastille-gaine (initialement de l'ordre de 85 μ m), consécutivement à divers phénomènes décrits plus loin (cf. Figure I.14 dans le paragraphe I. 3. 2). Elle devient surtout critique lors de phases de montée en puissance du réacteur, appelées « transitoires de puissance ». Les mécanismes mis en jeu dans ce cas sont décrits dans le paragraphe I. 3. 3. Ils induisent un risque de rupture de la gaine qui doit impérativement être évité. Nous verrons qu'une des pistes consiste à optimiser la microstructure des pastilles frittées pour favoriser, entre autres, la déformation viscoplastique de la pastille en régime de transition de puissance et ainsi réduire les contraintes mécaniques et les risques de rupture de gaine.

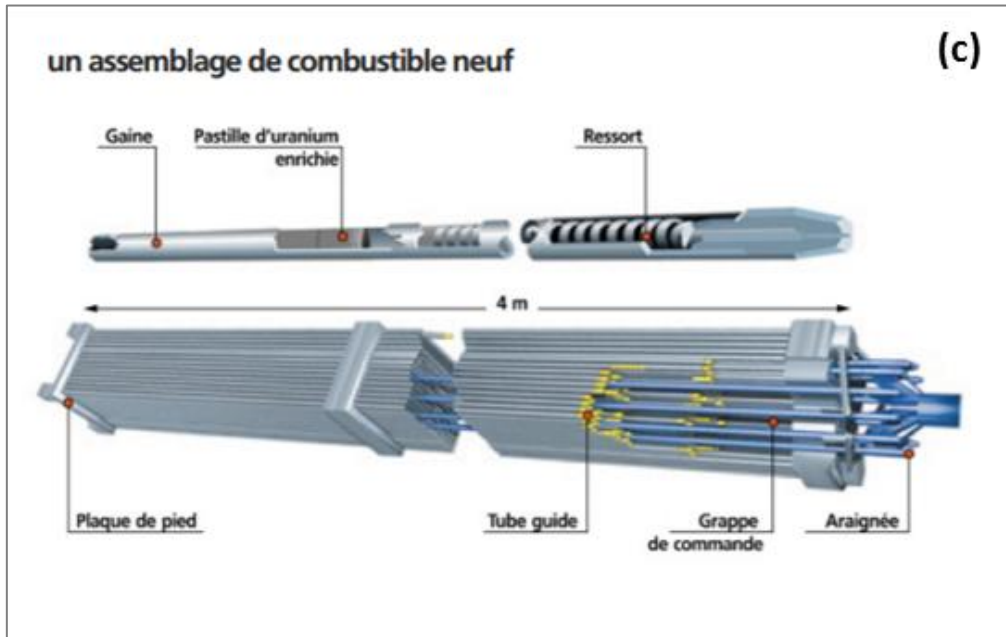
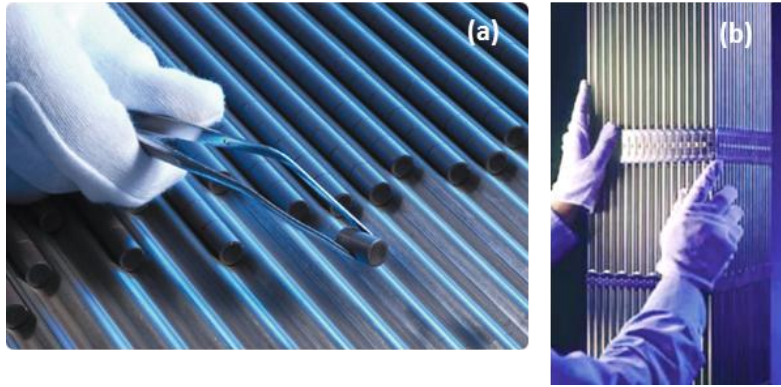


Figure 1.9 : (a) pastilles UO_2 , (b) vue partielle d'un assemblage en cours de contrôle, (c) schémas d'un crayon et d'un assemblage (sources : documentations de vulgarisation de l'industrie nucléaire française).

I. 3. 1. 3. Maîtrise de la microstructure des pastilles

Pour améliorer le comportement en IPG du crayon combustible, beaucoup de travaux se sont concentrés sur l'optimisation du procédé de fabrication des pastilles en vue d'en piloter la microstructure, à savoir principalement la taille des grains, et, dans une moindre mesure, la fraction volumique de pores et leurs caractéristiques (taille, nombre, position inter- ou intra-granulaire). On trouvera une revue détaillée portant sur ces aspects dans la thèse de Ndiaye [Ndiaye 2012]. Les étapes principales suivantes s'enchaînent lors du frittage : densification par formation de ponts de frittage, fermeture de la porosité ouverte, élimination de la porosité fermée associée à la croissance granulaire. Elles mettent toutes en jeu des mécanismes de transport de matière. On retiendra en particulier que :

- la fermeture plus ou moins rapide de la porosité, lors du frittage, commence aux alentours de $1500^{\circ}C$ et dépend directement de la réactivité de la poudre et de la structure de l'empilement granulaire, et en particulier de son état

d'agglomération/agrégation, une poudre peu agglomérée assurant une meilleure frittabilité.

- la distribution granulométrique de la poudre utilisée, mono- ou poly-dispersée, impacte significativement la cinétique de frittage.
- en fin de densification, la microstructure comporte des pores inter- et intra-granulaires qui interagissent avec les joints de grains et impactent la croissance granulaire.

Les interactions pores/joints de grains peuvent être traduites sous la forme de diagrammes appelés « cartes de frittage » : voir figure I.10.

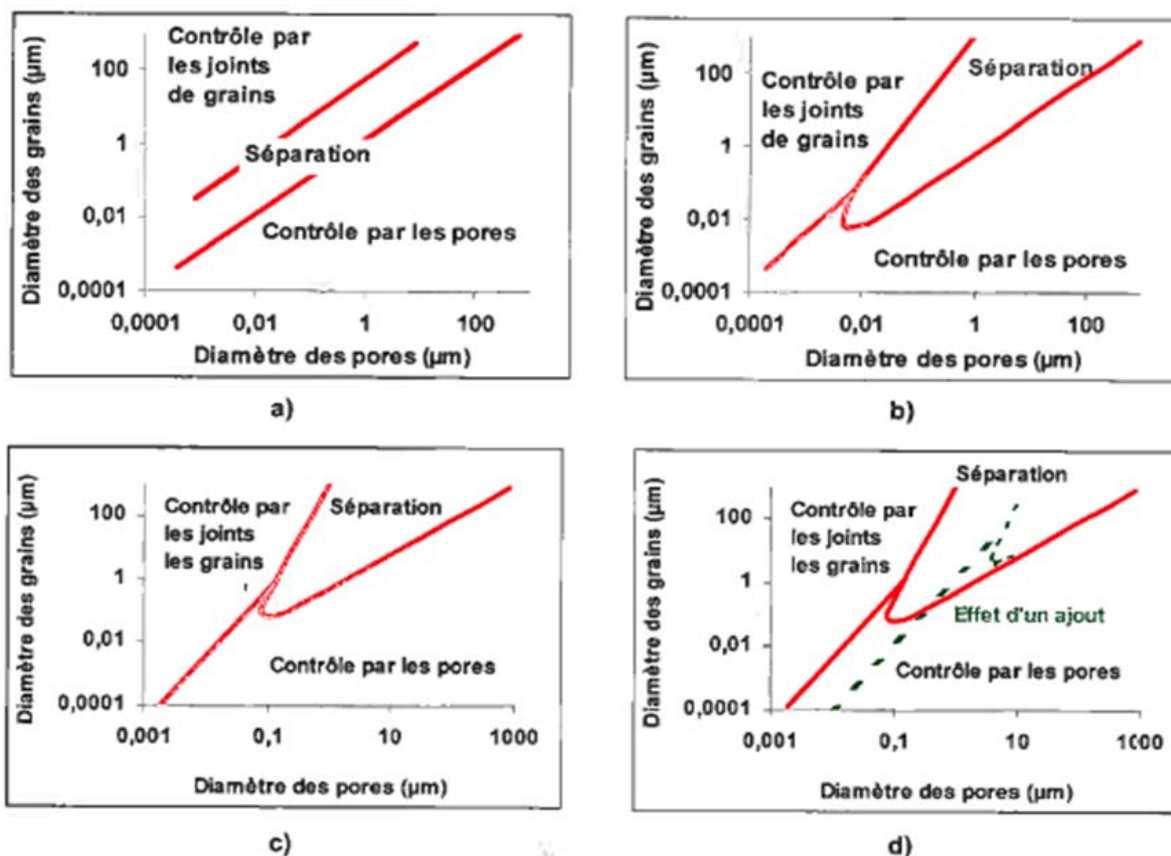


Figure I.10 : Cartes de frittage d'une céramique pour différents mécanismes de transport de matière (a) évaporation-condensation, (b) diffusion en volume, (c) diffusion superficielle, (d) diffusion superficielle en présence d'ajout ou d'impureté (d'après [Brook 1969]).

Il n'existe pas de telles cartes spécifiques à l' UO_2 dans la littérature ouverte. De nombreux travaux se sont, en tout cas, concentrés sur l'augmentation de la taille des grains dans ce matériau. En effet, cette augmentation peut conduire à une réduction de la libération de gaz de fission et de certains produits de fission agressifs pour la gaine (comme l'iode), par la réduction des chemins de diffusion préférentiels via les joints de grains. De plus, les pastilles à gros grains possèdent une plus grande viscoplasticité, qui peut donner lieu à une réduction de la pression exercée par le combustible sur la gaine, lors des transitoires de puissance, et donc améliorer la résistance à l'IPG du crayon [Nonon 2004].

Des microstructures d' UO_2 à gros grains peuvent être obtenues soit par :

- l'ajout d'additifs à l' UO_2 (appelés « dopants ») tels que Nb_2O_5 , TiO_2 , MgO , SiO_2 , Cr_2O_3 , $\text{MnO-Al}_2\text{O}_3$, etc. [Song 1999, Nonon 2004, Bourgeois 2001].
- la mise en œuvre de nouvelles conditions de fabrication (en particulier de frittage).

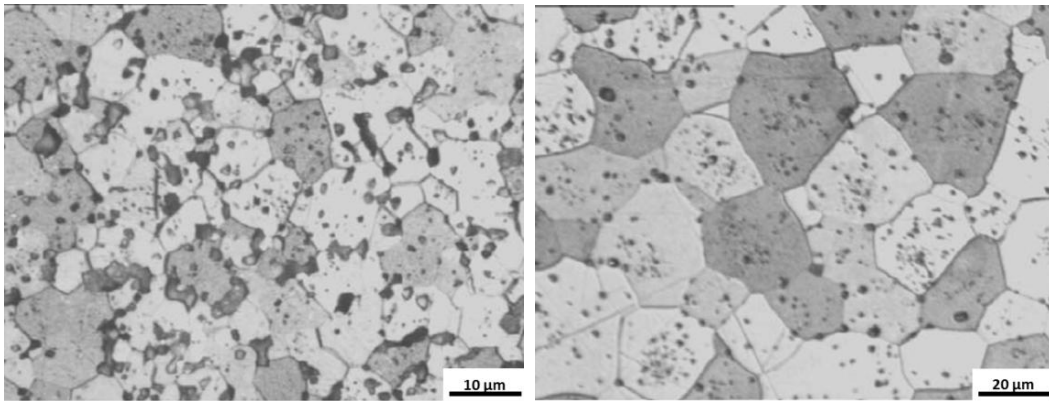
Dans l' UO_2 non dopé, un grossissement des grains peut être obtenu par modification du processus de métallurgie des poudres. Par exemple, le Korean Atomic Energy Research Institute (KAERI) a développé un procédé de fabrication de pastilles d' UO_2 à gros grains en optimisant le processus de recyclage des pastilles défectueuses d' UO_2 , sous forme de poudre d' U_3O_8 [Lee 2011].

Une étude sur la croissance cristalline de l' UO_2 sans ajouts (ni d' U_3O_8 , ni de dopants) a été réalisée par Sornay afin d'identifier et de quantifier les phénomènes qui conduisent à une taille de grains au moins deux fois supérieure à celle observée habituellement dans les mêmes conditions de frittage [Sornay 2008]. Selon cet auteur, deux facteurs sont prépondérants pour favoriser la croissance granulaire de l' UO_2 :

- l'atmosphère de frittage (en particulier la pression partielle d'oxygène) qui doit favoriser la diffusion de l'espèce la plus lente (l'ion U^{4+} dans le cas de l' UO_2),
- la structure de l'empilement des particules de poudre et leur distribution granulométrique qui doivent permettre de réduire fortement le freinage des joints de grains par les pores.

Il a illustré l'impact de l'agglomération et de l'agrégation d'une poudre d' UO_2 sur son comportement lors du frittage et sur la microstructure des frittés. En fait, la différence de retrait entre les agglomérats et les particules non agglomérées engendre des porosités qui limitent le déplacement des joints de grains. Or, les poudres d' UO_2 présentent toutes des agglomérats et des agrégats plus ou moins gros et solides. Pour maîtriser le grossissement granulaire, il convient de simplifier le système granulaire de l' UO_2 en détruisant par broyage les agglomérats et/ou les agrégats et en favorisant la présence de « germes » qui vont donner des gros grains qui pourront se développer au détriment des plus petits. Ceci est illustré par la figure I.11 : pour les mêmes conditions de frittage, elle montre que les grains obtenus ont une taille inférieure à $10\ \mu\text{m}$, pour la poudre brute (agglomérée), tandis que dans le cas de la poudre broyée, elle est supérieure à $20\ \mu\text{m}$. La répartition des pores est également modifiée : la microstructure obtenue à partir de la poudre brute présente des pores inter-granulaires de taille supérieure à celle des pores intra-granulaires. Dans celle provenant de la poudre désagglomérée, les pores sont essentiellement intra-granulaires et de plus petite taille.

Ces travaux montrent donc qu'il est possible de contrôler la répartition des pores, dans une certaine mesure. Cela ouvre de nouvelles perspectives pour agir sur la microstructure du combustible et, par conséquent, sur son comportement. C'est cet aspect qui sera plus particulièrement appréhendé dans notre étude, comme on le verra plus loin.



(a)

(b)

Figure I.11 : Microstructure de pastilles élaborées à partir d'une poudre (a) brute et (b) désagglomérée [Sornay 2008].

I. 3. 2. Comportement du combustible en réacteur, en régime nominal

I. 3. 2. 1. Aspects thermiques, évolution du jeu pastille-gaine

En réacteur, le principal phénomène intervenant dans le combustible est la fission de noyaux lourds. Ces fissions produisent quelques centaines de types de nucléides ainsi que de l'énergie, majoritairement sous forme d'énergie cinétique des produits de fission, mais aussi sous forme de rayonnements β et γ . L'énergie cinétique des produits de fission est dissipée de manière non homogène sous forme de chaleur pendant leur implantation dans le matériau. Cette chaleur est générée au sein des pastilles de combustible, puis évacuée à travers le tube de gainage vers le fluide caloporteur. En conséquence, un gradient de température se développe dans les pastilles entre le centre et la périphérie (le centre étant le plus chaud) (Figure I.12 [Bardon 1989]). Il varie fortement au cours d'une irradiation, notamment en fonction de la puissance linéique du réacteur.

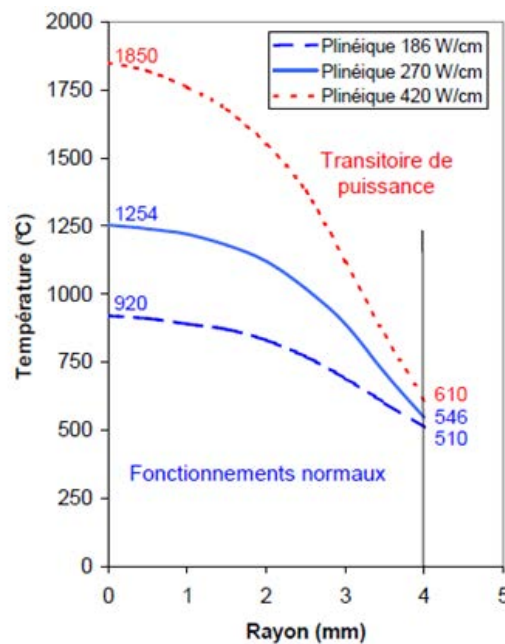


Figure I.12 : Gradient thermique radial dans une pastille pour différentes puissances linéiques [Bardon 1989].

En régime nominal, les crayons combustibles fonctionnent à des puissances linéiques moyennes comprises entre 150 et 250 W.cm⁻¹. La différence de température entre le centre d'une pastille et sa périphérie est alors de l'ordre de 500 à 700°C. Ce gradient est à l'origine de l'apparition de contraintes internes de compression au centre des pastilles et de traction à leur périphérie qui peuvent être estimées grâce à la relation suivante :

$$\sigma_{surface} = \frac{E\alpha}{2(1-\nu)} \Delta T \quad (1.7)$$

avec : $\sigma_{surface}$ la contrainte atteinte en surface de la pastille, E le module d'Young de l'UO₂, α son coefficient de dilatation thermique, ν son coefficient de Poisson et ΔT la différence de température entre le cœur de la pastille et sa surface.

Si l'on considère le cas d'un ΔT de 200°C obtenu pendant la phase de montée en puissance du réacteur, on aboutit à une contrainte thermo-élastique d'environ 290 MPa à la périphérie de la pastille (en considérant les valeurs numériques approchées suivantes : $E \sim 200$ GPa, $\alpha \sim 10^{-5}$ K⁻¹ et $\nu \sim 0,31$ [Catalogue 1990]). Sachant que la contrainte à rupture de l'UO₂ polycristallin, dans le domaine fragile (en-dessous de 1000°C environ), est d'environ 150 MPa [Evans 1969^b], on peut en conclure que le combustible se fragmente dès la première montée en puissance, dès que le ΔT atteint environ 100°C, avec la formation de fissures radiales (Figure I.13).

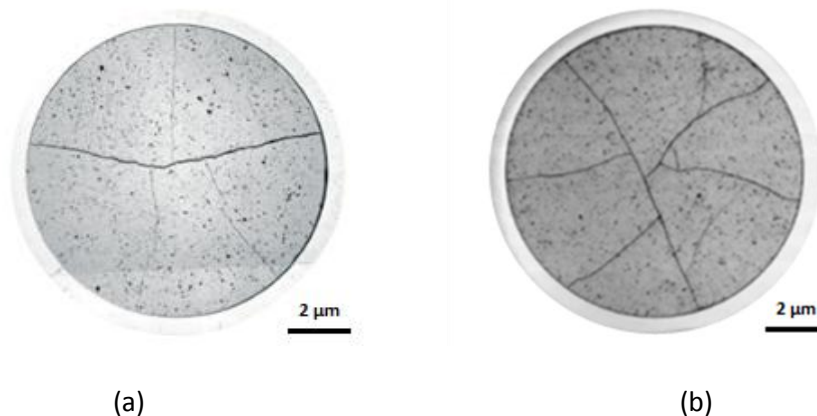


Figure I.13 : Coupes radiales de pastilles UO₂ irradiées en conditions nominales après (a) 1 cycle, (b) 2 cycles REP annuels [Noirot 2008].

Le fort gradient thermique radial conduit aussi à une dilatation thermique hétérogène des pastilles [Sauter 2003] à l'origine du développement d'une forme dite en "diabolo" de ces dernières (Figure I.14b). Le jeu pastille-gaine va se réduire rapidement. Il n'est pas encore fermé au bout du premier cycle d'irradiation, alors qu'il va l'être au bout de deux cycles (Figure I.14c). Cette réduction du jeu est due à l'ouverture de fissures suite aux contraintes de traction en périphérie de pastilles et au déplacement des fragments générés. A cela s'ajoutent la dilatation thermique de la pastille et son gonflement dû à la formation de produits de fission gazeux et solides. Le fluage d'irradiation en compression de la gaine sous l'effet de l'écart négatif entre la pression interne du crayon et la pression externe du réfrigérant entre également en jeu. Lorsque le contact pastille-gaine est établi, il se forme des plis primaires (Figure I.14c), également observables après retour à froid, en raison de la déformation irréversible engendrée.

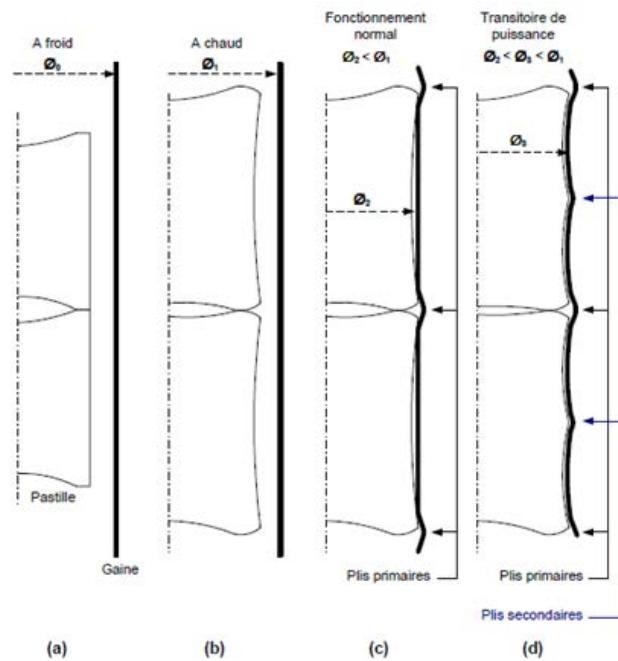


Figure I.14 : Représentation schématique de l'évolution du jeu entre la pastille et la gaine au cours de l'irradiation, (a) état initial, (b) au cours du premier cycle d'irradiation, (c) à la fin du second cycle d'irradiation, (d) en transitoire de puissance [Lansiaert 2008].

I. 3. 2. 2. Effets de l'irradiation sur la microstructure du combustible

Au cours du processus d'irradiation, les combustibles UO_2 monophasés sont transformés en un système [Produits de Fission (PF) - combustible multi-phasé] comprenant une multitude d'éléments.

Tout au long de l'irradiation, des produits de fission gazeux, en particulier le xénon et le krypton sous la forme de divers isotopes ($^{129-131-134}\text{Xe}$, $^{83-85-86}\text{Kr}$) ainsi que l'hélium, sont créés puis partiellement relâchés par la céramique vers les volumes libres du crayon [Noirot 2008]. Au-delà d'un taux de combustion de 20 GWj.t^{-1} , des observations montrent une ségrégation progressive de gaz aux joints de grains puis la formation de véritables canaux aux joints triples, par coalescence (cf. Figure I.15), qui autorisent un lent flux gazeux sortant de la pastille [Lemaignan 2000].

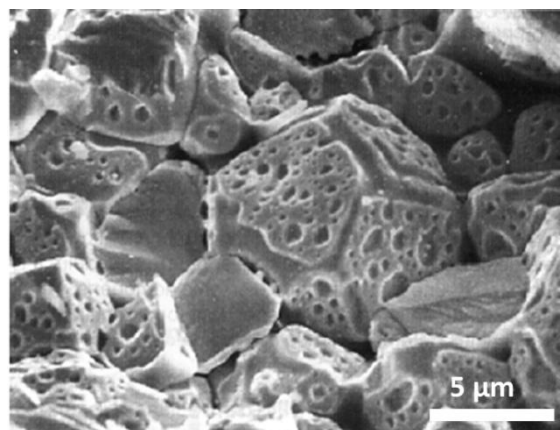
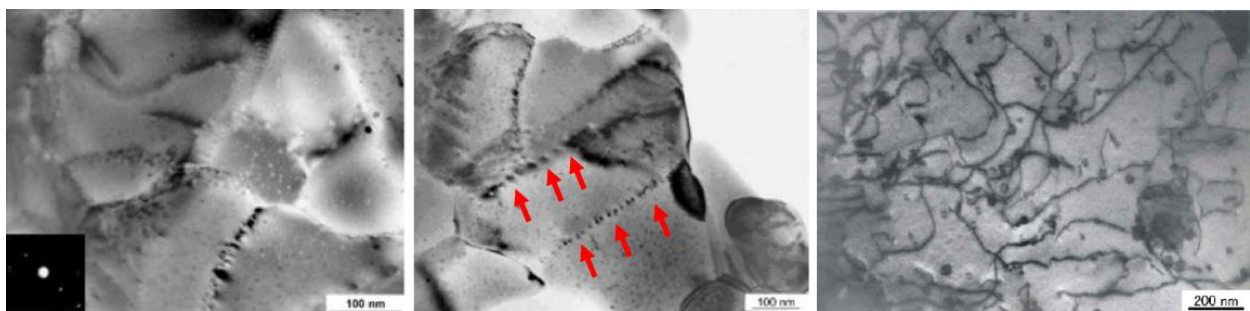


Figure I.15 : Canaux le long des joints de grains, qui autorisent un léger flux gazeux [Lemaignan 2000].

La périphérie de la pastille combustible est le siège d'évolutions particulières dont on trouvera une description détaillée par exemple dans la thèse de Jonnet [Jonnet 2007]. Il s'y produit davantage de fissions qu'à cœur, ce qui conduit à une accumulation plus importante de produits de fission et de défauts d'irradiation. Ces défauts sont peu recuits, du fait de la température moindre du combustible, dans cette zone. A partir d'un certain niveau d'accumulation de dommages (qui correspondrait à un taux de combustion local de l'ordre de 70 GWj/t), un processus homogène de subdivision des grains initiaux d' UO_2 (d'un diamètre initial d'environ 10 μm) en sous-grains, puis en petits grains d'environ 0,2 μm , a lieu. Il mettrait en jeu un mécanisme de polygonization. Une température maximale de l'ordre 1000°C est a priori nécessaire à la formation d'une telle microstructure, dite « HBS » (pour « High Burn-up Structure »). Les figures I.16a et b en montrent les prémices, dans le cas d'un combustible irradié à 1000°C, avec l'apparition de sous-joints de grains au sein des grains originaux.



(a) (b) (c)

Figure I.16 : Images MET d'échantillons d' UO_2 irradiés :

- à 75 GWj.t^{-1} à 1000°C montrant (a) des petits grains avec des sous joints de grains de faibles désorientations, (b) un sous-joint de grain en formation (flèches)
- (c) à 92 GWj.t^{-1} à 1310°C [Sonoda 2002].

Lorsque la température est plus élevée, l'irradiation engendre également la création d'un grand nombre de défauts (bien plus que l'agitation thermique), dont des dislocations, qui influencent le comportement du combustible. La densité de ces dislocations augmente significativement avec la durée de l'irradiation [Nogita 1995, Baron 2009]. La microscopie électronique à transmission (MET) a été assez largement utilisée afin de déterminer l'évolution de ces défauts sous irradiation aux neutrons, mais aussi aux ions. Les irradiations aux ions ont mis en évidence un processus en plusieurs étapes, qui dépend de la température et de la dose d'irradiation, à savoir : apparition de petites boucles de dislocations, transformation de ces boucles en segments, apparition de réseaux de dislocations [Sabathier 2008, He 2013, Sabathier 2015]. De tels réseaux sont visibles sur la figure I.16c qui correspond à un combustible irradié aux neutrons à 1310°C. On notera que les lignes de dislocation sont décorées par de nombreux précipités de produits de fission. Selon les auteurs, cette localisation des précipités pourrait favoriser la formation de sous-joints de grains.

I. 3. 3. Comportement du combustible en réacteur, lors de transitoires de puissance

I. 3. 3. 1. Interaction Pastille-Gaine

En transitoire de puissance, c'est-à-dire lors d'une augmentation (plus ou moins rapide) de la puissance du réacteur, par rapport à la puissance nominale, la température s'accroît au cœur de la

pastille et dépasse les 1500°C, voire les 2000°C (domaine de température où la céramique présente un comportement viscoplastique).

Par ailleurs, différents phénomènes interviennent dans ce qui est appelé généralement l'Interaction Pastille-Gaine (IPG). La gaine subit également une très forte augmentation des contraintes en peau interne, en particulier aux plans inter-pastilles (Figure I.14d). L'élévation de température et l'accentuation du gradient thermique (Figure I.12) rendent en effet la dilatation thermique ainsi que la mise en diabo de pastilles plus intenses. De plus, le gonflement gazeux de la pastille, plus intense à puissance élevée, contribue encore à accroître la déformation imposée par la pastille à la gaine. On note aussi le relâchement, par les fissures des pastilles, de produits de fission volatils et agressifs pour la gaine. Cela peut amorcer un phénomène de corrosion sous contrainte (CSC) en peau interne de la gaine et conduire à sa rupture [Bailly 1996].

Au cours du temps, les contraintes exercées sur la gaine ont tendance à se relaxer du fait de l'écoulement viscoplastique de la gaine et du combustible. En fait, le cœur des pastilles est à une température suffisante pour permettre un tel écoulement. Celui-ci se produit aussi bien axialement, avec le comblement des évidements présents aux extrémités des pastilles, que radialement, au niveau des plans médians-pastille, provoquant ainsi l'apparition de plis secondaires sur la gaine (Figure I.14d), lorsque la hauteur de pastille est suffisante. La figure I.17 schématise l'évolution de la contrainte subie par la gaine au droit d'un plan inter-pastille, au cours d'un essai de rampe de puissance (conduit dans un réacteur expérimental) [Balland 2007]. On retrouve bien le pic de contraintes en début de transitoire de puissance. Ce pic est ensuite relaxé, entre autres grâce au comportement viscoplastique de la pastille.

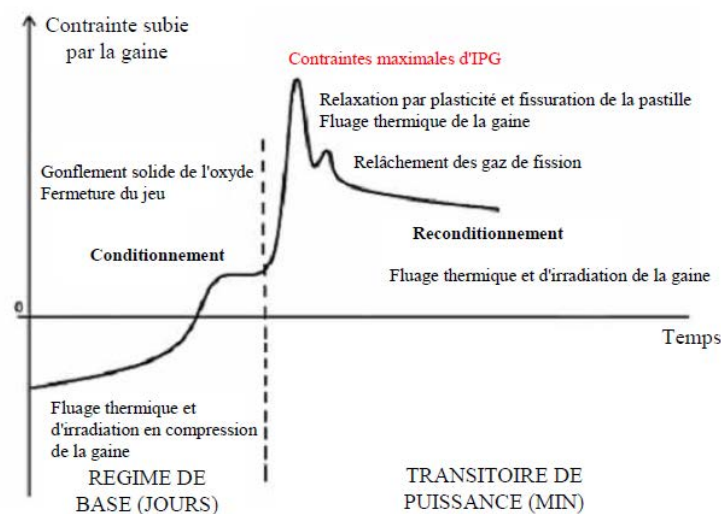


Figure I.17 : Evolution de la contrainte tangentielle subie par la gaine, au droit d'un plan inter-pastille, au cours d'un essai de rampe de puissance [Balland 2007].

I. 3. 3. 2. Evolution de la microstructure de l'UO₂

Ray *et al.* ont étudié par MET la microstructure d'un combustible irradié aux neutrons, après son irradiation de base et après un transitoire de puissance. A l'issue de l'irradiation de base, ils ont constaté la présence de nombreuses lignes de dislocations dont la forte courbure a été interprétée comme représentative de la mise en jeu de mécanismes de montée. Après le transitoire, qui a conduit à une élévation de la température centrale du combustible de 1200 à 1500°C, une forte

diminution de la densité de dislocations libres a été constatée avec l'apparition de réseaux de sous-joints de grains : cf. figure I.18 [Ray 1992]. Cette évolution a été interprétée par les auteurs comme étant la conséquence d'une déformation plastique.

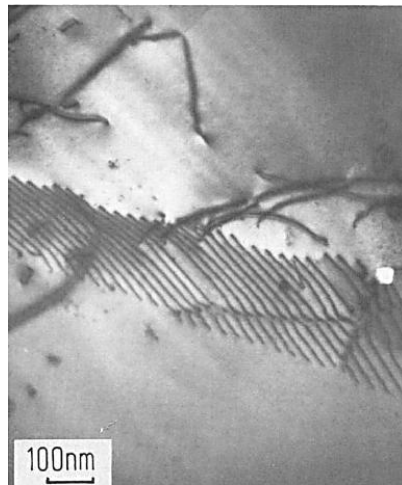
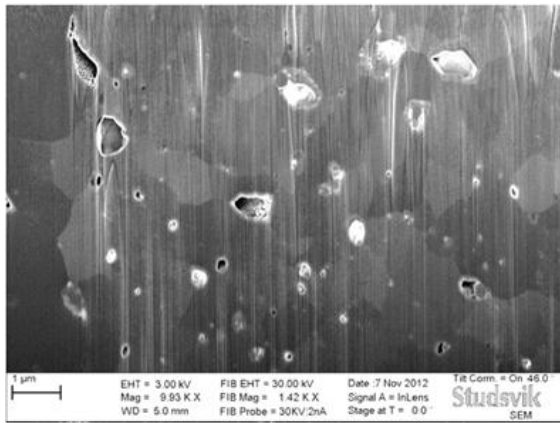
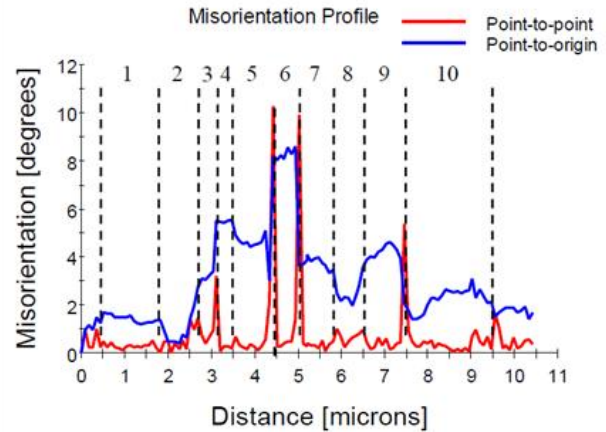


Figure I.18 : Image MET d'une structure de dislocations typique observée au centre d'un échantillon testé en transitoire de puissance, montrant un sous-joint de grain de faible désorientation séparant deux sous-grains [Ray 1992].

Des examens par MEB et EBSD ont également été réalisés récemment sur des combustibles irradiés, « dopés » ou non par l'addition de différents types de cations, après des rampes de puissance [Jädernäs 2013]. Ils ont permis de mettre en évidence l'apparition de sous-joints de grains dans la zone centrale de certains combustibles rampés. Ceux-ci sont visibles en image secondaire du fait de variations de contrastes (cf. figure I.19a) et sont clairement mis en évidence par EBSD grâce à des mesures de désorientations faites le long d'une ligne (figure I.19b) : on notera que les désorientations mesurées vont de quelques dixièmes de degré à environ 9°. La carte EBSD réalisée sur le même combustible (figure I.20, image centrale) met en évidence la fragmentation des grains originaux en sous-grains, voire en petits grains « recristallisés ». Il en est de même pour le combustible dopé par Al+Si mais n'est pas visible dans le cas du combustible standard (non dopé). Ces différences ne sont pas clairement interprétées par les auteurs. Elles pourraient être liées aux températures maximales atteintes lors de la rampe (environ 1300°C, dans le combustible standard, contre 1700°C pour celui dopé avec Al+Si) ainsi qu'à un rôle des additifs sur la déformation et la formation des sous-joints de grains. En tout cas, cette étude illustre l'intérêt de l'EBSD en tant qu'outil de suivi des mécanismes de déformation à haute température de l'UO₂.



(a)



(b)

Figure I.19 : (a) image MEB, en électrons secondaires, prise après un polissage par FIB dans la partie centrale d'un combustible dopé par ajout d'Al+Cr ayant subi un transitoire de puissance, (b) profils de désorientation le long d'une ligne mettant en évidence la présence de sous-joints de grains [Jädernäs 2013].

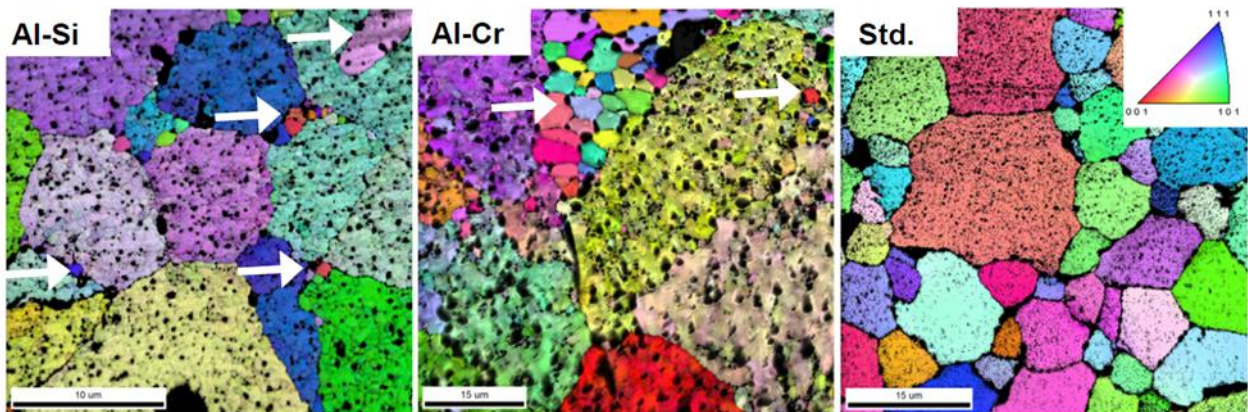


Figure I.20 : Cartographies EBSD, en figures de pôles inverses, de la partie centrale de trois combustibles (deux dopés et un non dopé) ayant fait l'objet d'une rampe de puissance [Jädernäs 2013].

Compte-tenu du temps et du coût représenté par un essai de rampe et par les examens post-irradiatoires qui y font suite, le comportement visco-plastique de l' UO_2 et sa dépendance aux caractéristiques microstructurales de cette céramique et aux conditions de sollicitation a largement été étudié sur la base d'essais hors irradiation, comme nous allons le voir ci-après.

I. 4. Comportement viscoplastique macroscopique de l' UO_2 hors irradiation

L'étude du comportement visco-plastique de l' UO_2 , hors irradiation, vise à reproduire les mécanismes de déformation qui entrent en jeu dans les pastilles combustibles lorsque les températures de fonctionnement atteintes en service sont suffisamment élevées (typiquement comprises entre 1300 et 2000°C) pour qu'elles soient le siège de phénomènes d'écoulement plastique en partie centrale, comme c'est le cas lors de transitoires de puissance.

I. 4. 1. Essais mécaniques réalisés sur les pastilles d'UO₂

Pour étudier le comportement viscoplastique de pastilles d'oxyde d'uranium, deux types de sollicitations uniaxiales sont le plus souvent utilisés en mode compression sur des pastilles :

- L'essai de fluage* : il consiste à appliquer une charge constante, généralement inférieure à la limite d'élasticité macroscopique du matériau, sur un échantillon, à une température constante et à suivre l'évolution de sa déformation ε ainsi que de sa vitesse de déformation $\dot{\varepsilon}$, au cours du temps. Le fluage est un phénomène thermiquement activé. Il comporte généralement trois stades successivement observés lorsque la contrainte appliquée est suffisante (Figure I.21a) :
 1. Le fluage primaire ou transitoire, au cours duquel la vitesse de déformation décroît fortement. Il correspond à une réorganisation interne du matériau où il peut y avoir mise en place progressive d'une sous-structure de dislocations.
 2. Le fluage secondaire ou stationnaire, au cours duquel le matériau se déforme à une vitesse constante. Ce stade apparaît lorsque la sous-structure de dislocations organisée au stade précédent a atteint un état qui n'évolue pratiquement plus. Ce stade est aussi appelé fluage-restauration pour exprimer l'équilibre entre le durcissement, dû à la déformation, et la restauration favorisée par la température, qui sont deux processus antagonistes. En général, la vitesse du fluage stationnaire est exprimée sous la forme d'une loi d'Arrhénius [Mukherjee 1969], plus ou moins complexe, telle que :

$$\dot{\varepsilon} = \frac{A_0 D G b}{K T} \left(\frac{b}{d}\right)^p \left(\frac{\sigma}{G}\right)^n \quad (I.8)$$

avec : $\dot{\varepsilon}$ la vitesse de fluage en régime stationnaire,

A_0 une constante qui dépend de la microstructure,

D le coefficient de diffusion des ions uranium ($D = D_0 \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right)$),

b le module du vecteur de Burgers,

d la taille des grains,

σ la contrainte appliquée,

G le module de cisaillement,

K la constante de Boltzmann,

T la température,

les exposants p et n exprimant respectivement la sensibilité à la taille de grain et à la contrainte.

3. Le fluage tertiaire, au cours duquel la vitesse croît rapidement jusqu'à rupture et où il y a dégradation du matériau (fissuration...).
- L'essai de Déformation à Vitesse imposée Constante (DVC)** : il consiste à imposer la vitesse de déformation et à suivre l'évolution de la charge correspondante σ (Figure I.21b). Le paramètre caractéristique que l'on peut obtenir à l'aide de ce type d'essai est la contrainte d'écoulement σ_e .

Remarques :

* En toute rigueur, un essai de fluage est réalisé à contrainte constante. Les équipements d'essais utilisés ne permettent pas de le faire, compte-tenu de la variation de section de la pastille.

** C'est la vitesse de déplacement de la traverse qui est imposée et constante mais celle de l'échantillon est susceptible de varier légèrement au cours de l'essai.

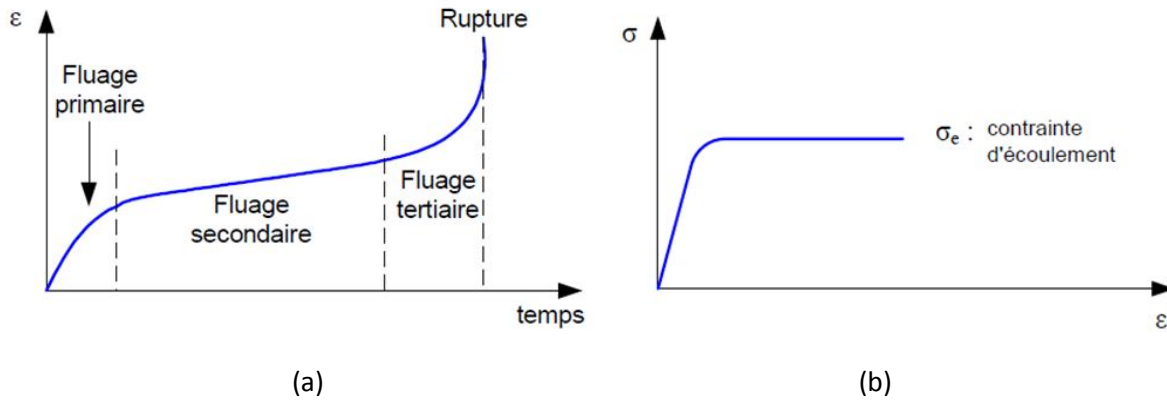


Figure I.21 : Allure (a) d'un essai de fluage, (b) d'un essai DVC [Balland 2007].

Un grand nombre d'essais de fluage ou de DVC, couvrant une large gamme de conditions de sollicitation, a été réalisé sur de l' UO_2 polycristallin en tension [Mertens 1964], en torsion [Solomon 1970], en flexion [Scott 1959, Armstrong 1962, Armstrong 1963, Armstrong 1964, Christie 1962, Clough 1970, Colin 2003], mais surtout en compression [Wolfe 1967, Poteat 1968, Bohaboy 1969, Seltzer 1970^a, Seltzer 1970^b, Seltzer 1971, Marples 1970, Kummerer 1970, Guérin 1973, Vivant-Duguay 1998, Dherbey 2000, Ndiaye 2012]. Ces essais ont permis d'étudier l'influence de divers paramètres, d'une part extrinsèques tels que la température et la contrainte ou la vitesse de déformation, d'autre part, intrinsèques tels que la stoechiométrie, la taille des grains et la densité.

La majorité des essais, en particulier au CEA, a été réalisée en contrainte ou en vitesse imposée à des températures généralement comprises entre 1300 et 1700°C, dans une gamme de contraintes allant de 20 à 70 MPa, qui couvre une gamme de vitesses de déformation allant de 10^{-8} à 10^{-3} s^{-1} , jusqu'à des niveaux de déformation de l'ordre de 15%. Les essais les plus répandus ont été réalisés en DVC, vers 1500°C, à des vitesses de l'ordre de 10^{-5} s^{-1} . Ils ont concerné principalement des pastilles d' UO_2 stoechiométriques, de densité de l'ordre de 95 à 98,5% de la densité théorique de l' UO_2 et de taille de grain comprise entre 5 et 40 μm . On notera que bon nombre des essais réalisés au CEA [Vivant-Duguay 1998, Dherbey 2000, Ndiaye 2012] l'ont été au moyen de la même machine d'essais mécaniques, qui sera aussi celle utilisée dans notre étude.

I. 4. 2. Influence des conditions de sollicitation sur le comportement viscoplastique

I. 4. 2. 1 Influence de la contrainte

Le fluage de l'oxyde d'uranium a été étudié sur un domaine de contraintes très large (de 5 à 150 MPa) par des essais de flexion [Armstrong 1962] mais surtout en compression [Poteat 1968, Wolfe 1967, Bohaboy 1969, Guérin 1973, Vivant-Duguay 1998, Dherbey 2000, Ndiaye 2012]. Ces études portent principalement sur le fluage stationnaire qui s'établit au bout de quelques heures. Le fluage primaire joue un rôle très important sur le comportement du combustible en réacteur mais il a été peu étudié à cause des difficultés de mesure.

La figure I.22 montre l'influence de la contrainte sur la vitesse de fluage de l'UO₂ stœchiométrique polycristallin testé en compression [Wolfe 1967, Bohaboy 1969, Poteat 1968]. La courbe $\dot{\epsilon} = f(\sigma)$ est représentée dans un diagramme bi-logarithmique.

Deux domaines de comportement sont ainsi mis en évidence : (1) le domaine des faibles contraintes où la vitesse de fluage varie avec la contrainte à la puissance 1 à 2, (2) le domaine des fortes contraintes où la vitesse de fluage est proportionnelle à la contrainte à la puissance 4 à 7. Notons que d'autres études, plus récentes, ont conclu à des exposants de contrainte compris entre 1 et 3, dans le premier domaine, et entre 4 et 10, dans le second [Vivant-Duguay 1998, Dherbey 2000, Ndiaye 2012].

Ces deux domaines sont séparés par une contrainte de transition σ_t caractéristique d'un changement du mécanisme prédominant contrôlant la vitesse de fluage. Wolfe et Kaufman [Wolfe 1967] ont constaté que la contrainte de transition σ_t dépend de la taille des grains (elle diminue avec l'augmentation de la taille des grains) et qu'elle est relativement indépendante de la température. Cette dernière condition n'est remplie que lorsque les énergies d'activation de fluage sont similaires dans les deux régimes de contrainte et lorsque la gamme de température est relativement réduite, comme c'était le cas pour un certain nombre des premières études réalisées sur l'UO₂ stœchiométrique.

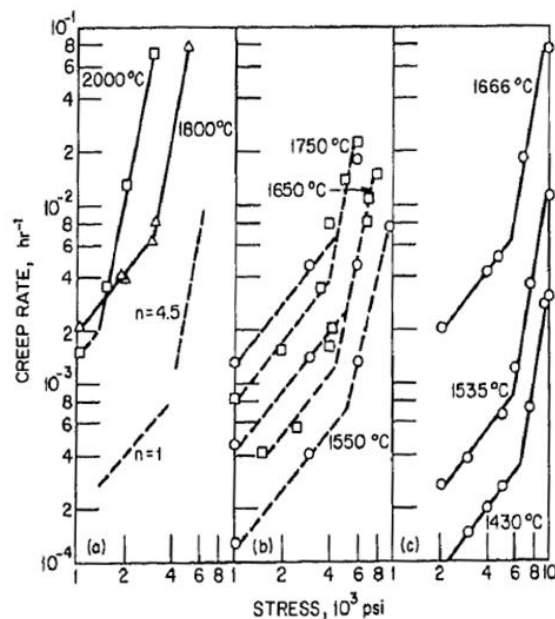


Figure I.22 : Effet de la contrainte appliquée sur la vitesse de fluage de l'UO₂ testé en compression (10³ Psi = 7 MPa) [Seltzer 1971].

Dans le premier domaine, aux faibles contraintes, la vitesse de fluage peut être donnée par :

$$\dot{\epsilon}_1 = A_1 \sigma^{n_1} \exp\left(-\frac{Q_1}{RT}\right) \quad (I.9)$$

avec $1 \leq n_1 \leq 3$ [Seltzer 1971, Bohaboy 1969, Armstrong 1962, Vivant-Duguay 1998] et $300 \leq Q \leq 440$ kJ/mol. Ces valeurs de Q sont proches de l'énergie de diffusion de l'uranium aux joints de grains (377 kJ/mol) [Knorr 1989]. Il est généralement admis dans la littérature que, dans ce domaine, la déformation est contrôlée par un mécanisme de diffusion. Nous reviendrons plus loin (paragraphe I. 5) sur ce type de fluage.

Dans le second domaine, aux fortes contraintes, la vitesse de fluage peut s'écrire :

$$\dot{\epsilon}_2 = A_2 \sigma^{n_2} \exp\left(-\frac{Q_2}{RT}\right) \quad (I.10)$$

avec $4 \leq n_2 \leq 10$ [Seltzer 1971, Bohaboy 1969, Armstrong 1966, Vivant-Duguay 1998, Dherbey 2000] et $474 \leq Q \leq 539$ KJ.mol⁻¹. Ici, les valeurs de Q se rapprochent de l'énergie d'activation de l'autodiffusion de l'uranium dans l'UO₂ qui est de l'ordre de 544 kJ.mol⁻¹ [Knorr 1989]. Dans ce domaine, l'exposant de contrainte plus élevé montre que la contrainte a une influence importante sur le mécanisme qui contrôle le fluage, à savoir une déformation par montée des dislocations. On parle donc de fluage dislocationnel (cf. paragraphe I. 5).

I. 4. 2. 2. Influence de la température

La vitesse de déformation par fluage de l'UO₂ augmente logiquement avec la température, puisque l'on a affaire à un phénomène thermiquement activé. De même, en DVC, l'augmentation de la température engendre l'abaissement de la contrainte d'écoulement comme cela a déjà été présenté dans le paragraphe I. 2. 3. (cf. figure I.5). On rappelle que les courbes contrainte-déformation comprennent une partie quasi linéaire (domaine élastique) suivie, dans certains cas, par une courte phase de fort durcissement qui se traduit par un maximum à très faible déformation : c'est le pic de compression. Ce pic n'est présent que sur certaines courbes notamment à fortes vitesses et basses températures : il est d'autant plus grand que la vitesse de déformation est élevée et il disparaît pour T ≥ 1500°C. Ensuite, la contrainte chute de 10 à 20% par rapport à ce maximum et se stabilise pour former un plateau. La descente en contrainte vers un palier est certainement due à une augmentation très rapide du nombre de dislocations mobiles.

I. 4. 3. Influence des paramètres structuraux et microstructuraux

Différents paramètres liés à la structure et à la microstructure ont une grande influence sur le comportement viscoplastique de l'UO₂ : il s'agit principalement de l'écart à la stœchiométrie, de la taille des grains et de la porosité.

I. 4. 3. 1. Influence de l'écart à la stœchiométrie

Les études sur les combustibles non stœchiométriques ont montré que l'écart à la stœchiométrie a une influence importante sur leur comportement en fluage, en lien avec la modification des propriétés de diffusion [Philibert 1984]. En particulier, la vitesse de déformation $\dot{\epsilon}$ et l'énergie d'activation "Q" sont très sensibles à des écarts du ratio Oxygène/Métal.

- Dans le cas de l'UO_{2-x}, les auteurs montrent que la vitesse de fluage décroît, quand le rapport oxygène/uranium (O/U) diminue [Javed 1974, Hough 1988]. Cette diminution atteint par exemple un facteur 2,5 quand le rapport O/U varie de 2,000 à 1,998-1,999 [Hough 1988].
- Dans le cas de l'UO_{2+x}, et dans le domaine des faibles contraintes, la vitesse de fluage est proportionnelle à l'écart à la stœchiométrie "x". Elle devient proportionnelle à x^m dans le domaine des fortes contraintes, avec 1,75 < m < 2 [Seltzer 1972]. Il faut noter aussi que l'excès d'oxygène augmente la plasticité de l'UO₂ d'une manière très

remarquable, ce qui engendre un abaissement de la contrainte d'écoulement en déformation à vitesse imposée.

D'après des études réalisées sur des monocristaux d' UO_2 sur-stœchiométriques, Keller *et al.* ont montré que le système de glissement primaire le plus favorable dans l' UO_2 peut être modifié dans les cristaux sur-stœchiométriques en fonction de la température, de l'orientation, et aussi de l'écart à la stœchiométrie [Keller 1988^a, Keller 1988^b]. Ils ont montré qu'à relativement basse température (à partir de 873 K) le glissement est favorisé suivant $\{111\}\langle\bar{1}10\rangle$ pour des rapports O/U élevés [Keller 1988^a]. Aux températures plus élevées et pour des rapports O/U faibles, le glissement $\{001\}\langle\bar{1}10\rangle$ est plus courant [Keller 1988^b].

I. 4. 3. 2. Influence de la taille de grain

Dans le domaine des faibles contraintes ($\sigma < \sigma_i$), il est généralement admis que la vitesse de fluage est inversement proportionnelle au carré de la taille de grains, en lien avec des mécanismes diffusifs [Armstrong 1963, Bohaboy 1969, Burton 1973]. En revanche, dans le domaine des fortes contraintes ($\sigma > \sigma_i$), la vitesse de fluage est considérée comme indépendante de la taille de grains [Bohaboy 1969, Hough 1988, Seltzer 1971, Gridnev 1986], tout au moins dans une gamme allant jusqu'à 25 μm . Si l'on se base sur la formule I.8 (loi d'Arrhénius), cela revient à considérer les deux cas suivants :

- $p \neq 0$, dans ce cas les joints de grains entrent en jeu, c'est le fluage diffusion qui intervient plutôt à basses contraintes.
- $p = 0$, la vitesse de déformation est indépendante de la taille de grain et le mécanisme s'opère à l'intérieur de ceux-ci, c'est le fluage par mouvements de dislocations qui intervient à plus fortes contraintes.

Il existe cependant quelques résultats qui montrent une augmentation de la vitesse de déformation avec la taille de grain (Figure I.23) qui serait imputable, d'après les auteurs, à la participation des dislocations au processus de déformation [Burton 1973, Vivant-Duguay 1998]. Vivant-Duguay pointe la nécessité d'une observation fine des configurations de dislocations pour pouvoir étayer des hypothèses plus précises, en termes de mécanismes.

Chung et Davies ont réalisé des essais de fluage sur l' UO_2 dans une large gamme de température et de contrainte pour ajuster les meilleures conditions (taille de grain/condition d'essai) afin d'obtenir un comportement superplastique du matériau [Chung 1979]. Ils ont mis en évidence ce type de comportement dans l' UO_2 lorsque la taille de grain est faible (de l'ordre de 2 μm), ce qui favorise la diffusion aux joints de grains lors de la déformation. Des travaux relativement récents visant à obtenir de l' UO_2 nanocristallin ont été effectués par Spino *et al.* dans l'objectif d'obtenir un combustible présentant, entre autres, une plus grande plasticité [Spino 2012]. Ce type de microstructure devrait faire prochainement l'objet d'essais mécaniques en vue d'étudier son comportement visco-plastique en température.

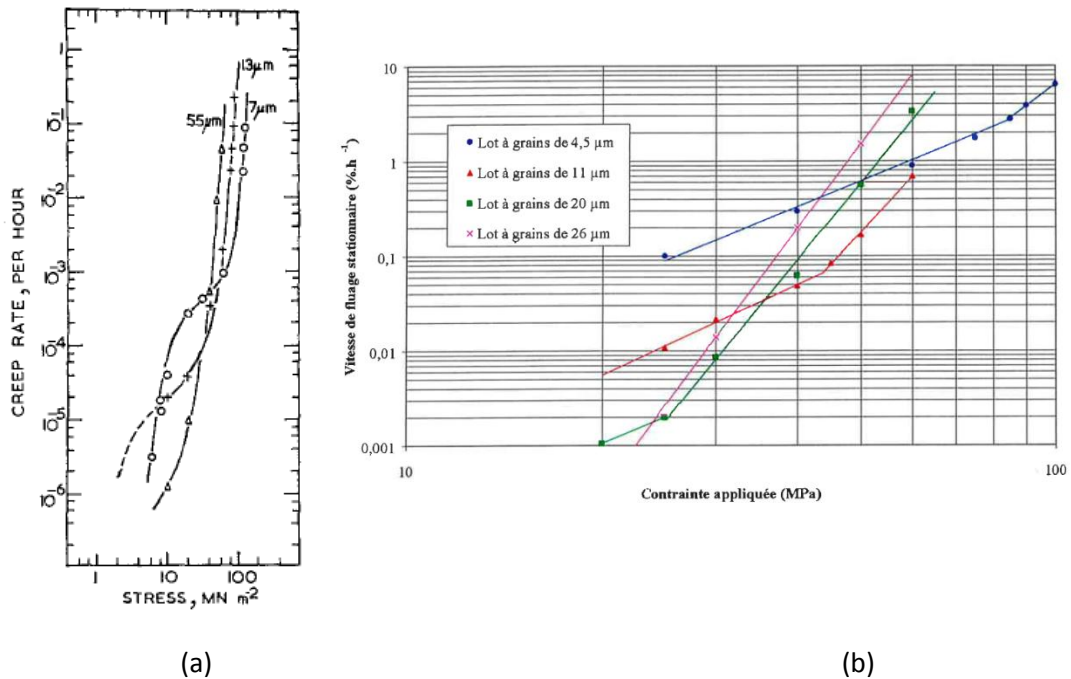


Figure I.23 : Résultats de (a) Burton et (b) Vivant-Duguay montrant l'influence de la taille de grain sur la vitesse de fluage de l'UO₂, respectivement à 1350 et 1463°C.

I. 4. 3. 3. Influence de la porosité

Les termes « pore(s) » ou « porosité(s) » englobent un ensemble de caractéristiques de la porosité totale et de la porosité ouverte et fermée telles que la taille, la forme et la distribution intra- et inter-granulaire des pores résultant du procédé de fabrication par métallurgie des poudres. Ces différentes caractéristiques ont très vraisemblablement une influence sur les mécanismes de déformation visco-plastique de l'UO₂. Néanmoins, seule la fraction volumique de pores (ou la densité de l'UO₂) a été prise en compte dans certaines lois de fluage et l'influence des caractéristiques de ces pores (taille, forme, localisation...) sur le comportement mécanique de l'UO₂ a très peu été étudié dans la littérature, à notre connaissance.

L'influence de la fraction volumique de pores sur la vitesse de déformation en fluage a été étudiée par Bohaboy *et al.* sur des échantillons d'UO₂ ayant une taille de grains de 10 μm testés à 1650°C. Ces échantillons avaient des densités comprises entre 92% et 98% de la densité théorique de l'UO₂. Les résultats obtenus ont montré que la vitesse de déformation augmente avec la porosité (voir figure I.24) [Bohaboy 1969]. Ils suggèrent une contribution de la porosité à la vitesse de fluage donnée par l'équation suivante :

$$\dot{\epsilon} \sim \frac{1}{DR - D'} \quad (I.11)$$

Avec DR la densité relative de l'échantillon (en %), D' une constante égale à 87,7 quand $\sigma < \sigma_t$ ou égale à 90,5 quand $\sigma > \sigma_t$.

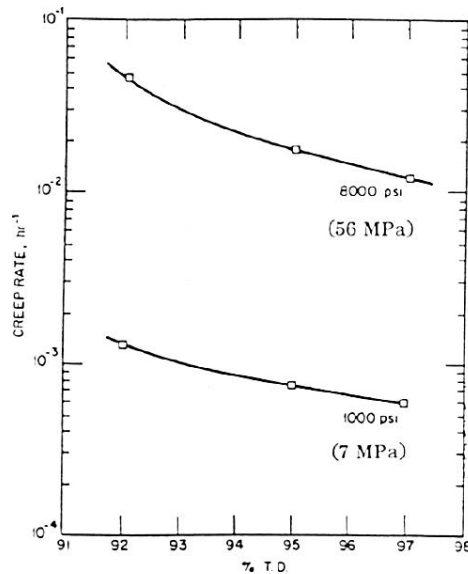


Figure I.24 : Variation de la vitesse de déformation en fonction de la densité (TD : Theoretical Density) [Bohaby 1969].

Plusieurs autres lois ont été proposées pour décrire la relation entre la vitesse de déformation et la porosité totale. Néanmoins, les caractéristiques de cette porosité, c'est-à-dire, la taille des pores et leur répartition en position intra- et inter-granulaire, n'ont jamais été prises en compte dans les lois de fluage. Les mécanismes d'interaction entre les pores et les dislocations ont également été très peu étudiés.

La présence de gros pores inter-granulaires est, en tout cas, clairement identifiée comme un facteur de dégradation de la tenue au fluage car ceux-ci favoriseraient le glissement aux joints de grains et l'apparition de décohésions inter-granulaires [Armstrong 1962, Radford 1979].

I. 5. Evolution des microstructures et mécanismes associés

La déformation par fluage induite dans les combustibles d'UO₂ est un processus complexe qui dépend des conditions d'essai (température, contrainte, vitesse de déformation...) et met en œuvre des mécanismes de mouvement des dislocations et de glissement aux joints de grains qui sont tributaires de caractéristiques « matériau » telles que la taille de grain, la porosité et les impuretés [Bohaby 1969]. A haute température, le mouvement des dislocations domine le mécanisme de déformation et conduit, à un stade avancé, à un mouvement macroscopique du matériau et donc à une déformation permanente. La montée des dislocations prend place au sein du matériau et par conséquent, augmente la vitesse de déformation en permettant aux dislocations de franchir les obstacles, comme les impuretés, la porosité, les grains, les précipités, les joints de grains, etc., qui limitent leurs mouvements. Ces processus continuent jusqu'à ce que le matériau atteigne un état d'équilibre (stationnaire) pour lequel le nombre de dislocations ne change plus. Cela signifie que la génération de nouvelles dislocations est compensée par l'annihilation de dislocations existantes. Blum a défini les joints de grains comme agissant en tant que barrières de confinement du glissement des dislocations pendant le régime stationnaire et a proposé que la vitesse de déformation à l'état stable est contrôlée par l'annihilation des dislocations au voisinage des joints de grains [Blum 1971].

Les caractéristiques de la population de sous-joints de grains présente dans l'UO₂ seraient également à prendre en compte dans l'analyse des mécanismes impliqués.

Afin de caractériser le comportement, notamment en fluage, des matériaux à haute température de nombreux modèles ont été proposés dont certains ont ensuite été adaptés à la déformation des céramiques. Les modèles proposés pour décrire le fluage diffusionnel ou le fluage dislocationnel sont nombreux et ont été présentés de façon détaillée dans diverses revues bibliographiques [Cannon 1983, Cannon 1988, Gros 1991, Vivant-Duguay 1998, Dherbey 2000].

Différentes formulations d'un même mécanisme sont possibles, certaines ont un sens plus physique, d'autres permettent de faciliter la description des paramètres de fluage. Il est certain que la détermination expérimentale des seuls paramètres macroscopiques de la loi de fluage que sont n (exposant de contrainte), p (exposant de taille de grains) et Q (énergie d'activation) ne permet pas une détermination claire d'un mécanisme de déformation de l'UO₂. L'observation expérimentale fine des configurations des dislocations et des sous-joints est incontournable pour étayer des hypothèses et trancher entre différents mécanismes dont les caractéristiques sont souvent proches.

Nous présentons uniquement certains modèles en annexe B, choisis parmi ceux qui ont été le plus souvent appliqués au cas de l'UO₂ polycristallin, sachant qu'il n'existe pas de consensus clair sur leur pertinence et leur domaine de validité. Nous allons également nous intéresser ci-après aux résultats de certaines études microstructurales, susceptibles d'apporter des éléments sur les mécanismes en jeu.

I. 5. 1. Apparition de cavités

Ndiaye a suivi par analyse d'image l'évolution de la porosité totale (« pores » = pores de fabrication + cavités) dans la zone centrale de pastilles testées en fluage, en fonction de la déformation globale, pour deux microstructures ayant des tailles de grains différentes (9 μm et 25 μm) [Ndiaye 2012]. Elle a montré qu'aux faibles déformations (environ 2%), le pourcentage surfacique de « pores » est invariant, alors que le nombre de « pores » par unité de surface diminue avec la déformation, et ce, pour les deux microstructures. Cela signifie qu'il y a coalescence des pores de fabrication sans apparition notable de cavités. Lorsque la déformation augmente, le nombre de « pores » ainsi que leurs fractions surfacique augmente, du fait de l'apparition de cavités, en particulier dans la microstructure à gros grains.

Dherbey a observé que, sous faible contrainte, des cavités plutôt lenticulaires apparaissent aux points triples et sur les joints de grains et tendent peu à peu à percoler (Figure I.25a). Le développement de ces cavités serait au moins partiellement dû à des phénomènes de migration de lacunes. Pour une sollicitation donnée, leur nombre et leur taille augmentent avec le taux de déformation. A fortes contraintes, des fissures ou décohésions se développent à partir de points triples (Figure I.25b). D'après l'auteur, du glissement aux joints de grains intervient dans les deux cas et n'est pas totalement accommodé. Dans le premier, la vitesse de déformation est suffisamment faible pour qu'il y ait accommodation partielle par diffusion au niveau de « ponts », dans le second, cette vitesse est plus rapide et conduit à une ouverture franche des joints de grains parallèlement à l'axe de compression.

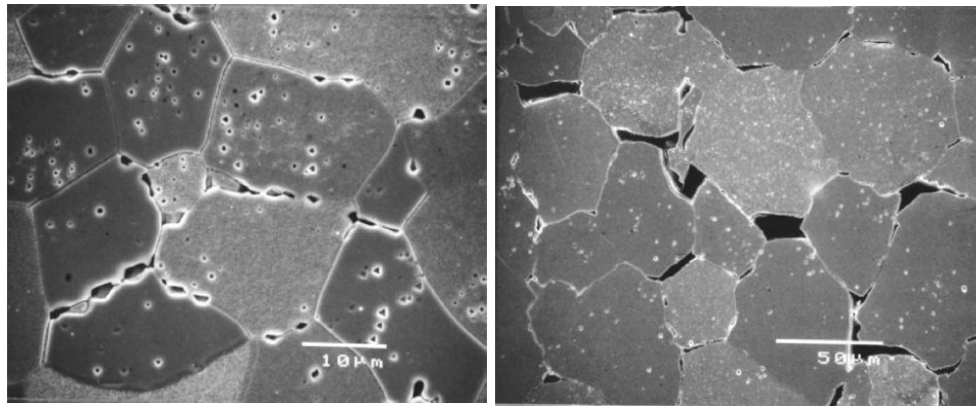


Figure I.25 : Micrographies d'échantillons UO_2 testés en fluage à $1465^\circ C$ et présentant deux modes d'endommagement : (a) une interconnection de cavités lenticulaires à faible contrainte (25 MPa), (b) des décohésions inter-granulaires à forte contrainte (50 MPa) [Dherbey 2000].

I. 5. 2. Formation de sous-structures de déformation

La microscopie électronique en transmission (MET) a été assez largement utilisée depuis les années 1960 sur de l' UO_2 monocristallin ou polycristallin, testé en fluage, afin d'en étudier les mécanismes à l'échelle des dislocations. On rappelle ci-après certains résultats remarquables.

Yust a étudié la déformation de l' UO_2 polycristallin à haute température et a observé qu'à une température voisine de $1500^\circ C$, la montée des dislocations jouerait un rôle non négligeable [Yust 1973]. Celles-ci sont réparties de façon hétérogène : certains grains en contiennent très peu, contrairement à d'autres. Certains joints de grains semblent se comporter comme des sources de dislocations, tandis qu'au niveau d'autres joints « ondulés », les dislocations s'accumulent dans des configurations énergétiquement instables. Les pores influent également sur ces répartitions.

Lors de son étude des sous-structures de dislocations, Alamo a observé qu'à partir de $1400^\circ C$, et après 2% de déformation, de longs segments de dislocations et des boucles se développent dans un plan de glissement, et s'organisent en un réseau simple (Figure I.26a) [Alamo 1978]. Pour des taux de déformation plus élevés (12%), l'organisation des dislocations en réseau devient prédominante, et fort peu de dislocations libres sont visibles à l'intérieur des cellules (Figure I.26b). De plus, le réseau observé n'est plus localisé dans l'un des plans de glissement. Il est donc probable qu'à cette température, la montée des dislocations joue un rôle non négligeable, ce qui rejoint les conclusions de Yust.

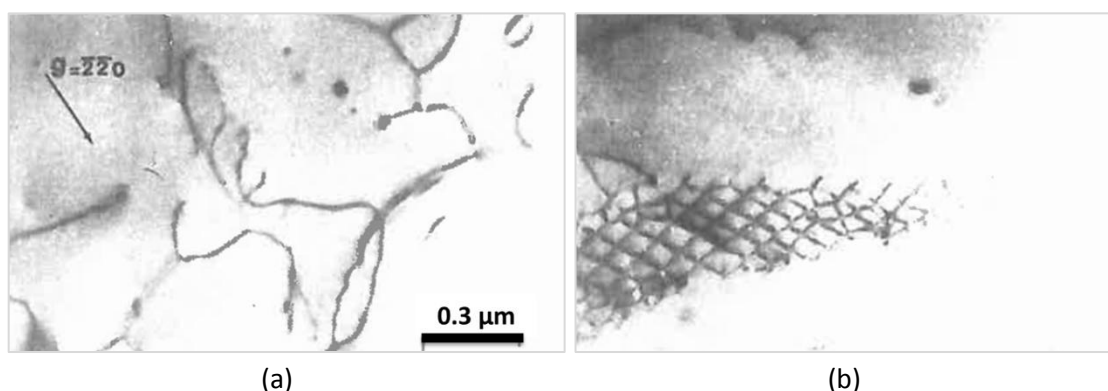


Figure I.26 : Observation par MET d'un échantillon monocristallin d' UO_2 déformé à $1380^\circ C$ suivant $\langle 110 \rangle$ pour (a) $\epsilon=2\%$ et (b) $\epsilon=12\%$ [Alamo 1978].

Dherbey a mis en évidence par MET, dans des échantillons d'UO₂ polycristallin ayant une taille de grain de 10 µm, testés en fluage à 1465°C sous 60 MPa, la présence de dislocations individuelles et de réseaux hexagonaux de dislocations [Dherbey 2000]. Dès 0,4% de déformation, quelques dislocations individuelles sont observées. Quand la déformation augmente, la densité de dislocations augmente également pour former de longs segments de dislocations. Le début de la formation des réseaux hexagonaux a été constaté à partir de 2% de déformation et était plus marqué pour une déformation de 4,2% (Figure I.27). Ce sont ces réseaux, qui constituent des parois (ou « murs ») de dislocations, qui correspondent à des sous-joints de grains. La taille des sous-grains a été estimée, dans certains échantillons, au moyen d'attaques chimiques couplées à des examens par MEB. Dans un UO₂ de taille de grain moyenne initiale de 36 µm, des valeurs de tailles de sous-grains de 10,5, 9 et 8,2 µm, ont respectivement été obtenues à 30, 40 et 50 MPa. Cette diminution de taille avec l'augmentation de la contrainte est un résultat couramment rapporté dans la littérature [Raj 1986].

Sur la base de ces observations, Dherbey a proposé un modèle qui met en jeu un mécanisme de fluage contrôlé par la création et l'annihilation de dislocations au niveau des sous-joints de grains. D'après ce modèle, pour une taille de grain, une température et une contrainte données, la vitesse de fluage serait d'autant plus élevée que la taille des sous-grains l'est également (cf. annexe B). Ceci n'a toutefois pas été vérifié sur la base de mesures statistiquement représentatives du morcellement des grains en sous-grains.

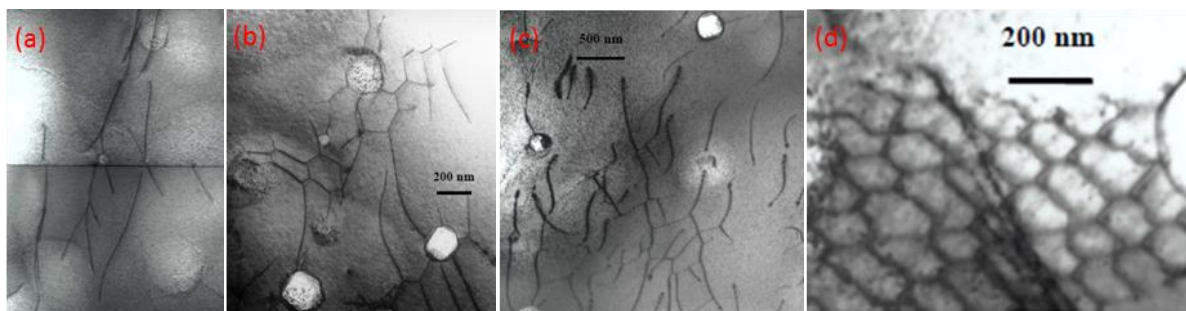


Figure I.27 : Apparition et évolution des dislocations dans de l'UO₂ polycristallin (taille de grain : 10 µm) testé en fluage sous 60 MPa à 1465°C : (a) $\epsilon = 0,4\%$, (b) $\epsilon = 2\%$, (c) $\epsilon = 3,6\%$ et (d) $\epsilon = 4,2\%$ [Dherbey 2000].

I. 6. Bilan, axes d'étude

La littérature relative au comportement en fluage de l'UO₂ est abondante mais relativement ancienne (beaucoup de travaux datent des années 1960-1970). Les mécanismes mis en jeu sont parfois spéculatifs, car peu étayés par des observations microstructurales adaptées, et donc relativement controversés.

Nous avons, en particulier, identifié des manques majeurs concernant le lien entre la microstructure initiale de l'UO₂ et son comportement visco-plastique. En effet, si de nombreux travaux ont été réalisés concernant la taille de grains et son influence sur le comportement de l'UO₂, pratiquement aucun, à notre connaissance, n'a traité du rôle de la porosité et notamment de sa répartition inter- et intra-granulaire sur le comportement en fluage de l'UO₂.

En outre, les examens par MET ont montré que le fluage de l'UO₂ met en jeu des phénomènes de sous-structuration des grains (apparition de sous-joints de grains). Cette technique

présente toutefois un certain nombre de limitations liées à la préparation de l'échantillon nécessaire pour obtenir des lames minces transparentes aux électrons (amincissement jusqu'à moins de 100 nm d'épaisseur) et à la taille limitée de la zone observable (de l'ordre de quelques μm à quelques dizaines de μm , ce qui représente un nombre limité de grains). En outre, ces résultats n'ont donné lieu à aucune quantification du développement de la sous-structure qui puisse être reliée aux conditions de sollicitation thermomécaniques et à la microstructure initiale de la céramique.

Pour franchir ces diverses limitations, il est apparu nécessaire de développer une nouvelle approche de caractérisation sur échantillons massifs. Il a donc été décidé de travailler principalement sur deux axes de recherche dans le cadre de cette thèse :

1. Premier axe de recherche : il s'agit d'apporter des réponses sur les mécanismes de déformation à chaud de l' UO_2 , et en particulier sur sa sous-structuration, en lien avec sa microstructure initiale (en particulier sa porosité) et ses conditions de sollicitation, au moyen de nouveaux outils de caractérisation microstructurale.

Pour cela, nous proposons de travailler sur deux lots de pastilles d' UO_2 , se caractérisant par une taille de grain similaire, une même fraction volumique totale de pores, mais une distribution différente de ces pores (en taille et en nombre de pores, ainsi qu'en répartition inter- et intra-granulaire). Ces deux lots feront l'objet d'essais mécaniques de compression dans différentes conditions représentatives de celles vues par le combustible lors de rampes de puissance.

2. Second axe de recherche : cet axe portera sur le développement de méthodes adaptées à la caractérisation d'échantillons d' UO_2 déformés en vue d'en extraire des informations quantifiées concernant la sous-structuration des grains, qui pourront être comparées d'un échantillon à l'autre.

Les méthodes que nous avons identifiées sont l'EBS (Electron BackScatter Diffraction) et l'imagerie par contraste de canalisation des électrons ou l'Accurate-ECCI (pour Electron Channeling Contrast Imaging). Ces techniques peuvent être mises en œuvre dans un MEB sur des échantillons massifs et peuvent apporter des informations sur la subdivision des grains en sous-grains et sur l'organisation des dislocations qui les constituent.

L'EBS est une technique de mise en œuvre récente sur l' UO_2 , en particulier après des essais mécaniques [Iltis 2015, Iltis 2016]. Elle permet d'obtenir des cartographies d'orientations et de phases. A partir de celles-ci, un grand nombre de données quantifiées peuvent être déduites comme la texture cristallographique, la taille et la forme des grains, etc. En outre, l'EBS permet d'obtenir des informations sur la distribution des joints de grains en termes de désorientations, y compris celles très faibles qui correspondent aux sous-joints de grains. Cette distribution a été très peu étudiée dans les travaux de recherche publiés à ce jour sur l' UO_2 . Une étude très récente s'est intéressée à la caractérisation par EBS de l'évolution de la microstructure de pastilles d' UO_2 ayant subi des essais de fluage jusqu'à des niveaux de déformations différents [Iltis 2015]. Elle a permis de mettre en évidence des sous-joints de grains de désorientation comprise entre 0,5 et 5° et a servi à la définition de ce travail de thèse.

L'Accurate-ECCI est une technique de caractérisation des défauts dans des échantillons massifs qui a été appliquée, pour la première fois sur l' UO_2 en 2014, donc au début de ma thèse, dans le cadre d'une étude de faisabilité [Mansour 2016]. Cette étude a permis d'imager des dislocations et des sous-joints de grains au sein d'un échantillon d' UO_2 déformé, avec une résolution

proche de celle atteinte en MET, en s'affranchissant des contraintes et limitations inhérentes aux examens en transmission [Mansour 2014, Mansour 2015].

Ces deux techniques ont fait l'objet de développements spécifiques, dans le cadre de cette thèse, pour être appliquées à la problématique de l'étude de l'UO₂ déformé, comme cela sera exposé dans le chapitre III.

Au préalable, le chapitre II sera consacré à la description de la fabrication et des méthodes de caractérisation de la microstructure des deux lots de pastilles nécessaires à notre étude, ainsi qu'aux essais mécaniques réalisés sur ces lots.

Chapitre II

Fabrication et caractéristiques microstructurales des matériaux étudiés - Mise en œuvre et résultats des essais mécaniques

II. 1. Introduction

Dans la première partie de ce chapitre, nous présentons les conditions de fabrication du matériau UO_2 étudié. En effet, deux lots de pastilles ont été fabriqués selon un cahier des charges bien précis. Leurs conditions de fabrication, par métallurgie des poudres, ainsi que leurs principales caractéristiques physiques y sont également précisées.

Les techniques de caractérisation de la microstructure par microscopie électronique à balayage (MEB) seront présentées dans la seconde partie de ce chapitre : on commencera par la méthode d'analyse des images obtenues en électrons rétrodiffusés (BSE pour « Back Scattered Electrons ») pour caractériser la distribution inter- et intra-granulaire des pores de fabrication. Puis, on présentera la technique EBSD (Electron Back-Scattered Diffraction) qui est utilisée, dans ce chapitre, pour déterminer la taille de grains.

Les résultats de la caractérisation (taille de grain et distribution des pores) de l'état de référence (non déformé, après frittage) des deux lots de pastilles fabriqués feront l'objet de la 3^{ème} partie de ce chapitre.

La dernière partie de ce chapitre concerne les essais mécaniques réalisés sur les pastilles des deux lots. La gamme retenue en termes de vitesse de déformation, contrainte appliquée et niveau de déformation finale est indiquée et justifiée. La mise en œuvre des essais de compression et leur exploitation est présentée.

II. 2. Fabrication de pastilles d' UO_2 de microstructures contrôlées

II. 2. 1. Cahier des charges

Dans le cadre de cette étude, le cahier des charges suivant a été défini pour la fabrication de deux lots de plusieurs dizaines de pastilles d' UO_2 polycristallin :

- utiliser la même poudre de départ, de façon à ce qu'elle présente les mêmes impuretés (dans la mesure où celles-ci sont susceptibles d'influer sur le fluage de l' UO_2),
- ne pas employer de porogène, afin d'éviter la formation de pores de grande taille, susceptibles d'influer sur le comportement mécanique de l' UO_2 , selon des mécanismes différents de ceux que nous souhaitons étudier à l'échelle du grain,
- presser des « crus » suffisamment hauts (environ 20 mm) pour obtenir, après frittage, des pastilles de 15 à 16 mm de haut (contre environ 12 mm, habituellement), de façon à mieux répartir la déformation lors des essais de compression,
- effectuer le frittage sous atmosphère réductrice (H_2), de façon à obtenir un oxyde stœchiométrique,
- obtenir une taille de grain après frittage similaire, de l'ordre de 10 à 15 μm (ce qui est une taille relativement standard, comparable à celle de nombreux échantillons ayant fait l'objet d'études antérieures),
- obtenir également une densité hydrostatique similaire, comprise entre 97% et 98,5% de la densité théorique de l' UO_2 ,
- obtenir des répartitions différentes des pores, en nombre, et en répartition inter- et intra-granulaire.

Le premier point de ce cahier des charges n'a pas pu être respecté. En effet, les deux lots de pastilles ont été fabriqués respectivement début 2015 et début 2016. La poudre utilisée pour fabriquer le premier lot n'était alors plus disponible en quantité suffisante pour fabriquer le second, car elle avait été dévolue à d'autres usages durant l'année écoulée. Il a donc été nécessaire d'utiliser un autre lot de poudre que l'on a choisi de façon à ce que ses caractéristiques soient les plus proches possibles de celles du premier lot : il a été obtenu à l'aide du même procédé de synthèse (dit « voie sèche »), dans la même usine. Les impuretés susceptibles de se trouver dans ces deux lots pourraient potentiellement être un peu différentes, en termes de nature et/ou de concentration.

Il est très difficile de maîtriser à la fois la taille de grain, la densité et la répartition des pores par un procédé de métallurgie des poudres. Différents essais ont été conduits pour essayer de respecter au mieux le cahier des charges précédent, en jouant sur les conditions de broyage, de pressage et de frittage de l' UO_2 . L'obtention de pastilles avec un élancement (rapport hauteur/diamètre) de l'ordre de deux, est également délicat car les risques de fissuration au pressage augmentent avec l'élancement et peuvent conduire à un morcellement de la pastille crue ou frittée.

II. 2. 2. Conditions de fabrication des deux lots de pastilles d' UO_2

Comme cela a été précisé précédemment, deux lots de poudres UO_2 ont été utilisés dans cette étude pour la fabrication de deux lots de quelques dizaines de pastilles chacun. La première poudre a fait l'objet d'une désagglomération par broyage, tandis que la seconde a été utilisée telle quelle. Comme cela a été vu dans le chapitre I (paragraphe I. 3. 1. 3), cette opération permet de jouer sur la répartition des pores. Ces deux poudres ont subi un pressage isostatique suivi d'un concassage grossier puis d'un tamisage destiné à obtenir des granulés aptes au pressage. Ces granulés ont été lubrifiés par ajout de 0,3 % en masse de stéarate de zinc. L'étape suivante a consisté en la mise en forme des comprimés par un pressage uniaxial avec des poinçons de 10 mm de diamètre sous une charge de 450 MPa. La hauteur des comprimés crus était de l'ordre de 20 mm.

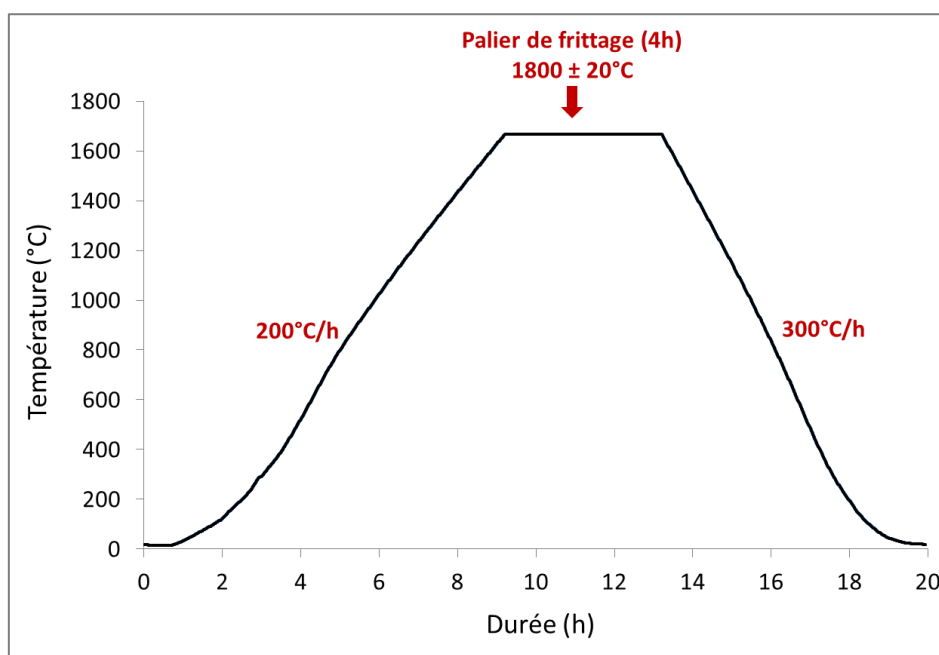


Figure II.1 : Cycle de frittage des pastilles d' UO_2 du lot 1.

Le frittage des comprimés a été réalisé dans un four métallique sous une atmosphère d'Ar+5%H₂. Le cycle thermique de frittage se décompose en trois étapes comme le montre la figure II.1 (qui correspond au cycle du lot 1) : un chauffage à 200°C.h⁻¹ suivi d'un palier à la température de frittage, puis d'un refroidissement à une vitesse d'environ 300°C.h⁻¹. Le lot 1 a été fritté à 1670 ± 20°C, pendant 4 heures, tandis que le lot 2 a subi un premier frittage à 1780 ± 20°C pendant 4 heures, suivi d'un recuit complémentaire de 1h30 à la même température, destiné à augmenter la taille moyenne des grains de façon à se rapprocher de celle du lot 1. La différence de température de frittage entre les deux lots est liée au fait que la poudre du lot 1 a été désagglomérée, tandis que celle du lot 2 a été utilisée telle quelle. La désagglomération augmente la surface spécifique et la réactivité de la poudre et, de ce fait, la vitesse de frittage : c'est donc pour cela que la température et la durée de frittage du lot 1 sont inférieures à celles du lot 2. Les pastilles issues du frittage présentent une géométrie de type diabolo à cause du retrait différentiel qui se produit au cours de cette étape. Une rectification, sur une machine à centrage automatique, avec des meules en carbure de silicium, est donc nécessaire afin d'obtenir des pastilles cylindriques.

II. 2. 3. Caractéristiques générales des pastilles d'UO₂

Par la suite, nous désignerons systématiquement par L1 les pastilles issues du premier lot de fabrication (correspondant à la première microstructure étudiée) et par L2 les pastilles issues du second lot (correspondant à la seconde microstructure). Les pastilles du lot L1 se présentent sous forme de cylindres et elles ont un diamètre égal à 8,191 ± 0,004 mm et une hauteur de 16,3 ± 0,13 mm. Les pastilles du lot L2 sont aussi cylindriques et ont un diamètre égal à 8,356 ± 0,002 mm et une hauteur de 15,1 ± 0,3 mm. Les pastilles issues du premier lot ne présentent pas de défauts visibles à l'œil nu ou à la binoculaire alors que celles issues du second lot présentent fréquemment des fissures macroscopiques, a priori plutôt superficielles, comme cela est illustré sur la figure II.2. On verra que leur présence n'a pas donné lieu à la ruine des pastilles lors des essais de compression.

La méthode utilisée pour déterminer la masse volumique et la porosité ouverte et fermée des pastilles est la pesée hydrostatique dans l'éthanol (voir annexe C).

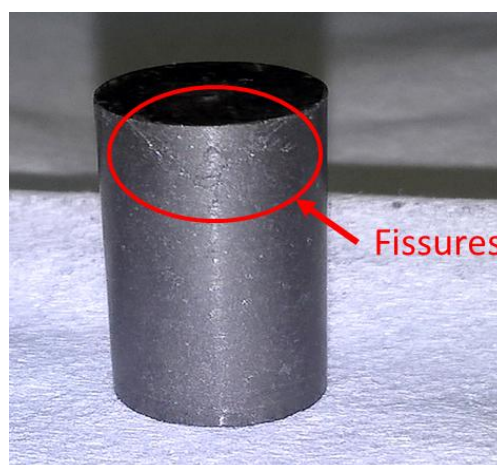


Figure II.2 : Fissures macroscopiques présentes dans les pastilles frittées du lot L2.

Le tableau II.1 récapitule "les densités hydrostatiques relatives" (qui correspondent au rapport entre la masse volumique mesurée et la masse volumique théorique du dioxyde d'uranium

(qui a été prise égale à $10,96 \text{ g.cm}^{-3}$), exprimé en %) ainsi que les pourcentages volumiques de porosité ouverte et fermée des deux lots. On rappelle que la porosité fermée est l'ensemble des pores présents dans l'échantillon, non connectés avec la surface libre. Inversement, la porosité ouverte est l'ensemble des pores et fissures reliés à la surface libre de l'échantillon. Cette seconde porosité est pratiquement nulle dans les deux lots de pastilles, ce qui tend à confirmer que celles du lot 2 ne présentent pas un réseau de fissures interconnectées en leur sein mais uniquement quelques fissures superficielles. Il est important de souligner que l'objectif d'obtention de deux lots de pastilles de densité hydrostatique très voisines a été très bien respecté : leur densité hydrostatique relative et leur pourcentage de porosité fermée sont identiques !

Tableau II.1 : Densités hydrostatiques relatives et pourcentages de porosités ouverte et fermée des deux lots de fabrication L1 et L2

	Densité hydrostatique relative (%)	Porosité fermée (%)	Porosité ouverte (%)
L1	$98,1 \pm 0,06$	$1,7 \pm 0,1$	0
L2	$98,1 \pm 0,07$	$1,7 \pm 0,05$	0,02

II. 3. Techniques et méthodologie pour la caractérisation microstructurale

II. 3. 1. Préparation des échantillons

Une grande importance a été accordée à l'étape de préparation métallographique des échantillons car c'est elle qui conditionne la qualité des résultats en imagerie électronique BSE et en analyse EBSD.

Les pastilles subissent systématiquement une découpe longitudinale d'une tranche d'environ 2 mm d'épaisseur dans leur partie centrale, parallèlement à l'axe de compression, avec une scie à fil (voir figure II.3). Une fois découpés, les échantillons sont soumis à 3 étapes de polissage mécanique :

- un premier polissage à l'aide de différents disques abrasifs de carbure de silicium présentant des granulométries décroissantes (grade : de 800 à 4000),
- un polissage diamant avec une suspension polycristalline de granulométrie $1 \mu\text{m}$, permettant d'atteindre une finition miroir,
- un polissage de finition à l'aide d'une suspension de silice colloïdale non cristallisante de granulométrie $0,02 \mu\text{m}$. Cette dernière étape de polissage améliore, d'une part, le contraste cristallin des grains et des sous-grains (pour l'imagerie BSE) et, d'autre part, la qualité du signal de diffraction en EBSD.



Figure II.3 : Présentation schématique d'une coupe longitudinale.
DR : direction radiale / DC : direction de compression.

II. 3. 2. Acquisition et analyse d'images électroniques

II. 3. 2. 1 Microscopie électronique à balayage

Les observations microstructurales ont été réalisées au moyen du MEB FEI Nova Nano SEM 450 du Laboratoire UO₂ à Cadarache. Ce MEB est équipé, entre autres, d'un détecteur d'électrons secondaires (SE) de type Everhardt-Thornley et d'un détecteur d'électrons rétrodiffusés (BSE) annulaire à diodes.

Nous avons majoritairement utilisé des images BSE acquises à une distance de travail égale à 5 mm et sous une tension de 20 KV (le courant est d'environ 10 nA). L'utilisation des électrons rétrodiffusés, dans ces conditions sur l'UO₂, permet de révéler efficacement la majorité des grains. Il permet également de localiser les pores intra- et inter-granulaires. La figure II.4 présente à titre d'exemple une micrographie BSE montrant la microstructure d'un échantillon d'UO₂ non déformé. Elle révèle les grains et leurs frontières (les joints de grains) grâce au contraste d'orientation qui se traduit par un contraste en niveaux de gris.

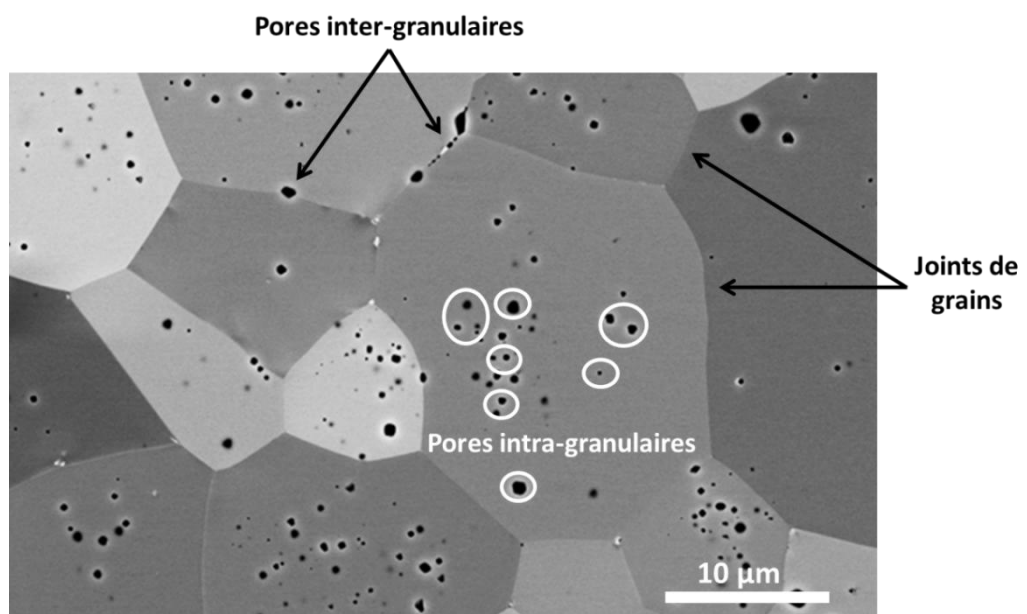


Figure II.4 : Micrographie BSE d'un échantillon d'UO₂ non déformé.

On rappelle que le détecteur SE permet de collecter les électrons secondaires. Ces électrons ont des énergies très faibles (quelques dizaine d'eV) et proviennent par conséquent des couches superficielles (quelques nanomètres) de l'échantillon observé. Leur rendement dépend fortement du relief de la surface de l'échantillon et c'est la raison pour laquelle ils sont utilisés pour produire des images topographiques de l'échantillon.

Les électrons rétrodiffusés, quant à eux, résultent de l'interaction quasi-élastique du faisceau d'électrons primaires avec les noyaux des atomes constitutifs de l'échantillon. Leur rendement est d'autant plus important que le numéro atomique Z des atomes constituant la cible est élevé, permettant ainsi de générer des images de contraste de phase ou de composition. Les images en électrons rétrodiffusés se caractérisent également par un contraste d'orientation. En effet, l'intensité d'émission des électrons rétrodiffusés dépend également de l'orientation cristallographique du grain par rapport au faisceau incident. Cette propriété sera largement exploitée dans notre étude et est à la base de la technique ECCI qui sera présentée dans le chapitre III.

II. 3. 2. 2. Analyse d'images : quantification de la porosité inter- et intra-granulaire

Une procédure a été mise en place pour déterminer la répartition inter- et intra-granulaire des pores, par analyse d'images BSE, acquises dans les conditions suivantes :

- taille des champs : 138 x 82,16 μm ,
- résolution des images : 6144 x 4096 pixels,
- taille du pixel : 0,022 μm ,
- nombre de champs par échantillon : 6.

Pour obtenir une statistique suffisante sur le nombre de pores détectés, au moins 6 images par échantillon ont été prises dans des zones représentatives de la microstructure : l'ensemble de ces images permet de prendre en compte environ 400 grains et entre 13000 et 5000 pores, respectivement pour L1 et L2. Les grandissements et la résolution ont été choisis de manière à analyser, autant que possible, aussi bien les gros que les petits pores pour l'étude de la distribution de la porosité. Compte-tenu de la taille du pixel (0,022 μm), les plus petits pores détectés ont un diamètre circulaire équivalent (DCE) minimal de 0,07 μm (car ceux dont le DCE était inférieur à 3 x la taille du pixel ont été écartés).

Le traitement des images a été effectué avec le logiciel AnalySIS[®]. Dans ce logiciel, un module spécifique, POROPHASE, a été implémenté pour traiter plusieurs images simultanément et réunir l'ensemble des données de sortie dans un seul fichier Excel. Les étapes de mise en œuvre de cette méthode sont détaillées sur la figure II.5.

La distinction des pores inter- et intra-granulaires nécessite d'identifier le réseau de joints de grains (aussi appelé « squelette ») sur l'image : voir figures II.5(b,c). Pour cela, on trace d'abord manuellement le réseau de joints de grains au moyen d'une tablette graphique (figure II.5(b)) : c'est la partie la plus longue du traitement (plusieurs heures par image) et la plus délicate car le contraste d'orientation existant entre certains grains est parfois très léger. Ensuite, le squelette des joints de grains est facilement obtenu par seuillage (Figure II.5(c)). Par ailleurs, l'image BSE initiale est aussi seuillée et binarisée pour détecter la porosité totale (Figure II.5(d)). L'intersection entre cette image binaire et le squelette des joints de grain permet d'identifier la porosité inter-granulaire (Figure II.5(e)) et la porosité intra-granulaire (Figure II.5(f)) (il s'agit de la différence entre la porosité totale et la porosité inter-granulaire). Le logiciel AnalySIS fournit des résultats sous forme d'images ainsi que

des résultats chiffrés sous la forme d'un tableau contenant les informations relatives à chaque pore détecté (classe de taille, DCE moyen, surface, ...). Ces résultats sont exportés sous Excel pour être exploités. On détermine ainsi, en particulier, la fraction surfacique des pores et le nombre de pores inter- et intra-granulaires par mm^2 .

Cette technique d'analyse d'image permet aussi de déterminer la taille des grains et leur distribution, à partir du squelette précédemment obtenu. Néanmoins, le nombre de grains détectés dans les 6 images analysées (quelques centaines) a été jugé trop faible pour pouvoir déterminer la taille des grains de façon suffisamment fiable. Il a été jugé préférable d'effectuer cette détermination à partir de cartes EBSD plus étendues, regroupant un nombre de grains plus élevé, statistiquement plus représentatif.

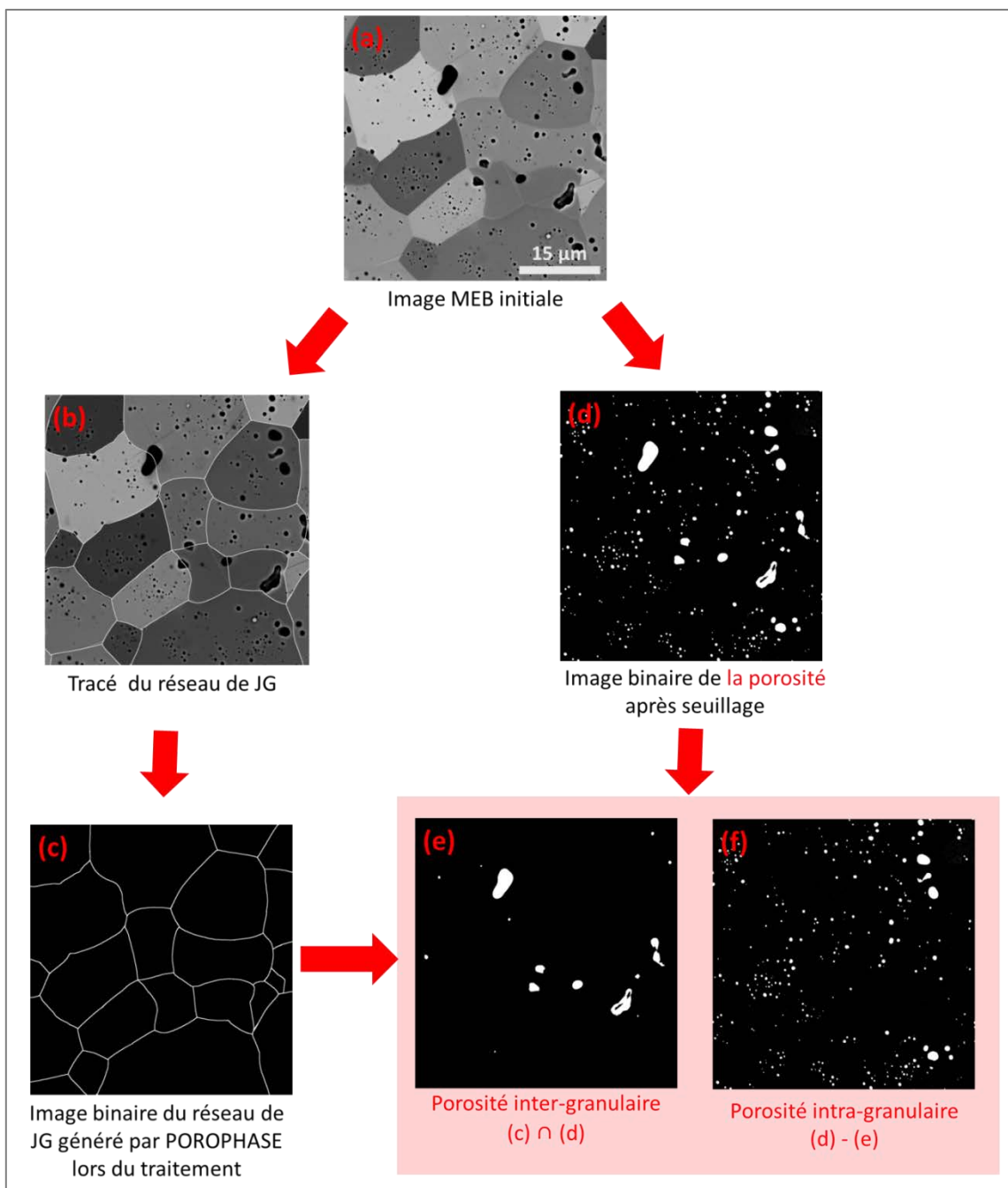


Figure II.5 : Etapes du traitement d'images BSE pour extraire la porosité inter- et intra-granulaire.

II. 3. 3. Acquisition de cartographies d'orientations par EBSD

II. 3. 3. 1. Présentation succincte de la technique EBSD

La technique EBSD permet d'accéder, entre autres, à l'orientation cristallographique des grains dans le matériau, connaissant leur structure cristallographique. Dans la pratique, l'échantillon est placé dans un Microscope Électronique à Balayage (MEB) où un faisceau d'électrons est focalisé sur un grain. Lors des mesures, pour optimiser le rendement en électrons diffractés, l'échantillon doit être incliné de sorte que la normale à sa surface et le faisceau d'électrons incidents forment un angle de 70° . Une caméra numérique placée face à l'échantillon permet d'enregistrer en temps réel les diagrammes de diffraction des électrons rétrodiffusés, appelés diagrammes de Kikuchi ou EBSP (Electron Backscatter Patterns) (Figure II.6a). Le dispositif est complété par un logiciel d'indexation automatique de ces bandes de diffraction afin de remonter à l'orientation cristallographique correspondante.

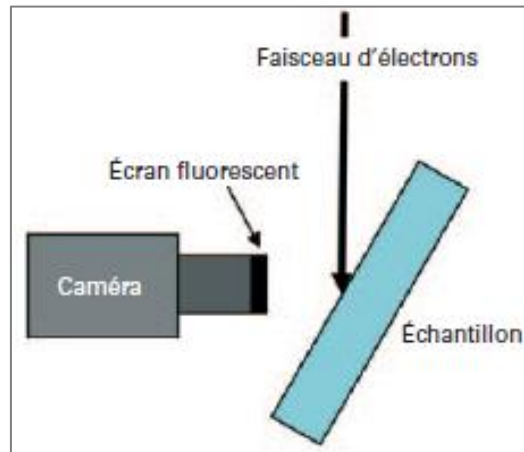
Une attention particulière doit être portée à la préparation des échantillons destinés à l'EBS. Les échantillons ne doivent pas présenter de relief ou d'écaillage de surface induit par la préparation métallographique afin d'obtenir des diagrammes de Kikuchi de bonne qualité. Dans le principe, les électrons incidents qui frappent l'échantillon sont diffusés dans un large domaine angulaire. Les électrons rétrodiffusés par le matériau sont en condition de Bragg pour une famille donnée de plans réticulaires et forment deux cônes de diffraction symétriques par rapport au plan (hkl). L'intersection de ces deux cônes avec l'écran de phosphore de la caméra EBSD produit des hyperboles assimilables à deux droites parallèles formant la bande de Kikuchi. Un ensemble de plans diffractant génère ainsi un diagramme constitué de plusieurs bandes (Figure II.6b). A partir de ce diagramme, il est dès lors possible de connaître l'orientation du point analysé. Il suffit de déterminer la position d'une série de bandes de Kikuchi par analyse d'images en passant par une transformée de Hough et de les indexer par les indices de Miller du plan cristallin diffractant, ayant formé cette bande. L'indexation cohérente des différentes bandes de Kikuchi est réalisée à l'aide des angles entre ces bandes pour identifier les plans cristallographiques correspondants (connaissant la structure cristallographique de la phase à analyser). On en déduit l'orientation cristallographique du grain considéré dans le repère de l'échantillon.

Nous avons utilisé le système EBSD en mode « cartographie ». Le faisceau d'électrons balaye la zone de l'échantillon à analyser en suivant une grille prédéfinie. À chaque position de la grille, le système effectue l'acquisition et l'indexation du diagramme de Kikuchi. Pour chaque point analysé, il est alors possible d'obtenir les informations suivantes :

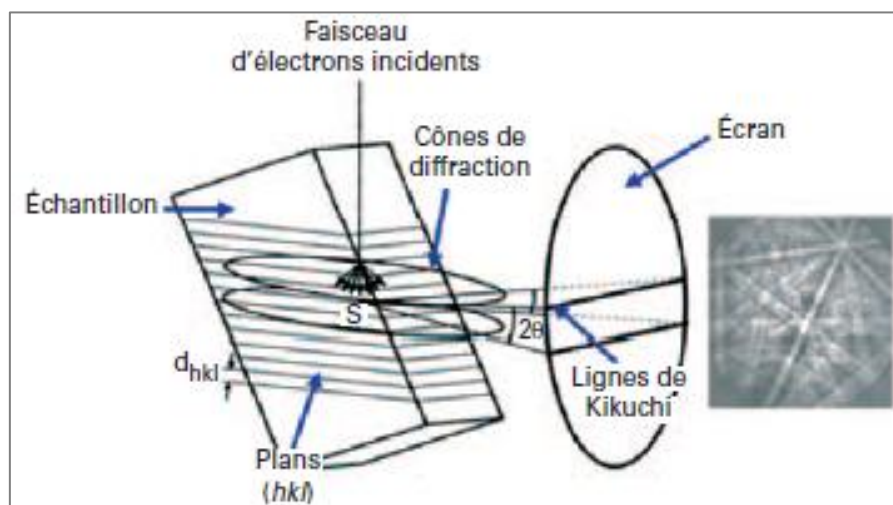
- les coordonnées du point,
- la nature de la phase détectée,
- l'orientation correspondante,
- l'indice de qualité (ou contraste de bande) du diagramme de Kikuchi. Cet indice est codé en niveau de gris et traduit le contraste des bandes de diffraction par rapport au bruit de fond (lorsque l'indice évolue du noir vers le blanc, la qualité du diagramme de diffraction s'améliore). Ainsi la cartographie de l'indice de qualité (IQ) est un moyen efficace pour révéler la microstructure.

II. 3. 3. 2. Conditions d'acquisition et de pré-traitement des cartes EBSD

Pour les analyses EBSD, la surface a été préparée comme décrit précédemment (section II. 3. 1). Les données EBSD sont obtenues sur un microscope électronique à balayage de type FEI Nova Nano SEM 450 à canon FEG. Le logiciel "AZTEC" (d'Oxford Instruments) permet d'acquérir les données EBSD qui sont ensuite exploitées à l'aide de la suite logicielle Channel 5. La caméra Nordlys II permet l'acquisition des diagrammes de diffraction avec une résolution maximum de 1344 x 1024 pixels (sans binning). Elle est équipée de 4 détecteurs d'électrons rétrodiffusés (FSD : ForeScatter Detector) pour l'acquisition d'images électroniques additionnelles.



(a)



(b)

Figure II.6 : (a) Schéma du dispositif expérimental d'EBSD, (b) Schéma du principe de formation des diagrammes de Kikuchi [Baudin 2010].

Les cartes EBSD ont été acquises sous une tension de 20 KV, un courant d'environ 10 nA et à une distance de travail de 15 mm. Les clichés de diffraction obtenus ont été indexés avec la maille de type fluorite (CaF_2) de l' UO_2 . On détecte automatiquement jusqu'à 12 bandes au sein du cliché de diffraction. La solution retenue est toujours compatible avec au moins 7 bandes du cliché expérimental (la majorité des solutions est obtenue avec plus de 10 bandes). Cela contribue à la fiabilité de l'indexation. Le choix du binning, du pas d'acquisition et la taille du champ à caractériser sont les principaux paramètres qui impactent le temps d'acquisition. Le binning correspond à un

regroupement de pixels (en 2x2, 4x4 ou 8x8), ce qui diminue la résolution du cliché EBSP mais permet un gain significatif en vitesse d'acquisition.

Les données d'orientations brutes contiennent des pixels non indexés ou mal indexés. Par conséquent, elles doivent être prétraitées pour supprimer les erreurs d'indexation et extrapoler les pixels non indexés à l'aide de l'indexation des pixels voisins.

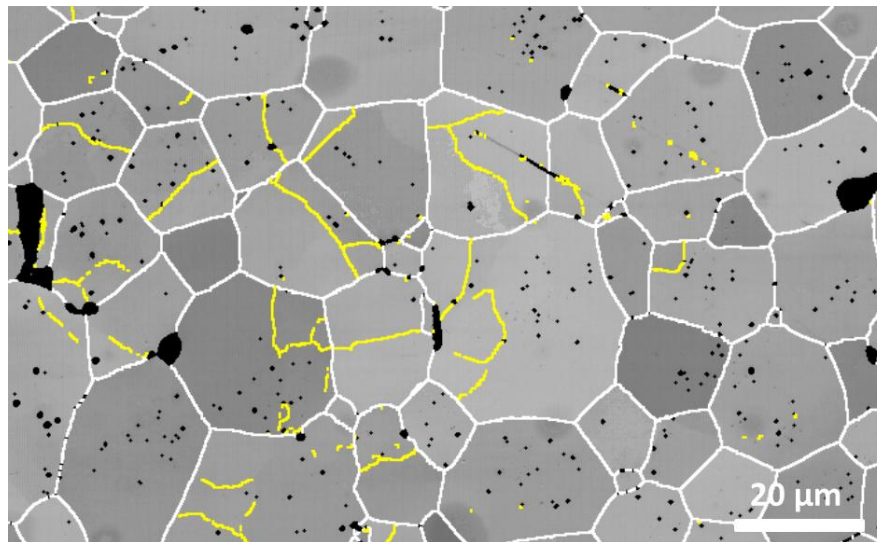
Dans le cas particulier de l' UO_2 se rajoute encore la présence de pores, qu'il faut prendre en compte dans le pré-traitement des cartes brutes. Le chapitre III détaillera la procédure optimisée d'acquisition et de nettoyage/filtrage des cartes EBSD que nous avons mise en place. Son objectif est double : (1) conserver la localisation des pores sur la carte EBSD (les pores étant souvent indexés à tort avec un bruit de mesure élevé) et (2) révéler par EBSD des sous-joints désorientés jusqu'à $0,1^\circ$ sous certaines conditions.

La figure II.7a présente un exemple de cartographie EBSD de désorientation acquise sur un échantillon d' UO_2 déformé par compression (après pré-traitement). Ce type de carte permet de révéler les joints de grains et les sous-joints de grains qui apparaissent lors de la déformation de la pastille.

Les joints de grains correspondent aux lignes blanches qui séparent des domaines (les grains) de désorientation supérieure ou égale à 5° . Le choix de cette valeur est lié au fait que, dans les échantillons de référence (non déformés), on n'observe pratiquement pas de joints de grains ayant une désorientation angulaire inférieure à 5° . Les lignes jaunes révèlent les désorientations intra-granulaires comprises entre $0,25^\circ$ et 5° . La désorientation minimale mesurée est liée au bruit de mesure, comme cela sera détaillé dans le chapitre III. Les pixels qui restent non indexés après le prétraitement (en noir) localisent majoritairement les pores.

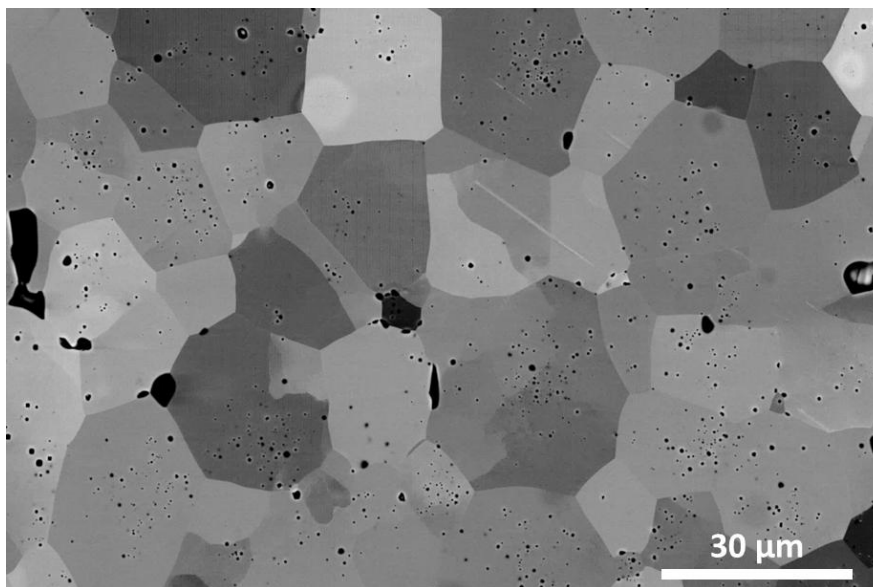
La micrographie BSE présentée sur la figure II.7b a été acquise sur la même zone que la carte EBSD. La comparaison entre ces deux images montre que la carte EBSD (après pré-traitement) révèle la majorité des pores inter- et intra-granulaires sous forme de pixels non indexés. En outre, cette cartographie permet de détecter pratiquement tous les grains et sous-grains révélés par les variations de niveaux de gris de l'image BSE électronique (certains sous-joints n'étant toutefois pas visibles sur la carte EBSD, probablement en raison de leurs faibles désorientations $<0,25^\circ$). On note aussi la présence d'une petite rayure de polissage sur la micrographie; Elle se traduit sur la carte EBSD par une ligne non indexée ou de faible désorientation. Cela illustre l'importance de la préparation de surface de l'échantillon, lorsque notre objectif sera d'exploiter des données EBSD pour quantifier les désorientations induites lors du fluage.

Par la suite, on appellera « joints de grains » toutes lignes de désorientation angulaire (θ) supérieure ou égale à 5° et « sous-joints de grains », celles de désorientation inférieure à 5° . On appellera aussi « joints de grains fortement désorientés » tout joint de désorientation supérieure à 15° .



Code de couleur
 Angle de désorientation θ° 0,25 3 >5

(a)



(b)

Figure II.7 : (a) Carte EBSD après pré-traitement (en indice de qualité + joints et sous-joints de grains) et (b) micrographie BSE correspondante acquise sur un échantillon d' UO_2 déformé en compression.

II. 3. 3. 3. Analyse de la taille de grains par EBSD

La procédure d'identification d'un grain par EBSD consiste à définir un angle critique imposé par l'utilisateur et à regrouper dans un même domaine (le grain), les pixels qui ont une désorientation de proche en proche inférieure à cet angle critique [Humphreys 2001^a]. L'application de cette procédure nécessite cependant un pré-traitement efficace des données EBSD pour éviter des erreurs dans la détermination de la taille des grains. D'une part, la carte EBSD peut contenir des pixels non indexés (par exemple, au niveau d'une région fortement déformée, des pores, etc.). Si le nombre de ces pixels non indexés est important, il peut être difficile d'obtenir des données

microstructurales quantitatives. Si ce nombre est faible, les données peuvent être "réparées" en assignant l'orientation d'un pixel voisin au pixel non indexé (comme déjà décrit précédemment). D'autre part, il est essentiel de détecter dans les données brutes, les pixels mal indexés. Ces pixels forment des domaines de petites tailles (quelques pixels) fortement désorientés par rapport aux pixels voisins. Sans précautions, ces domaines sont identifiés à tort comme des petits grains. Ceci a amené la communauté scientifique à proposer une norme [Norme AFNOR ISO 13067] pour fiabiliser la mesure de taille de grains déterminée par EBSD. Cette norme recommande en particulier de supprimer de l'analyse, les grains ayant une surface de moins de 3 x 3 pixels, recommandation que nous avons suivie dans ce travail.

Les cartographies d'orientation acquises sur les deux états initiaux non déformés ont été exploitées pour analyser la taille des grains. Les conditions d'acquisition de ces cartes ont été optimisées pour privilégier la statistique tout en conservant une bonne résolution angulaire. En effet, ces conditions seront également appliquées pour l'acquisition des cartes EBSD sur les microstructures déformées, pour lesquelles un de nos objectifs est de caractériser les sous-joints de très faibles désorientations.

Pour chaque état initial (L1 et L2), nous avons acquis a minima une carte EBSD couvrant un champ de 0,53 x 0,36 mm et incluant environ 1000 grains. Le pas de la carte a été fixé à 0,4 µm pour révéler efficacement les plus petits grains. Les diagrammes de diffraction ont été acquis en binning 2 x 2 avec un temps d'intégration du signal de 44 ms. Ces conditions d'acquisition correspondent à une durée d'acquisition par carte EBSD d'environ 14 h. Les taux d'indexation des cartes brutes sont très élevés (de l'ordre de 98%), les pixels non indexés correspondant principalement aux pores les plus larges et aux joints de grains, ainsi qu'à de petits défauts liés à la préparation de surface (rayures...). Le taux de pixels mal indexés est très faible (<0,5%). Après correction des pixels mal indexés et application des opérations de pré-traitement décrites dans le chapitre III, le taux d'indexation finale des cartes EBSD est de l'ordre de 98,5-99%. La partie non indexée des cartes finales correspond essentiellement aux pores détectables à partir des données EBSD.

La détection des grains est ensuite effectuée à l'aide du module Tango du logiciel « Channel 5 » avec un angle critique fixé à 5°. Les caractéristiques des grains détectés sont exportées dans un fichier Excel qui contient les données relatives à chaque grain telles que le DCE (diamètre circulaire équivalent), l'aire, le rapport d'aspect, etc.... On prend en compte un grain si son aire est supérieure ou égale au carré de 3 x le pas d'acquisition des cartes EBSD (selon la norme AFNOR). Dans notre cas, le pas a été fixé à 0,4 µm ce qui donne une aire seuil égale à 1,44 µm². Le diamètre équivalent correspondant à cette aire est égal à 1,36 µm. On n'a donc considéré, pour l'analyse de la taille des grains, que les grains qui ont un diamètre supérieur à cette valeur. Les grains (ou pixels) non pris en compte correspondent à moins de 1% de la fraction surfacique de la carte EBSD pré-traitée dans les échantillons de référence. On ne considère cependant pas que ces pixels sont des erreurs d'indexation. Ils n'ont pas été pris en compte uniquement pour répondre à la norme. Par ailleurs les grains situés en bord de carte ne sont pas pris en compte dans le calcul de la taille moyenne.

La taille moyenne des grains est obtenue à partir de la formule suivante :

$$DCE_{moy} = \frac{\sum_1^N DCE_i}{N} \quad (II.1)$$

avec DCE_i le diamètre circulaire équivalent du grain i mesuré par le logiciel de post-traitement « Channel 5 » et N le nombre total de grains détectés et exploités dans l'analyse.

II. 4. Caractéristiques des deux lots de pastilles

Dans cette partie, les résultats relatifs à la taille des grains et à leur distribution, telles que déterminées à partir des cartes EBSD, sont présentés. La taille, le nombre, la fraction surfacique et la répartition inter- et intra-granulaire des pores, tels que déterminés par analyse d'image, sont également présentés, pour les deux lots de pastilles étudiés.

II. 4. 1. Analyse des cartographies EBSD

La figure II.8 présente deux cartographies EBSD (après leur pré-traitement) acquises respectivement sur une pastille des lots L1 et L2 (ces pastilles étant nommées respectivement R1 et R2), à l'état initial (état de référence non déformé, obtenu après frittage), ainsi que les histogrammes de désorientations angulaires correspondants.

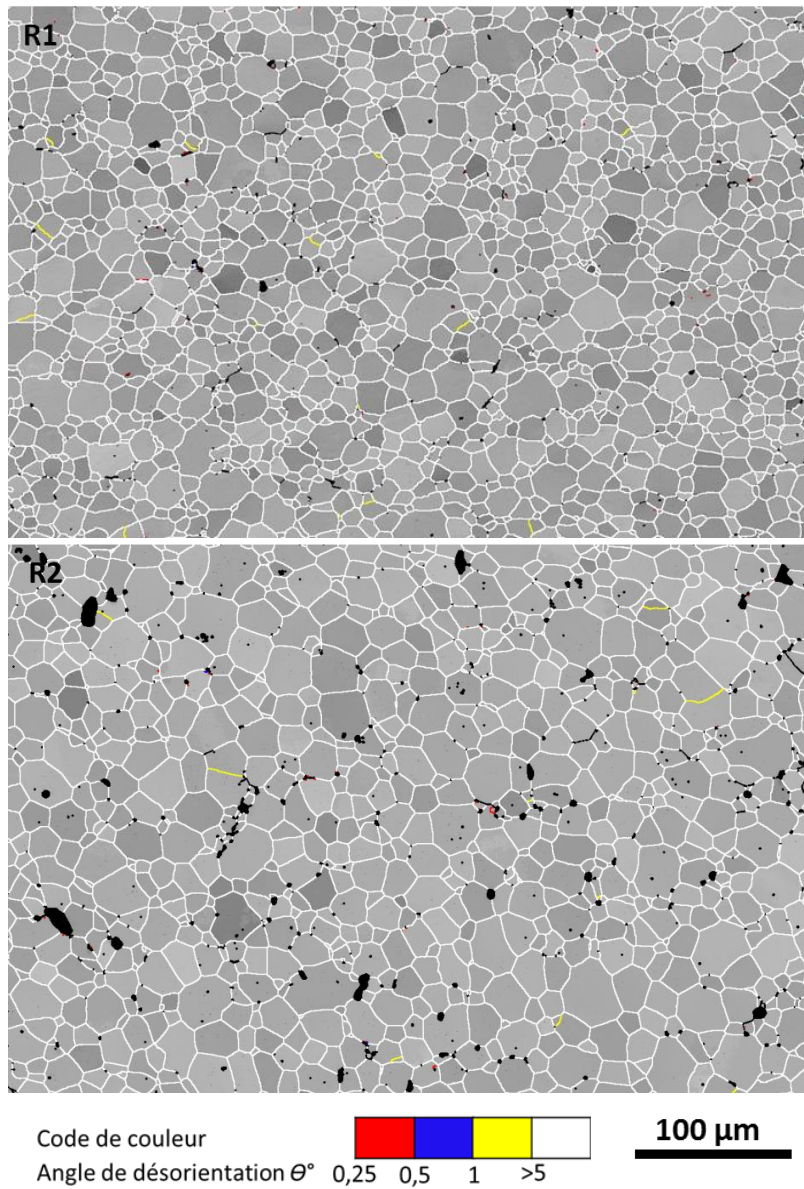
La figure II.8a présente les cartes EBSD de désorientations angulaires superposées à la carte de l'indice de qualité. Comme précédemment, les pixels non indexés liés à la présence de pores ou de défauts sont présentés en noir sur ces cartes. Ces pixels représentent un pourcentage très faible de la carte : 0,31% et 1,8 % respectivement pour R1 et R2. La différence de pourcentage trouvée entre les deux cartes est liée à la présence d'un nombre plus élevé de pores relativement gros (plusieurs μm) dans la microstructure L2.

Sur ces cartes, la procédure de détection de grains détaillée dans la section II. 3. 3. 2 a été appliquée, avec un angle critique de 5° . Elle regroupe efficacement les pixels appartenant aux grains délimités par des frontières de plus de 5° qui correspondent aux joints de grains colorés en blanc.

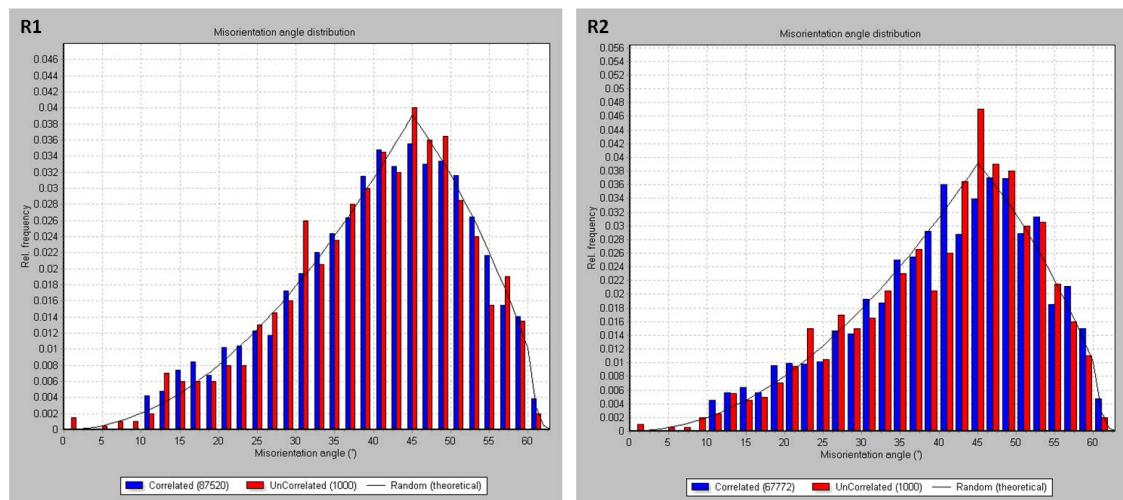
On remarque la présence de quelques sous-joints de grains dans l'état de référence des deux microstructures. Certaines frontières (colorées en jaune) sont des lignes bien continues associées à des désorientations de l'ordre de 3° qui correspondent très vraisemblablement à quelques rares sous-joints de grains présents dans la microstructure, après le frittage. On note aussi que, malgré la complexité de la microstructure de l' UO_2 qui présente des pores, le pré-traitement des cartes EBSD permet de réduire très efficacement le bruit de mesure. En effet, on ne voit que très rarement des S-JG de très faibles désorientations ($0,25\text{--}0,5^\circ$) localisés le plus souvent au voisinage immédiat de pores. Ceci traduit bien une réduction du bruit de mesure des cartes : ce dernier est inférieur à $0,25^\circ$, alors que le bruit de mesure en EBSD « standard » est de l'ordre de $0,5^\circ$ à 1° .

Les distributions de désorientations de proche en proche et aléatoires (Figure II.8b) ne s'écartent pas de la distribution théorique de Mackenzie. Cela permet de confirmer d'une part que les matériaux utilisés dans cette étude (qu'il s'agisse du lot L1 ou du lot L2) n'ont pas de texture et que d'autre part, la distribution topologique des grains est également aléatoire.

L'observation qualitative des cartes EBSD obtenues sur les échantillons R1 et R2 montre que leur taille de grain est proche mais que leur distribution de taille est légèrement différente. L'analyse quantitative de ces cartes va permettre de le confirmer.



(a)



(b)

Figure II.8 : (a) Cartes EBSD acquises respectivement dans une pastille de référence du lot L1 (R1) et du lot L2 (R2) (superpositions de la carte de l'IQ et de la carte de désorientations angulaires), (b)

histogrammes de désorientations de proche en proche (« correlated » en bleu), et aléatoires (« uncorrelated » en rouge) déduits des cartes de désorientations présentées en (a) (la distribution continue correspond à la distribution théorique de Mackenzie observée dans un matériau cubique sans texture).

II. 4. 2. Analyse comparative de la taille des grains

L'exploitation quantitative des données EBSD précédentes montre que les deux lots de pastilles se caractérisent par des tailles de grains moyennes respectives de 11,2 μm , pour L1, et 14,5 μm , pour L2. Notre objectif est globalement atteint puisque les tailles de grains obtenues sont du même ordre de grandeur. Il n'est toutefois pas exclu que leur légère différence ait une influence sur le comportement mécanique des deux lots.

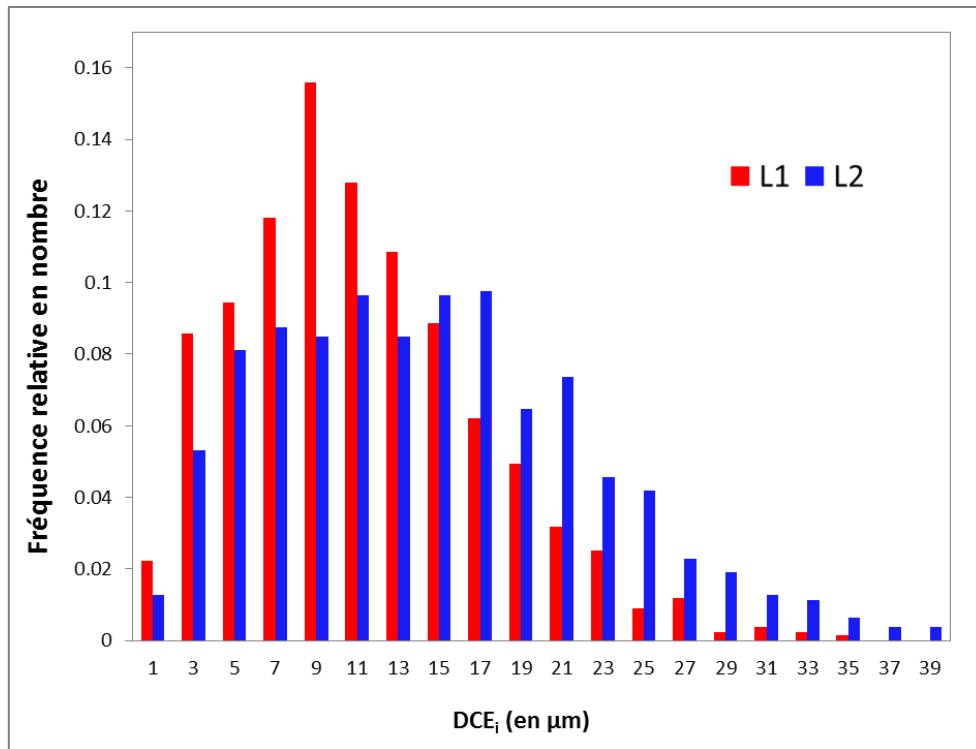
La figure II.9 présente la distribution en nombre des tailles de grains déterminées à partir des deux cartes R1 et R2 et le tableau II.2 présente une synthèse des données statistiques caractérisant cette distribution (telle que les valeurs de DCE minimale, maximale et moyenne calculées à partir des grains considérés). Le nombre de grains dans la carte R1 (1352 grains) est environ le double de celui de la carte R2 (789 grains). En effet, la microstructure L1 présente un nombre élevé de petits grains par rapport à L2, de ce fait la taille moyenne des grains est plus faible.

Tableau II.2 : Données statistiques en nombre relatives à la taille des grains

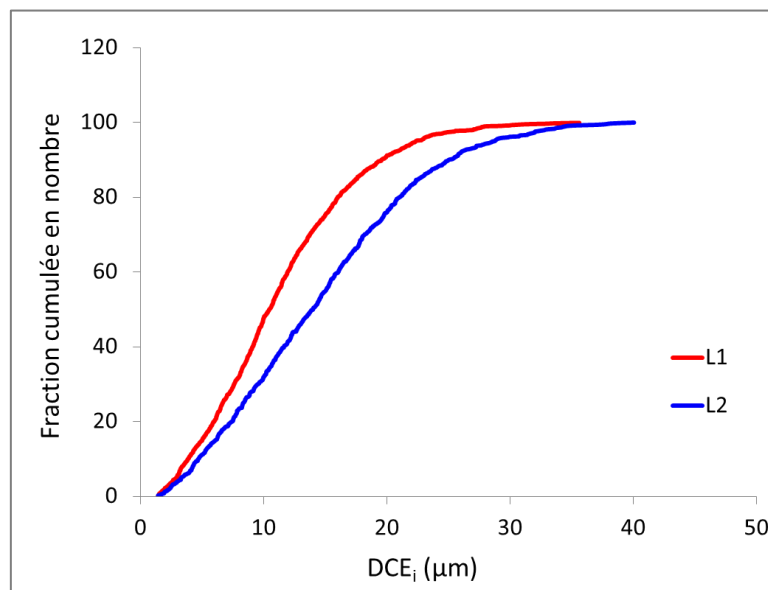
	R1_L1	R2_L2
DCE _{moyen} (en μm)	11,24	14,52
Ecart type	6,04	7,78
DCE _{min} (en μm)	1,4	1,4
DCE _{max} (en μm)	36	40
1 ^{er} quartile	6,65	8,31
Médiane	10,43	13,99
3 ^{ème} quartile	14,95	19,73
Nombre total de grains	1352	789

L'histogramme en nombre présenté sur la figure II.9a montre que la distribution de la taille de grains est plus étendue pour la microstructure du lot L2. En effet, la majorité des grains se situe dans les classes comprises entre 8 et 20 μm pour L2, alors que, pour la microstructure du lot L1, elle se situe entre 6 et 15 μm (voir Figure II.9a et tableau II.2). Si on se concentre sur la fraction cumulée en nombre des grains en fonction de leur taille (présentée sur la figure II.9b), on constate que la population de grains ayant une taille de grains inférieure à 15 μm représente 76% du nombre total des grains dans la carte R1_L1 et 52% dans la carte R2_L2. Ceci confirme bien le fait que la microstructure 1 comporte un plus grand nombre de petits grains qui occupent des classes en DCE plus faibles.

L'exploitation des données obtenues, en surface (non présentée ici), conduit à des conclusions similaires.



(a)



(b)

Figure II.9 : (a) Histogramme de distribution en nombre et (b) fraction cumulée en nombre des grains en fonction de leur taille en DCE, dans les échantillons de référence R1 (lot L1) et R2 (lot L2).

Ces conclusions méritent toutefois d'être pondérées. En effet, elles sont basées sur l'exploitation d'une seule carte par échantillon qui représente une surface analysée inférieure au mm^2 . Afin d'améliorer la statistique de mesure, le travail précédent a été refait sur plusieurs autres cartes EBSD acquises sur d'autres échantillons issus des deux lots L1 et L2. Ces cartes ont été

acquises sur des surfaces plus larges (0,8 x 0,55 mm). Elles contiennent environ 3000 et 2000 grains, respectivement pour L1 et L2.

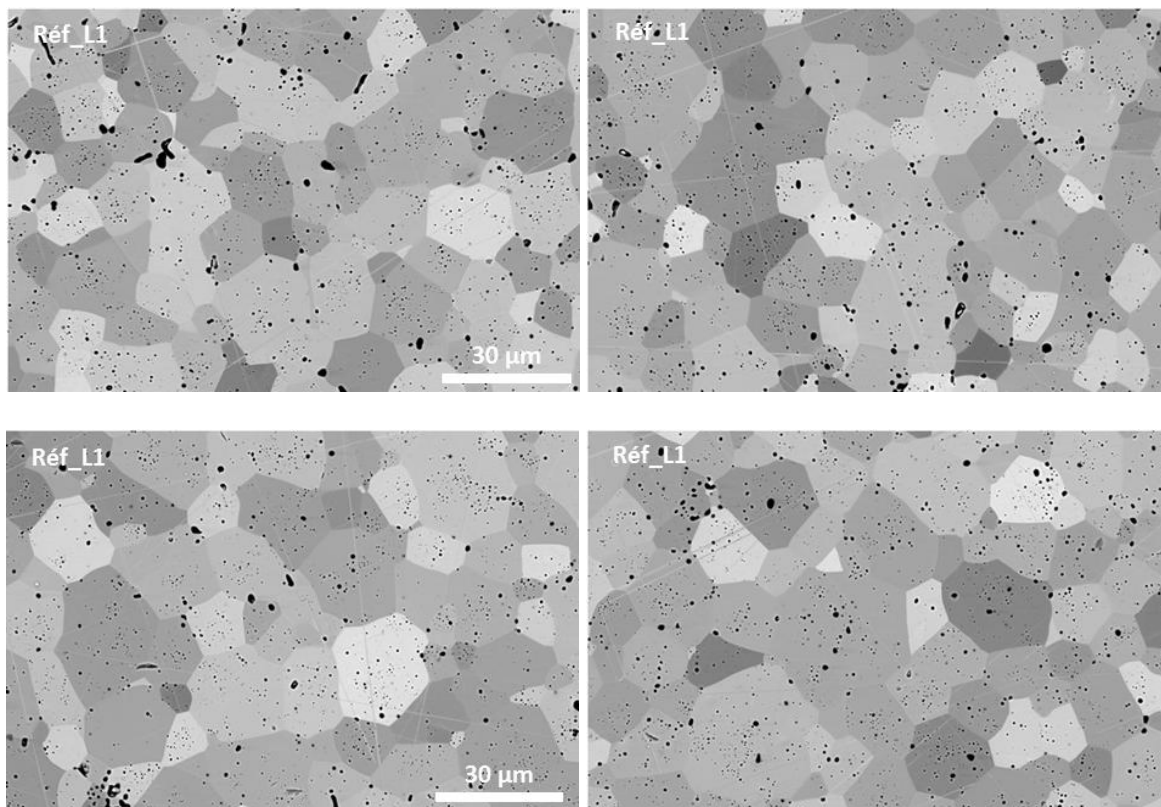
Les résultats obtenus sont cohérents avec ceux indiqués précédemment : dans le cas du lot L1, la taille de grain moyenne varie entre 11,2 et 12,4 μm , alors qu'elle varie entre 14,5 à 14,9 μm dans le cas du lot L2. La dispersion un peu plus importante trouvée pour le lot L1 est très vraisemblablement liée à la présence de zones à petits grains, comme cela a été illustré précédemment sur la figure II.8a.

Au final, on considérera que les tailles moyennes des grains dans les microstructures L1 et L2 sont respectivement de 12 et de 15 μm ($\pm 1\mu\text{m}$), compte-tenu du retour d'expérience du LCU en ce qui concerne la précision de ce type de mesures et la dispersion de la taille de grains dans un UO_2 fritté.

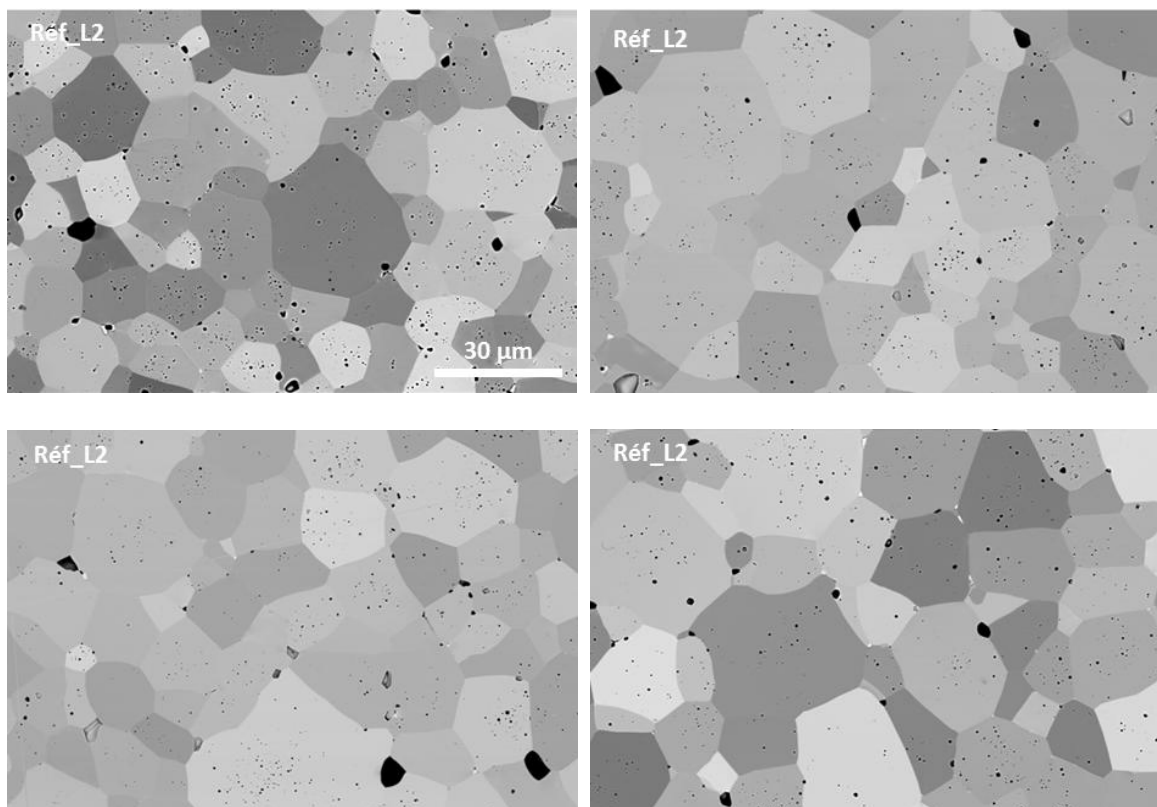
II. 4. 3. Analyse comparative de la répartition et de la taille des pores

Les résultats obtenus par analyse d'images concernant la répartition des pores inter- et intra-granulaires ainsi que leurs tailles dans les échantillons de référence des deux lots L1 et L2 sont présentés ci-après.

Les figures II.10a et b montrent respectivement quatre micrographies acquises au centre d'une même pastille des lots L1 et L2. Leur comparaison permet de constater que le lot L1 se caractérise par un nombre de pores intra-granulaires, nettement supérieur à celui présent dans le lot L2, qui sont distribués de façon hétérogène au sein des grains pour L1. On constate aussi une forte hétérogénéité de distribution des pores inter-granulaires dans la microstructure L2 : ils sont relativement peu nombreux et d'assez grande taille (jusqu'à plusieurs μm).



(a)



(b)

Figure II.10 : Micrographies BSE acquises sur les échantillons de référence R1 et R2 des microstructures (a) L1 et (b) L2

Le tableau II.3 regroupe les résultats quantifiés obtenus sur les échantillons R1 et R2 qui correspondent respectivement aux états de référence des lots L1 et L2. On rappelle que ces résultats ont été déduits à partir de 6 images qui regroupent environ 400 grains. Ces données confirment clairement que la fraction de pores intra-granulaire est nettement plus élevée dans L1 que dans L2. En effet, les nombres de pores intra-granulaires par mm^2 sont respectivement d'environ 163000 et 63000 pores/ mm^2 .

Tableau II.3 : Etude de la répartition des pores dans les échantillons de référence (non déformés) des lots L1 et L2

Echantillon / Porosité	R1 (lot L1)			R2 (lot L2)		
	Fraction surfacique de pores (%)	Nombre de pores par mm^2	DCE _{moyen} (μm)	Fraction surfacique de pores (%)	Nombre de pores par mm^2	DCE _{moyen} (μm)
totale	2,5	~ 175000	0,42	1,0	~68000	0,44
intra-granulaire	1,8	~ 163000	0,37	0,6	~63000	0,35
inter-granulaire	0,7	~12000	0,88	0,4	~5000	1,11

On rappelle que, d'après les mesures réalisées par pesée hydrostatique, une fraction volumique de pores fermés de 1,7% est présente dans les deux lots. Si l'on admet que ces pores sont de forme et de répartition spatiale isotrope, la fraction surfacique totale de pores devrait être du même ordre. Or, on trouve respectivement 2,5%, pour le lot 1, et 1,0%, pour le lot 2. L'écart constaté s'explique principalement par un effet d'échantillonnage. En effet, la fraction surfacique déduite de l'analyse d'image a été déterminée à partir de six champs par échantillon, acquis à fort grandissement, qui représentent une surface totale de 0,076 mm². Cet effet doit être peu impactant, pour ce qui concerne la détermination de la fraction surfacique et du nombre de pores intra-granulaires, car il s'agit de petits pores, répartis de façon relativement homogène. Dans le cas de ces pores, il existe tout de même un risque de sous-estimation de leur population dû à la taille du pixel, qui limite la détection des plus petits d'entre eux. Par contre, l'effet d'échantillonnage impacte beaucoup plus les résultats relatifs aux pores inter-granulaires, et, par conséquent, aussi ceux relatifs à la porosité totale. En effet, les pores inter-granulaires sont très largement moins nombreux que les pores intra-granulaires, plus gros et plus inégalement répartis, surtout dans le cas du lot 2, comme l'illustre la figure II.10.

Si on se concentre sur la comparaison des populations de pores intra-granulaires, on constate qu'ils sont environ 2,5 fois plus nombreux dans la microstructure du lot 1, comparée à celle du lot 2. Leur taille moyenne (exprimée en DCE) est quasiment identique : environ 0,4 µm.

L'objectif que nous nous étions fixé dans notre cahier des charges a donc bien été atteint, en particulier pour la distribution des pores intra-granulaires qui est nettement différente entre les deux microstructures.

II. 5. Conditions de réalisation et d'exploitation des essais mécaniques de compression

II. 5. 1. Choix des conditions d'essais mécaniques

II. 5. 1. 1. Température des essais

Tous les essais de compression ont été réalisés à 1500°C. Cette valeur est largement supérieure à la température de transition ductile/fragile (T_t) de l'UO₂ qui est généralement estimée comme étant de l'ordre de 1000°C [Lefebvre 1977]. Le choix de cette température est lié :

- d'une part, au fait qu'elle a été largement utilisée pour réaliser des essais de compression sur des pastilles d'UO₂ non irradiées, ce qui va faciliter la comparaison de nos résultats avec ceux obtenus lors de travaux antérieurs (par exemple [Vivant-Duguay 1998, Dherbey 2000, Ndiaye 2012]),
- d'autre part, parce qu'elle est proche de la température atteinte environ à mi-rayon de la pastille de combustible lors d'une rampe de puissance, donc rend relativement bien compte de son comportement « moyen ».

En effet, comme cela a été discuté dans le chapitre précédent (paragraphe I.3), la température s'accroît au cœur du combustible, lors d'un transitoire de puissance en réacteur et peut atteindre 1500°C voire 2000°C, dans la partie centrale des pastilles. La figure II.11 illustre, à titre d'exemple, l'évolution de la température et de la puissance linéique pour quatre positions radiales d'une pastille, d'après un maillage 3D effectué à l'aide du code Alcyone [Baurens 2014], pour une rampe nommée G13-3 [Sercombe 2017].

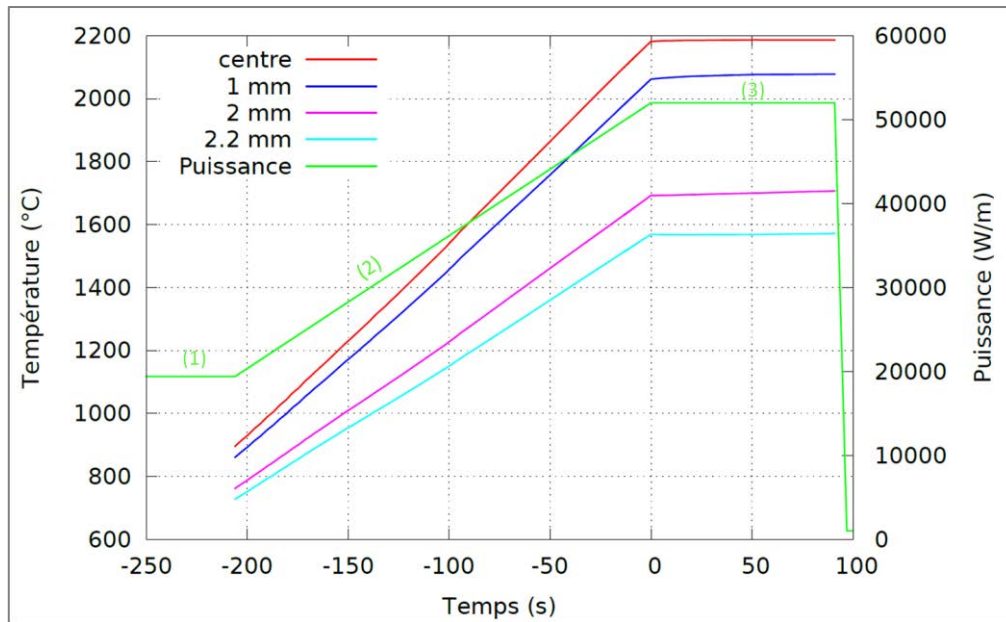


Figure II.11 : Evolution de la température et de la puissance linéique en fonction du temps pour la rampe G13.3. (1) palier de conditionnement à 20000 W.m^{-1} , (2) phase de montée en puissance à $600 \text{ W.cm}^{-1}.\text{min}^{-1}$ et (3) palier à forte puissance (53000 W.m^{-1}).

Cette rampe est assez particulière car la vitesse de montée en puissance est égale à $600 \text{ W.cm}^{-1}.\text{min}^{-1}$ soit environ $1800^\circ\text{C}.\text{min}^{-1}$ (au lieu de $100 \pm 10 \text{ W.cm}^{-1}.\text{min}^{-1}$ soit environ $300^\circ\text{C}.\text{min}^{-1}$, pour les rampes plus « classiques »). En outre, le palier après rampe a été effectué à une puissance élevée (520 W.cm^{-1} , contre plutôt 450 W.cm^{-1} pour des rampes plus classiques) pendant une durée limitée à environ deux minutes (contre une dizaine d'heures, voire plus, pour certaines rampes classiques). L'intérêt du choix de cette rampe réside dans son caractère « enveloppe », en termes de puissance, donc de températures atteintes, et dans le fait qu'elle a donné lieu à de fortes déformations visco-plastiques, d'après le comblement des évidements aux extrémités des pastilles, mis en évidence lors des examens post-irradiatoires [Sercombe 2017]. Comme le montre la figure II.11, la température au centre de la pastille atteint pratiquement 2200°C et est proche de 1500°C à 2,2 mm (à peu près à mi-rayon).

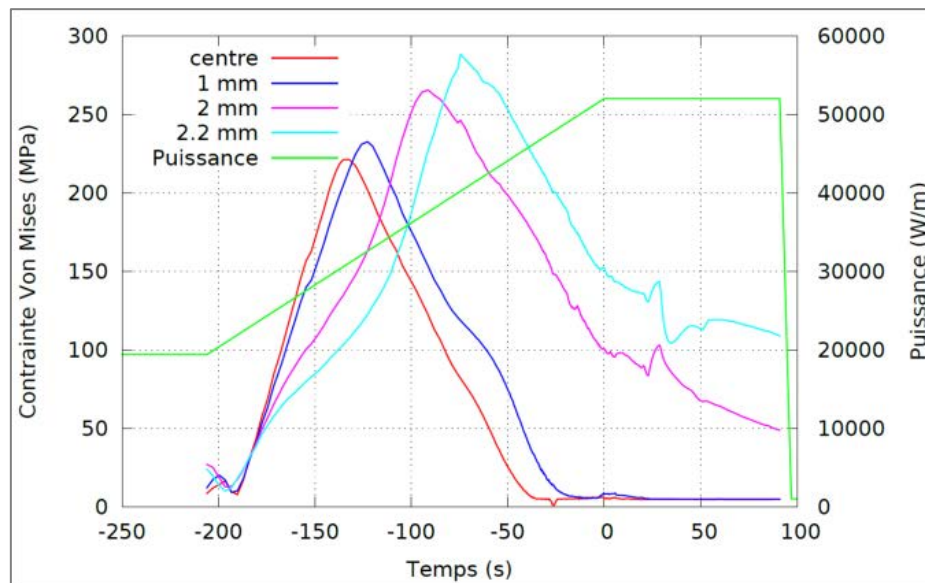
II. 5. 1. 2. Gammes de contrainte appliquée et de vitesse de déformation

Considérons à nouveau la rampe G13-3 et, plus particulièrement, ce qui se passe à la position 2,2 mm, pour laquelle la température est de l'ordre de 1500°C (température choisie pour nos essais). La figure II.12 montre l'évolution de la contrainte de Von Mises (qui est assimilable à une contrainte de compression uniaxiale, dont l'origine est la dilatation thermique et le gonflement gazeux issu des produits de fission gazeux) et de la vitesse de déformation plastique, lors de la rampe [Sercombe 2017].

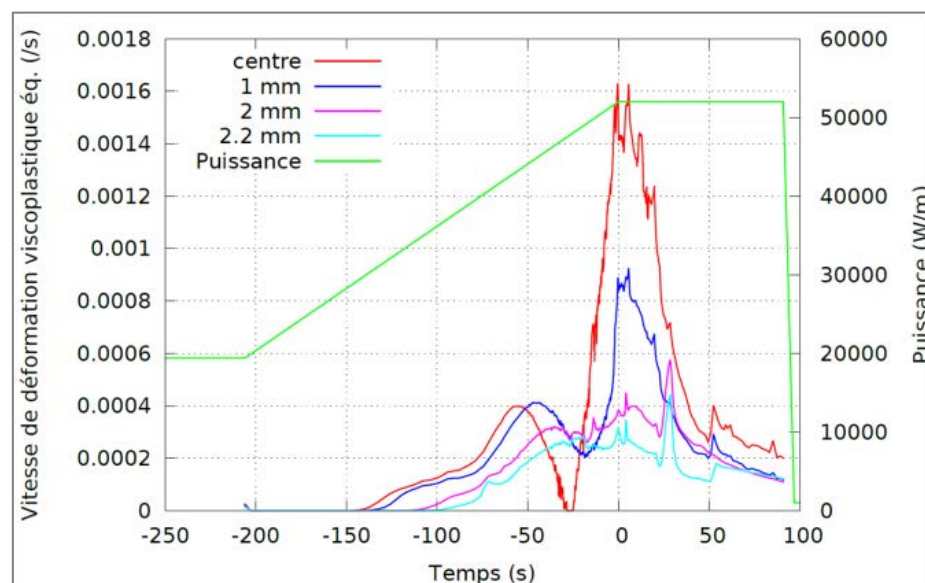
Lors de la montée en puissance, la contrainte de Von Mises croît puis s'effondre plus ou moins rapidement, suivant la position radiale, du fait de sa relaxation en température et du déclenchement de l'écoulement visco-plastique du matériau. A 2,2 mm, cette contrainte décroît jusqu'à 100 MPa lors du palier de puissance (entre $t = 50$ et $t = 100$ s). A $t = 100$ s et à $d = 2,2$ mm, la vitesse de déformation est de l'ordre de $2 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$. On considérera ces valeurs de 100 MPa et de

2.10^{-4} s^{-1} comme des bornes hautes respectivement pour la contrainte de compression et la vitesse de déformation, lors de nos essais.

Les rampes moins sollicitantes durent généralement une dizaine d'heures et conduisent également à des déformations visco-plastiques significatives, d'après le comblement des évidements, ce qui permet d'estimer que l'on atteint alors des vitesses de déformation de l'ordre de 10^{-6} s^{-1} [Zacharie-Aubrun 2014]. On fixera donc cette vitesse comme la borne basse, pour les essais réalisés en vitesse de déformation imposée. Toutefois, des vitesses encore plus lentes seront explorées en réalisant des essais de fluage à basses contraintes, dans le but notamment de déterminer la contrainte de transition entre fluage diffusionnel et fluage dislocationnel de nos deux microstructures. **Au final, une large gamme de contraintes et de vitesses de sollicitation sera donc balayée.**



(a)



(b)

Figure II.12 : Evolution de la contrainte de Von Mises et de la vitesse de déformation viscoplastique en fonction du temps pour la rampe G13.3 [Sercombe 2017].

II. 5. 2. Présentation de la machine d'essai

Des pastilles issues de chaque lot ont fait l'objet d'un programme d'essais de compression à 1500°C (en chargement, appelé Fluage, ou en vitesse de déplacement de la traverse imposée, appelé Déformation à Vitesse Constante DVC, selon les essais) afin de disposer d'un panel d'échantillons déformés à différentes contraintes, vitesses et niveaux de déformation.

Tous les essais mécaniques ont été réalisés par compression uniaxiale dans un four adapté sur une machine d'essai à vis de la marque Instron, modèle 1185, ayant une capacité de 100 kN (Figure II.13). La pastille est maintenue entre deux cales en tungstène, dans l'enceinte du four. Ces cales transmettent à la pastille l'effort appliqué par la traverse mobile située dans la partie supérieure de la machine. Cette force est mesurée par une cellule dynamométrique solidaire de la traverse.

- Lors d'un essai de fluage, un système de contrôle en charge gère le déplacement de la traverse afin d'assurer le maintien d'une charge stable.
- Lors d'un essai en DVC, le mouvement de la traverse est contrôlé de façon à obtenir une vitesse de déplacement constante. Une large gamme de vitesses est accessible (allant de $1 \mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$ à $100 \mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$ dans le cas de notre étude).

Le four utilisé est de type métallique. Il est placé sous la traverse mobile de la machine d'essais mécanique et repose sur le bâti inférieur. Il est conçu pour fonctionner, sous atmosphère de gaz neutre (argon) ou réducteur (argon et hydrogène) ou sous vide secondaire, jusqu'à 1800°C. L'enceinte du four, construite en acier inoxydable, possède une double paroi pour assurer le refroidissement de la paroi externe par circulation d'eau. La partie interne du four est constituée de deux parties hémicylindriques. L'une fixe, est solidaire de l'enceinte et l'autre de la porte. Lors de l'ouverture de la porte, le volume essentiel du four est entièrement accessible. Ceci facilite la mise en place des matériels et des échantillons. L'élément chauffant est constitué de mailles de tungstène. L'isolation thermique est garantie par un jeu d'écrans cylindriques en tungstène et en molybdène. Les températures du four et de l'échantillon faisant l'objet de l'essai sont contrôlées par deux thermocouples :

- tungstène-rhénium 26 % (TE) : il s'agit du thermocouple de mesure de la température de la pastille, il est placé au voisinage de celle-ci à environ 2 cm de sa surface. Ce thermocouple est maintenu en place dans une entaille réalisée dans la cale inférieure.
- tungstène-rhénium 5 % (TR): il s'agit du thermocouple de régulation (TR) placé entre le premier écran en tungstène et la résistance arrière.

Des étalonnages sont effectués périodiquement au moyen d'un troisième thermocouple placé au centre d'une pastille d' UO_2 percée, de façon à déterminer l'écart entre la température de régulation et celle de l'échantillon.

L'application de la contrainte et le déplacement de la traverse mobile sont entièrement automatisés et gérés par un dispositif informatique qui permet à la fois de piloter l'essai et d'acquérir les résultats. Le suivi du déplacement de la traverse est assuré par un capteur de type Heidenhain qui est placé entre la traverse mobile et celle supérieure fixe. Néanmoins, cette méthode de mesure peut introduire des erreurs parce que le déplacement enregistré de la traverse correspond à la somme des déformations de l'échantillon mais aussi de l'outillage de la colonne de charge. Pour

éviter au mieux ces erreurs, la mesure de la déformation tout au long de l'essai mécanique est assurée par extensométrie : c'est une mesure différentielle, fiable, qui permet de donner des valeurs très précises de la déformation de la pastille même pour les faibles déformations. Cette mesure se fait par l'intermédiaire de deux capteurs inductifs "LVDT" (Transformateur Différentiel à Variation Linéaire), placés dans la zone froide dans une boîte à ouverture frontale afin de faciliter leur contrôle. Ces capteurs sont prolongés par des barres en tungstène qui traversent les écrans thermiques et sont au contact des deux cales en tungstène qui maintiennent la pastille (voir la figure II.13).

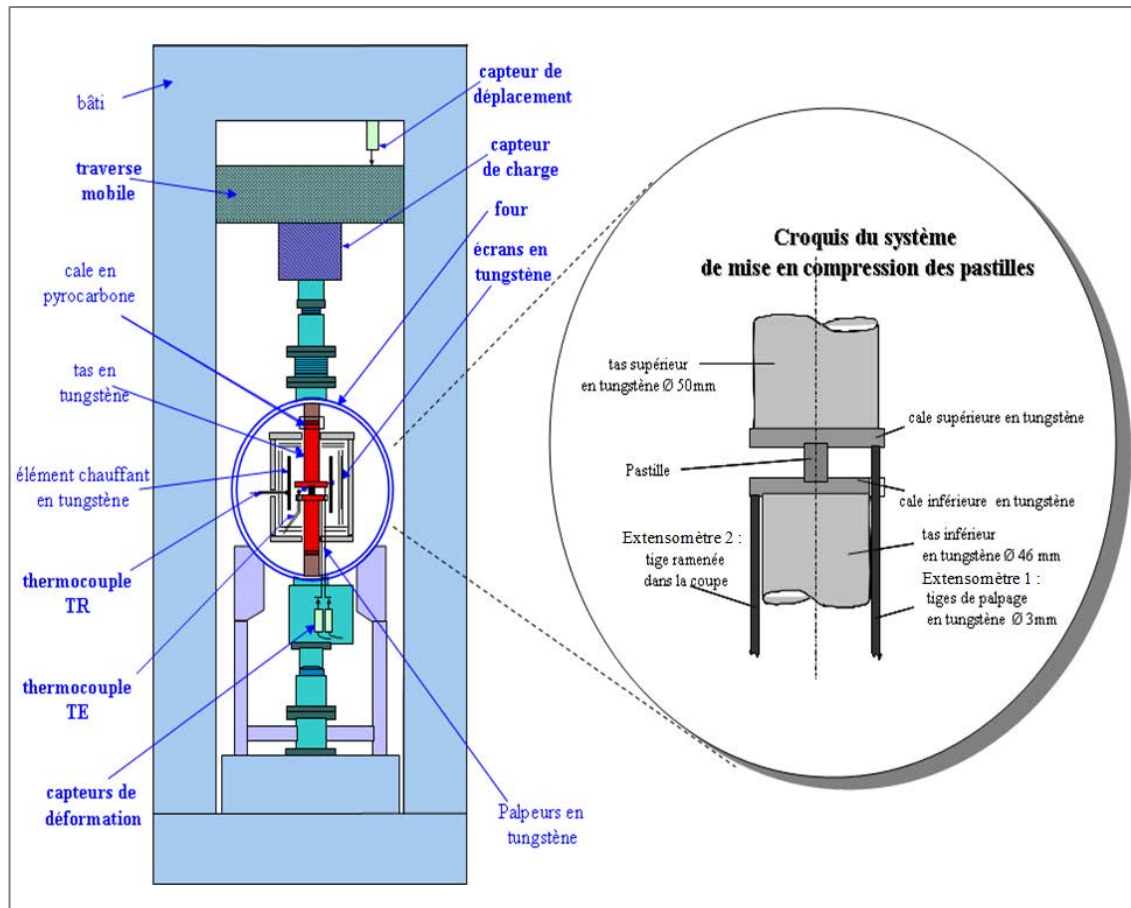


Figure II.13 : Schéma de la machine d'essais mécaniques [Vivant-Duguay 1998].

II. 5. 3. Types d'essais et protocoles de réalisation

Dans cette étude, deux types d'essais ont été réalisés sur les deux lots de pastilles : des essais de fluage (à contrainte imposée) et des essais en DVC (à vitesse imposée) en compression. Tous ces essais mécaniques ont été effectués à 1500°C sous atmosphère d'argon hydrogéné pour maintenir la stœchiométrie des échantillons UO_2 (cf. chapitre I).

II. 5. 3. 1. Essais de Déformation à Vitesse Constante (DVC)

Les essais de compression à vitesse imposée ont été menés à des taux de déformation moyens en fin d'essai variant entre 3 et 16 %, et entre 3 et 11,5 %, respectivement pour L1 et L2, de manière à observer les deux microstructures à différents niveaux de déformation. Ces essais ont été conduits à des vitesses de déplacement de la traverse qui varient de 1 à 100 $\mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$ et de 1 à

70 $\mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$, respectivement pour L1 et L2, ce qui correspond à des vitesses de déformation de l'échantillon allant de 0,4 à 35 $\% \cdot \text{h}^{-1}$, pour le 1^{er} lot de pastilles (dont la hauteur initiale est de 16 mm), et entre 0,42 et 26,33 $\% \cdot \text{h}^{-1}$, pour le 2^{ème} lot de pastilles (de hauteur initiale 15,5 mm). Ceci couvre une gamme de vitesses de déformation qui est globalement comprise entre 10^{-6} et 10^{-4} s^{-1} et qui est représentative de celles atteintes lors de rampes de puissance, d'après l'analyse qui a été faite dans le paragraphe II. 5. 1.

La vitesse de déformation réelle change au cours de l'essai. Au démarrage, dans le domaine élastique, une partie de la déformation est imputable à la « mise en place » de l'appareil. La vitesse de déformation de la pastille est alors plus faible que la vitesse de déplacement de la traverse. Ensuite, dans le régime stationnaire, les deux vitesses deviennent sensiblement égales. Dans cette étude, tous les essais mécaniques de DVC ont été interrompus dans le régime stationnaire (c'est-à-dire dans le domaine d'écoulement plastique), quand la pastille avait atteint un niveau de déformation moyen choisi au préalable.

La plupart des essais de compression réalisés dans cette étude sont des essais de type DVC, car ils présentent l'avantage de pouvoir plus facilement être arrêtés à un taux de déformation choisi au préalable. Néanmoins, la diminution de la vitesse de déformation engendre une augmentation très marquée des fluctuations sur la contrainte comme cela est présenté sur la figure II.14, qui correspond à un essai réalisé à une vitesse de $1 \mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$. Compte-tenu de ces fluctuations, cette vitesse a été choisie comme la valeur la plus faible utilisable en DVC. Pour explorer un domaine de vitesses de déformation encore plus basses, correspondant a priori au domaine de fluage diffusif, il a été jugé préférable de réaliser des essais en contrainte imposée, autrement dit des essais de fluage.

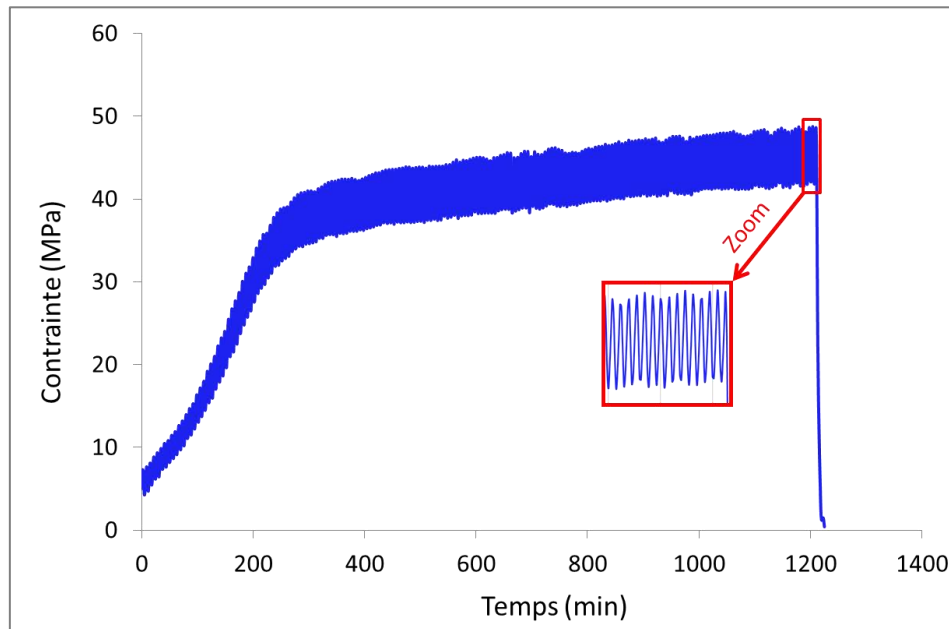


Figure II.14 : Evolution de la contrainte lors d'un essai de DVC réalisé avec une vitesse de déplacement de la traverse de $1 \mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$.

II. 5. 3. 2. Essais de fluage à contrainte imposée

Les essais de fluage complètent la campagne d'essais DVC. Il s'agit d'un nombre limité d'essais réalisés à basse contrainte (entre 10 et 20 MPa) dont la durée est de plusieurs jours (jusqu'à

10 jours)). On notera cependant que les équipements utilisés ne permettent pas de couper automatiquement le four, une fois le taux de déformation choisi atteint en fluage. En DVC, ce taux peut être prévu en adaptant la durée de l'essai et la phase de refroidissement peut donc être programmée en conséquence. Il était donc plus « simple » de travailler en DVC qu'en fluage.

Des essais de fluage à basses contraintes ont été réalisés dans L1, à 12, 20 et 30 MPa, et L2, à 12 et 20 MPa. Ils ont conduit à des niveaux de déformation très faibles, à savoir 0,78 %, 2,6 % et 7,8% pour le lot L1 et 0,48 % et 0,88 % pour le lot L2.

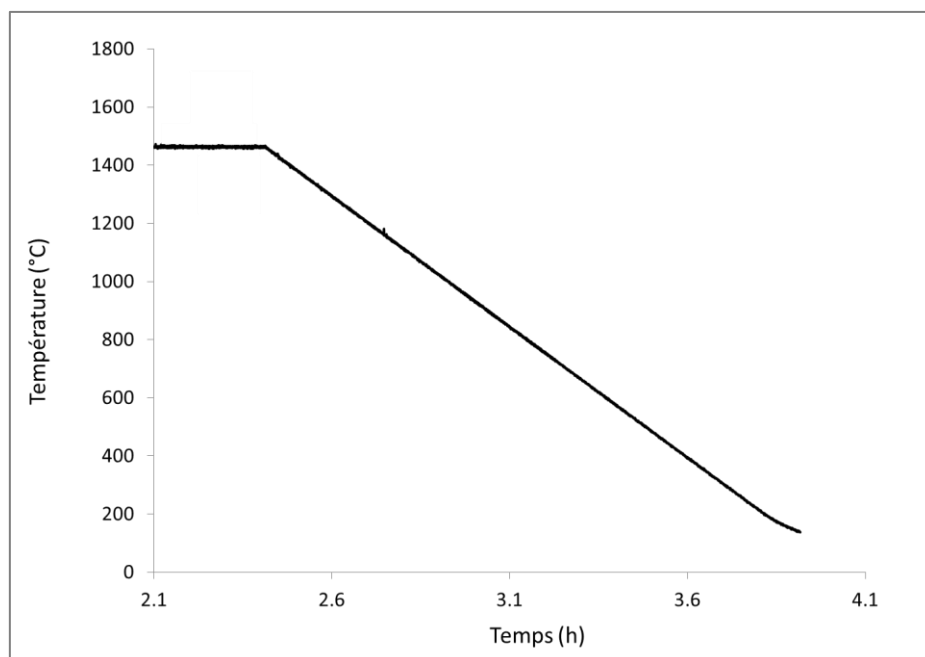
Un essai de fluage complémentaire a été réalisé sur la 1^{ère} microstructure dans le domaine de fluage dislocationnel, sous une contrainte de 50 MPa dans le but de vérifier, au moins dans un cas, que l'endommagement obtenu au niveau de la microstructure consécutivement à un essai en fluage ou en DVC, pour une température et un niveau de déformation donné, était le même (voir chapitre IV).

II. 5. 3. 3. Conditions de refroidissement

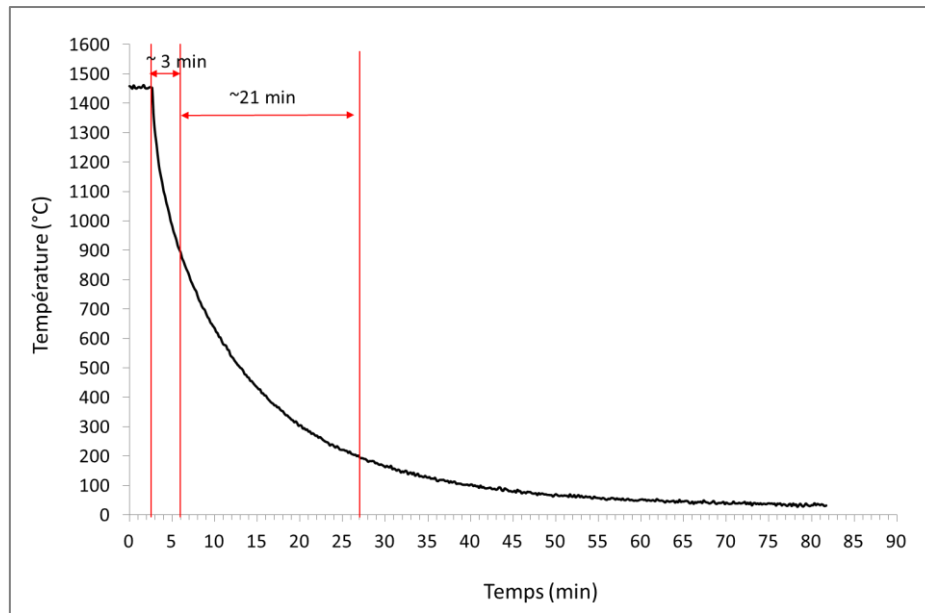
La phase de refroidissement post-essai, pour la très grande majorité des essais réalisés dans cette étude, que ce soit en fluage ou en DVC, a été réalisée à une vitesse de 17°C/min. Pendant cette phase, une faible force (moins de 250 N) reste appliquée sur la pastille pour en assurer le maintien.

Ces conditions ont été choisies de façon à limiter les risques de détérioration des organes internes du four de la machine de compression. Elles ne correspondent pas à celles que nous aurions souhaité mettre systématiquement en œuvre, à savoir une trempe la plus rapide possible, destinée à figer l'état microstructural obtenu au cours de l'essai.

Seul un essai a pu être réalisé avec une trempe sur une pastille du lot L1. Son exploitation, à l'échelle de la microstructure, sera présentée dans le chapitre IV. La figure II.15, ci-après, compare les courbes de refroidissement obtenues expérimentalement, après un refroidissement à 17°C/min et après une coupure brutale du four. On constate qu'il faut respectivement 3 heures et 3 minutes, pour aller de 1500°C à 900°C, puis 50 et 21 minutes supplémentaires pour atteindre 200°C.



(a)



(b)

Figure II.15 : Courbes de refroidissement (a) classique avec une vitesse de $17^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ et (b) rapide : four coupé.

II. 5. 3. 4. Reproductibilité des essais

Le premier lot de pastilles a fait l'objet d'essais mécaniques dont la réalisation s'est étalée sur plus d'une année, en différentes campagnes, en fonction de la disponibilité de la machine de compression. Lors de l'exploitation de ces essais (cf. paragraphe suivant), on a constaté une dispersion des résultats corrélée à ces différentes campagnes que l'on pourrait imputer, entre autres :

- aux réglages de la machine (étalonnage et position des thermocouples, des capteurs de force et de déplacement...),
- à l'atmosphère régnant dans le four lors des essais.

En ce qui concerne la température d'essai, des variations de l'ordre de 20, voire 30°C, sont susceptibles d'être obtenues entre des essais réalisés à plusieurs mois d'intervalle. Celles-ci ne sont pas connues précisément, compte-tenu de l'absence de thermocouple en contact direct avec l'échantillon. Par ailleurs, ce four a tout récemment été équipé d'un système de contrôle et de mesure de la pression partielle d'oxygène (PO_2). Il a ainsi été possible de vérifier que cette dernière peut mettre jusqu'à 6 à 8 heures pour se stabiliser, lors d'un essai sous Ar + 5% H_2 . Or nous n'attendions généralement qu'une heure en température, avant de démarrer un essai (dont la durée pouvait être variable : de l'ordre d'une heure à plusieurs dizaines d'heures). Sachant que la PO_2 a une influence significative sur la vitesse de déformation de l' UO_2 , car elle influe directement sur les coefficients de diffusion de l'oxygène et de l'uranium [Philibert 1984], son évolution en cours d'essai peut donc être un facteur de dispersion. D'autres paramètres sont susceptibles d'induire une variabilité entre les essais, comme l'état des cales qui maintiennent la pastille, la présence d'hétérogénéités et/ou de défauts dans cette dernière, etc.

Le second lot a fait l'objet d'une campagne d'essais plus ciblée, qui a pu être réalisée sur une période de quelques mois seulement, réduisant ainsi, a priori, la dispersion due aux réglages de la machine. Par contre, compte-tenu de la présence fréquente de fissures dans les pastilles de ce lot, une dispersion due aux échantillons eux-mêmes est cette fois susceptible d'impacter la reproductibilité des essais.

II. 5. 4. Détermination de la vitesse de fluage et de la contrainte appliquée à partir des courbes des essais de compression

Le logiciel de gestion de la machine d'essai mécanique génère un fichier comportant les principales grandeurs suivantes, en fonction du temps :

- la contrainte appliquée calculée à partir de la section initiale de la pastille (d'après les métrologies faites à l'ambiante, corrigées de l'effet de la dilatation thermique),
- le déplacement des deux extensomètres qui, par différence, permet de déterminer la déformation (ramenée en %) de la pastille.

En pratique, il est impossible de réaliser un essai mécanique de compression uniaxiale à contrainte constante car la section S de la pastille augmente avec la déformation comme le montre la figure II.16. Cette modification est à prendre en compte en particulier si la déformation est élevée. Avec les pastilles relativement élancées que nous avons utilisées, l'effet tonneau reste relativement modéré.

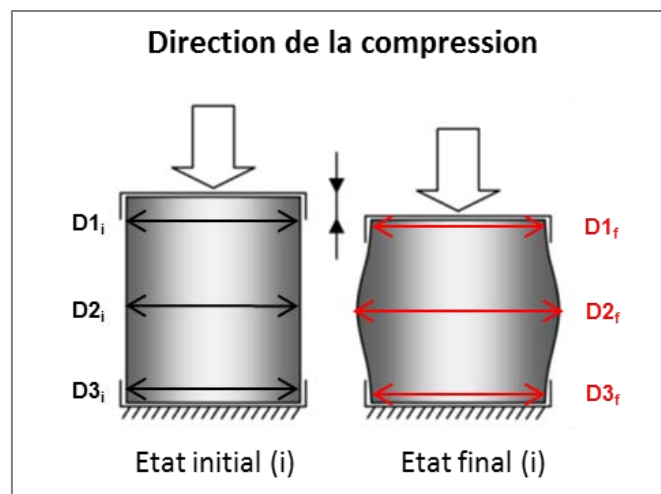


Figure II.16 : Représentation schématique de la variation de la section de la pastille après un essai de compression.

De ce fait, les résultats de ces essais ne doivent pas être exprimés en fonction des contraintes nominales σ_0 , mais plutôt en fonction des contraintes vraies σ telles que :

$$\sigma_0 = \frac{F}{S_0} \quad (II.2)$$

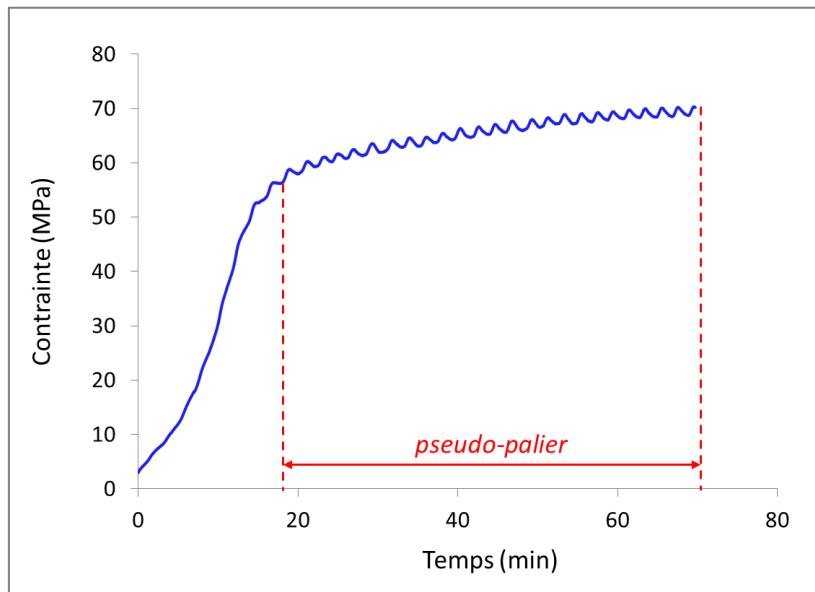
où F est la force appliquée et S_0 est la section initiale de la pastille,

$$\sigma = \frac{F}{S} \quad (II.3)$$

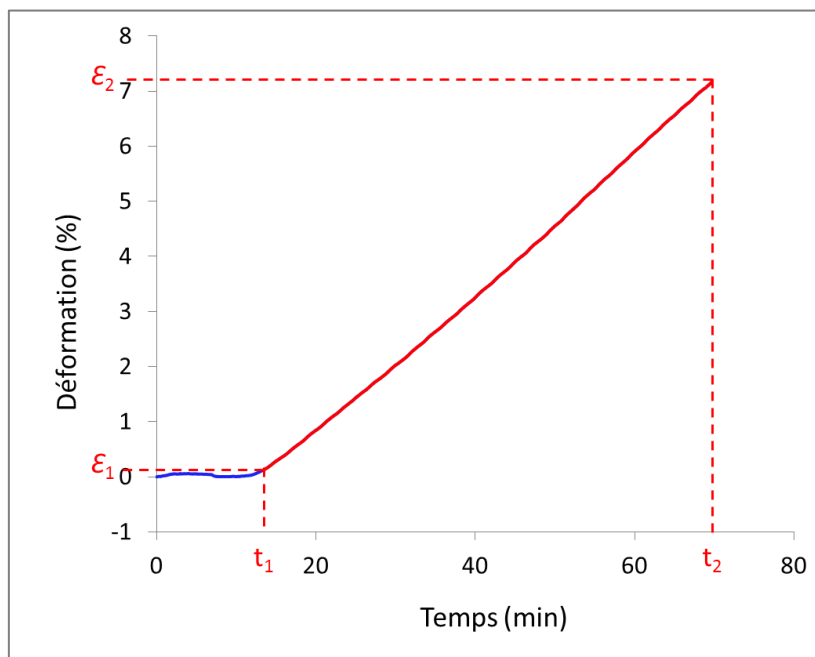
où S représente l'aire de la section réelle de la pastille.

En pratique, seule la section finale peut être mesurée après retour à l'ambiante, ce qui ne permet pas la détermination exacte de la contrainte tout au long de l'essai.

La figure II.17 montre l'évolution de la contrainte nominale (par rapport à la section initiale) et de la déformation en fonction du temps, lors d'un essai de type DVC. Le régime stationnaire se traduit par un pseudo-palier de contrainte, au cours duquel cette dernière grandeur évolue peu avec le changement de section de la pastille.



(a)



(b)

Figure II.17 : Illustration des résultats d'un essai DVC (à $20 \mu\text{m}.\text{min}^{-1}$) réalisé sur une pastille du lot L1 : (a) courbe d'évolution de la contrainte nominale en fonction du temps ($\sigma = f(t)$) et (b) courbe

d'évolution de la déformation en fonction du temps ($\varepsilon = f(t)$). Le niveau de déformation final est de l'ordre de 7%.

On a choisi dans cette étude de considérer que la contrainte appliquée, en régime stationnaire, est équivalente à la contrainte en fin d'essai (σ_{finale}) exprimée comme suit :

$$\sigma_{\text{Finale}} = \frac{F}{S_{\text{Finale}}} \quad (\text{II.4})$$

avec S_{Finale} la section moyenne mesurée après l'essai mécanique et ramenée à la température de l'essai, à savoir :

$$S_{\text{Finale}} = \frac{\pi \cdot D_f^2}{4} \quad (\text{II.5})$$

D_f étant le diamètre moyen final mesuré après l'essai et ramené à 1500°C (au moyen d'un coefficient multiplicatif de 1,07 qui traduit la dilatation de l'UO₂ entre l'ambiante et 1500°C, cf. chapitre I (paragraphe I. 2 .2. 1) :

$$D_f = \left(\frac{D1_f + 2 \times D2_f + D3_f}{4} \right) \times 1,07 \quad (\text{II.6})$$

Les diamètres $D1_f$, $D2_f$ et $D3_f$ sont présentés sur la figure II.16. Dans le cas considéré sur la figure II.17, la contrainte finale déterminée est égale à 66 MPa.

A partir de la courbe ($\varepsilon = f(t)$) (figure II.17b), on remarque que la déformation augmente à partir d'un certain temps après la mise en charge (dans ce cas après 13 min) suivant une droite croissante. La vitesse de déformation réellement appliquée est déduite de la pente de cette droite selon l'équation II.7 :

$$\dot{\varepsilon} (\% \cdot h^{-1}) = \frac{\Delta \varepsilon (\%)}{\Delta t (h)} = \frac{\varepsilon_2 - \varepsilon_1}{t_2 - t_1} \quad (\text{II.7})$$

La figure II.18 présente la déformation en fonction du temps ($\varepsilon = f(t)$), lors d'un essai de fluage sous une contrainte imposée égale à 20 MPa. Le niveau de déformation final atteint après essai est très faible (0,88 %). La vitesse de déformation est déduite à partir de deux points choisis dans la zone de la courbe où la déformation varie linéairement en fonction du temps. Dans ce cas, elle est égale à 0,0056 %·h⁻¹ soit 1,6.10⁻⁸ s⁻¹.

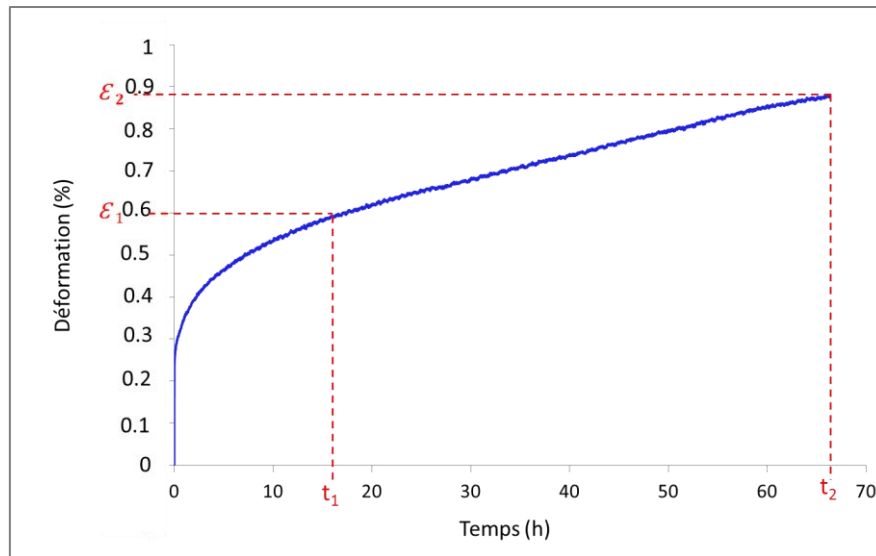


Figure II.18 : Courbe de déformation en fonction du temps enregistrée lors d'un essai de fluage sous une contrainte imposée de 20 MPa, réalisé sur une pastille du lot L2.

II. 6. Synthèse

Sur la base d'un cahier des charges, deux lots de pastilles d' UO_2 respectivement nommés L1 et L2 ont été fabriqués et les moyens mis en œuvre pour étudier les microstructures obtenues ont été présentés dans ce chapitre. Les deux lots de pastilles fabriqués sont caractérisés par des hauteurs respectives de 16 et 15 mm : elles sont plus longues que le combustible standard pour mieux répartir la déformation lors des essais mécaniques de compression. Les pastilles sont caractérisées aussi par la même densité hydrostatique relative qui est de 98,1% de la densité théorique de l' UO_2 . Elles se caractérisent également par la même porosité fermée de 1,7%. La répartition des pores dans les deux lots de pastilles a été caractérisée par analyse d'images acquises en haute résolution en mode BSE. Cette répartition est nettement différente : les pastilles du lot L1 présentent des pores intra-granulaires environ 2,5 fois plus nombreux que dans le lot 2.

Les tailles moyennes des grains ont été déterminées à partir de cartes EBSD larges. Elles sont du même ordre de grandeur, à savoir 12 et 15 μm respectivement pour L1 et L2. La distribution de taille des grains est aussi un peu différente entre ces deux lots. Elle est plus étendue dans le lot L2. Par ailleurs, le lot L1 présente de nombreux petits grains qui ne sont pas répartis uniformément, de ce fait la taille moyenne des grains est plus faible.

La gamme de sollicitations mécaniques qui sera balayée dans cette étude a été définie sur la base de l'exploitation d'un calcul de rampe de puissance, réalisé à l'aide du code ALCYONE. La température des essais a été fixée à 1500°C car c'est la température atteinte à peu près à mi-rayon d'une pastille d' UO_2 . La gamme de vitesses de déformation qui sera balayée dans les deux lots de pastilles est comprise entre 10^{-6} et 10^{-4} s^{-1} . La gamme de contraintes qui sera exploitée dans cette étude varie entre 12 et 72 MPa. Les caractéristiques de la machine d'essais mécaniques, les types d'essais réalisés (fluage et DVC) et leur exploitation ont également été détaillés dans ce chapitre.

Avant d'aborder ces essais et l'étude systématique des échantillons testés mécaniquement, il est nécessaire d'établir tout d'abord une méthodologie adaptée à la caractérisation qualitative et quantitative des phénomènes de sous-structuration des grains qui interviennent dans l' UO_2 , en régime de fluage dislocationnel. Ceci fait l'objet du chapitre III.

Chapitre III

Développement d'une méthodologie d'analyse des microstructures de déformation par fluage des pastilles d'UO₂

III. 1. Introduction

Comme cela a été décrit dans le chapitre I, le comportement visco-plastique des pastilles d' UO_2 met en jeu des phénomènes de sous-structuration des grains, c'est-à-dire d'apparition de sous-joints de grains au sein des grains originaux obtenus à l'issue du frittage. Jusqu'à présent, ces phénomènes ont été principalement mis en évidence et étudiés par MET, sur des zones minces très peu étendues (quelques grains). De plus, ces études par MET ne sont pas adaptées pour quantifier le développement de la sous-structure en fonction des conditions de sollicitations thermomécaniques en lien avec la microstructure initiale de la céramique.

Ces limitations peuvent être surmontées et une transition d'échelle entre les dislocations et le comportement mécanique macroscopique peut être réalisée grâce aux progrès récents des techniques d'analyse sur des échantillons massifs, associées au MEB. Il s'agit d'une part, de l'utilisation de l'EBSD en résolution angulaire améliorée pour quantifier l'évolution de la microstructure après fluage, d'autre part, de l'imagerie exploitant le contraste de canalisation des électrons ou Electron Channeling Imaging « ECCI » pour caractériser les dislocations présentes et leurs arrangements en réseaux.

Dans ce chapitre, après un rappel du principe de formation d'un diagramme de diffraction en EBSD et de son indexation, nous détaillons la méthodologie que nous avons développée et mise en œuvre pour améliorer la résolution angulaire des données EBSD et caractériser des sous-joints de grains de très faibles désorientations. Nous introduisons ensuite l'« Accurate-ECCI », méthode innovante d'analyse des dislocations dans un matériau massif. Les deux techniques sont enfin appliquées à l' UO_2 déformé pour valider notre approche. Nous proposons aussi une exploitation statistique de cartes EBSD plus étendues pour quantifier la sous-structure qui apparaît après déformation. Cela intègre aussi l'évaluation de la densité moyenne de dislocations géométriquement nécessaires (GNDs) à partir des cartes EBSD.

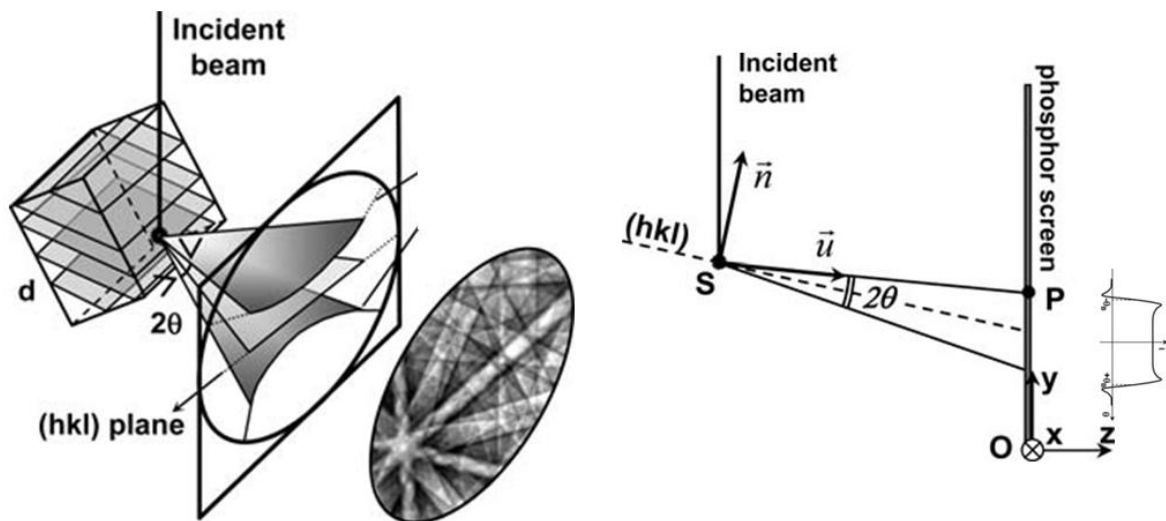
Une partie du contenu de ce chapitre a fait l'objet d'une publication dans le journal « Materials Characterization » sous le titre « Sub-boundaries induced by dislocational creep in Uranium Dioxide analyzed by Advanced Diffraction and Channeling Electron Microscopy » [Ben Saada 2017].

III. 2. L'EBSD : Optimisation de l'acquisition et du traitement des données pour l'étude de la sous-structure de déformation de l' UO_2

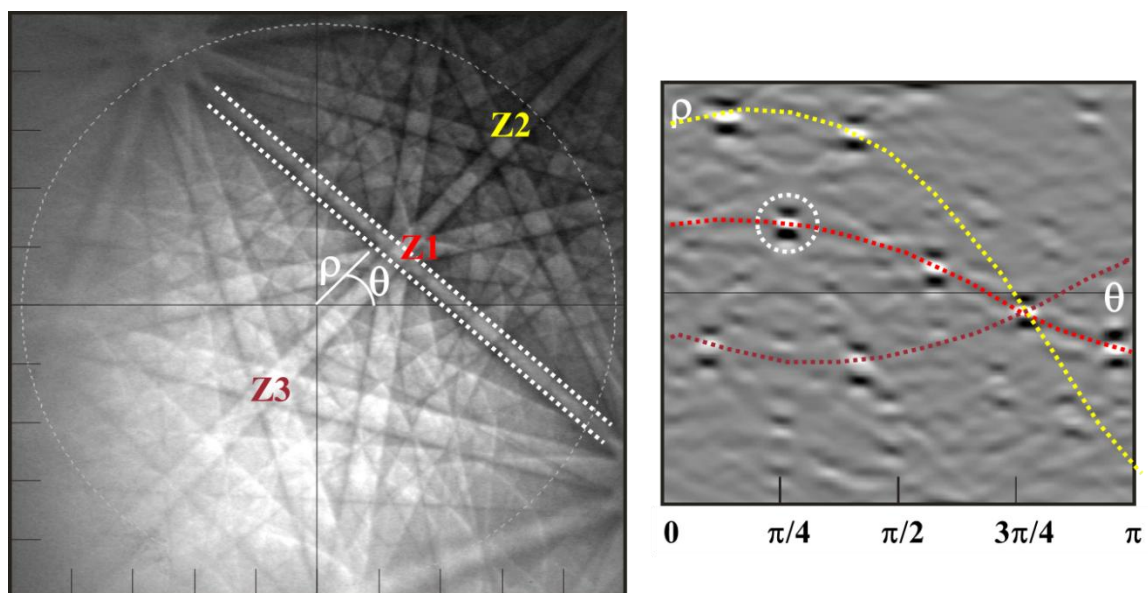
III. 2. 1. Rappel des notions de base pour la détection et l'indexation des clichés de Kikuchi

Afin de mieux comprendre l'influence des paramètres d'acquisition des données EBSD sur la précision de la détermination des orientations cristallographiques, nous allons revenir sur le principe de formation d'un cliché de Kikuchi et son indexation, aspects déjà abordés succinctement dans le chapitre II (cf. paragraphe II. 3. 3).

Considérons un faisceau d'électrons focalisé en un point sur la surface de l'échantillon. Les électrons rétrodiffusés en incidence de Bragg avec un plan réflecteur (hkl) vont diffracter selon deux cônes de diffraction (cônes de Kossel). L'intersection de ces cônes avec l'écran de la caméra EBSD forme deux hyperboles (Figure III.1a). Les angles de diffraction étant petits pour un faisceau d'électrons énergétiques, les deux hyperboles peuvent être assimilées à deux lignes parallèles formant une bande de Kikuchi. L'ensemble des bandes de diffraction issues des différents plans réflecteurs forme un diagramme de Kikuchi.



(a)



(b)

Figure III.1 : (a) Principe de formation du diagramme de Kikuchi [Maurice 2008] (b) Transformation de Hough appliquée à un diagramme de Kikuchi.

Cette description géométrique de la formation d'un diagramme de Kikuchi permet d'interpréter sa symétrie et de déduire l'orientation cristallographique du point source. Cependant, elle ne permet pas d'interpréter le profil d'intensité de diffraction au niveau d'une bande de diffraction (Figure III.1a). Cela nécessite une simulation du diagramme à l'aide de la théorie dynamique de la diffraction. On note cependant que l'intensité du signal est maximale au milieu d'une bande, correspondant à la trace du plan réflecteur (hkl). Cette intensité est minimale au niveau des bords d'une bande (position proche de la condition de Bragg - signal diffracté). On parle de condition de « canalisation des électrons », condition qui est exploitée pour l'imagerie ECCI décrite au paragraphe III. 3.

La détection automatisée des bandes de Kikuchi s'effectue ensuite à l'aide de la transformée de Hough. Son principe consiste à transformer une droite définie dans l'espace cartésien par

l'équation ($y = ax + b$) en un point dans l'espace de Hough des coordonnées polaires (θ, ρ) (θ étant l'angle de la droite avec l'axe x et ρ la distance à l'origine (voir figure III.1b)). La transformée est en fait appliquée aux pixels du diagramme de diffraction. Ainsi, un pixel à la position (x,y) devient dans le plan transformé une courbe d'équation ($\rho = x \cos \theta + y \sin \theta$). La figure III.1b montre, dans l'espace de Hough, les courbes associées aux trois axes de zone Z1, Z2 et Z3 du cliché EBSD (zones de forte intensité correspondant à l'intersection de plusieurs bandes). L'intersection des différentes courbes associées à ces points donne une zone de forte intensité facilement détectable et définissant la bande passant par Z1, Z2, Z3. Ainsi, une bande de Kikuchi donnera, dans le plan transformé, une zone de forte intensité (correspondant à la largeur de bande présentant une forte intensité entourée de deux points de faible intensité (correspondant aux bords des bandes)).

Par ailleurs, cette transformation est appliquée au diagramme de Kikuchi avec une certaine résolution. Cela consiste à traiter directement un ensemble de pixels voisins du diagramme, définissant un espace $(\Delta\theta, \Delta\rho)$ dans le plan transformé, pour limiter le temps de calcul.

L'indexation des bandes s'effectue avec un système EBSD calibré. A partir des bandes détectées, le système détermine les angles entre celles-ci. Ces angles sont comparés aux angles théoriques entre plans réflecteurs de la structure cristallographique correspondante. Cela permet d'indexer les bandes détectées (le milieu des bandes correspondant à la trace du plan (hkl) identifié) et de déduire l'orientation du point source.

III. 2. 2. Optimisation des conditions d'acquisition des données EBSD

Dans ce processus de traitement du diagramme de Kikuchi, deux facteurs principaux influencent la précision de l'orientation déterminée : la qualité du signal de diffraction puis la précision de la détection des bandes.

La qualité du signal de diffraction va dépendre du matériau analysé et de son état métallurgique. Plus le matériau sera dense, de numéro atomique élevé et exempt de défauts cristallins, meilleur sera le signal de diffraction. La qualité du signal peut également être améliorée en optimisant les paramètres d'acquisition du diagramme, en particulier le choix de la résolution de travail (binning) du capteur CCD de la camera EBSD, le temps d'intégration du signal et le choix de moyennner plusieurs clichés pour améliorer le rapport signal sur bruit.

La précision de la détection des bandes dépend de la résolution du diagramme de diffraction, de la résolution de la transformée de Hough et de la stratégie d'analyse de l'espace de Hough.

Afin d'améliorer la résolution angulaire des données EBSD, nous avons travaillé, lors de l'acquisition des cartes EBSD¹, sur l'amélioration de ces deux aspects : la qualité du signal de diffraction et la détection des bandes.

Pour obtenir une bonne résolution du cliché de diffraction, nous avons limité le binning au niveau du capteur CCD de la caméra. Or, le choix du binning impacte fortement le temps d'intégration sur le capteur pour obtenir un signal exploitable. Afin d'obtenir un compromis satisfaisant entre la qualité du signal et la durée d'acquisition, les cartes EBSD ont été acquises avec une résolution de la caméra de 672 x 512 pixels (c.à.d. avec un binning 2x2) avec un temps d'intégration de 44 ms par cliché et sans moyennage.

¹ Les cartes EBSD ont été acquises sur des échantillons (de référence et déformés) dans les conditions décrites dans le chapitre II (cf. paragraphe II. 3. 3. 2), à savoir pour mémoire : une tension d'acquisition de 20 kV, un courant d'environ 10 nA et une distance de travail de 15 mm.

Pour obtenir une détection optimale des bandes de Kikuchi, nous avons utilisé le mode « précision améliorée » du logiciel AZTEC [Thomsen 2013]. Ce mode améliore la détection des bandes de Kikuchi en prenant en compte leur forme hyperbolique pour affiner l'ajustement entre les bandes détectées et celles simulées. Il s'inspire de la stratégie proposée par Maurice et Fortunier sous l'intitulé « 3D Hough Transform » [Maurice 2008]. Au niveau du logiciel AZtec, cela se traduit en trois étapes [Thomsen 2013] :

1. Application d'une première transformée de Hough classique à basse résolution pour détecter un maximum de 12 bandes,
2. Indexation des bandes pour associer à chaque bande détectée le plan (hkl) correspondant (connaissant les phases en présence) et déduire l'orientation approximative (le MAD : mean average deviation), paramètre qui traduit l'écart entre les bandes détectées et les bandes simulées, est alors de l'ordre de 1°),
3. Application d'une deuxième transformée de Hough à haute résolution, limitée aux domaines (ρ, θ) des 12 bandes détectées. A partir de l'orientation approximative, les bandes (hkl) théoriques sont simulées dans l'espace de Hough en prenant en compte leur forme hyperbolique. L'orientation en précision améliorée est recherchée en ajustant la simulation aux données expérimentales (en prenant en compte l'ensemble du profil des bords de bande). La résolution angulaire des données EBSD « classiques » est ainsi améliorée sans impact sévère sur la vitesse d'acquisition. Le MAD associé à l'orientation calculée est alors beaucoup plus faible que lors de la première étape.

III. 2. 3. Optimisation du pré-traitement des données EBSD acquises sur matériaux poreux

Afin d'améliorer la détection et la quantification des sous-joints de grains de très faibles désorientations sur les cartes EBSD, deux aspects ont été pris en compte : d'une part, la présence de pores qui induit des désorientations artificielles au sein des grains, d'autre part, le filtrage des données pour améliorer la résolution angulaire de la carte. On emploiera par la suite le vocabulaire suivant :

- données brutes : données telles qu'acquises à l'issue de la cartographie EBSD,
- données corrigées : données ayant subi une correction destinée à réduire le bruit de mesure au voisinage des pores (cf. paragraphe III. 2. 3. 1). Cette étape se poursuit par les corrections plus classiques (déjà détaillées au chapitre II) liées à la suppression des erreurs d'indexation et l'extrapolation des pixels non indexés (sans recouvrir les zones correspondant aux pores),
- données filtrées : données ayant subi le traitement de correction précédent puis un filtrage au moyen du filtre Kuwahara (cf. paragraphe III. 2. 3. 2).

Au final, on désignera par données pré-traitées les données ayant subi les opérations de correction et de filtrage, elles-mêmes désignées par le terme global « pré-traitement ».

III. 2. 3. 1. Correction des désorientations artificielles au voisinage des pores

Lorsqu'on acquiert des données EBSD sur un matériau présentant des pores, comme dans le cas de l' UO_2 , il est important de conserver la présence de pores sur la carte EBSD, sous la forme de zones non indexées. Cependant l'expérience montre que seule une faible fraction surfacique des

pores est non-indexée sur la carte EBSD. La majorité des pixels appartenant à la surface du pore a été indexée. De plus, les orientations obtenues ne sont pas précises et présentent des désorientations artificielles par rapport à l'orientation attendue. Cela est illustré par la figure III.2. On présente d'abord une image en électrons secondaires d'un pore au sein d'un de nos échantillons de référence (sans déformation), incliné à 70° (condition d'acquisition EBSD). La carte EBSD correspondante (Figure III.2b) montre qu'une grande fraction de la surface du pore a été indexée à tort. De plus, les orientations obtenues affichent jusqu'à 3° de désorientation par rapport à l'orientation du grain contenant le pore (orientation codée en bleu sur la figure III.2b). Il n'y a que la partie inférieure du pore qui n'a pas été indexée. C'est en fait ce qui est souhaité afin de conserver la localisation des pores dans la carte EBSD.

La figure III.3 présente les diagrammes de diffraction acquis au cœur du grain et au niveau du pore précédemment imagé sur la figure III.2 (voir les croix blanches). Elle permet d'illustrer le problème d'indexation au niveau d'un pore. Les bandes de diffraction présentes dans le cliché acquis dans le grain (Figure III.3a) sont très bien définies et peuvent être indexées aisément à partir de la maille de l'UO₂. Au niveau du bord inférieur du pore (Figure III.3b), le cliché EBSD ne contient plus beaucoup de bandes de diffraction se détachant du bruit de fond (probablement du fait d'un effet d'ombrage du signal de diffraction par la topologie du pore). Cela explique pourquoi cette zone n'a pas été indexée (Figure III.2b, voir les pixels noirs). Au niveau du bord supérieur du pore, un signal de diffraction est enregistré sur la caméra. Cependant le cliché obtenu (Figure III.3c) présente une inversion de contraste par rapport à celui obtenu sur le grain (le milieu de la bande est sombre et les bords sont plus clairs). Cela perturbe l'algorithme de détection des bandes qui associe systématiquement les zones claires aux parties centrales des bandes et non aux bords des bandes (Figure III.1). Le résultat montre que le logiciel trouve une orientation mais cette orientation est décalée de plusieurs degrés par rapport à l'orientation attendue.

Ces désorientations artificielles obtenues au voisinage immédiat du pore et à l'intérieur de celui-ci, doivent être enlevées de la carte pour qu'une analyse fiable de la désorientation induite par le mécanisme de fluage puisse être effectuée. Pour cela, il est nécessaire de corriger les données brutes d'acquisition.

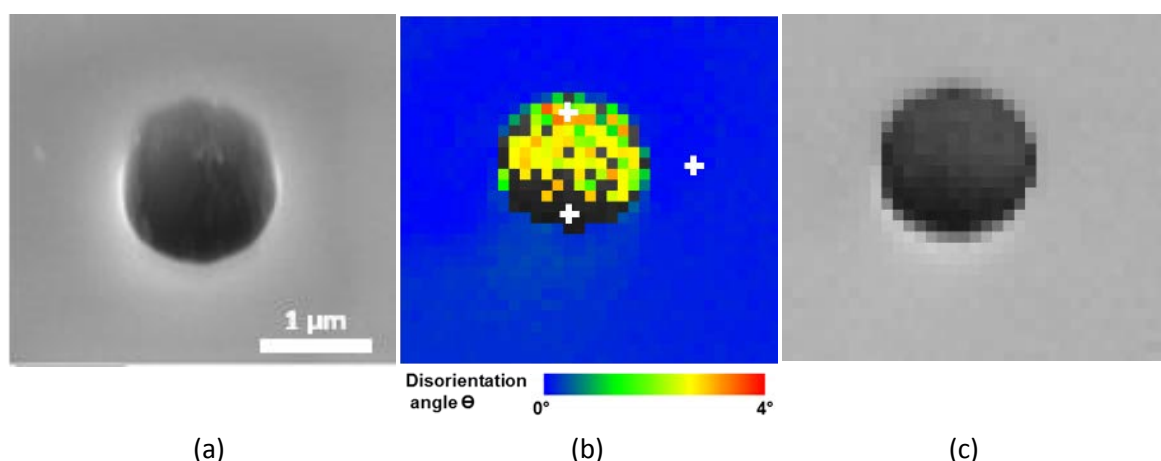


Figure III.2 : Analyse de la désorientation au niveau d'un pore : (a) image en électrons secondaires (à 70° d'inclinaison), (b) carte EBSD d'orientation correspondante (le code couleur indique l'écart par rapport à l'orientation moyenne du grain bleu) et (c) carte en « Band Slope ».

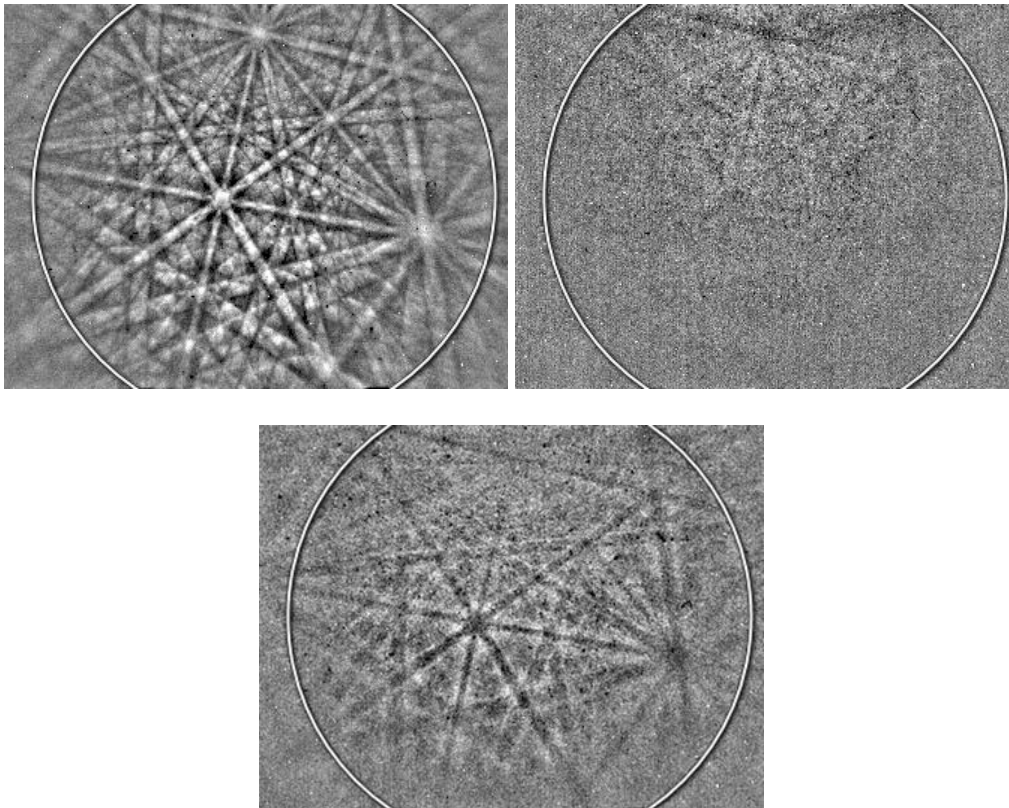


Figure III.3 : Diagrammes de diffraction acquis (a) dans le grain, (b) au niveau du bord inférieur et (c) du bord supérieur du pore présenté dans la figure III.2.

Une procédure spécifique a été développée à cet effet. Elle consiste à attribuer le statut « non indexé » aux points mesurés ou indexés à proximité immédiate et dans les pores.

Pour détecter correctement l'emplacement des pores dans les cartes EBSD, la fonction « Band Slope » (BS) du logiciel de traitement des cartes EBSD Channel 5 a été exploitée. Le BS est un paramètre calculé pour chaque cliché EBSD, à partir des bandes détectées en appliquant la transformée de Hough. Ses valeurs sont comprises entre 0 et 255, pour une visualisation en niveaux de gris sur une carte EBSD. Ce paramètre s'appuie sur le profil d'intensité de diffraction entre les bords de la bande : plus la variation de l'intensité est importante, plus la valeur du BS est élevée. Sa valeur moyenne au niveau des pores et dans la matrice d' UO_2 est significativement différente (voir la figure III.2c), ce qui va permettre de détecter les pores par seuillage.

Pour nos conditions d'acquisition des cartes EBSD, le seuil a été fixé à 150. Les pixels qui ont un BS en dessous de 150 ont été affectés à l'état « non indexé ». La plupart correspondent aux pores, mais certains sont des pixels situés au niveau des joints de grains de l' UO_2 . Un traitement additionnel des données avec le logiciel Channel 5 (basé sur des fonctions de type « erode » et « dilate » classiquement utilisées en analyse d'image) permet de reconstruire localement les joints de grains affectés par ce seuillage sans modifier les contours des pores. Cette procédure de correction des données EBSD est applicable à tout type de matériau poreux. Elle est systématiquement couplée à un « nettoyage » standard, déjà décrit dans le chapitre II (destiné à supprimer les erreurs d'indexation et à attribuer aux pixels non indexés isolés l'orientation de leurs premiers voisins).

III. 2. 3. 2. Filtrage des données

Après avoir supprimé l'indexation associée aux pores, nous avons appliqué un filtre local de type « Kuwahara » [Kuwahara 1976]. Ce filtre est classiquement utilisé en traitement d'image pour atténuer le bruit tout en conservant les contours des objets. Appliqué aux données EBSD, il permet de réduire les variations d'orientations aléatoires à la limite de la précision de la technique EBSD (variation appelée dans la suite : bruit de mesure ou bruit d'orientation) tout en conservant des variations d'orientations du même ordre de grandeur mais formant des lignes continues (pouvant correspondre à de vrais sous-joints de très faibles désorientations) [Humphreys 2001^b].

Ce filtre a été développé dans le logiciel Atom [Beausir 2015]. Il consiste à appliquer un « kernel » de 5x5 pixels sur toute la carte EBSD (voir figure III.4). Ce noyau est ensuite divisé en quatre régions de 3x3 pixels (chacune correspondant à un de ses coins) dans lesquelles la désorientation entre les neuf pixels est calculée. Le pixel central du kernel se voit ensuite attribuer l'orientation moyenne de la région qui présente le plus petit écart de désorientation. Ce filtre réduit efficacement le bruit d'orientation de la carte EBSD tout en préservant des lignes de désorientations continues.

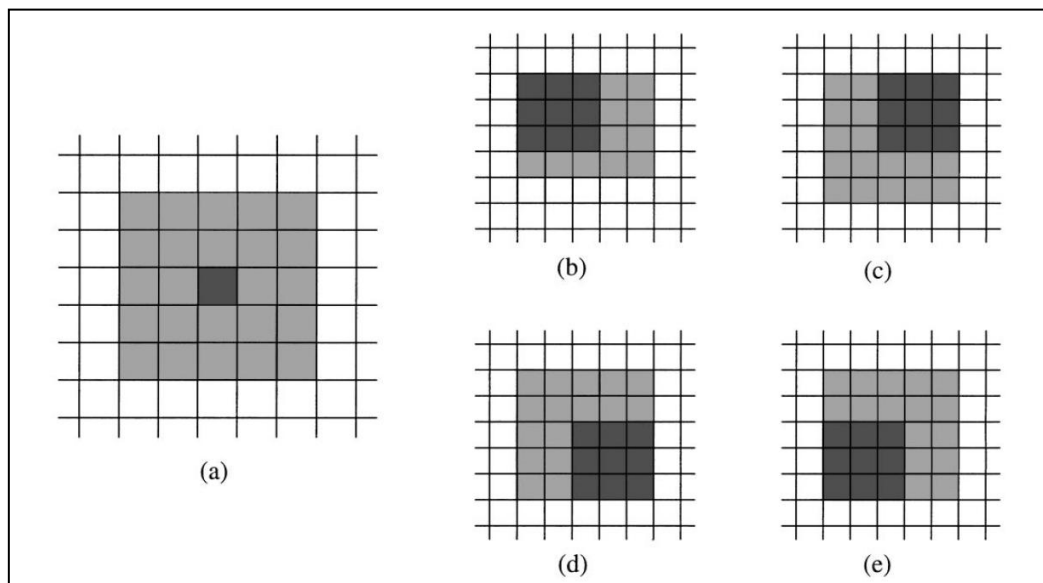


Figure III.4 : *Stratégie du filtre « Kuwahara » : une région (ou un kernel) de 5 x 5 pixels est utilisée. Elle est colorée en gris clair dans (a), le pixel central en cours de traitement étant coloré en noir. Quatre sous-régions, présentées en noir dans (b - e), sont considérées. La sous-région la plus faiblement désorientée est retenue : son orientation moyenne est attribuée au pixel central.*

III. 3. « A-ECCI » Méthode innovante d'analyse des dislocations dans l' UO_2 massif

III. 3. 1. Principe de la technique « Accurate-ECCI »

L'imagerie par contraste de canalisation des électrons (ou ECCI pour Electron Channeling Contrast Imaging) présente une alternative efficace à la MET pour imager les défauts cristallins comme par exemple des dislocations proches de la surface d'un échantillon massif.

Elle est basée sur la forte dépendance du rendement en électrons rétrodiffusés à l'égard de l'orientation du cristal par rapport au faisceau d'électrons incident. La canalisation des électrons se produit en effet au voisinage de la condition de Bragg pour une famille de plans réticulaires (hkl)

donnée, comme l'illustre la figure III.5. Pour une incidence θ faiblement positive par rapport à l'angle de Bragg θ_B ($\theta - \theta_B > 0$), le rendement en électrons rétrodiffusés passe par un minimum et le cristal imagé dans ces conditions apparaît très sombre. La présence d'un défaut comme une dislocation qui déforme le cristal en son voisinage va perturber cette situation et l'intensité BSE augmente localement, ce qui conduit à une mise en contraste du défaut [Kriaa 2017]. C'est la raison pour laquelle les dislocations imagées en ECCI apparaissent comme des lignes blanches sur un fond noir. Ces lignes sont les projections (ou traces) des dislocations sur la surface de l'échantillon.

Cependant, pour obtenir le meilleur contraste possible des défauts en MEB, il est nécessaire de contrôler parfaitement l'orientation du cristal par rapport au faisceau d'électrons incidents afin de satisfaire les conditions strictes de la canalisation des électrons pour les plans (hkl) souhaités. Le seul moyen d'y parvenir en MEB est d'utiliser les techniques permettant de déterminer l'orientation d'un cristal, à savoir : l'EBSD, l'ECP (Electron Channeling Pattern) ou le SACP (Selected Area Channeling Pattern).

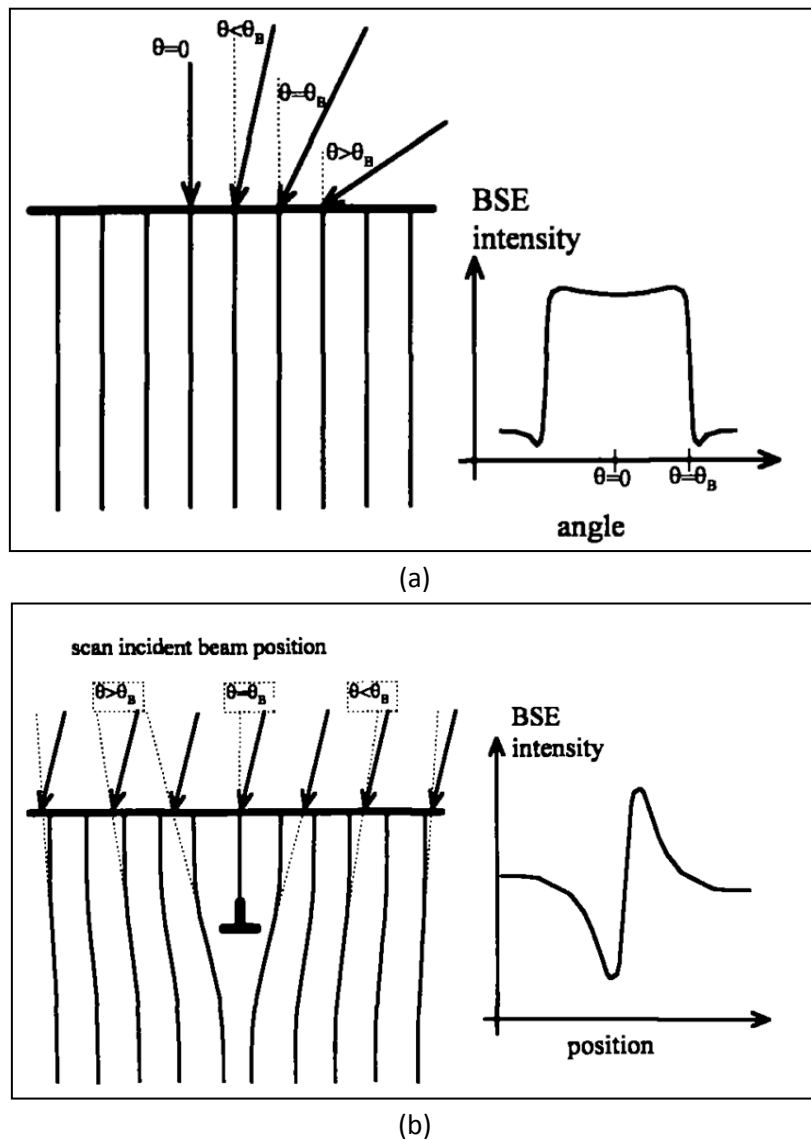


Figure III.5 : (a) Représentation schématique de la variation de l'intensité rétrodiffusée en fonction de la déviation par rapport à la condition de Bragg, (b) perturbation des conditions de canalisation par la présence d'une dislocation [Wilkinson 1997].

III. 3. 2. Détermination de l'orientation précise du cristal : ECP et SACP

L'ECCI mise en œuvre au LEM3 correspond à la configuration dite Low-tilt, c.à.d. que la collection du signal se fait sur le détecteur d'électrons rétrodiffusés situé sous la pièce polaire du MEB. Ceci nécessite d'accéder à l'orientation du cristal cible à plat, dans le repère du microscope. Dans ce cas, la précision offerte par l'EBSD n'est pas suffisante et seules les techniques ECP ou SACP sont à même de fournir cette orientation avec une résolution meilleure que $0,1^\circ$ par rapport au faisceau incident ou à l'axe du microscope.

Réaliser un ECP est assez simple en soi : il suffit de balayer à très faible grandissement la surface d'un monocristal ou d'un gros grain par le faisceau d'électrons et d'enregistrer le signal BSE correspondant. Le cliché pseudo-Kikuchi obtenu permet de déterminer l'orientation du cristal très précisément comme un cliché Kikuchi en EBSD. Hélas, cette technique n'est pas adaptée aux polycristaux à grains submillimétriques. Pour amener l'ensemble des plans en situation de diffraction et donc aboutir à la construction d'un ECP à partir d'une petite zone de l'échantillon, un mode original de précession du faisceau électronique (Rocking Beam) a été développé au LEM3 [Guyon 2015]. Il permet la collection de clichés haute résolution « HR-SACP » avec des résolutions : angulaire de l'ordre de $0,1^\circ$ et spatiale meilleure que 500 nm. Ils sont collectés sur le détecteur BSE placé sous la pièce polaire (Figure III.6).

Comme l'ouverture angulaire de ces clichés pseudo-Kikuchi HR-SACP (Figure III.7a) est très faible (de l'ordre de 4°), ils sont superposés sur des clichés Kikuchi simulés indexés d'ouverture angulaire bien plus importante. C'est ainsi que l'orientation du cristal est établie avec une très grande précision [Mansour 2014]. Selon les matériaux et la complexité des clichés, il peut être fait appel à une simulation dynamique pour être en mesure de retrouver sur le cliché simulé la zone correspondant au HR-SACP.

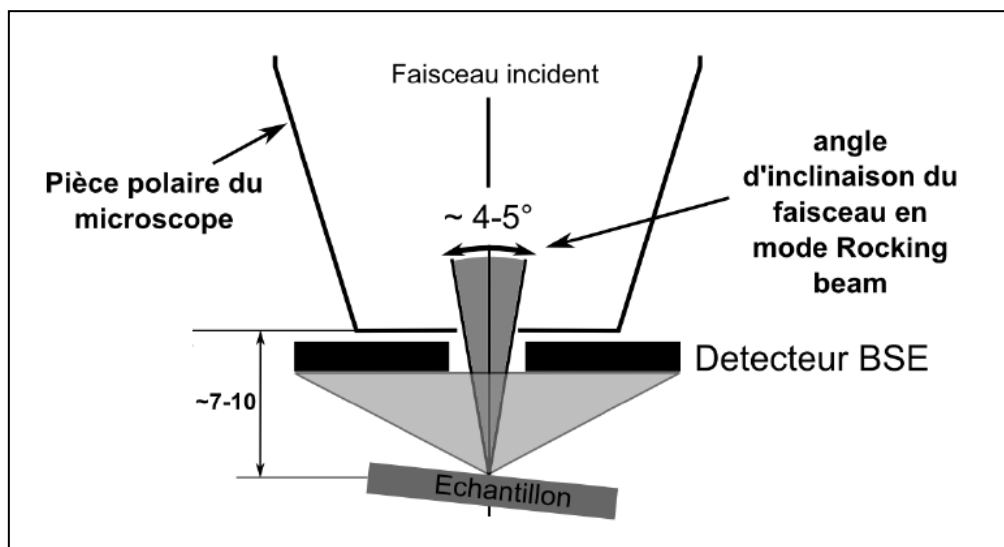


Figure III.6: Schéma de la configuration expérimentale du rocking beam dans la chambre du MEB. Le signal est collecté sur le détecteur BSE placé sous la pièce polaire. Ce même détecteur sert à collecter les images ECCI.

Les figures III.7b et c montrent respectivement les simulations dynamique et cinématique des bandes de Kikuchi à 0° (obtenue avec le logiciel "Esprit DynamicS" de Bruker en entrant les angles d'Euler donnant l'orientation du cristal [Winkelmann 2007]). Alors qu'il est difficile de localiser sans

ambiguïté le HR-SACP sur la simulation cinématique, la simulation dynamique reproduit mieux la distribution de l'intensité expérimentale et permet de localiser précisément l'emplacement du HR-SACP. Il est ensuite indexé manuellement. La croix verte au centre du cliché (Figure III.7a) correspond à l'axe du microscope et donne l'orientation du cristal.

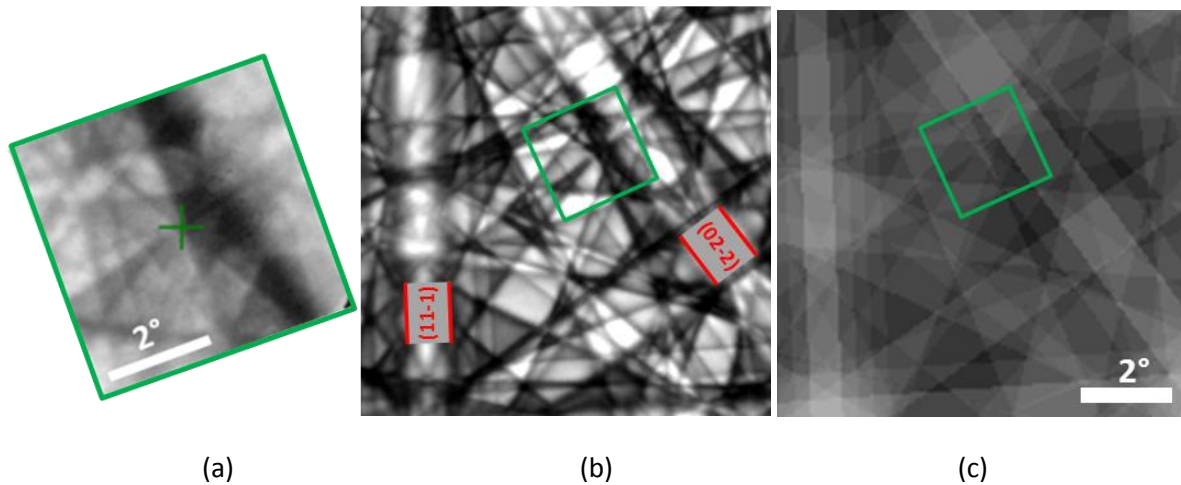


Figure III.7 : (a) Cliché HR-SACP collecté dans un cristal d' UO_2 à plat, (b) Simulations dynamique et (c) cinématique à 0° d'inclinaison obtenues connaissant les angles d'Euler relatifs à l'orientation du cristal déterminée par EBSD. La croix verte dans le HR-SACP indique la position de l'axe optique du microscope.

Grâce à cette méthode, les conditions de canalisation des électrons sont contrôlées de façon très précise et permettent alors de générer des images de contraste des défauts de très grande finesse justifiant l'appellation « Accurate-ECCI » (A-ECCI), pour la procédure mise au point au LEM3. L'acquisition des images A-ECCI est réalisée sur le détecteur BSE au même titre que celle des clichés HR-SACP. La sélection d'une condition de canalisation est réalisée en alignant le faisceau direct sur un bord de bande (hkl). Pour cela, l'échantillon subit une rotation et/ou une inclinaison. Un autre HR-SACP est collecté pour contrôle et si la condition $g(hkl)$ souhaitée est atteinte, il est aisé de basculer de ce mode au mode A-ECCI en imageant en BSE tout simplement la zone de présence des défauts. Dans ce mode de travail dit « Low-tilt », les inclinaisons du faisceau accessibles (inférieures à 30°) dépendent de la distance de travail qui est de l'ordre de 7 mm dans notre cas. Le détecteur BSE utilisé a quatre quadrants de diode en silicium et possède un diamètre égal à 10 mm. La tension de travail est toujours fixée à 20 kV et le diaphragme est de diamètre 30 μm (c'est le diaphragme central de la colonne).

En résumé la procédure d'acquisition des images A-ECCI nécessite le respect des étapes suivantes :

1. détermination approximative de l'orientation (angles d'Euler ϕ, ϕ_1, ϕ_2) de la zone d'intérêt par acquisition d'une carte EBSD,
2. connaissant (ϕ, ϕ_1, ϕ_2), simulation d'un cliché Kikuchi à 0° ,
3. positionnement à plat de l'échantillon sous la pièce polaire et acquisition d'un HR-SACP,
4. superposition du HR-SACP sur le Kikuchi simulé pour lecture de l'orientation précise,
5. orientation du cristal pour atteindre les conditions de canalisation souhaitées,
6. acquisition de micrographies A-ECCI pour visualiser les dislocations ou réseaux formant les sous-joints de grains.

Remarque concernant l'acquisition de données hors des locaux du CEA :

Il n'a été possible d'appliquer la technique A-ECCI que sur un nombre restreint d'échantillons des deux lots de fabrication. En effet, le transport et la manipulation d'échantillons à base d'uranium répondent à une réglementation stricte. Pour s'y conformer, le laboratoire LEM3 a effectué des démarches de demande d'autorisation de détention et manipulation de matière nucléaire qui ont pris environ une année et ont abouti à une autorisation limitée à la détention de 10 g d'uranium appauvri au maximum (ce qui représente environ cinq échantillons correspondant à des coupes longitudinales de pastilles). A cela se sont ajoutées les contraintes liées au transport des échantillons. Tous ces facteurs nous ont limités à la caractérisation par ECCI d'un nombre restreint d'échantillons d' UO_2 .

III. 4. Exemple d'application à l' UO_2 déformé - Validation de la méthodologie

III. 4. 1. Carte EBSD en mode « résolution angulaire améliorée » pour la détection de sous-joints désorientés jusqu'à $0,1^\circ$

La procédure décrite dans les paragraphes précédents pour acquérir et pré-traiter les données EBSD est à présent appliquée à un échantillon d' UO_2 afin d'évaluer son apport dans la détection de sous-joints de très faible désorientation. En raison des délais d'autorisation que nous venons d'évoquer, l'échantillon utilisé pour tester notre méthodologie provient d'une étude antérieure à la nôtre [Ndiaye 2012]. Il provient d'un lot de pastilles fabriquées à partir d'une poudre d' UO_2 élaborée par voie sèche. Ces pastilles font 12 mm de hauteur et 8 mm de diamètre et ont une densité hydrostatique relative correspondant à 98,6% de la densité théorique de l' UO_2 . La taille moyenne des grains déterminée par EBSD est de l'ordre de 20 μm . Une pastille de ce lot a été déformée par fluage sous 50 MPa à 1500°C , ce qui correspond au domaine de fluage dislocationnel pour cette microstructure. Le taux de déformation atteint en fin d'essai est d'environ 8%. Un petit échantillon (de masse inférieure à 60 mg, pour des raisons d'autorisation de transport) a été découpé dans la zone la plus déformée de la pastille. La caractérisation par MEB de sa microstructure montre la présence de cavités inter-granulaires.

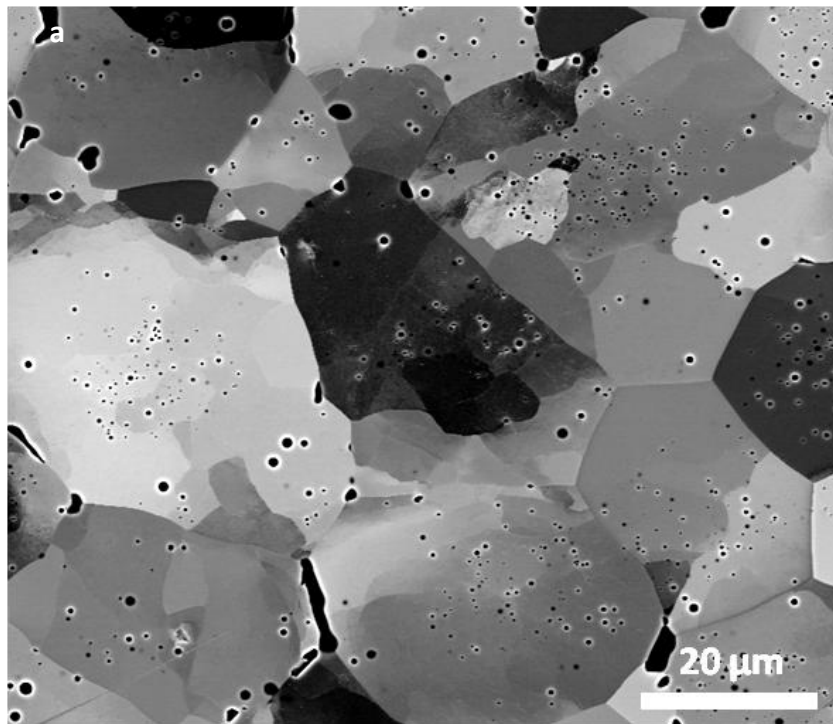
Une zone d'intérêt, présentée par la micrographie BSE de la figure III.8a, a été choisie sur cet échantillon. Sur cette zone, une carte EBSD ($103 \mu\text{m} \times 95 \mu\text{m}$) a été acquise avec un pas de $0,15 \mu\text{m}$, en utilisant le mode « résolution améliorée » pour l'analyse des clichés de Kikuchi. La figure III.8b présente la carte de désorientation angulaire obtenue à partir des données brutes, tandis que la figure III.8c correspond à la carte de désorientation obtenue après pré-traitement (correction et filtrage). Le code de couleurs associé aux angles de désorientations est indiqué figure III.8. Les lignes de très faibles désorientations (respectivement comprises entre $[0,25^\circ-0,5^\circ]$ et $[0,1^\circ-0,25^\circ]$) sont respectivement tracées en jaune et en blanc. Ces valeurs sont en-dessous de la résolution angulaire de la technique EBSD en mode standard (de l'ordre du 1°).

La comparaison entre la micrographie et la carte EBSD brute (Figures III.8a et b) montre que la plupart des pores visibles en imagerie BSE ont été indexés, conduisant à des désorientations artificielles avec les pixels voisins. Le seuillage des données par le BS permet de reconstruire correctement la plupart des pores, en termes d'emplacement et de taille et limite également les désorientations artificielles dans leur voisinage (Figures III.8c).

Sur la figure III.8b, seules les lignes blanches de très faibles désorientations (comprises entre $[0,1^\circ-0,25^\circ]$) sont souvent aléatoirement distribuées dans les grains. Elles correspondent au bruit de

mesure lié à la précision de la détermination de l'orientation et ne traduisent pas la présence de sous-joints. Nous pouvons donc estimer qu'avec nos paramètres d'acquisition des données EBSD, les sous-joints désorientés d'au moins $0,25^\circ$ se détachent du bruit de mesure, en ce qui concerne les données brutes.

Il existe tout de même sur la carte EBSD (figure III.8b), des lignes blanches, continues qui semblent révéler des sous-joints désorientés du même ordre de grandeur que notre bruit de mesure. Le filtrage des données (figure III.8c) permet de mieux les mettre en évidence, en réduisant les désorientations aléatoires correspondant au bruit de mesure et en conservant les désorientations du même ordre de grandeur formant des lignes continues. Les sous-joints mis en évidence après filtrage peuvent être comparés à ceux révélés par les variations de contraste en imagerie BSE. Ces sous-joints coïncident très bien avec ceux visibles sur l'image BSE (Figures III.8a et c). La plupart des lignes de désorientation comprises entre $0,1^\circ$ et $0,25^\circ$ (en blanc sur les données filtrées) correspondent bien à des sous-joints. La comparaison des figures III.8b et c illustre donc l'apport du pré-traitement développé dans cette étude. Au final, après filtrage, les sous-joints désorientés jusqu'à $0,1^\circ$ sont identifiables au niveau de la carte EBSD.



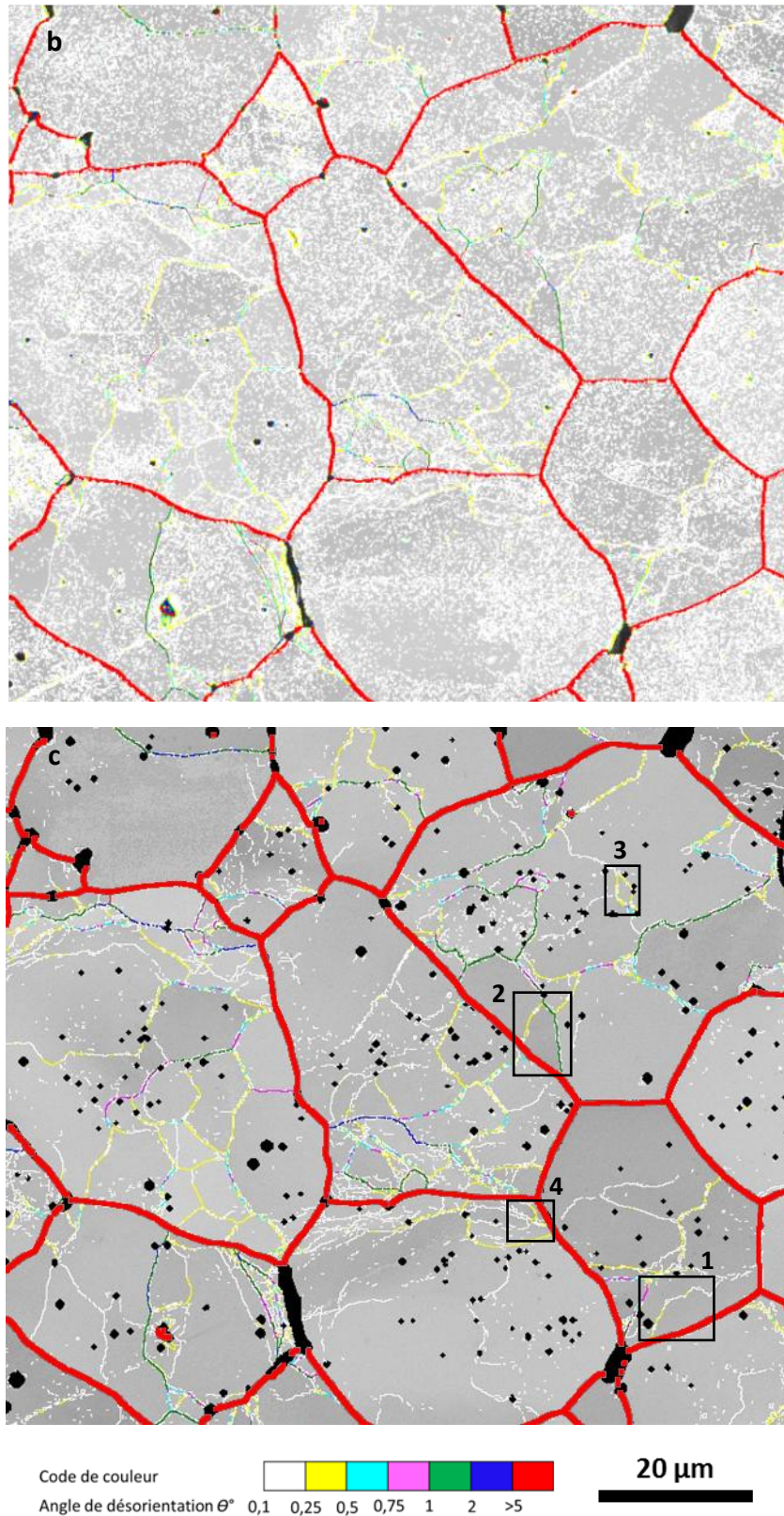


Figure III.8 : Illustration de notre méthodologie pour mettre en évidence par EBSD des sous-joints de grains dans un échantillon d' UO_2 déformé à 8% par fluage dislocationnel : (a) micrographie BSE, (b) et (c) cartes EBSD correspondantes, respectivement brute et pré-traitée. Le fond en niveaux de gris des cartes correspond à l'indice de qualité des clichés de diffraction et les points non indexés sont en noir.

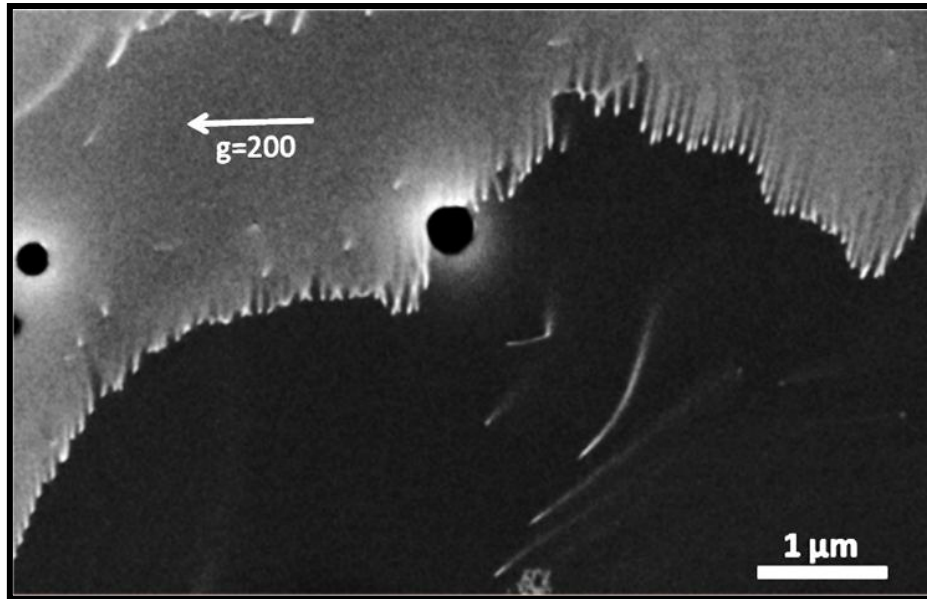
Généralement, les données d'orientations obtenues par EBSD à partir d'une transformée de Hough présentent une résolution angulaire de l'ordre de 0,5° à 1,5°, selon le matériau utilisé et les paramètres d'acquisition [Winkelmann 2007]. Il faut cependant noter qu'il n'existe pas une méthode de « référence » pour évaluer la résolution angulaire des données EBSD. Par conséquent, les différentes valeurs publiées sont souvent difficilement comparables.

L'EBSD Haute Résolution Angulaire (HR-EBSD) a été développé pour évaluer les contraintes locales à l'échelle d'un grain à partir de la mesure des déformations locales. Elle permet d'obtenir une résolution angulaire significativement meilleure [Wilkinson 2006, Maurice 2008, Britton 2010, Maurice 2013]. La technique est basée sur la comparaison entre deux diagrammes EBSPs. La transformation entre ces deux diagrammes est évaluée par corrélation croisée de plusieurs régions d'intérêt. Cette transformation est interprétée en termes de translation de la position du faisceau et de distorsion du réseau (déformation + rotation). De très petites distorsions peuvent être mesurées et une précision théorique d'environ 10^{-4} rad (0,006°) peut être atteinte sur l'orientation. En pratique, une désorientation d'environ 0,1° a été mesurée dans un superalliage à base nickel à l'aide de cette technique [Maurice 2013]. Pour atteindre la précision ultime en HR-EBSD, les clichés EBSD doivent être de haute qualité et ceci peut être obtenu seulement avec un temps d'exposition long (au moins 1 s par point) et sans binning. Ces conditions d'acquisition présentent l'inconvénient d'induire de la contamination et de la dérive lorsque l'on acquiert des cartes EBSD sur un large champ. L'augmentation du pas de la carte EBSD peut offrir une solution, par contre elle réduit la résolution spatiale des données.

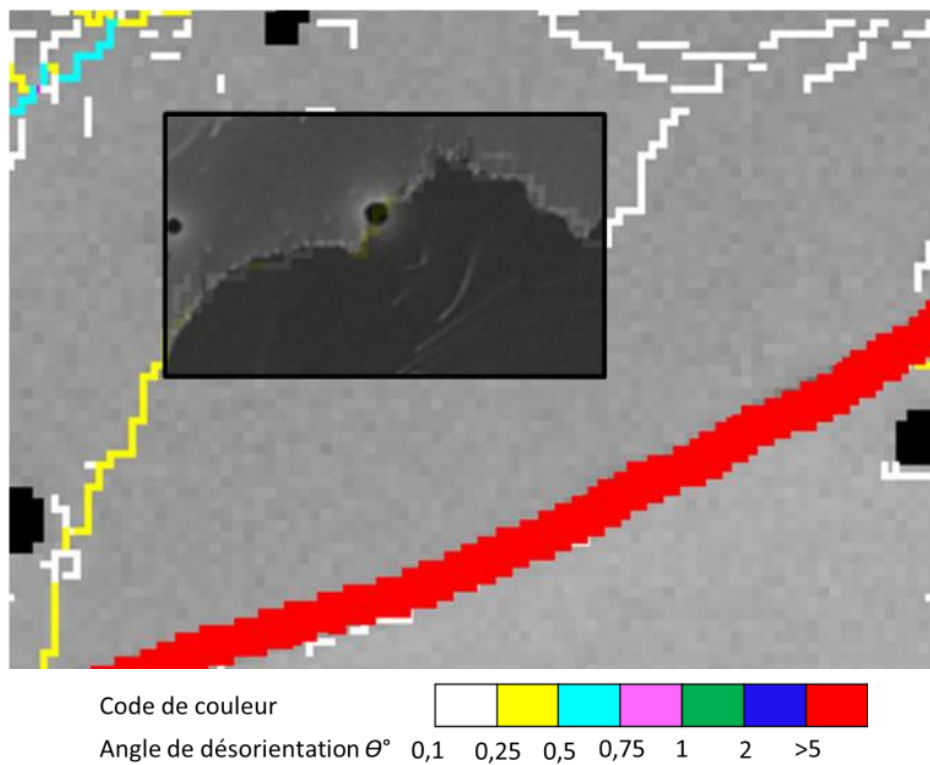
La stratégie d'indexation que nous avons appliquée est inspirée par l'approche « transformée de Hough 3D » développée par Maurice et Fortunier [Maurice 2008]. Elle est basée sur le fait que les bords des bandes de Kikuchi sont des hyperboles (légèrement courbées) et non des droites. En principe, le traitement des bandes avec la formule mathématique des coniques permet d'utiliser plus d'informations présentes dans l'EBSP (voir la référence [Maurice 2008] pour plus de détails sur cette approche). Par conséquent, une résolution angulaire théorique de $5 \cdot 10^{-5}$ rad (0,003°) est attendue [Maurice 2008]. Sur des échantillons d'UO₂, avec une vitesse d'acquisition d'environ 0,05 s par point (20 fois plus élevée que la vitesse classique utilisée pour le HR-EBSD), une résolution angulaire d'au moins 0,1° a été obtenue après filtrage. Ainsi, la méthode proposée fournit une réelle alternative pour quantifier avec précision des sous-joints de grains de faible désorientation (jusqu'à 0,1°). Elle assure un bon compromis entre le pas de la carte EBSD, la taille du champ, et le temps d'acquisition.

III. 4. 2. Analyse par ECCI des arrangements de dislocations en sous-joints

Les différentes zones comprenant des sous-grains, encadrées en noir sur la carte EBSD de la figure III.8c, ont également été analysées par A-ECCI. Les images ECCI correspondantes sont présentées sur les figures III.9 à III.11. Elles montrent différents arrangements de dislocations dans ces sous-joints de très faibles angles de désorientation ainsi que des dislocations de matrice.



(a)



(b)

Figure III.9 : (a) Micrographie A-ECC d'un sous-joint de très faible désorientation (correspond au cadre 1 dans la figure III.8c) et (b) sa superposition sur la carte EBSD de la figure III.8c.

Tout d'abord, ces images ECC confirment clairement que les lignes de très faible angle de désorientation détectées par EBSD sont réelles et correspondent bien à des sous-joints formés par des arrangements de dislocations particuliers. La figure III.9a présente un exemple typique d'image ECC acquise sur une zone contenant une ligne désorientée de $0,1^\circ$ mesurée par EBSD (Figure III.9b).

La ligne de faible désorientation formant le sous-joint dans la carte EBSD se superpose parfaitement avec l'arrangement de dislocations révélé par A-ECCI.

La figure III.10a présente une image ECC de différents sous-grains séparés par des sous-joints soit de très faible ($<1^\circ$, en jaune) ou de faible angle de désorientation ($1^\circ < \theta < 5^\circ$, en vert). Elle met en évidence une transition entre les sous-joints très faiblement désorientés présentant des dislocations régulièrement et suffisamment espacées pour être discernables et ceux, un peu plus désorientés, où les dislocations ne peuvent plus être distinguées (en tout cas, à l'échelle du MEB). La désorientation d'un sous-joint est en fait liée à l'espacement entre les dislocations. Pour un modèle de sous-joint de flexion (tilt) formé par des dislocations coin, l'angle de désorientation (θ) est relié à l'espacement (D) entre les dislocations par la formule suivante [Read 1953] (valable pour une faible désorientation) :

$$\theta = \frac{|b|}{D} \quad (\text{III.1})$$

où b est le vecteur de Burgers ($b = a / 2 \langle 110 \rangle$, $|b| = 0,387 \text{ nm}$ pour l' UO_2). Le sous-joint coloré en jaune, entre les sous-grains 1 et 2, est caractérisé par une désorientation moyenne de $0,36^\circ$ mesurée par EBSD. L'espacement entre les dislocations qui le forment serait de 61 nm , d'après la formule précédente, dans l'hypothèse d'un sous-joint tilt. Ceci est très proche de l'espacement entre les traces des dislocations sur la surface, mesuré à partir de l'image A-ECC, qui est de l'ordre de 57 nm (Figure III.10a). Cependant une analyse plus détaillée de la nature des dislocations constituant ce joint est nécessaire pour le caractériser pleinement.

Le sous-joint vert qui sépare les sous-grains 2 et 3 est, quant à lui, désorienté de $1,6^\circ$ et les dislocations individuelles qui le composent ne sont plus visibles (Figure III.10). D'après notre expérience des images ECCI sur l' UO_2 , les dislocations peuvent être distinguées individuellement dans les sous-joints dont la désorientation est inférieure ou égale à environ $0,8^\circ$ (ce qui correspond à un espacement entre les dislocations de 27 nm , pour un joint purement tilt).

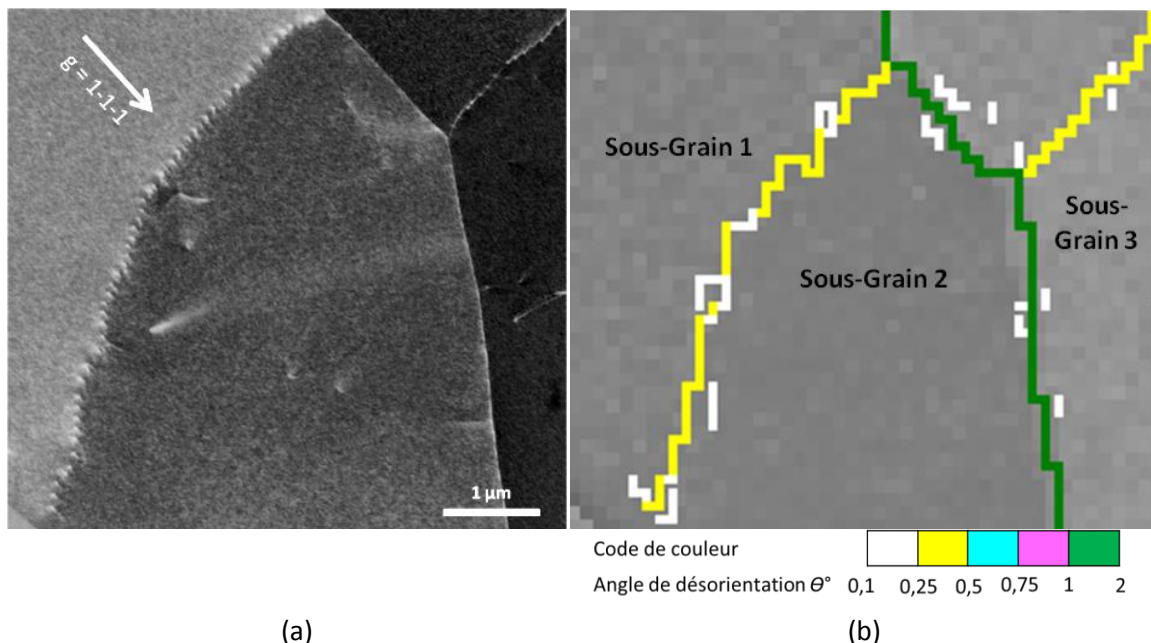


Figure III.10 : (a) Micrographie A-ECCI de deux sous-joints de grains de faible désorientation, (b) carte EBSD correspondante (correspond au cadre 2 dans la figure III.8c). Leurs angles de désorientations valent respectivement $0,36^\circ$ (en jaune) et $1,6^\circ$ (en vert).

Les micrographies A-ECC montrent que la plupart des dislocations induites par la déformation sont organisées sous forme de sous-joints et que seul un nombre limité de dislocations de matrice (isolées) est présent à l'intérieur des sous-grains (certaines sont visibles sur les figures III.9a et III.10a). De plus, la majorité de ces sous-joints présentent des arrangements de dislocations correspondant à des configurations de faible énergie. Les figures III.11a et b illustrent le cas d'un sous-joint facetté dont la désorientation varie entre $0,33^\circ$ et $0,74^\circ$. La figure III.11c présente, quant à elle, un sous-joint formé par un réseau régulier de dislocations, dont la désorientation est de l'ordre de $0,1^\circ$.

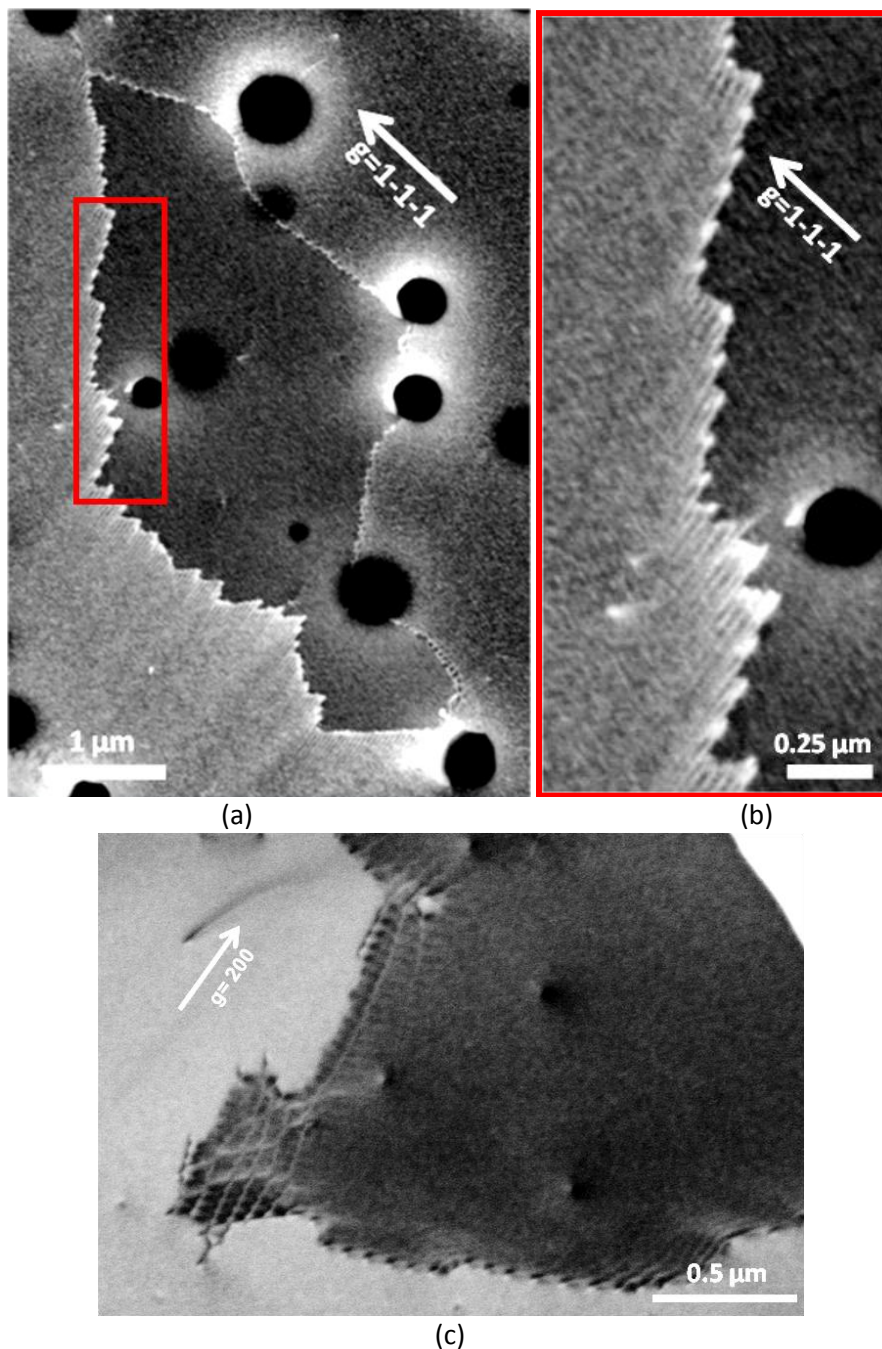


Figure III.11 : Micrographies A-ECC montrant différents types d'arrangements de dislocations (a-b) organisées en sous-joints facettés correspondant à des désorientations de $0,33^\circ$ à $0,74^\circ$ (correspond au cadre 3 dans la figure III.8c), (c) Réseau de dislocations correspondant à un angle de désorientation variant entre $0,1^\circ$ et $0,5^\circ$ (correspond au cadre 4 dans la figure III.8c).

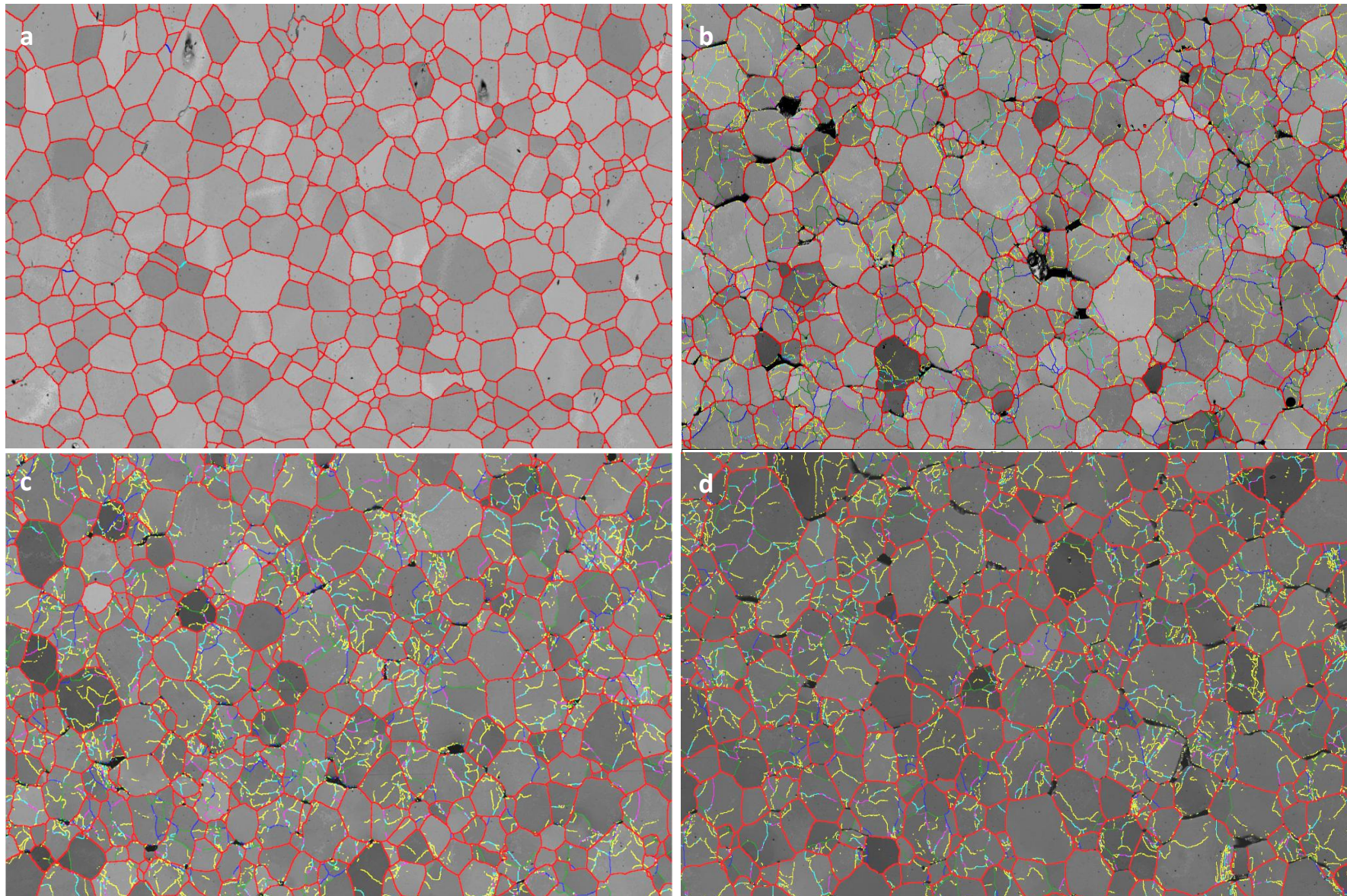
En général, les sous-joints de ce type sont constitués de réseaux intégrant différents ensembles de dislocations vis. Si leurs vecteurs de Burgers sont orthogonaux, alors les dislocations n'interagissent pas forcément et les lignes des dislocations forment un réseau carré dans le plan du joint de grain. Si leurs vecteurs de Burgers peuvent interagir pour former un troisième vecteur de Burgers alors les dislocations produisent un réseau hexagonal [Friedel 1964]. Ces différentes configurations ont déjà été observées par MET dans de l' UO_2 testé en fluage [Dherbey 2002]. Dans ce matériau, les réseaux hexagonaux sont interprétés comme résultant du glissement de dislocations vis $\langle 110 \rangle$ dans les plans $\{001\}$ et de leur interaction, qui donne lieu à du glissement dévié dans les plans $\{111\}$. Généralement, ces structures de sous-joints de grains organisés sont supposées être obtenues par montée des dislocations hors de leur plan de glissement [Friedel 1964]. Ce mécanisme est compatible avec la température élevée de l'essai du fluage (1500°C) qui permet une diffusion rapide.

III. 5. Analyse quantitative par EBSD de la sous-structure induite par fluage : cartes EBSD "larges"

L'objectif de cette partie (et de la partie suivante) est de disposer d'indicateurs pour quantifier la sous-structure de déformation de l' UO_2 et comparer son évolution pour différentes conditions de déformation. Par conséquent, les grandeurs telles que la fraction linéaire de joints et de sous-joints de grains, la taille moyenne des sous-grains, la densité de Dislocations Géométriquement Nécessaires (GNDs) (détaillée en partie III.6) sont déterminées à partir des cartes EBSD. Ces grandeurs ont été déduites de cartes EBSD « larges » pour obtenir des résultats quantitatifs statistiquement significatifs, relatifs à la sous-structure qui se développe dans l' UO_2 pendant le fluage. Ces paramètres sont susceptibles d'être également utilisés à l'avenir pour la modélisation micromécanique du comportement en fluage de l' UO_2 [Soulacroix 2013, Portelette 2017].

Les échantillons étudiés dans cette partie appartiennent au même lot de pastilles que celui présenté dans le paragraphe III. 4. 1. Les figures III.12a, b, c et d présentent les cartes EBSD obtenues sur l'échantillon de référence, non déformé, (une seule carte nommée R) et sur l'échantillon déformé (3 cartes nommées D1, D2 et D3). Elles ont été acquises en mode résolution améliorée et ont subi un pré-traitement, comme décrit précédemment dans le paragraphe III. 2. 3. Elles ont une taille de 500 x 344 μm .

Le même code de couleur que celui utilisé dans la figure III.8 est appliqué pour les désorientations représentatives des joints et sous-joints de grains, mais la plus petite classe de désorientations ($\theta < 0,25^\circ$) n'est pas considérée. En effet, nous avons constaté que dans les cartes EBSD étendues, cette classe de désorientations est associée non seulement à des sous-joints induits par le fluage, mais aussi à des lignes de désorientations induites par des rayures provenant du polissage mécanique de l'échantillon, qu'il est difficile de discriminer. En outre, ces cartes étant acquises avec un pas plus grand (0,4 μm), les pores sont moins bien résolus et, par conséquent, le bruit de mesure induit autour d'eux ne peut pas être complètement éliminé.



Code de couleur



Angle de désorientation θ° 0,25 0,5 0,75 1 2 >5

100 μm

Figure III.12 : Cartes EBSD de désorientation (superposées aux cartes en indice de qualité de diffraction) acquises sur :
 (a) l'échantillon de référence (nommé R) et sur (b-d) 3 zones différentes de l'échantillon déformé à 1500°C (nommées D1, D2 et D3).
 Les données des cartes EBSD sont pré-traitées .

III. 5. 1. Estimation du niveau de désorientation lié au bruit de mesure sur cartes EBSD étendues

Le bruit de désorientation présent dans les cartes EBSD larges a tout d'abord été évalué. Ce bruit intègre la variation d'orientation due à la précision de mesure des orientations mais également les aspects plus spécifiques liées aux cartes larges : une probabilité plus importante d'avoir des artefacts de préparation de surface et la présence de zones indexées au niveau des pores.

On note déjà que dans l'état de référence (figure III.12a), aucun grain ne présente de faibles désorientations intra-granulaires distribuées aléatoirement qui ne traduisent pas de vrais sous-joints mais du bruit de mesure (après correction et filtrage des données). Le niveau de bruit se situe donc en dessous de cette valeur ($0,25^\circ$) pour les données filtrées. Pour le déterminer de façon plus quantitative, nous avons évalué la dispersion d'orientations au sein des grains non déformés de l'échantillon de référence (seuls les grains ayant un diamètre circulaire équivalent supérieur à $5\ \mu\text{m}$ ont été considérés). Pour chaque grain détecté, nous avons calculé à partir de toutes les orientations mesurées dans le grain :

- l'orientation moyenne du grain,
- « the Average Grain Orientation Spread » (A-GOS) : c'est la déviation moyenne de toutes les mesures par rapport à l'orientation moyenne du grain,
- « the Maximum Grain Orientation Spread » (M-GOS) : c'est l'écart maximal de toutes les mesures par rapport à l'orientation moyenne.

Le tableau III.1 donne les valeurs statistiques obtenues pour l'A-GOS et le M-GOS sur plus de 200 grains à partir des données EBSD pré-traitées (c. à. d corrigées puis filtrées) et non filtrées (c. à. d. corrigées seulement).

Tableau III.1 : Niveau de désorientation correspondant au bruit de mesure

	Données EBSD corrigées		Données EBSD corrigées et filtrées	
	A-GOS	M-GOS	A-GOS	M-GOS
N = 200 grains (diamètre moyen > $5\ \mu\text{m}$)				
Désorientation moyenne	$0,05^\circ$	$0,17^\circ$	$0,016^\circ$	$0,12^\circ$
Ecart type (σ)	$0,015^\circ$	$0,05^\circ$	$0,01^\circ$	$0,04^\circ$
Désorientation moyenne + 3σ	$0,1^\circ$	$0,32^\circ$	$0,05^\circ$	$0,25^\circ$

En considérant un intervalle de confiance de 3σ , on obtient respectivement pour les données **corrigées/pré-traitées** une valeur de l'A-GOS atteignant **$0,1^\circ/0,05^\circ$** et une valeur du M-GOS atteignant **$0,32^\circ/0,25^\circ$** . Ceci indique que le bruit d'orientation est **en moyenne** égal à **$0,1^\circ/0,05^\circ$** dans les cartes EBSD étendues mais qu'il peut atteindre localement **$0,32^\circ/0,25^\circ$** respectivement pour les données non filtrées et filtrées.

On peut donc conclure que, dans les cartes étendues, une désorientation locale supérieure à $0,25^\circ$, mesurée après correction et filtrage des données, a une forte probabilité d'être fiable, c'est-à-dire de correspondre à une désorientation réelle présente dans le grain étudié. Cette résolution

angulaire² est meilleure que celle obtenue jusqu'à aujourd'hui dans la littérature sur la plupart des matériaux et en particulier sur l'UO₂ pour une taille de champ analysé très proche [Iltis 2016].

III. 5. 2. Quantification des sous-joints de grains induits par fluage

La comparaison des cartes R, D1, D2 et D3 (Figure III.12) montre clairement la différence entre les états de référence et déformé. Un réseau de sous-joints de grains, de désorientations comprises entre 0,25° et 5°, apparaît dans les cartes acquises sur l'échantillon déformé. La plupart de ces sous-joints de grains ont un angle de désorientation inférieur à 1°. Cependant, certains sous-joints présentent des désorientations allant jusqu'à 5°.

Ce réseau a été quantifié en calculant les fractions linéaires des joints et des sous-joints de grains associés à différentes classes de désorientation : voir figure III.13. Sur cette figure, toutes les désorientations supérieures à 0,25° sont prises en compte et classées en quatre groupes : les sous-joints de grains de très faible désorientation (entre 0,25° et 1°), les sous-joints de grains de désorientation plus élevée (entre 1° et 5°), les joints de grains de faible désorientation (entre 5° et 15°) et les joints de grains de forte désorientation (supérieure à 15°). Afin d'alléger la suite du texte, nous avons choisi d'utiliser par la suite les abréviations suivantes : **JG** et **S-JG**, pour nommer respectivement les **Joints de Grains** et les **Sous-Joints de Grains**.

Dans l'échantillon de référence (carte R), la plupart des désorientations mesurées (96 %) sont supérieures à 15° et seulement 1,3 % sont inférieures à 5° : cet état caractérise la microstructure de l'UO₂ après frittage. Dans l'échantillon déformé (cartes D1, D2 et D3), la fraction de S-JG ayant une désorientation inférieure à 5° atteint 68 % (52 % pour ceux désorientés de moins de 1°). Notre approche est donc efficace pour suivre de façon quantitative, l'évolution de la fraction de sous-joints en fonction des conditions de déformation.

Il est important de noter que les trois cartes EBSD acquises sur l'échantillon déformé conduisent à des résultats très similaires. Ceci permet de conclure que la taille de champ choisie pour les cartes EBSD destinées à caractériser la sous-structure induite par déformation est suffisante et représentative. Bien évidemment, cela n'est vrai que pour des cartes EBSD acquises dans la partie centrale de la pastille, sachant que la déformation n'est pas homogène à l'échelle de la pastille entière. Ce point sera abordé plus en détail dans le chapitre suivant.

² Il faut cependant rappeler qu'il n'existe pas une méthode de référence pour évaluer la résolution angulaire des données EBSD. Par conséquent, les différentes valeurs publiées sont souvent difficilement comparables.

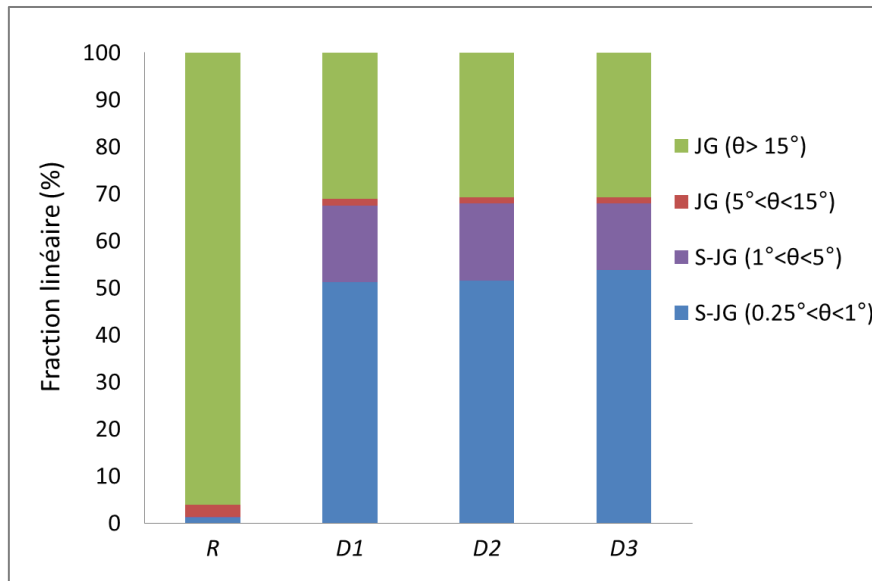


Figure III.13 : Fractions linéaires de joints et de sous-joints de grains (JG et S-JG), mesurées à partir des données EBSD pré-traitées dans l'échantillon de référence (R) et dans trois zones de l'échantillon déformé (D1, D2, D3).

III. 5. 3. Quantification de la taille moyenne des sous-grains

La polygonisation des grains de l'UO₂ déformé peut être quantifiée en identifiant les sous-grains à partir de la carte EBSD et en évaluant leur taille moyenne. La procédure classique de reconnaissance des grains (ou sous-grains) dans une carte EBSD consiste à regrouper les pixels désorientés de proche en proche de moins d'un angle seuil ω_0 . Cependant, une détection fiable de sous-grains délimités par des sous-joints de désorientation proche de la résolution angulaire de la carte nécessite une attention particulière. En effet, la procédure classique nécessiterait de choisir la valeur ω_0 près du bruit d'orientation, mais conduirait aussi à identifier les pixels bruités comme correspondant à des sous-grains. Inversement, l'augmentation de la valeur ω_0 aurait pour effet de regrouper deux sous-grains en un seul.

Pour surmonter ce problème, différentes procédures ont été développées pour optimiser la détection des sous-grains [Germain 2014]. Leur principe est le suivant : l'algorithme procède en deux étapes et définit une limite supérieure et une limite inférieure pour l'angle de seuil ω . La valeur supérieure est définie plus élevée que le bruit d'orientation et est utilisée pour identifier un premier ensemble de sous-grains. Cependant, ces sous-grains peuvent en fait regrouper plusieurs sous-grains (à cause de la valeur élevée du seuil supérieur). La deuxième étape vise à identifier en leur sein de nouveaux contours fermés. A partir d'une ligne de désorientation supérieure à ω_{sup} , l'algorithme cherche à fermer un contour en considérant les angles de désorientation jusqu'à la limite inférieure choisie. Parmi tous les sous-joints possibles, on retient celui qui a la désorientation moyenne maximale. Plus précisément, il s'agit du sous-joint dont la somme des angles de désorientations de chaque pixel divisée par le nombre de pixels est maximum.

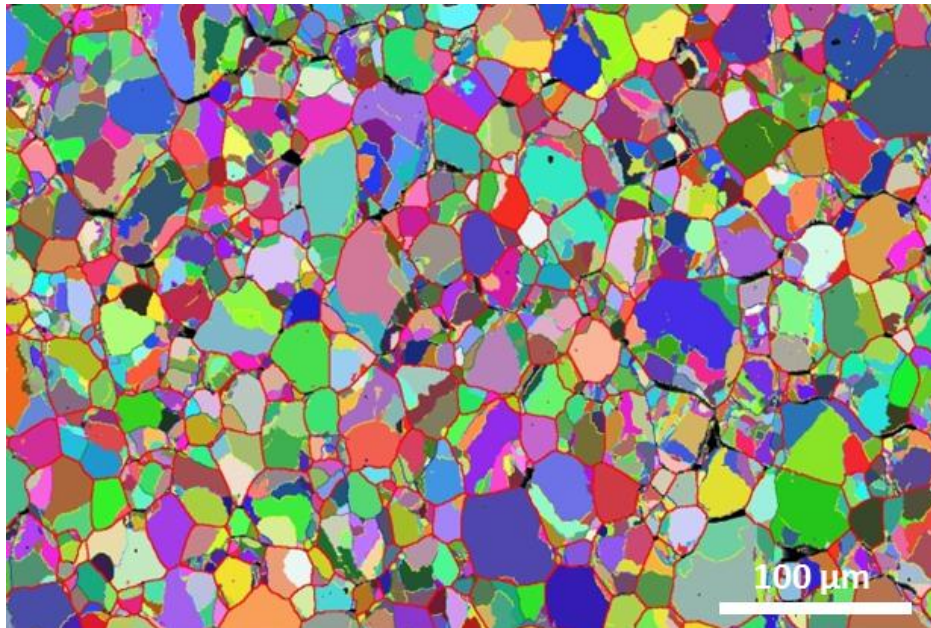


Figure III.14 : Identification des sous-grains qui apparaissent après fluage dans l'échantillon UO_2 déformé (carte EBSD D3) avec une procédure de détection optimisée. Les sous-grains sont colorés aléatoirement - Le code de couleur traduit les désorientations intra-granulaires et permet de valider les sous-grains identifiés.

Ce principe de détection des sous-grains a été appliquée sur les cartes EBSD acquises sur l'échantillon déformé (nous avons pour cela utilisé l'option « grain completion » du logiciel Channel 5). Un exemple de ces cartes est présenté sur la figure III.14 (carte D3). La valeur supérieure de l'angle ω a été fixée à $0,25^\circ$ et la valeur inférieure choisie est égale à 0° . Les sous-grains identifiés par cette procédure correspondent majoritairement aux contours fermés par des sous-joints. Les grains initiaux, qui ont une taille moyenne de l'ordre de $20 \mu\text{m}$, sont ainsi fragmentés en sous-grains d'une taille moyenne d'environ $5 \mu\text{m}$, comme l'illustre la figure III.14.

Au final, la procédure présentée ici apparait simple et fiable, pour quantifier la taille initiale des grains et la taille des sous-grains après la déformation.

III. 6. Evaluation de la densité des Dislocations Géométriquement Nécessaires

III. 6. 1. Considérations générales

Les dislocations peuvent être séparées en deux familles, les Dislocations Géométriquement Nécessaires (en anglais : Geometrically Necessary Dislocations (GNDs)) et les dislocations statistiquement stockées (en anglais : Statistically Stored Dislocations (SSDs)). Les GNDs sont des dislocations qui permettent d'accommoder une courbure de réseau [Nye 1953] induite par une déformation à l'échelle du cristal [Ashby 1970, Gao 2003]. Au contraire, les SSDs sont des dislocations qui n'ont aucun effet cumulatif sur la courbure du réseau cristallin lorsqu'elles sont considérées collectivement (par exemple des dislocations formant un dipôle).

Une partie de la densité de GNDs induite par la déformation peut être évaluée à partir des désorientations intra-granulaires mesurables par EBSD [Pantleon 2008]. Cependant, il est important

de souligner que la précision de la mesure d'une désorientation et la résolution spatiale d'une carte EBSD ont une influence directe sur l'évaluation de la densité de GNDs et la discrimination entre les GNDs et les SSDs.

Le calcul de la densité de GNDs s'appuie sur l'évaluation du tenseur α des densités de dislocations de Nye [Nye 1953] :

$$\alpha = \text{curl}(\varepsilon_e) + \text{tr}(\kappa)I - {}^t\kappa \quad (\text{III.2})$$

Le terme $\text{curl}(\varepsilon_e)$ sera négligé ici car la déformation élastique ε_e ne peut pas être extraite des cartes d'orientations. κ est le tenseur de courbure élastique de réseau, calculé à partir de la carte EBSD :

$$\kappa_{ij} \approx \frac{\Delta\theta_i}{\Delta x_j}, \forall i \in (1,2,3), \forall j \in (1,2) \quad (\text{III.3})$$

$\Delta\theta_i$ étant les composantes du vecteur de désorientation entre des points voisins séparés dans l'espace par Δx_j . A partir d'une carte EBSD 2D, seulement six composantes du tenseur de courbure élastique peuvent être déterminées ($j = 1, 2$) (la désorientation le long de la troisième direction, perpendiculaire à la carte EBSD, n'étant pas accessible).

III. 6. 2. Application du calcul des densités de GNDs aux données EBSD acquises sur l'UO₂

Le calcul des densités de GNDs a été appliqué sur les cartes EBSD étendues (sur les données corrigées et sur celles filtrées) acquises sur l'échantillon de référence et sur l'échantillon déformé. Ces calculs ont été effectués au moyen du logiciel ATOM [Beausir 2015]. L'angle limite choisi pour traduire une désorientation en GNDs est 5°. La densité de dislocations est exprimée par la norme du tenseur de Nye :

$$\rho_{GND} = \frac{1}{b} \sqrt{\alpha_{ij}\alpha_{ij}} \quad (\text{III.4})$$

Notez que la norme est divisée par la longueur du vecteur de Burgers de façon à obtenir des valeurs en m^{-2} .

Le résultat de ce calcul donne les cartes de distribution des densités de GNDs, présentées sur la figure III.15 (les lignes blanches représentent les joints de grains « initiaux » qui ont une désorientation supérieure à 5°). La comparaison entre les figures III.15a et b montre à nouveau la présence d'un réseau de sous-joints au sein des grains dans la carte D3 (elle est colorée en fonction de la valeur de la norme du tenseur de Nye qui traduit la densité de GNDs produite dans l'échantillon déformé).

Sur la figure III.15b, les S-JG ayant une densité de dislocations supérieure à $12,9 \cdot 10^{13} \text{ m}^{-2}$ sont tous colorés en rouge (la densité maximale atteinte est de $89 \cdot 10^{13} \text{ m}^{-2}$). Ils correspondent aux S-JG les plus désorientés (leurs angles de désorientation sont supérieurs à 2° et ils sont représentés en bleu et en rouge sur la figure III.12d).

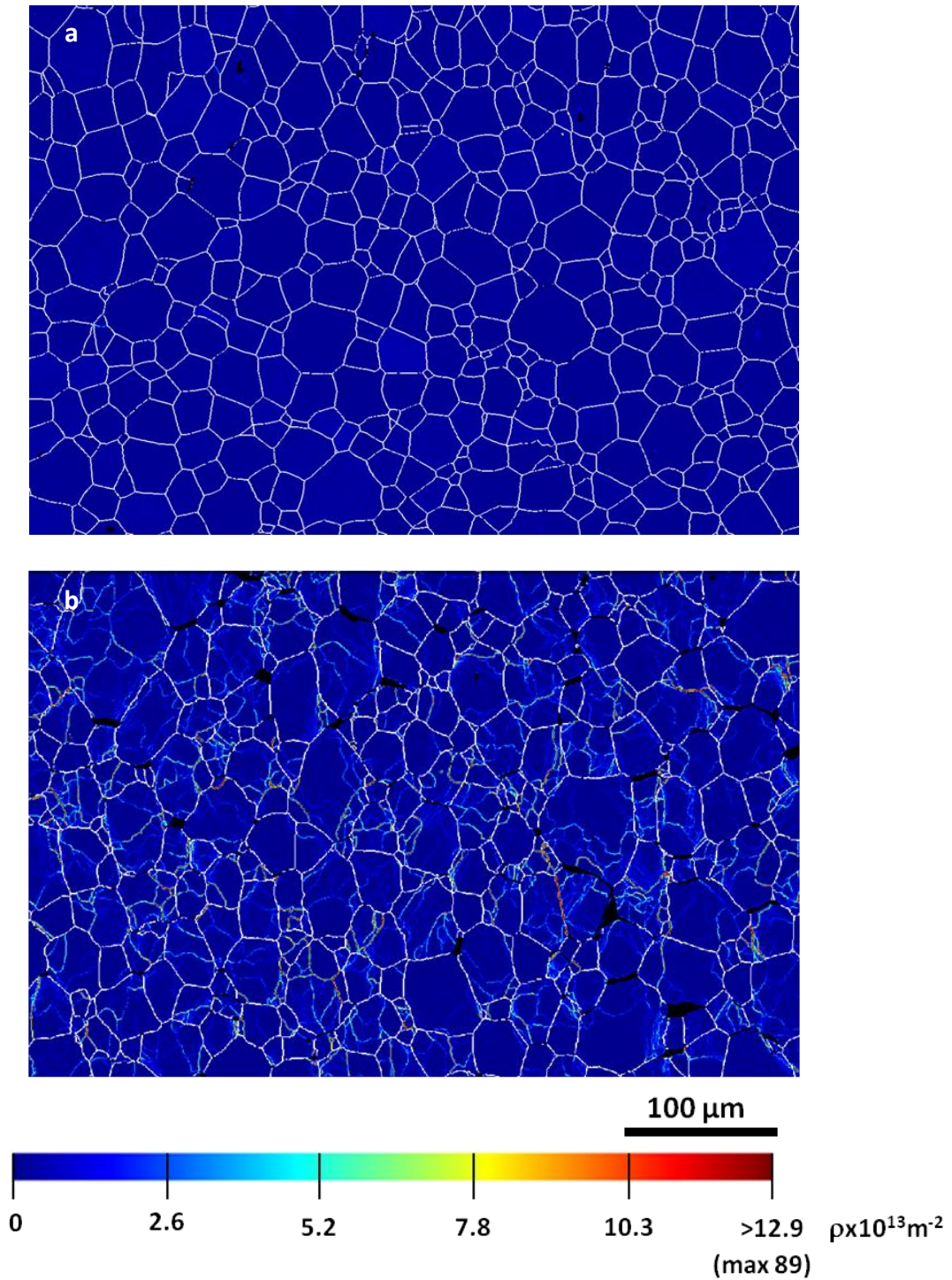


Figure III.15 : Cartes de distribution des densités de GNDs pour (a) l'échantillon de référence, (b) l'échantillon déformé (carte D3), déterminées avec le logiciel ATOM, à partir de cartes EBSD pré-traitées.

III. 6. 3. Analyse et discussion des résultats

A partir des cartes de distribution des densités de GNDs, il est possible de calculer une densité moyenne de dislocations. Cette valeur constitue un paramètre quantitatif supplémentaire pour caractériser un état métallurgique donné et suivre l'évolution de la microstructure en fonction des conditions de déformation. Le tableau III.2 synthétise les densités moyennes de dislocations

$\langle \rho_{GND} \rangle$ calculées à partir des cartes EBSD de l'échantillon de référence et de l'échantillon déformé.

En moyenne, la densité de dislocations calculée à partir des trois cartes corrigées acquises sur l'échantillon déformé est de l'ordre de $17.10^{12} \text{ m}^{-2}$. Les valeurs obtenues sont très proches, ce qui confirme de nouveau que chaque carte est suffisamment grande pour être représentative de l'état déformé dans la partie centrale de la pastille.

Par ailleurs, la valeur obtenue dans l'échantillon de référence (non déformé) est de $11.10^{12} \text{ m}^{-2}$. Elle est inférieure à celle obtenue dans l'échantillon déformé. Ce résultat est prometteur pour suivre l'évolution des GNDs en fonction des conditions de sollicitations.

Tableau III.2 : Densité moyenne de dislocations $\langle \rho_{GND} \rangle$ calculée à partir des cartes EBSD, R, D1, D2, et D3, corrigées et filtrées

$\langle \rho_{GND} \rangle$ calculée à partir des données EBSD ($\times 10^{12} \text{ m}^{-2}$)	corrigées (non filtrées)	corrigées et filtrées
Echantillon déformé : carte D1	16,6	8
Echantillon déformé : carte D2	16,1	8
Echantillon déformé : carte D3	17	7,8
Echantillon déformé - valeur moyenne	16,6	7,9
Echantillon de référence : carte R	11	0,68
Estimation de la densité parasite ρ_{sp} : (Echantillon de référence pour les désorientations comprises entre 0 et $0,25^\circ$)	11,5	0,67
Rapport signal sur bruit : $(\rho_{GNDs}/\rho_{sp})^2$ (Echantillon déformé - valeur moyenne)	2,1	140

Pendant la densité absolue de GNDs doit être considérée avec prudence, car elle varie considérablement en fonction de divers paramètres. D'une part, elle dépend du pas de déplacement utilisé pour l'acquisition des données EBSD (voir l'équation III.3) [Ruggles 2016]. D'autre part, elle varie avec la précision de la détermination des orientations. Ainsi, les valeurs calculées à partir des données EBSD corrigées montrent de grandes différences avec celles déduites des données filtrées (cf. tableau III.2). Plus largement, la qualité des clichés de Kikuchi, leur procédure d'indexation et, enfin l'application du filtre sur les données EBSD modifient le bruit d'orientation de la carte [Wright 2015] (ici, c'est uniquement le filtrage des données qui affecte le résultat). Ce bruit de mesure se traduit par un certain niveau de « bruit » de densité de dislocations, souvent appelé « densité parasite » et noté ρ_{sp} (« spurious density » en anglais) [Konijnenberg 2015]. Par conséquent, l'analyse des valeurs de densité des GNDs n'a de sens que si le niveau de densité parasite est également quantifié.

Dans notre étude, ce niveau est évalué à partir de la carte EBSD acquise sur l'échantillon non déformé (carte R) (voir tableau III.2). On a montré précédemment que la résolution angulaire des cartes EBSD larges est de $0,25^\circ$. Par conséquent, les désorientations inférieures à $0,25^\circ$ ne traduisent pas de vrais sous-joints. Dans le calcul des GNDs, elles contribuent donc au bruit de mesure des GNDs et permettent d'évaluer la densité « parasite ». Appliquée aux données non déformés, la procédure donne une densité parasite moyenne de dislocations de $11,5.10^{12} \text{ m}^{-2}$ pour les données corrigées (voir tableau III.2). Ainsi, dans l'échantillon de référence, la densité de GNDs moyenne calculée (égale

à $11.10^{12} \text{ m}^{-2}$) correspond clairement au niveau de bruit. Ce résultat est cohérent avec le fait que cet échantillon non déformé ne contient presque pas de S-JG de faible désorientation (comme cela a été présenté sur la figure III.12). Dans le cas de l'échantillon déformé, la densité moyenne de GNDs ($16,6.10^{12} \text{ m}^{-2}$) est plus élevée que le bruit de mesure, comme cela est quantifié par le rapport signal moyen/bruit (donné par $(\rho_{\text{GNDs}}/\rho_{\text{sp}})^2$) qui vaut 2,1. Ceci confirme que le calcul de la densité de GNDs est bien sensible à l'augmentation de la densité de dislocations, après 8% de déformation par fluage.

Le tableau III.2 montre également que le filtrage des données offre la possibilité d'améliorer le rapport signal/bruit et rend ainsi le calcul de la densité de GNDs potentiellement encore plus sensible aux faibles variations qui seront susceptibles d'être observées pour différents niveaux de déformation par fluage. En effet, la densité parasite moyenne ρ_{sp} diminue d'un facteur pratiquement 20, après l'application du filtre (voir le tableau III.2 : $\rho_{\text{sp}} = 0,67.10^{12} \text{ m}^{-2}$ au lieu de $11,5.10^{12} \text{ m}^{-2}$). La valeur moyenne de densité des GNDs dans l'échantillon déformé diminue aussi d'environ un facteur deux pour atteindre $7,9.10^{12} \text{ m}^{-2}$. Le rapport signal sur bruit atteint quant à lui 140. Cette baisse d'un facteur 20 de la densité de dislocations parasites, entre les données EBSD corrigées et filtrées est étonnamment élevée (sachant que le bruit de désorientation correspondant a diminué seulement de moitié : cf. tableau III.1). En fait, les moyennes d'orientation locale effectuées au moyen du filtre Kuwahara conduisent à l'obtention de pixels voisins dont la désorientation devient égale à 0° . Par conséquent, ils sont convertis en une densité de dislocations nulle (alors qu'une désorientation locale de l'ordre du bruit d'orientation se traduit par une densité de dislocations parasite locale de l'ordre de 10^{12} m^{-2}). Ceci explique la baisse impressionnante de la densité de dislocations parasites suite à la filtration des données.

Ce calcul des densités de GNDs nous a amené à nous interroger sur la limite inférieure de la densité de dislocations détectables par EBSD. Dans la littérature, cette limite inférieure est le plus souvent déduite à partir de l'estimation du bruit de mesure (ou bruit d'orientation) au moyen de la formule suivante [Konijnenberg 2015]:

$$\rho_{\text{sp}} = \frac{\theta_n}{|b|a} \quad (\text{III.5})$$

où θ_n est l'angle correspondant au bruit de désorientation, a est le pas d'acquisition de la carte EBSD et b est le vecteur de Burgers. La façon dont le bruit de désorientation a été évalué est rarement expliquée. Certains auteurs considèrent pour θ_n un angle minimal de 1° [He 2008] qui se traduirait ici par un bruit de densité de dislocations de $1,1.10^{14} \text{ m}^{-2}$. Dans une expérience en EBSD 3D, Konijnenberg considère une valeur de θ_n beaucoup plus faible, à savoir $0,2^\circ$, qui donnerait un bruit de densité de dislocations de $2,25.10^{13} \text{ m}^{-2}$ [Konijnenberg 2015].

Dans cette étude, la densité parasite moyenne ρ_{sp} de $11,5.10^{12} \text{ m}^{-2}$ (cf. tableau III.2, données EBSD corrigées) donne une désorientation $\theta_n = 0,1^\circ$ d'après l'équation III.5. Cette valeur est très proche du bruit de désorientation moyen calculé dans le tableau III.1. Le bruit de désorientation local maximal de $0,25^\circ$ donne une densité parasite locale de dislocations de $2,8.10^{13} \text{ m}^{-2}$.

III. 7. Conclusion

Ce chapitre a été consacré à la description d'une méthodologie optimisée destinée à caractériser la microstructure de l'UO₂, à l'état de référence et après déformation.

Les conditions d'acquisition et de pré-traitement des données EBSD ont été présentées en détail. En effet, l'acquisition des clichés de Kikuchi en utilisant un binning 2x2 de la caméra, associée

à une détection améliorée des bandes de Kikuchi, augmente significativement la résolution angulaire des données EBSD. Des sous-joints de grain avec des angles de désorientation allant jusqu'à des valeurs aussi faibles que $0,1^\circ$ peuvent ainsi être détectés de manière fiable. Ceci nécessite un traitement particulier des cartes destiné à supprimer les désorientations artificielles mesurées au niveau des pores et des défauts de polissage. Le rapport signal sur bruit des données d'orientation peut encore être réduit en appliquant le filtre Kuwahara. Il conserve efficacement les lignes de désorientation continues tout en réduisant les désorientations aléatoires. Cette méthode de pré-traitement constitue une avancée significative, pour l'amélioration de la résolution angulaire des cartes EBSD acquises sur des matériaux poreux, d'une part, et d'autre part, pour la détection fiable de S-JG comparée à des routines de pré-traitement moins précises, ou à la HR-EBSD très consommatrice de temps et de ce fait difficilement applicable à des cartes étendues.

De plus, on a pu montrer que l'A-ECCI est un outil bien adapté à la visualisation dans un échantillon massif, de différents arrangements de dislocations en S-JG de très faibles désorientations (jusqu'à $0,1^\circ$).

La deuxième partie de ce chapitre méthodologique a été consacrée aux paramètres qui permettent de caractériser les différents états de la microstructure de l' UO_2 (l'état de référence, et l'état déformé) et de quantifier la sous-structure formée dans les pastilles d' UO_2 après des essais mécaniques de compression. Ce travail a été réalisé à partir de cartes EBSD étendues (champ analysé = $500 \times 344 \mu\text{m}$) pour avoir une statistique suffisante. La déformation peut être quantifiée par la fraction linéaire des JG et S-JG, la taille des sous-grains, et la densité moyenne de GNDs. La densité parasite ρ_{sp} déduite du bruit de mesure, doit être quantifiée en premier lieu à partir de toute la carte EBSD acquise sur l'état de référence pour pouvoir différencier celle-ci de la densité moyenne de GNDs obtenue dans l'état déformé.

D'un point de vue général, cette méthodologie ouvre de nouvelles perspectives pour l'étude des matériaux poreux, déformés ou non. Dans le cadre de cette étude, elle a été appliquée systématiquement sur les deux lots de pastilles L1 et L2 décrits dans le chapitre II après des essais mécaniques réalisés dans différentes conditions. A partir de chaque échantillon déformé, une carte EBSD étendue, dont les caractéristiques sont présentées dans le paragraphe III. 5. 1, a été acquise dans sa partie centrale. Toutes les cartes acquises ont subi ensuite un pré-traitement de correction et filtrage des données, comme décrit dans ce chapitre (cf. paragraphe III. 2. 3). A partir de chaque carte, la fraction linéaire des joints et des sous-joints a été quantifiée. La densité moyenne des GNDs et la taille des sous-grains ont été aussi déterminées. La quantification de la déformation en fonction des conditions d'essai, en particulier le taux et la vitesse de déformation, dans des pastilles des lots L1 et L2, fait l'objet des chapitres IV et V.

Chapitre IV

Effet des conditions de déformation viscoplastique sur le comportement mécanique et sur l'évolution de la microstructure L1

IV. 1. Introduction

Dans ce chapitre, nous nous intéressons à l'étude du comportement mécanique et à l'évolution de la microstructure des pastilles du lot L1 (première microstructure étudiée, qui comporte un grand nombre de pores intra-granulaires) en fonction de la vitesse de déformation et du taux de déformation atteint en fin d'essai (essais de compression en fluage et en DVC).

La première partie décrit le comportement mécanique macroscopique de ce lot. Elle s'appuie sur une campagne d'essais de compression en fluage et en DVC. L'exploitation des données permet d'évaluer la contrainte de transition entre les domaines de fluage diffusionnel et dislocationnel.

Dans la deuxième et la troisième partie, l'évolution de la microstructure, dans ces deux domaines, est étudiée selon les méthodologies qui ont été détaillées dans les chapitres II (pour caractériser la porosité) et III (pour étudier la sous-structure). En particulier, la fraction linéaire des joints et des sous-joints de grains ainsi que la densité des GNDs ont été quantifiées à partir de cartes EBSD étendues.

L'étude de l'influence de différents paramètres expérimentaux sur la microstructure obtenue après essai mécanique fait l'objet de la quatrième partie de ce chapitre. La reproductibilité des essais, leur nature (fluage ou DVC) et le rôle de la vitesse de refroidissement après déformation sont appréhendés. Enfin, l'homogénéité des évolutions microstructurales, au sein d'une pastille, est évaluée au moyen de cartes EBSD acquises en différentes positions. Un bilan critique de l'ensemble des résultats obtenus est effectué sur cette base.

La dernière partie de ce chapitre est consacrée à l'analyse par ECCI de différents arrangements des dislocations dans des sous-joints de grains détectés par EBSD.

IV. 2. Comportement mécanique macroscopique

IV. 2. 1. Nomenclature des échantillons testés en compression

Nous avons choisi la nomenclature suivante pour désigner les essais mécaniques réalisés et les pastilles correspondantes (cf. Tableau IV.1) :

- Pour un essai de fluage : ***Li-F-cx-dy*** correspond à un essai de fluage (noté F) sur une pastille du lot i (qui pourra être 1 ou 2) sous une contrainte imposée, notée c, de x MPa jusqu'à un niveau de déformation moyen final, noté d, de y%
- Pour un essai de DVC : ***Li-D-vx-dy*** correspond à un essai de DVC (noté D) sur une pastille du lot i (qui pourra être 1 ou 2) à une vitesse de déformation (notée v) de $x \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ jusqu'à un niveau de déformation moyen final (noté d) de y%.

Par exemple : ***L1-F-c12-d0,78*** correspondra à un essai de fluage sur une pastille du lot 1 sous une contrainte imposée de 12 MPa jusqu'à un niveau de déformation moyen final de 0,78% (cf. tableau IV.1, essai 1-P33) et ***L1-D-v20-d5,1*** correspondra à un essai en DVC sur une pastille du lot 1 à une vitesse de déformation de $20 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ (valeur arrondie) jusqu'à un niveau de déformation moyen final de 5,1% (cf. tableau IV.1, essai 9-P3). La nomenclature proposée ici est utilisée pour nommer la pastille déformée et l'échantillon obtenu à partir de celle-ci après les étapes de découpe et de polissage.

Dans le tableau IV.1, dans le cas des essais DVC, les vitesses de déplacement de la traverse, les valeurs réelles des vitesses de déformation des pastilles ainsi que les valeurs arrondies de celles-

ci, sont présentées. Nous avons choisi d'utiliser les valeurs arrondies des vitesses de déformation, dans la nomenclature et dans le reste du manuscrit.

Les essais suivants ont été réalisés pour étudier l'influence de certains paramètres expérimentaux sur les grandeurs déterminées par EBSD. Les résultats de cette étude seront présentés dans la quatrième partie de ce chapitre :

- Les essais *L1-D-v100-d16^a* et *L1-D-v100-d16^b* ont été réalisés dans les mêmes conditions pour étudier la reproductibilité des essais mécaniques et des résultats des caractérisations par EBSD.
- L'essai mécanique *L1-D-v100-d11^f* a été réalisé avec un refroidissement rapide pour étudier l'influence de la vitesse de refroidissement sur la microstructure obtenue après déformation (comparativement avec *L1-D-v100-d11*).
- L'essai *L1-F-c50-d7,8* est un essai de fluage destiné à être comparé avec un essai en DVC (*L1-D-v5-d6,3*) réalisé dans des conditions similaires.

On notera de plus que ce lot de pastilles a fait l'objet d'essais mécaniques (principalement de type DVC) effectués lors de deux campagnes principales séparées par un intervalle de temps de l'ordre de 6 mois, voire plus. Ainsi, les essais désignés par un seul astérisque dans le tableau IV.1, ont été réalisés dans le cadre d'une première campagne effectuée début 2015, tandis que les essais désignés par deux astérisques ont fait l'objet d'une seconde campagne, effectuée en octobre-novembre 2015. Ceci est à l'origine de différences, notamment en ce qui concerne la valeur de la contrainte finale atteinte. Cette dispersion serait liée notamment aux réglages de la machine et à l'atmosphère du four lors des essais (voir chapitre II, paragraphe II. 5. 3. 4).

La contrainte finale indiquée dans le tableau IV.1 est celle imposée, pour les essais de fluage (charge divisée par la section initiale de la pastille) et celle atteinte en fin d'essai (corrigée de la variation de section de la pastille), pour les essais de DVC.

Dans le cas de cette microstructure L1, trois groupes de pastilles testées en DVC seront plus particulièrement étudiés, dans le domaine du fluage dislocationnel, comparativement avec l'échantillon de référence R1 (non déformé). Les pastilles appartenant à un même groupe ont été déformées durant la même période :

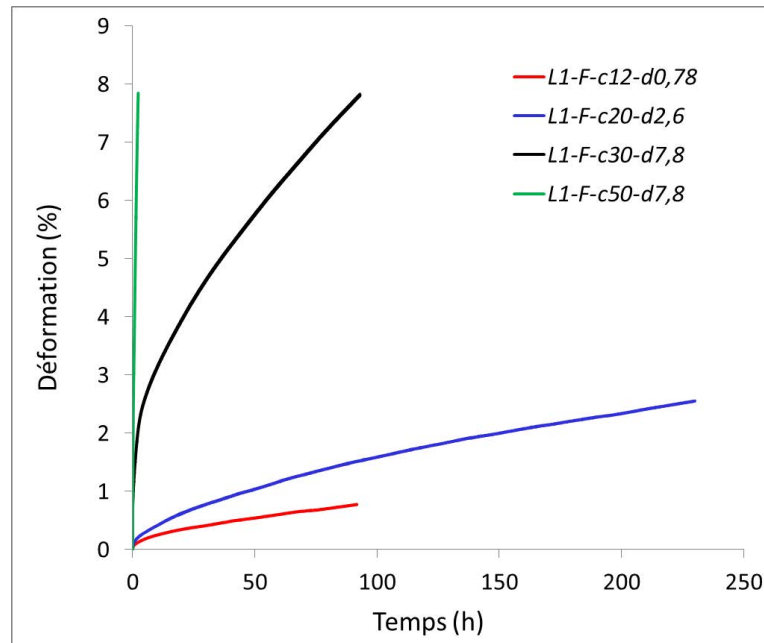
- **G1_L1(v20)** (Groupe 1_lot L1_vitesse de déformation de $20 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$) : ce groupe comporte trois échantillons (*L1-D-v20-d5,1* ; *L1-D-v20-d7,2* et *L1-D-v20-d11*) déformés à une vitesse de l'ordre de $20 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ jusqu'à des taux variant de 5,1% à 11%.
- **G2_L1(d7)** (Groupe 2_lot L1_déformé à 7%) : ce groupe comporte trois échantillons (*L1-D-v1-d6,6* ; *L1-D-v5-d6,3* et *L1-D-v20-d7,2*) déformés jusqu'à un taux d'environ 7%, à différentes vitesses.
- **G3_L1(d11)** (Groupe 3_lot L1_déformé à 11%) : ce groupe comporte quatre échantillons (*L1-D-v5-d11,2* ; *L1-D-v20-d12* ; *L1-D-v70-d11* et *L1-D-v100-d11*) déformés jusqu'à un taux d'environ 11%, également à différentes vitesses (allant jusqu'à des valeurs plus élevées que dans le cas précédent).

Tableau IV.1 : Caractéristiques des essais mécaniques réalisés sur les pastilles du lot L1

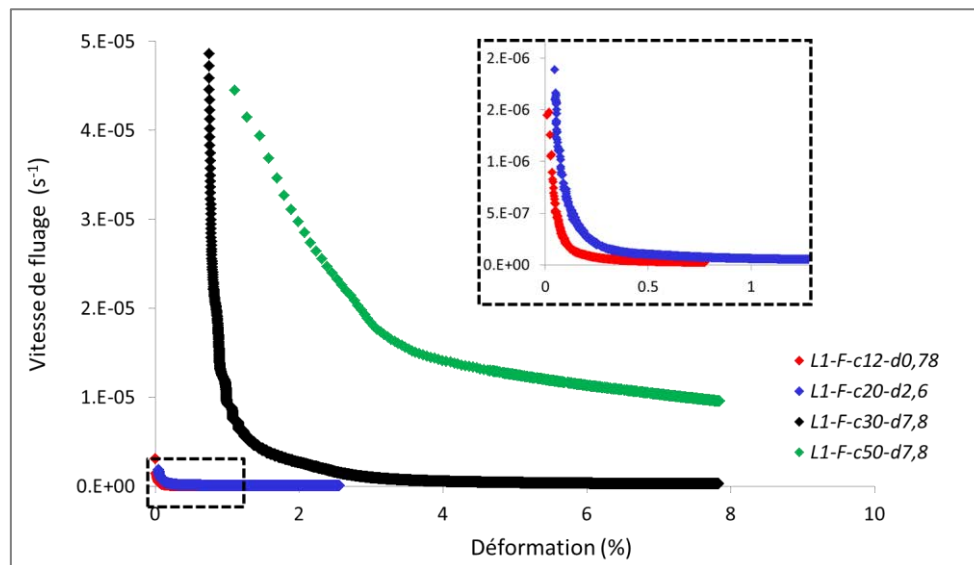
Microstructure L1								
N° de la pastille	Nomenclature	Nature de l'essai	Vitesse de déplacement de la traverse en $\mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$	Vitesse de déformation en 10^{-6}s^{-1}	Valeur arrondie : vitesse de déformation en 10^{-6}s^{-1}	Contrainte finale en MPa	Niveau de déformation moyen final en %	Durée de l'essai
Essai 1-P33	<i>L1-F-c12-d0,78</i>	Fluage	/	0,017	0,02	12	0,78	92 h
Essai 2-P16	<i>L1-F-c20-d2,6</i>	Fluage	/	0,022	0,022	20	2,6	230 h
Essai 3-P14	<i>L1-F-c30-d7,8</i>	Fluage	/	0,14	0,14	30	7,8	93 h
Essai 4-P19	<i>L1-F-c50-d7,8</i>	Fluage	/	7,22	7	50	7,8	2 h 18 min
Essai 5*-P10	<i>L1-D-v1-d6,6</i>	DVC	1	1,11	1	40	6,6	20 h 25 min
Essai 6*-P9	<i>L1-D-v5-d6,3</i>	DVC	5	5,39	5	51	6,3	4 h 10 min
Essai 7**-P34	<i>L1-D-v5-d11,2</i>	DVC	5	4,44	5	51	11,2	7 h 14 min
Essai 8**-P24	<i>L1-D-v20-d</i>	DVC	20	18,5	20	52	3	1 h 22min
Essai 9*-P3	<i>L1-D-v20-d5,1</i>	DVC	20	20,8	20	60	5,1	1 h
Essai 10*-P4	<i>L1-D-v20-d7,2</i>	DVC	20	21,1	20	66	7,2	1 h 10 min
Essai 11*-P1	<i>L1-D-v20-d11</i>	DVC	20	17,5	20	63	11	1 h 26 min
Essai 12**-P25	<i>L1-D-v20-d12</i>	DVC	20	17,9	20	51	12	2 h
Essai 13**-P30	<i>L1-D-v70-d11</i>	DVC	70	63,9	70	71	11	30 min
Essai 14**-P23	<i>L1-D-v100-d11</i>	DVC	100	83,3	100	71	11	23 min
Essai 15**-P27	<i>L1-D-v100-d16^a</i>	DVC	100	97,2	100	72	16	31 min
Essai 16**-P28	<i>L1-D-v100-d16^b</i>	DVC	100	97,2	100	67	16	31 min
Essai 17**-P26	<i>L1-D-v100-d11^f</i>	DVC	100	97,2	100	63	11	22 min

IV. 2. 2. Courbes de fluage

La figure IV.1a regroupe les courbes de fluage à 1500°C des pastilles du lot L1, à basses contraintes (12 et 20 MPa), à une contrainte intermédiaire (30 MPa) et à forte contrainte (50 MPa).



(a)



(b)

Figure IV.1 : Comportement en fluage des pastilles du lot L1 testées à 1500°C à différentes contraintes : (a) déformation en fonction du temps, (b) vitesse de fluage en fonction de la déformation.

La déformation est rapide lors de la mise sous charge (fluage primaire) puis plus lente jusqu'à atteindre une vitesse quasi constante (fluage secondaire ou stationnaire). La vitesse se stabilise d'autant plus vite que la contrainte est faible (figure IV.1b). En outre, plus la contrainte appliquée est grande, plus la déformation atteinte avant d'entrer dans un régime de fluage stationnaire est élevée.

Ainsi, dans le cas de l'essai de fluage *L1-F-c12-d0,78* réalisé à une contrainte de 12 MPa, le fluage primaire s'achève pour une déformation voisine de 0,5% alors que sous une contrainte de 30 MPa, il s'achève pour une déformation d'environ 2,5%. Enfin, dans le cas de l'essai de fluage réalisé à une contrainte encore plus élevée de 50 MPa, la vitesse de fluage ne tend à se stabiliser qu'au-delà de 4%. Rappelons que c'est la force appliquée qui est constante lors de l'essai mais non la contrainte, qui diminue un peu du fait de l'augmentation de la section de la pastille.

IV. 2. 3. Courbes de DVC

La figure IV.2 regroupe cinq séries d'essais mécaniques réalisés à 1500°C en DVC, avec des vitesses de déformation de l'ordre de (1, 5, 20, 70 et 100).10⁻⁶ s⁻¹. Dans tous les cas, après une phase d'augmentation rapide de la contrainte, les courbes atteignent un stade où cette dernière augmente peu avec la déformation. Le domaine de variation rapide de la contrainte correspond au domaine élastique et sa pente permet, en principe, de déterminer le module d'Young du matériau considéré. En pratique, cette pente n'est pas exploitable car, en début d'essai, la réponse de la machine d'essai, variable d'un essai à l'autre, intervient également. Ensuite, arrive le domaine dit « d'écoulement plastique », dans lequel une contrainte d'écoulement constante est, en principe, attendue. En pratique, cette contrainte augmente légèrement au cours du temps en raison de la variation de section de la pastille mais aussi, très vraisemblablement, en raison d'évolutions microstructurales qui modifient ses propriétés mécaniques. Il s'agit là d'un comportement « classique » relevé dans la plupart des études expérimentales faites sur l'UO₂ [Vivant-Duguay 1997, Dherbey 2000, Ndiaye 2012].

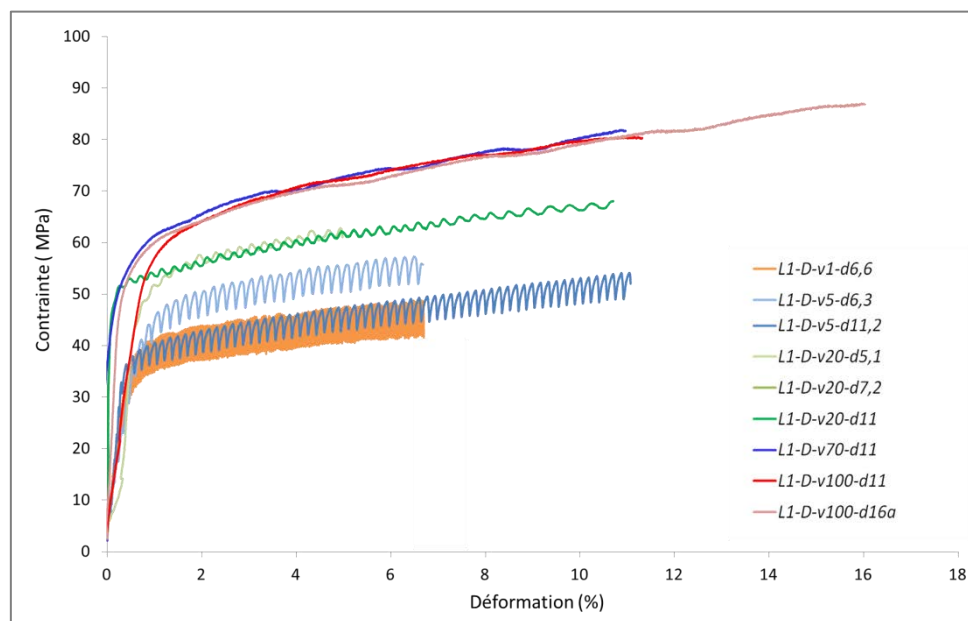


Figure IV.2 : Courbes « contrainte-déformation » obtenues pour des essais en DVC à 1500°C avec différentes vitesses de déformation.

La figure IV.2 montre aussi que la contrainte augmente avec la vitesse de déformation. A partir d'une certaine vitesse (70.10⁻⁶ s⁻¹ dans notre cas), l'évolution de la contrainte en fonction de la déformation est la même. Comme cela a été indiqué dans le chapitre II, la diminution de la vitesse de déformation engendre une diminution très marquée de la contrainte, dont la régulation par la

machine d'essai devient difficile : c'est pour cela que la vitesse de 1.10^{-6} s^{-1} a été choisie comme la valeur la plus basse atteignable en DVC. Enfin, la dispersion liée aux campagnes d'essais est clairement visible, lorsque on compare les deux essais réalisés à 5.10^{-6} s^{-1} (courbes bleues).

On notera enfin qu'après les essais mécaniques, les pastilles issues du lot L1 ne présentent pas de fissures ou de défauts surfaciques visibles à l'œil nu ou à la binoculaire, même lorsque leur déformation atteint 16%.

IV. 2. 4. Mécanismes de fluage : diffusionnel/dislocationnel

IV. 2. 4. 1. Contrainte de transition

Les essais réalisés sur les pastilles du lot L1 (en fluage et en DVC) permettent de tracer le graphe $\dot{\epsilon} = f(\sigma)$ présenté sur la figure IV.3. Ce type de graphe est classiquement utilisé pour déterminer la contrainte de transition « σ_t » et l'exposant de contrainte de la loi de fluage dans les domaines de fluage diffusionnel et dislocationnel.

On notera que, pour des raisons de durée des essais, on ne dispose que de deux points dans le domaine des basses contraintes. Il en résulte une incertitude relativement forte sur la détermination de la contrainte de transition : celle-ci est trouvée égale à environ 25 MPa. On reviendra sur cette valeur dans le chapitre V.

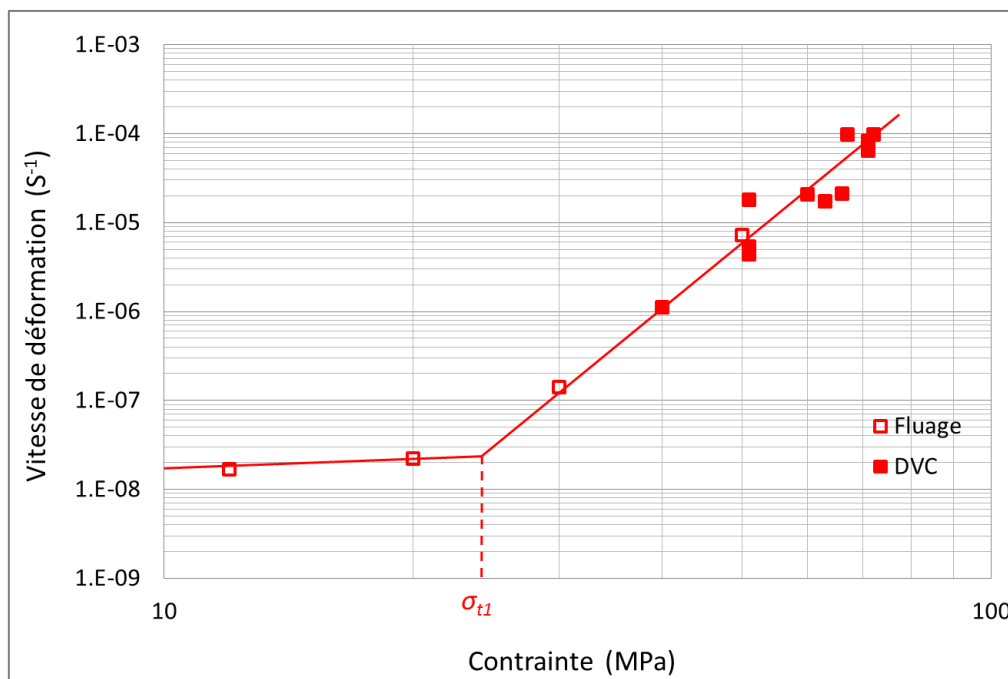


Figure IV.3 : Evolution de la vitesse de fluage secondaire en fonction de la sollicitation mécanique (coordonnées logarithmiques).

IV. 2. 4. 2. Exposants de contrainte et mécanismes de fluage

On rappelle que le fluage de l'UO₂ est généralement décrit dans la littérature par une loi de type puissance qui s'écrit de la façon suivante :

$$\dot{\epsilon} = A\sigma^n \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \text{ en } \text{s}^{-1} \quad (\text{IV.1})$$

où n est l'exposant de contrainte.

La figure IV.4 présente les évaluations de l'exposant de contrainte pour la microstructure L1, à partir d'essais mécaniques sélectionnés. La valeur de cet exposant a été déterminée en appliquant l'équation IV.2 et en considérant deux domaines situés de part et d'autre de la contrainte de transition :

$$n = \ln \left(\frac{\dot{\epsilon}_2 / \dot{\epsilon}_1}{\sigma_2 / \sigma_1} \right) \quad (\text{VI.2})$$

Compte-tenu du faible nombre d'essais disponibles dans le domaine diffusionnel (seulement deux essais) et de la dispersion constatée sur les essais réalisés dans le domaine dislocationnel, les exposants calculés sont uniquement estimatifs.

- Aux faibles contraintes ($\sigma < \sigma_t$), l'exposant de contrainte n calculé est proche de 1 ($n = 0,8$). D'après la littérature, à basses contraintes, le mécanisme de fluage diffusionnel se caractérise par un exposant $1 \leq n \leq 3$ (cf. chapitre I, paragraphe I. 4. 2. 1). De plus, les examens microstructuraux présentés plus loin confortent un régime de fluage diffusionnel.
- Aux fortes contraintes ($\sigma > \sigma_t$) l'exposant de contrainte n calculé est légèrement supérieur à 7 ($n = 7,2$). Cette valeur se situe dans l'intervalle $4 \leq n \leq 10$ indiqué par divers auteurs [Vivant-Duguay 1997, Dherbey 2000] comme caractéristique du fluage dislocationnel (cf. chapitre I, paragraphe I. 4. 2. 1).

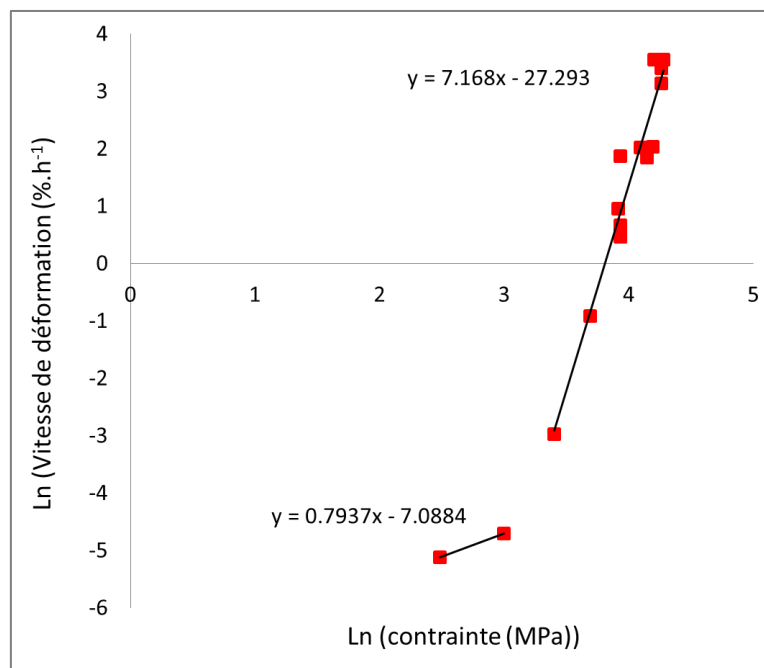


Figure IV.4 : Détermination des exposants de contrainte dans les deux domaines de fluage.

En conclusion les résultats obtenus sur ce lot de pastilles sont globalement cohérents avec ceux de la littérature, en ce qui concerne les exposants de contrainte dans les deux domaines de fluage traditionnellement considérés.

IV. 3. Analyse de l'évolution microstructurale en fluage diffusiel

Cette analyse s'appuie sur les résultats des deux essais de fluage réalisés à basses contraintes (12 et 20 MPa) : *L1-F-c12-d0,78* et *L1-F-c20-d2,6*.

IV. 3. 1. Absence de sous-structuration au sein des grains

Les images BSE relatives à ces échantillons montrent la quasi absence de variation de contraste d'orientation au sein des grains (figure IV.5). Leurs microstructures sont similaires à celle de l'état de référence.

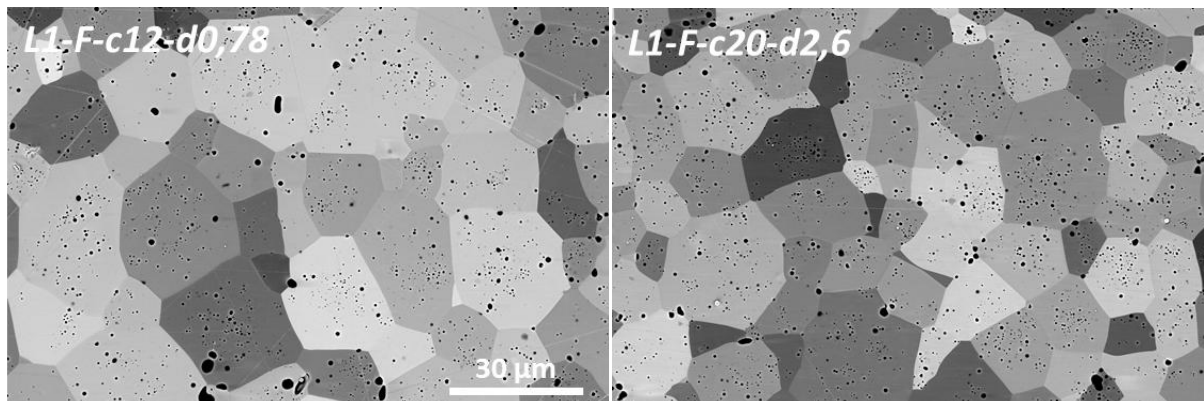


Figure IV.5 : Micrographies BSE acquises sur les échantillons *L1-F-c12-d0,78* et *L1-F-c20-d2,6*.

Ce résultat est confirmé en EBSD par la quantification de la fraction des S-JG associés à différentes classes de désorientation (figure IV.6 et tableau IV.2). La fraction correspondant aux S-JG ayant une désorientation entre $0,25^\circ$ et 5° est inférieure à 1% (0,74%) pour l'échantillon le plus déformé dans ce domaine de fluage diffusiel (*L1-F-c20-d2,6*), valeur comparable à celle de l'échantillon non déformé.

Pour conclure, à basses contraintes et pour de faibles taux de déformation, les échantillons déformés ne présentent pratiquement pas de sous-structures. Il aurait été intéressant d'observer ces échantillons par ECCI afin de visualiser la présence d'éventuelles dislocations isolées générées par la déformation visco-plastique. Cela n'a malheureusement pas été possible, en raison des contraintes liées au transport de matière nucléaire entre le CEA Cadarache et le LEM3.

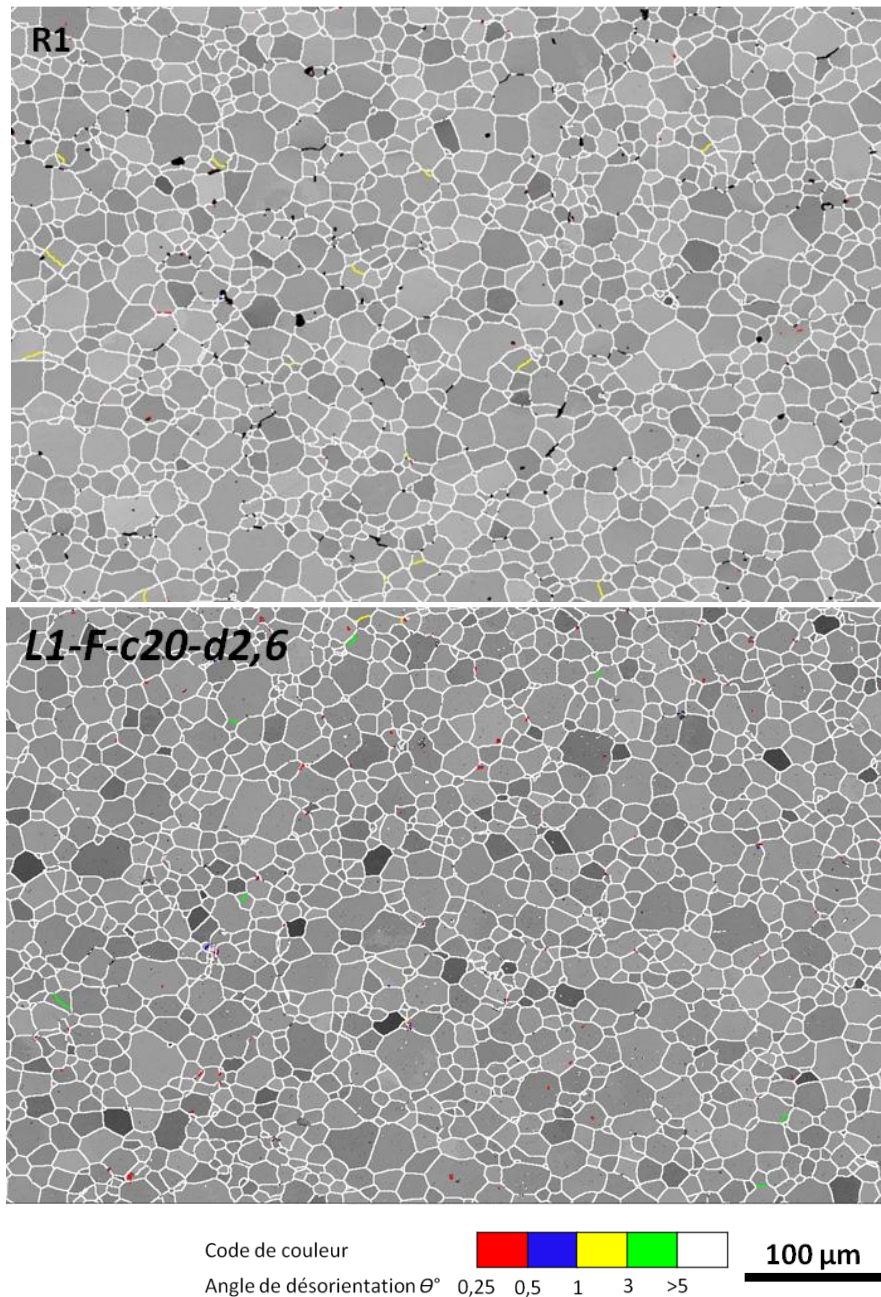


Figure IV.6 : Carte d'indice de qualité et de désorientations acquise sur l'échantillon R1 et L1-F-c20-d2,6. Les joints de grains (JG) sont délimités par des lignes blanches.

Tableau IV.2 : Quantification de la fraction linéaire des JG et des S-JG dans l'échantillon de référence et dans un échantillon déformé par fluage à basse contrainte

Désorientation angulaire θ°	R1	L1-F-c20-d2,6
0,25°_0,5	0,15	0,41
0,5°_1°	0,01	0,05
1°_5°	0,44	0,28
Somme des S-JG/ $0,25^\circ < \theta < 5^\circ$	0,6	0,74
5°_15°	3,32	3,59
>15°	96,08	95,66

IV. 3. 2. Absence d'évolution de la porosité avec la déformation

La porosité totale a été caractérisée par analyse d'images BSE, selon la méthode qui a été détaillée dans le chapitre II (paragraphe II. 3. 2. 2). La figure IV.7 présente les résultats obtenus sur l'échantillon de référence R1 et l'échantillon L1-F-c20-d2,6. Les fractions surfaciques totales mesurées sont 2,5%, et 2,4%, respectivement pour ces deux échantillons. Ces valeurs ainsi que les distributions présentées sur la figure permettent de conclure que la déformation appliquée et le maintien en température associé (230 h à 1500°C) n'ont pas eu une influence significative sur les caractéristiques de la porosité totale de fabrication, tout au moins aux échelles étudiées. On remarque également qu'il n'y a pas d'évolution notable de la taille des pores dans ces conditions de sollicitation.

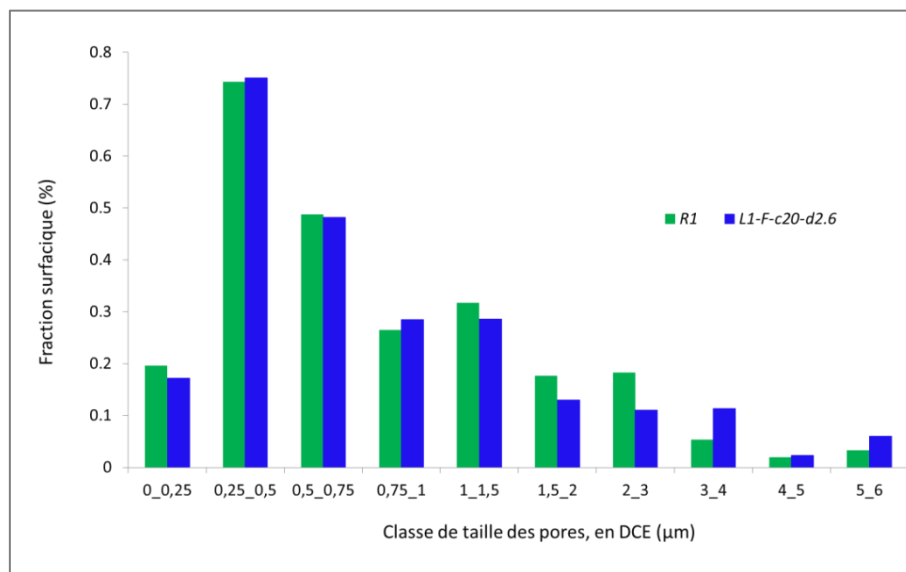


Figure IV.7 : Fraction surfacique des pores en fonction de leur taille, dans l'échantillon de référence R1 et l'échantillon L1-F-c20-d2,6 déformé à basse contrainte.

Dherbey a montré, au moyen d'images MEB, qu'il se produisait une coalescence des pores lorsque les échantillons étaient déformés à faibles contraintes (25 MPa) et taux de déformation (2,1%) [Dherbey 2000]. Ndiaye a conclu quant à elle, qu'aux faibles déformations (inférieures à environ 2%), suite à des essais réalisés à relativement forte contrainte (50 MPa), la fraction surfacique de pores n'évoluait pas significativement mais que leur nombre diminuait par coalescence [Ndiaye 2012]. Dans notre cas, où les contraintes et les taux de déformation sont faibles, une telle coalescence n'a pas été observée.

Cette différence pourrait être liée à des variations de coefficients de diffusion imputables au potentiel d'oxygène lors des essais (II. 5. 3. 4) ou bien à la pureté des UO_2 testés dans notre étude et dans celles de Dherbey et Ndiaye.

IV. 3. 3. Transition entre les domaines de fluage diffusionnel et dislocationnel

La différence de microstructures entre les deux domaines de fluage a été analysée en comparant les deux échantillons suivants : L1-F-c20-d2,6 et L1-D-v20-d3. Ils ont été déformés respectivement sous une contrainte de 20 et 52 MPa et présentent un taux de déformation similaire de l'ordre de 3%.

Les cartes EBSD de ces échantillons mettent en lumière une différence significative entre les deux microstructures : l'échantillon *L1-F-c20-d2,6* déformé dans le domaine diffusionnel (figure IV.6) ne comporte pratiquement pas de S-JG (fraction linéaire des S-JG : 0,74% pour $0,25^\circ < \theta < 5^\circ$), tandis que l'échantillon *L1-D-v20-d3* (figure IV.8) déformé dans le domaine dislocationnel en comporte une fraction pratiquement huit fois plus élevée (5,59%). Ceci confirme le passage du domaine de fluage diffusionnel au domaine dislocationnel, au cours duquel la déformation visco-plastique est assurée par la création et le mouvement de dislocations. Cela se traduit par l'apparition de désorientations intra-granulaires détectables en EBSD : les dislocations s'organisent en S-JG de faible [1° - 3°] et très faible [$0,25^\circ$ - 1°] désorientations.

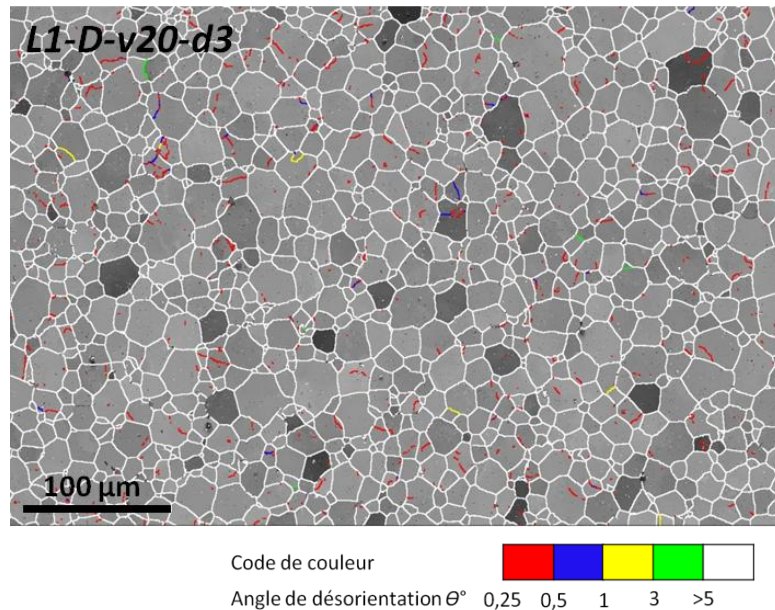


Figure IV.8 : Carte d'indice de qualité et de désorientations de l'échantillon *L1-D-v20-d3*.

IV. 4. Analyse de l'évolution microstructurale en fluage dislocationnel

IV. 4. 1. Influence du taux de déformation sur la microstructure

L'effet de la déformation peut être étudié en comparant les pastilles du groupe G1_L1(v20). Elles ont été déformées en DVC avec une vitesse de déformation de l'ordre de $20 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$, jusqu'à un niveau de déformation moyen variant entre 5,1% et 11%. Le tableau IV.3 rappelle les principales caractéristiques des essais mécaniques relatifs à ces pastilles.

Tableau IV.3 : Caractéristiques des essais DVC réalisés sur les pastilles du groupe G1_L1(v20)

Echantillon	Vitesse de déformation arrondie $\times 10^{-6} \text{ (s}^{-1}\text{)}$	Niveau de déformation (%)	Durée de l'essai
<i>R1</i>	/	/	/
<i>L1-D-v20-d5,1</i>	20	5,1	1 h
<i>L1-D-v20-d7,2</i>	20	7,2	1 h 10 min
<i>L1-D-v20-d11</i>	20	11	1 h 26 min

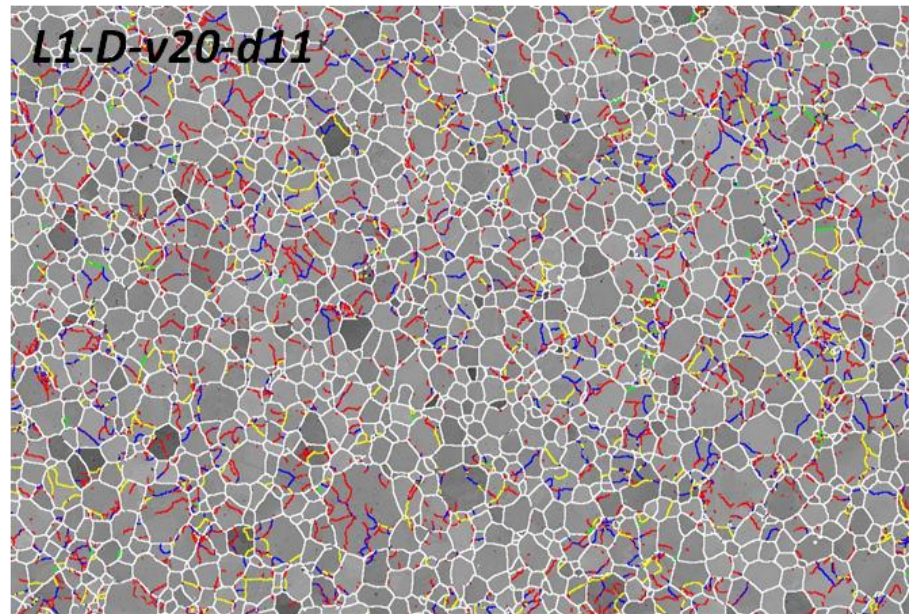
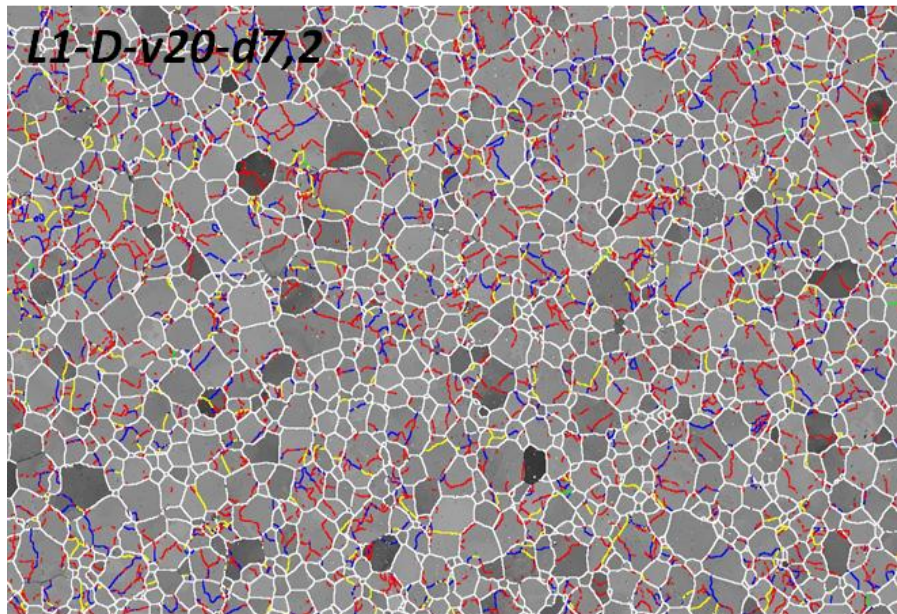
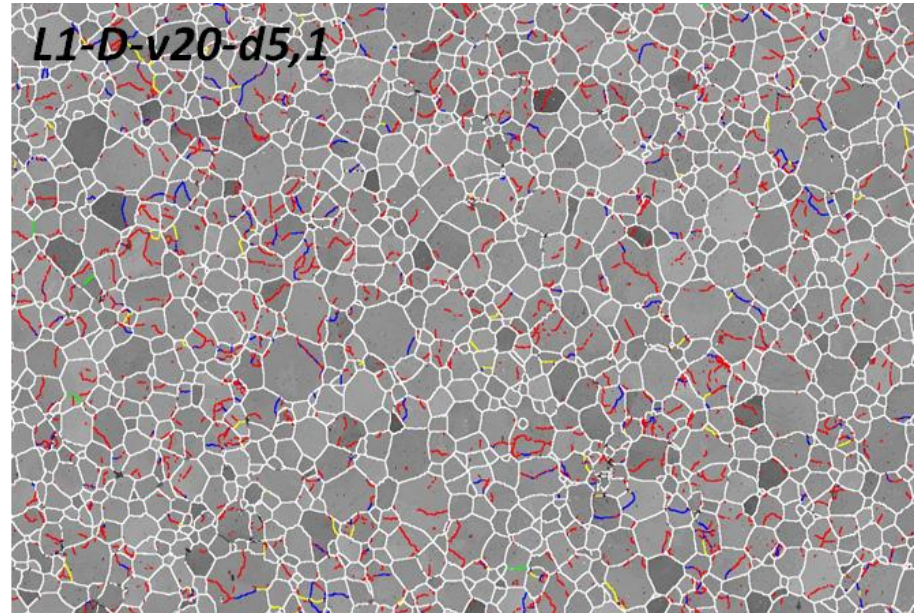
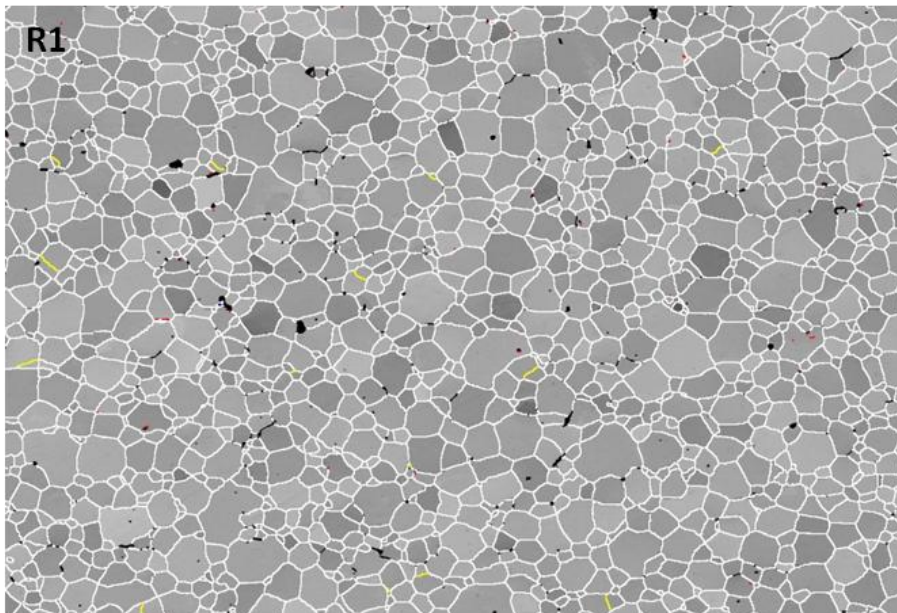
L'analyse des images BSE acquises sur ces échantillons (non présentée, pour alléger le contenu de ce chapitre) ne montre aucune évolution de la taille des pores avec la déformation ainsi que l'absence de cavités, même pour un taux de déformation de 11%.

Les cartes EBSD relatives à ces échantillons (figure IV.9) montrent clairement qu'un réseau dense de S-JG a été créé et s'est amplifié au cours du fluage, les S-JG étant d'autant plus nombreux que le taux de déformation atteint est élevé. Les JG et S-JG sont quantifiés par classes de désorientation angulaire dans le tableau IV.4 et les fractions relatives de chaque classe sont présentées graphiquement sur la figure IV.10 (le deuxième histogramme, consacré uniquement aux SJ-G, complète le premier). La plupart des SJ-G ont une très faible désorientation ($\theta < 1^\circ$).

La fraction relative de S-JG, très faible dans l'échantillon de référence (0,6%), augmente significativement avec la déformation pour atteindre 25,93% après 5,1% de déformation et 37,72% après 11% de déformation. Ce sont les S-JG les plus faiblement désorientés (entre $0,25^\circ$ et $0,5^\circ$) qui sont les plus fréquents et qui représentent la majeure partie des S-JG détectés. Leur fraction linéaire varie peu avec l'augmentation du taux de déformation, contrairement à celle des S-JG ayant une désorientation comprise entre $[0,5^\circ_5^\circ[$ (voir figure IV.10b). En effet, la déformation conduit progressivement à une augmentation de la désorientation des S-JG et augmente les fréquences de S-JG dans les classes supérieures ($[0,5^\circ_1^\circ[$ et jusqu'à 5°).

Tableau IV.4 : Quantification des fractions linéaires de JG et S-JG, à partir des données EBSD des échantillons du groupe de pastilles G1_L1(v20)

Désorientation θ°	R1	L1-D-v20-d5,1	L1-D-v20-d7,2	L1-D-v20-d11
Histogramme de JG et S-JG				
0,25°_5°	0,60	25,93	37,45	37,72
5°_15°	3,32	2,92	2,31	1,79
>15°	96,08	71,15	60,24	60,49
Histogramme de S-JG				
0,25°_0,5°	0,15	20,96	20,84	22,26
0,5°_1°	0,01	3,66	10,47	8,25
1°_3°	0,16	1,20	5,86	6,57
3°_5°	0,28	0,11	0,28	0,64



Code de couleur

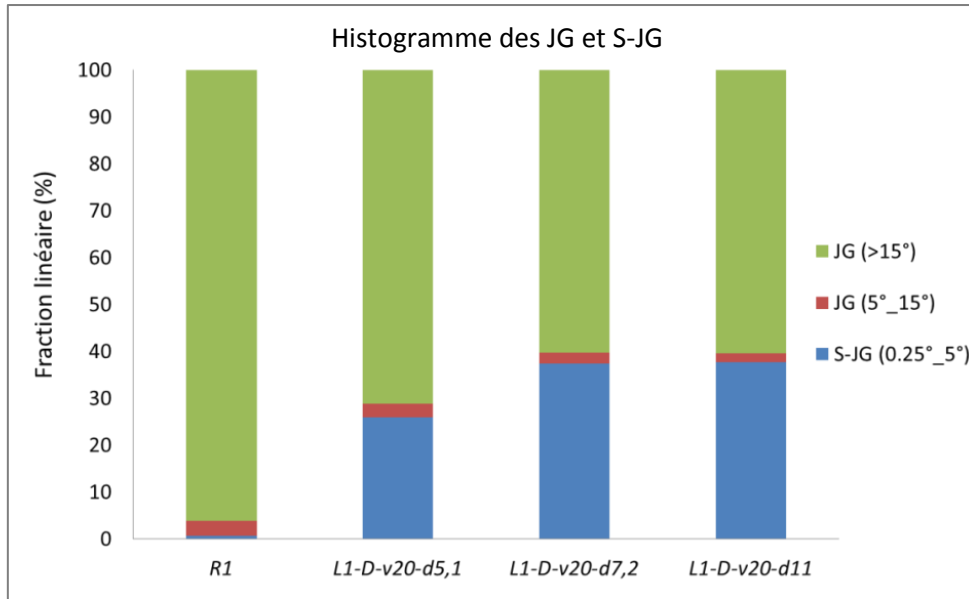


Angle de désorientation θ° 0,25 0,5 1 3 >5

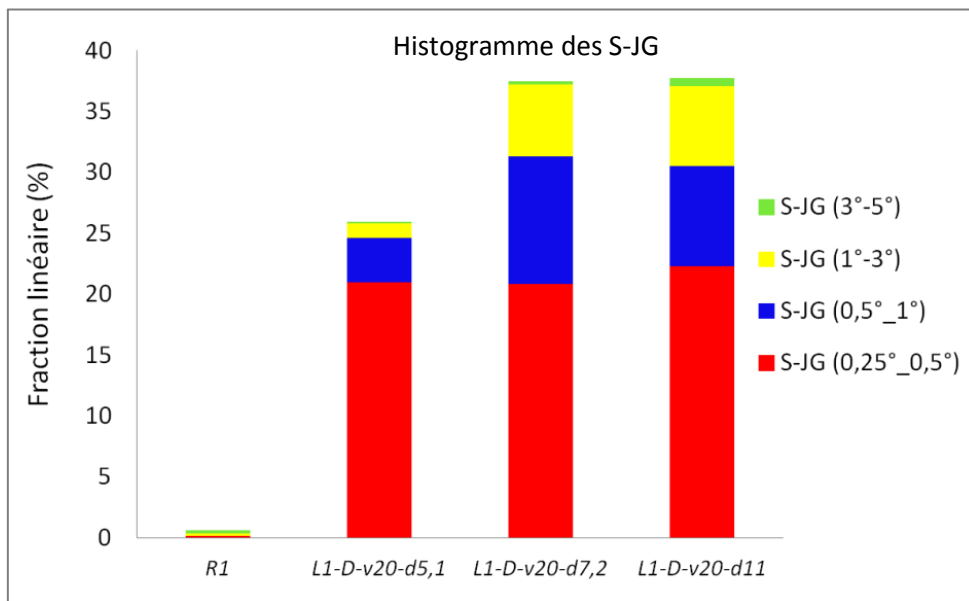
100 μm



Figure IV.9 : Cartes d'indice de qualité et de désorientations relatives aux échantillons du groupe G1_L1(v20).



(a)



(b)

Figure IV.10 : (a) Histogramme de fractions linéaires des JG et S-JG déduit des cartes EBSD des échantillons du groupe G1_L1(v20), (b) zoom sur les S-JG. Dans b, le même code de couleur, que celui utilisé dans les cartes EBSD, a été utilisé pour présenter les S-JG.

IV. 4. 2. Influence de la vitesse de déformation

Les deux groupes de pastilles G2_L1(d7) et G3_L1(d11) permettent d'étudier l'effet de la vitesse de déformation sur la microstructures de pastilles déformées respectivement à 7% et à 11%. Le tableau IV.5, regroupe les principales données relatives aux essais mécaniques réalisés sur ces pastilles.

Tableau IV.5 : Caractéristiques des essais DVC réalisés sur les pastilles des groupes G2_L1(d7) et G3_L1(d11)

Echantillon	Vitesse de déformation arrondie $\times 10^{-6}$ (s^{-1})	Taux de déformation (%)	Durée de l'essai
G2_L1(d7) avec un taux de déformation $\approx 7\%$			
R1	/	/	/
L2-D-v1-d7	1	6,6	20 h 25 min
L2-D-v5-d7	5	6,3	4 h 10 min
L2-D-v20-d7	20	7,2	1 h 10 min
G3_L1(d11) avec un taux de déformation $\approx 11\%$			
R1	/	/	/
L1-D-v5-d11,2	5	11,2	7 h 14 min
L1-D-v20-d12	20	12	2 h
L1-D-v70-d11	70	11	30 min
L1-D-v100-d11	100	11	23 min

IV. 4. 2. 1. Cas du groupe G2_L1(d7)

Les figures IV.11 et IV.12 présentent respectivement des micrographies BSE et des cartes EBSD relatives au groupe G2_L1(d7). La comparaison des micrographies montre clairement que la densité de S-JG augmente avec la vitesse de déformation. Au niveau de la porosité, aucune évolution notable n'a été constatée.

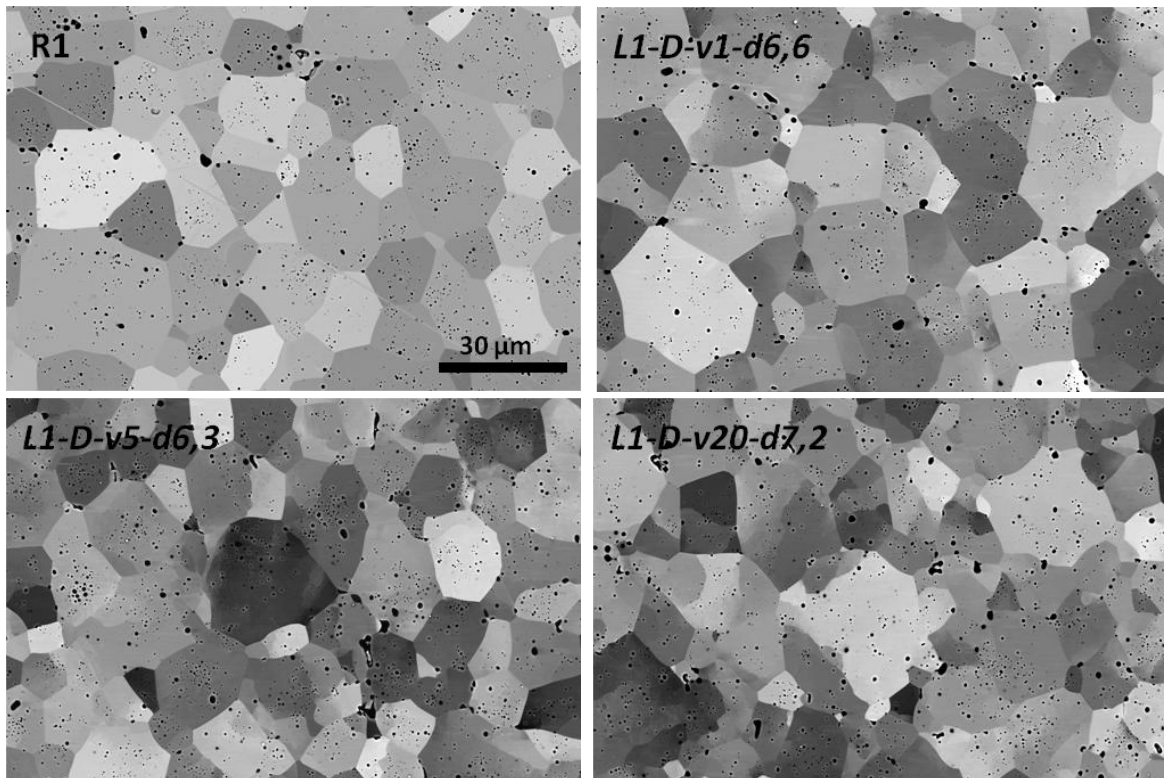
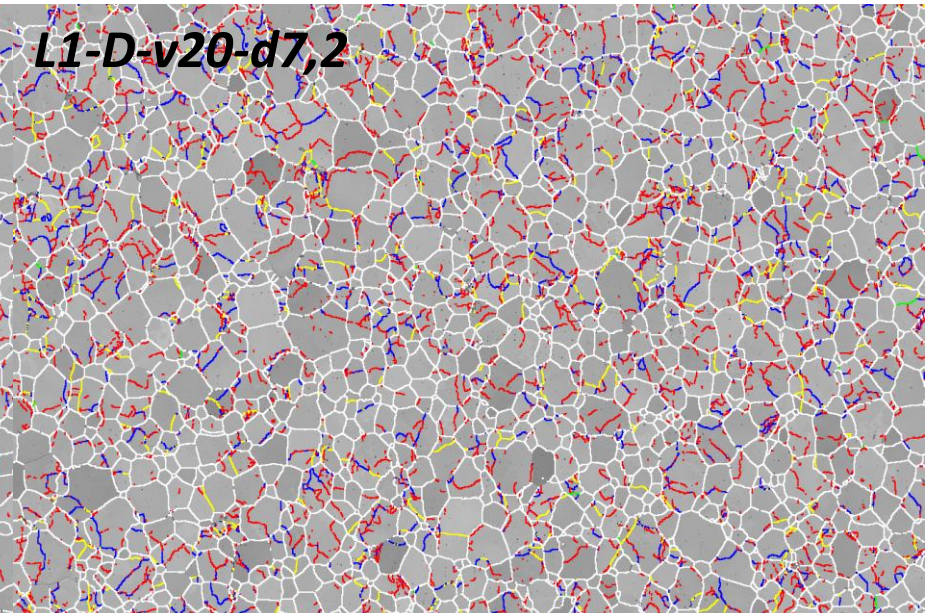
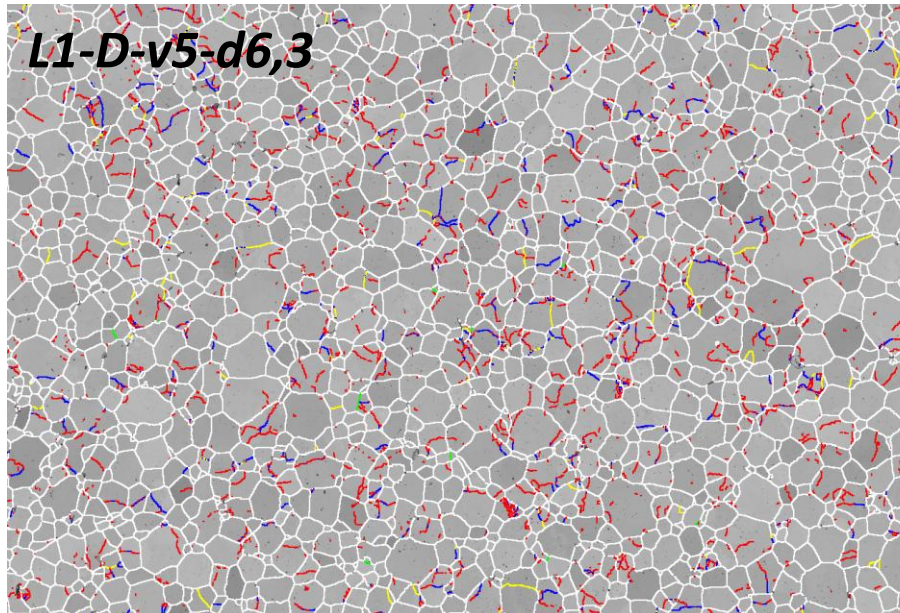
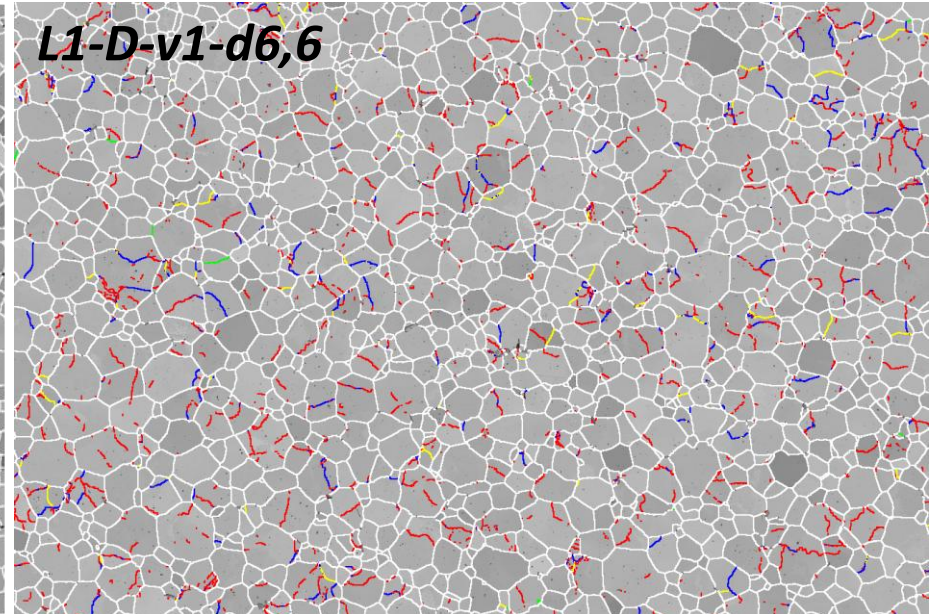
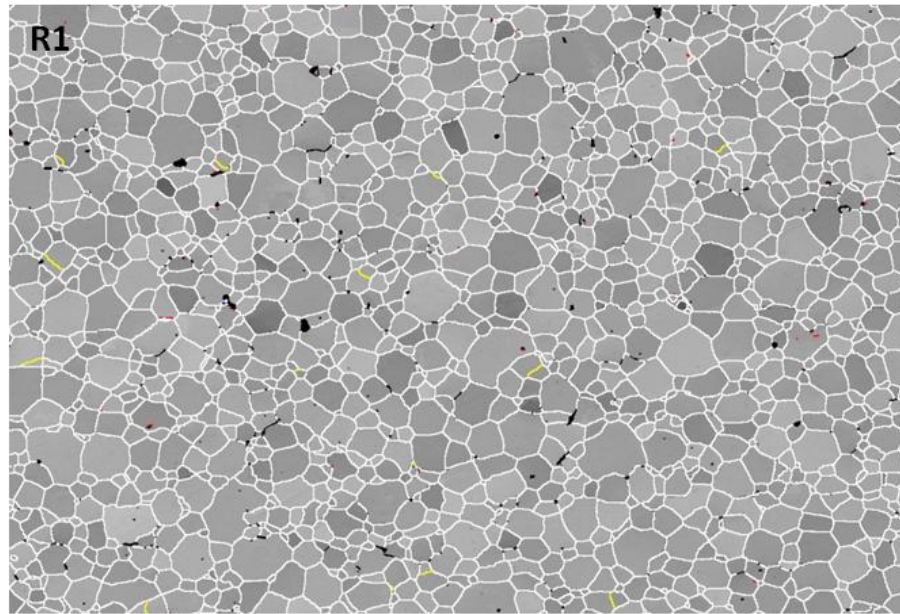


Figure IV.11 : Micrographies BSE acquises sur l'échantillon R1 et les trois échantillons du groupe G2_L1(d7).



Code de couleur



Angle de désorientation θ° 0,25 0,5 1 3 >5

100 μm

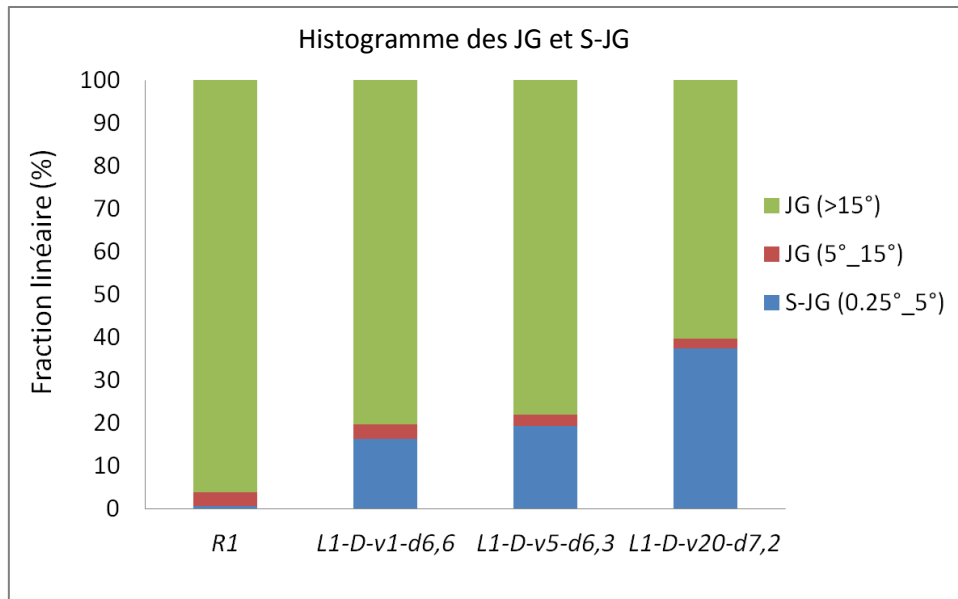
Figure IV.12 : Cartes d'indice de qualité et de désorientations obtenues sur les échantillons du groupe G2_L1(d7).

Les fractions linéaires de JG et de S-JG sont quantifiées dans le tableau IV.6 et représentées sur la figure IV.13. La fraction linéaire totale de S-JG augmente avec la vitesse de déformation : négligeable dans l'état non déformé, elle atteint 16,36% après 7% de déformation à une vitesse de $\approx 1.10^{-6} \text{s}^{-1}$ puis plus du double (37,45%) pour une vitesse de $\approx 20.10^{-6} \text{s}^{-1}$ (Figure IV.13, tableau IV.6).

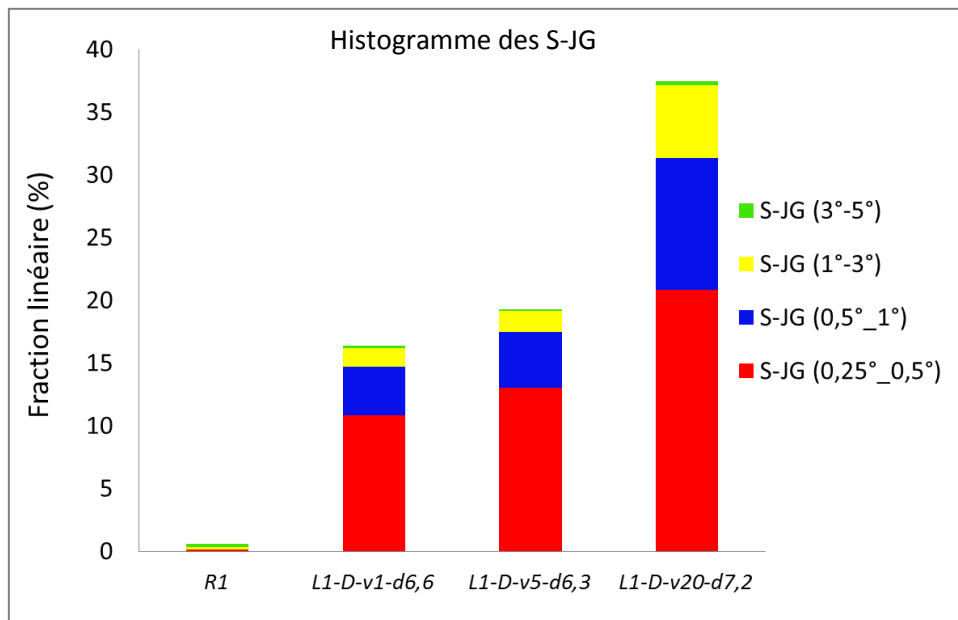
Tableau IV.6 : Quantification de la fraction linéaire de JG et S-JG, mesurée à partir des données EBSD acquises sur les échantillons du groupe de pastilles G2_L1(d7)

Désorientation θ°	<i>R1</i>	<i>L1-D-v1-d6,6</i>	<i>L1-D-v5-d6,3</i>	<i>L1-D-v20-d7,2</i>
Histogramme des JG et S-JG				
0,25°_5°	0,6	16,36	19,28	37,45
5°_15°	3,32	3,28	2,7	2,31
>15°	96,08	80,36	78,02	60,24
Histogramme des S-JG				
0,25°_0,5°	0,15	10,86	13,03	20,84
0,5°_1°	0,01	3,86	4,46	10,47
1°_3°	0,16	1,47	1,65	5,86
3°_5°	0,28	0,17	0,14	0,28

La figure IV.13b présente la répartition des S-JG dans l'intervalle de désorientation [0,25°-5°]. On remarque que l'augmentation de la fraction de S-JG affecte les 3 classes : ([0,25°-0,5°], [0,5°-1°] et [1°-3°]). Par contre, la classe la plus fortement désorientée ([3°-5°]) reste stable à une valeur très basse de 0,3% similaire à celle obtenue dans l'échantillon non déformé (R1).



(a)



(b)

Figure IV.13 : (a) Histogramme de fractions linéaires des JG et des S-JG, mesurées à partir des données EBSD acquises sur les échantillons du groupe de pastilles G2_L1(d7), (b) zoom sur les S-JG.

IV. 4. 2. 2. Cas du groupe G3_L1(d11)

Le groupe G3_L1(d11) a été déformé à différentes vitesses jusqu'à un taux de déformation plus élevé que le précédent, à savoir environ 11% (voir tableau IV.5). De plus, la gamme de vitesses de déformation est plus étendue : elle va de ≈ 5 à $\approx 100 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$.

L'observation des microstructures obtenues sur les échantillons correspondant à ce groupe (figure IV.14) ainsi que les résultats de l'analyse EBSD (figures IV.15 et IV.16, et tableau IV.7) confirment la tendance dégagée sur le groupe G2_L1(d7) : le nombre de S-JG augmente avec la vitesse de déformation. En effet, la fraction linéaire totale de ces S-JG, négligeable dans l'échantillon de référence, atteint 33,54% à une vitesse de $5 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ et 48,29% à une vitesse de $70 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ après

11% de déformation. La comparaison des deux échantillons *L1-D-v5-d11,2* et *L1-D-v70-d11* montre aussi que la fraction linéaire des S-JG augmente dans chaque classe de désorientation, y compris la plus élevée ($[3^\circ-5^\circ]$).

On note aussi que l'échantillon *L1-D-v20-d12*, qui a été testé à $20 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$, présente une population totale de S-JG un peu plus faible que l'attendu, vraisemblablement du fait d'effets de dispersion expérimentale imputables soit aux conditions d'essais (les réglages de la machine, l'atmosphère régnant dans le four lors de l'essai ...), soit aux caractéristiques intrinsèques de la pastille testée (la présence d'hétérogénéités et/ou de défauts dans les pastilles, l'effet d'échantillonnage...).

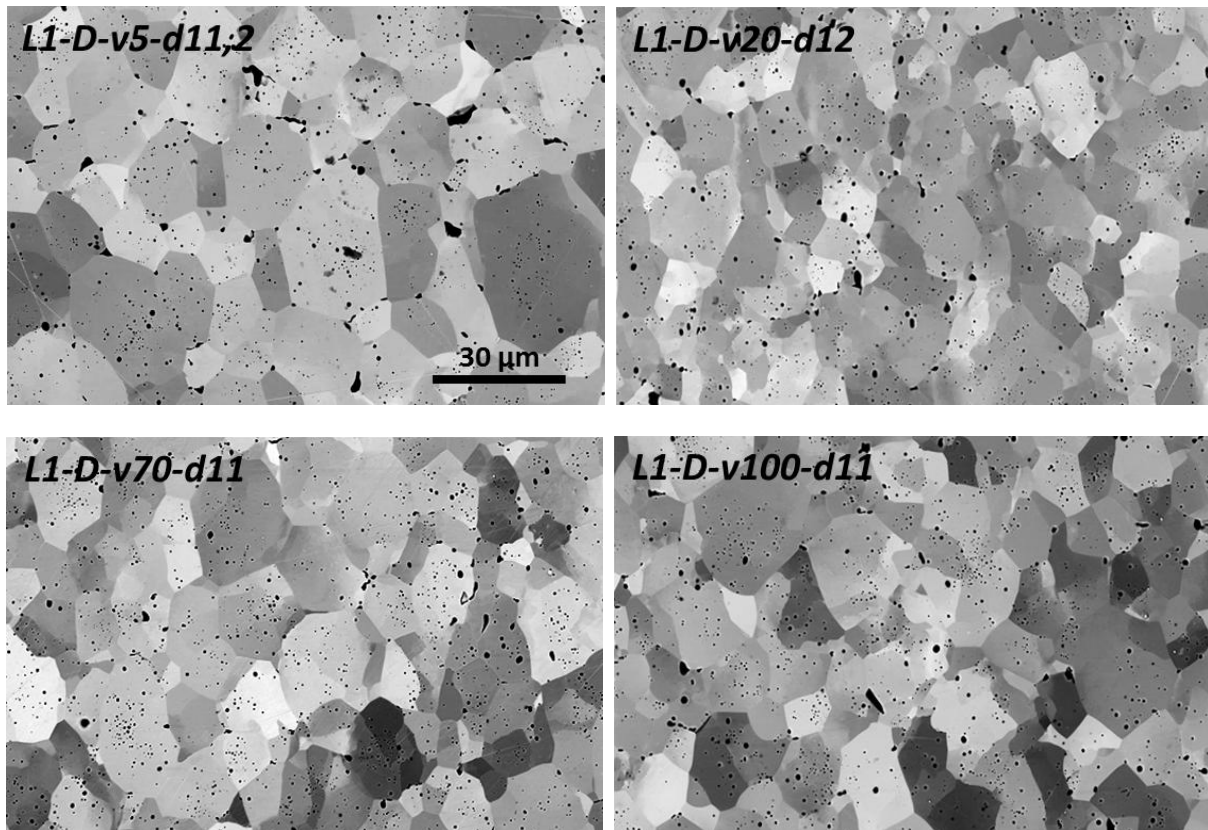
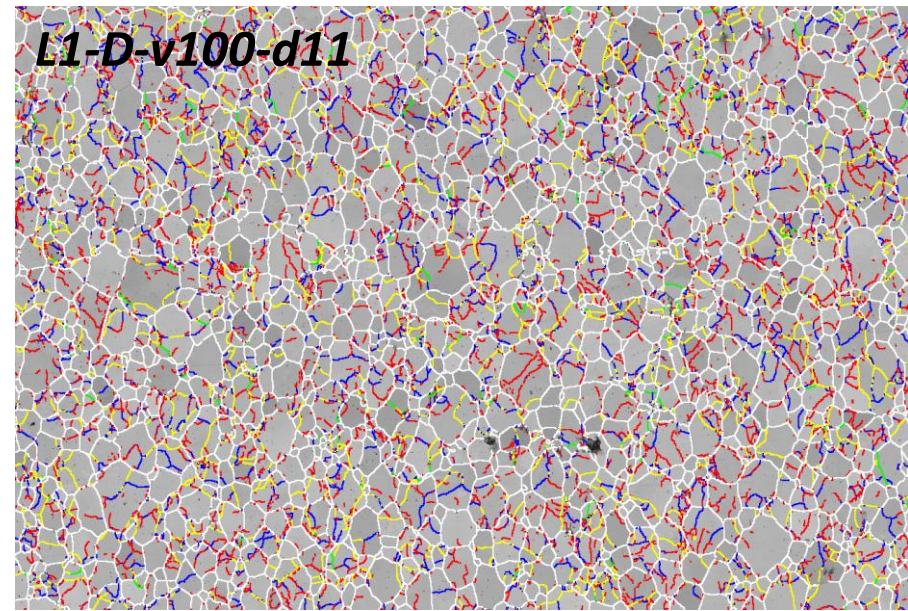
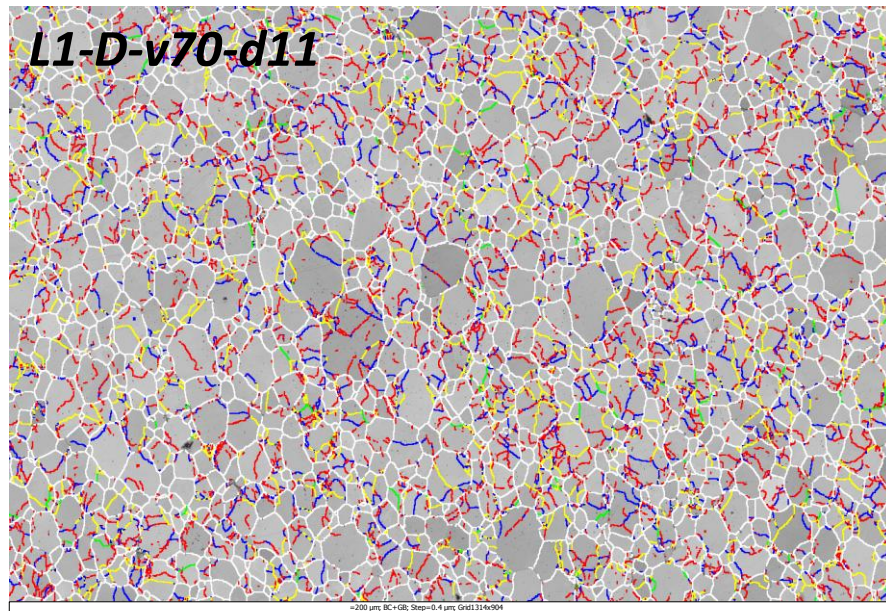
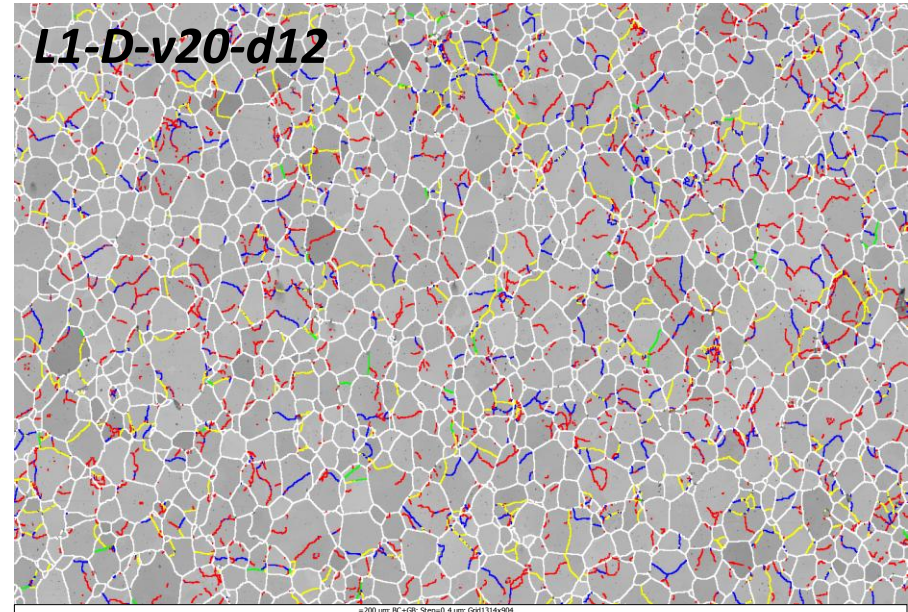
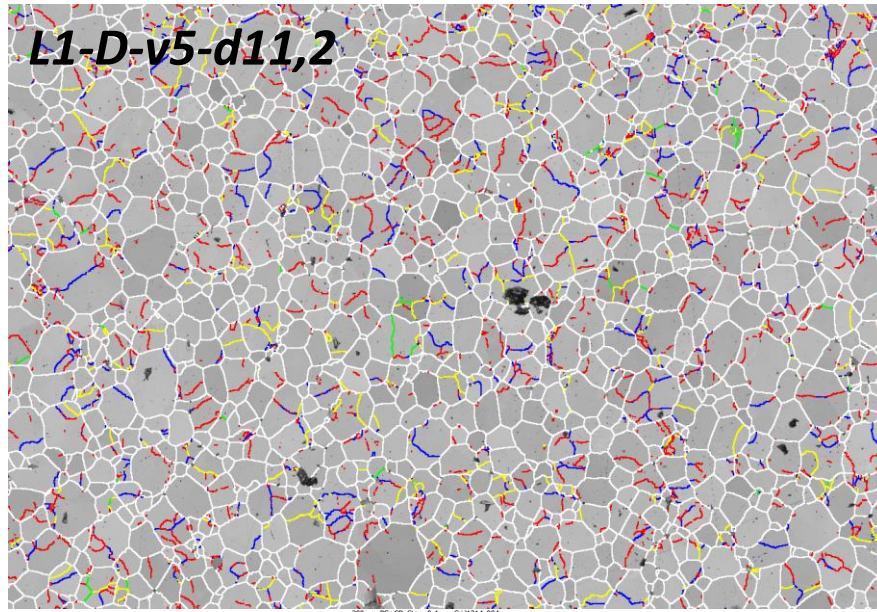


Figure IV.14 : Micrographies BSE acquises sur les échantillons déformés du groupe *G3_L1(d11)*, jusqu'à un taux final de l'ordre de 11%, à différentes vitesses.

Avec l'augmentation de la vitesse de déformation au-delà de v_{20} (v_{70} et v_{100}), la fraction de S-JG les plus fortement désorientés (en particulier la classe $[1^\circ-3^\circ]$: lignes colorées en jaune) augmente. Cette tendance, déjà amorcée sur le groupe précédent (déformé à 7%), est confirmée aux plus fortes vitesses sur le groupe *G3_L1(d11)*. En effet, la fraction de S-JG appartenant aux intervalles $[1^\circ-3^\circ-5^\circ]$ passe de 7,48% à 15,57% lorsque la vitesse de déformation passe de ≈ 5 à $100 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$. Ainsi l'augmentation de la vitesse de déformation se traduirait non seulement par l'augmentation du nombre de S-JG mais aussi de leur niveau moyen de désorientation.



Code de couleur



Angle de désorientation θ° 0,25 0,5 1 3 >5

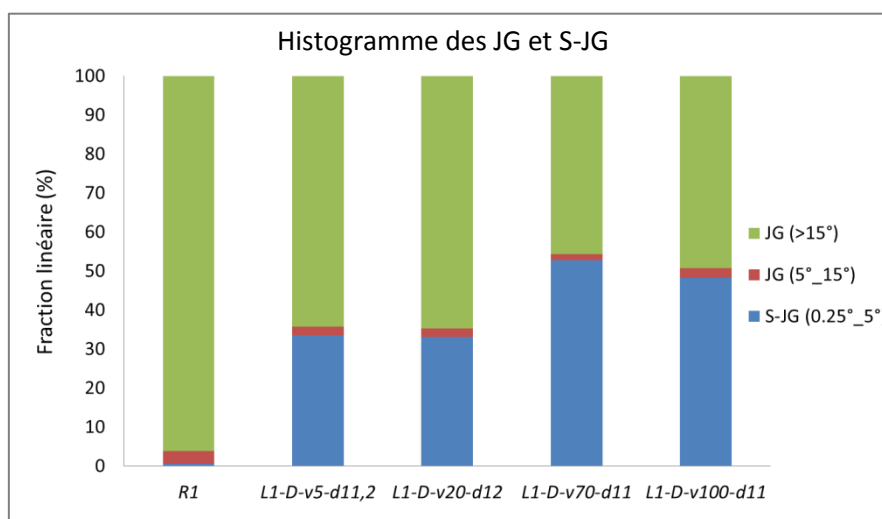
100 µm



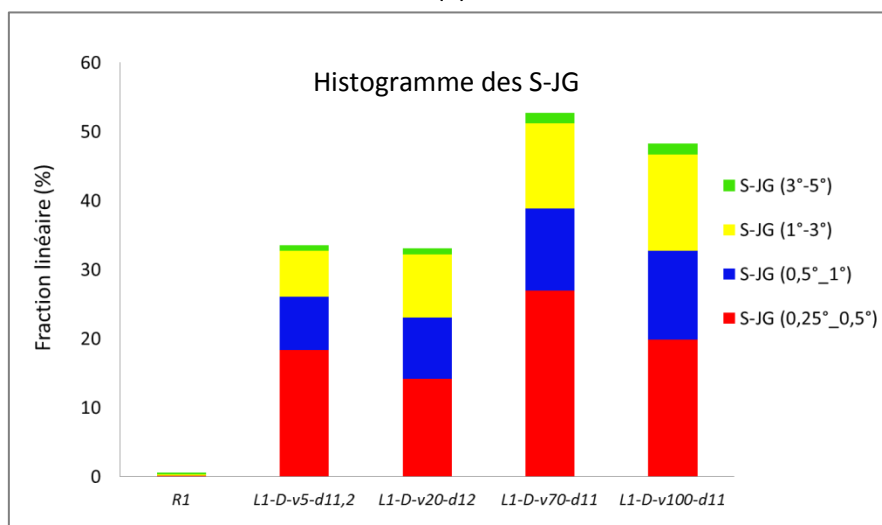
Figure IV.15 : Cartes d'indice de qualité et de désorientations relatives aux échantillons du groupe G3_L1(d11)

Tableau IV.7 : Quantification des fractions linéaires des JG et S-JG, à partir des données EBSD des échantillons du groupe de pastilles G3_L1(d11)

Désorientation θ°	R1	L1-D-v5-d11,2	L1-D-v20-d12	L1-D-v70-d11	L1-D-v100-d11
Histogramme des JG et S-JG					
0,25°_5°	0,6	33,54	33,10	52,75	48,30
5°_15°	3,32	2,19	2,22	1,59	2,42
>15°	96,08	64,27	64,68	45,66	49,28
Histogramme des S-JG					
0,25°_0,5°	0,15	18,35	14,19	27	19,87
0,5°_1°	0,01	7,71	8,85	11,90	12,86
1°_3°	0,16	6,71	9,18	12,33	13,97
3°_5°	0,28	0,77	0,88	1,52	1,60



(a)



(b)

Figure IV.16 : (a) Histogramme des fractions linéaires de JG et S-JG, déduites des données EBSD acquises sur les échantillons du groupe de pastilles G3_L1(d11), (b) zoom sur les S-JG.

Le nombre de S-JG augmente avec la vitesse de déformation mais aussi avec le niveau de déformation, comme cela a déjà été montré dans le groupe G1_L1(v20) (cf. paragraphe IV. 4. 1). Lorsqu'on compare par exemple G2_L1(d7) et G3_L1(d11), pour une même vitesse de déformation de 5.10^{-6} s^{-1} , la fraction linéaire totale des S-JG va de 19,28% dans l'échantillon *L1-D-v5-d6,3* à 33,55% dans l'échantillon *L1-D-v5-d11,2*.

Si on se concentre maintenant sur les résultats relatifs à l'échantillon *L1-D-v100-d11* déformé à $\approx 100.10^{-6} \text{ s}^{-1}$, on remarque qu'il n'y a plus d'augmentation de la fraction linéaire de S-JG, mais plutôt une légère diminution par rapport à l'essai effectué à $70.10^{-6} \text{ s}^{-1}$. Si l'on admet que le résultat obtenu est bien significatif, il pourrait traduire un effet de « saturation » de la microstructure en S-JG. En fait, il ne se formerait plus de nouveaux S-JG mais ceux existants évolueraient vers une désorientation de plus en plus importante jusqu'à ce que celle-ci dépasse 5° , seuil à partir duquel les S-JG sont comptabilisés comme étant des JG, d'après la convention que nous avons choisie dans cette étude. Cette hypothèse tend à être confirmée par les résultats des fractions linéaires des JG et des S-JG des deux échantillons *L1-D-v70-d11* et *L1-D-v100-d11* (voir tableau IV.7 et figure IV.16). En effet, l'échantillon *L1-D-v100-d11* présente une fraction linéaire de S-JG qui appartient aux classes $[1-3^\circ]$ et $[3-5^\circ]$ plus élevée que celle de l'échantillon *L1-D-v70-d11*. En outre, une augmentation de la fraction linéaire des JG de désorientation comprise entre 5° et 15° est observée : elle passe de 1,59% dans l'échantillon *L1-D-v70-d11* à 2,42% dans l'échantillon *L1-D-v100-d11*.

IV. 4. 3. Cas d'une pastille déformée à vitesse et taux de déformation élevés

Nous allons enfin nous intéresser à un état de déformation plus élevé (16%), obtenu avec une vitesse de déformation de $\approx 100.10^{-6} \text{ s}^{-1}$. Notre objectif est de vérifier si, à partir d'un certain niveau de vitesse et de taux de déformation, la population de S-JG sature, mais qu'en moyenne la désorientation de ces S-JG continue à augmenter, jusqu'à former de nouveaux grains désorientés de plus de 5° .

La carte EBSD relative à cet échantillon est présentée sur la figure IV.17. La fraction linéaire totale des S-JG a été quantifiée et vaut 52,63%. Elle n'augmente que légèrement par rapport à la valeur trouvée dans l'échantillon *L1-D-v100-d11*, sachant qu'il y a 5 % d'écart dans le taux de déformation de ces deux échantillons. Ce résultat tend à confirmer une saturation de la population de S-JG.

La carte EBSD révèle la présence de nombreux S-JG ayant des désorientations comprises entre 1° et 3° et entre 3° et 5° (colorés respectivement en jaune et vert). La quantification des fractions linéaires de ces S-JG, en particulier pour la classe $[3^\circ-5^\circ]$, permet effectivement de conclure à un quasi doublement de cette classe, par rapport à l'échantillon *L1-D-v100-d11* (3,51% au lieu de 1,60%). On constate aussi que la fraction linéaire des joints de désorientation comprise entre 5° et 15° continue à augmenter (2,83% au lieu de 2,42%), (apparition de nouveaux grains dans le matériau).

Les résultats obtenus sur l'échantillon *L1-D-v100-d16^o* confirment donc une saturation de la population de S-JG à partir de certaines conditions d'essai (vitesse : $70.10^{-6} \text{ s}^{-1}$ /taux de déformation : 11%) et une augmentation de la désorientation des S-JG les plus fortement désorientés (classes $[1^\circ-5^\circ]$), certains devenant comptabilisés comme des JG.

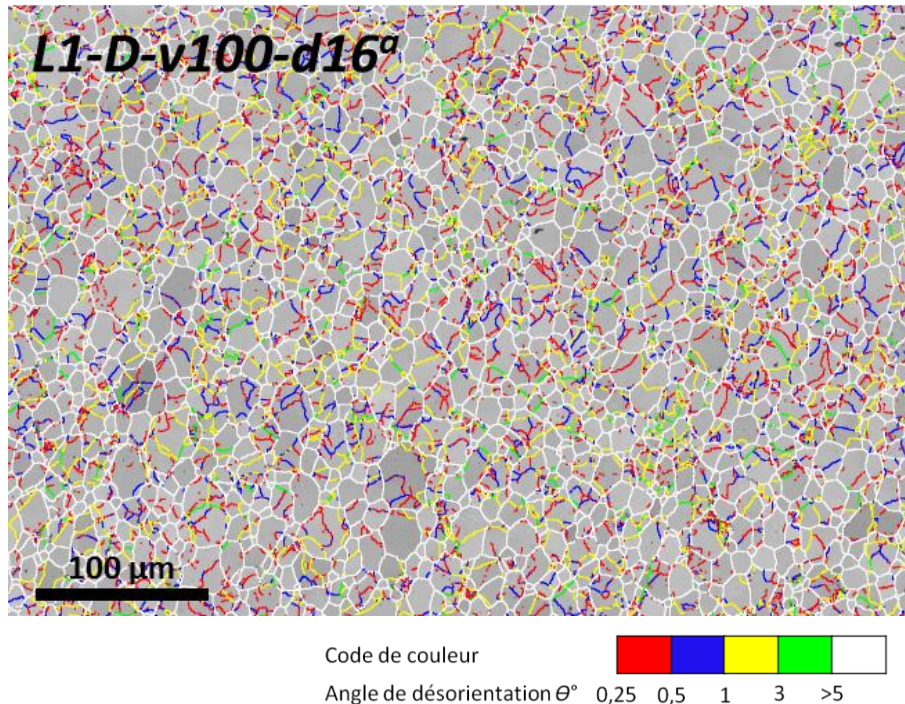


Figure IV.17 : Carte d'indice de qualité et de désorientation acquise sur l'échantillon L1-D-v100-d16^a.

On remarque aussi que l'échantillon L1-D-v100-d16^a présente localement de petites cavités (figure IV.18), de faciès similaire à celui rapporté par divers auteurs (dont [Dherbey 2000]). Leur apparition pourrait être la signature d'une évolution, d'abord locale, vers un régime de fluage tertiaire.

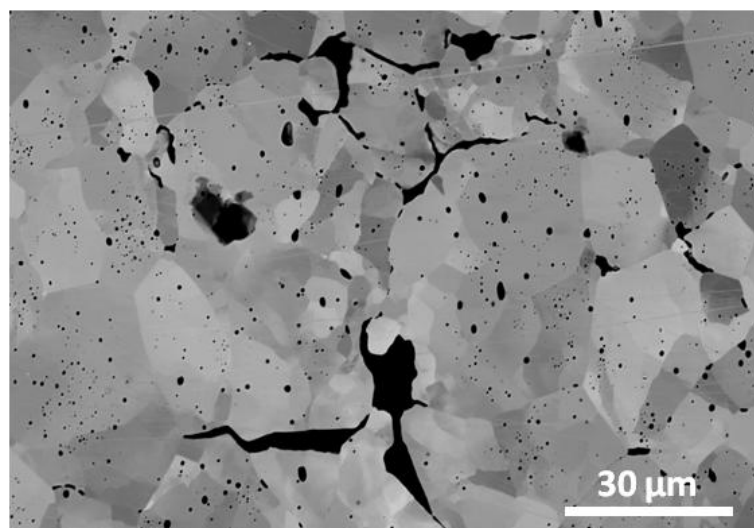


Figure IV.18 : Micrographie BSE montrant la présence de petites cavités inter-granulaires dans l'échantillon L1-D-v100-d16^a.

IV. 4. 4. Quantités additionnelles déduites des données EBSD

La taille des sous-grains et la densité moyenne des GNDs peuvent être déduites des cartes EBSD exploitées précédemment. Ces grandeurs apportent des informations complémentaires sur l'évolution de la sous-structure.

IV. 4. 4. 1. Evolution de la taille des sous-grains avec la déformation

Compte-tenu des résultats précédemment décrits, la vitesse de déformation influencerait sur le morcellement des grains en sous-grains ainsi que sur la désorientation des S-JG. Une façon de le vérifier est de mesurer la taille des grains et des sous-grains, à partir des cartes EBSD. La procédure de détection des grains et des sous-grains précédemment décrite dans le chapitre III (cf. paragraphe III. 4. 4) a été appliquée sur toutes les cartes EBSD acquises sur les échantillons des deux groupes G2_L1(d7) et G3_L1(d11) ainsi que sur l'échantillon *L1-D-v100-d16^a* qui a été déformé jusqu'à 16%. Les résultats obtenus sont regroupés dans le tableau IV.8. On n'a pris en compte que les grains à partir d'une aire seuil égale à $1,44 \mu\text{m}^2$ (ce qui correspond à $(3 \times \text{pas d'acquisition des cartes EBSD})^2$, selon la norme [Norme AFNOR ISO 13067]). Ce seuil a été aussi appliqué dans le cas des sous-grains.

Tableau IV.8 : Tailles moyenne des grains et sous-grains calculées dans G2_L1(d7) et G3_L1(d11)

Echantillon	Taille moyenne de grains	Taille moyenne de sous-grains
Groupe G2_L1(d7)		
<i>L1-D-v1-d6,6</i>	12,03	8,29
<i>L1-D-v5-d6,3</i>	11,48	7,45
<i>L1-D-v20-d7,2</i>	12,3	5,85
Groupe G3_L1(d11)		
<i>L1-D-v5-d11,2</i>	12,38	7,32
<i>L1-D-v20-d12</i>	12,1	6,94
<i>L1-D-v70-d11</i>	11,95	4,93
<i>L1-D-v100-d11</i>	11,94	4,93
A forts taux et vitesse de déformation		
<i>L1-D-v100-d16^a</i>	11,11	4,7

La taille moyenne de grains calculée à partir de toutes les cartes rentre dans la fourchette de la taille initiale déterminée dans le chapitre II à partir de plusieurs échantillons de référence ($12 \pm 1 \mu\text{m}$). Pour l'échantillon déformé à 16%, elle est la plus faible trouvée ($11,1 \mu\text{m}$), ce qui est cohérent avec la formation d'une fraction de nouveaux grains, du fait de la forte désorientation atteinte par certains S-JG ($> 5^\circ$).

La figure IV.19 présente l'évolution de la taille des sous-grains avec la déformation. Cette taille diminue avec l'augmentation de la vitesse de déformation (cf. tableau IV.8 et figure IV.19). Elle est d'environ $4,9 \mu\text{m}$ dans les deux échantillons *L1-D-v70-d11* et *L1-D-v100-d11* et est légèrement plus faible dans le cas de l'échantillon *L1-D-v100-d16^a* ($4,7 \mu\text{m}$). En tout cas, il semble y avoir une certaine stabilisation de cette taille.

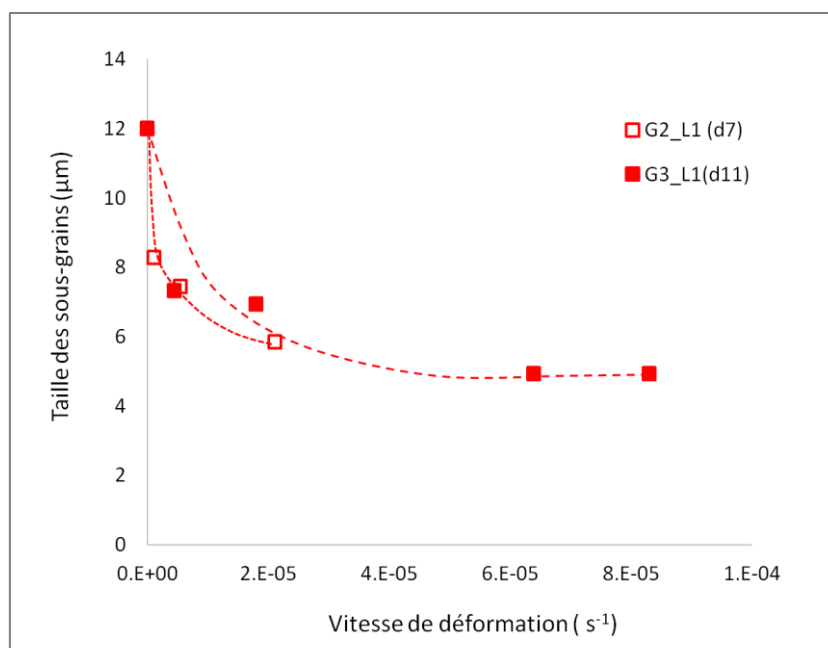


Figure IV.19 : Evolution de la taille des sous-grains en fonction de la vitesse de déformation.

IV. 4. 4. 2. Evolution de la densité des GNDs avec la déformation

Le tableau IV.9 regroupe les résultats des calculs de densité moyenne de GNDs effectués au moyen du logiciel Atom à partir des cartes EBSD relatives aux échantillons des trois groupes considérés précédemment.

Tableau IV.9 : Quantification de la densité des GNDs à partir des données EBSD des échantillons des groupes G1_L1(v20), G2_L1(d7) et G3_L1(d11)

Groupe de pastilles	Echantillon	$\ GNDs\ \times 10^{12} \text{ m}^{-2}$
Groupe G1_L1(v20)	L1-D-v20-d5,1	3,9
	L1-D-v20-d7,2	6,2
	L1-D-v20-d11	6,25
Groupe G2_L1(d7)	L1-D-v1-d6,6	3
	L1-D-v5-d6,3	3,64
	L1-D-v20-d7,2	6,2
Groupe G3_L1(d11)	L1-D-v5-d11,2	4,88
	L1-D-v20-d12	5,4
	L1-D-v70-d11	10,2
	L1-D-v100-d11	10,2
A forte vitesse et taux de déformation	L1-D-v100-d16 ^a	10,8

Les figures IV.20 et IV.21 présentent respectivement l'évolution de la densité de GNDs, en fonction du taux de déformation et de la vitesse de déformation. Dans les deux figures, le premier point sur l'axe Y représente la densité de GNDs, évaluée à partir de la carte EBSD de l'échantillon de référence R1, qui correspond au bruit de mesure ($1,94 \cdot 10^{12} \text{ m}^{-2}$). Les évolutions constatées

reproduisent logiquement celles des fractions de S-JG, y compris en ce qui concerne une saturation aux fortes vitesses et déformations (cf. figure IV.21).

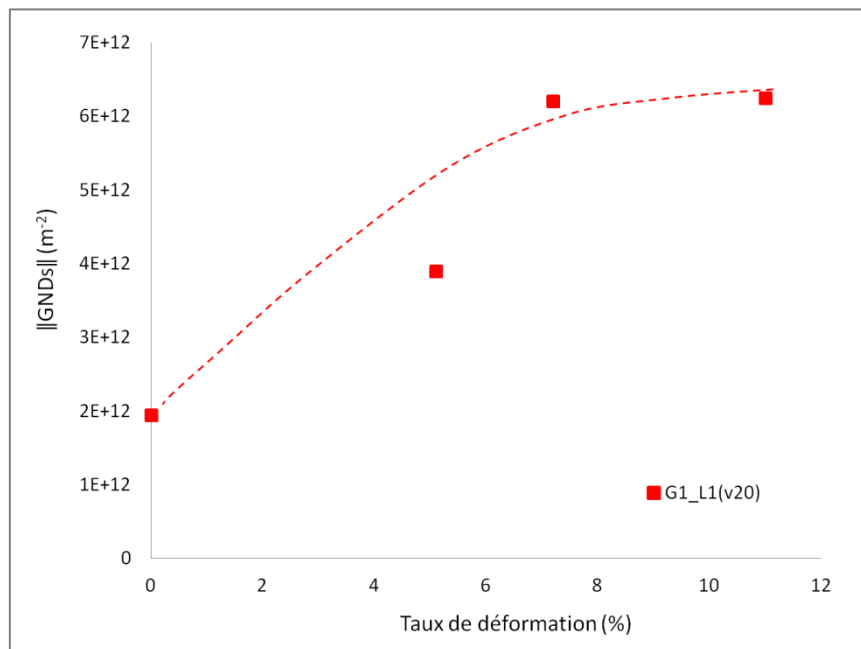


Figure IV.20 : Evolution de la densité de GNDs en fonction du taux de déformation dans le groupe G1_L1(v20).

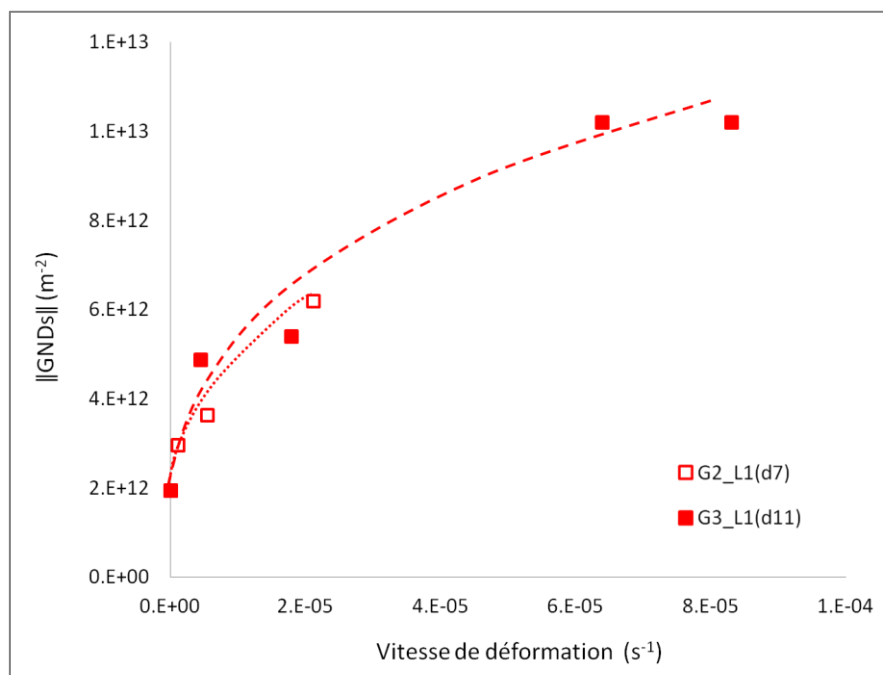


Figure IV.21 : Evolution de la densité de GNDs en fonction de la vitesse de déformation dans les groupes G2_L1(d7) et G3_L1(d11).

La vitesse de déformation n'a pas seulement une influence sur la densité des GNDs mais aussi sur leur distribution au sein des grains (traduite par la localisation des S-JG). La figure IV.22 présente deux parties zoomées des cartes de densité des GNDs relatives aux échantillons L1-D-v5-

d11,2 et *L1-D-v100-d11*. Ceux-ci ont été déformés respectivement à $\approx 5.10^{-6} \text{ s}^{-1}$ et à $\approx 100.10^{-5} \text{ s}^{-1}$. On rappelle que la durée des essais correspondants était nettement différente : 438 et 23 min, respectivement.

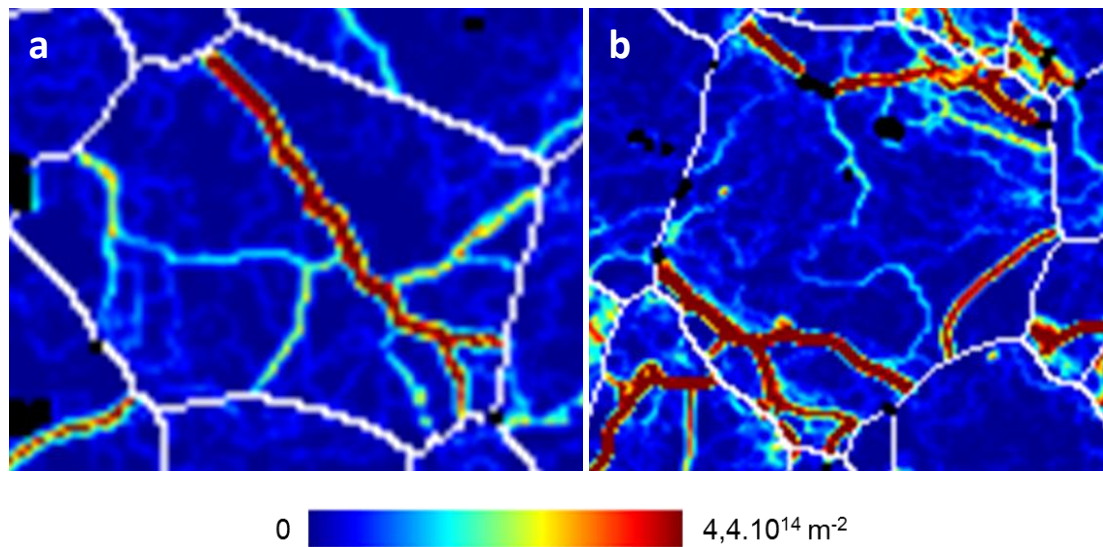


Figure IV.22 : Influence de la vitesse de déformation sur la distribution des GNDs dans les échantillons (a) *L1-D-v5-d11,2*, (b) *L1-D-v100-d11*.

La comparaison des figures IV.22a et b montre que les S-JG sont localisés au sein des grains dans l'échantillon *L1-D-v5-d11,2* alors que dans le cas de l'échantillon *L1-D-v100-d11*, les S-JG se situent essentiellement à proximité des JG. Ceci est vraisemblablement dû à la différence de durée des deux essais. En effet, lors du fluage, les dislocations sont créées probablement plutôt au voisinage des joints de grains (en raison notamment d'incompatibilités de déformation élastique et plastique entre les grains). Ces dislocations migrent et se réarrangent ensuite en sous-joints. La durée de l'essai affecte leurs possibilités de migration : lorsque celle-ci est très réduite (comme c'est le cas pour l'échantillon *L1-D-v100-d11*), elles s'organisent pour former des S-JG situés plutôt à proximité des JG initiaux. Il s'agit là de tendances car la localisation des S-JG est également affectée par les pores intra-granulaires, comme on le verra dans le chapitre V.

VI. 5. Effet de différents paramètres expérimentaux sur les grandeurs déterminées par EBSD

IV. 5. 1. Localisation de la zone la plus déformée dans les pastilles testées mécaniquement

Dans cette étude, la caractérisation des microstructures déformées a systématiquement été réalisée au moyen de cartes EBSD acquises dans la partie centrale des pastilles. Du fait de leur sollicitation en compression et de leur mise en tonneau (relativement modérée, vu l'élanement des pastilles utilisées), c'est en effet dans cette zone que la déformation et ses conséquences sur la microstructure sont a priori maximales.

Afin de le vérifier et de connaître la répartition des évolutions mesurées par EBSD dans la coupe longitudinale d'une pastille, une série de cartes a été acquise sur $\frac{1}{4}$ de la section de l'échantillon *L1-D-v40-d7,8* selon les axes X (nommées respectivement X1, X2, X3 et X4) et Y (nommées respectivement Y1, Y2 et Y3) (figure IV.23).

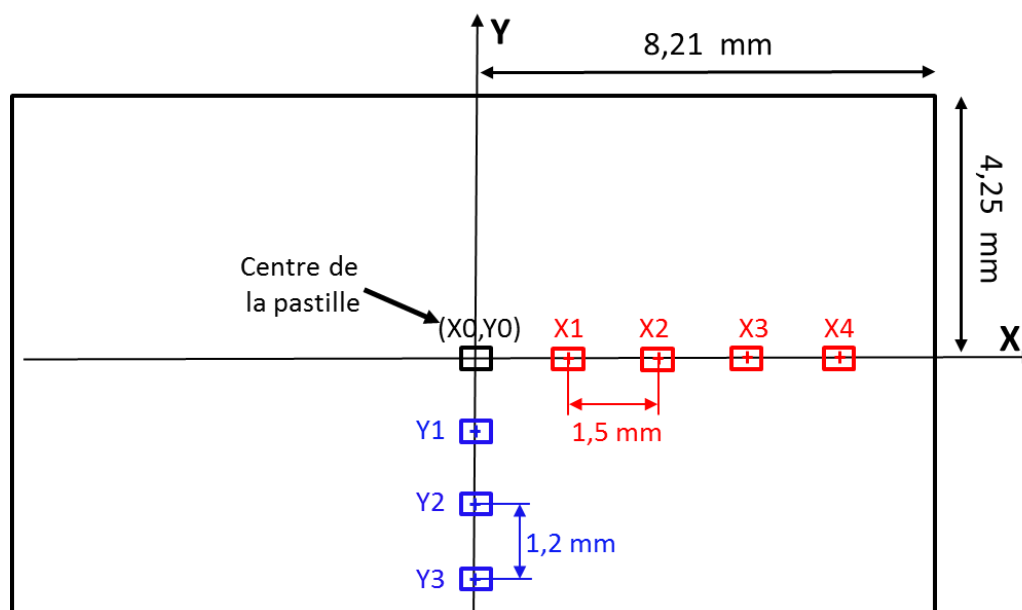


Figure IV.23 : Représentation schématique des positions d'acquisition des cartes EBSD sur un échantillon du lot L1 déformé à 7,8% (L1-D-v40-d7,8). L'axe X correspond à la direction de compression de la pastille et l'axe Y correspond à sa direction radiale.

La fraction linéaire des S-JG ($0,25^\circ < \theta < 5^\circ$) a été quantifiée à partir de chaque carte EBSD et est présentée sur la figure IV.24 en fonction de la position selon les deux axes X et Y. En partant du centre et en allant vers le bord de la pastille, on constate que la fraction linéaire des S-JG diminue. Cette évolution est surtout remarquable selon l'axe de compression (axe X), avec une chute marquée au-delà d'une position située à 3 mm du centre (X_0, Y_0). La fraction mesurée passe ainsi d'environ 34,5% (X_0 , centre de la pastille) à 11,3% à une position $X_3=4,5$ mm et à 2% pour $X_4=6$ mm. L'abaissement de la fraction des S-JG selon l'axe radial (axe Y) est léger : cette fraction passe de 38,3% au centre (X_0) à 32,7% à une position $Y_3=3,6$ mm qui est voisine du bord de la pastille.

Les résultats obtenus permettent de conclure que la zone la plus affectée par l'essai de compression est localisée au centre de la pastille et est à peu près homogène sur un carré d'arête de l'ordre de 6 mm. Même si ce résultat concerne un échantillon spécifique, il conforte le fait que les cartes EBSD réalisées en partie centrale des échantillons, sur des surfaces de l'ordre de $0,2 \text{ mm}^2$, sont bien représentatives de leur état microstructural après déformation, sur une surface proche de 40 mm^2 .

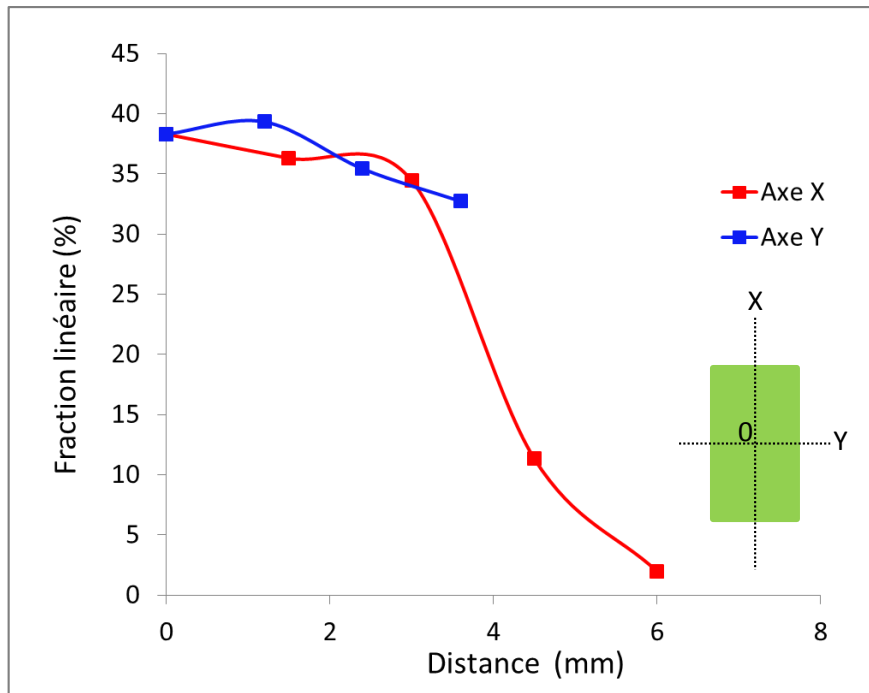


Figure IV.24 : Evolution de la fraction linéaire des sous-joints de grain en fonction de la position des cartes dans la section de la pastille.

IV. 5. 2. Reproductibilité des essais mécaniques et des résultats des caractérisations par EBSD

Dans le cadre de cette étude, il n'a pas été possible de répéter un grand nombre d'essais pour en évaluer la reproductibilité, en raison de la disponibilité limitée de la machine de compression. Ainsi que cela a déjà été discuté dans le chapitre II, on a en tout cas pu constater une variabilité liée aux campagnes d'essais lorsque celles-ci étaient séparées dans le temps par une période de plusieurs mois. Nous avons comparé les résultats relatifs aux essais $L1-D-v100-d16^a$ et $L1-D-v100-d16^b$ qui ont été réalisés sur 2 jours consécutifs afin de garder le même environnement de travail. On s'intéressera à la reproductibilité de l'essai lui-même, en termes de contraintes atteintes, mais aussi en termes de conséquences sur la microstructure, telles que caractérisées par EBSD.

La figure IV.25 présente les courbes $\sigma = f(\epsilon)$ correspondant à ces deux essais. Elle montre une relativement bonne reproductibilité des résultats, même si les contraintes finales sont un peu différentes : 72 MPa pour $L1-D-v100-d16^a$, contre 67 MPa pour $L1-D-v100-d16^b$.

Cette variabilité est imputable à différents facteurs tels que : le positionnement de la pastille entre les cales de la machine d'essai, un effet « matériau » (les pastilles n'étant pas toutes strictement identiques), le contrôle de l'atmosphère du four (dont la mise à l'équilibre est longue), etc. Malgré le grand soin apporté à la fabrication des pastilles et à la réalisation des essais, il en résulte une légère dispersion d'un essai à l'autre qui se traduit donc par une variabilité de quelques MPa sur la contrainte d'écoulement en régime stationnaire (pour les essais en DVC).

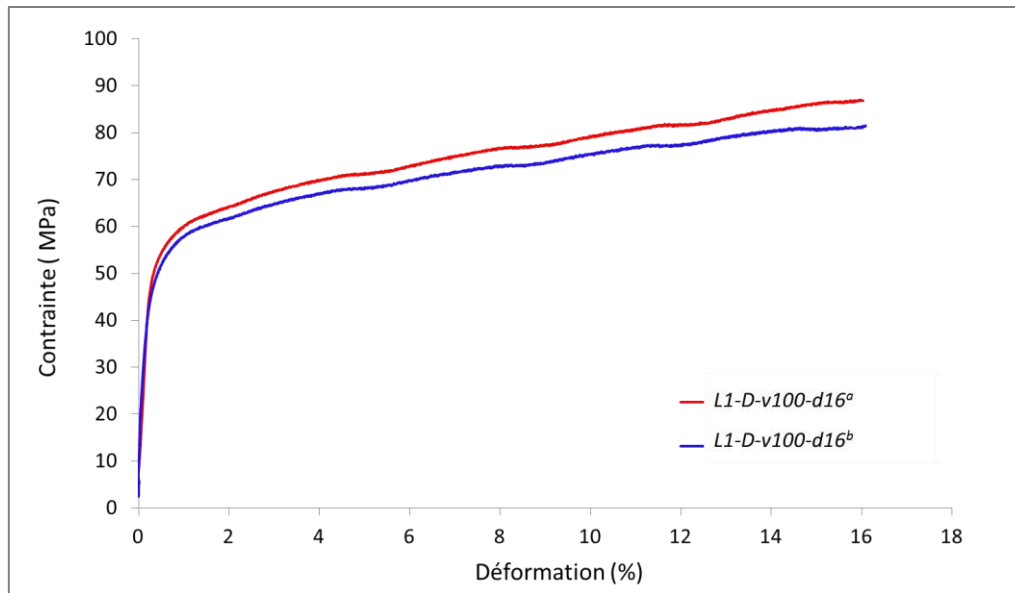


Figure IV.25 : Courbes de DVC des deux essais $L1-D-v100-d16^a$ et $L1-D-v100-d16^b$.

Les fractions linéaires des S-JG ont été quantifiées à partir des deux cartes EBSD acquises sur ces échantillons et elles sont présentées dans le tableau IV.10. La carte EBSD relative à l'échantillon $L1-D-v100-d16^a$ a été présentée dans le paragraphe IV. 4. 3 (Figure IV.17). Les résultats obtenus sont très cohérents. En effet, les fractions totales de sous-joints sont respectivement de 52,63% et 50,63%. Si l'on subdivise ces fractions totales en quatre catégories, on aboutit logiquement à des écarts encore plus faibles. Ces résultats illustrent la robustesse de notre protocole de caractérisation par EBSD. Il est toutefois difficile d'en tirer des barres d'erreur sur les fractions linéaires mesurées, applicables à tous les échantillons étudiés. **C'est pour cette raison que toutes les fractions linéaires présentées dans ce mémoire le sont sans barre d'erreur et sans arrondi.**

Tableau IV.10 : Fractions linéaires des JG et des S-JG calculées à partir des cartes EBSD acquises sur les deux échantillons $L1-D-v100-d16^a$ et $L1-D-v100-d16^b$

Désorientation θ°	$L1-D-v100-d16^a$	$L1-D-v100-d16^b$
0,25°_0,5°	22,83	21,91
0,5°_1°	10,70	10,82
1°_3°	15,59	14,90
3°_5°	3,51	3
0,25°_5°	52,63	50,63
5°_15°	2,83	2,65
>15°	44,54	46,72

IV. 5. 3. Comparaison d'un essai de fluage et d'un essai de DVC, réalisés dans des conditions similaires

La majorité des essais de compression réalisés au cours de cette étude sont des essais de DVC car ils présentaient l'avantage de pouvoir être arrêtés une fois le taux de déformation souhaité atteint. Néanmoins, la diminution de la vitesse de déformation engendre une augmentation très marquée des fluctuations sur la contrainte comme cela a été présenté dans le chapitre II (paragraphe

II. 5. 3. 1). C'est pour cette raison que nous avons décidé de réaliser les essais de compression à basse vitesse de déformation non pas en DVC mais en fluage. Au final, notre grille d'essais comporte des essais de fluage et des essais en DVC. Afin de vérifier si ces deux types d'essais conduisent à des microstructures similaires, nous avons comparé des cartes EBSD acquises sur des échantillons testés respectivement en DVC (*L1-D-v5-d6,3*) et en fluage (*L1-F-c50-d7,8*). Dans le cas de l'essai en DVC, la contrainte « stationnaire » déterminée en fin d'essai était de 51 MPa, contre 50 MPa pour l'essai de fluage. On notera que les taux de déformation de ces deux échantillons étaient un peu différents : 6,3% pour l'essai de DVC, contre 7,6% pour l'essai de fluage (qui n'a malheureusement pas pu être arrêté au même niveau de déformation que l'essai de DVC). Les durées respectives de ces essais étaient de 4 h 10 min pour *L1-D-v5-d6,3* et 2 h 18 min pour *L1-F-c50-d7,8*. Ces légères différences seront à prendre en compte dans notre comparaison.

La figure IV.26 présente les cartes EBSD acquises sur ces deux échantillons. D'un point de vue qualitatif, les S-JG semblent répartis de la même manière dans les deux cas. D'un point de vue quantitatif, la figure IV.27 met en évidence une légère différence entre les fractions linéaires de sous-joints de grains : celles-ci valent respectivement 19,3% pour l'échantillon testé en DVC et 25,9% pour l'échantillon testé en fluage. Cet écart est très vraisemblablement imputable au fait que la déformation moyenne finale des échantillons est différente : l'échantillon testé en fluage est plus déformé que celui testé en DVC et c'est aussi celui dans lequel il y a le plus de S-JG. En effet, le nombre de S-JG est d'autant plus élevé que le niveau de déformation final est grand, comme on l'a montré précédemment (cf. paragraphe IV. 4. 1).

Les densités de dislocations géométriquement nécessaires (GNDs) ont été calculées à partir des cartes EBSD. Elles atteignent respectivement $3,7 \cdot 10^{12}$ et $3,64 \cdot 10^{12} \text{ m}^{-2}$ pour *L1-F-c50-d7,8* et *L1-D-v5-d6,3* et sont donc très proches.

Ces différents résultats permettent de conclure que, quelle que ce soit la nature de l'essai mécanique (fluage ou DVC), le résultat obtenu en terme de microstructure est quasiment le même, si le niveau de contrainte, la vitesse de déformation et le taux de déformation final sont proches. On peut donc conclure que les deux types d'essais pourront être exploités de façon complémentaire pour déterminer les mécanismes de déformation mis en jeu dans nos microstructures.

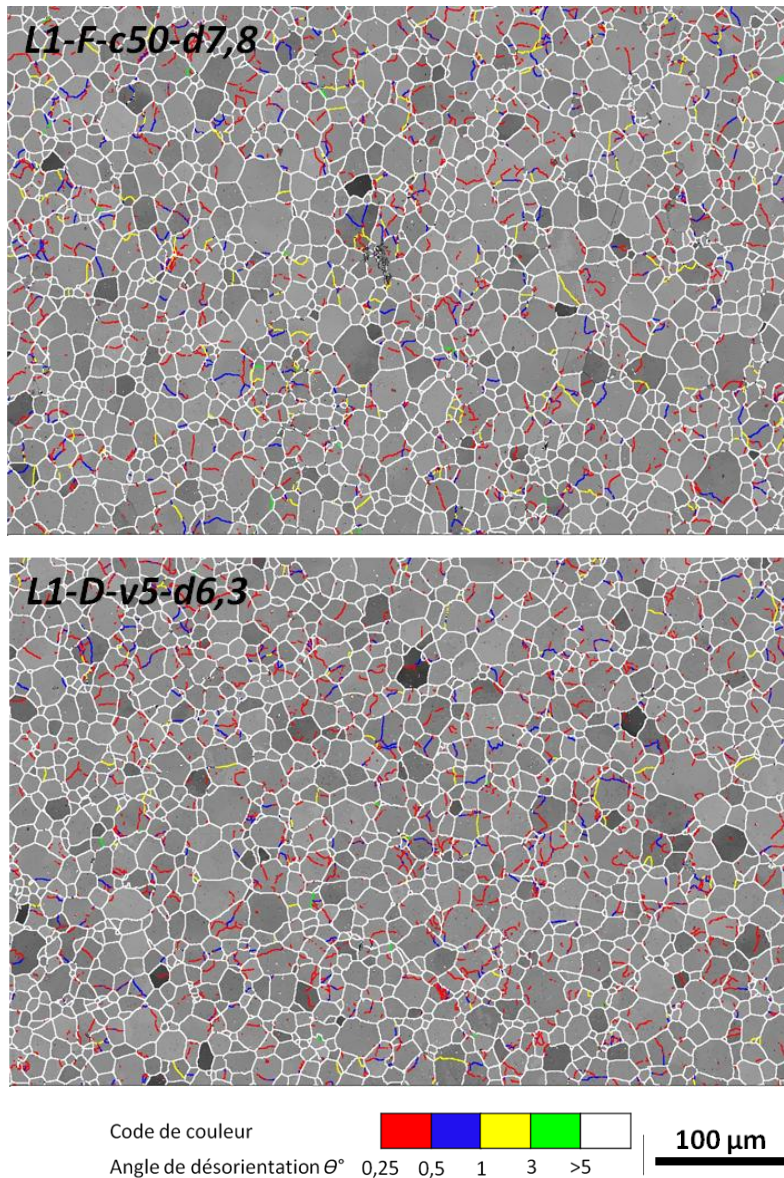


Figure IV. 26 : Cartes d'indice de qualité et de désorientations acquises sur les deux échantillons L1-F-c50-d7,8 et L1-D-v5-d6,3.

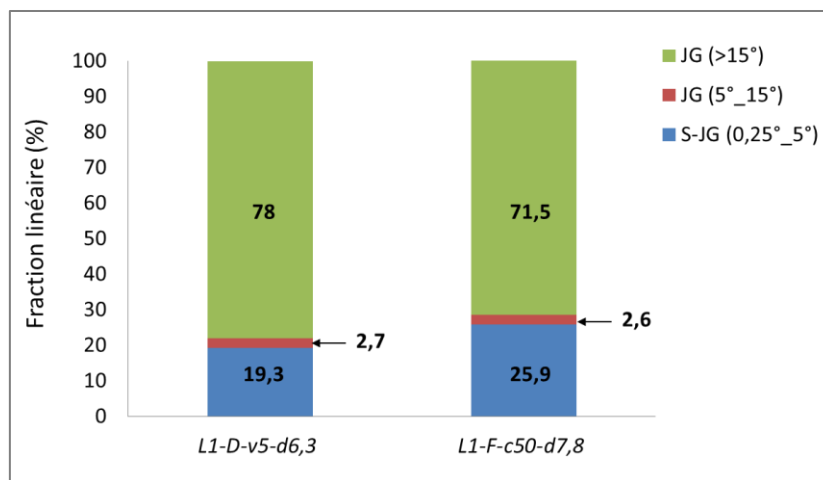


Figure IV.27 : Fractions linéaires de JG et S-JG mesurées à partir des données EBSD présentées sur la figure IV.26.

IV. 5. 4. Influence de la vitesse de refroidissement sur les microstructures obtenues après essais mécaniques

Comme discuté dans le chapitre II, afin de limiter les risques de détérioration du four de la machine de compression, dans la majorité des essais réalisés, le refroidissement post-essai a été réalisé à une vitesse de $17^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ qui est relativement faible. Une telle vitesse ne permet a priori pas de figer la microstructure obtenue en fin d'essai. Afin de chercher à évaluer le biais induit par ces conditions de refroidissement, deux essais mécaniques ont été réalisés dans les mêmes conditions mais avec un cycle de refroidissement différent, l'un à $17^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ (*L1-D-v100-d11*) et l'autre par « trempe » la plus rapide possible (*L1-D-v100-d11'*).

Les cartes EBSD obtenues sur l'échantillon *L1-D-v100-d11* (présentée sur la figure IV.15) et sur l'échantillon *L1-D-v100-d11'* (figure IV.28) semblent tout à fait similaires du point de vue de la répartition des S-JG. Les fractions linéaires des S-JG sont respectivement égales à 48,3% et à 52,2%, la valeur la plus élevée correspondant à l'échantillon trempé. D'après ces valeurs, la vitesse de refroidissement n'aurait donc pas une influence majeure sur les caractéristiques des microstructures étudiées après retour à froid. Toutefois, il convient de noter que la résolution angulaire des cartes EBSD « grand champ » que nous avons réalisées est de l'ordre de $0,25^{\circ}$, ce qui signifie que les S-JG qui ont une désorientation inférieure à cette valeur ne sont pas détectés et comptabilisés. Il en est de même pour les dislocations de matrice, non détectables par EBSD, dont on s'attend à voir le nombre décroître sensiblement lorsque le temps de refroidissement augmente. Pour tenter de pallier ces limitations, les deux échantillons ont fait l'objet d'un examen très fin au MEB à l'échelle de quelques grains afin d'imager certains sous-joints de grains de très faibles désorientations dans le but de mettre en évidence d'éventuelles différences dans l'arrangement des dislocations.

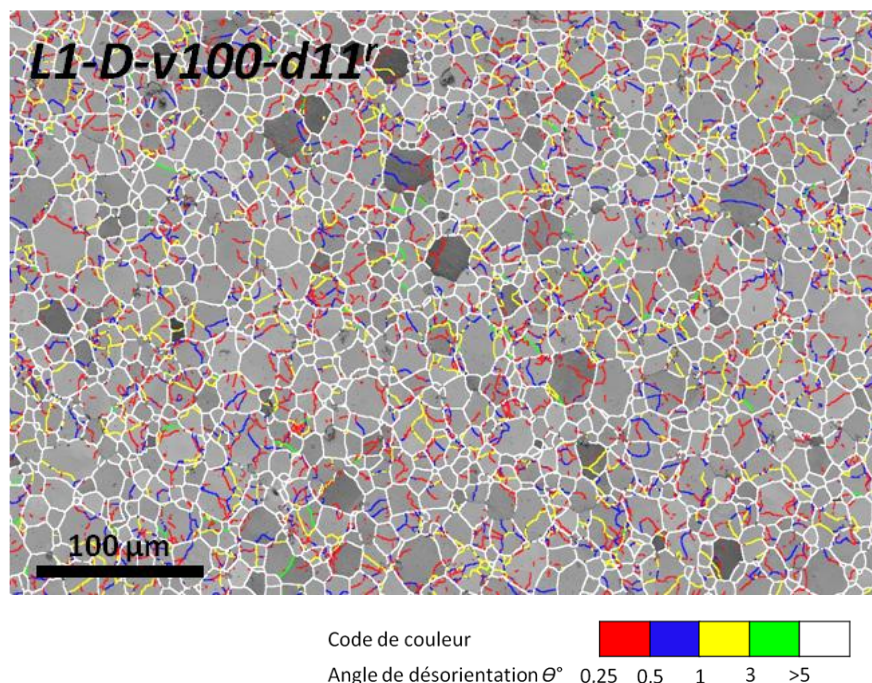
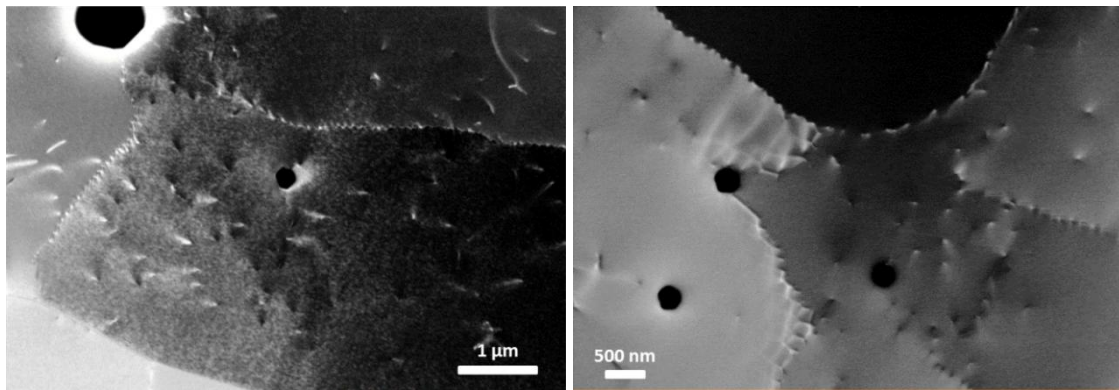


Figure IV.28 : Carte EBSD d'indice de qualité et de désorientations acquise sur l'échantillon *L1-D-v100-d11'* après trempe.

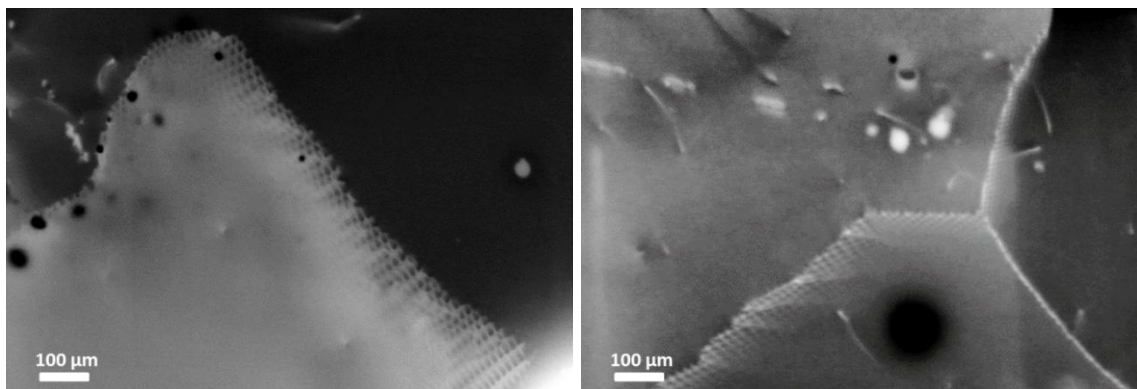
La figure IV.29 présente des micrographies A-ECCI en mode BSE acquises sur les deux échantillons. Celles-ci mettent en évidence, dans les deux cas, des dislocations de matrice. Il est difficile de statuer sur leur nombre, compte-tenu du caractère local des observations réalisées. Les caractéristiques des réseaux de dislocations formant les sous-joints de faibles désorientations sont, quant à elles, sensiblement différentes : dans l'échantillon *L1-D-v100-d11'*, on remarque la présence de nombreux réseaux de dislocations formant des S-JG. Ces réseaux sont également observés dans le cas de l'échantillon *L1-D-v100-d11* mais ils ne sont pas aussi complets et aussi étendus que dans le cas de l'échantillon qui a été trempé. Cette différence échappe à l'EBSD du fait de sa résolution angulaire. En fait, la déformation induit dans le matériau la formation de dislocations qui sont soumises à des contraintes internes principalement concentrées le long de leurs lignes. Ces dislocations se réarrangent au fur et à mesure pour former des S-JG. La plupart de ces dislocations sont organisées dans des configurations de faible énergie, qui correspondent à des sous-joints ayant une désorientation très faible (inférieure à $0,25^\circ$ comme cela a été montré dans le chapitre III), qui ne sont pas détectés par le type de carte EBSD réalisé en « standard » dans cette étude.

Il se pourrait aussi que les réseaux comprennent à la fois des GNDs (Dislocations géométriquement nécessaires) et des SSDs (Dislocations statistiquement stockées). Les GNDs sont responsables de la création d'une courbure dans les réseaux cristallins et par conséquent d'une désorientation à l'intérieur des grains. Par contre, les SSDs peuvent s'associer aux GNDs pour former des réseaux denses mais elles ne contribuent en aucun cas à créer une désorientation au sein des grains. Dans le cas d'un refroidissement rapide après déformation, la microstructure est (autant que faire se peut) figée dans son état. Par conséquent, de nombreux réseaux denses de dislocations, comportant à la fois des GNDs et des SSDs, peuvent être présents. Par contre, dans le cas d'un refroidissement plus lent, avec relâchement rapide de la charge appliquée, on peut penser qu'au début du refroidissement et pendant que la température est encore élevée, les dislocations de matrice formant les réseaux se relaxent de leurs contraintes internes et deviennent plus mobiles dans le matériau. Les réseaux résiduels seraient ainsi formés uniquement par des GNDs. Ce serait pour cela que l'espacement entre les dislocations n'est plus homogène après un refroidissement relativement lent et qu'un grand nombre de réseaux se sont dissociés (cf. figure IV.29).

En résumé, la principale différence trouvée entre les deux microstructures des échantillons *L1-D-v100-d11* et *L1-D-v100-d11'* concerne les S-JG de très faibles désorientations (inférieures à $0,25^\circ$). La plupart d'entre eux ne sont pas détectés par l'EBSD mais sont bien révélés par l'ECCI. Néanmoins, les micrographies ECCI ne permettent pas d'obtenir une statistique représentative sur le nombre de réseaux présents dans chaque échantillon. Sachant que l'EBSD permet de quantifier les S-JG de désorientation supérieure à $0,25^\circ$ présents dans une large zone par rapport aux images ECCI, cette technique constitue à notre avis un moyen pertinent d'étude de la fragmentation des grains en sous-grains dans les différents échantillons testés et il se trouve que cette fragmentation est peu affectée par la vitesse de refroidissement.



(a)



(b)

Figure IV.29 : *Micrographies ECC montrant l'arrangement des dislocations dans les échantillons (a) L1-D-v100-d11 et (b) L1-D-v100-d11'.*

IV. 5. 5. Bilan

Nous avons étudié l'influence de divers paramètres expérimentaux sur les caractéristiques microstructurales des pastilles après essai, telles que révélées par l'EBS et, en particulier, par la quantification des fractions linéaires de S-JG et de JG. Les principales conclusions de cette étude sont les suivantes :

- Dans une coupe longitudinale de pastille, la zone la plus affectée par l'essai de compression est localisée au centre et est à peu près homogène sur un carré d'arête de l'ordre de 6 mm.
- Lorsque l'on répète un essai mécanique (en DVC), on constate une variabilité de quelques MPa sur la contrainte d'écoulement en régime stationnaire. Les fractions linéaires de JG et de S-JG mesurées après essai varient peu (environ 2% pour la fraction totale de S-JG). Il est toutefois difficile d'en déduire des barres d'erreur sur ces grandeurs qui soient applicables à tous les essais.
- Quelle que ce soit la nature de l'essai mécanique (fluage ou DVC), le résultat obtenu en terme de microstructure est quasiment le même, si le niveau de contrainte, la vitesse de déformation et le taux de déformation final sont proches. On peut donc exploiter de façon complémentaire les deux types d'essais.

- La vitesse de refroidissement post-essai n'aurait pas une influence majeure sur les caractéristiques des microstructures étudiées par EBSD après retour à froid. En effet, elle affecte la population de dislocations libres et de sous-joints de très faible désorientation (moins de $0,25^\circ$) mais pas les sous-joints de désorientation supérieure à $0,25^\circ$ que nous quantifions par exploitation des cartes EBSD pour suivre le processus de fragmentation des grains en sous-grains.

IV. 6. Analyse des réseaux de dislocation dans les sous-joints de grains

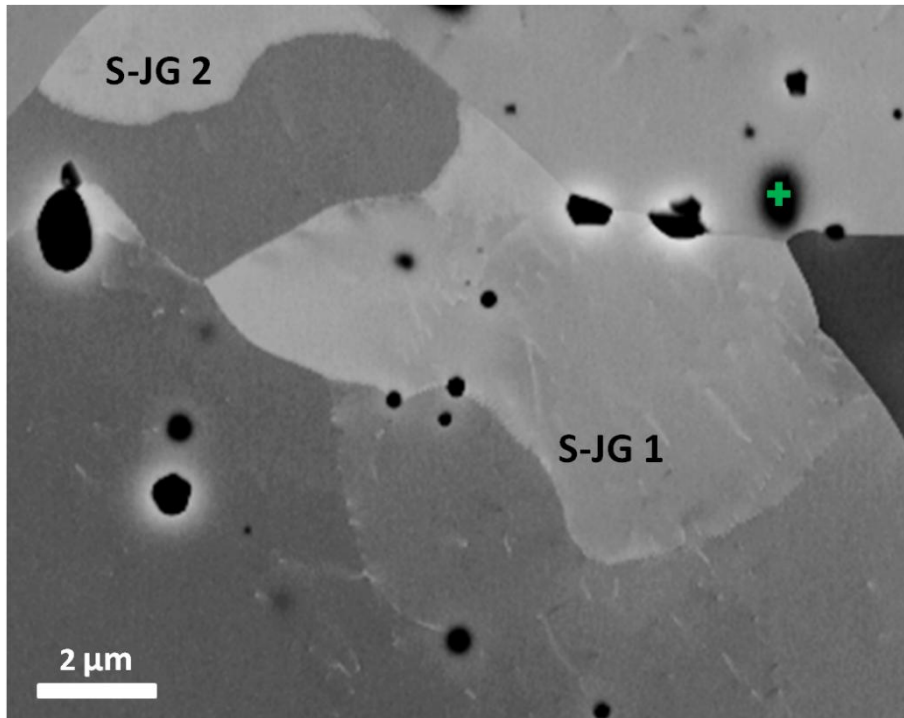
Nous avons vu qu'en régime de fluage dislocationnel, la sollicitation mécanique induit la formation de réseaux de S-JG au sein des grains d' UO_2 . En outre, pour des conditions de sollicitation données, l'augmentation du taux et de la vitesse de déformation engendre une augmentation du nombre ainsi que de la fraction linéaire de ces S-JG. Nous allons maintenant nous intéresser à l'analyse de l'arrangement des dislocations en réseaux pour former ces S-JG, à l'échelle locale. Pour cela, différents arrangements de dislocations en S-JG seront imagés par ECCI et comparés avec les cartes EBSD acquises dans des conditions particulières (précision améliorée) sur les mêmes zones. L'un des S-JG étudié fera ensuite l'objet d'une analyse plus approfondie, destinée à identifier la nature des dislocations le constituant.

IV. 6. 1. Etude comparative par EBSD et par ECCI de S-JG

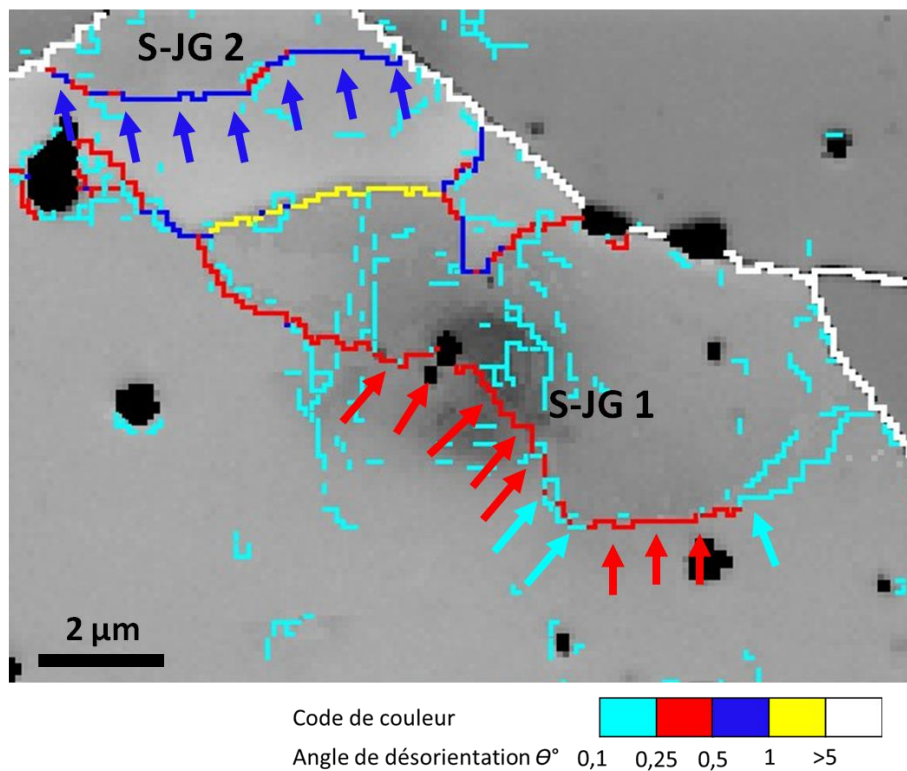
Cette étude a été réalisée sur l'échantillon *L1-D-v1-d6,6*. Une zone d'intérêt, présentée par la micrographie BSE de la figure IV.30a, a été sélectionnée sur cet échantillon. Cette figure a été acquise avec l'orientation initiale de l'échantillon (à plat : $T=0^\circ$, $R=0^\circ$) qui est proche d'une condition de canalisation. Par conséquent, plusieurs dislocations sont visibles. Cette zone présente également un certain nombre de S-JG, avec des arrangements de dislocations différents. Ils ont été imagés par ECCI et seront présentés plus loin. Notons que l'ovale de couleur très sombre pointé par une croix verte sur l'image ne correspond pas à un pore mais plutôt à une saleté résiduelle n'ayant pas été supprimée par l'étape de nettoyage de l'échantillon (figure IV.30a).

Il est important de noter aussi que l' UO_2 est un matériau qui se contamine rapidement dans le MEB sous l'effet du faisceau d'électrons, ce qui engendre une dégradation non seulement de la qualité des micrographies ECC mais aussi des diagrammes HR-SACP et, par conséquent, la résolution angulaire des cartes EBSD diminue. Pour cela, l'échantillon a été repoli, après l'acquisition des micrographies ECC, pour enlever les taches de contaminations de la surface analysée.

Ensuite, sur la même zone d'intérêt, une carte EBSD a été acquise en binning 2×2 , avec un pas réduit de $0,1 \mu\text{m}$. Cette carte a été indexée en précision améliorée et post-traitée selon la méthode décrite dans le chapitre III afin de détecter les très faibles désorientations allant jusqu'à des valeurs de $0,1^\circ$ (voir figure IV.30b). La comparaison entre les deux figures IV.30a et b montre que la majorité des S-JG détectés par EBSD coïncident avec ceux visibles sur l'image BSE. Néanmoins, les lignes de très faible désorientation comprise entre $0,1$ et $0,25^\circ$ (colorées en turquoise sur la figure IV.30b) au centre de la carte ne correspondent pas à des vrais S-JG. Ce sont des désorientations artificielles induites aux alentours de la zone contaminée qui apparaît sombre sur la figure IV.30b et qui n'a pas été totalement enlevée par le polissage.



(a)



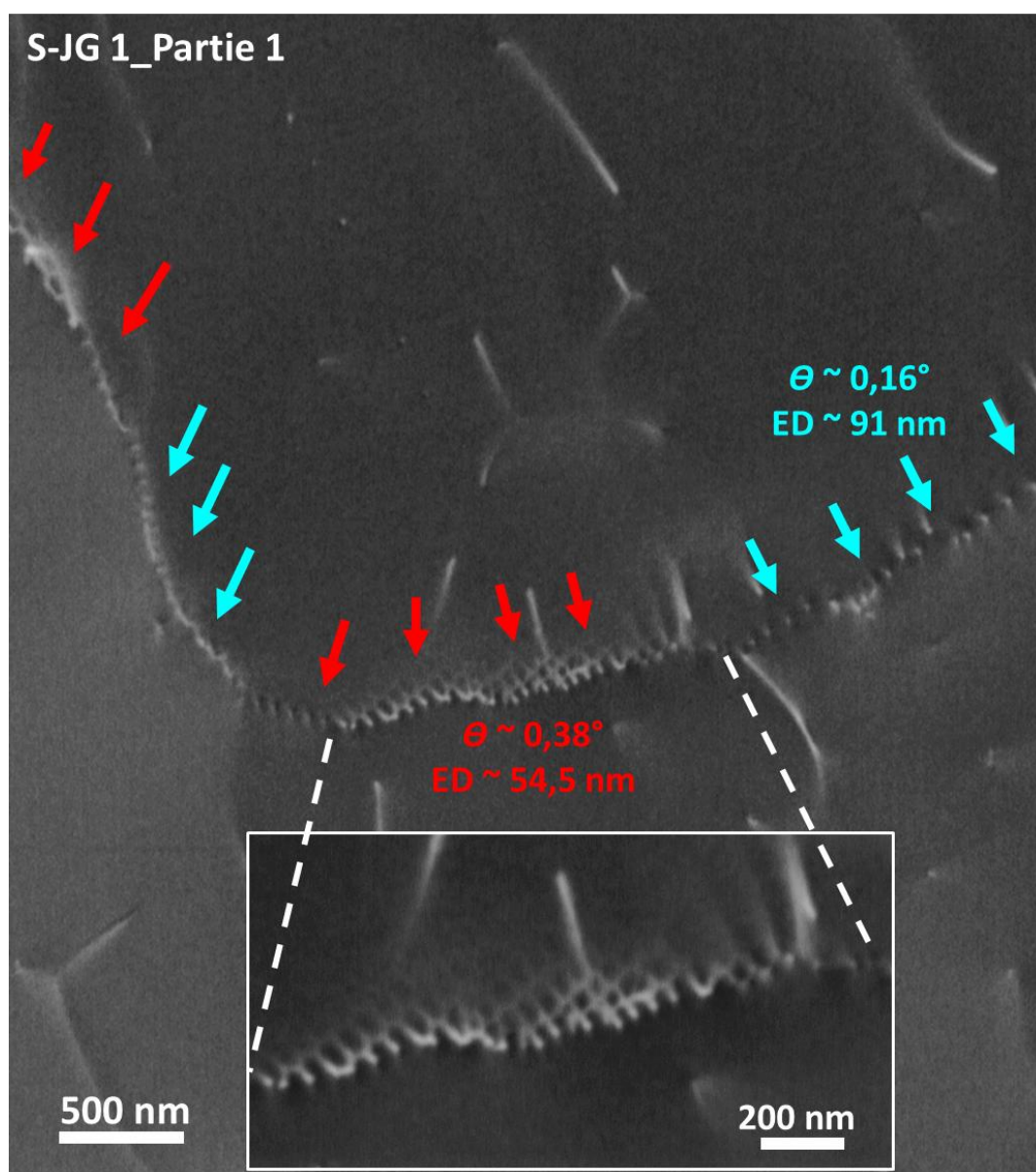
(b)

Figure IV.30 : Analyse de la désorientation des S-JG dans un échantillon déformé du lot L1 (L1-D-v1-d6,6) : (a) micrographie BSE, (b) carte EBSD correspondante.

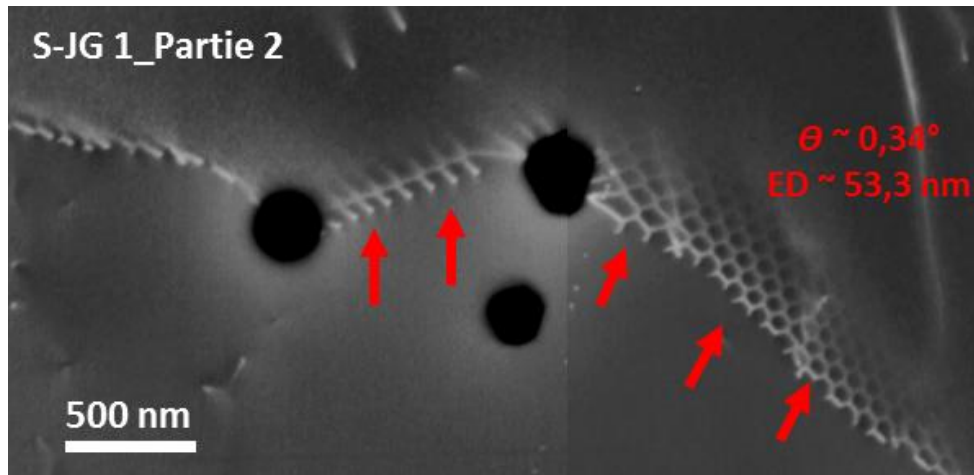
La comparaison de l'image BSE et de la carte EBSD montre aussi que certains pores détectés dans la carte EBSD n'ont pas la même taille que ceux de la micrographie BSE correspondante. De

même, d'autres pores ne sont plus apparents. Ce résultat était prévisible après une étape supplémentaire de polissage pouvant influencer non seulement la taille des pores mais aussi l'arrangement des dislocations en S-JG.

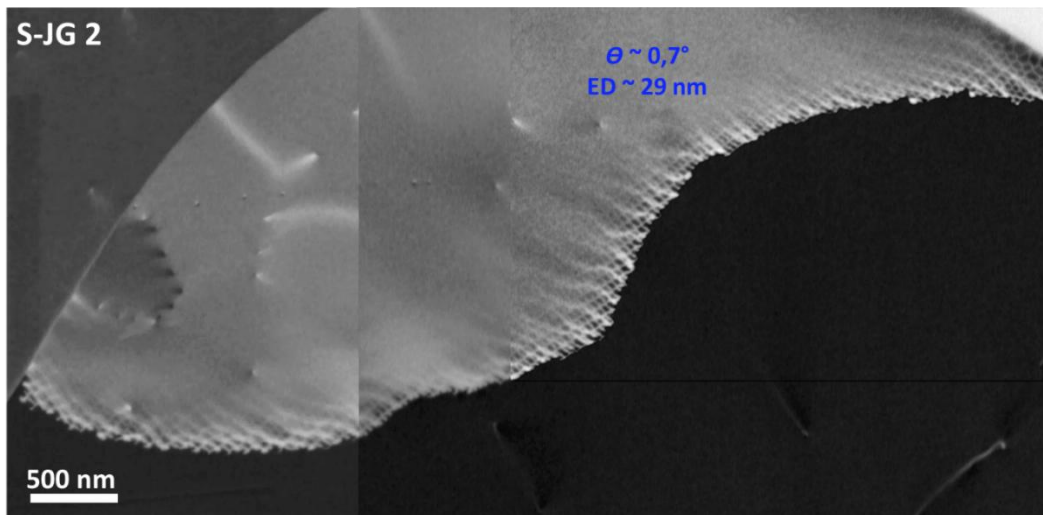
Différents S-JG détectés par EBSD sur cette carte (pointés par des flèches colorées en fonction de leur degré de désorientation, sur la figure IV.30b), ont été imagés par ECCI. Dans cette partie, nous avons essayé d'optimiser les conditions de travail pour éviter la contamination de la zone analysée par surexposition de l'échantillon au faisceau d'électrons au cours de la procédure d'orientation (rotations et/ou inclinaisons) : pas de SACP durant les étapes intermédiaires dans la zone d'intérêt. Les images présentées ci-dessous considérées comme images ECC contrastent très bien les dislocations présentes : organisées ou pas en sous-joints de grains, comme nous pouvons le constater (figure IV.31). Les flèches sur les images ont le même code de couleur que celui de la figure IV.30b.



(a)



(b)



(c)

Figure IV.31 : Micrographies ECC montrant différents types d'arrangements de dislocations en S-JG choisis parmi ceux détectés par EBSD et présentés sur la figure IV.38. ED correspond à l'Espacement entre les traces des dislocations sur la surface de l'échantillon.

D'après la carte EBSD, le S-JG 1 est formé par une alternance de lignes de désorientations comprises entre $0,1^\circ$ et $0,25^\circ$, colorées en turquoise, et de lignes de désorientations comprises entre $0,25^\circ$ et $0,5^\circ$, colorées en rouge (figure IV.30b). Le « début » de ce S-JG (Figure IV.31a, S-JG 1_partie1, à droite) correspond à une désorientation de l'ordre de $0,16^\circ$, mesurée par EBSD. Comme on peut le voir sur l'image ECC, cette partie du sous-joint est formée par un arrangement de dislocations individuelles dont les traces sur la surface sont espacées d'une distance d'environ 91 nm. Dans sa partie centrale, la désorientation de ce S-JG 1 augmente pour atteindre $0,38^\circ$ mesuré par EBSD. D'après l'image ECC, l'espacement entre les dislocations diminue : il vaut alors environ 54,5 nm. La densité de dislocations augmente et celles-ci forment un réseau plus complexe. Dans la partie 2 du S-JG 1 (figure IV.31b), l'image ECC révèle clairement la présence d'un réseau hexagonal de dislocations dont la désorientation est de l'ordre de $0,34^\circ$. L'espacement entre dislocations correspondant est d'environ 53,3 nm. Cet exemple met en évidence aussi l'interaction S-JG - pores. L'organisation des

dislocations est différente de part et d'autre des pores apparaissant sur la figure, où l'on distingue également des dislocations ancrées sur les pores.

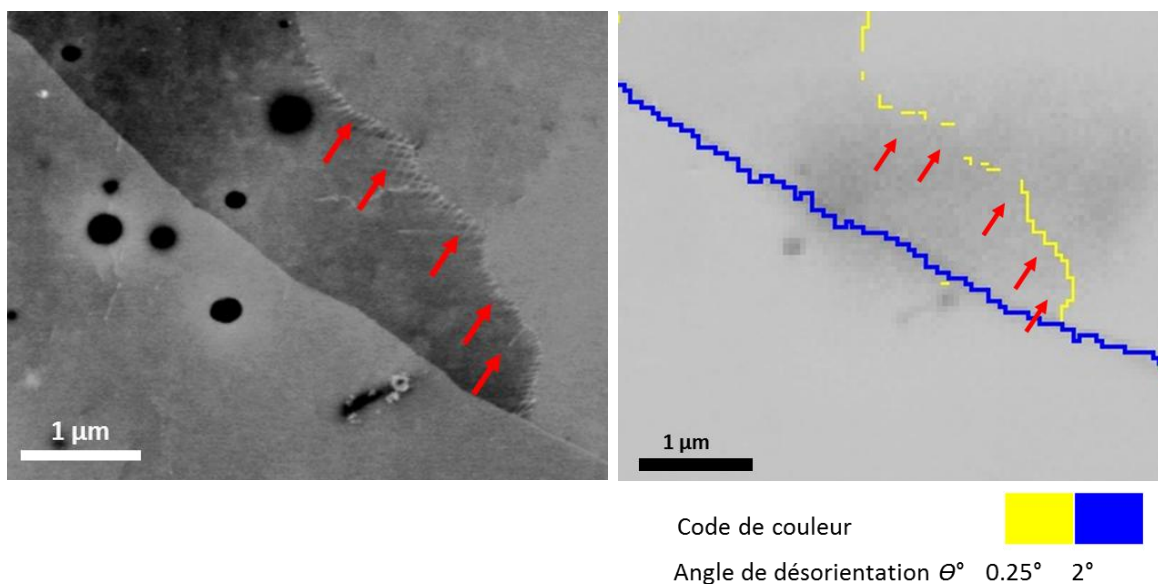
Sur la figure IV.31c, un autre exemple de sous-joint (S-JG 2) est présenté. Sa désorientation est plus élevée et atteint $0,7^\circ$. Dans ce dernier cas, les dislocations sont arrangées en réseau plus dense. L'espacement entre celles-ci diminue pour atteindre une valeur d'environ 29 nm. On rappelle que, d'après notre expérience en ECCI sur l' UO_2 , les dislocations peuvent être distinguées individuellement dans les S-JG lorsque que leur désorientation ne dépasse pas environ $0,8^\circ$ (cf. chapitre III).

En résumé, les observations par ECCI confirment que la déformation induit l'apparition de dislocations dans le matériau. Si certaines d'entre elles sont libres, la plupart se réarrangent pour former des réseaux constituant les S-JG. Plus l'espacement entre les dislocations devient faible, plus la désorientation du S-JG augmente et il y a une très bonne cohérence entre la désorientation donnée par l'EBSD et la distance entre les dislocations mesurée à partir des images ECCI en 2D. L'observation des dislocations individuelles devient difficile, voire impossible, lorsque la désorientation des S-JG excède $0,8^\circ$: ceux-ci apparaissent alors sous forme de lignes sur les micrographies BSE.

IV. 6. 2. Analyse d'un réseau de dislocations par Accurate-ECCI

Cette partie est consacrée à l'analyse par A-ECCI d'un réseau de dislocations formant un S-JG de très faible désorientation, dans un échantillon déformé à 16% du lot L1 ($L1-D-v100-d16^b$).

Le S-JG analysé est présenté sur la figure IV.32a, où il est pointé par des flèches rouges. L'angle de désorientation de ce sous-joint, mesuré par EBSD, est compris entre $0,25^\circ$ et 2° selon la partie considérée du sous-joint. Sur la carte EBSD (figure IV.32b), on remarque la présence d'une grande tâche sombre à peu près centrée : celle-ci correspond à la contamination de surface par le faisceau d'électrons, comme évoqué précédemment.



(a) (b)
Figure IV.32 : (a) Micrographie BSE du sous-joint de grain étudié, (b) carte EBSD correspondante (indice de qualité + désorientations).

Comme le montre nettement la figure IV.33, le S-JG étudié est facetté et formé par des zones dans lesquelles l'arrangement des dislocations est différent. On distingue dans les parties 1 et 3 du S-JG des réseaux de dislocations parallèles entre elles : les traces de ces dislocations désignées D_B sont représentées par des traits bleus.

Les traces des dislocations sur l'image ECC apparaissent sur un fond sombre comme des lignes claires dont l'intensité s'estompe progressivement. Cela est dû à l'inclinaison de la ligne de dislocation par rapport à la surface, entraînant une atténuation du signal rétrodiffusé avec la profondeur d'émission. Cet effet d'atténuation le long de la ligne fournit une information utile lors de la détermination de la direction de la ligne de la dislocation.

On remarque aussi la présence de quelques dislocations « extrinsèques » dont certaines sont indiquées par des flèches blanches sur la figure IV.33. Dans l'environnement de l'une d'entre elles, on voit bien la perturbation du réseau parallèle intrinsèque. Ce phénomène se reproduit à plusieurs endroits en remontant le long du réseau jusqu'à la zone 2 (Z2). Un autre réseau de dislocations quasi-perpendiculaire à la surface est présent dans cette zone (figure IV.33) et également repéré par une flèche blanche.

Dans la zone 2, deux types de dislocations semblent avoir interagi pour former un réseau plus complexe. Les traces visibles des segments de dislocations forment un losange et sont représentées par des traits verts et rouges associés respectivement aux dislocations désignées par D_V et D_R . Dans ce qui suit nous allons analyser dans la mesure du possible les réseaux de dislocations apparaissant sur la figure.

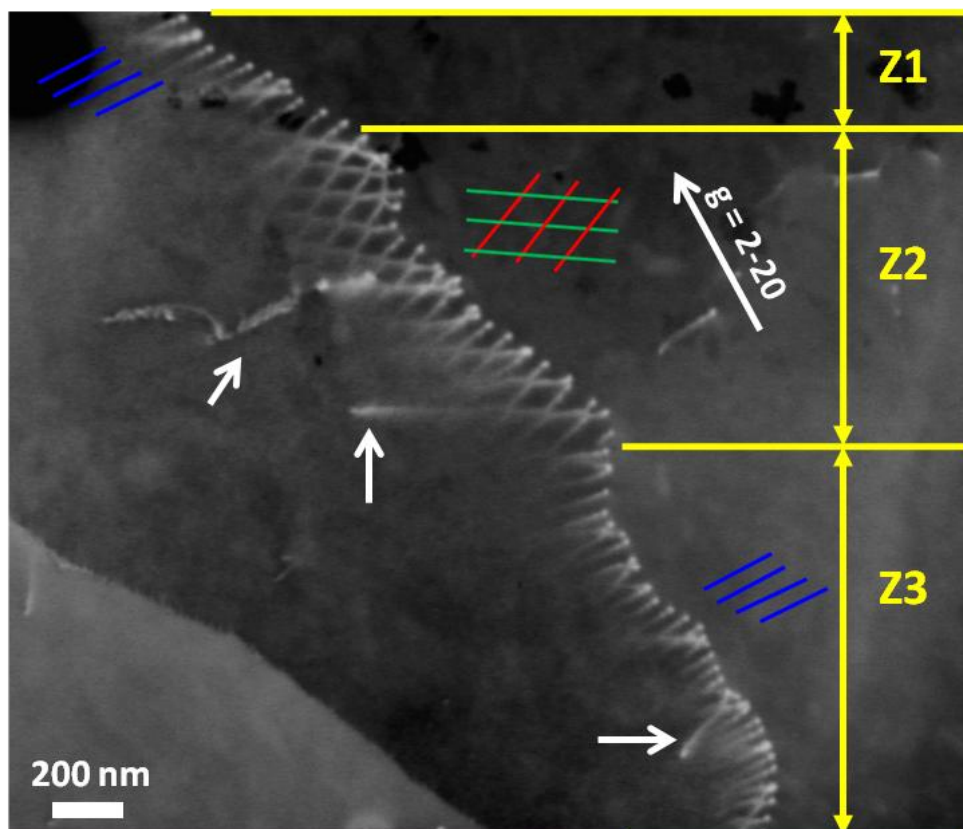


Figure IV.33 : Micrographie ECC réalisée à $g=(2-20)$ mettant en évidence l'arrangement des dislocations formant le sous-joint de grain étudié.

Les systèmes de glissements activés dans UO_2 sont présentés dans le tableau IV.11 comme détaillé dans l'annexe A.

Tableau IV.11 : Systèmes de glissement possibles dans UO_2 , caractéristiques des dislocations

Système de glissement	Nature et Vecteur de Burgers b de la dislocation	Direction u de la dislocation
Primaire $\{001\}\langle 110 \rangle$ (plus probable)	Vis $\mathbf{b} = a/2\langle 110 \rangle$	$\langle 110 \rangle$
$\{001\}\langle 1-10 \rangle$	Coin $\mathbf{b} = a/2\langle 1-10 \rangle$	$\langle 110 \rangle$
$\{110\}\langle -110 \rangle$	Coin $\mathbf{b} = a/2\langle -110 \rangle$	$\langle 001 \rangle$
$\{111\}\langle 0-11 \rangle$ plus difficile à activer (glissement dévié)	Coin $\mathbf{b} = a/2\langle 0-11 \rangle$	$\langle 2-1-1 \rangle$

Pour caractériser complètement (vecteur **b** et vecteur directeur de la ligne **u**) les structures de dislocations formant le S-JG présenté sur la figure IV.33, les critères d'invisibilité $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b} = 0$ et $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}\wedge\mathbf{u} = 0$ utilisés en MET peuvent être appliqués en ECCI.

Pour cela, la procédure présentée en chapitre III est appliquée : l'échantillon initialement à plat (tilt $T=0^\circ$ et rotation $R=0^\circ$) est orienté par rapport au faisceau d'électrons incident pour satisfaire différentes conditions **g** de diffraction. Elles sont indiquées sur le tableau IV.12 qui donne également les vecteurs de Burgers **b** possibles dans UO_2 ainsi que le produit $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}$ résultant.

Tableau IV.12 : Valeurs de $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}$ selon les vecteurs de Burgers **b** possibles dans UO_2 et les vecteurs de diffraction **g** utilisés dans l'analyse

g \ b	[2-20]	[020] [040]	[111]	[220]	[1-11]	[131]
1/2 [110]	0	1, 2	1	2	0	2
1/2 [1-10]	2	-1, -2	0	0	1	-1
1/2 [011]	-1	1, 2	1	1	0	2
1/2 [0-11]	1	-1, -2	0	-1	1	-1
1/2 [101]	1	0	1	1	1	1
1/2 [10-1]	1	0	0	1	0	0

La figure IV.34 présente une simulation dynamique à 0° du cliché Kikuchi correspondant à l'orientation (angles d'Euler : 112,7 / 15,8 / 228,9) du grain considéré, déduite par EBSD. Les clichés HR-SACP relatifs aux conditions de diffraction **g** appliquées dans cette analyse sont repérés sur la simulation (Figure IV.34). Les images ECC correspondantes sont présentées sur la figure IV.35. L'orientation initiale de l'échantillon ($T=0^\circ$, $R=0^\circ$) coïncide avec $\mathbf{g} = (2-20)$ pour le grain contenant le sous-joint en question. Dans ce cas, toutes les dislocations du sous-joint sont bien contrastées et $\mathbf{b} = 1/2 [110]$ ne satisfait la condition d'extinction pour aucune des dislocations formant ce sous-joint.

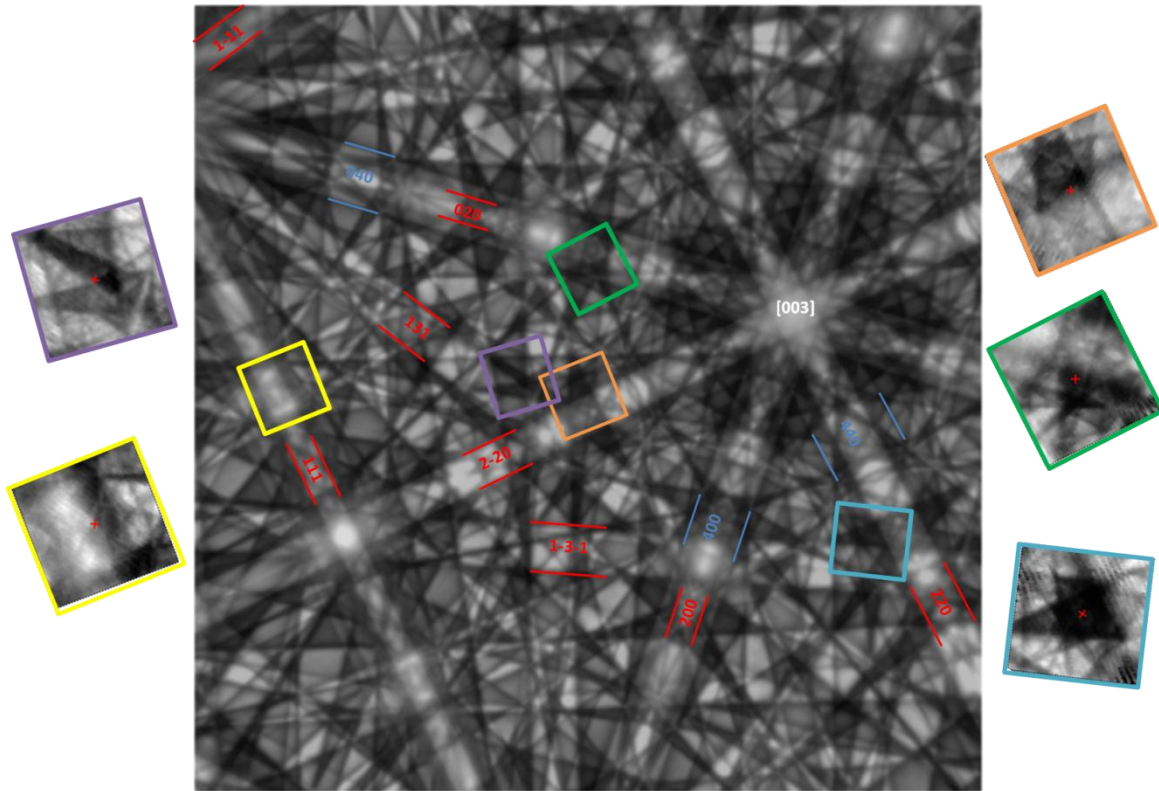


Figure IV.34 : Simulation dynamique à 0° du cliché Kikuchi correspondant à l'orientation du grain analysé ainsi que les clichés HR-SACP relatifs aux conditions de diffraction g réalisées.

Les dislocations D_V (figure IV.33) sont hors contraste pour $g=(020)$ (figure IV.35) d'où $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b} = 0$ mène, d'après le tableau IV.12, à deux solutions : $\mathbf{b} = \frac{1}{2} a[101]$ ou $\mathbf{b} = \frac{1}{2} a[10-1]$. Seul $\mathbf{b} = \frac{1}{2} a [101]$ est retenu car les dislocations D_V sont visibles pour les conditions $\mathbf{g} = (131)$ et (111) . Dans un second temps, nous déterminons la direction de la ligne de la dislocation. Pour cela les directions des traces des dislocations ont été superposées sur la projection stéréographique des pôles (100) (110) (111) (112) comme présenté sur la figure IV.36.

En recoupant l'ensemble des informations : \mathbf{u} possibles dans UO_2 , coïncidence du pôle (101) avec la direction de la trace verte sur la projection stéréographique et sens d'inclinaison de la dislocation D_V , on peut déduire que D_V est une dislocation vis de vecteur de Burgers $[101]$.

Nous procédons de même pour la dislocation D_R dont la direction de la trace est indiquée par un segment rouge sur la figure IV.33 ainsi que sur la projection stéréographique (figure IV.36). Cette dislocation est toujours visible à (040) (131) et (111) , la seule solution plausible est $\mathbf{b} = \frac{1}{2} a [011]$ pour cette dislocation qui doit alors être hors contraste pour $\mathbf{g} = (1-11)$, ce qui est le cas même si cette image ECC présente un mauvais contraste dû à l'orientation de l'échantillon (indiquée par le HR-SACP sur la bande $(1-11)$). Cette condition de diffraction, réalisée en appliquant $R = 30^\circ$ et $T = 31^\circ$ à l'échantillon, correspond à une orientation assez éloignée de la position initiale (Figure IV.34). Néanmoins, on peut déduire la direction \mathbf{u} de D_R à l'aide de la projection stéréographique qui montre qu'elle coïncide avec le pôle $[011]$. Le sens d'inclinaison de la dislocation par rapport à la surface est aussi cohérent et nous pouvons en conclure que D_R est une dislocation vis de vecteur de Burgers $\mathbf{b} = \frac{1}{2} a [011]$. Le plan du joint formé par D_R et D_V est un plan $(11-1) = (011)\chi(101)$. Les lignes de D_R et D_V font entre elles un angle de 60° et sont inclinées d'environ 48° par rapport à la surface.

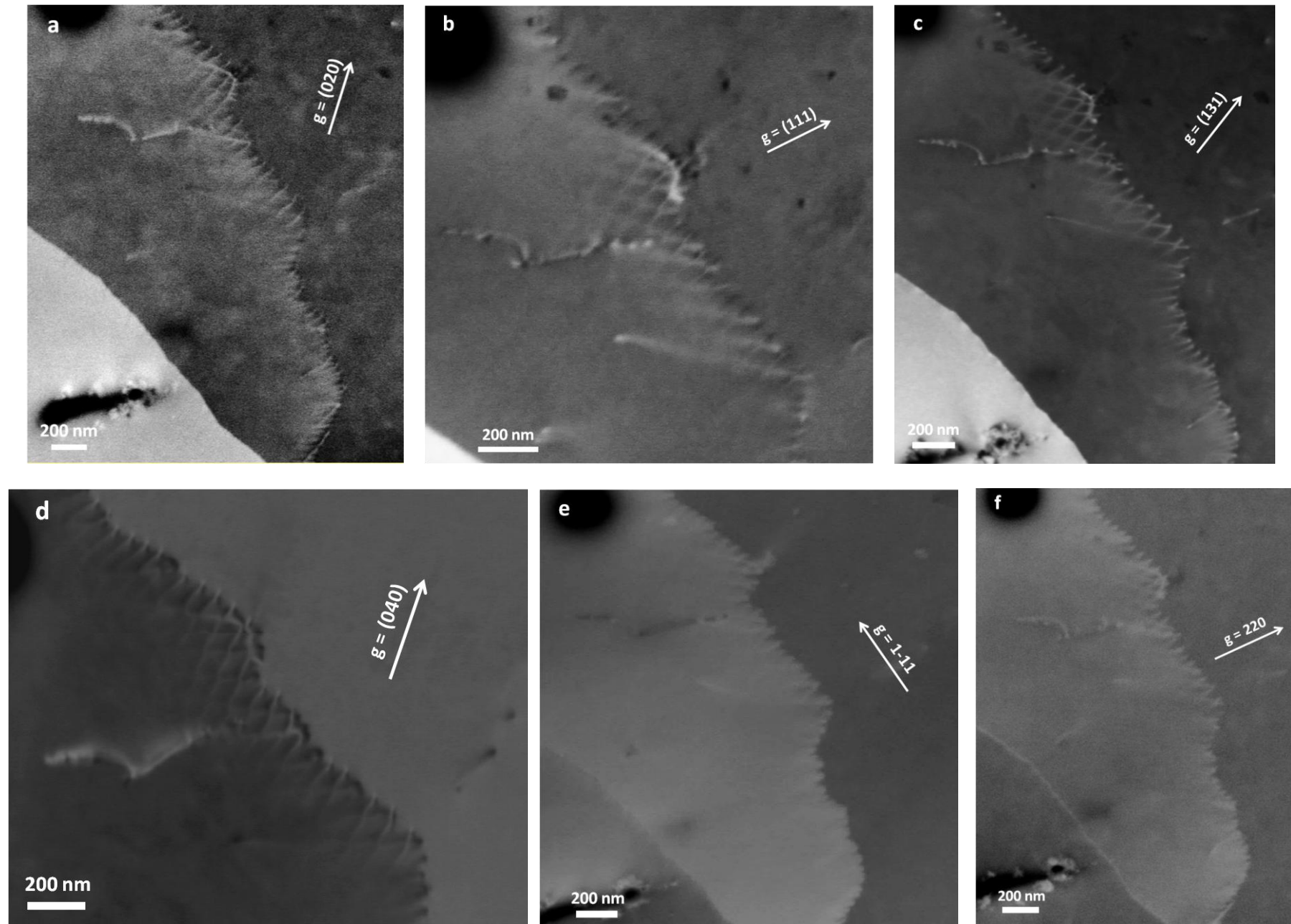


Figure IV. 35 : (a-e) Micrographies Accurate-ECCI réalisées dans différentes conditions de diffraction pour analyser les dislocations D_R , D_V et D_B en utilisant le critère d'invisibilité.

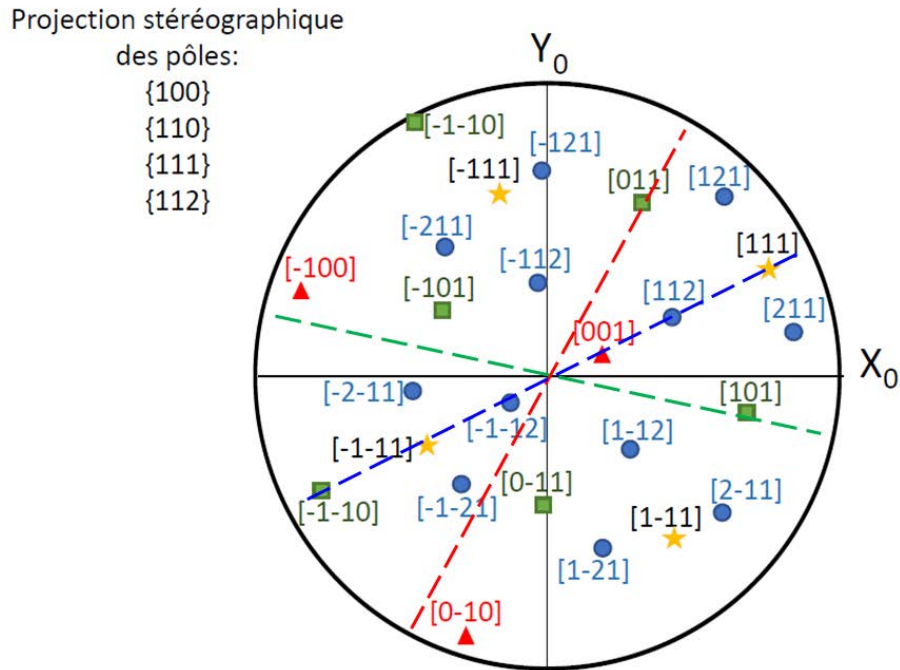


Figure IV.36 : Superposition des traces des dislocations D_V , D_R et D_B sur la projection stéréographique des directions $\{100\}$, $\{110\}$, $\{111\}$ et $\{112\}$. L'orientation correspondant à $\mathbf{g} = (2-20)$ est celle de la figure IV.33.

Quant au réseau de dislocations parallèles D_B , la situation est plus délicate car les conditions de canalisation n'étant pas parfaitement satisfaites, il est difficile de déduire \mathbf{b} par application des critères d'invisibilité $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$ et $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} \wedge \mathbf{u} = 0$. Néanmoins nous pouvons exploiter certains éléments :

- Le sens d'inclinaison des dislocations par rapport à la surface et la direction de la trace coïncidant avec les pôles (111), (001), (112) (figure IV.36), indiquent que ces dislocations ne sont pas purement vis, ce sont des dislocations coins pures ou mixtes.
- Comme elles sont visibles pour $\mathbf{g} = (2-20)$, (040), (131), les vecteurs de Burgers possibles sont selon les directions [1-10], [011] ou [0-11]. Les différentes combinaisons (\mathbf{b} , \mathbf{u}) aboutissent à plusieurs solutions pour les plans de glissement possibles avec des dislocations coin pures ou mixtes.

Par exemple, la solution $\mathbf{b} = [1-10]$ et $\mathbf{u} = [001]$ pour laquelle les dislocations doivent être hors contraste pour $\mathbf{g} = (hhl)$ doit être confirmée. Comme nous pouvons le constater sur la figure IV.35f, pour $\mathbf{g} = (220)$ il est difficile de trancher. Une extinction nettement satisfaite plaiderait en faveur de dislocations coins (système de glissement $(-1-10)[1-10]$). De même pour $\mathbf{b} = [1-10]$ et $\mathbf{u} = [112]$, pour un plan de glissement $(-1-11)$, il faudrait se placer en conditions $\mathbf{g} = (hh2h)$ pour satisfaire les critères d'invisibilité. Notons que dans le cas des dislocations coins observées en ECCI, un contraste résiduel peut demeurer même quand les conditions d'invisibilité sont satisfaites.

L'idéal serait de tester expérimentalement plusieurs conditions de diffraction précises correspondant à $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$ et $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} \wedge \mathbf{u} = 0$ pour déterminer sans ambiguïté \mathbf{b} .

Hélas, les diagrammes pseudo-Kikuchi de UO_2 sont complexes (nombreuses bandes intenses intriquées) et il est souvent difficile d'orienter l'échantillon de façon à amener le faisceau incident

d'électrons sur le bord (partie sombre) d'une bande intense loin de l'intersection avec un autre bord de bande pour satisfaire la condition deux ondes [Kriaa 2017]. C'est la raison pour laquelle il est parfois impossible de mettre hors contraste les dislocations de vecteurs \mathbf{b} donné. D'autre part, réaliser des images de la même zone génère une contamination de la surface et aboutit à la perte de résolution des clichés HR-SACP et des A-ECCI obtenues comme c'est le cas pour $\mathbf{g} = (1-11)$ et $\mathbf{g} = (220)$ (voir figures IV.35d et e).

L'arrangement des dislocations en réseaux dans l' UO_2 est ainsi très complexe. On ne rencontre pas uniquement des réseaux carrés ou hexagonaux souvent observés au MET mais aussi une grande diversité d'arrangement de dislocations, comme l'illustre la figure IV.37.

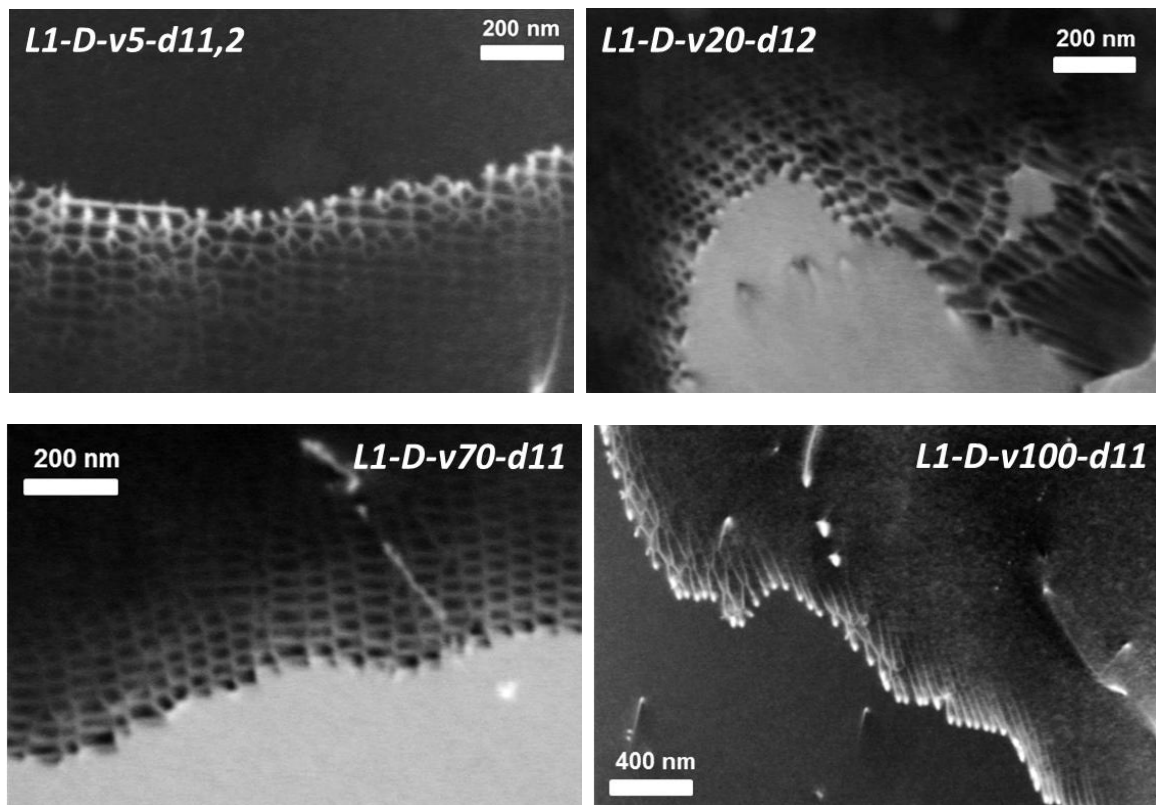


Figure IV.37 : Micrographies A-ECCI en haute résolution montrant différents types d'arrangements de dislocations dans des échantillons du lot L1 déformés à 11%.

IV. 7. Conclusion

Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés à l'étude de l'influence de plusieurs paramètres sur le comportement mécanique macroscopique des échantillons issus du lot de pastilles L1 et sur la microstructure obtenue après essai, telle qu'elle est caractérisée par EBSD, notamment en termes de fractions linéaires de joints et sous-joints de grains. La densité moyenne des dislocations géométriquement nécessaires (GNDs), a aussi été quantifiée à partir de toutes les cartes EBSD réalisées, au moyen du logiciel Atom.

La contrainte de transition entre les domaines de fluage diffusionnel et dislocationnel a été estimée. Celle-ci est de l'ordre de 25 MPa. Le passage d'un domaine à l'autre se traduit, sur les cartes EBSD, par l'apparition de sous-joints de grains.

Les résultats de la caractérisation microstructurale des échantillons déformés dans le domaine dislocationnel montrent que, pour une vitesse de déformation donnée (cas du groupe G1_L1(v20)), la fraction linéaire totale de S-JG augmente avec le taux de déformation, cette augmentation affectant principalement les classes de désorientation les plus fortes (comprises entre 0,5° et 5°). Lorsque le taux de déformation est constant mais que la vitesse de déformation augmente (cas des groupes G2_L1(d7) et G3_L1(d11)), la fraction linéaire de S-JG augmente également. Aux fortes vitesses de déformation (70.10^{-6} et $100.10^{-6} \text{ s}^{-1}$) et pour des taux de déformation élevés (11% et 16%), l'augmentation de la fraction linéaire totale de S-JG est accompagnée par une augmentation significative de la fraction d'entre eux qui est la plus fortement désorientée. Au final, certains S-JG atteignent une désorientation supérieure à 5° et deviennent des JG (compte-tenu de la convention que nous avons choisie) : de nouveaux petits grains apparaissent alors. Les densités de GNDs évoluent de la même manière que la fraction linéaire totale de S-JG. La robustesse de ces différents résultats a été évaluée et confirmée sur la base de l'étude de l'influence de divers paramètres (la localisation de la zone la plus déformée, la reproductibilité des essais mécaniques et des résultats de caractérisation par EBSD,...)

Par ailleurs, les images réalisées par ECCI ont permis de révéler différents arrangements de dislocations en réseaux pour former des S-JG dont la désorientation varie entre 0,1° et 0,5°. La distance entre les dislocations formant les S-JG diminue avec l'augmentation de la désorientation et, à partir d'une désorientation de l'ordre de 0,8°, le S-JG apparaît sous forme d'une ligne car les dislocations individuelles ne sont plus discernables. L'A-ECCI a aussi été exploitée pour caractériser un réseau de dislocations.

Ce travail s'est heurté à un certain nombre de difficultés liées à la nature de l'échantillon. En effet, l'acquisition d'images A-ECC de bonne qualité nécessite un temps important. Or, l' UO_2 se contamine rapidement dans le MEB sous l'effet du faisceau d'électrons, ce qui engendre une dégradation non seulement de la qualité des micrographies ECC mais aussi des diagrammes HR-SACP qui sont indispensables pour déterminer et ajuster précisément l'orientation de la zone observée. Malgré cela, des informations intéressantes ont pu être obtenues.

Après avoir étudié dans ce chapitre l'influence de certains paramètres extrinsèques (la vitesse de déformation et le niveau de déformation atteint) sur l'évolution de la microstructure du lot L1 après essai mécanique, nous allons nous pencher dans le chapitre suivant sur l'impact de la microstructure initiale de la céramique sur ses mécanismes de déformation. L'influence de la répartition de la porosité sur la formation des S-JG sera également étudiée. Pour cela, une comparaison entre les deux microstructures L1 et L2, après différents essais mécaniques, sera réalisée.

Chapitre V

Influence de la microstructure sur le comportement visco-plastique de l'UO₂

V. 1. Introduction

Ce chapitre porte sur le rôle de la microstructure initiale, et plus particulièrement de la répartition des pores intra-granulaires, sur la déformation à l'échelle des grains, telle qu'elle se traduit en termes d'apparition de S-JG. Pour cela, les résultats obtenus sur la deuxième microstructure étudiée (lot L2) seront présentés puis comparés à ceux relatifs à la première microstructure (lot L1), présentés dans le chapitre précédent.

La première partie de ce chapitre est consacrée au comportement mécanique macroscopique des microstructures L1 et L2, dans les domaines de fluage diffusif et dislocationnel.

Dans la deuxième partie, l'évolution de la microstructure L2, en fonction des conditions de sollicitations (taux et vitesse de déformation) est décrite en premier lieu. Ensuite, le comportement des lots L1 et L2 est comparé sur la base du suivi de l'évolution de la densité moyenne des GNDs ainsi que de la taille des sous-grains, en fonction des conditions de sollicitation.

La dernière partie de ce chapitre est consacrée à une discussion relative au comportement des deux microstructures dans le domaine du fluage dislocationnel. Celle-ci concerne plus particulièrement les mécanismes de développement d'une sous-structure au sein des grains et le rôle des pores intra-granulaires sur la distribution des S-JG.

V. 2. Comportement mécanique macroscopique : Analyse comparative des microstructures L1 et L2

V. 2. 1. Rappel des principales caractéristiques microstructurales des lots L1 et L2

On rappelle que nous disposons de deux lots de pastilles L1 et L2, ayant la même fraction volumique de porosité fermée (1,7%). La caractérisation de l'état de référence de ces deux lots a été détaillée dans le chapitre II (paragraphe II. 2. 3). La porosité a été étudiée par analyse d'images et on a pu constater que ces lots se distinguent par une répartition de pores intra-granulaires nettement différente : il y a environ 2,5 fois plus de pores intra-granulaires dans L1 que dans L2. La taille moyenne des grains dans ces deux lots a été déterminée par EBSD et est du même ordre de grandeur, à savoir $12 (\pm 1)$ et $15 (\pm 1)$ μm , respectivement pour L1 et L2. Compte-tenu de ce faible écart de taille, il ne sera pas possible de statuer de façon indubitable sur l'influence de ce paramètre sur le comportement mécanique des deux lots. Cette limitation est d'ailleurs cohérente avec notre objectif initial, qui portait plutôt sur l'étude de l'influence de la distribution des pores et non sur celle de la taille de grains.

Notons que la distribution de taille des grains est un peu différente entre les deux microstructures. En effet, la microstructure L1 présente de nombreuses zones à petits grains qui ne sont pas uniformément réparties et pourraient avoir un impact sur la localisation de la déformation. Les cartes EBSD réalisées sur les échantillons de référence montrent aussi l'existence de rares lignes de désorientation d'environ 3° qui correspondent, selon notre convention, à des S-JG.

V. 2. 2. Campagne d'essais de compression uniaxiale

Le tableau V.1 regroupe les caractéristiques des essais mécaniques (fluage et DVC) réalisés sur des pastilles du lot L2, en reprenant la nomenclature introduite dans le chapitre IV pour le lot L1 (cf. chapitre IV, paragraphe IV. 2. 1). On rappelle que les essais mécaniques du lot L2 ont été effectués durant la même période. De ce fait, la reproductibilité de ces essais pourrait s'avérer meilleure que dans le cas du lot L1.

Tableau V.1 : Caractéristiques des essais mécaniques réalisés sur les pastilles du lot L2

N° de la pastille	Nomenclature	Nature de l'essai	Vitesse de la traverse en $\mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$	Vitesse de déformation en 10^{-6} s^{-1}	Valeur arrondie : vitesse de déformation en 10^{-6} s^{-1}	Contrainte finale en MPa	Niveau de déformation moyen final en %	Durée de l'essai
Essai 1-P19	<i>L2-F-c12-d0,48</i>	Fluage	/	5×10^{-9}	0,005	12	0,48	114 h
Essai 2-P'6	<i>L2-F-c20-d0,88</i>	Fluage	/	$1,56 \times 10^{-8}$	0,02	20	0,88	66 h 20 min
Essai 3-P6	<i>L2-D-v5-d7</i>	DVC	5	$5,19 \times 10^{-6}$	5	43	7	5 h 20 min
Essai 4-P5	<i>L2-D-v5-d10</i>	DVC	5	$5,17 \times 10^{-6}$	5	37	10	6 h 10 min
Essai 5-P8	<i>L2-D-v20-d3</i>	DVC	20	$1,98 \times 10^{-5}$	20	45	3	37 min
Essai 6-P3	<i>L2-D-v20-d5,1</i>	DVC	20	$1,84 \times 10^{-5}$	20	46	5,1	1 h
Essai 7-P2	<i>L2-D-v20-d7</i>	DVC	20	$1,94 \times 10^{-5}$	20	40	7	1 h 19 min
Essai 8-P9	<i>L2-D-v20-d9,4</i>	DVC	20	$2,04 \times 10^{-5}$	20	46	9,4	1 h 28 min
Essai 9-P11	<i>L2-D-v20-d11</i>	DVC	20	$1,98 \times 10^{-5}$	20	48	11	1 h 41 min
Essai 10-P12	<i>L2-D-v40-d7</i>	DVC	40	$4,17 \times 10^{-5}$	40	54	7	33 min
Essai 11-P13	<i>L2-D-v70-d11</i>	DVC	70	$7,31 \times 10^{-5}$	70	52	11	28 min

Dans le cas de la microstructure L2, comme pour L1, nous ne disposons que de deux essais de fluage (*L2-F-c12-d0,48* et *L2-F-c20-d0,88*) réalisés à basses contraintes (12 et 20 MPa) pour déterminer où se situe son domaine de fluage diffusionnel et, par conséquent, la contrainte de transition σ_t entre ce domaine et le domaine dislocationnel.

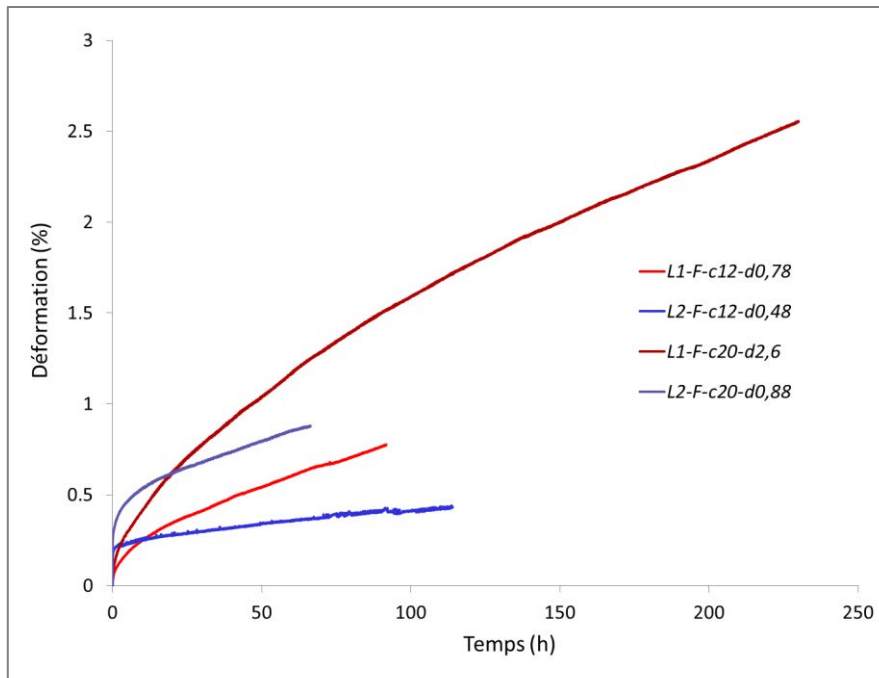
Trois groupes de pastilles issues du lot L2, testées en DVC dans le domaine du fluage dislocationnel, seront plus particulièrement étudiés, comparativement avec l'échantillon de référence R2 (non déformé) :

- **G1_L2(v20)** (Groupe 1_lot L2_vitesse de déformation de $20 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$) : ce groupe comporte cinq pastilles (*L2-D-v20-d3* ; *L2-D-v20-d5,1* ; *L2-D-v20-d7* ; *L2-D-v20-d9,4* et *L2-D-v20-d11*) déformées à une vitesse de l'ordre de $20 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$, jusqu'à des taux variant de 3% à 11%.
- **G2_L2(d7)** (Groupe 2_lot L2_déformé à 7%) : Ce groupe comporte trois pastilles (*L2-D-v5-d7* ; *L2-D-v20-d7* et *L2-D-v40-d7*) déformées jusqu'à un taux d'environ 7%, à différentes vitesses.
- **G3_L2(d11)** (Groupe 3_lot L2_déformé à 11%) : il comporte trois pastilles (*L2-D-v5-d10* ; *L2-D-v20-d11* et *L2-D-v70-d11*) déformées jusqu'à un taux de déformation final de l'ordre de 11% , à différentes vitesses.

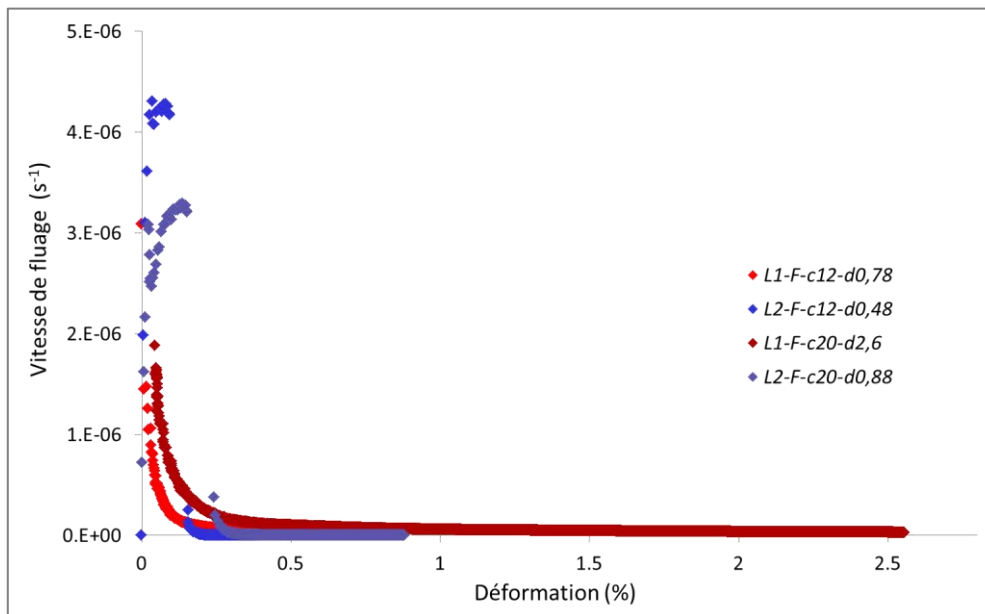
Ces différents groupes de pastilles testés en DVC (à fortes contraintes) vont permettre à nouveau d'étudier l'effet du taux et de la vitesse de déformation dans le domaine de fluage dislocationnel, d'une part, et d'étudier le rôle de la microstructure initiale (notamment de la répartition des pores intra-granulaires) sur la déformation, d'autre part, sur la base d'une comparaison entre les microstructures L1 et L2.

V. 2. 3. Courbes de comportement mécanique

La figure V.1 regroupe les courbes de fluage relatives aux essais réalisés à basses contraintes (12 et 20 MPa) sur les lots L1 et L2. Si l'on exclut le fluage primaire et que l'on considère la partie où la vitesse de déformation devient constante, ces courbes montrent, qu'à même contrainte, le lot L2 se déforme plus lentement que le lot L1 dans ce domaine. On remarque aussi que la vitesse de déformation se stabilise plus vite dans L2 que dans L1 (Figure V.1b). Par exemple, pour les essais de fluage réalisés à 12 MPa, le fluage primaire s'achève pour une déformation voisine de 0,3%, dans le cas de L2 (*L2-F-c12-d0,48*) et de 0,5% dans le cas de L1 (*L1-F-c12-d0,78*).



(a)



(b)

Figure V.1 : Comportement en fluage de pastilles des lots lot L1 et L2 testées à basses contraintes, (a) déformation en fonction du temps, (b) vitesse de fluage en fonction de la déformation.

Les courbes relatives aux essais de DVC, réalisés à une vitesse de déformation de $20.10^{-6} \text{ s}^{-1}$ pour les deux lots de pastilles, sont présentées sur la figure V.2. Elles montrent que la reproductibilité des résultats est bonne au sein d'un même lot, au sens où la contrainte d'écoulement « stationnaire » atteinte au-delà du domaine élastique est sensiblement la même, pour un lot donné. Par contre, les courbes contrainte-déformation des deux lots de pastilles sont nettement différentes : celles relatives aux pastilles du lot L1 se situent systématiquement au-dessus

de celles du lot L2, la contrainte d'écoulement du premier lot étant plus élevée d'environ 10 MPa. Ces résultats permettent de conclure que la microstructure L1 est plus résistante à la déformation que la microstructure L2, dans le domaine des fortes contraintes (qui est celui du fluage dislocationnel).

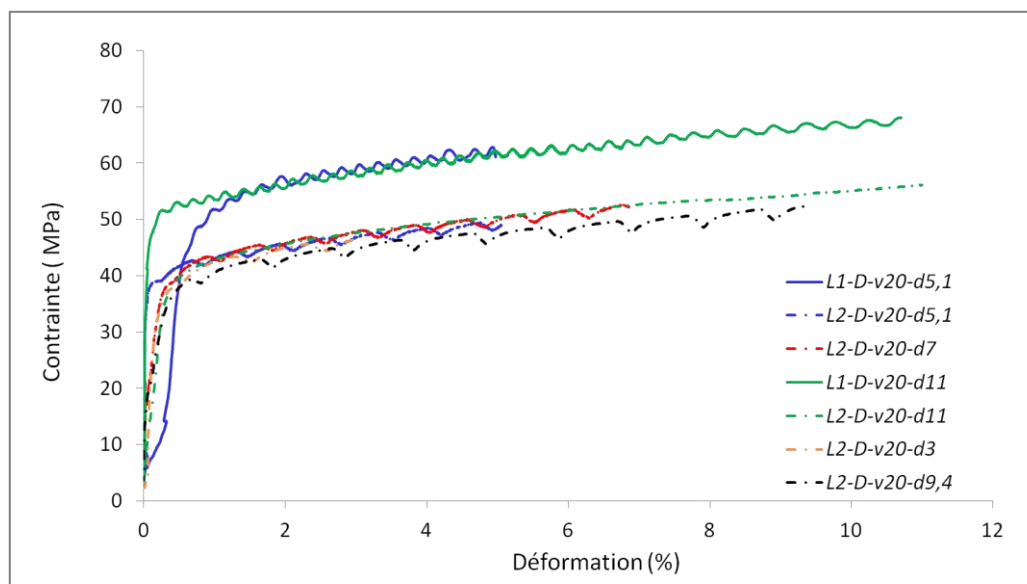


Figure V.2 : Courbes DVC obtenues à 1500°C avec une vitesse de déformation de $20 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ pour les lots de pastilles L1 (courbes continues) et L2 (courbes en pointillés).

De telles différences ont souvent été reliées, dans la littérature, à l'influence de la taille de grain [Dherbey 2000, Ndiaye 2012, Vivant-Duguay 1998]. Toutefois, cette grandeur ne peut pas être le seul facteur qui a une influence sur la contrainte d'écoulement. D'ailleurs, Dherbey a constaté qu'il existe des microstructures dont les tailles de grains sont semblables ($\sim 10 \mu\text{m}$) mais qui se comportent différemment (une différence de l'ordre de 11 MPa entre les contraintes d'écoulement correspondantes a été constatée) [Dherbey 2000].

Dans notre cas, les tailles de grains des deux lots n'étaient pas identiques ($12 \mu\text{m}$ pour L1 et $15 \mu\text{m}$ pour L2) mais proches. On peut donc supposer que la différence observée dans les contraintes d'écoulement serait liée non seulement à un petit effet de taille de grain mais aussi à d'autres facteurs physico-chimiques (impuretés, stœchiométrie...) et/ou microstructuraux, parmi lesquels la répartition des pores intra-granulaires jouerait un rôle. Néanmoins, ce point n'a jamais été abordé dans des études antérieures.

V. 2. 4. Régimes diffusif et dislocationnel : influence de la microstructure

V. 2. 4. 1. Exposant de la contrainte et contrainte de transition

Pour la microstructure L2, l'exposant de contrainte a été déterminé dans les deux domaines de fluage de la même manière que dans le cas de la microstructure L1, en appliquant l'équation (IV.2). Aux faibles contraintes ($\sigma < \sigma_t$), l'exposant de contrainte a été estimé à environ 2,5 : cette valeur appartient à l'intervalle [1-3] défini dans la littérature comme typique du régime de fluage diffusif. Aux fortes contraintes ($\sigma > \sigma_t$), l'exposant n de la contrainte vaut environ 5,7 : là encore, il appartient aussi à l'intervalle [4-10] défini dans la littérature. Ces résultats montrent que ce lot de

pastilles a un comportement mécanique « classique », comparé à celui de nombreux autres lots testés en compression.

Un graphe $\dot{\epsilon} = f(\sigma)$ a été tracé en coordonnées logarithmiques à partir de tous les essais de compression réalisés en fluage et en DVC sur les pastilles des lots L1 et L2. Il est présenté sur la figure V.3.

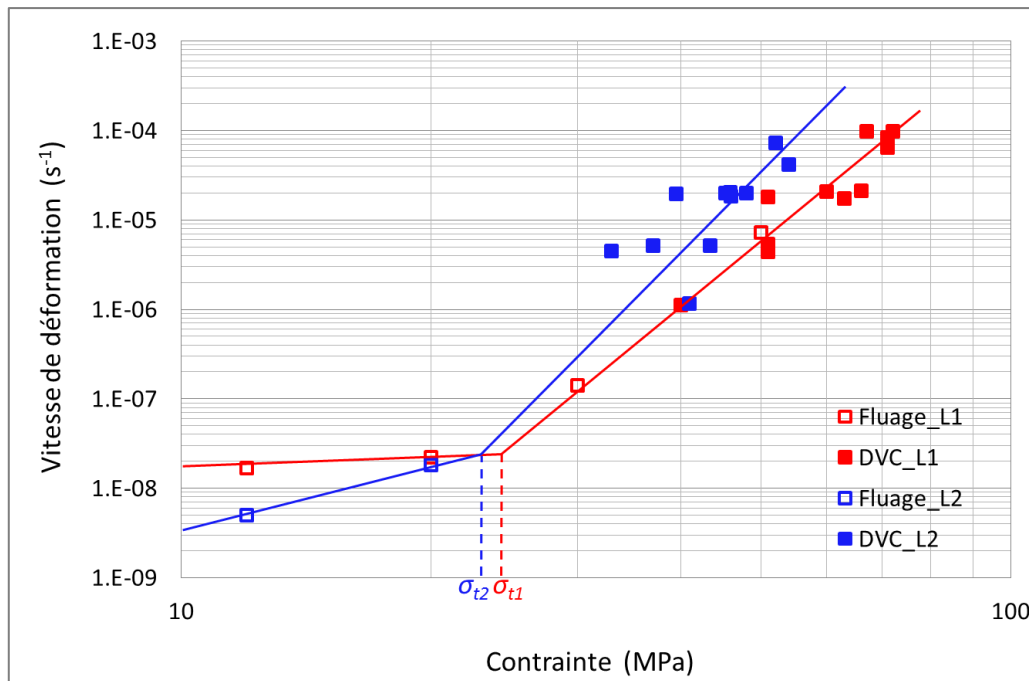


Figure V.3 : Evolution de la vitesse de fluage secondaire en fonction de la sollicitation mécanique pour les microstructures L1 (en rouge) et L2 (en bleu).

On rappelle que le nombre d'essais de fluage réalisés à basses contraintes (deux essais par lot) est trop faible pour déterminer de façon fiable la pente de la droite correspondant au régime de fluage diffusionnel. Compte-tenu de la durée de ce type d'essai (plusieurs jours, voire des semaines, pour atteindre un niveau de déformation significatif), il n'a pas été possible de faire davantage d'essais dans ce domaine.

On remarque, en tout cas, que les deux points relatifs aux essais réalisés sur le lot L2 se situent en-dessous de ceux du lot L1, ce qui tend à montrer que le lot L2 se déforme plus lentement que le lot L1, dans le domaine du fluage diffusionnel.

A fortes contraintes, le comportement des deux microstructures s'inverse. En effet, tous les points relatifs aux essais mécaniques réalisés sur le lot L1 se situent au-dessous de ceux du lot L2. Le lot L2 flue donc plus vite que le lot L1, dans le domaine du fluage dislocationnel.

La contrainte de transition est trouvée égale à environ 25 MPa et 23 MPa, respectivement pour les lots L1 et L2 (Figure V.3). Ces valeurs sont très proches et entachées d'une forte incertitude, liée au nombre réduit de points dans le domaine diffusionnel et à la dispersion de ceux acquis dans le domaine dislocationnel.

Une synthèse relative à l'évolution de la contrainte de transition avec la taille de grains a été réalisée par Ndiaye à partir de ses résultats ainsi que de ceux de Vivant-Duguay [Ndiaye 2012]. Celle-ci est présentée sur la figure V.4, sur laquelle nous avons aussi ajouté les deux contraintes de transition que nous avons déterminées.

Les contraintes de transition obtenues dans notre étude sont relativement cohérentes avec celles de ces deux auteurs et diminuent légèrement, comme attendu, avec l'augmentation (légère) de la taille de grains. Néanmoins, nos valeurs sont globalement plus faibles que celles trouvées par Ndiaye et Vivant-Duguay pour une taille de grains proche, en particulier dans le cas de L1. En effet, pour une taille de grains de l'ordre de 11-12 μm , Vivant-Duguay a obtenu une contrainte de transition de 44 MPa, contre 25 MPa pour L1 (qui présente de nombreux pores intra-granulaires) [Vivant-Duguay 1998]. Un tel écart (environ 20 MPa) pourrait être dû à différents facteurs, parmi lesquels on trouve les incertitudes sur la détermination de σ_t déjà évoquées précédemment en ce qui nous concerne (Vivant-Duguay ayant acquis davantage de points expérimentaux que nous dans le domaine du fluage diffusionnel). Toutefois, à notre avis, un écart de 20 MPa ne peut pas être attribué uniquement aux incertitudes mais trouve probablement aussi son origine dans la microstructure, et, en particulier, dans la répartition des pores. Il est difficile de statuer là-dessus car la thèse de Vivant-Duguay ne comporte pas de micrographies réalisées à des grossissements suffisants pour apprécier la distribution des pores intra-granulaires.

Dans le cas de la microstructure L2 (qui présente une répartition de pores a priori plus « classique »), la contrainte de transition obtenue est proche de celle que Ndiaye a trouvée pour le lot P2_D dont la taille de grain est de 15 μm [Ndiaye 2012]. Là encore, les images disponibles dans sa thèse ne permettent pas de comparer de façon fiable la répartition des pores dans les deux microstructures considérées.

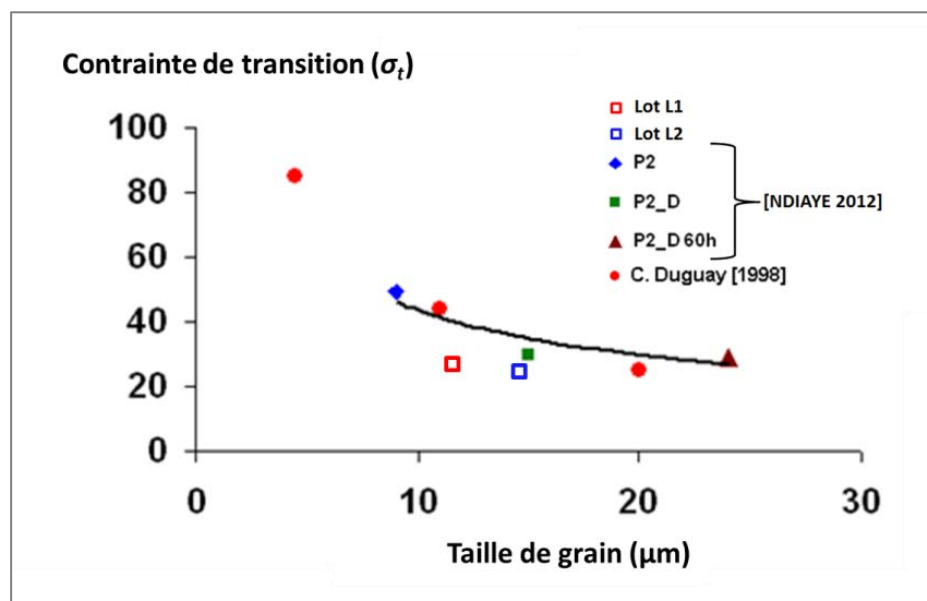


Figure V.4 : Comparaison des contraintes de transition obtenues pour les lots L1 et L2 avec d'autres résultats obtenus dans la littérature ([Ndiaye 2012] et [Vivant-Duguay 1998]).

V. 2. 4. 2. Domaine de fluage diffusionnel

Dans le domaine du fluage diffusionnel, nous avons constaté précédemment que la vitesse de fluage de la microstructure L1 est plus importante que celle de L2. La figure V.4 présente la comparaison des vitesses de déformation expérimentales, obtenues sur nos deux lots dans ce domaine, avec celles calculées avec les modèles de Nabarro-Herring et de Coble (cf. Annexe B), pour des tailles de grain de 12 et 15 μm , sur la base des équations suivantes [Knorr 1989] :

$$\dot{\epsilon}_{Nabarro-Herring} = \frac{14 \cdot \Omega \cdot \sigma \cdot D_{vol}}{d^2 \cdot R \cdot T} \text{ en (s}^{-1}\text{)} \quad (\text{V.1})$$

$$\dot{\epsilon}_{Coble} = \frac{148 \cdot \Omega \cdot \sigma \cdot \delta \cdot D_{jdg}}{\pi \cdot d^3 \cdot R \cdot T} \text{ en (s}^{-1}\text{)} \quad (\text{V.2})$$

avec :

$$D_{vol} = 1,9 \cdot 10^{-5} \exp\left(\frac{-544000}{R \cdot T}\right) \text{ en (m}^2 \cdot \text{s}^{-1}\text{)} \quad (\text{V.3})$$

$$D_{jdg} = 10^{25} \exp\left(\frac{-377000}{R \cdot T}\right) \text{ en (m}^2 \cdot \text{s}^{-1}\text{)} \quad (\text{V.4})$$

et $\Omega = \frac{M_{UO_2}}{MV_{thUO_2}} = 24,6 \cdot 10^{-6} \text{ m}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$, où $M_{UO_2} = 270 \text{ g} \cdot \text{mol}^{-1}$ désigne la masse molaire de l' UO_2 et $MV_{thUO_2} = 10,96 \cdot 10^{-6} \text{ g} \cdot \text{m}^{-3}$ représente sa masse volumique théorique, d étant la taille de grains, σ représentant la contrainte appliquée et $\delta = 5 \cdot 10^{-10} \text{ m}$ correspondant à l'épaisseur d'un joint de grain.

Les résultats obtenus montrent que, contrairement au mécanisme de Nabarro-Herring, le mécanisme de fluage de type Coble donne des vitesses de déformation proches de nos valeurs expérimentales. On rappelle qu'il s'agit d'un mécanisme mettant en jeu une diffusion prédominante aux joints de grains. Un tel mécanisme aboutit à une vitesse de fluage diffusionnel d'autant plus élevée que la taille de grains est petite, ce qui rend bien compte du fait que le lot L1 flue un peu plus vite que le lot L2, dans ce domaine (puisque la taille moyenne des grains est un peu plus petite dans L1 que dans L2). Ces résultats sont aussi parfaitement cohérents avec ceux de Vivant-Duguay, qui aboutissent à la même conclusion [Vivant-Duguay 1998].

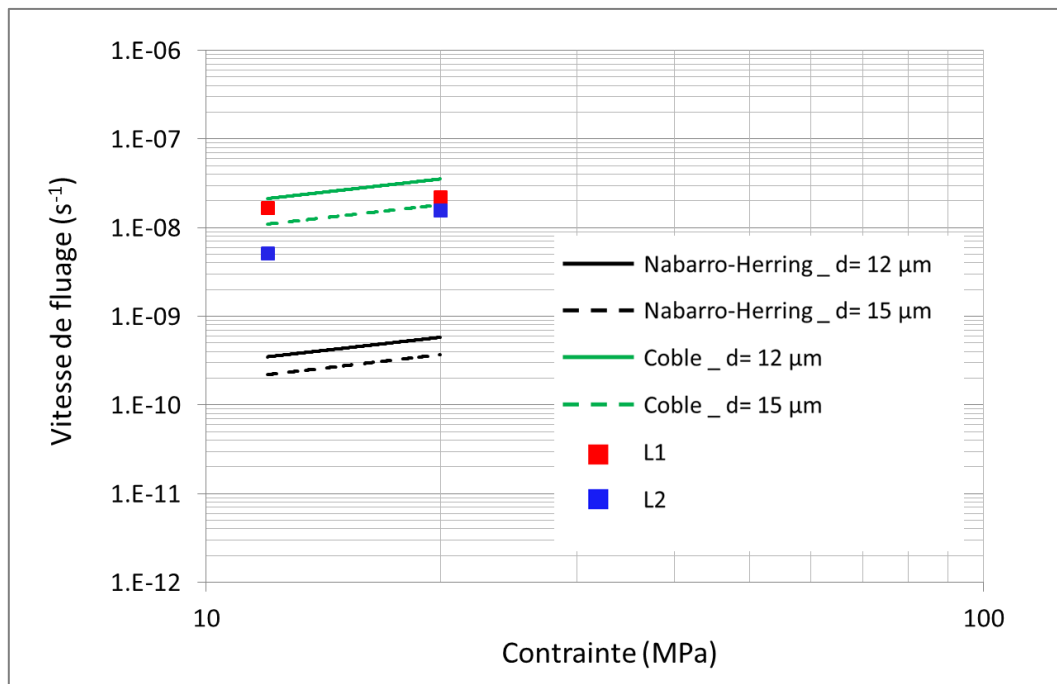


Figure V.5 : Comparaison des vitesses de fluage mesurées avec celles prédites pour les mécanismes de Coble et Nabarro-Herring à 1500°C.

V. 2. 4. 3. Domaine de fluage dislocationnel

Les résultats des essais mécaniques relatifs à ce domaine de fluage, qui sont présentés sur la figure V.3, montrent que L2 flue plus vite que L1. Un des facteurs pouvant influencer la vitesse de fluage est la taille de grains, comme cela a souvent été rapporté dans la littérature. Par contre, l'écart constaté dans notre étude semble important au vu de la faible différence de taille de grains entre L1 et L2. Il est donc vraisemblable que d'autres facteurs interviennent dans cette différence de comportement, dont la distribution des pores. Comme précédemment, il n'est pas possible de confronter cette hypothèse à d'autres données publiées, dans la mesure où les travaux effectués jusqu'à ce jour sur le comportement visco-plastique de l'UO₂ n'étaient pas associés à une caractérisation fine et quantifiée de la porosité.

Nous n'avons pas cherché à confronter nos résultats à un modèle existant de fluage car, comme cela a été présenté dans le chapitre I (paragraphe I. 4. 1), les modèles les plus utilisés reposent sur une loi empirique de type Arrhénius, dans laquelle on trouve une constante d'ajustement A qui dépend de la microstructure, ainsi que des exposants p et n qui traduisent respectivement la sensibilité de cette microstructure à la taille de grains et à la contrainte, sans qu'aucune signification physique claire ne soit attribuée par les auteurs aux valeurs trouvées pour A, p et n, selon les microstructures considérées (dont on ne connaît en général que la taille de grains moyenne). Il en est de même pour le modèle de Dherbey, décrit dans l'annexe B, qui est également empirique et comporte aussi une constante, un exposant p « de taille de grain » et un « volume d'activation », qui sont tous trois ajustables et considérés comme dépendants de la microstructure [Dherbey, 2000].

Une description plus précise et quantifiée des états initiaux et des évolutions microstructurales dues à la déformation, telle que celle que nous essayons d'obtenir au travers de notre démarche d'étude, pourrait aboutir à terme à l'établissement de lois de fluage plus physiques que celles existant à ce jour. Ceci n'entre toutefois pas dans le périmètre de cette étude.

V. 3. Evolution de la microstructure de déformation : Effet de la microstructure initiale

V. 3. 1. Influence du taux de déformation

V. 3. 1. 1. Influence du taux de déformation sur la microstructure L2

L'influence du taux de déformation sur la microstructure L2 est illustrée avec le groupe G1_L2(v20). Les caractéristiques des essais mécaniques de ce groupe sont récapitulées dans le tableau V.2.

Tableau V.2 : Caractéristiques des essais mécaniques réalisés sur les pastilles du groupe G1_L2(v20)

Echantillon	Vitesse de déformation arrondie $\times 10^{-6}$ (s^{-1})	Taux de déformation (%)	Durée de l'essai
R2	/	/	/
L2-D-v20-d3	20	3	37 min
L2-D-v20-d5,1	20	5,1	1 h
L2-D-v20-d7	20	7	1 h 19 min
L2-D-v20-d9,4	20	9,4	1 h 28 min
L2-D-v20-d11	20	11	1 h 41 min

La comparaison des micrographies BSE acquises sur les échantillons correspondant à ce groupe de pastilles (figure V.6) montre de nouveau que la compression induit la formation de sous-grains dans le matériau et que leur nombre augmente avec le taux de déformation. On note aussi qu'il n'y a aucune évolution significative de la porosité.

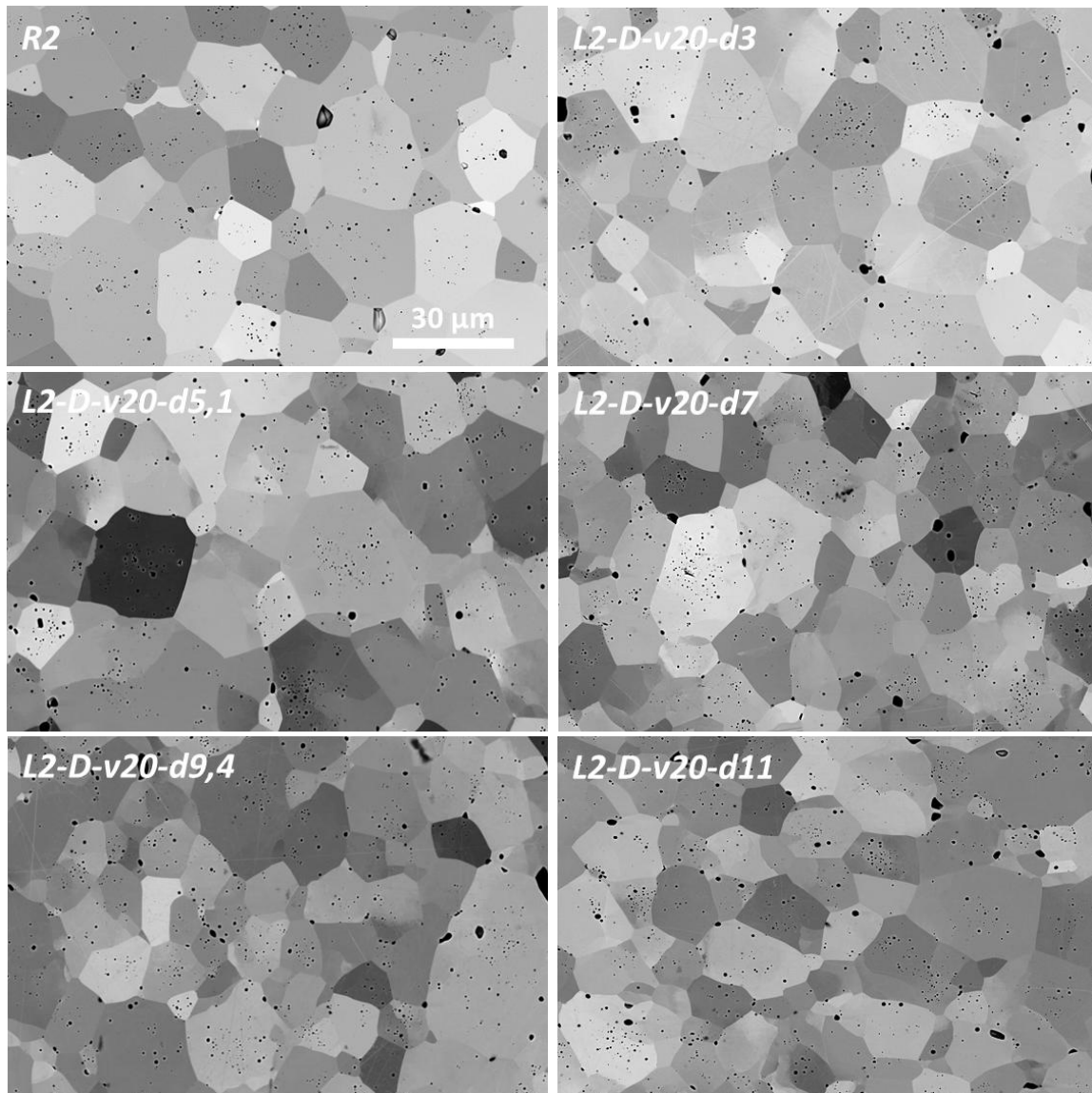
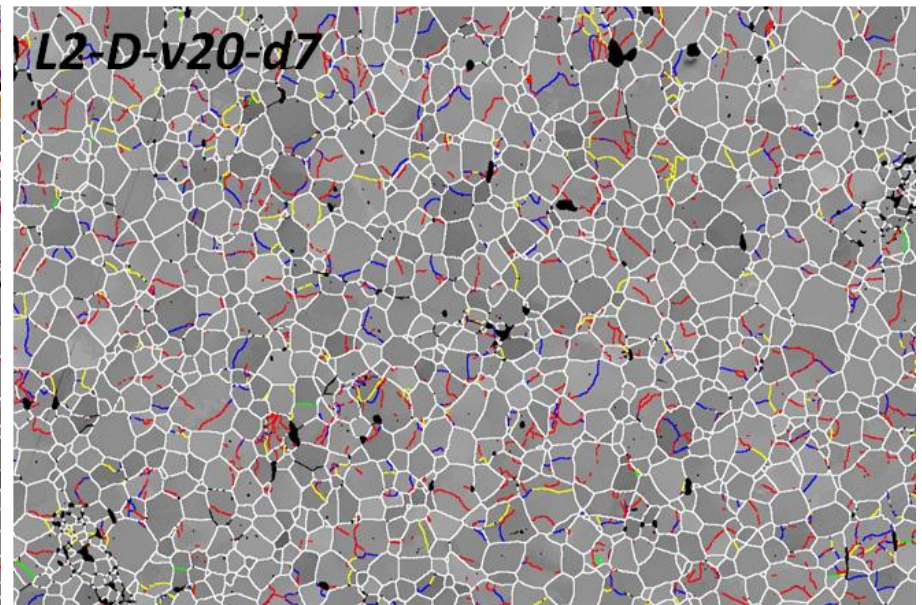
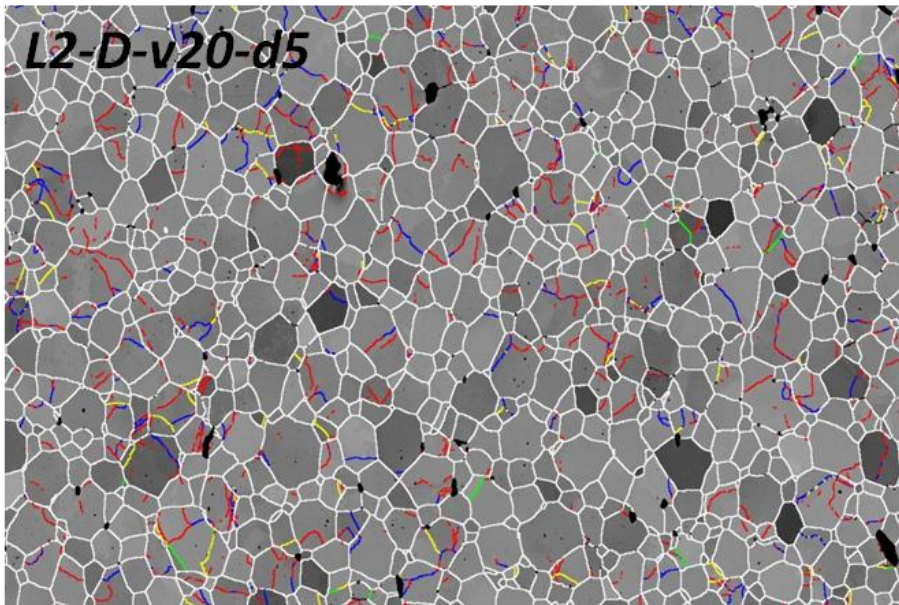
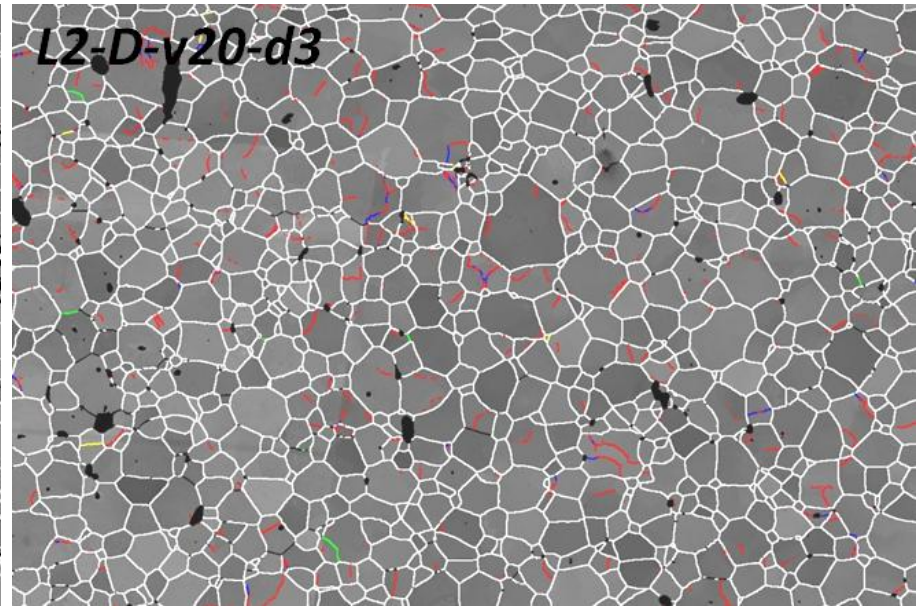
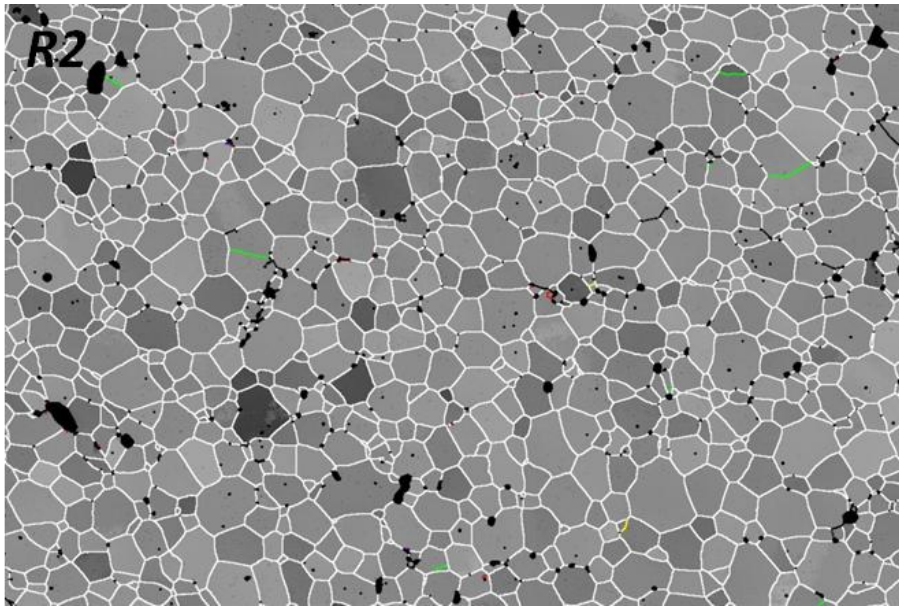


Figure V.6 : Micrographies BSE acquises sur l'échantillon R2 et les cinq échantillons du groupe G1_L2(v20).

Les résultats obtenus par EBSD sur ce groupe de pastilles (figure V.7 et V.8 et tableau V.3) confirment la densification du réseau de S-JG et permettent d'analyser l'évolution des désorientations correspondantes. Dans l'échantillon de référence, la plupart des désorientations mesurées sont supérieures à 15° (95,78%) et seulement 0,66% sont inférieures à 5° . Par contre, la fraction linéaire des S-JG calculée dans l'échantillon L2-D-v20-d3, déformé seulement à 3%, augmente pour atteindre 12,57%. La majorité de cette valeur (11,31%) correspond aux S-JG les plus faiblement désorientés (entre $0,25^\circ$ et $0,5^\circ$). Ensuite, la fraction linéaire des S-JG augmente avec le taux de déformation : elle atteint 25,12% dans l'échantillon déformé à 5,1%. La valeur maximale est obtenue dans l'échantillon qui a été déformé à 11%.



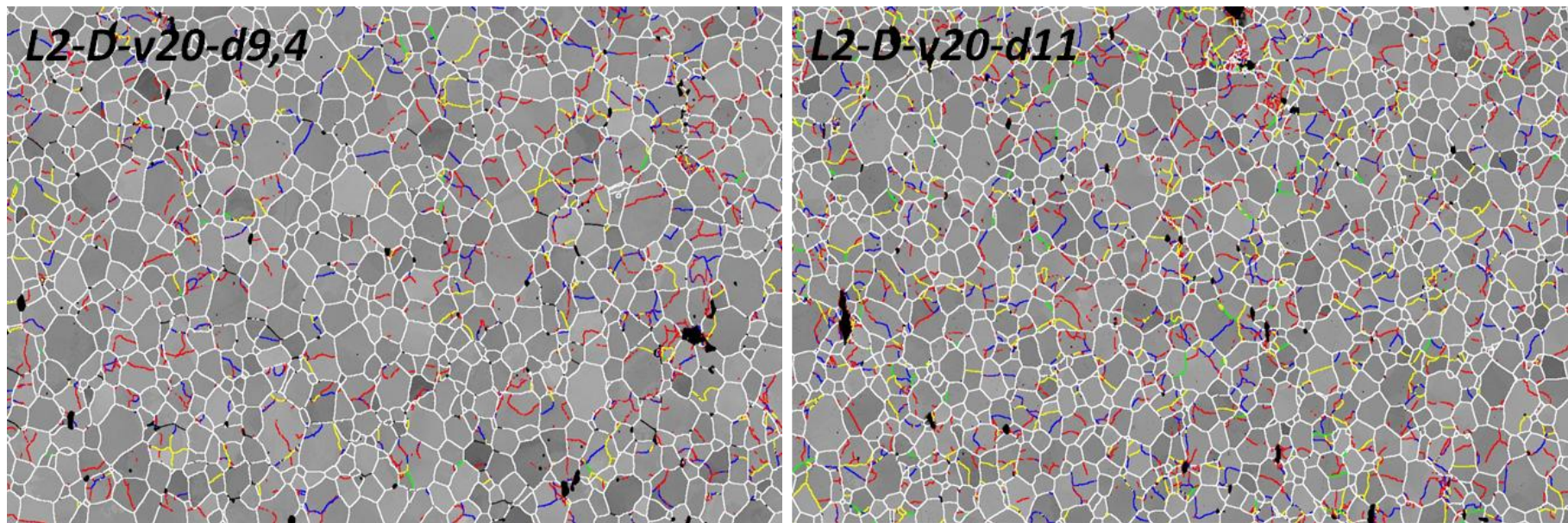
Code de couleur



Angle de désorientation θ° 0,25 0,5 1 3 >5

100 μm





Code de couleur



Angle de désorientation θ° 0,25 0,5 1 3 >5

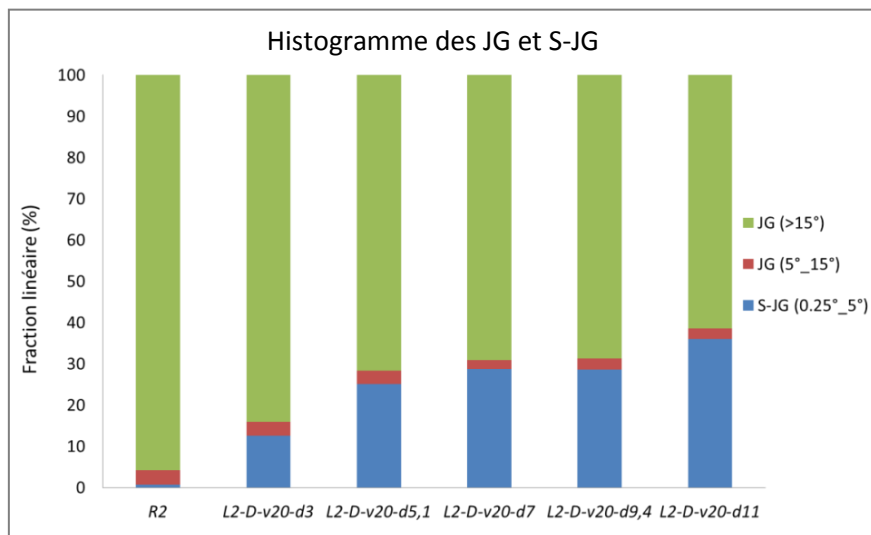
100 μm



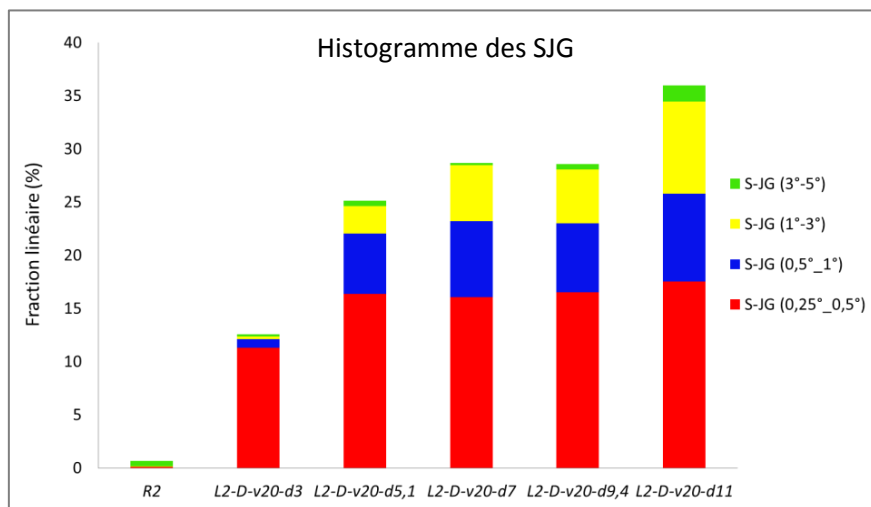
Figure V.7 : Cartes d'indice de qualité et de désorientations relatives aux échantillons du groupe G1_L2(v20).

Tableau V.3 : Quantification des fractions linéaires de JG et S-JG et de la densité de GNDs, à partir des données EBSD des échantillons du groupe de pastilles G1_L2(v20)

Désorientation θ°	R2	L2-D-v20-d3	L2-D-v20-d5,1	L2-D-v20-d7	L2-D-v20-d9,4	L2-D-v20-d11
Histogramme des JG et S-JG						
0,25°_5°	0,66	12,58	25,12	28,65	28,56	35,97
5°_15°	3,56	3,36	3,12	2,21	2,67	2,53
>15°	95,78	84,07	71,76	69,14	68,77	61,50
Histogramme des S-JG						
0,25°_0,5°	0,11	11,31	16,35	16,06	16,52	17,52
0,5°_1°	0	0,80	5,71	7,15	6,50	8,25
1°_3°	0,06	0,23	2,55	5,25	5,05	8,66
3°_5°	0,49	0,23	0,51	0,19	0,49	1,54
$\ GNDs\ \times 10^{12} m^{-2}$	0,81	2,03	2,87	3,36	3,51	5,11



(a)



(b)

Figure V.8 : (a) Histogrammes de fractions linéaires des JG et S-JG déterminés à partir des cartes EBSD des échantillons du groupe G1_L2(v20), (b) zoom sur les S-JG.

On remarque qu'entre 5,1% et 9,4% de déformation, la fraction linéaire des S-JG n'augmente que légèrement : ce résultat pourrait rendre compte d'un certain effet de « saturation » du matériau en S-JG, peut-être du fait de l'établissement de conditions quasi-stationnaires de création et d'annihilation de dislocations.

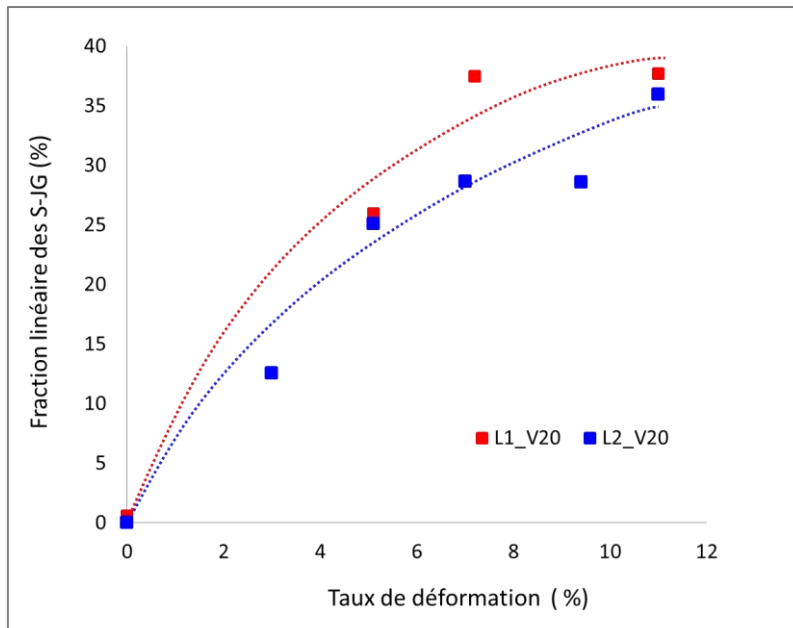
On constate aussi une augmentation remarquable de la fraction linéaire de S-JG de désorientations comprises entre 3° et 5° dans l'échantillon *L2-D-v20-d11*. Celle-ci atteint 1,54% alors qu'elle ne dépasse pas les 0,5% dans le reste des échantillons de ce groupe (l'échantillon R2 inclus). La classe [1°_3°[présente également une augmentation importante (elle atteint 8,66% contre 5,05% dans l'échantillon déformé à 9%). Les classes de désorientations plus faibles augmentent elles aussi de façon un peu moins marquée. L'ensemble de ces résultats tend à montrer qu'à fort taux de déformation (11% dans ce cas), il y aurait simultanément formation de nouveaux S-JG faiblement désorientés (cf. classes [0,25°_0,5°[et [0,5°_1°[), et augmentation de la désorientation des S-JG existants (cf. classes [1°_3°[et [3°_5°[).

V. 3. 1. 2. Effet du taux de déformation dans les deux lots

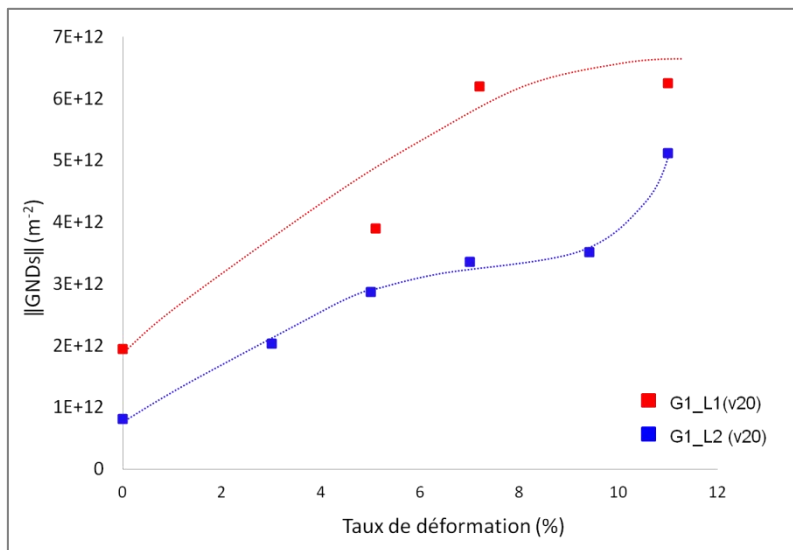
La figure V.9 présente l'évolution de la fraction linéaire de S-JG et de la densité moyenne de GNDs déterminées à partir des cartes EBSD correspondant aux deux groupes de pastilles *G1_L1(v20)* et *G1_L2(v20)*. La densité moyenne de GNDs dans les deux états de référence R1 et R2 est de $1,94 \cdot 10^{12}$ et $0,81 \cdot 10^{12} \text{m}^{-2}$, qui correspond en fait au bruit de mesure. La différence entre les deux états de référence est liée à l'état de préparation de la surface de travail des échantillons. En effet, la carte EBSD acquise sur l'échantillon R2 présente quelques rayures de polissage. La différence est aussi liée à la présence de quelques JG très faiblement désorientés (de l'ordre de 3°), dont le nombre diffère d'une carte à l'autre. Or d'après la convention que nous avons choisie, ces JG sont comptabilisés comme des S-JG, ce qui impacte la densité moyenne de GNDs calculée avec Atom.

D'une manière générale, le nombre ainsi que la fraction linéaire de S-JG augmente avec le taux de déformation. Il en est de même pour la densité de GNDs. Les courbes (figure V.9a) et droites (figure V.9b) de tendance tracées sont indicatives, compte-tenu de la dispersion des points expérimentaux. Cette dispersion ne permet d'ailleurs pas de statuer clairement sur l'existence ou non d'une « saturation » du matériau en S-JG.

En tout cas, quel que soit le taux de déformation, les pastilles déformées du lot L1 présentent systématiquement une fraction linéaire de S-JG nettement supérieure à celle du lot L2. Il en est de même pour la densité de GNDs.



(a)



(b)

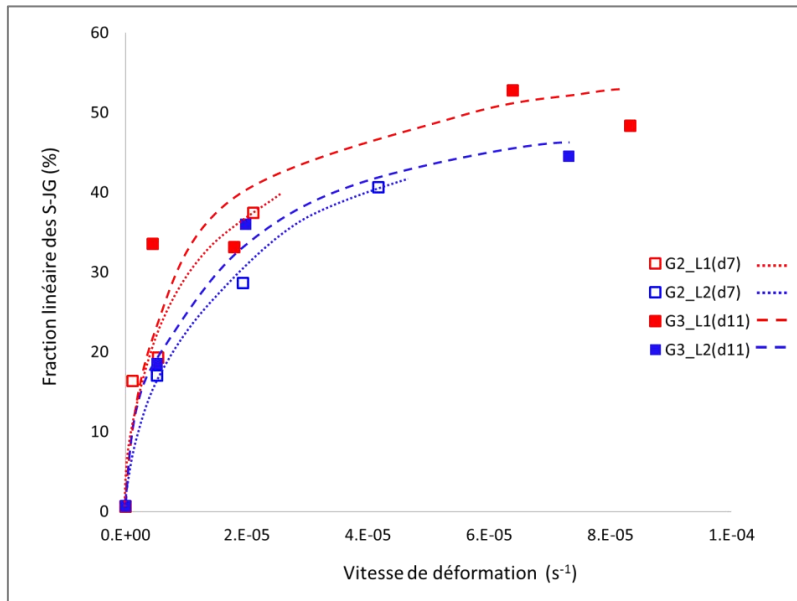
Figure V.9 : Evolution en fonction du taux de déformation (a) de la fraction linéaire des S-JG et (b) de la densité moyenne des GNDs, dans les deux groupes de pastille G1_L1(v20) et G1_L2(v20).

V. 3. 2. Influence de la vitesse de déformation dans les deux lots

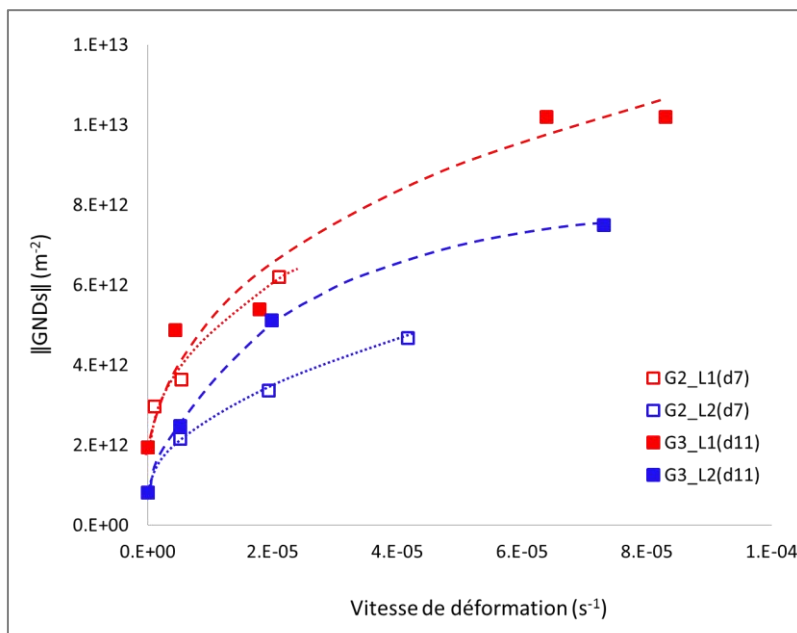
Afin d'alléger le contenu de ce chapitre, les résultats détaillés relatifs aux groupes G2_L2(d7) et G3_L2(d11) sont présentés dans l'annexe D. Ceux-ci permettent d'appréhender l'influence de la vitesse de déformation sur la microstructure L2.

D'une manière générale, la tendance en termes d'évolution de la microstructure en fonction de la vitesse de déformation, est presque la même pour les lots L1 et L2. En effet, la fraction linéaire de S-JG augmente avec la vitesse de déformation dans chaque groupe de pastilles (G2_L1(d7), G3_L1(d11), G2_L2(d7) et G3_L2(d11)) (figure V.10a). La densité de GNDs augmente aussi avec la vitesse de déformation (figure V.10b). Dans tous les cas, les courbes relatives au lot L2 se situent au-

dessous de celles du lot L1, ce qui signifie qu'il y a toujours moins de S-JG (donc de GNDs) dans le second lot.



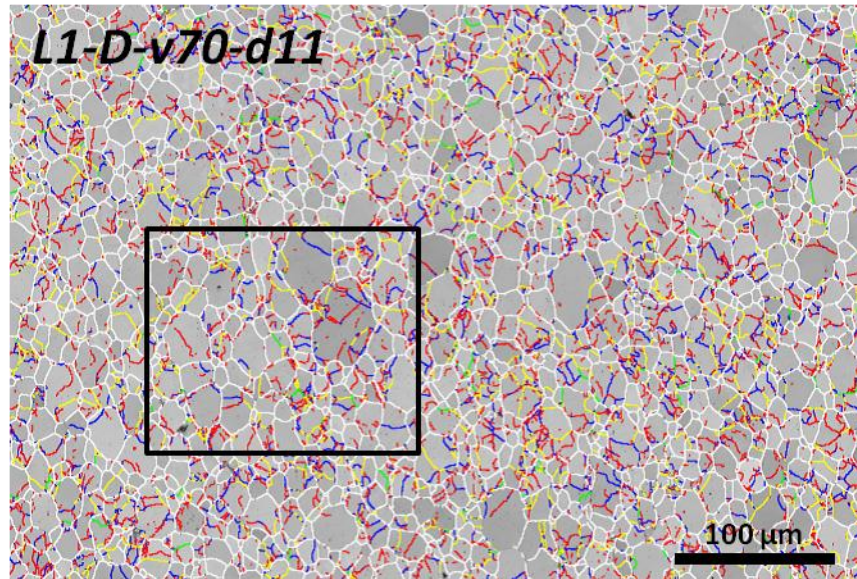
(a)



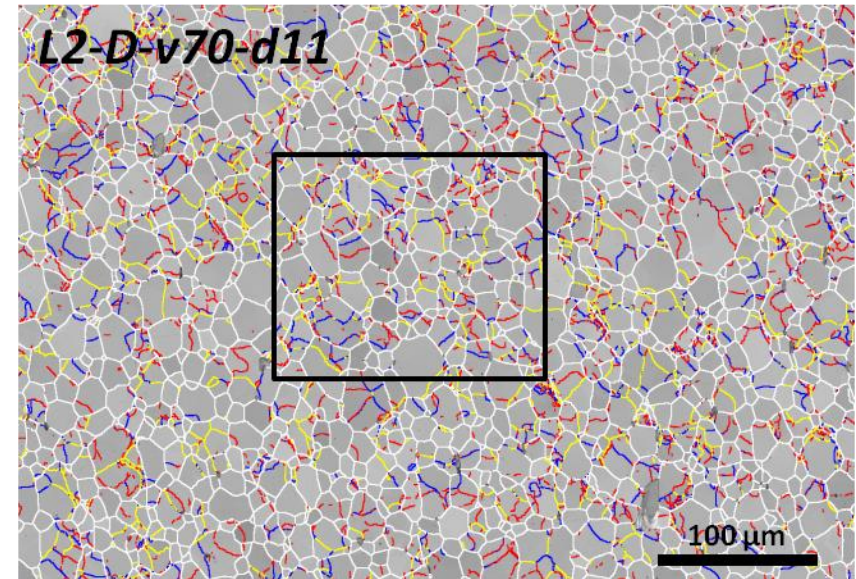
(b)

Figure V.10 : Evolution en fonction de la vitesse de déformation (a) de la fraction linéaire de S-JG et (b) de la densité moyenne des GNDs, dans les groupes de pastilles (G2_L1(d7), G3_L1(d11), G2_L2(d7) et G3_L2(d11)).

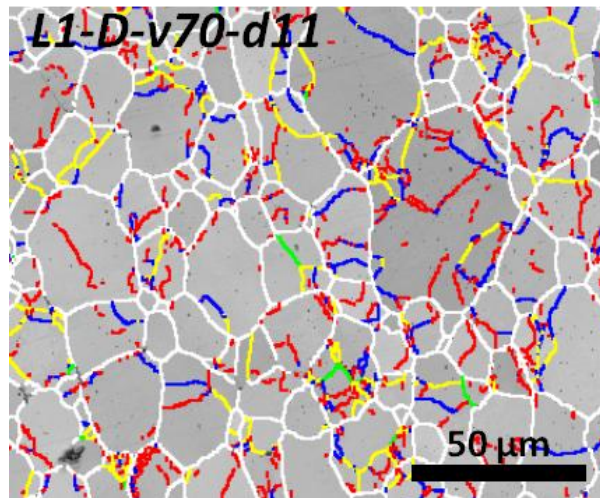
Une comparaison attentive des cartes EBSD obtenues révèle des différences intéressantes entre les deux lots : la distribution des S-JG dans les pastilles du lot L2 est homogène au sein des grains, alors qu'elle ne l'est pas dans le cas du lot L1. En effet, dans ce lot, la majorité des S-JG se localise essentiellement à proximité des JG (comme cela a déjà été signalé dans le chapitre IV). A l'inverse, dans le cas du lot L2, les S-JG sont traversants. La figure V.11 illustre ces particularités, qui ont été constatées à partir de toutes les cartes EBSD acquises sur les échantillons déformés des lots L1 et L2.



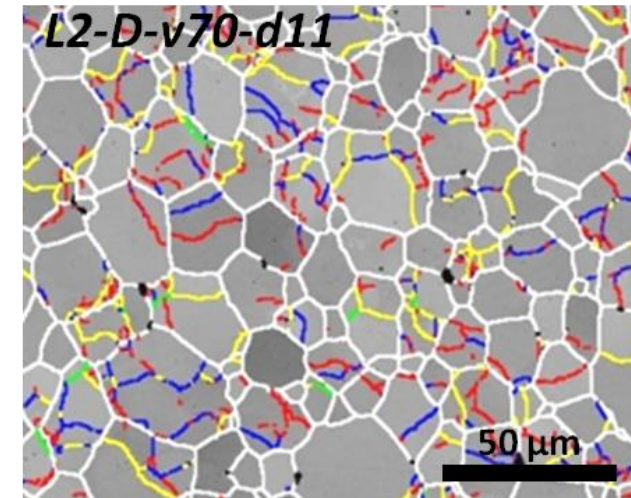
(a)



(b)

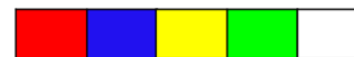


(c)



(d)

Code de couleur



Angle de désorientation θ° 0,25 0,5 1 3 >5

Figure V.11 : Distribution des S-JG au sein des grains : (a), (b) Cartes d'indice de qualité et de désorientations relatives aux échantillons L1-D-v70-d11 et L2-D-v70-d11, (c) et (d) correspondent à un zoom des zones entourées en noir respectivement dans a et b.

On a aussi remarqué que la vitesse de déformation a une influence sur la répartition des S-JG. En effet, le nombre de S-JG localisés au voisinage des JG augmente aussi avec la vitesse, ceci a été constaté notamment dans le cas du lot L1.

Par ailleurs, un début de formation de cavités inter-granulaires a été observé localement dans la microstructure L2 (cf. échantillon *L2-D-v70-d11*) pour une vitesse de déformation de $70.10^{-6} \text{ s}^{-1}$ et un taux de déformation de 11%, comme illustré sur la figure V.12. Ces cavités ont une forme généralement différente de la forme initiale des pores inter-granulaires initiaux : elles ont une taille plus grande et sont plus allongées.

Dans le cas du lot L1 (cf. échantillon *L1-D-v100-d16^o*), de telles cavités n'ont été observées qu'à une vitesse encore plus élevée ($100.10^{-6} \text{ s}^{-1}$) ainsi que pour un taux de déformation plus important (16%) (cf. chapitre IV, figure IV.17). La présence de pores inter-granulaires de relativement grande taille dans le lot L2 pourrait faciliter le développement de telles cavités, en servant d'amorces à leur formation.

Notons que, dans ces deux cas (*L2-D-v70-d11* et *L1-D-v100-d16^o*), le nombre de cavités observées reste faible ainsi que leur taille, et elles ne sont présentes que çà et là au sein de la pastille. En outre, nous n'avons pas observé de cavités dans les zones sur lesquelles des cartes EBSD ont été acquises sur ces échantillons. On peut donc conclure que les résultats issus de ces cartes restent représentatifs d'un mécanisme de fluage dislocationnel sans endommagement.

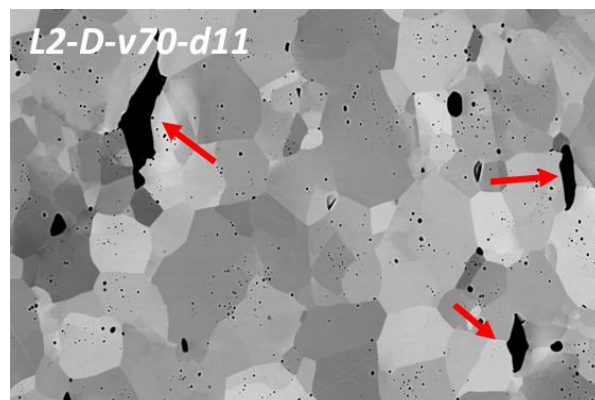


Figure V.12 : Micrographie BSE montrant la présence de petites cavités inter-granulaire dans l'échantillon *L2-D-v70-d11*.

V. 3. 3. Evolution de la taille des sous-grains dans les deux microstructures en fonction des conditions de sollicitation

Nous nous sommes intéressés à l'étude de l'évolution de la taille des sous-grains qui apparaissent lors de l'essai de compression, en fonction des conditions de sollicitation et de la microstructure initiale. Pour cela, la procédure de détection des sous-grains, présentée dans le chapitre III (cf. paragraphe III. 5 .3), a été appliquée aux trois groupes de pastilles des lots L1 et L2. Or, comme déterminé et détaillé dans le chapitre II, les deux microstructures de départ L1 et L2 n'ont pas la même taille moyenne de grains (respectivement de l'ordre de 12 et 15 μm). Afin de s'affranchir de cette différence, pour étudier la subdivision des grains dans les deux lots, nous avons choisi de ne considérer que les grains de DCE supérieur à 15 μm .

Les figures V.13 et V.14 présentent respectivement l'évolution de la taille des sous-grains avec le taux et la vitesse de déformation. Au sein d'un même lot, lorsque la vitesse ou le taux de

déformation augmente, la taille des sous-grains diminue. Ceci est lié au fait que le nombre de S-JG est d'autant plus élevé que la vitesse et le taux de déformation sont élevés, comme cela a été montré précédemment dans le chapitre IV, pour L1, et au début de ce chapitre, pour L2. A partir d'un certain taux et d'une certaine vitesse de déformation, la taille des sous-grain se stabilise et atteint un plateau.

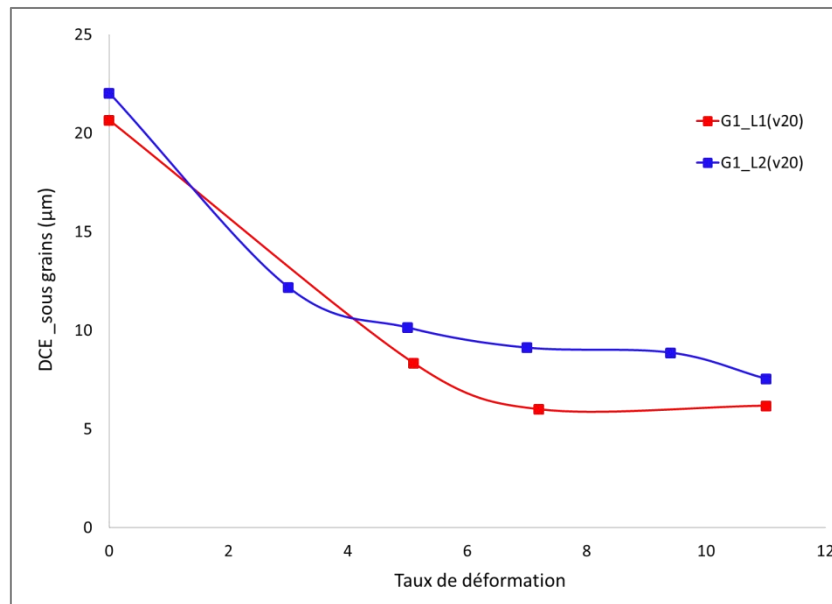


Figure V.13 : Evolution de la taille des sous-grains avec le taux de déformation dans L1 et L2.

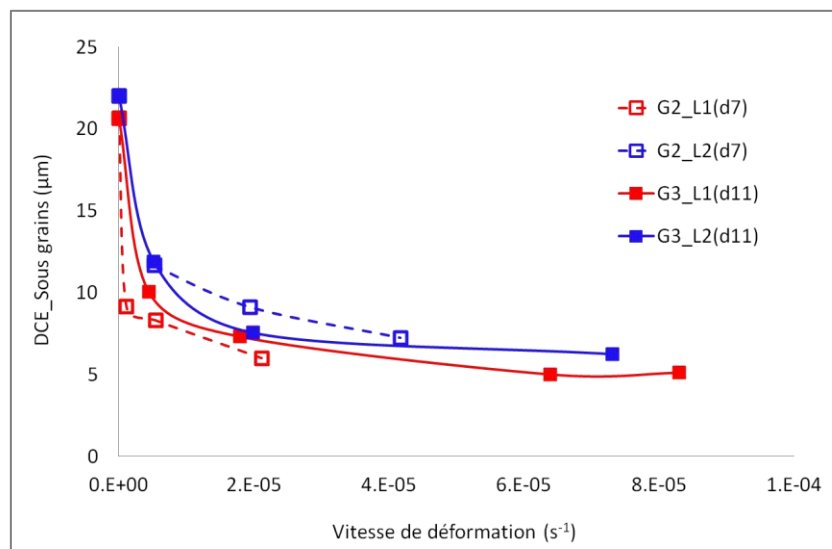


Figure V.14 : Evolution de la taille des sous-grains avec la vitesse de déformation dans L1 et L2.

Dans le cas des groupe G1_L1(v20) et G1_L2(v20), le plateau atteint ne se situe pas au même niveau, pour L1 et L2 : il correspond à une taille moyenne de sous-grains d'environ 5 µm, pour L1, et 10 µm, pour L2. Cette différence est vraisemblablement liée à la répartition des pores dans les deux microstructures, comme on le verra plus loin.

La même tendance à la diminution puis à la stabilisation de la taille de grain a été obtenue en considérant les groupes G2_L1(d7), G2_L2(d7), G3_L1(d11) et G3_L2(d11), déformés à différentes

vitesse : cf. figure V.14. Par contre, le plateau atteint à un niveau de déformation élevé de 11%, est presque le même pour les deux microstructures et est de l'ordre de 5 μm . Toutefois, l'observation de la distribution de la taille des sous-grains, dans le cas des deux échantillons *L1-D-v70-d11* et *L2-D-v70-d11* (voir figure V.15), montre qu'il existe une différence entre les deux microstructures. En effet, la majorité des sous-grains se situe dans les classes comprises entre 1 et 7 μm . Ils sont plus nombreux dans l'échantillon *L1-D-v70-d11* que *L2-D-v70-d11* (respectivement 81 et 71% de la population totale). De plus, la population des sous-grains la plus importante correspond à une taille moyenne de l'ordre de 3 μm (37 et 31% respectivement dans *L1-D-v70-d11* et *L2-D-v70-d11*).

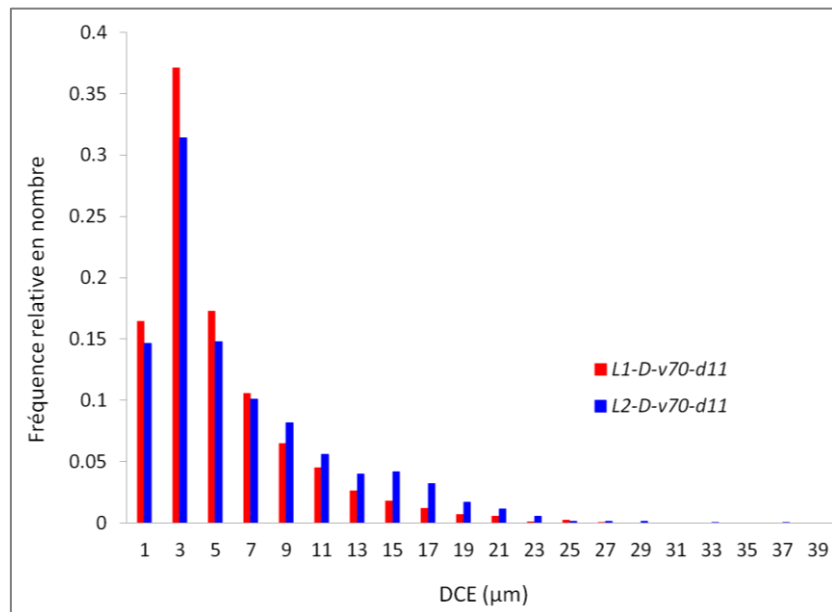


Figure V.15 : Histogramme de distribution en nombre des sous-grains en fonction de leur taille en DCE dans l'échantillons *L1-D-v70-d11* et *L2-D-v70-d11*.

V. 3. 4. Répartition spatiale des sous-joints de grains : influence de la porosité

La figure V.16 présente des cartes EBSD acquises sur deux échantillons, l'un issu du lot L1 et l'autre du lot L2. Ces échantillons (*L1-D-v5-d7* et *L2-D-v5-d7*) ont tous deux été déformés avec une vitesse de l'ordre de $5 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ et présentent un taux de déformation final de 7%. Les cartes EBSD ont été acquises à fort grandissement ($\times 7000$) et avec un pas réduit ($0,2 \mu\text{m}$), afin de détecter le maximum de pores, d'une part, et les très faibles désorientations, d'autre part.

La comparaison de ces cartes confirme, comme cela a déjà été constaté sur des cartes plus larges, que les S-JG sont souvent localisés à proximité des JG dans le cas de L1, alors qu'ils sont mieux répartis au sein des grains dans le cas de L2. Si l'on s'intéresse plus particulièrement à leur localisation, par rapport à celle des pores, on constate que :

- dans le cas de L1 :
 - de nombreux pores sont entourés par des S-JG très faiblement désorientés (qui ne correspondent pas à des artefacts de mesure, comme on le verra plus loin grâce à l'ECCI),
 - les S-JG sont souvent ancrés sur des pores intra-granulaires relativement gros (cf. S-JG indiqué par des flèches rouges sur la figure V.16a, par exemple,

- la distribution des pores intra-granulaires n'est pas homogène au sein des grains (il y a présence d'amas de pores), ceci a une incidence sur la localisation des S-JG.
- dans le cas de L2 :
 - il n'y a pratiquement aucun S-JG discontinu autour des pores,
 - les S-JG s'ancrent plutôt sur de gros pores inter-granulaires, mais pas sur des pores intra-granulaires.

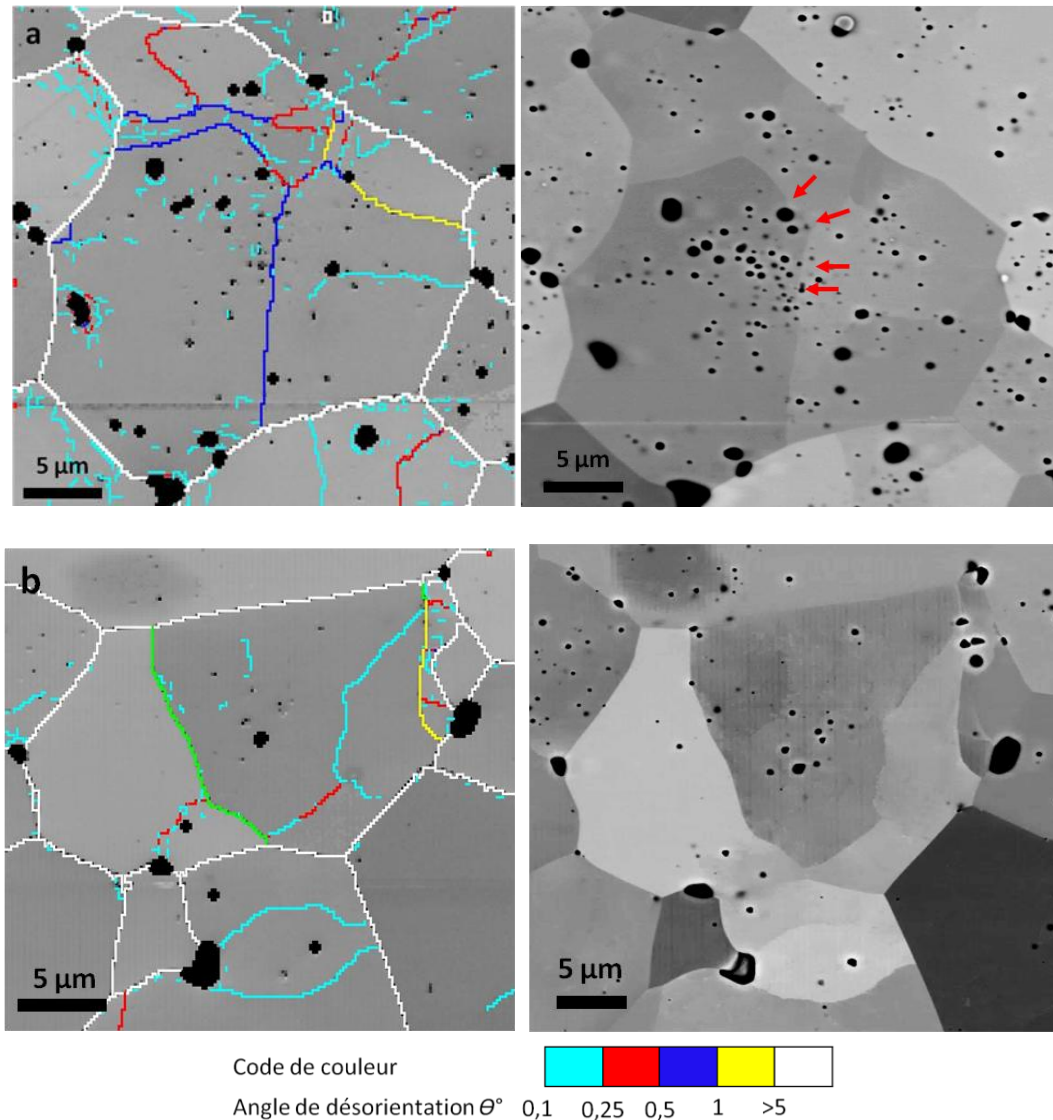


Figure V.16 : Cartes EBSD d'indice de qualité et de désorientations associées aux micrographies électroniques (en BSE) acquises respectivement sur les échantillons (a) L1_D_v5_d7 et (b) L2_D_v5_d7.

Nous avons calculé l'espacement moyen (ou intercept moyen) entre les JG et entre les pores, en utilisant un module d'analyse d'images développé sous Aphelion par Hazotte [Hazotte 2017]. Ce travail a été effectué sur les six images acquises en BSE sur les échantillons de référence R1 et R2, ayant servi à l'analyse de la porosité, dont les caractéristiques sont présentées dans le chapitre II (cf. paragraphe II. 4. 3).

Les résultats obtenus pour les deux microstructures sont présentés sur la figure V.17. Dans le cas où seuls les JG sont considérés comme des obstacles (figure V.17a), l'intercept moyen est de l'ordre de 7,5 et 9 μm , respectivement pour L1 et L2. On remarque aussi que, dans le cas de L2, la distribution des intercepts est plus étendue, ce qui est tout à fait logique, compte-tenu de la distribution de taille des grains dans les deux microstructures (cf. chapitre II, paragraphe II. 4. 2). Dans le cas où les pores sont aussi considérés comme des obstacles, on remarque que la courbe relative à R1 (figure V.17b) se décale significativement vers la gauche. Il en est de même pour R2, mais l'effet est moins marqué. On aboutit à des intercepts moyens qui valent respectivement environ 5 μm et environ 8 μm . L'obtention d'intercepts plus petits, dans la microstructure L1, est tout à fait cohérente avec le fait que cette dernière comporte davantage de pores intra-granulaires que L2.

Il est particulièrement intéressant de confronter les valeurs d'intercepts intégrant la présence de JG et de pores (5 μm et 8 μm , respectivement pour L1 et L2), avec la taille moyenne des S-JG dans les deux microstructures, qui tend à se stabiliser aux alentours de 5 μm et 10 μm , respectivement pour L1 et L2, lorsque le taux de déformation reste inférieur à 10% et que la vitesse de déformation est relativement modérée (inférieure à 50.10^{-6}s^{-1}). Le fait que ces valeurs soient sensiblement les mêmes tend à indiquer que la distribution des pores influe au premier ordre sur le libre parcours moyen des dislocations dans chacune des deux microstructures et, donc, sur la distance entre S-JG, qui définit la taille des sous-grains. A des taux et/ou des vitesses de déformation plus élevés, la taille moyenne des sous-grains atteindrait des valeurs un peu inférieures aux intercepts caractéristiques de chaque microstructure. Dans de telles conditions de sollicitation, on peut penser que les dislocations, plus nombreuses et plus mobiles, parviennent à franchir au moins partiellement les obstacles constitués par les JG et les pores.

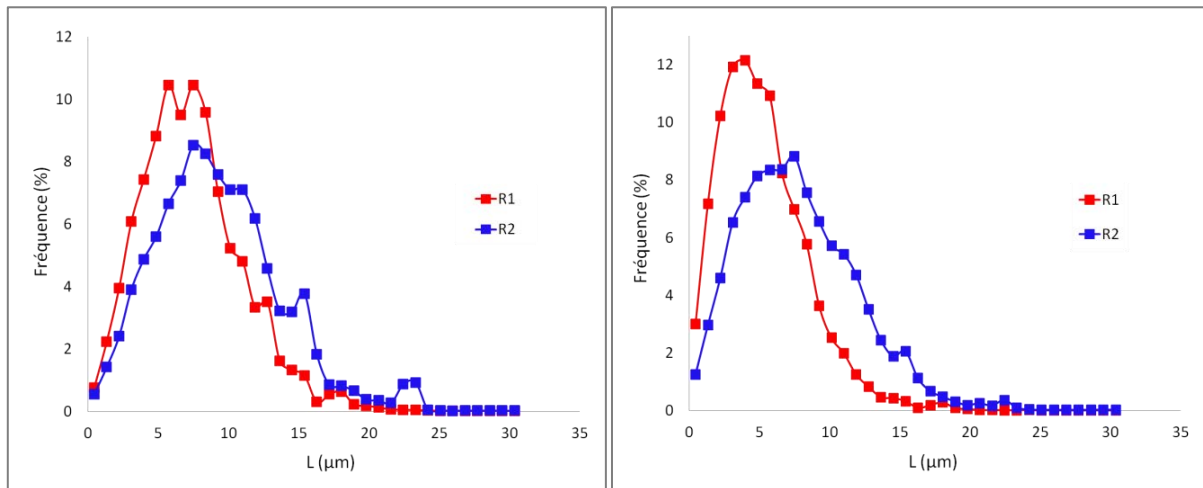


Figure V.17 : Distribution des intercepts moyens (L) pour les deux microstructures initiales : (a) prise en compte des JG, (b) prise en compte des JG et des pores.

Des micrographies A-ECCI ont été acquises à fort grandissement sur plusieurs échantillons déformés du lot L1, dans l'objectif d'imager les dislocations au voisinage des pores. Un certain nombre d'entre elles sont présentées sur la figure V.18 et mettent en évidence différents arrangements de dislocations.

Ces observations microscopiques confirment que les pores jouent un rôle important sur la répartition des S-JG car, dans de nombreux cas (cf. flèches rouges sur les images, par exemple), ces derniers adoptent un profil tortueux, plus ou moins continu, qui semble lié à des épinglages multiples

sur des pores principalement intra-granulaires. Les dislocations de matrice (isolées) présentent quant à elles une distribution plus erratique. Nous allons revenir sur ces caractéristiques, dans la cadre de la discussion qui suit.

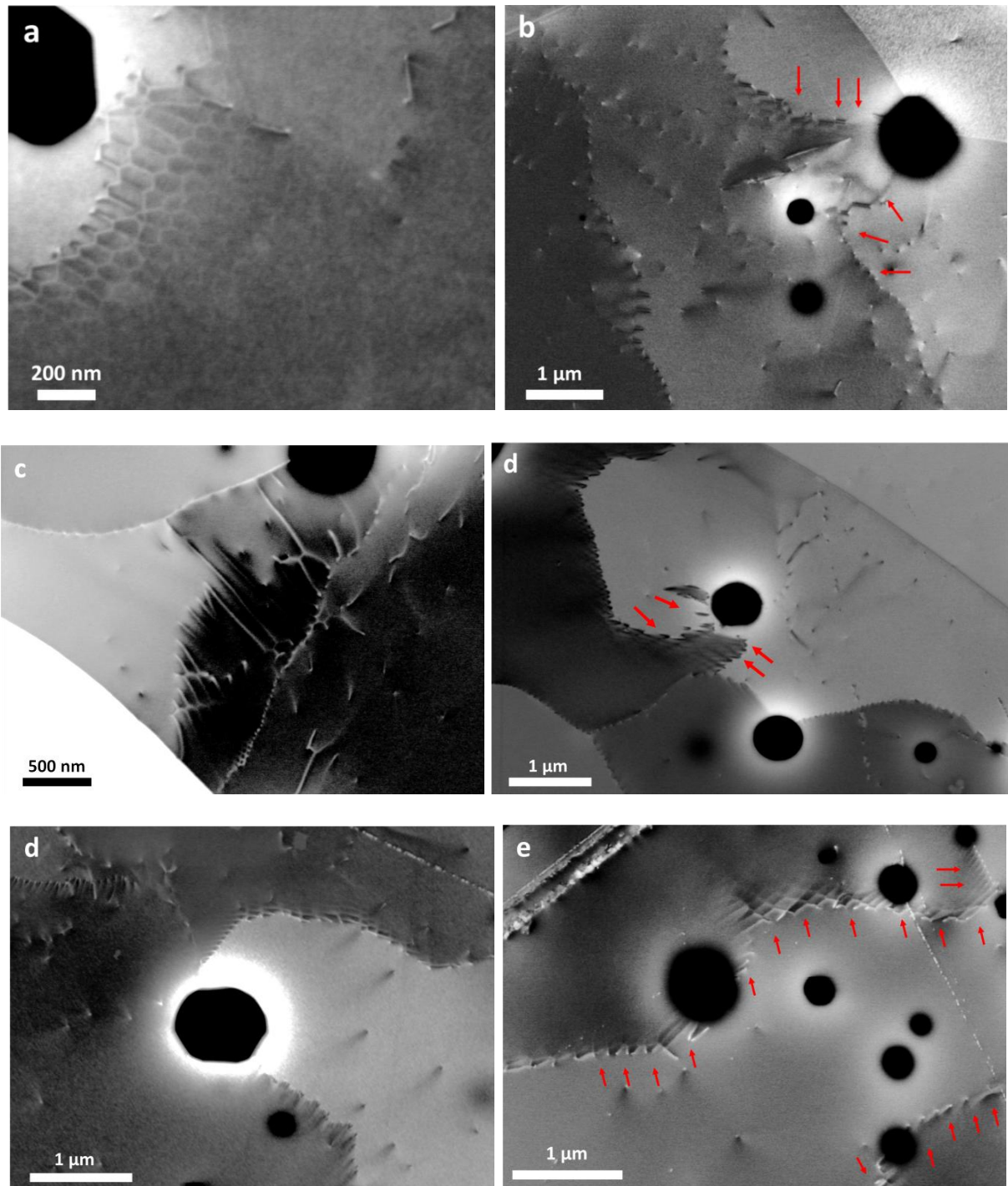


Figure V.18 : *Micrographies A-ECCI des interactions entre pores/dislocations isolées et pores/sous-joints de grain.*

V. 4. Discussion : Comportement des microstructures L1 et L2 dans le domaine du fluage dislocationnel

V. 4. 1. Rappel des principaux résultats obtenus

Des points communs mais aussi des différences ont été relevées entre les microstructures L1 et L2 après essais mécaniques. Nous allons revenir succinctement sur les plus remarquables.

En ce qui concerne le comportement mécanique macroscopique des deux lots, nous avons constaté que, dans le domaine du fluage dislocationnel, c'est le lot L2 qui se déforme le plus vite, vraisemblablement en raison de l'influence conjointe de sa taille de grains (légèrement plus élevée que celle du lot L1) mais aussi des caractéristiques de sa porosité de fabrication.

Les cartographies EBSD réalisées sur des groupes d'échantillons choisis en fonction de leurs conditions de sollicitation (taux ou vitesse de déformation), ainsi que les images A-ECCI réalisées sur certains échantillons du lot L1, ont permis de conclure que :

- le nombre ainsi que la fraction linéaire des S-JG augmente avec le taux et la vitesse de déformation, dans les deux lots L1 et L2,
- l'augmentation du taux et de la vitesse de déformation s'accompagnerait de l'apparition de nouveaux S-JG faiblement désorientés ainsi que de l'augmentation de la désorientation des S-JG déjà présents,
- il existerait un effet de saturation de la population de S-JG pour chaque microstructure, dans un certain domaine de sollicitation (ce point serait à vérifier, compte-tenu de la dispersion expérimentale),
- le nombre de S-JG ainsi que la densité de GNDs sont systématiquement plus élevés dans les échantillons déformés du lot L1,
- dans ce même lot, les S-JG sont localisés préférentiellement à proximité des joints de grains, ils paraissent souvent tortueux du fait de leur épingleage sur les nombreux pores intra-granulaires présents dans cette microstructure,
- dans le lot L2, les S-JG sont moins nombreux, et plutôt situés au cœur des grains (traversants),
- l'intercept moyen entre [JG + pores] dans les deux microstructures a sensiblement la même valeur que la taille moyenne atteinte par les sous-grains (pour un taux et une vitesse de déformation respectivement inférieurs à environ 10% et $50 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$), ce qui tend à indiquer que cette taille est fortement corrélée au libre parcours moyen des dislocations entre les obstacles que constituent les JG et les pores,
- un endommagement local, sous forme de cavités inter-granulaires, a été observé uniquement aux plus forts taux et vitesses de déformation étudiés : il est plus marqué dans la microstructure L2 qui présente au départ des pores inter-granulaires plus gros.

Nous allons confronter ces observations et les premières interprétations que nous y avons associées, à la littérature. Nous considérerons successivement les mécanismes de sous-structuration des grains et le rôle des pores sur cette sous-structuration.

V. 4. 2. La sous-structuration

La déformation plastique (ou visco-plastique dans le cas des céramiques) s'accompagne de la création de dislocations. Lorsque la température est suffisante, ces dislocations deviennent

spontanément mobiles et provoquent une réorganisation de la structure des cristaux en sous-grains. Ce mécanisme, souvent appelé « restauration dynamique », a été observé tant dans les métaux et alliages métalliques, que dans des céramiques, ou encore des matériaux géologiques soumis à de fortes pressions dans le manteau terrestre [Robert-Amodeo 1988, Montheillet 2009, Mariani 2009].

Aux déformations faibles ou modérées, la combinaison des processus de durcissement, par augmentation du nombre de dislocations, et de restauration dynamique, par migration et organisation de ces dislocations en réseaux (ou parois), se traduit par une évolution microstructurale qui est décrite schématiquement sur la figure V.19. Il y a tout d'abord une augmentation progressive de la densité de dislocations qui provoque un durcissement du matériau. Des mécanismes de glissement dévié et de montée, thermiquement activés, facilitent le mouvement des dislocations. Une partie d'entre elles est éliminée, soit au cours d'annihilations par paires, soit par absorption dans les JG. Simultanément, les dislocations s'organisent en sous-joints, subdivisant les grains initiaux en sous-grains. Les transformations microstructurales dans le domaine des déformations faibles ou modérées résultent donc d'un équilibre entre le durcissement (création de dislocations) et la restauration dynamique (réarrangement et annihilation continue des dislocations). Aux déformations plus élevées, une partie des S-JG formés durant la phase « durcissement-restauration dynamique » se transforment progressivement en joints par rotation progressive des sous-grains. Ce phénomène, fréquemment observé dans les roches et les glaces polaires, est désigné par le terme « recristallisation par rotation ».

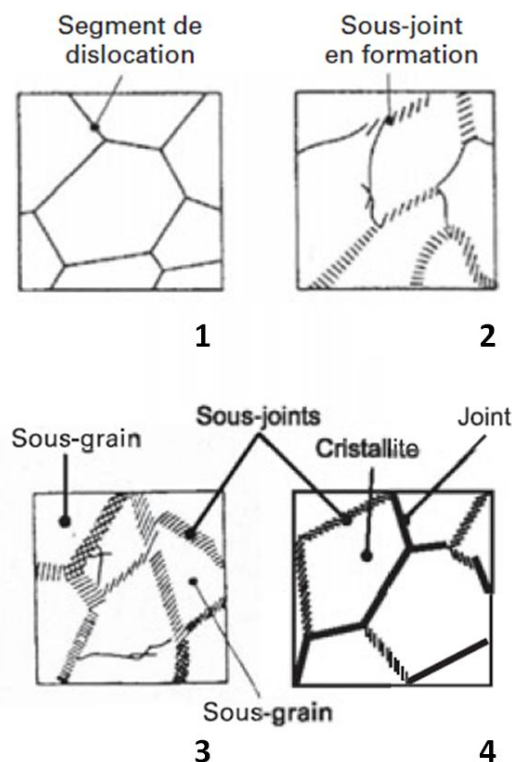


Figure V.19 : Représentation schématique des évolutions de microstructure liées à la restauration dynamique et à la recristallisation dynamique [Montheillet 2009].

L'étude du développement d'une sous-structure au sein des grains d' UO_2 , lors d'un essai de compression à haute température, ainsi que l'influence des conditions d'essai sur cette évolution, ont été très peu abordés dans la littérature. Par contre, de nombreux travaux portant sur des

matériaux géologiques de structure proche de celle de l'UO₂ (cristaux ioniques, certains de maille cubique) se sont intéressés à ces aspects : il s'agit par exemple d'études sur l'olivine, MgO monocristallin, NaCl polycristallin, la calcite (CaCO₃) polycristalline, etc.

Dans la plupart de ces travaux, les auteurs étudient essentiellement l'influence du taux de déformation final sur la microstructure obtenue, qui est caractérisée par EBSD. Il a été ainsi vérifié que la déformation induit l'apparition de S-JG dans le matériau [Demouchy 2014, Mariani 2009, Pennock 2005^a, Pennock 2005^b, Staiger 2010, Valcke 2006] et que le nombre ainsi que l'angle de désorientation de ces S-JG augmentent avec le taux de déformation [Valcke 2006, Mariani 2009]. En particulier, Mariani et al. ont analysé par EBSD l'évolution dynamique de la microstructure de monocristaux MgO testés en compression uniaxiale [Mariani 2009]. Ils ont conclu que la restauration dynamique par rotation de sous-grains (augmentation de la désorientation des S-JG) est le principal mécanisme de recristallisation dans les monocristaux MgO déformés. Par ailleurs, dans le cas de NaCl polycristallin, Pennock et al. ont montré que la désorientation moyenne au sein des grains augmente avec la déformation et qu'à des taux de déformation élevés, la vitesse d'augmentation de la désorientation diminue [Pennock 2005^a]. Il y a ensuite apparition de nouveaux grains dans les grains originaux, une fois que la limite de désorientation fixée pour définir un JG (16° dans le cas de cette étude) est atteinte. L'apparition de nouveaux grains lors de la déformation, par augmentation progressive de la désorientation de sous-grains, a aussi été mise en évidence dans CaCO₃ par Valcke et al. [Valcke 2006].

Ces travaux présentent certaines limites par rapport aux nôtres. En effet, le nombre d'échantillons caractérisés est réduit (seulement dix échantillons testés dans l'étude de Mariani et al. [Mariani 2009]). De plus, les très faibles désorientations détectées par EBSD ne descendent pas en dessous de 0,5° et les cartes EBSD exploitées sont moins étendues (dans le cas de l'étude de Pennock et al. par exemple [Pennock 2005^a]). Malgré toutes ces limitations, les différents résultats déduits de ces travaux et, en particulier ceux de Pennock et al., sont en bonne cohérence avec ceux que nous avons obtenus sur UO₂, sur les deux microstructures que nous avons étudiées. En effet, sur la base des résultats EBSD (notamment la fraction linéaire des S-JG), nous avons montré que le nombre et la désorientation des S-JG augmente avec le taux de déformation et la vitesse de déformation. A partir d'une certaine condition (11% et 70.10⁻⁶ s⁻¹ dans le cas de L1 et L2), nous avons constaté une certaine saturation qui se traduisait par une augmentation faible de la fraction linéaire des S-JG, associée à une augmentation notable de leur désorientation pouvant conduire, à terme, à la formation de nouveaux grains à partir des sous-grains.

Le fluage dislocationnel des céramiques met également en jeu la formation de sous-joints de grains et l'augmentation de leur désorientation. D'autres mécanismes, pour certains liés aux propriétés des joints de grains dans ces matériaux (présence de phase vitreuse, par exemple), tels que les glissements aux joints de grain et la formation de cavités inter-granulaires, sont cités par de nombreux auteurs comme étant efficaces dans ce type de matériaux (voir par exemple [Blanchard 1993]).

Dherbey a décrit le comportement en fluage de l'UO₂ par un glissement aux JG accommodé en partie par un fluage dislocationnel à l'intérieur des grains (donnant lieu à la formation de S-JG) [Dherbey 2000]. D'après cet auteur, la fraction du glissement non accommodée par la déformation intra-granulaire provoque l'apparition de cavités inter-granulaires. Les observations que nous avons réalisées sur l'ensemble des échantillons déformés des lots L1 et L2 n'ont pas clairement révélé la mise en jeu de mécanismes de glissement aux joints de grains. De tels mécanismes sont toutefois difficiles à mettre en évidence car ils peuvent avoir lieu sans affecter la forme des grains, comme cela

est rapporté dans les travaux d'Ashby [Ashby 1973]. Nous avons uniquement pu déceler des évolutions légères de la forme et de l'orientation préférentielle (allongement perpendiculaire à l'axe de compression) d'une petite fraction des grains, à partir des cartes EBSD réalisées sur les échantillons déformés jusqu'à des taux élevés (au-delà de 10%). Un tel effet a également été constaté par Salvo, sur une pastille d' UO_2 déformée en DVC à 1550°C jusqu'à un taux d'environ 20% [Salvo 2014]. Ce point mériterait d'être étudié plus en détail, notamment sur des échantillons sollicités à différentes températures.

Par ailleurs, dans la gamme de sollicitations que nous avons balayée, des cavités de petite taille n'ont été observées de place en place que dans les échantillons les plus déformés. Dherbey et divers autres auteurs ont observé de nombreuses cavités dans des pastilles déformées dans des conditions proches des nôtres. Le fait que nous n'en observions quasiment pas est certainement dû, au moins en partie, à l'élanement (rapport hauteur/diamètre) des pastilles sur lesquelles nous avons travaillé : celui-ci était de l'ordre de 2, contre environ 1,5, pour des pastilles de dimensions standards. Ce plus grand élanement a conduit à une meilleure répartition de la déformation (diminution de l'effet tonneau dû aux frottements contre les cales de maintien de la machine de compression), réduisant ainsi sa localisation dans la zone centrale. Il se pourrait aussi que nos essais aient été réalisés dans de meilleures conditions de contrôle de la PO_2 , donc de la stœchiométrie de l' UO_2 , dans la mesure où des examens réalisés récemment au CEA ont mis en évidence une tendance à l'augmentation de l'endommagement par cavitation, avec la sur-stœchiométrie [Iltis 2017].

V. 4. 2. Rôle des pores

A notre connaissance, le rôle des pores intra-granulaires sub-microniques sur la déformation en général et sur la distribution des S-JG en particulier a très peu été étudié dans la littérature, que ce soit d'un point de vue théorique ou expérimental. En particulier, nous n'avons trouvé aucun travail relatif à cette question, pour l' UO_2 . C'est d'ailleurs une des raisons qui a motivé notre étude.

Les résultats que nous avons obtenus à partir des cartes EBSD et des micrographies A-ECCI, précédemment présentées, montrent que les pores ont une influence marquée sur la répartition des S-JG. Considérons tout d'abord d'éventuelles interactions entre les pores et les dislocations isolées. Pour qu'une interaction entre une dislocation et un pore ait lieu, la migration de l'un ou des deux est nécessaire. Dans notre cas, il n'y aurait pas de migration des pores car, d'après Gill, ce processus nécessite un fort gradient thermique, qui n'existe pas lors de nos essais [Gill 2009]. De plus, nous n'avons pas constaté d'évolution significative de la taille des pores, suite aux essais mécaniques, ce qui tend à indiquer qu'ils ne coalescent pas (ou peu), donc ne migrent pas (ou peu). Par contre, le mouvement des dislocations est rendu possible par la contrainte et la température. D'après nos observations et d'après la littérature (voir par exemple [Pennock 2005^a]), lors de la déformation, les dislocations se forment préférentiellement au voisinage des JG, du fait des incompatibilités de déformation entre grains, puis migrent.

En température, le mouvement des dislocations met en jeu le mouvement de lacunes qui peuvent soit diffuser vers les pores, soit être émises par ceux-ci. Par ailleurs, la surface libre que constitue la paroi d'un pore peut conduire à une relaxation locale des contraintes qui pourrait avoir un effet attractif sur les dislocations [Forty 1964]. Ohashi a montré quant à lui, à partir d'un modèle de plasticité cristalline, que des dislocations peuvent se multiplier autour de pores [Ohashi 2005]. Ces mécanismes, bien que tous différents et peu étayés par des observations expérimentales, convergent tous vers une tendance pour les dislocations, à se concentrer au voisinage des pores. Cet effet a

effectivement été observé sur la microstructure L1 (cf. figure V.17 et 18), qui contient énormément de pores intra-granulaires.

Dans l'UO₂ déformé, nous avons constaté qu'une grande partie des dislocations s'organise en réseaux formant des S-JG pour accommoder la déformation et minimiser l'énergie stockée dans le matériau. Au moins une partie de ces S-JG est vraisemblablement mobile, comme cela a été montré par exemple par Caillard dans le cas de l'aluminium sur la base d'expériences in-situ dans un MET [Caillard 1982], et, comme les dislocations isolées, ils auraient tendance à se concentrer dans le voisinage des pores pour les diverses raisons précédemment évoquées. Les observations réalisées sur le lot L1, ont effectivement révélé la présence de nombreux sous-joints, autour de pores.

A cet effet de localisation s'ajoute un effet d'épinglage qui a clairement été mis en évidence sur les images ECCI (figure V.18). Un tel effet est a priori du même type que celui joué par des microprécipités dans des alliages métalliques (voir par exemple [Urbanczyk-Gucwa, 2016]).

Suite à nos observations et sur la base de la littérature, nous proposons le scénario global suivant : lors de la compression, des dislocations apparaissent au voisinage des JG. Ensuite, elles migrent vers l'intérieur des grains et se réarrangent pour former des S-JG. La formation des S-JG a lieu rapidement lors de la déformation des échantillons et non pas à la phase de refroidissement [Dherbey 2000]. L'examen de l'échantillon trempé L1-D-v100-d11^r a confirmé ce point et a montré une forte présence de réseaux de dislocations (cf. chapitre IV). Dans le cas du lot L1, les dislocations et les S-JG sont souvent épinglés entre les pores intra-granulaires qui limitent leur mobilité. Par conséquent, la majorité des S-JG se forme à proximité des JG initiaux. En outre, la distribution des pores au sein des grains dans L1 n'est pas homogène : ils sont généralement regroupés sous forme d'amas et le réseau des S-JG semble peu se développer dans les zones à fortes concentration de pores, et est formé plutôt par des S-JG très faiblement désorientés (voir la figure V.18a). Dans le cas du lot L2, le mouvement des dislocations et des S-JG au sein des grains est plus facile car le nombre de pores intra-granulaires est plus faible dans cette microstructure. Par conséquent, les S-JG sont plus traversants.

Le fait que, pour des conditions de sollicitation données, on observe une plus grande fraction linéaire de S-JG dans L1 que dans L2, pourrait être dû à une difficulté plus grande à migrer (cf. épinglage par les pores) :

- pour les dislocations isolées, qui ne peuvent ni s'annihiler au niveau d'un S-JG, ni contribuer à sa création ou à l'augmentation de sa désorientation,
- pour les S-JG qui, eux aussi, ne peuvent pas s'annihiler entre eux.

Au final, les pores, dans L1, joueraient un rôle durcissant similaire à celui des précipités dans certains alliages métalliques déformés en température, qui pourrait expliquer au moins partiellement pourquoi ce lot flue un peu moins vite que L2.

V. 4. 3. Quelques points à retenir en vue d'optimiser le comportement en service de l'UO₂

Les microstructures L1 et L2 que nous avons étudiées diffèrent relativement peu de celle des pastilles UO₂ industrielles en termes de taille de grains (12 μm, pour L1, et 15 μm, pour L2, contre une dizaine de μm, pour les lots industriels). Par contre, leur densité relative est plus élevée (98,1 % contre environ 96 %), car elles ont été fabriquées sans porogène. De ce fait, elles comportent peu de pores inter-granulaires de grande taille (plusieurs μm). Une faible fraction de pores de ce type existe néanmoins dans le lot L2 et on a pu constater que sa présence facilite vraisemblablement l'apparition

d'un endommagement par cavitation (à partir d'un taux de déformation de 11%, contre 16% dans L1). Ces résultats tendent à montrer qu'il serait souhaitable de limiter la fraction de pores intergranulaires, dans l'UO₂ (surtout s'ils sont assez gros), pour éviter un basculement rapide vers un régime de fluage tertiaire, accompagné de décohésions propices au dégagement de produits de fission lors d'un transitoire de puissance.

Par ailleurs, l'étude du lot L1 a montré que la présence d'une forte densité de petits pores intra-granulaires aurait, au même titre que les JG, un effet durcissant sur le matériau et ralentirait son fluage. Par conséquent, pour faciliter l'écoulement visco-plastique de l'UO₂ lors d'un transitoire de puissance, dans le but de réduire les contraintes exercées sur la gaine, donc les risques de rupture de crayon, il semble souhaitable :

- d'une part, de privilégier les microstructures à gros grains, dont la vitesse de fluage, dans le domaine dislocationnel, est plus élevée (ainsi que cela a déjà été établi de longue date dans la littérature),
- d'autre part, d'éviter que ces microstructures présentent un grand nombre de petits pores intra-granulaires.

En pratique, les marges de manœuvre données par le procédé de métallurgie des poudres pour piloter en même temps la taille des grains et la taille et la distribution des pores sont assez réduites. Une autre voie qu'il serait intéressant d'étudier est celle de l'élaboration de pastilles d'UO₂ à petits grains (de l'ordre du μm), par exemple par un procédé de type frittage flash, de façon à chercher à favoriser un comportement superplastique de l'UO₂, par glissement aux joints de grains, lors d'un transitoire de puissance [Spino 2012].

V. 5. Conclusion

Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés à l'étude du rôle de la microstructure initiale sur le comportement macroscopique des pastilles issues des deux lots L1 et L2. La contrainte de transition entre les deux domaines de fluages a été estimée à environ 25 et 23 MPa, respectivement pour L1 et L2. Dans le domaine du fluage diffusionnel, L1 flue plus vite que L2 alors que, dans le domaine du fluage dislocationnel, c'est l'inverse.

Les résultats de l'étude de l'influence des conditions de sollicitation (taux et vitesse de déformation) sur la microstructure L2 révèlent les mêmes tendances d'évolution que dans le cas de L1 : le nombre ainsi que la fraction linéaire des S-JG augmentent avec le taux et la vitesse de déformation. La densité des GNDs augmente aussi avec ces deux grandeurs. Lorsque le taux ou/et la vitesse de déformation sont élevés (à partir de 11 % et $70 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ dans le cas des deux microstructures), il y aurait en même temps création de nouveaux S-JG et augmentation de la désorientation des S-JG déjà formés dans le matériau. C'est le mécanisme de « restauration-recristallisation » par rotation de sous-grains (augmentation de la désorientation des S-JG) qui décrit cette déformation dans l'UO₂.

Un certain nombre de différences significatives ont été constatées entre les deux microstructures, à l'échelle des grains et des sous-grains. En effet, dans des conditions d'essai similaires, les pastilles déformées du lot L1 présentent un nombre et une fraction linéaire de S-JG nettement supérieurs. En outre, la distribution des S-JG est assez homogène au sein des grains dans les échantillons du lot L2 alors que, dans le cas des échantillons du lot L1, les S-JG se localisent essentiellement à proximité des JG et sont tortueux. Ces différences sont liées à la présence de

nombreux pores intra-granulaires dans L1 qui limitent le mouvement des dislocations (qu'elles soient libres ou organisées en S-JG) au sein des grains, par un effet d'épingleage.

Conclusion et perspectives

Cette thèse a été réalisée en support à la compréhension des évolutions microstructurales en service du dioxyde d'uranium, qui est utilisé en tant que combustible, sous forme de pastilles élaborées par métallurgie des poudres, dans les réacteurs nucléaires à eau pressurisée (REP). Elle s'intéressait plus particulièrement à son comportement en transitoire (ou rampe) de puissance, où des températures de l'ordre de 1500°C peuvent être atteintes, induisant une déformation visco-plastique de cette céramique. Ce comportement a été étudié hors irradiation, dans cette étude, en mettant en œuvre des essais de compression uniaxiale sur des pastilles d'UO₂.

Les conditions de sollicitation ainsi que la microstructure initiale de l'UO₂ ont bien sûr une influence significative sur son comportement mécanique macroscopique. Nous nous sommes attachés à parvenir à une meilleure description de ces mécanismes de déformation à chaud, et en particulier de la fragmentation des grains en sous-grains dans le domaine du fluage dislocationnel, en lien avec les paramètres précédents. Des outils de caractérisation microstructurale adaptés à l'obtention de données quantifiées, à l'échelle de plusieurs centaines (voire plusieurs milliers) de grains ont été utilisés. A ce jour, les sous-structures n'ont été observées que très localement par MET sans possibilité de quantifier leur évolution avec les conditions de sollicitation (vitesse et taux de déformation...). De plus, le rôle des pores de fabrication des pastilles d'UO₂ sur les mécanismes de déformation intervenant à l'échelle des grains, n'est pas connu. Ce travail de thèse visait à combler ces manques.

Pour cela, deux lots de pastilles UO₂ (L1 et L2) ont été fabriqués. Ces lots sont caractérisés par une taille de grains similaire (respectivement de l'ordre de 12 et 15 μm), par une même fraction volumique de pores, qui est de 1,7 %, mais par une distribution des pores nettement différente : il y a 2,5 fois plus de pores intra-granulaires dans L1 que dans L2.

Un certain nombre de pastilles de chaque lot ont été déformées lors d'essais de compression uniaxiale, à 1500°C. Cette température a été choisie car elle est proche de celle atteinte à mi-rayon dans une pastille de combustible lors d'une rampe de puissance, d'une part, et correspond à une température souvent utilisées dans divers travaux antérieurs, menés hors irradiation, d'autre part. La gamme de sollicitation mécanique balayée dans cette étude (vitesse de déformation : [10⁻⁶-10⁻⁴ s⁻¹], taux de déformation : [0,48-16 %], contrainte : [12-72 MPa]) a été définie sur la base de l'exploitation d'un calcul de rampe de puissance réalisé à l'aide du code ALCYONE développé par le CEA, afin de reproduire au moins partiellement les mécanismes de déformation visco-plastique qui ont lieu dans les pastilles dans ces conditions d'irradiation.

Une contrainte de transition d'environ 25 MPa, séparant les domaines de fluage diffusionnel (à basses contraintes) et dislocationnel (à forte contrainte), a été déterminée pour les deux lots. Dans le domaine du fluage diffusionnel, le lot L1 se déforme un peu plus rapidement que le lot L2, les cinétiques relevées étant bien décrites par un mécanisme de fluage de type Coble, qui met en jeu de la diffusion préférentielle aux joints de grains. Par contre, dans le domaine du fluage dislocationnel, c'est le lot L2 qui se déforme le plus vite, vraisemblablement en raison de l'influence conjointe de sa taille de grains (légèrement plus élevée que celle du lot L1) mais aussi des caractéristiques de sa porosité de fabrication.

Une méthodologie originale a été développée pour caractériser la microstructure de l'UO₂, à l'état de référence (telle que fabriquée) et après déformation. Elle repose sur l'utilisation de deux techniques optimisées, qui ont l'avantage d'être mises en œuvre dans un MEB (Microscope Electronique à Balayage) sur des échantillons massifs.

La première d'entre elles est l'EBSD « Electron BackScatter Diffraction ». Suite au développement d'une procédure spécifique d'acquisition et de post-traitement des cartes EBSD, elle a principalement permis :

- de détecter de manière fiable les lignes de très faibles désorientation (jusqu'à $0,1^\circ$) qui correspondent à des Sous-Joints de Grains (S-JG) créés lors de la déformation,
- de mener une étude statistique de l'évolution de la sous-structure qui se développe au sein des grains, en fonction des conditions de sollicitation (vitesse et taux de déformation) et de la microstructure initiale (en particulier la répartition des pores intra-granulaires),
- d'évaluer la densité moyenne de dislocations géométriquement nécessaires (GNDs) générées.

La seconde méthode mise en œuvre dans cette étude est l'ECI « Electron Channeling Contrast Imaging ». Celle-ci permet de caractériser des défauts cristallins, tels que des dislocations, dans des matériaux massifs, dans un MEB, en s'affranchissant de toutes les limitations inhérentes à la MET. Son utilisation sur du dioxyde d'uranium déformé est une première (si l'on exclut quelques essais préliminaires antérieurs). Elle a permis de confirmer l'existence des S-JG de très faibles désorientations détectés par EBSD, d'une part, et de révéler et d'analyser différents types d'arrangements de dislocations formant ces S-JG, d'autre part.

La complémentarité de l'EBSD en résolution angulaire améliorée et de l'ECI, a permis de mettre en relation la répartition des pores dans les grains et la localisation des sous-structures développées dans les lots L1 et L2.

L'EBSD a été mis en œuvre systématiquement sur les échantillons déformés des deux lots, à l'échelle de zones relativement étendues comprenant environ 1000 grains. A partir des cartes ainsi acquises, la fraction linéaire des S-JG, la taille des sous-grains ainsi que la densité moyenne des GNDs ont été déterminées. Les résultats obtenus montrent que :

- Le nombre ainsi que la fraction linéaire des S-JG augmentent avec le taux et la vitesse de déformation, dans les deux lots. La densité moyenne des GNDs augmente de façon concomitante. A partir de certaines conditions (environ 11 % de déformation, à une vitesse supérieure ou égale à $70.10^{-6} \text{ s}^{-1}$), l'augmentation du taux et de la vitesse de déformation s'accompagne de l'apparition de nouveaux S-JG faiblement désorientés ainsi que de l'augmentation de la désorientation des S-JG déjà présents.
- Un effet de saturation de l'apparition des S-JG semble exister pour chaque microstructure, dans un certain domaine de sollicitation. Ce point mériterait toutefois d'être vérifié, compte-tenu de la dispersion expérimentale obtenue dans les essais mécaniques.
- Le nombre de S-JG ainsi que la densité de GNDs sont systématiquement plus élevés dans les échantillons déformés du lot L1, comparés à ceux du lot L2, pour des conditions de sollicitations similaires.
- Dans le lot L1, les S-JG sont localisés préférentiellement à proximité des joints de grains, ils sont souvent de longueur réduite et d'allure tortueuse. Par contre, dans le cas du lot L2, les S-JG sont moins nombreux, plus longs et plus droits, et plutôt situés au cœur des grains (traversants).
- Un certain nombre de cavités inter-granulaires, a été observé uniquement dans de petites zones, aux plus forts taux et vitesses de déformation étudiés. Ces cavités apparaissent

plus tôt dans la microstructure L2 qui présente, au départ, des pores inter-granulaires plus gros qui serviraient d'amorce à leur développement.

Les évolutions microstructurales constatées dans les lots L1 et L2 ont été comparées avec celles d'autres matériaux étudiés dans la littérature. Nous avons ainsi pu conclure que, dans les conditions de sollicitation que nous avons étudiées, dans le domaine du fluage dislocationnel, l' UO_2 est le siège d'un mécanisme de restauration-recristallisation dynamique, par rotation progressive de sous-grains (autrement dit, par augmentation progressive de la désorientation des S-JG), similaire à celui constaté, entre autres, dans des matériaux géologiques soumis à de fortes pressions dans le manteau terrestre.

La différence de distribution des S-JG qui a été constatée entre les deux lots, notamment grâce à des cartographies EBSD acquises à fort grandissement ainsi qu'au moyen de micrographies ECCI, serait liée à un épinglage des dislocations par les pores intra-granulaires qui limiterait leur libre parcours moyen et provoquerait un ancrage des S-JG sur les pores. Nous avons d'ailleurs pu constater que, lorsque le taux de déformation reste inférieur à 10% et que la vitesse de déformation est relativement modérée (inférieure à $50 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$), la taille moyenne des sous-grains dans les deux microstructures est très proche de l'intercept moyen intégrant la présence des joints de grains (JG) et des pores. Sur la base de nos observations et de la littérature, le scénario global suivant a été proposé : lors de la compression, des dislocations apparaissent au voisinage des JG. Elles migrent ensuite vers l'intérieur des grains et se réarrangent pour former des S-JG. Dans le cas du lot L1, les dislocations et les S-JG sont souvent épinglés entre les pores intra-granulaires qui limitent leur mobilité. Par conséquent, la majorité des S-JG se forment à proximité des JG initiaux et sont relativement courts et tortueux. Dans le cas du lot L2, le mouvement des dislocations et des S-JG au sein des grains est plus facile car le nombre de pores intra-granulaires est plus faible dans cette microstructure. Par conséquent, les S-JG sont plus traversants.

Le fait que, pour des conditions de sollicitation données, on observe une plus grande fraction linéaire de S-JG dans L1 que dans L2, pourrait être dû à une difficulté plus grande à migrer pour les dislocations libres, qui ne peuvent ni s'annihiler au niveau d'un S-JG, ni contribuer à l'augmentation de sa désorientation, et pour les S-JG qui, eux aussi, ne peuvent pas s'annihiler entre eux. Au final, les pores, dans L1, joueraient un rôle « durcissant », qui pourrait expliquer au moins partiellement pourquoi ce lot flue un peu moins vite que L2.

Différentes actions pourraient être engagées pour compléter cette étude, sur la base de la démarche expérimentale que nous avons adoptée. On peut penser en particulier à :

- étendre l'étude qui a été réalisée sur les lots L1 et L2 à d'autres températures, inférieures et supérieures à 1500°C , pour modifier la mobilité des dislocations et activer potentiellement des mécanismes de déformation prédominants qui seront différents,
- jouer sur l'écart à la stœchiométrie du combustible, en maîtrisant la pression partielle d'oxygène lors du frittage et lors des essais mécaniques, pour évaluer l'impact que cela peut avoir sur les mécanismes de déformation,
- chercher à appréhender à la fois le rôle de la taille de grains (donc des JG) et de la distribution des pores, sur le comportement visco-plastique de l' UO_2 , en travaillant sur des microstructures à petits grains (de l'ordre du micromètre), ou au contraire à très gros grains (de l'ordre de $100 \mu\text{m}$), pour modifier la part des mécanismes impliquant les JG lors de la déformation.

En ce qui concerne le dernier point, des limitations liées au(x) procédé(s) de fabrication des pastilles d'UO₂ et aux degrés de liberté qu'il(s) offre(nt) sur les microstructures pouvant être obtenues, seront à prendre en compte.

On pourrait aussi envisager d'étendre ce type d'étude à des barreaux d'UO₂ testés en flexion. Ces barreaux pourraient être polis sur deux faces opposées (l'une étant en traction et l'autre en compression, lors de l'essai), et faire l'objet de cartographies EBSD effectuées à différents niveaux de déformation, afin de pouvoir suivre l'évolution microstructurale de zones choisies (à la réserve près que les phases de refroidissement et de remontée en température, entre chaque phase de chargement, affecteront l'arrangement des dislocations).

Enfin, des développements portant sur les techniques de caractérisation mises en œuvre seraient également intéressants. En particulier, une étude comparative, à l'échelle locale, de l'arrangement et de la nature des dislocations dans des S-JG, par A-ECCI et par MET, permettrait de mieux cerner les potentialités et la complémentarité de ces deux méthodes d'étude de défauts cristallins. L'apport de la diffraction X à l'étude d'échantillons d'UO₂ déformés serait aussi à évaluer (on peut penser en particulier à des analyses locales par μ -Laue, sur synchrotron).

Références

A

- [Alamo 1978] A. Alamo, J.M. Lefebvre, J. Soullard, Déformation plastique du bioxyde d'uranium : Observation des sous-structures de dislocations, *J. Nucl. Mater.* 75 (1978) 145-153.
- [Amelincks 1958] S. Amelincks, Dislocations in ionic crystals, *Nuovo Cimento Supplemento*, 2 (1958) 569-599.
- [Armstrong 1962] W.M. Armstrong, W.R. Irvine, R.H. Martinson, Creep deformation of stoichiometric uranium dioxide, *J. Nucl. Mater.* 7 (1962) 133-141.
- [Armstrong 1963] W. M. Armstrong, W. R. Irvine, Creep deformation of non-stoichiometric uranium dioxide, *J. Nucl. Mater.* 9 (1963) 121-127.
- [Armstrong 1964] W.M. Armstrong, W.R. Irvine, Creep of urania base solid solutions, *J. Nucl. Mater.* 12 (1964) 261-270.
- [Armstrong 1966] W.M. Armstrong, A. R. Causey, W. R. Sturrock, Creep of single-crystal UO_2 , *J. Nucl. Mater.* 19 (1966) 42-49.
- [Ashbee1964] K.H.G. Ashbee, Stacking faults in uranium dioxide, *Proc. Roy. Soc. A* 280 (1964) 37-46.
- [Ashby 1970] M.F. Ashby, The deformation of plastically non-homogeneous materials, *Phil. Mag.* 21 (1970) 399-424.
- [Ashby 1973] M. F. Ashby, A. R. Verrall, Diffusion-accomodated flow and superplasticity, *Acta Metallurgica*, 21 (1973) 149-163.

B

- [Bailly 1996] H. Bailly, D. Menessier, C. Prunier, Le combustible nucléaire des réacteurs à eau sous pression et des réacteurs à neutrons rapides, Eyrolles (1996).
- [Balland 2007] J. Balland, Simulation expérimentale des effets d'irradiation sur le comportement thermomécanique du combustible UO_2 : Impact des produits de fission solides et gazeux, Thèse, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne, 2007.
- [Bardon 1989] D. Baron, P. Bouffioux, Le crayon combustible des réacteurs à eau pressurisée de grande puissance (Tranches 900 et 1300 MWe), Rapport EDF, HT.M2/88-27A, 1989.
- [Baron 2009] D. Baron, M. Kinoshita, P. Thevenin, R. Largenton, Discussion about HBS transformation in high burn-up fuels, *Nucl. Eng. Technol.* 41 (2009) 199–214.
- [Baudin 2010] T. Baudin., Analyse EBSD – Principe et cartographies d'orientations, *Techniques de l'Ingénieur m4138*, 2010.
- [Baurens 2014] B. Baurens, J. Sercombe, C. Riglet-Martial, L. Desgranges, L. Trotignon, P. Maugis, 3D thermo-chemical-mechanical simulation of power ramps with ALCYONE fuel code, *J. Nuc. Mater.* 452 (2014) 578-594.
- [Beausir 2015] B. Beausir, J.-J. Fundenberger, Université de Lorraine - Metz, 2015, ATOM - Analysis Tools for Orientation Maps, <http://atom-software.eu/>
- [Belbéoch 1961] B. Belbéoch, Combinaisons avec l'oxygène, système uranium-oxygène, Nouveau traité de chimie minérale, Ed. Masson et Cie, 1961.
- [Ben Saada 2017] M. Ben Saada, N. Gey, B. Beausir, X. Iltis, H. Mansoura, N. Maloufi, Sub-boundaries induced by dislocational creep in uranium dioxide analyzed by advanced diffraction and channeling electron microscopy, *Mater. Charact.*, 133 (2017) 112–121.
- [Blanchard 1993] C. R. Blanchard, K. S. Chan, Evidence of grain-boundary-sliding-induced cavitation in ceramics under compression, *J. Am. Ceram. Soc.* 76 (1993) 1651-1660.

- [Blank 1969] H. Blank, C. Ronchi, Versetzungen in kubischen Uranoxiden, *J. Nucl. Mat.* 31 (1969) 1-12.
- [Blum 1971] W. BLUM., Role of dislocation annihilation during steady state deformation, *Phys Status Solidi B*, 45, (1971), 561-571.
- [Bohaby 1969] P.E. Bohaby, R.R. Asamoto, A.E. Conti, Compressive Creep Characteristics of Stoichiometric Uranium dioxide, Rapport GEAP-10054, 1969.
- [Bourgeois 2001] L. Bourgeois, Ph. Dehaudt, C. Lemaignan, A. Hammou, Factors governing microstructure development of Cr₂O₃-doped UO₂ during sintering, *J. Nucl. Mat.* 297 (2001) 313-326.
- [Brantley 1970] W.A. Brantley, C.L. Bauer, Geometric analysis of charged dislocation in fluorite structure, *Phys. Solid. State+* 40 (1970) 707-715.
- [Britton 2010] T.B. Britton, C. Maurice, R. Fortunier, J.H. Driver, A.P. Day, G. Meaden, D.J. Dingley, K. Mingard, A.J. Wilkinson, Factors affecting the accuracy of high resolution electron backscatter diffraction when using simulated patterns, *Ultramicroscopy* 110 (2010) 1443-1453.
- [Brook 1969]. R.J. Brook, Pore-grain boundary interaction and grain growth, *J. Am. Ceram. Soc.* 52 (1969) 56-57.
- [Burton 1973] B. Burton, G.L. Reynolds, J.P. Barnes, The influence of grain size on the creep of uranium dioxide, *J. Mater. Sci.* 8 (1973) 1690-1694.

C

- [Caillard 1982] D. Caillard, J. L. Martin, Microstructure of aluminium during creep at intermediate temperature-II. In situ study of subboundary properties, *Acta. Metallu.*, 30 (1982) 791-798.
- [Cannon 1983] W. R. Cannon, T. G. Langdon., Review of creep of ceramics, *J. Mater. Sci.* 18 (1983), 1-50.
- [Cannon 1988] W. R. Cannon, T. G. Langdon., An examination of flow mechanisms, *J. Mater. Sci.*, 23, (1988) 1-20.
- [Catalogue 1990] Catalogue européen des propriétés de l'oxyde mixte (U,Pu)O₂ – Fast Reactor Data Manual Issue 1, Note Technique CEA/CAD/DRN/DEC/SPU/LPCA n°02, novembre 1990.
- [Childs 1958] B. G. Childs, A.E.C.L. Rapport CR Met-788, 1958.
- [Christie 1962] G. Christie, J. Williams, The effect of small additions of yttria on the plasticity of uranium oxides at 940° C, *J. Nucl. Mater.* 5 (1962) 1-4.
- [Chung 1979] T.E. Chung, T.J. Davies, The superplastic creep of uranium dioxide, *J. Nucl. Mater.* 79 (1979) 143-153.
- [Clough 1970] D. J. Clough, Irradiation Induced Creep of Ceramic Fuels, Proceedings in Reactor Fuel and Fuel Elements, Karlsruhe, (1970), 28-30.
- [Coble 1963] R. L. Coble, A model for boundary diffusion controlled creep in polycrystalline materials, *J. Appl. Phys.* 34 (1963) 1679-1682.
- [Colin 2003] C. Colin, Etude du fluage du dioxyde d'uranium : Caractérisation par essais de flexion et modélisation numérique, Thèse, Ecole des Mines de Paris, 2003.

D

- [Demouchy 2014] S. Demouchy, A. Mussi, F. Barou, A. Tommasi, P. Cordier, Viscoplasticity of polycrystalline olivine experimentally deformed at high pressure and 900°C, *Tectonophysics* 623 (2014) 123–135.

[Dherbey 2000] F. Dherbey, Déformation à chaud du dioxyde d'uranium polycristallin : des mécanismes microscopiques au comportement macroscopique, Thèse, Institut National Polytechnique de Grenoble, 2000.

[Dorado 2011] B. Dorado, P. Garcia, G. Carlot, C. Davoisne, M. Fraczkiewicz, B. Pasquet, M. Freyss, C. Valot, G. Baldizonni, D. Siméone, M. Bertolus, First-principles calculation and experimental study of oxygen diffusion in uranium dioxide, *Physical Review B* 83 (2011) 035126-1/035126-10.

E

[Evans 1969^a] A.G. Evans, P.L. Pratt, Dislocations in the fluorite structure, *Philos. Mag.* 20 (1969) 1213-1237.

[Evans 1969^b] A.G. Evans, R.W. Davidge, The strength and fracture of stoichiometric polycrystalline UO₂, *Journal of Nuclear Materials* 33 (1969) pp. 249-260.

F

[Forty 1964] A. J. Forty, Interaction of Cavities and Dislocations in Crystals, *Discuss. Faraday Soc.*, 38 (1964) 56-60.

[Friedel 1964] J. Friedel, *Dislocations*, Pergamon Press ed., Oxford-New York, 1964.

G

[Gao 2003] H. Gao, Y. Huang, Geometrically necessary dislocation and size-dependent plasticity, *Scripta Mater.* 48 (2003) 113–118.

[Germain 2014] L. Germain, D. Kratsch, M. Salib, N. Gey, Identification of sub-grains and low angle boundaries beyond the angular resolution of EBSD maps, *Mater. Charact.* 98 (2014) 66-72.

[Gill 2009] S.P.A. Gill, Pore migration under high temperature and stress gradients, *Int. J. Heat Mass Transfer* 52 (2009) 1123–1131.

[Goldschmidt 1965] V.M. Goldschmidt, L. Thomassen, *Tech. Rept. Ser. Intem. At. Energy* 39 (1965) 3-15.

[Gridnev 1986] A.A. Gridnev, D.N. Dzalandinov, P.V. Zubarev, A study of the high temperature creep in coarse-grained uranium dioxide, *Sov. Atom. Energy+* 59 (1986) 565-568.

[Gros 1991] M. Gros, Etude du comportement en fluage haute température des céramiques à base alumine, mullite et zircon, GEMPPM, Insa, Lyon, 1991.

[Guérin 1973] Y. Guérin, Etude par compression à hautes températures de la déformation plastique du bioxyde et du monocarbure d'uranium, Thèse, Université Claude Bernard de Lyon, 1973.

[Guyon 2015] J. Guyon, H. Mansour, N. Gey, M.A. Crimp, S. Chalal, N. Maloufi, Sub-micron resolution selected area electron channeling patterns, *Ultramicroscopy* 149 (2015) 34-44.

H

[Harding 1989] J. H. Harding, A recommendation for the thermal conductivity of UO₂, *J. Nucl. Mater.*, 166 (1989) 223-266.

[Hazotte 2017] A. Hazotte, UMR7239/LEM3/Université de Lorraine (Communication personnelle).

[He 2008] W. He, W. Ma, W. Pantleon, Microstructure of individual grains in cold-rolled aluminium from orientation inhomogeneities resolved by electron backscattering diffraction, *Mat. Sci. Eng. A Struct.* 494 (2008) 21–27.

[He 2013] L.F. He, M. Gupta, C.A. Yablinsky, J. Gan, M.A. Kirk, X.M. Bai, J. Pakarinen, T.R. Allen, In situ TEM observation of dislocation evolution in Kr-irradiated UO₂ single crystal, *J. Nucl. Mater.* 443 (2013) 71–77.

[Herring 1950] C. Herring, Diffusionnal viscosity of a polycrystalline solid, *J. Appl. Phys.*, 21, (1950), 437-445

[Hough 1988] A. Hough, Compressive creep in nuclear oxides, Rapport AERE-R-13232, 1988.

[Humphreys 2001^a] F.J. Humphreys, Review - Grain and subgrain characterization by electron backscatter diffraction, *J. Mater. Sci.* 36 (2001) 3833-3854.

[Humphreys 2001^b] F.J. Humphreys, P.S. Bate, P.J. Hurley, Orientation averaging of electron backscattered diffraction data, *J. Microsc.* 201 (2001) 50–58.

I

[Iltis 2015] X. Iltis, N. Gey, C. Cagna, A. Hazotte, Ph. Sornay, Microstructural evolution of uranium dioxide following compression creep tests: An EBSD and image analysis study, *J. Nucl. Mat.* 456 (2015) 426-435.

[Iltis 2016] X. Iltis, M. Ben Saada, H. Mansour, N. Gey, A. Hazotte, N. Maloufi, A new characterization approach for studying relationships between microstructure and creep damage mechanisms of uranium dioxide, *J. Nuc. Mat.* 474 (2016) 1-7.

[Iltis 2017] X. Iltis, DEC/SFER/LCU, CEA Cadarache (communication personnelle).

J

[Jädernäs 2013] D. Jädernäs, F. Corleoni, A. Puranen, M. Granfors, G. Lysell, P. Tejland, Microstructural and chemical characterization of ramp tested additive fuel, Proceedings of LWR Fuel Performance Meeting TopFuel 2013, Eds. ANS (2014) 448-455.

[Javed 1974] N. A. Javed, Compressive creep of hypostoichiometric UO₂ and (U, Pu)O₂ nuclear fuel pellets, in *Thermodynamics of Nuclear Materials* (1974) 435-446.

[Jonnet 2007] J. Jonnet, A contribution to the understanding of the high burn-up structure formation in nuclear fuels, Thèse, Institut National Polytechnique de Lorraine, 2007.

K

[Keim 1977] R. Keim, C. Keller, Influence of defect interactions on diffusion processes in UO_{2+x}: a key issue for understanding the behaviour of spent nuclear fuel, *Gmelin Handbook of Inorganic chemistry*. Eds. Verlag, Berlin 55-C1 (1977) 95-128.

[Keller 1988^a] R.J. Keller, T.E. Mitchell, A.H. Heuer, Plastic deformation in nonstoichiometric UO_{2+x} single crystals-I: Deformation at low temperatures, *Acta Metall.* 36 (1988) 1061-1071.

[Keller 1988^b] R.J. Keller, T.E. Mitchell, A.H. Heuer, Plastic deformation in nonstoichiometric UO_{2+x} single crystals-II: Deformation at high temperatures, *Acta Metall.* 36 (1988) 1073-1083.

[Knorr 1989] D.B. Knorr, R.M. Canon, R.L. Coble, An analysis of diffusion and diffusional creep in stoichiometric and hyper-stoichiometric uranium dioxide, *Acta Metall.* 37 (1989) 2103-2123.

[Konijnenberg 2015] P.J. Konijnenberg, S. Zaefferer, D. Raabe, Assessment of geometrically necessary dislocation levels derived by 3D EBSD, *Acta Mater.* 99 (2015) 402–414.

[Kriaa 2017] H. Kriaa, A. Guitton, N. Maloufi, Fundamental and experimental aspects of diffraction for characterizing dislocations by electron channeling contrast imaging in scanning electron microscope, accepted for publication in *Scientific Reports* 2017.

[Kummerer 1970] K. Kummerer, D. Vollath, Investigations on the thermal creep of UO_2 and UO_2 - PuO_2 at high temperatures, *Atomwirt., Atomtech*, 16 (1971) 29-31.

[Kuwahara 1976] M. Kuwahara, K. Hachimura, S. Eiho, and M. Kinoshita, Processing of RI-angiocardigraphic images, in *Digital Processing of Biomedical Images*, K. Preston Jr. and M. Onoe, Editors. New York: Plenum, 1976 pp.187-202.

L

[Lansiart 2008] S. Lansiart, B. Michel, L'interaction pastille-gaine, Fabrication des combustibles pour les réacteurs à eau, CEA e-den, Eds. Le Moniteur, 2008.

[Lee 2011] S.J. Lee, D.H. Jung, C.Y. Lee, J.I. Kim, K.L. Jeon, J.R. Lee, Fabrication and Characteristic Tests of the Large Grain UO_2 Pellets for HIPER Fuel, Water Reactor Fuel Performance Meeting Chengdu, China (2011) 11-14.

[Lefebvre 1976] J. M. Lefebvre, Contribution à l'étude de la déformation plastique d'une céramique de structure fluorite : le bioxyde d'uranium, Thèse, Faculté des Sciences de Poitiers, 1976.

[Lemaignan 2000] C. Lemaignan, J. Niepce, Les céramiques nucléaires : combustibles, absorbants et matrices inertes supports, *Matériaux du nucléaire*, Eds. TecDoc (2000) 330.

M

[Mansour 2014] H. Mansour, J. Guyon, M.A. Crimp, N. Gey, B. Beausir, N. Maloufi, Accurate electron contrast analysis of dislocations in fine grained bulk materials, *Scripta Mater.* 84-85 (2014) 11-14.

[Mansour 2015] H. Mansour, M.A. Crimp, N. Gey, N. Maloufi, Accurate electron channeling contrast analysis of a low angle sub-grain boundary, *Scripta mater.* 109 (2015) 76-79.

[Mansour 2016] H. Mansour, Caractérisation des défauts cristallins au MEB par Canalisation d'Electron assisté par diagrammes pseudo-Kikuchi haute résolution : Application à l'acier IF, UO_2 et TiAl, Université de Lorraine, 2016.

[Mariani 2009] E. Mariani, J. Mecklenburgh, J. Wheeler, D.J. Prior, F. Heidelbach, Microstructure evolution and recrystallization during creep of MgO single crystals, *Acta Materialia* 57 (2009) 1886–1898.

[Marples 1970] J.A.C. Marples, A. Hough, Rapport AERE R-6421, 1970.

[Martin 1989] D.G. Martin, The elastic constants of polycrystalline UO_2 and (U,Pu) mixed oxides: a review and recommendations, *High Temperatures – High Pressures*, 21 (1989), 13-24.

[Maurice 2008] C. Maurice, R. Fortunier, A 3D Hough transform for indexing EBSD and Kossel patterns, *J. Microsc.* 230 (2008) 520–529.

[Maurice 2013] C. Maurice, R. Quey, R. Fortunier, J. H. Driver, High angular resolution EBSD and its materials applications, Dmitri A. Molodov ed., *Microstructural Design of Advanced Engineering Materials* (2013) 339-365.

[Montheillet 2009] F. Montheillet, Métallurgie en mise en forme à chaud, *Matériaux/ Mise en forme des métaux et fonderie, technique de l'ingénieur*, M 3 301, 2009.

[Mukherjee 1969] A. K. Mukherjee, J. E. Bird, et J. Dorn, Experimental Correlations for High-Temperature Creep, *Trans. ASM.*, 62 (1969) 155-179.

N

[Nabarro 1948] F. R. N. Nabarro, Deformation of crystals by the motion of single ions, In *Conference on strength of solids*, The Physical Society, (1948), London.

[Ndiaye 2012] A. Ndiaye, Microstructures d'UO₂ à propriétés pilotées : compréhension des mécanismes d'élaboration et du comportement mécanique en température, Thèse, Université de Grenoble, 2012.

[Nogita 1995] K. Nogita, K. Une, Irradiation-induced recrystallization in high burnup UO₂ fuel, *J. Nucl. Mater.* 226 (1995) 302–310.

[Noirot 2008] J. Noirot, Le comportement des combustibles UO₂ et MOX en réacteur, Les combustibles nucléaires, Fabrication des combustibles pour les réacteurs à eau, CEA e-den, Eds. Le Moniteur, 2008.

[Nonon 2004] C. Nonon, J.C. Menard, S. Lansart, J. Noirot, S. Martin, G.M. DECROIX, O. Rabouille, C. Delafoy, B. Petitprez, PCI behaviour of chromium oxide-doped fuel, Pellet-Clad Interaction in Water Reactor Fuels, 305–319, OECD-NEA report No. 6004 (2004).

[Norme AFNOR ISO 13067] AFNOR, Analyse par microfaisceaux ; Diffraction d'électrons rétrodiffusés ; Mesurage de la taille moyenne des grains. Norme Française NF ISO 13067, Janvier 2012 : X21-014.

[Nye 1953] J. Nye, Some geometrical relations in dislocated crystals, *Acta Metall.* 1 (1953) 153–162.

O

[Ohashi 2005] T. Ohashi, Crystal plasticity analysis of dislocation emission from micro voids, *INT J Plasticity*, 21 (2005) 2071–2088.

P

[Pantleon 2008] W. Pantleon, Resolving the geometrically necessary dislocation content by conventional electron backscattering diffraction, *Scripta Mater.* 58 (2008) 994–997.

[Pauling 1960] L. Pauling, The nature of the chemical bond and the structure of molecules and crystals: an introduction to modern structural chemistry, Cornell University Press, 18 (1960) 98.

[Pennock 2005^a] G.M. Pennock, M.R. Drury, Low angle subgrain misorientations in deformed NaCl. *J. Microscopy*, 217 (2005) 130–137.

[Pennock 2005^b] G.M. Pennock, M.R. Drury, C.J. Spiers, The development of subgrain misorientations with strain in dry synthetic NaCl measured using EBSD, *J. Struct. Geol.*, 27 (2005) 2159–2170.

[Philibert 1984] J. Philibert, Creep and diffusion, *Solid State Ionics* 12 (1984) 321–336.

[Portelette 2017] L. Portelette, B. Michel, M. Ibrahim, E. Castellier, X. Iltis, M. Ben Saada, P. Garcia, Modélisation de la viscoplasticité à l'échelle d'un monocristal, extension à la simulation par éléments finis du comportement d'un polycristal d'UO₂, Rencontre scientifique MINOS 2017.

[Poteat 1968] L.E. Poteat and C.S. Yust, Grain boundary reactions during deformation, In *Ceramic Microstructures*, Eds: R. M. Fulrath and J. A. Pask, (1968) 646.

R

[Radford 1979] K.C. Radford, Effect of fabrication parameters and microstructure on the mechanical strength of UO₂ fuel pellets, *J. Nucl. Mater.*, 84 (1979) 222–236.

[Radi 2016] K. Radi, Caractérisation par nanoindentation et modélisation micromécanique de l'anisotropie élastique et de l'activation de la plasticité dans UO₂, Rapport de stage de Master 2, LEM3-CEA, 2016.

[Raj 1986] S.V. Raj, G.M. Pharr, A Compilation and Analysis of Data for the Stress Dependence of the Subgrain Size, *Mater. Sci. Eng.*, 81 (1986) 217–237.

- [Rapperport 1960] E.J. Rapperport, A.M. Huntress, Deformation modes of single crystal uranium dioxide from 700°C to 1900°C, Nuclear Metals (USA) Report NMI-1242 (1960) 1-29.
- [Ray 1992] I.L.F. Ray, H. Thiele, Hj. Matzke, Transmission electron microscopy study of fission product behaviour in high burnup UO₂, J. Nucl. Mater. 188 (1992) 90-95.
- [Read 1953] W.T. READ, Dislocations in crystals, McGraw Hill Book Company Inc. New York Toronto London, 1953.
- [Robert-Amodeo 1988] J. Robert-Amodeo, A review of experimental observations and theoretical models of dislocations cells and subgrains, RES. Mechanica, 23 (1988) 137-160.
- [Ruggles 2016] T.J. Ruggles, T.M. Rampton, A. Khosravani, D.T. Fullwood, The effect of length scale on the determination of geometrically necessary dislocations via EBSD continuum dislocation microscopy, Ultramicroscopy 164 (2016) 1–10.

S

- [Sabioni 1998] A. C. Sabioni, W.B. Ferraz, F. Millot, First study of uranium self-diffusion in UO₂ by SIMS, J. Nucl. Mater., 257 (1998) pp. 180-184.
- [Sabathier 2008] C. Sabathier, L. Vincent, P. Garcia, F. Garrido, G. Carlot, L. Thome, P. Martin, C. Valot, In situ TEM study of temperature-induced fission product precipitation in UO₂, Nucl. Instrum. Methods B 266, 12 (2008) 3027-3032.
- [Sabathier 2015] C. Sabathier, C. Onofri, Caractérisation de la nature des défauts étendus dans UO₂ induits par l'irradiation, Note Technique CEA/DEN/CAD/DEC/SESC/LLCC n° 15-010, 2015.
- [Salvo 2014] M. Salvo, J. Sercombe, J-C Ménard, J. Julien, T. Helfer, T. Désoyer, Experimental characterization and modelling of UO₂ behavior at high temperatures and high strain rates, J. Nucl. Mater., 456 (2015) 54–67.
- [Sauter 2003] F. Sauter, S. Leclerc, Modeling of the non-monotonous viscoplastic behavior of uranium dioxide, J. Nucl. Mater. 322 (2003) 1–14.
- [Sawbridge 1970] P.T. Sawbridge, E.C. Sykes, Electrostatic charges on dislocations in uranium dioxide, J. Nucl. Mat. 35 (1970) 122-125.
- [Scott 1959]. R. Scott, A. R. Hall, J. Williams, The plastic deformation of uranium oxides above 800°C, J. Nucl. Mater. 1 (1959) 39-48.
- [Seltzer 1970^a] M. S. Seltzer, A. H. Clauer, B. A. Wilcox, USAEC Report BMI-1882, Battelle Memorial Institute, 1970.
- [Seltzer 1970^b] M. S. Seltzer, A. H. Clauer, B. A. Wilcox, USAEC Report BMI-1893, Battelle Memorial Institute, october 1970.
- [Seltzer 1971] M. S. Seltzer, J.S. Perrin, A. H. Clauer, B. A. Wilcox, Creep behavior of ceramic nuclear, Rector Technology 14 (1971) 99-135.
- [Seltzer 1972] M. S. Seltzer, A. H. Clauer, B. A. Wilcox, The influence of stoichiometry on compression creep of polycrystalline UO_{2+x}, J. Nucl. Mater. 44 (1972) 331-336.
- [Sercombe 2017] J. Sercombe, DEC/SESC/LSC, CEA Cadarache (communication personnelle).
- [Song 1999] K. W. Song, K. S. Kim, K. W. Kang, Y. H. Jung, Effects of Nb₂O₅ and oxygen potential on sintering behavior of UO₂ fuel pellets, J. Korean Nucl. Soc. 31 (1999) 335.
- [Sonoda 2002] T. Sonod, M. Kinoshita, I.L.F. Ray, T. Wiss, H. Thiele, D. Pellottiero, V.V. Rondinella, Hj. Matzke, Transmission electron microscopy observation on irradiation-induced microstructural evolution in high burn-up UO₂ disk fuel, Nucl. Instrum. Methods B 191 (2002) 622–628.
- [Sornay 2008] Ph. Sornay, Analyse bibliographique et réflexions sur l'élaboration d'un UO₂ à gros grains obtenu sans dopant, Note Technique CEA/DEN/CAD/DEC/SPUA/LCU n°08-007, 2008.

[Soulacroix 2013] J. Soulacroix, B. Michel, J.M. Gatt, R. Kubler, L. Barrallier, Micromechanical behavior of UO₂: crystalline anisotropy and associated internal stresses in polycrystals, 21ème Congrès Français de Mécanique, Bordeaux, 2013.

[Soulacroix 2014] J. Soulacroix, Approche micromécanique du comportement du combustible dioxyde d'uranium, Thèse, Ecole Nationale Supérieure des Arts et Métiers, 2014.

[Solomon 1970] A. Solomon, Radiation-induced creep of UO₂, J. Am. Ceram. Soc, 56 (1973) 164-171.

[Spino 2012] J. Spino, H. Santa Cruz, R. Jovani-Abril, R. Birtcher, C. Ferrero, Bulk-nanocrystalline oxide nuclear fuels – An innovative material option for increasing fission gas retention, plasticity and radiation-tolerance, J. Nucl. Mater. 422 (2012) 27-44.

[Staiger 2010] M.P. Staiger, I. Kolbeinsson, J. Newman, T. Woodfield, T. Sato, Orientation imaging microscopy of polycrystalline sodium chloride, Mater. Charact., 61 (2010) 413–419.

T

[Thomsen 2013] K. Thomsen, N.H. Schmidt, Improving the Accuracy of Orientation Measurements Using EBSD, Microsc. Microanal. 19 (Suppl 2) (2013).

U

[Urbanczyk-Gucwa 2016] A. Urbanczyk-Gucwa, K. Radwanski, K. Rodak, Influence of solution and aging treatment conditions on the formation of ultrafine-grained structure of CuFe₂ alloy processed by rolling with cyclic movement of rolls, Arch. Metall. Mater., (2016) 1235–1240.

V

[Valcke 2006] S.L.A. Valcke, G.M. Pennock, M.R. Drury, J.H.P. De Bresser, Electron backscattered diffraction as a tool to quantify subgrains in deformed calcite, J. Microscopy, 224 (2006) 264–276.

[Vivant-Duguay 1998] C. Vivant-Duguay, Contribution à l'étude du fluage du dioxyde d'uranium. Rôle des activateurs de croissance cristalline, Thèse, Institut National des Sciences Appliquées de Lyon, 1988.

W

[Wachtman 1965] J.B. Watchman, J.L. Bates. Elastic constants of single crystal UO₂ at 25°C, J. Nucl. Mater. 16 (1965) 39-41.

[Weertman 1957] J. Weertman, Steady-state creep based on dislocation climb, J. Appl. Phys. , 28 (1957) 362-364.

[Wilkinson 1997] A.J. WILKINSON, P. B. HIRSCH, Electron diffraction based techniques in scanning electron microscopy of bulk materials, Micron 28 (1997) 279-308.

[Wilkinson 2006] A. J. Wilkinson, G. Meaden, D.J. Dingley, High-resolution elastic strain measurement from electron backscatter diffraction patterns: New levels of sensitivity, Ultramicroscopy 106 (2006) 307-313.

[Winkelmann 2007] A. Winkelmann, C. Trager-Cowan, F. Sweeney, A.P. Day, P. Parbrook, Many-beam dynamical simulation of electron backscatter diffraction patterns, Ultramicroscopy 107 (2007) 414-421.

[Wolfe 1967]. R.A. Wolfe, S.F. Kaufman, USAEC Report WAPD-TM-587, 1967.

[Wright 2015] S.I. Wright, D.P. Field, M.M. Nowell, Post processing effects on GND calculations from EBSD-based orientation measurements, IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering 89 (2015) 012049.

Y

[Yust 1973] C.S. Yust, J.T.A Roberts, On the observation of lattice and grain boundary dislocations in UO₂ deformed at high temperature, J. Nucl. Mater. 48 (1973) 317-329.

Z

[Zacharie-Aubrun 2014] I. Zacharie-Aubrun, G. Raveu, Etude du comblement des évidements des pastilles combustibles après rampe de puissance, CEA/DEN/CAD/DEC/SA3C/LEMCI NT 14-009 – Indice 0, 2014.

Annexes

Annexe A : Systèmes de glissement dans l'UO₂

A. 1. Système {001} <110>

Divers auteurs ont traité le cas d'une dislocation coin dans le système de glissement primaire {001}<110> de la structure fluorine. Brantley et Bauer ont donné en 1970 une représentation bidimensionnelle d'une dislocation coin dans ce système de glissement, présentée sur la figure A.1 [Brantley 1970]. Cette dislocation est caractérisée par l'introduction de deux demi-plans ($\bar{1}10$) adjacents, son vecteur de Burgers est $b=a/2[\bar{1}10]$ et son plan de glissement est (001). Cette dislocation ne porte pas de charge.

A partir de cette configuration géométrique, deux autres dislocations coin peuvent se déduire : ce sont des dislocations chargées. On rappelle qu'une dislocation coin correspond à l'introduction de deux demi-plans supplémentaires, l'un se termine par une rangée de cations et l'autre par une rangée d'anions. Mais cette introduction peut engendrer l'apport d'un excès de charges positives ou négatives le long de la dislocation.

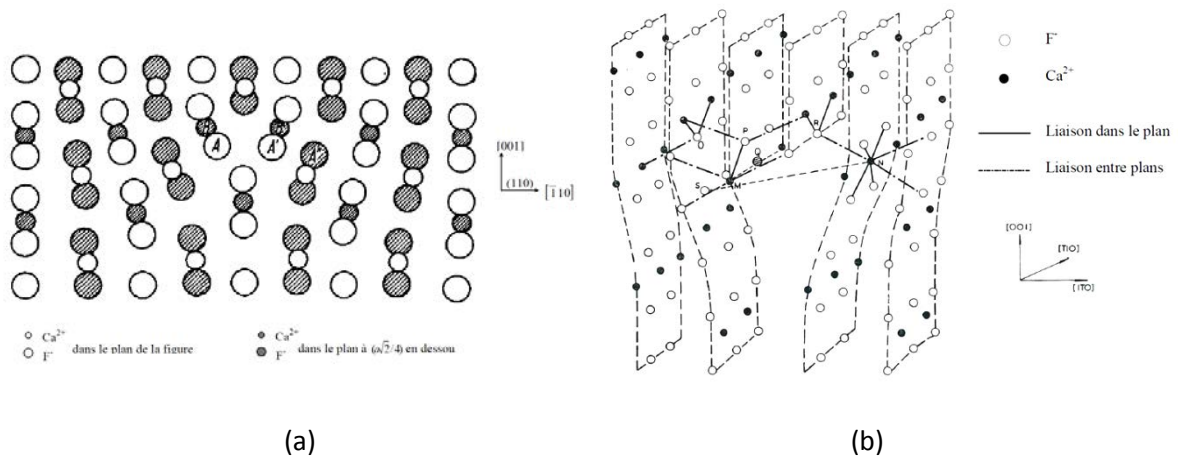


Figure A.1 : Dislocation coin non chargée dans le système (001)[$\bar{1}10$] : (a) représentation bidimensionnelle selon Brantley [Brantley 1970], (b) modèle tridimensionnel d'Evans [Evans 1969^a].

Un examen de la première configuration donnée par Amelincks [Amelincks 1958] montre qu'il existe des charges positives en excès le long de la dislocation. Ceci est illustré par le modèle tridimensionnel d'Evans et Pratt [Evans 1969^a] (Figure A.2a). En effet, il y a quatre liaisons libres par longueur de vecteur de Burgers et cela représente une charge nette équivalente à la charge d'un proton (+e).

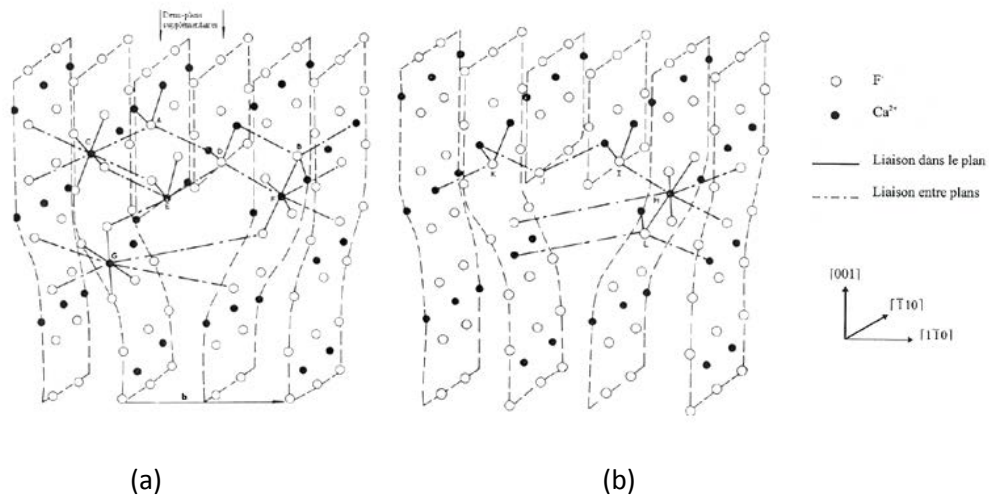


Figure A.2 : Dislocation coin chargée (a) positivement et (b) négativement, dans le système $(001)[\bar{1}10]$ [Evans 1969^a].

La forme chargée négativement est représentée sur la Figure A.2b. Celle-ci ne diffère de la figure A.2a que par l'omission de la rangée de cations dans le bas du demi-plan supplémentaire de gauche. Encore une fois, il y a quatre liaisons libres dans une longueur de vecteur de Burgers de dislocation et cela représente une charge nette équivalente à la charge d'un électron (-e).

La structure la plus probable de dislocation coin dans le système $\{100\}\langle 110\rangle$ est définie selon la représentation d'Evans et Pratt par une alternance de crans positifs et négatifs. Cette dislocation coin crantée est ainsi globalement neutre, ce qui facilite son déplacement et limite les frottements avec le réseau. Cette configuration paraît, de plus, énergétiquement favorisée.

En 1970, Sawbridge et Sykes se sont basés sur ce qui précède pour interpréter la présence d'une dislocation coin dans l' UO_2 pour le système primaire de glissement $(001)\langle 1\bar{1}0\rangle$ (Figure A.3) [Sawbridge 1970^a]. Ils considèrent que la stœchiométrie joue un rôle sur ces dislocations et qu'un excès d'oxygène favorise une configuration positive et inversement. Le mouvement des dislocations chargées est donc nettement ralenti par la présence d'impuretés ou de défauts chargés, comme les produits de fission.

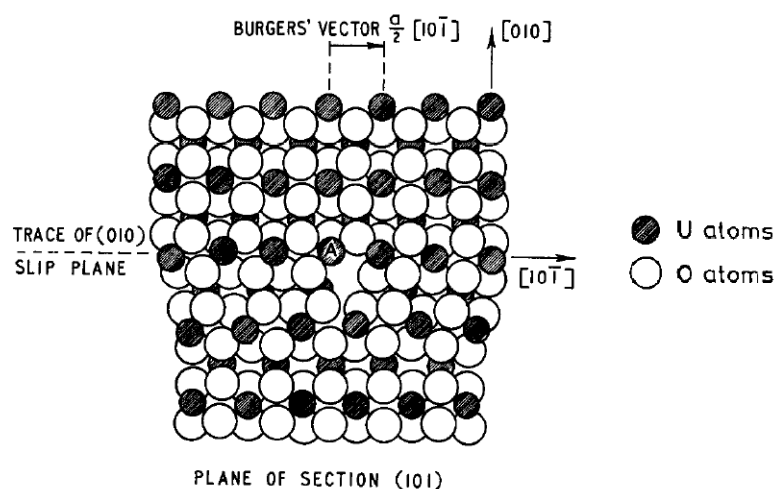


Figure A.3 : Dislocation coin dans l' UO_2 pour le système primaire $(001)\langle 1\bar{1}0\rangle$ [Sawbridge 1970^a].

A. 2. Système $\{011\} \langle 110 \rangle$

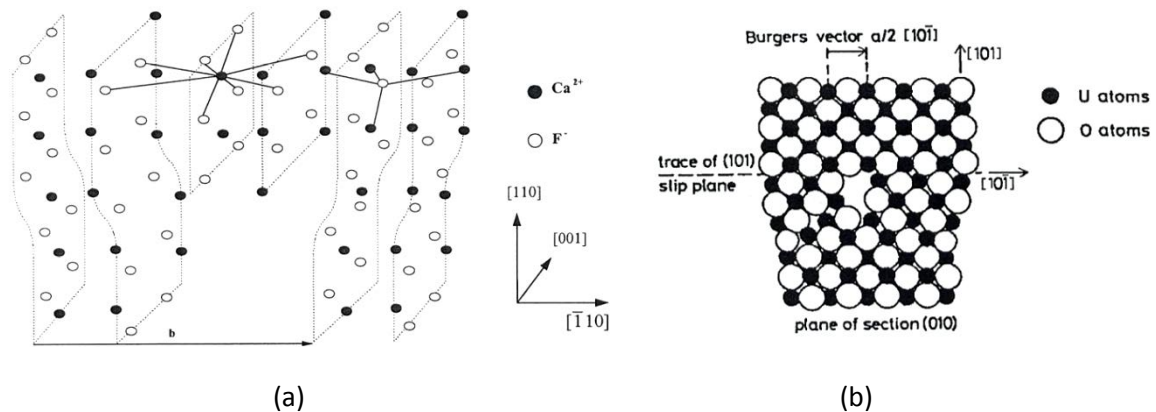


Figure A.4 : Dislocation coin dans le système $\{110\} \langle 110 \rangle$, (a) cas général : structure fluorite [Evans 1969^a] et (b) cas de l' UO_2 [Sawbridge 1970].

Les dislocations dans ce système de glissement n'ont pas été étudiées de manière détaillée. Quelle que soit leur nature (vis ou coin), elles sont considérées comme globalement neutres. La Figure A.4a montre un exemple de représentation tridimensionnelle d'une dislocation coin dans le système $\{110\} \langle 110 \rangle$. Elle montre bien que les deux demi-plans supplémentaires portent des charges égales mais de signe opposé [Evans 1969]. La figure A.4b représente cette même dislocation coin dans l' UO_2 , comme correspondant à une alternance de plans $\{100\}$ qui ne contiennent que des cations U^{4+} ou des anions O^{2-} .

A. 3. Système $\{111\} \langle 110 \rangle$

Selon Blank, Sawbridge et Rapperport [Blank 1969, Sawbridge 1970, Rapperport 1960], les plans $\{111\}$ sont les plans de glissement les plus difficiles à activer dans l' UO_2 . En raison de la basse densité atomique de ces plans, les dislocations partielles, engendrées par la dissociation d'une dislocation entière, n'y restent pas mais glissent suivant des plans « plus compliqués ». Keller *et al.* se sont intéressés aussi à ces plans pour le rôle qu'ils jouent lors d'un glissement dévié [Keller 1988^a]. La dislocation présentée sur la Figure A.5a est constituée de deux demi-plans neutres, de sorte qu'elle est neutre. Dans la Figure A.5b, la dislocation comporte deux demi-plans de charges égales mais de signe opposé. La charge nette de la dislocation est alors nulle, et elle est équivalente à une dislocation coin de la famille des plans $\{110\}$ dans la structure NaCl. Ainsi, deux types de dislocations coin neutres $\{111\} \langle 1\bar{1}0 \rangle$ existent dans l' UO_2 , pour lesquelles le glissement se produit dans le premier cas (Figure I.25a) entre les plans d'ions oxygène et, dans le second cas, entre un plan d'ions oxygène et un plan d'ions uranium (Figure A.5b).

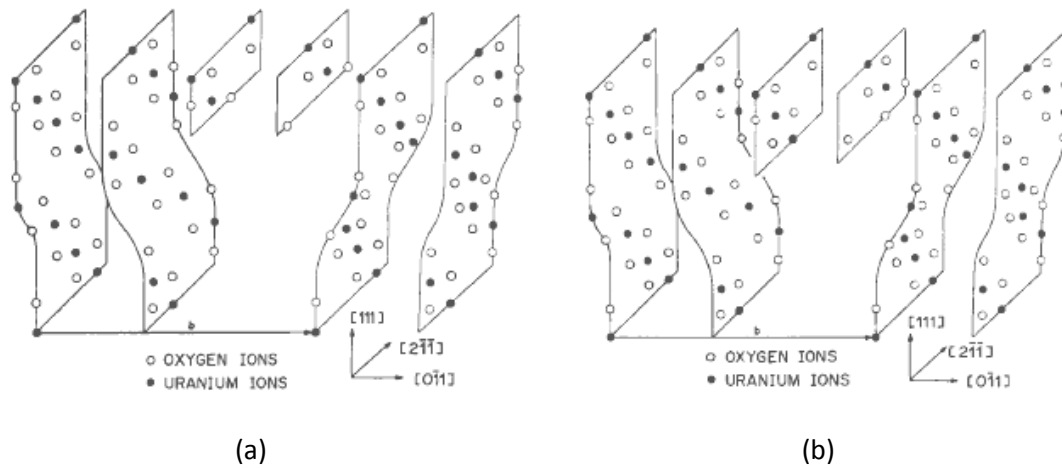


Figure A.5 : Structure de cœur de deux dislocations coin neutres dans le système $\{111\}\langle 110\rangle$. Ces dislocations se déplacent soit (a) entre deux plans d'ions oxygène, soit (b) entre un plan d'ions oxygène et un plan d'ions uranium [Keller 1988^a].

Annexe B : Quelques modèles de fluage

B. 1. Fluage diffusif

Dans le domaine du fluage diffusif, la déformation plastique est liée à un transport de la matière [Nabarro 1948]. Cette déformation s'accomplit par migration de lacunes orientées par la contrainte appliquée entre les surfaces d'un cristal. Elle peut être contrôlée par la diffusion en volume, dont le mécanisme est lacunaire (modèle de Herring, figure B.1a) ou aux joints de grains, qui sont des sources et des puits de lacunes (modèle de Coble, figure B.1b).

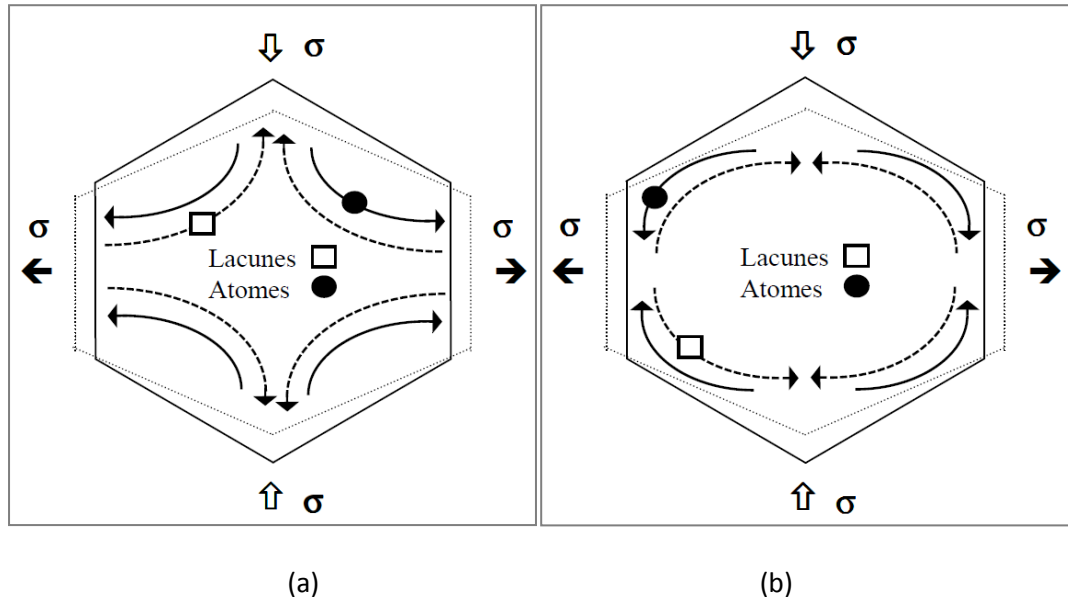


Figure B.1 : Représentation schématique des mécanismes de Herring et de Coble qui montrent respectivement le mouvement des lacunes sous contrainte (a) dans un grain et (b) le long des joints d'un grain.

Le modèle de Nabarro-Herring est caractérisé essentiellement par le fait que la vitesse de déformation est proportionnelle au coefficient d'autodiffusion en volume, varie linéairement avec la contrainte appliquée et est inversement proportionnelle au carré de la taille de grains d [Herring 1950] selon l'équation suivante :

$$\dot{\epsilon} = \frac{BD_{vol}\sigma\Omega}{d^2RT} \text{ en } s^{-1} \quad (B.1)$$

avec B une constante qui dépend de la forme des grains, D_{vol} le coefficient d'autodiffusion en volume, Ω le volume molaire.

Ensuite, Coble a proposé un modèle où le transport lacunaire se fait le long des joints eux-mêmes [Coble 1963]. Ce modèle, fondé sur des arguments analogues à ceux d'Herring, se traduit sous la forme suivante :

$$\dot{\epsilon} = \frac{148 D_{jdg} \delta \sigma \Omega}{\pi d^3 RT} \text{ en } s^{-1} \quad (B.2)$$

avec D_{jdg} le coefficient de diffusion inter-granulaire, δ l'épaisseur du joint de grain, d la taille moyenne des grains.

Notons que ces grains ont été choisis de forme sphérique pour pouvoir comparer les résultats de ce modèle à ceux déduits du modèle d'Herring. Les principales différences entre ces deux modèles résident dans le fait que le coefficient de diffusion aux joints de grains est utilisé à la place du coefficient de diffusion en volume et dans le fait que la vitesse de déformation est inversement proportionnelle à d^3 au lieu de d^2 .

Selon Vivant-Duguay, le modèle de Nabarro-Herring sous-estime les vitesses expérimentales de plusieurs ordres de grandeurs alors que le modèle de Coble les prédit convenablement. Ce résultat a été confirmé plus tard par Dherbey qui a montré que l' UO_2 se déforme suivant le modèle de Coble sous faible charge en compression.

Il existe également des modèles qui font intervenir à la fois de la diffusion et du glissement aux joints de grains, et qui s'apparentent, en termes d'expression, à ceux décrivant uniquement de la diffusion.

B. 2. Fluage dislocationnel

Au-dessus de la contrainte de transition, le fluage est souvent considéré comme indépendant de la taille de grains. Dans ce cas, c'est le mouvement des dislocations qui contrôle la déformation plastique notamment par glissement dévié à chaud. Lors de leurs mouvements, les dislocations se bloquent sur des obstacles comme cela est représenté sur la figure B.2, et le déblocage se fait par un glissement dévié ou par montée et ainsi de suite. Le régime stationnaire résulte d'un équilibre dynamique entre blocage et déblocage, c'est-à-dire entre le glissement entre deux obstacles et le glissement dévié ou la montée, au niveau des obstacles.

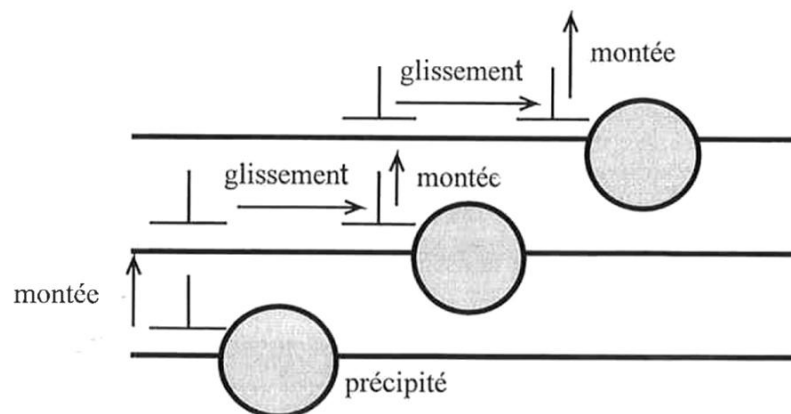


Figure B.2 : Représentation schématique d'un glissement de dislocation contrôlé par montée.

B. 2. 1. Modèle de Weertman

Weertman a proposé un modèle dans lequel le fluage est contrôlé par la montée des dislocations coin [Weertman 1957]. Il en a établi plusieurs versions. Dans la dernière, les dislocations proviennent de deux sources Frank-Read émettant dans des plans de glissement voisins. Elles se bloquent par interaction de leurs parties coins en formant des multipôles. La vitesse de déformation est donnée par l'expression suivante :

$$\dot{\epsilon}_{\infty} \frac{D_{vol}}{b^{3,5} M^{0,5}} \left(\frac{\sigma}{G}\right)^{4,5} \frac{Gb^3}{kT} \text{ en } s^{-1} \quad (\text{B.3})$$

avec G le module de cisaillement et M représente la densité de sources de dislocations (indépendante de la contrainte, dans ce cas).

B. 2. 2. Modèle de Nabarro

Le modèle de Nabarro fait intervenir aussi les dislocations coin et considère que la déformation est due seulement à leur montée. C'est une extension du modèle de fluage de Nabarro-Herring à un réseau de dislocations coin. Dans ce cas, ce sont les dislocations qui jouent le rôle de sources et de puits de lacune et non pas les joints de grains. Sous l'action de la contrainte, la concentration d'équilibre thermique des lacunes au voisinage des dislocations est modifiée. Un flux de lacunes entre dislocations sources et dislocations puits se produit alors, qui se traduit par la montée des dislocations. Nabarro a calculé, à partir de ces hypothèses, la vitesse de déformation qui s'écrit sous la forme suivante :

$$\dot{\epsilon}_{\infty} \frac{D_{vol} b \sigma^3}{\pi K G^2} \frac{1}{\text{Log} \left(\frac{4G}{\pi\sigma}\right)} \text{ en } s^{-1} \quad (\text{B.4})$$

B. 3. Modèle unifié de Dherbey

Parmi les nombreux modèles publiés pour décrire le fluage de l'UO₂ polycristallin, celui de Dherbey est l'un des plus récents et présente l'intérêt de couvrir de manière continue les domaines de fluage diffusionnel et dislocationnel aux températures intermédiaires [Dherbey 2000]. Il présente également l'intérêt de s'appuyer sur de nombreuses observations microstructurales par MEB et par MET. La loi de fluage proposée est de la forme suivante :

$$\dot{\epsilon} = \dot{\epsilon}_m \frac{1}{d^p} \exp\left(-\frac{Q_{vol}}{KT}\right) \sinh\left(\frac{\sigma V^*}{KT}\right) \quad (\text{B.5})$$

Avec :

$\dot{\epsilon}_m$: un paramètre microstructurale,

d : la taille de grain,

p : l'exposant de la taille de grain qui est proche à 1,3,

σ : la contrainte appliquée en cours d'essai,

V^* : le volume d'activation dans lequel les contraintes d'incompatibilités deviennent négligeables,

Q_{vol} : l'énergie d'activation qui s'apparente à celle de l'autodiffusion du cation U⁴⁺.

Le volume V^* qui est de l'ordre de $70 b^3$, est caractéristique d'un processus thermiquement activé dans les sous-grains et traduit le fait que la vitesse de fluage serait contrôlée par la migration des sous-joints de grain.

Afin de vérifier que cette loi est valable à la fois pour un essai de fluage ou pour un essai en DVC, Dherbey a comparé les valeurs de contrainte d'écoulement mesurées au cours d'un essai de DVC avec celles calculées à partir de la loi de fluage stationnaire proposée et a trouvé un bon accord. Ceci tend à montrer que le même mécanisme microscopique régit la déformation de l'UO₂ lorsqu'il est sollicité en compression, en DVC ou en fluage.

Annexe C : Détermination de la masse volumique et de la porosité ouverte et fermée des pastilles par pesée hydrostatique dans l'éthanol

La mesure de la masse volumique moyenne ρ_m de chaque pastille est possible par pesée hydrostatique dans l'éthanol. ρ_m est définie comme suit :

$$\rho_m = M_s / V_a \quad (C.1)$$

avec M_s la masse sèche de la pastille et V_a son volume apparent, exprimé en cm^3 . Le volume apparent est le volume du matériau augmenté du volume de la porosité ouverte et fermée.

Cette méthode permet de déterminer également la répartition de la porosité entre porosité ouverte P_o (qui est l'ensemble des pores et microfissures reliés à la surface libre de la pastille) et porosité fermée P_f (qui est l'ensemble des pores internes, sans communication avec la surface libre). La manipulation comporte un cycle d'opérations successives et permet de déterminer à chaque fois la masse volumique apparente et le volume de porosité ouverte V_{po} du matériau :

- détermination de la masse sèche M_s de chacune pastille du lot par pesée à sec,
- mise sous vide des pastilles pendant une heure,
- imprégnation des pastilles par l'éthanol, tout en maintenant le vide, pendant deux heures pour que l'alcool remplisse les porosités ouvertes contenues dans les pastilles,
- détermination de la masse immergée M_i , par pesée hydrostatique, telle que :

$$M_i = M_s + V_{po} \rho - V_a \rho \quad (C.2)$$

- essuyage rapide des pastilles (les pores ouverts étant toujours remplis d'éthanol)
- détermination de la masse humide M_h par pesée, telle que :

$$M_h = M_s + V_{po} \rho \quad (C.3)$$

avec ρ la masse volumique de l'alcool déterminée par l'utilisation d'un matériau étalon ne comportant aucune porosité et dont la masse volumique est connue.

La différence entre la masse humide et la masse immergée mesurées donne le poids du volume apparent V_a d'alcool déplacé par la poussée d'Archimède, tel que :

$$V_a = \frac{M_h - M_i}{\rho} \quad (C.4)$$

Or d'après l'équation C.4, la densité de la pastille s'écrit comme suit :

$$\rho_m = \frac{M_s}{V_a} = \frac{\rho \times M_s}{M_h - M_i} \quad (C.5)$$

La mesure de la masse humide donne le volume des porosités ouvertes par :

$$V_{po} = \frac{M_h - M_s}{\rho} \quad (C.6)$$

La porosité ouverte vaut alors :

$$P_o = \frac{V_{po}}{V_a} = \frac{M_h - M_s}{M_h - M_i} \quad (C.7)$$

La porosité fermée est déduite à partir de la porosité ouverte et de la densité de la pastille par :

$$P_f = 1 - \rho_m - P_o \quad (C.8)$$

Annexe D : Effet de la vitesse de déformation sur la microstructure L2

Cette annexe concerne l'étude de l'influence de la vitesse de déformation sur les pastilles du lot L2. La stratégie de travail appliquée sur le lot L1, a été suivie pour le second lot. En effet, deux groupes de pastilles ont été déformés selon des conditions précises qui sont présentées dans le tableau D.1. Les échantillons appartenant au premier groupe, G2_L2(d7), ont été déformés avec des vitesses différentes et présentent un taux de 7%. Les échantillons appartenant au second groupe nommé G3_L2(d11), ont été déformés sous différentes vitesses pour atteindre environ 11% de taux de déformation.

Tableau V.4 : Caractéristiques des essais mécaniques réalisés sur les pastilles des groupes G2_L2(d7) et G3_L2(d11)

Echantillon	Vitesse de déformation arrondie $\times 10^{-6}$ (s^{-1})	Taux de déformation (%)	Durée de l'essai
G2_L2(d7) avec un taux de déformation de 7%			
R2	/	/	/
L2-D-v5-d7	5	7	5 h 20 min
L2-D-v20-d7	20	7	1 h 19 min
L2-D-v40-d7	40	7	28 min
G3_L2(d11) avec un taux de déformation $\approx 11\%$			
R2	/	/	/
L2-D-v5-d10	5	10	6 h 10 min
L2-D-v20-d11	20	11	1 h 41 min
L2-D-v70-d11	70	11	28 min

D. 1. Cas du groupe G2_L2(d7)

Les échantillons de ce groupe G2_L2(d7) ont fait l'objet d'une caractérisation par MEB au moyen des micrographies BSE. Le résultat obtenu montre que l'augmentation de la vitesse de déformation engendre une augmentation du nombre des sous-grains formés. Par contre, aucune évolution de la porosité n'a été observée (les micrographies BSE correspondantes n'ont pas été présentées dans cette annexe pour alléger le contenu).

L'observation des cartes EBSD acquises sur ces échantillons (figure D.1) montre également que le nombre de S-JG, créés lors de la compression augmente avec la vitesse de déformation. Les résultats de quantification de la fraction linéaire des JG et des S-JG sont présentés dans le tableau D.2 et sur la figure D.2.

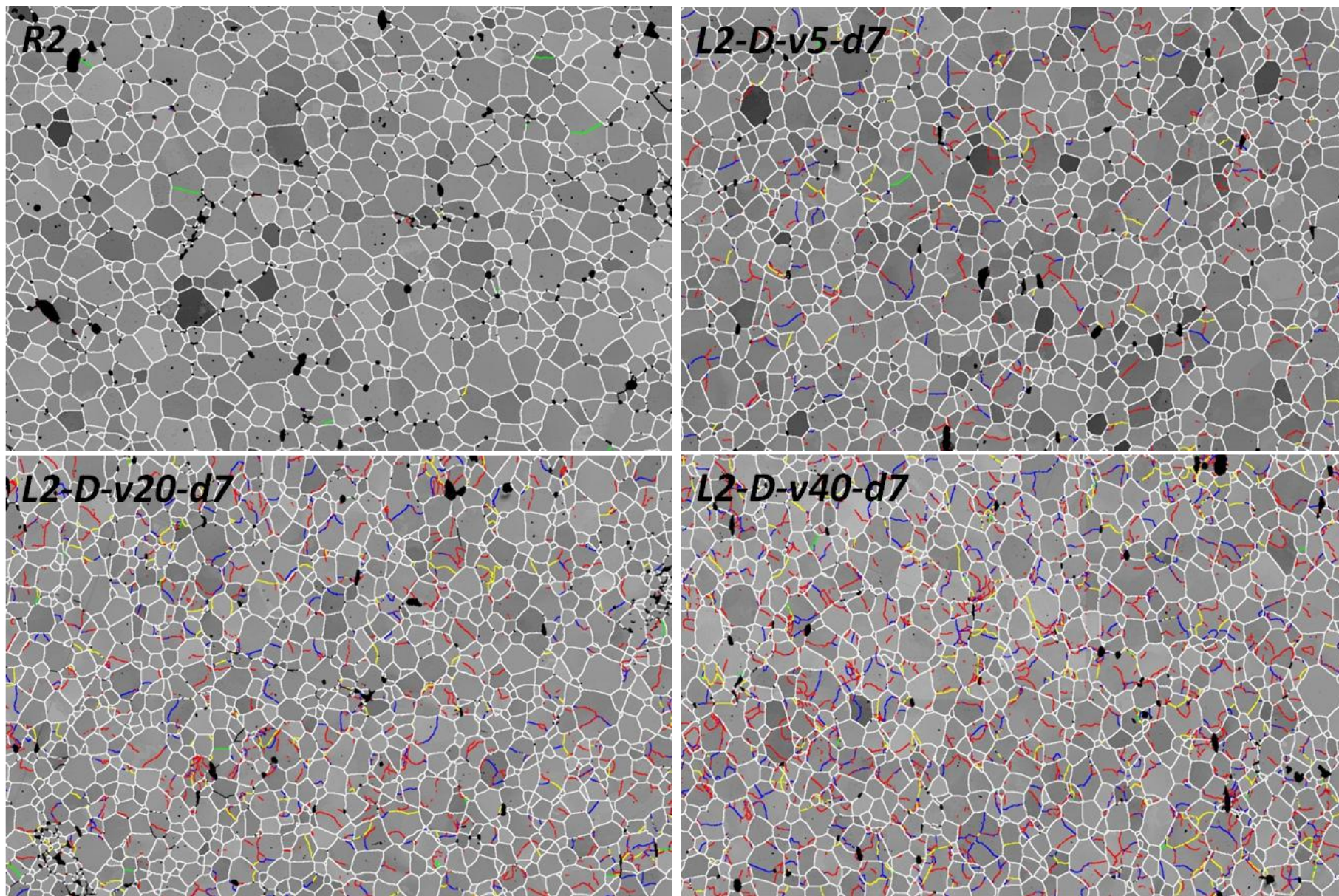


Figure D.1 : Cartes d'indice de qualité et de désorientations relatives aux échantillons du groupe G2_L2(d7).

Tableau D.2 : Quantification de la fraction linéaire des JG et S-JG, et la densité des GNDs mesurée à partir des données EBSD des échantillons du groupe d'échantillons G2_L2(d7)

Désorientation θ°	R2	L2-D-v5-d7	L2-D-v20-d7	L2-D-v40-d7
Histogramme 1 des JG et S-JG				
0,25°_5°	0,66	17,04	28,65	40,64
5°_15°	3,56	2,88	2,21	1,82
>15°	95,78	80,07	69,14	57,54
Histogramme des SJG				
0,25°_0,5°	0,11	11,60	16,06	24,66
0,5°_1°	0	3,48	7,15	9,89
1°_3°	0,06	1,80	5,25	5,75
3°_5°	0,49	0,16	0,19	0,34

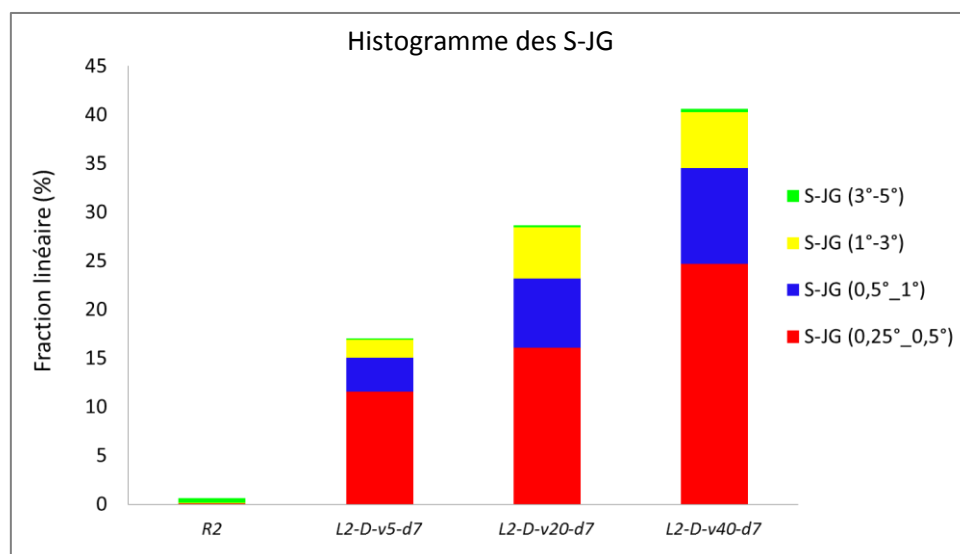
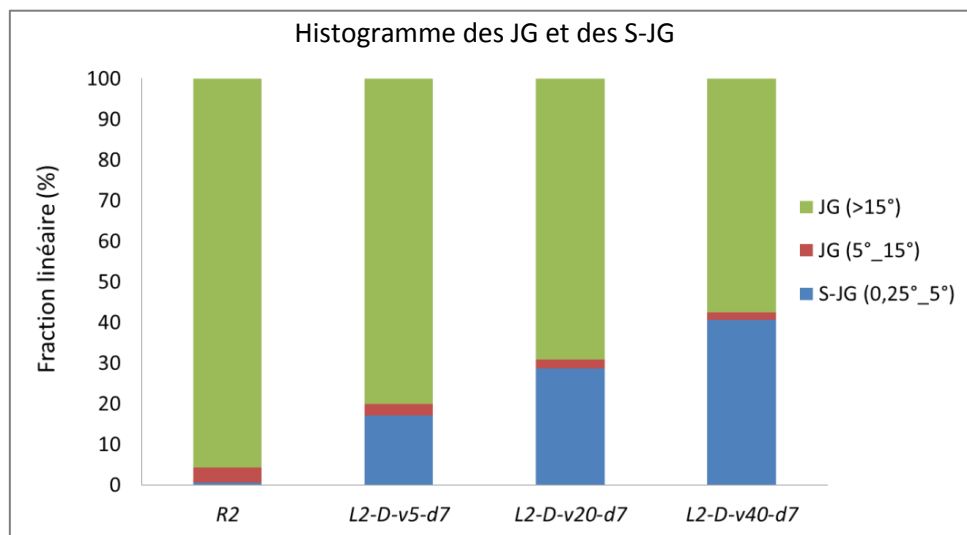


Figure D. 2 : Histogrammes de répartition des fractions linéaires des JG et des S-JG, mesurés à partir des cartes EBSD acquises sur les échantillons du groupe G2_L2(d7).

L'évolution microstructurale obtenue montre que la fraction linéaire des S-JG augmente dans chaque classe ($[0,25^\circ_0,5^\circ[$, $[0,5^\circ_1^\circ[$ et $[1^\circ_3^\circ[$) avec la vitesse de déformation. La densité moyenne des GNDs, quant à elle, augmente aussi logiquement avec la vitesse.

On remarque aussi que la fraction linéaire des S-JG ayant une désorientation comprise entre 3° et 5° est très faible dans tous les échantillons (voir figure D.2 et tableau D.2). Elle ne dépasse pas les 0,5%. Cela veut dire qu'il y a une quasi-absence de ce type de S-JG quand le taux de déformation est de 7%.

D. 2. Cas du groupe G3_L2(d11)

Les échantillons qui appartiennent au groupe G3_L2(d11) ont été déformés jusqu'à un taux de déformation encore plus élevé de l'ordre de 11% par rapport au groupe G2_L2(d7). Aussi, la plus grande vitesse de déformation appliquée à la microstructure L2, est présentée dans ce groupe. Elle est de l'ordre de $70.10^{-6} \text{ s}^{-1}$.

La comparaison entre la microstructure de l'état de référence et celles des échantillons déformés montre de nouveau que la déformation induit dans le matériau des sous-grains qui sont révélés par la variation du contraste obtenu au sein des grains originaux (figure D.3). Le nombre de ces sous-structures augmente avec la vitesse de déformation. On remarque aussi la présence locale de quelques petites cavités inter-granulaires dans la microstructure de l'échantillon L2-D-v70-d11 qui a été déformé avec la plus grande vitesse appliquée sur ce lot L2. C'est le seul cas parmi tous les essais réalisés sur L2, où l'on observe l'apparition de petites cavités (Figure D.3).

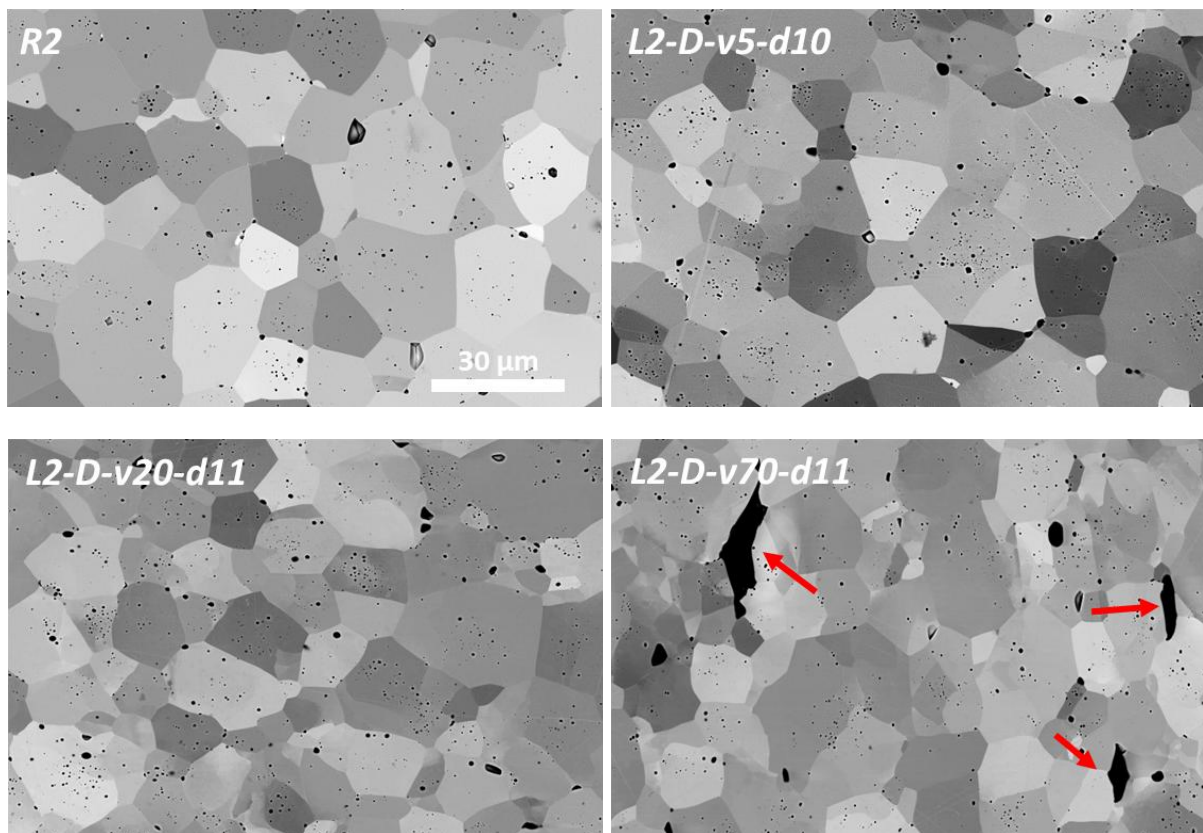


Figure D.3 : Micrographies BSE acquises sur l'échantillon de référence R2 et les échantillons déformés à un niveau final de l'ordre de 11% (groupe G3_L2(d7)).

La comparaison des cartes EBSD obtenues sur les échantillons déformés montre une nouvelle fois que le nombre des S-JG augmente avec la vitesse de déformation. La quantification de la déformation à partir des cartes EBSD montre que la fraction linéaire totale des S-JG augmente linéairement avec la vitesse de déformation. Elle passe de 18,55% à 35,97%, pour une vitesse environ 4 fois plus élevée, puis à 44,53% quand la vitesse augmente de $20.10^{-6} \text{ s}^{-1}$ à $70.10^{-6} \text{ s}^{-1}$. La fraction linéaire des S-JG augmente dans chaque classe ($[0,25^\circ_0,5^\circ[$, $[0,5^\circ_1^\circ[$ et $[1^\circ_3^\circ[$). En outre, il y a une population importante de S-JG ayant une désorientation comprise entre 1° et 5° (colorés en jaunes et verts sur les cartes EBSD, Figure D.4). Ceci est notamment lié à l'augmentation du nombre de S-JG qui sont désorientés de 3 à 5° . En effet, on remarque la présence de cette classe de désorientation sur l'histogramme des S-JG sur la figure D.5. Ceci est un indicateur sur l'augmentation de la désorientation des S-JG au cours du temps en parallèle avec la formation des nouveaux S-JG.

Tableau D.3 : Quantification de la fraction linéaire des JG et S-JG, et la densité des GNDs mesurée à partir des données EBSD des échantillons du groupe d'échantillons G3_L2(d11)

Désorientation θ°	<i>R2</i>	<i>L2-D-v5-d10</i>	<i>L2-D-v20-d11</i>	<i>L2-D-v70-d11</i>
Histogramme des JG et S-JG				
0,25°_5°	0,65	18,55	35,97	44,53
5°_15°	3,56	2,06	2,53	2,13
>15°	95,78	79,39	61,50	53,34
Histogramme des SJG				
0,25°_0,5°	0,11	8,39	17,52	21,29
0,5°_1°	0	4,30	8,25	10,31
1°_3°	0,06	5,08	8,66	11,15
3°_5°	0,49	0,79	1,53	1,79
$\ \text{GNDs} \ \times 10^{12} \text{ m}^{-2}$	0,81	2,48	5,12	7,5

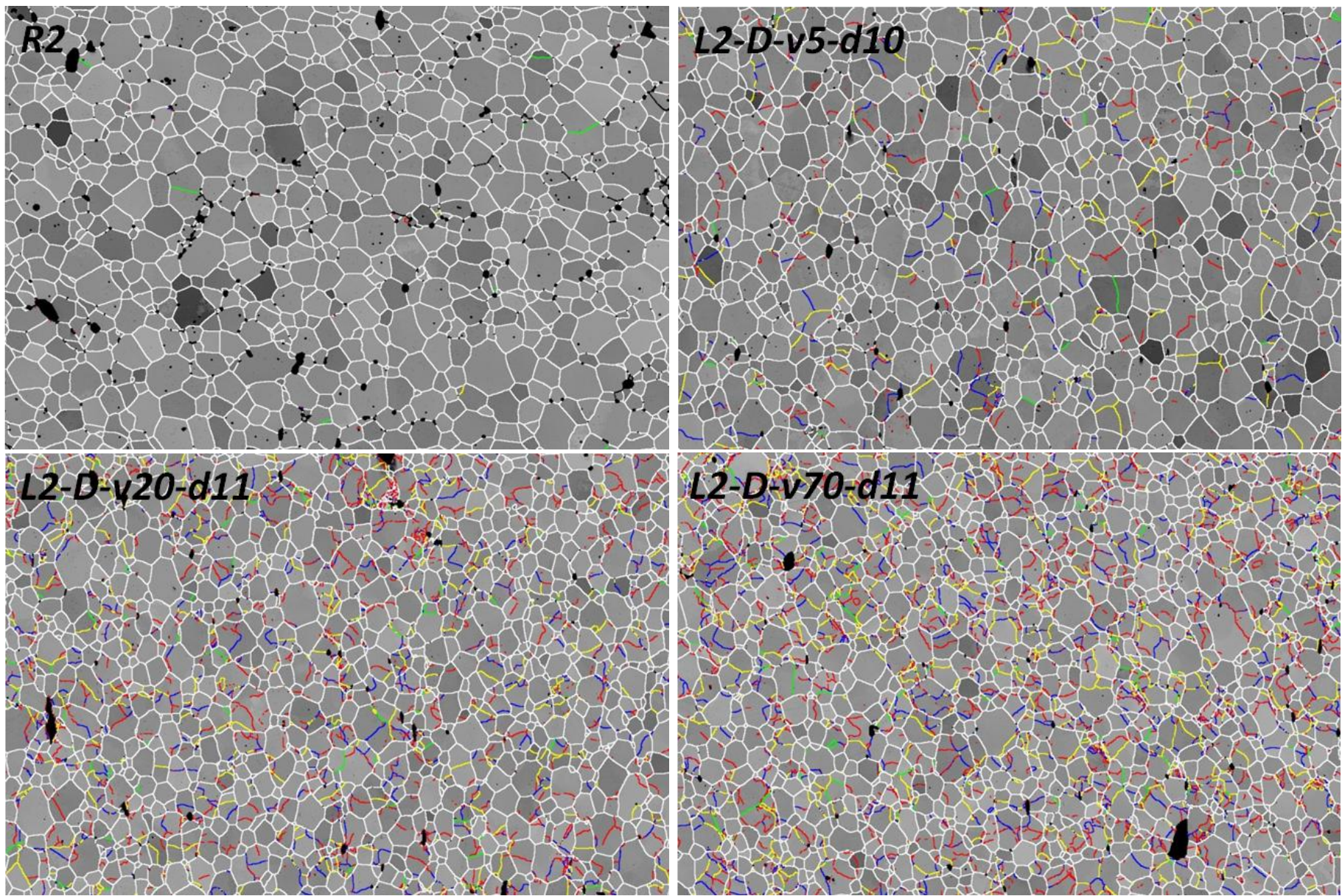


Figure D.4 : Cartes d'indice de qualité et de désorientations relatives aux échantillons du groupe G3_L2(d11). 230

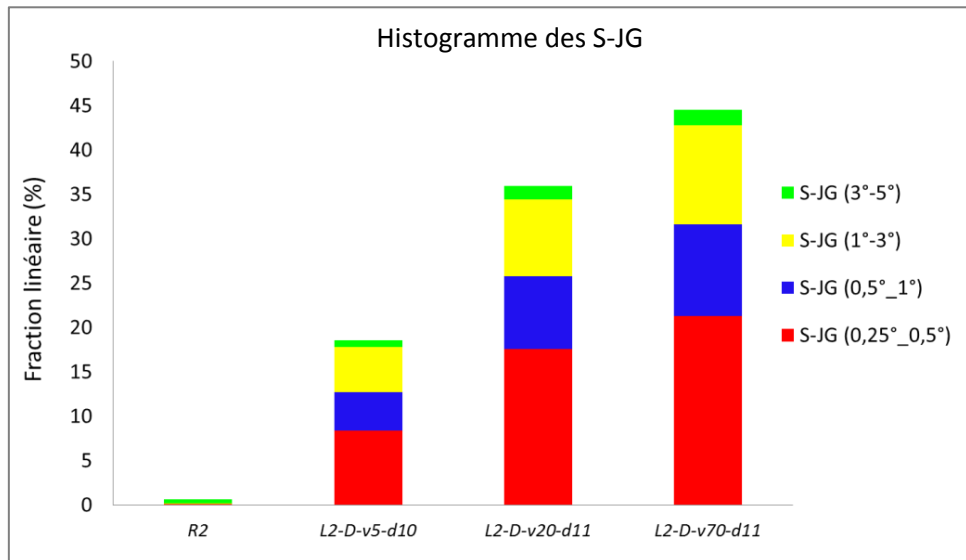
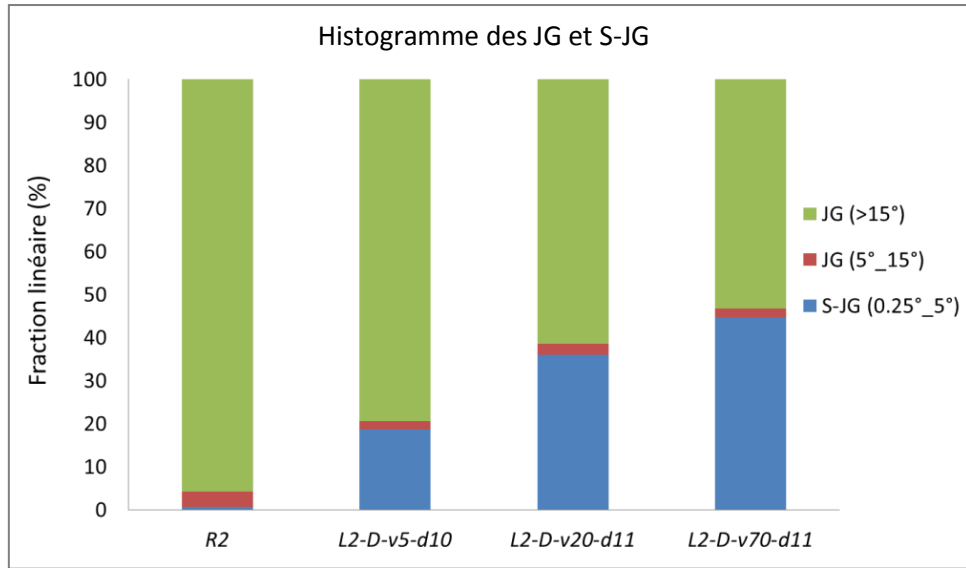


Figure D.5 : Histogrammes de répartition des fractions linéaires des JG et des S-JG, mesurés à partir des cartes EBSD acquises sur les échantillons du groupe $G3_L2(d11)$.

Etude du comportement visco-plastique du dioxyde d'uranium : Quantification par analyse EBSD et ECCI des effets liés aux conditions de sollicitation et à la microstructure initiale

Le dioxyde d'uranium (UO_2) est utilisé en tant que combustible, sous forme de pastilles élaborées par métallurgie des poudres, dans les réacteurs nucléaires à eau pressurisée. Lors de transitoires de puissance, le centre des pastilles est le siège de mécanismes de déformation visco-plastique qui peuvent être partiellement reproduits, hors irradiation, par des essais de compression uniaxiale à haute température (typiquement 1500°C). Les conditions de sollicitation et la microstructure initiale des pastilles d' UO_2 ont une influence sur leur comportement mécanique macroscopique. A l'échelle des grains, des mécanismes de sous-structuration interviennent mais, à ce jour, la sous-structure n'est pas quantifiée et le rôle des pores sur ces mécanismes n'est pas connu.

Afin d'apporter des réponses sur ces points, deux lots de pastilles (L1 et L2) de taille de grains similaires, de même fraction volumique de pores, mais ceux-ci étant distribués différemment (2,5 fois plus de pores intra-granulaires dans L1 que dans L2), ont été fabriqués. Ils ont ensuite été soumis à des essais mécaniques dans différentes conditions. Le résultat montre que le lot L2 présente une vitesse de fluage plus élevée que le lot L1. Les techniques Electron BackScatter Diffraction (EBSD) et Electron Channeling Contrast Imaging (ECCI) ont été mises en œuvre et optimisées pour suivre l'évolution de la microstructure après déformation. En EBSD, le développement d'une procédure adaptée aux matériaux poreux a permis de détecter des sous-joints de grains (S-JG) de très faible désorientation (jusqu'à $0,1^\circ$), de mener une étude statistique de l'évolution de la sous-structuration des grains et d'évaluer la densité de dislocations géométriquement nécessaires générées. Différents types d'arrangements de dislocations formant les S-JG ont été révélés et analysés par ECCI. Grâce à la complémentarité de l'EBSD et de l'ECCI, la répartition des pores dans les grains et la localisation des S-JG ont pu être mises en regard. Les résultats montrent que le nombre ainsi que la fraction linéaire des S-JG et leur désorientation augmente avec le taux et la vitesse de déformation. Aux forts taux de déformation, cela conduit à la formation de nouveaux grains par un mécanisme de restauration/recristallisation dynamique par rotation de sous-grains. Pour des conditions de sollicitation identiques, les échantillons du lot L1 présentent un nombre et une fraction linéaire de S-JG nettement supérieurs à ceux du lot L2. De plus, dans le lot L1, les S-JG se localisent essentiellement à proximité des joints de grains alors qu'ils sont répartis dans l'ensemble du grain pour le lot L2. Ces différences seraient liées à une réduction du libre parcours moyen des dislocations du fait de la présence des pores intra-granulaires.

Mots clés : Dioxyde d'uranium, comportement visco-plastique, essais de compression, EBSD, ECCI, pores, sous-joints de grains, dislocations.

Study of the visco-plastic behavior of uranium dioxide: quantification by EBSD and ECCI analysis of the effects related to the stress conditions and the initial microstructure

Uranium dioxide (UO_2) is used as a fuel, in pressurized water nuclear reactors, in the form of pellets produced by powder metallurgy. During power transients, the center part of pellets undergoes visco-plastic deformation by creep mechanisms. These mechanisms can be partially reproduced, out of irradiation, by uniaxial compression tests at high temperature (typically 1500°C). Testing conditions and initial microstructure of the UO_2 pellets influence their macroscopic mechanical behavior. At the grain scale, sub-structuring mechanisms are involved, but, up to now, the sub-structure is not quantified and the role of pores on these mechanisms is unknown.

In order to provide answers to these points, two batches of pellets (L1 and L2), characterized by a similar grain size, a same volume fraction of pores, but different pores distribution (2.5 times more intra-granular pores in L1 than in L2), were elaborated. They were submitted to mechanical tests under different conditions. The result shows that L1 has a lower creep rate than L2. Electron Backscatter Diffraction (EBSD) and Electron Channeling Contrast Imaging (ECCI) techniques were used and optimized for porous materials to analyze the evolution of the microstructure after deformation. An original EBSD methodology was implemented to detect Sub-Grain Boundaries (S-GB) with very low disorientation angles (down to 0.1°), study statistically the grain fragmentation into sub-grains and evaluate the average density of the geometrically necessary dislocations. Thanks to ECCI, the arrangement of dislocations in some S-GB was evidenced and analyzed. EBSD and ECCI complementarity allowed relating the distribution of pores within the grains and the S-GB location. The results obtained on the two batches show that the number and the linear fraction of S-GB increases with the deformation level and rate. At high deformation rates, new grains appear by a mechanism of dynamic recovery/recrystallization by rotation of sub-grains. For identical loading conditions and strain rates, the samples of batch L1 have a number and a linear fraction of S-GB that are significantly higher than those of batch L2. Furthermore, in batch L1, S-GB are located essentially in the vicinity of the grain boundaries while they are distributed throughout the grain for batch L2. These microstructural differences seem to be related to a dislocation's mean free path reduction due to the presence of intra-granular pores.

Key words: Uranium dioxide, visco-plastic behavior, compression tests, EBSD, ECCI, pores, sub-boundaries, dislocations.