



HAL
open science

Amorçage de fissures de corrosion sous contrainte du Zircaloy-4 recristallisé en milieu méthanol iodé

Nathanaël Mozzani

► **To cite this version:**

Nathanaël Mozzani. Amorçage de fissures de corrosion sous contrainte du Zircaloy-4 recristallisé en milieu méthanol iodé. Autre. Institut National Polytechnique de Toulouse - INPT, 2013. Français. NNT : 2013INPT0044 . tel-04287187

HAL Id: tel-04287187

<https://theses.hal.science/tel-04287187>

Submitted on 15 Nov 2023

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.



Université
de Toulouse

THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par : *l'Institut National Polytechnique de Toulouse (INP Toulouse)*

Soutenue le 17/06/2013 par :

NATHANAËL MOZZANI

**Amorçage de fissures de corrosion sous contrainte du Zircaloy-4
recristallisé en milieu méthanol iodé**

JURY

GEORGES CAILLETAUD
MARION FREGONESE
PHILIPPE PILVIN
JEAN-MARC CLOUE
JOËL ALEXIS
QUENTIN AUZOUX
ERIC ANDRIEU
DAVID LE BOULCH
CHRISTINE BLANC

Professeur
Professeur
Professeur
Dr, HDR, Ingénieur
Maître de Conférence
Dr, Ingénieur
Professeur
Ingénieur
Professeur

Président du Jury
Membre du Jury
Membre du Jury
Membre du Jury
Membre du Jury
Membre du Jury
Membre du Jury
Invité
Invité

École doctorale et spécialité :

SDM : Sciences et génie des matériaux - CO034

Unité de Recherche :

*CIRIMAT - Centre Inter-universitaire de Recherche et d'Ingénierie des Matériaux - UMR
CNRS 5085*

Directeur(s) de Thèse :

Eric ANDRIEU et Christine BLANC

Rapporteurs :

Marion FREGONESE et Philippe PILVIN

Remerciements

Ce manuscrit de thèse marque la fin d'une aventure commencée au CEA Saclay il y a presque quatre ans. La quantité et la qualité (à vous de juger) des travaux réalisés n'auraient pas été les mêmes si de nombreuses personnes ne m'avaient aidé à un moment ou à un autre.

Je remercie en premier lieu mes encadrants CEA, Quentin Auzoux et David Le Boulch. Ils m'ont très vite accordé leur confiance et ont toujours répondu présents quand il fallait, et notamment lorsque la folie guettait à la fin. Leurs compétences scientifiques, leur attention mais aussi leur grande gentillesse m'ont permis réaliser cette thèse dans les meilleures conditions. On ne peut espérer mieux. Merci également à mes deux directeurs de thèse, Eric Andrieu et Christine Blanc, pour leur sympathie, leurs conseils avisés et leur patience face à mes idées pas toujours claires. Malgré la distance qui nous séparait, la bande des cinq a bien fonctionné.

Je suis également reconnaissant envers ceux qui ont accepté d'évaluer mon travail et particulièrement les rapporteurs, Marion Frégonèse et Philippe Pilvin, qui ont attentivement relu cet épais manuscrit. Merci également à Georges Cailletaud, Joël Alexis et Jean-Marc Cloué qui s'est intéressé à cette thèse au-delà de son rôle de correspondant Areva. Ce fut également un plaisir de travailler avec son successeur, Colin Scott, toujours disponible et pas avare en bonnes idées (un godet ?).

J'ai une pensée pour toutes les personnes rencontrées au SEMI, au SRMA ou au SMRP, notamment celles qui m'ont accueilli, Xavier Averty et Anne Terlain, celles qui m'ont permis de finir la thèse sereinement, Christophe Poussard et Valérie Vanderberghe, celles qui m'ont aidé et/ou supporté lors de ma quête de l'état de surface, Stéphane Allègre, Marie Azera, Caroline Mallet, Elodie Rouesne et Stéphane Urvoy, celles qui m'ont apporté un coup de main pour mes manip, Jean-François Lecot, Jean-Pierre Pizzanelli, Damien Schildknecht et Patrick Bottin, ainsi que celles qui m'ont permis de travailler tranquillement dans l'installation, Guy-Marc Decroix, Patrice Blanchet, Caroline Mazoin et Sylvie Cadhillon. Merci aussi à Roger Limon (avec une précision au troisième ordre) pour les discussions sur le comportement mécanique, Sophie Bosonnet et Jean-Luc Béchade pour les manip DRX, Claude Armand pour les analyses SIMS, Annick Bougault, Patrick Bonnaillie et Bénédicte Verhaege pour les observations MEB, Eric Bordas, Patrick Trocellier et Yves Serruys du côté de JANNUS et Gaëlle Garniel pour m'avoir expliqué tous les deux mois comment faire un ordre de mission ou une commande. Pour un service rendu et/ou une participation à la bonne ambiance, je remercie Philippe Bossis, Jean-Paul Gozlan, Pierre Billaud, Marc Tupin, Brice Bourdilliau, Pierre Gavaille, Chantal Cappelaere, Thomas Guilbert, Annie Soniak, Matthew Bono, Arnaud Courcelles, Thomas Le Jolu, Yanick Robert, Benoit Tanguy, Jeremy Hure, Fabien Onimus, Luc Belin, Cédric Dumas, Arnaud Courcelles, Thibault (... !), Claire Vaille. Bien évidemment, ces remerciements s'adressent aussi à toutes les personnes que j'ai oubliées.

Je n'oublie pas les compagnons de galère, qu'ils soient stagiaires ou thésards, aussi bien au CEA qu'à l'ENSIACET. Mention spéciale à Athir Hellouin, le gars d'en face pendant trois années, dont la faiblesse à FIFA et aux poils de chat est compensée par un sens de l'humour (partagé) à la limite de l'illégalité. Bonne route également à Sarata, la fille à gauche, à Xu fleur, Arnaud, Florian, Jonathan, Vincent, Tristan, à celles et ceux, trop nombreux pour les citer, qui se sont succédés sur le bureau de droite ou derrière les trop fines cloisons du préfabriqué 625P.

Un grand merci également à mes proches, famille ou amis de longues dates, du plâtal ou d'ailleurs, et particulièrement à ma mère qui a toujours cru en moi. Et enfin, merci à Marie-Aude, qui me supporte et me soutient depuis si longtemps déjà.

Table des matières

Introduction	9
Chapitre I : Bibliographie	11
Introduction	11
I.1 Contexte de l'étude	11
I.1.1 Contexte industriel	11
I.1.2 Rupture de gaine par interaction pastille-gaine	13
I.2 Les gaines et tôles en alliages de zirconium	13
I.2.1 Généralités sur le zirconium et ses alliages	13
I.2.2 Comportement mécanique	19
I.2.3 Influence de l'irradiation	23
I.2.4 Modélisation du comportement mécanique	27
I.3 La Corrosion sous Contrainte par l'Iode	28
I.3.1 Rupture lors de l'IPG et CSC-I	28
I.3.2 Etudes en laboratoire	30
I.4 Facteurs influençant la CSC-I	33
I.4.1 Paramètres environnementaux	33
I.4.2 Paramètres mécaniques	37
I.4.3 Paramètres matériaux et microstructuraux	42
I.5 Modélisation de la CSC-I	49
I.5.1 Modèle de l'EPRI (Miller 1981)	49
I.5.2 Modèle de Besson-Bugat (Besson 2006)	50
I.5.3 Modèle Kachanov-EPRI du CEA (Le Boulch 2008)	50
I.5.4 Modèle de Diard-Musienko-Cailletaud	51
I.5.5 Bilan et autres approches	52
I.6 Bilan et démarche de l'étude	53
Chapitre II : Matériau et procédures expérimentales	55
Introduction	55
II.1 Matériau de l'étude	55
II.1.1 Forme et composition	55
II.1.2 Microstructure et texture cristallographique	57
II.1.3 Essais de microdureté	57
II.2 Essais de caractérisation mécanique et de CSC-I	59
II.2.1 Essais de traction à l'air	59
II.2.2 Essais de traction en milieu méthanol iodé	61
II.2.3 Essais de fluage en flexion 4 points en méthanol iodé	67
II.3 Essais complémentaires et autres techniques expérimentales	67
Chapitre III : Comportement mécanique du matériau et simulation numérique	79

Introduction.....	79
III.1 Caractérisation du comportement mécanique du matériau	79
III.1.1 Eprouvettes lisses	79
III.1.2 Eprouvettes entaillées	83
III.2 Identification du modèle.....	85
III.2.1 Formalisme du modèle	85
III.2.2 Simplifications et premières identifications	87
III.2.3 Optimisation	88
III.2.4 Accord du modèle avec d'autres essais de caractérisation.....	91
III.3 Calcul des champs mécaniques lors des essais de CSC-I de l'étude	95
III.3.1 Essais de traction et de fluage sur éprouvettes entaillées	95
III.3.2 Flexion 4 points	99
III.3.3 Flexion 3 points	101
III.3.4 Eprouvettes irradiées.....	101
III.3.5 Godets à avalement total.....	104
III.3.6 Godets à avalement partiel.....	117
III.3.7 Commentaires sur les simulations effectuées.....	120
III.4 Discussion	123
III.4.1 Résultats expérimentaux.....	123
III.4.2 Représentativité physique du modèle	131
III.5 Conclusions.....	141
Chapitre IV : Essais de corrosion sous contrainte par l'iode	145
Introduction.....	145
IV.1 Essais de CSC-I à vitesse de déformation imposée	147
IV.1.1 Eprouvettes lisses	147
IV.1.2 Eprouvettes entaillées	161
IV.1.3 Etablissement d'un modèle phénoménologique d'amorçage.....	176
IV.1.4 Eprouvettes lisses irradiées aux protons.....	180
IV.1.5 Conclusions	189
IV.2 Essais de CSC-I sans déformation plastique active	191
IV.2.1 Essais de fluage en flexion 4 points.....	191
IV.2.2 Essais de fluage en traction à faible contrainte et forte concentration.....	202
IV.2.3 Immersion de godet	211
IV.2.4 Conclusions	226
Chapitre V : Analyse des résultats et essais complémentaires.....	229
Introduction.....	229
V.1 Analyse des résultats	229
V.1.1 Synthèse de la démarche adoptée.....	229
V.1.2 Analyse et comparaison des résultats avec la bibliographie.....	231

V.2 Expériences complémentaires	253
V.2.1 Observations expérimentales et motivation.....	253
V.2.2 Immersion d'éprouvettes sans contrainte appliquée.....	254
V.2.3 Etude par SIMS de la présence d'iode dans des échantillons fragilisés.....	266
V.2.4 Etude de la mobilité de l'iode implanté par SIMS.....	273
V.2.5 Godets particuliers	275
V.2.6 Bilan des essais complémentaires.....	277
V.3 Limites de l'approche à l'étude des mécanismes.....	278
V.3.1 Observations du dommage de CSC-I	278
V.3.2 Déformation inhomogène des alliages de zirconium.....	280
V.3.3 Conclusions	282
Conclusions	283
Perspectives	287
Références	289

Introduction

Contexte

Les alliages de zirconium sont utilisés dans l'industrie nucléaire du fait de leur transparence aux neutrons, de leur bonne tenue mécanique et de leur résistance à la corrosion. Ils servent notamment de matériau de gainage aux crayons combustibles dans les réacteurs à eau pressurisée (REP) et constituent donc la première barrière de confinement du combustible et des produits de fission radioactifs. Leur intégrité est essentielle, aussi bien en régime nominal qu'accidentel. Après un à deux cycles REP, le jeu initial entre pastille et gaine est comblé et l'Interaction Pastille-Gaine (IPG) s'établit. Au cours de l'IPG, les pastilles d'oxydes d'uranium viennent solliciter la paroi interne de la gaine en y imposant leur déformation. Lors de transitoires de puissance incidentels, la dilatation rapide de la pastille et le relâchement de produits de fission corrosifs peuvent mener à la rupture de la gaine par un mécanisme identifié comme étant de la Corrosion Sous Contrainte induite par l'Iode (CSC-I). En service en REP, les bornes imposées sur les transitoires de puissance nominaux permettent de s'affranchir du risque de telles ruptures. Cependant, elles rendent le pilotage des réacteurs moins souple, notamment en France où la forte part du nucléaire dans la production électrique implique un mode de fonctionnement en suivi de réseau.

Pour prévenir ces ruptures, de nombreux modèles de CSC-I ont été développés, la plupart couplés à une modélisation du comportement mécanique de la gaine. Ces modèles sont alimentés par différents types d'essais. Les plus représentatifs consistent en des rampes de puissance réalisées dans des réacteurs expérimentaux sur portions de crayons combustibles irradiés. Dans un but de compréhension et de modélisation des phénomènes mis en jeu des essais analytiques sont également utilisés. Les plus courants sont des essais de fluage en pression interne de tubes de gainage (irradiés ou non, pré-fissurés ou non) en température avec présence d'iode en phase vapeur. Ces essais offrent une large base d'identification pour les modèles, mais n'ont pas permis d'identifier avec certitude les mécanismes impliqués dans la rupture. Ce flou qui subsiste dans la connaissance des mécanismes de CSC-I limite le développement des modèles de CSC-I presque exclusivement phénoménologiques et leur capacité de prédiction.

Objectif et démarche

Dans ce contexte, l'objectif de cette étude est d'étudier l'influence de différents paramètres mécaniques sur l'amorçage de fissures de CSC-I sur des éprouvettes de Zircaloy-4 recristallisé, en milieu méthanol iodé à température ambiante. Cet environnement permet de retrouver une même phénoménologie de fissuration qu'en iode vapeur tout en offrant des conditions expérimentales facilitées. Toutefois, comme ce milieu est moins étudié que l'iode vapeur à haute température, l'influence de la concentration en iode sur la sensibilité à la CSC-I doit être étudiée afin d'identifier les points communs et différences entre les deux milieux.

Pour répondre à ces objectifs, une démarche associant la réalisation d'essais de CSC-I à leur simulation numérique par éléments finis a été adoptée. Des essais de traction uniaxiale à vitesse de déformation imposée ont permis d'évaluer l'influence de la déformation, de la vitesse de déformation, de l'orientation des éprouvettes et de la concentration en iode sur

l'apparition de la première fissure de CSC-I. Des essais de flexion quatre points ont complété cette analyse initiale en permettant de définir les contraintes seuils nécessaires à l'endommagement par CSC-I. La simulation numérique a été utilisée afin de découpler les effets de contraintes de ceux de la plasticité. L'effet de l'état de contrainte a été étudié par la réalisation d'essais de CSC-I sur éprouvettes entaillées. Les champs mécaniques étant fortement non-uniformes sur de tels échantillons, la simulation de ces essais était essentielle à leur exploitation. L'utilisation d'échantillons emboutis a permis de déterminer de nombreuses caractéristiques de l'amorçage et de la propagation des fissures de CSC-I sur des longues distances. Suivant une approche issue de la thèse d'Aurélié Serres, l'influence de l'irradiation sur la sensibilité à la CSC-I a été étudiée avec des éprouvettes irradiées aux protons. La sensibilité accrue du matériau irradié à la CSC-I a été quantifiée.

Les résultats issus de l'exploitation des différentes techniques expérimentales mises en œuvre dans le cadre de cette étude ont été comparés pour mettre en évidence les domaines d'influence des différents paramètres sur la sensibilité du matériau à la CSC-I. De plus, des essais complémentaires ont été alors réalisés pour essayer de discriminer les différents mécanismes possibles parmi ceux proposés dans la littérature.

Organisation du manuscrit

Ce manuscrit est divisé en cinq chapitres. Le premier consiste en une synthèse bibliographique sur le comportement mécanique des alliages de zirconium et leur sensibilité à la CSC-I, ainsi que les modélisations associées.

Le Chapitre II présente le matériau de l'étude, les différentes techniques expérimentales utilisées ainsi que les méthodes d'exploitation des résultats.

Le Chapitre III aborde le comportement mécanique de l'alliage utilisé, sa modélisation et la simulation numérique des différents essais de CSC-I de l'étude. A partir de différents essais de caractérisation mécanique, uni- ou bi-axiaux, et d'un formalisme général, un modèle de comportement viscoplastique et anisotrope est identifié et confronté aux expériences.

Le Chapitre IV regroupe l'ensemble des résultats de CSC-I. Les essais réalisés y sont décrits, et les résultats progressivement analysés. La première partie de ce chapitre est consacrée aux essais présentant de la plasticité active. A partir des essais de traction sur éprouvettes lisses et entaillées, un modèle phénoménologique d'amorçage est proposé. Les résultats sur matériau irradié y sont également présentés. La deuxième partie de ce chapitre traite des essais sans plasticité active. L'influence de la contrainte et celle de l'état de contrainte sont étudiées en l'absence de déformation plastique par des essais de flexion quatre points ou de fluage en traction à faible contrainte. L'amorçage et la propagation de fissures de CSC-I sur des pièces embouties ont été observés et analysés à l'aide des simulations numériques associées.

Le Chapitre V synthétise les résultats obtenus et les effets des différents paramètres mécaniques sur la sensibilité à la CSC-I du zircaloy-4, en les découplant dans la mesure du possible. Les résultats obtenus sont comparés aux données de la bibliographie. Les essais complémentaires d'immersion d'éprouvettes non contraintes (pré-oxydées ou non) et d'implantation d'iode sont également décrits dans ce chapitre pour l'analyse des mécanismes.

Une conclusion générale rappelle les points importants de cette étude et propose différentes perspectives susceptibles d'améliorer les connaissances sur la CSC-I.

Chapitre I : Bibliographie

Introduction

Ce chapitre est consacré à l'étude bibliographique de la corrosion sous contrainte par l'iode (CSC-I) des alliages de zirconium. Il est construit de manière à fournir un état de l'art pour ce qui concerne les différentes composantes impliquées dans cette problématique et finalement, dans le but de préciser les différents objectifs poursuivis dans les chapitres suivants.

Après un bref aperçu du contexte industriel de l'étude, les alliages de zirconium sont présentés. Leurs principales propriétés physiques sont rappelées. Les paramètres liés au matériau pouvant avoir un impact sur la CSC-I sont détaillés, à savoir la microstructure, les modes de déformation et le comportement mécanique macroscopique. Les effets de l'irradiation, inévitable en réacteur, engendrent des spécificités qui sont également rappelées. Une présentation des différentes méthodes de modélisation du comportement mécanique est également proposée.

Le mode de rupture par interaction pastille-gaine (IPG) et la focalisation vers un phénomène de CSC-I sont ensuite décrits. Les méthodes d'étude de la CSC-I, sa phénoménologie et les différents mécanismes proposés pour l'expliquer sont alors recensés.

Les influences de différents paramètres environnementaux, mécaniques et microstructuraux sont exposées et comparées selon les études. Les domaines d'action de ces paramètres sont précisés. Cette analyse permet de mettre en évidence les points encore sujets à discussion ainsi que le manque de données en milieu méthanol iodé. Plusieurs modèles d'endommagement par CSC-I sont rappelés, illustrant les différentes approches et les incertitudes pour ce qui concerne la pertinence des mécanismes envisagés. La démarche générale de l'étude est proposée à partir de cette synthèse de connaissances.

I.1 Contexte de l'étude

I.1.1 Contexte industriel

Les alliages de zirconium sont utilisés dans l'industrie nucléaire comme matériau de gainage du combustible dans plusieurs types de centrales dont les Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) installés en France. Le choix du zirconium est fondé sur la conjonction de plusieurs propriétés : bonne résistance mécanique, très bonne résistance à la corrosion par l'eau à haute température et faible section d'absorption neutronique. Dans les REP, le combustible (UO_2 ou MOX - Mixed Oxide) est utilisé sous forme de pastilles de 8.2 mm de diamètre et 13.5 mm de hauteur, empilées dans une gaine en alliage de zirconium (diamètre extérieur 9.50 mm, épaisseur 0.57 mm) sur une hauteur de 4 m : c'est le crayon combustible.

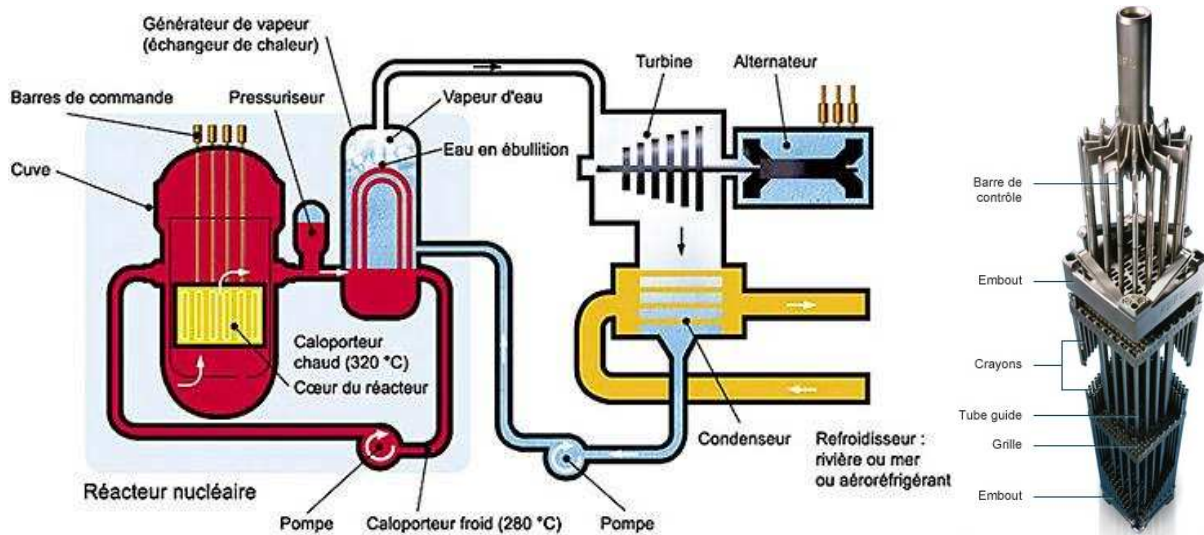


Figure I.1 : Schéma de principe d'un réacteur à eau sous pression (gauche) et assemblage combustible et grappe de contrôle de REP (droite).

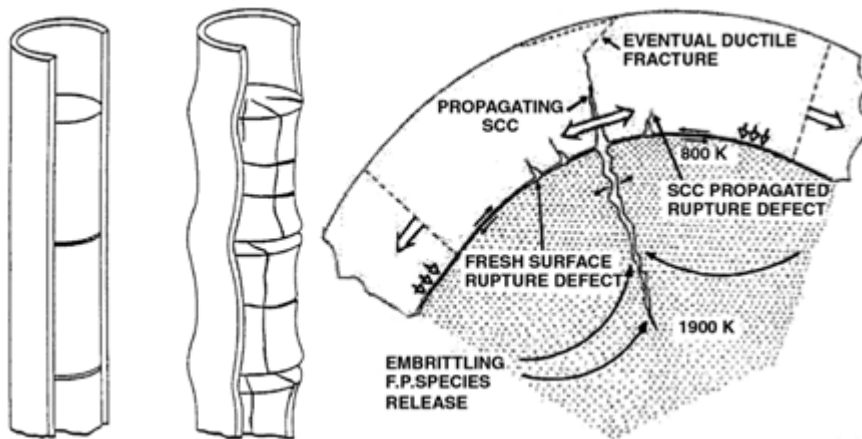


Figure I.2 : Illustration de l'IPG et des ruptures induites. Gonflement, mise en diabolo et fissuration radiale de la pastille qui vient imposer sa déformation à la gaine (gauche, tiré de (Jacques 1994)). Schématisation de la rupture et des paramètres influents (droite, tiré de (Adamson 2006)).

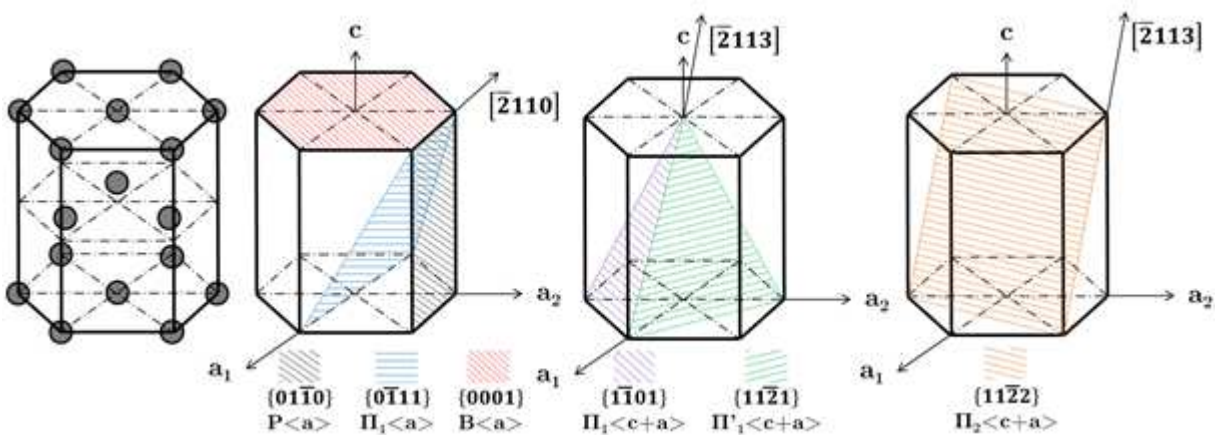


Figure I.3 : Maille HCP du Zr- α avec position des atomes (gauche) et systèmes de glissement susceptibles d'être activés d'après (Tenckhoff 2005) et (Linga Murty 2006). Les notations seront précisées dans la suite.

Les crayons sont regroupés dans le cœur de la centrale dans des assemblages de 17x17 crayons dont 24 tubes guides assurant la stabilité dimensionnelle de l'assemblage et 1 tube d'instrumentation central (Figure I.1). Les crayons combustibles sont insérés dans les grilles de mélange et maintenus par des ressorts en Alliage 718. Dans les REP 1300 MW, le cœur est composé de 193 assemblages, pour une masse totale de combustible de 102 tonnes. Le fluide caloporteur est de l'eau (légère) sous pression (150 bar) à une température comprise entre 280 et 320 °C. Au cours de sa vie en réacteur, la gaine est soumise à des sollicitations importantes, thermomécaniques (fluage, interaction pastille-gaine), chimiques (oxydation, hydruration, exposition aux produits de fission) et neutroniques.

I.1.2 Rupture de gaine par interaction pastille-gaine

Au bout d'un cycle ou deux cycles en réacteur (taux de combustion de 10 – 20 GWj/tU), le jeu initial entre pastille et gaine se ferme du fait du gonflement de la pastille (dilatation thermique et présence de gaz de fission) et du fluage de la gaine (thermique et d'irradiation) sous l'effet de la différence de pression entre l'intérieur et l'extérieur. Le contact s'établit ; on parle alors d'interaction pastille-gaine (IPG). La faible conductivité thermique de la pastille génère de forts gradients thermiques qui conduisent à une évolution de sa forme, initialement cylindrique, et qui devient alternativement en diabolo ou en tonneau suivant le régime de fonctionnement. La forme en diabolo et les fissures radiales qui l'accompagnent sont principalement mises en cause dans les processus d'amorçage et de propagation de fissures radiales dans la gaine (Figure I.2). Cette mise en diabolo conduit à une concentration de contraintes sur la gaine qui voit sa déformation imposée par la pastille. On observe ainsi des plis sur les gaines en réacteur. Les fissures radiales de la pastille sont autant de lieux de relâchement des produits de fission potentiellement corrosifs. Ces fissures radiales sollicitent la gaine de façon circonférentielle du fait du fort frottement à l'interface. En fonctionnement nominal, l'IPG ne mène pas à des ruptures de crayons. Les ruptures peuvent se produire lors de transitoires de puissance incidentels pour lesquels la pastille se dilate sensiblement et les produits de fission sont relâchés en abondance. Les fissures s'amorcent en paroi interne en regard d'une fissure radiale de la pastille (Figure I.2). Ces ruptures fragiles ont très vite été associées à un phénomène de corrosion sous contrainte par un produit de fission (Cox 1990a). L'iode a été identifié comme le produit de fission responsable au premier ordre de cet endommagement pour des raisons qui seront en partie évoquées dans le paragraphe I.3.1. Mais d'autres contributions demeurent envisageables.

I.2 Les gaines et tôles en alliages de zirconium

La corrosion sous contrainte est, par définition, un mode d'endommagement résultant de l'action conjuguée d'une sollicitation mécanique et d'un milieu agressif pour le matériau. La connaissance de la microstructure du matériau en relation avec son histoire de fabrication, comme celle de son comportement mécanique en service, est essentielle pour identifier les paramètres critiques de la CSC-I.

I.2.1 Généralités sur le zirconium et ses alliages

Le zirconium est l'élément de numéro atomique 40, de masse atomique 91.22 ; c'est un métal de transition IV A dans la classification de Mendeleiev. Sa section de capture neutronique est de 0.185 barn, 20 fois moins que le fer. Non allié, il présente une résistance mécanique assez faible (~300 MPa).

Tableau I.1 : Différents alliages de Zirconium utilisés dans l'industrie nucléaire

Alliages	Pourcentage massique typique						Application
	Sn	Nb	Fe	Cr	Ni	O	
Zy-2 ⁽¹⁾	1.45	-	0.14	0.1	0.05	<0.18	BWR, CANDU
Zy-4 ⁽¹⁾	1.45	-	0.21	0.1	-	<0.18	BWR, PWR, CANDU
Zr-2.5%Nb ⁽²⁾	-	2.5	-	-	<0.1	<0.16	CANDU
E110 ⁽³⁾	-	1	-	0.009	-	<0.10	RBMK
E110K ⁽³⁾	-	1	-	0.009	-	0.12-0.16	RBMK
E635 ⁽³⁾	1.2	1	0.35	-	-	0.085	RBMK
M5 ⁽³⁾	-	1	0.038	-	-	0.11	PWR
Zirlo ⁽³⁾	1.05	1.02	0.1	-	-	0.12	PWR

(1) Norme ASTM 704

(2) Norme ASTM 705

(3) D'après (Nikulina 2003)

Tableau I.2 : Systèmes de glissement de α -Zr, illustrés sur la Figure I.3.

Dénomination	Famille de plan de glissement	Direction de glissement	Nombre de systèmes
P<a>	{10 $\bar{1}$ 0}	1/3<11 $\bar{2}$ 0>	3
Π_1 <a>	{10 $\bar{1}$ 1}	1/3<11 $\bar{2}$ 0>	6
B<a>	(0001)	1/3<11 $\bar{2}$ 0>	3
Π_1 <c+a>	{10 $\bar{1}$ 1}	1/3<11 $\bar{2}$ 3>	12
Π_2 <c+a>	{11 $\bar{2}$ 2}	1/3<11 $\bar{2}$ 3>	6

I.2.1.1 Le cristal de zirconium

En dessous de 865 °C (transus α/β), le cristal de zirconium est dans sa phase α , avec une maille élémentaire hexagonale compacte (HCP) (Figure I.3). Au-delà, il subit une transformation à l'état solide vers la phase β , cubique centrée, stable jusqu'à fusion ($T_f = 1850^\circ\text{C}$) (Béchade 2010). Les paramètres de maille de la phase α à 25°C sont $a = 3.2312 \text{ \AA}$ et $c = 5.1477 \text{ \AA}$ pour un rapport c/a de $1.593 < (8/3)^{1/2}$, valeur pour un empilement idéal de sphères solides. Cela signifie que la maille HCP est raccourcie selon l'axe <c> et que les plans prismatiques sont les plus denses.

En cristallographie, les notations de Miller sont utilisées pour repérer des plans (hkl) et des directions atomiques [uvw]. Pour les mailles cubiques, les diagonales du réseau de Bravais sont équivalentes ; on peut permuter les indices ou prendre les opposés, cela représentera toujours un plan ou une direction équivalente. Les familles de directions ou de plans équivalents sont notées <uvw> et {hkl} respectivement. Dans la maille hexagonale, ce n'est plus le cas : un quatrième indice (en troisième position) $i = -h - k$ est introduit pour pouvoir appliquer les permutations circulaires permettant de définir les familles de plans {hkil} et de directions <uvwx>. Ainsi {10 $\bar{1}$ 0} désigne la famille de plans prismatiques et la famille de directions <a> est 1/3<11 $\bar{2}$ 0>.

I.2.1.2 Composition des alliages de zirconium

Les alliages de zirconium pour le nucléaire se répartissent principalement dans deux grandes catégories selon l'élément principal d'alliage : l'étain (famille des Zircalloys) et le niobium. Les compositions moyennes des alliages normalisés et d'autres alliages de la littérature ainsi

que les types de réacteur dans lesquels les alliages sont utilisés, sont précisés dans le Tableau I.1 avec PWR pour (Pressurized Water Reactor), BWR pour (*Boiling Water Reactor*), CANDU pour (*CANada Deuterium Uranium*) et RBMK pour (*Reaktor Bolshoy Moshchnosti Kanalnyi*, modéré au graphite).

Lemaignan a rappelé les principaux effets des éléments d'alliages (Lemaignan 2004). L'oxygène, en insertion dans la matrice, est un élément durcissant. L'étain, en position substitutionnelle dans la matrice, améliore la résistance mécanique et la résistance à la corrosion mais la tendance est à la réduction de sa teneur du fait d'un meilleur contrôle de la teneur en azote (agent délétère dont il contrebalance les effets). Le fer, le chrome et le nickel, forment des précipités intra et inter-granulaires d'environ 200 nm. Ils améliorent la tenue à la corrosion, mais le nickel a été abandonné dans le Zircaloy-2 (Zy-2) et dans le Zircaloy-4 (Zy-4) pour réduire la prise d'hydrogène lors de la corrosion. Le niobium, toujours soluble en phase Zr- β , permet un meilleur contrôle de la transformation β - α . Il présente de bonnes propriétés pour la corrosion mais également pour la croissance libre du matériau sous irradiation.

I.2.1.3 Etat métallurgique

La fin du processus de fabrication des gaines en alliages de zirconium consiste en 3 passes successives de laminage à froid par pas de pèlerin (réduction du diamètre et de l'épaisseur) entrecoupées de traitements thermiques permettant la restauration des contraintes internes et une bonne distribution des précipités. L'épaisseur du tube est réduite au final de 80%. Le processus est comparable pour les plaques. Dans les deux cas, les grains sont alors très fortement allongés dans la direction de laminage.

L'état métallurgique du produit est défini par l'ultime traitement thermique après ces passes. L'état détendu est obtenu pour un traitement final vers 475 °C pendant quelques heures : cette température est suffisante pour une restauration partielle de l'écrouissage du matériau mais sans recristallisation. Les grains conservent leur forme allongée (ils mesurent entre 10 et 20 μm dans la direction de laminage (z) et 2-5 μm dans les autres directions) et la résistance mécanique du matériau est élevée. Pour des traitements thermiques au-delà de 550 °C, le matériau recristallise. On obtient alors des grains équiaxes qui mesurent entre 5 et 10 μm et qui ont une très faible densité de dislocations. L'état recristallisé présente typiquement une moins bonne tenue au fluage que l'état détendu.

I.2.1.4 Systèmes de déformation

Les systèmes de déformation activés dépendent de la structure cristallographique et des cisssions résolues dans les plans et directions considérés. On ne s'intéressera ici qu'au cas de la phase α . Dans cette phase, la déformation est possible par deux mécanismes, le glissement et le maclage. Les différents systèmes de glissement sont rappelés dans le Tableau I.2.

Le glissement prismatique $P\langle a \rangle$ est le système de déformation principal de cette phase, que ce soit pour le cristal de zirconium ou ses alliages, pour une température inférieure à 500°C (Sokurskii 1958; Akhtar 1971; Akhtar 1973; Regnard 1995; Geyer 1999; Tenckhoff 2005). Cela semble être vrai pour toutes les directions de sollicitations (Francillette 1997; Geyer 1999).

Les glissements secondaires observés permettent également d'accommoder la déformation selon la direction $\langle a \rangle$. Le glissement pyramidal $\Pi_1\langle a \rangle$ est le premier glissement secondaire activé. Il est présent notamment dans des zones de fortes concentrations de contrainte comme les joints de grains (Regnard 1995).

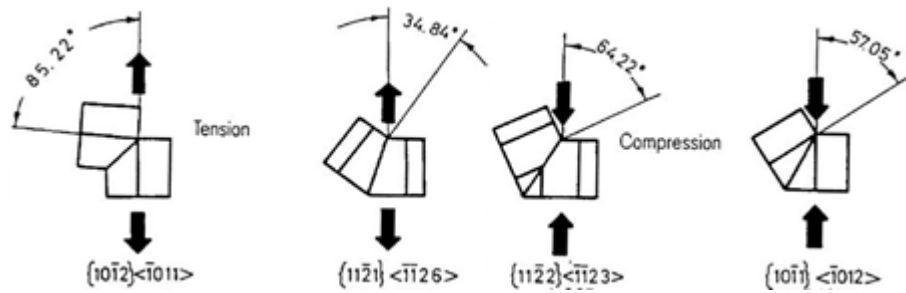


Figure I.4 : Systèmes de maillage du zirconium pour une sollicitation selon l'axe $\langle c \rangle$ de traction (gauche) ou de compression (droite) (Tenckhoff 2005).

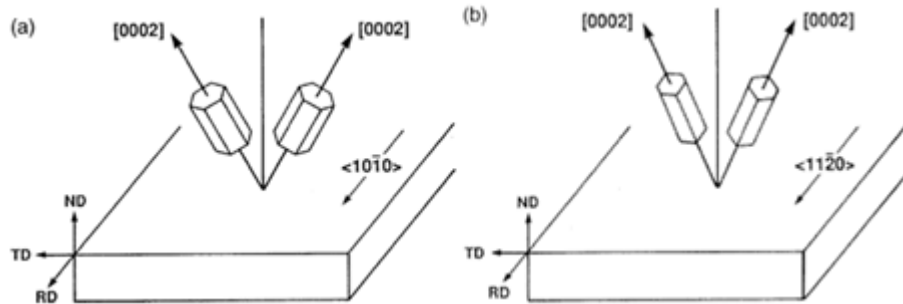


Figure I.5 : Illustration de l'orientation moyenne des mailles hexagonales dans des plaques laminées à froid : texture d'un matériau détendu (a) et recristallisé (b) (Linga Murty 2006).

La présence de glissement basal $B\langle a \rangle$ n'est pas observée dans toutes les études et quand elle est avérée, la proportion de grains présentant un tel glissement est faible. Sokurskii ne l'a pas observé dans un monocristal de Zr déformé à température ambiante (Sokurskii 1958), tout comme Régnard pour un Zircaloy-4 sollicité en traction circonférentielle à 350°C (Régnard 1995). Dans les mêmes conditions, ce système a été mis en évidence par Geyer (Geyer 1999). Francillette l'a observé lors d'essais de compression plane sur Zr702 avec les axes $\langle c \rangle$ orientés dans la direction d'écoulement de la matière (Francillette 1997).

Le seul système de glissement observé permettant une accommodation de la déformation selon l'axe $\langle c \rangle$ est le glissement $\Pi_1\langle c+a \rangle$. La contribution de ce système à la déformation est marginale lorsque la direction $\langle c \rangle$ n'est que peu sollicitée. L'activation de ce système est renforcée aux fortes déformations. Dans le cas du Zircaloy-4 recristallisé, à 350°C, Régnard l'observe pour des déformations comprises entre 7 et 10% (Régnard 1995), tandis que Geyer l'a constaté à température ambiante pour des déformations supérieures à 1% (Geyer 1999). Lors du laminage à froid d'une tôle de zirconium (direction L), Tenckhoff observe l'apparition de ce système entre 20 et 40% de déformation (Tenckhoff 2005).

Au cours de son étude avec laminage à froid, Tenckhoff a observé que la majorité de la déformation selon l'axe $\langle c \rangle$ est assurée par maillage à température ambiante. Pour de faibles déformations en compression (0.5%), les systèmes de maillage sont déjà activés, même si le glissement prismatique reste majoritaire. Le maillage est responsable de la formation de la texture cristallographique car il engendre de très grandes rotations du cristal vers la direction de sollicitation compressive. Le type de maillage activé dépend de l'orientation des grains par rapport à la contrainte appliquée. Trois systèmes ont été observés. Sokurskii en a dénombré 4 lors d'essais d'écrasement d'un polycristal de zirconium (Sokurskii 1958). Ils sont notamment illustrés sur la Figure I.4. Pour des essais de traction sur tube, Geyer n'a observé la présence de macles, système $[10\bar{1}2] \langle \bar{1}011 \rangle$, que pour la direction circonférentielle à température ambiante (absence dans la direction axiale et équibiaxée) (Geyer 1999).

I.2.1.5 Texture cristallographique

La texture cristallographique désigne une distribution non isotrope des orientations des grains constituant les polycristaux dans un repère lié au produit (tôle, barre). Tenckhoff rappelle que la texture classique des alliages de zirconium dans l'industrie nucléaire correspond à une distribution des pôles correspondant au plan de base majoritairement orientés dans le plan radial-circonférentiel ($r\vartheta$) du tube (normal-transverse, NT, pour les plaques) avec un angle moyen entre les axes $\langle c \rangle$ et la direction radiale compris entre 20° et 40° (Tenckhoff 2005). Il précise également le mécanisme général de formation de la texture, à savoir l'alignement des pôles de base avec la direction principale des contraintes de compression. Lors de la mise en forme des tubes, la section des tubes est réduite par une combinaison de réductions de diamètre R_D et d'épaisseur R_W . Les types de procédés de laminage à froid sont responsables de cette texture : avec $R_W/R_D > 1$, les contraintes compressives sont principalement radiales et dans une moindre mesure circonférentielles. Dans le cas des tôles laminées, l'état de contrainte est caractérisé par une forte compression normale et une légère compression transverse (état de déformation plane) d'où un développement de texture similaire à $R_w/R_d > 1$. Il ajoute de plus que les pôles prismatiques associés aux directions de type $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ ont tendance à s'aligner avec les directions d'élongation.

Pendant un traitement de recristallisation, les plans basaux tournent autour de leur pôle de 30° environ de telle sorte que la direction $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ tend à s'aligner avec la direction d'élongation. Les textures typiques des produits finis détendus et recristallisés sont représentées sur la Figure I.5.

Malgré les fortes déformations qu'il peut engendrer, le glissement prismatique $P\langle a \rangle$ n'induit pas de rotation des cristallites. Les systèmes de maclages $\{11\bar{2}2\}\langle 11\bar{3}3 \rangle$ et $\{10\bar{1}2\}\langle \bar{1}011 \rangle$ sont responsables de la redistribution des pôles correspondant aux plans de base pendant le laminage vers la direction normale (Tenckhoff 2005). L'activation du glissement $\Pi_1\langle c+a \rangle$ à forte déformation serait responsable de la stabilisation de la texture à un angle compris entre 20 et 40° .

Pour caractériser de manière simplifiée la texture, on utilise couramment les facteurs de Kearns, définis comme la fraction effective de grains dont les pôles des plans basaux sont alignés avec une direction donnée. Les triplets correspondant aux directions des produits ((r, ϑ, z) ou (N, T, L)) sont souvent mentionnés. Ils ne se substituent pas aux figures de pôles, mais la distribution des axes $\langle c \rangle$ est le paramètre principal des propriétés mécaniques. La valeur du facteur de Kearns dans la direction radiale (ou normale) est de 0.50 à 0.70 pour les textures classiques.

La présence d'une texture cristallographique implique notamment des différences d'activation des systèmes de glissement avec la direction de sollicitation. Geyer a étudié la nature des modes de déformations plastiques sur des tubes de Zircaloy-4 recristallisés à 20°C et 350°C lors d'essais de traction axiale, circonférentielle ou équi-biaxée (Geyer 1999). Ses résultats sont résumés sur la Figure I.6. Trois matériaux très proches ont été utilisés ; les facteurs de Kearns du matériau le plus utilisé sont $(f_r, f_\vartheta, f_z) = (0.54, 0.35, 0.11)$. Comme indiqué précédemment, le glissement prismatique $P\langle a \rangle$ est le principal système activé, pour toutes les températures, directions et déformations. A température ambiante, c'est le seul système activé pour la direction axiale (z) et la direction circonférentielle (ϑ) à 0.2% de déformation plastique. A 1% , c'est encore le cas pour z , mais plus pour ϑ où du glissement pyramidal $\Pi_1\langle c+a \rangle$ et du maclage ont été activés. Au-delà, le glissement $\Pi_1\langle a \rangle$ devient le glissement secondaire principal dans les deux directions. Le glissement basal $B\langle a \rangle$ est plus

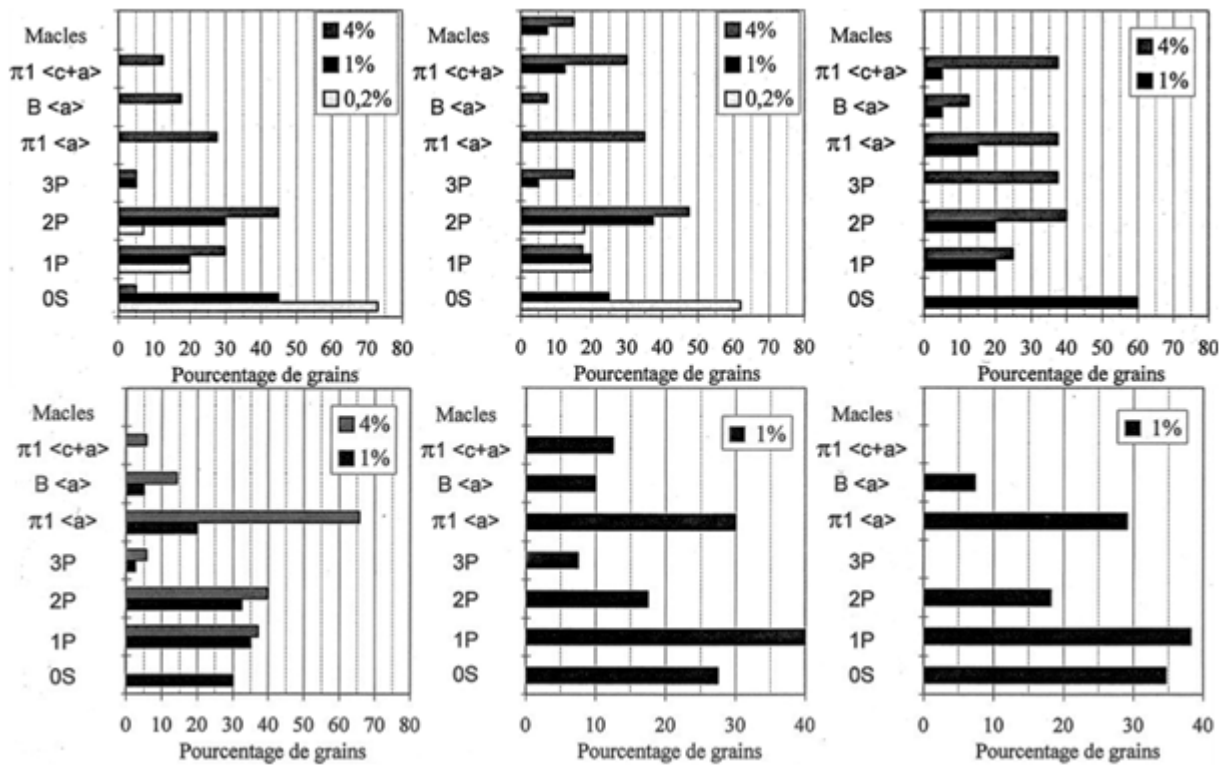


Figure I.6 : Systèmes de déformations activés après écouissage à vitesse de déformation imposée, à différentes déformations plastiques équivalentes, à 20 °C (haut) et 350 °C (bas), pour des sollicitations dans la direction axiale (gauche), circonférentielle (milieu) et équi biaxée (droite). 40 à 50 grains sont échantillonnés, 0S désigne des grains ne présentant pas de système activé (Geyer 1999).

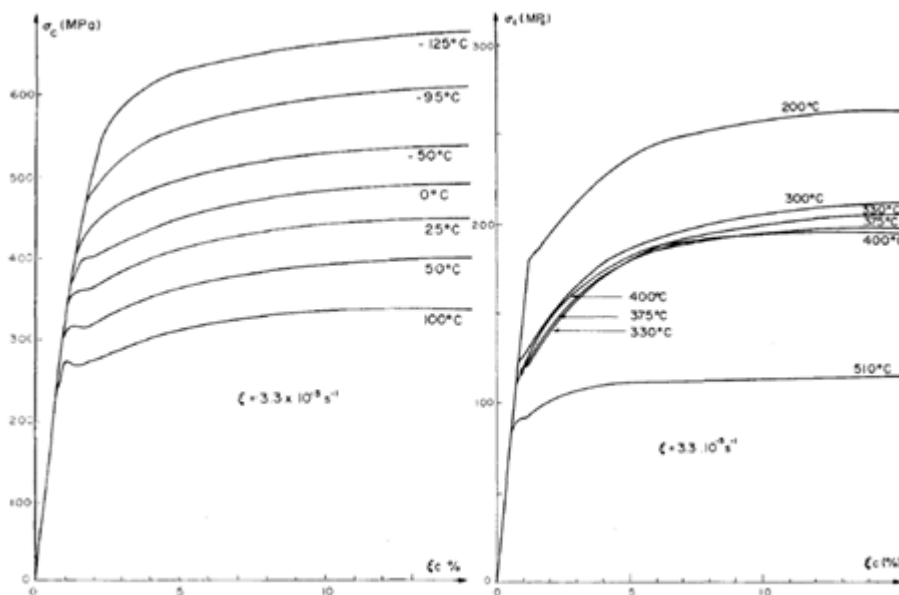


Figure I.7 : Courbes contrainte-déformation d'une tôle de Zircaloy-4 recristallisé sollicitée dans la direction de laminage, entre -125 °C et 510 °C (Derep 1979) : évolution de la limite d'élasticité et de l'écrouissage. Mise en évidence d'un plateau athermique entre 300 et 400 °C.

Tableau I.3 : Comparaison des limites d'élasticité à 0.2% de tôles de Zircaloy-4, détendu (SR) et recristallisé (RX), en fonction de la température, pour une vitesse de déformation de $2.5 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$, d'après (Elbachiri 2003).

T (°C)	SR			RX			$\Delta_{\text{SR-RX}}$	
	T	L	$\Delta_{\text{T-L}}$	T	L	$\Delta_{\text{T-L}}$	T	L
20	795	672	15%	535	339	37%	33%	50%
100	699	593	15%	474	310	35%	32%	48%
200	585	510	13%	328	212	35%	44%	58%
300	510	461	10%	218	144	34%	57%	69%
350	449	444	1%	207	130	37%	54%	71%
400	391	406	-4%	197	124	37%	50%	69%
500	213	213	0%	169	75	56%	21%	65%

activé pour z que ϑ , mais $\Pi_1\langle c+a \rangle$ et $\Pi_1\langle a \rangle$ le sont plus pour ϑ . On n'observe pas de macles pour z . Dans le cas d'une sollicitation équibiaxée, tous les systèmes de glissement sont susceptibles d'être activés dès 1%. Cependant, à ce niveau de déformation, on remarque que 60% des grains ne présentent pas de plasticité. A 4%, l'ensemble des grains a au moins un système activé. On note l'absence de macles, ainsi qu'une présence plus importante du système $\Pi_1\langle c+a \rangle$ par rapport aux sollicitations uniaxiales. La multiplicité des systèmes activés apparait également renforcée.

I.2.2 Comportement mécanique

I.2.2.1 Elasticité

L'élasticité macroscopique des alliages de zirconium est généralement considérée comme isotrope. Northwood a déterminé les valeurs des modules d'élasticité de différents alliages de zirconium et calculé les effets de texture (entre $\langle c \rangle$ et $\langle a \rangle$) sur l'élasticité à partir de données sur un monocristal de α -Zr (Northwood 1975). A température ambiante, les valeurs moyennes du module d'Young et du coefficient de Poisson mesurées sont respectivement $E = 94.9 \pm 1 \text{ GPa}$ et $\nu = 0.385 \pm 0.08$. Les calculs de Northwood sur le monocristal ont montré cependant de grands écarts selon l'angle entre la direction cristallographique considérée et l'axe $\langle c \rangle$: $E_{[0001]} = 125 \text{ GPa}$, $E_{[10-11]} = 97.5 \text{ GPa}$, et un minimum de 88.2 GPa , à 52° de l'axe $\langle c \rangle$.

Pan a étudié l'anisotropie du module d'Young d'une plaque de Zircaloy-4 détendu dans le plan Long-Travers, entre 0 et 400 °C (Pan 2010). Un écart de moins de 5% est observé sur les valeurs. A température ambiante, $E_T = 97.3 \text{ GPa}$ et $E_L = 96.1 \text{ GPa}$. Cela justifie en partie l'utilisation d'un module d'Young isotrope pour des sollicitations mécaniques principalement comprises dans le plan axial-circonférentiel (long-travers).

I.2.2.2 Plasticité

La texture cristallographique et le nombre limité de systèmes de déformation activés se traduit par une anisotropie des propriétés en plasticité.

Les limites d'élasticité des directions transverse (ou circonférentielle) (T et ϑ) sont plus importantes que pour la direction de laminage (ou axiale) (L et z), du fait de la texture des matériaux ((Grange 2000), (Elbachiri 2003),(Allais 1996)). L'état recristallisé, beaucoup moins écroui que le détendu, présente des limites d'élasticité plus faibles de 30% à 60% (Tableau I.3), dans les deux directions (Schuster 1992) (Jones 1980) (Elbachiri 2003). La Figure I.7 présente des essais de traction, réalisés à vitesse de déformation imposée, pour différentes valeurs de températures comprises entre -125°C et 500°C . Ces essais donnent

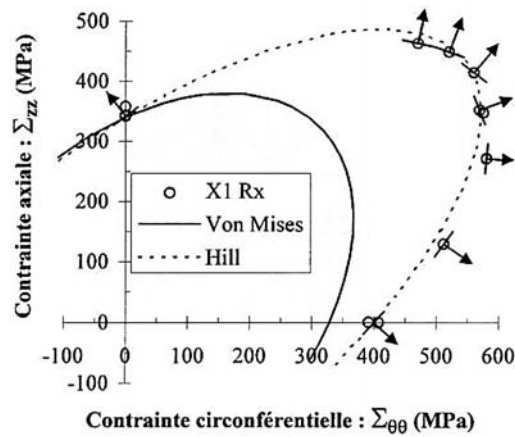


Figure I.8 : Surface de charge d'un tube de Zircaloy-4 recristallisé testé à température ambiante. Ecarts par rapport à des surfaces de charge définies suivant les critères de plasticité de Von Mises et de Hill (Geyer 1999).

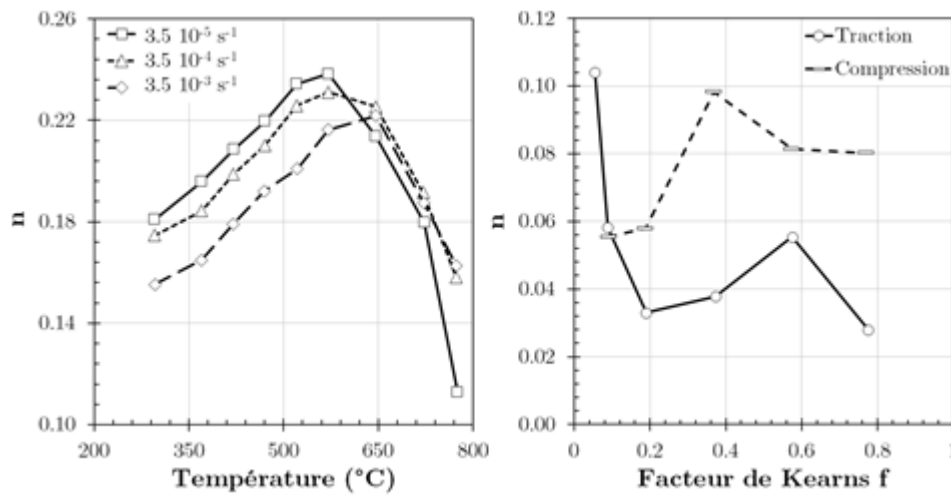


Figure I.9 : Evolution du coefficient d'érouissage avec la température (gauche, Zr-1% Nb, d'après (Thorpe 1978)) et le facteur de Kearns dans la direction de sollicitation (droite, Zy-2, 20°C, d'après (Ballinger 1981)).

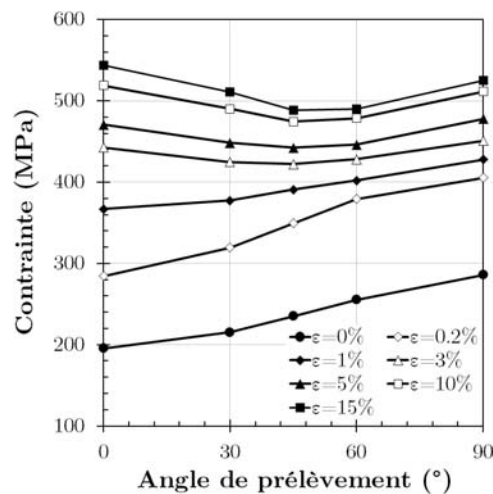


Figure I.10 : Variation de la contrainte en fonction de l'angle de prélèvement de l'éprouvette à différents niveaux de déformation plastique (à 20°C, Zr702), d'après (Allais 1996).

l'évolution de la limite d'élasticité avec la température et mettent en évidence un plateau athermique entre 300 °C et 400 °C associé à un phénomène de vieillissement dynamique qui se traduit par une réduction de la sensibilité à la vitesse de déformation. Les surfaces de charges s'écartent d'une représentation de type Von Mises et l'utilisation d'un critère de Hill améliore la description (Figure I.8). L'anisotropie semble diminuer avec la température pour l'état détendu mais pas pour l'état recristallisé (Tableau I.3).

Les alliages de zirconium disposent d'une capacité d'érouissage relativement faible. Une façon de quantifier l'érouissage est de déterminer le coefficient n de la relation d'Hollomon liant la contrainte à la déformation plastique pendant l'érouissage.

$$\sigma = K \varepsilon^n \quad \text{Eq. I.1}$$

Thorpe a évalué ce coefficient entre 0.158 et 0.226 sur des éprouvettes de traction prélevées sur une plaque de Zr-1%Nb entre 20 et 500°C, avec présence d'un maximum aux alentours de 300°C (Figure I.9). Le Saux a identifié un modèle de comportement viscoplastique anisotrope de gaine en Zircaloy-4 détendu irradiée ou non à partir d'essais réalisés dans un large domaine de températures et de vitesses de déformation (Le Saux 2008). Il a observé que le coefficient n augmente rapidement en début de plasticité puis décroît. Une valeur comprise entre 0.02 et 0.1 est observée. Ce coefficient dépend de la direction de sollicitation (Figure I.9). Il est plus important pour la direction L (z) que T (ϑ) : malgré une limite d'élasticité plus faible, la résistance mécanique y est plus importante. Cela a notamment été observé par Grange à température ambiante sur Zircaloy-4 (Grange 2000). De plus, les variations ne sont pas linéaires entre ces deux directions. Allais a testé du Zr702 à température ambiante selon des directions intermédiaires (0, 30, 45, 60, 90° de L dans le plan TL) (Allais 1996). L'érouissage est clairement anisotrope et présente un minimum d'amplitude à 60° (Figure I.10).

Comme il n'y a pas de système de glissement facilement activé pour accommoder la déformation le long des axes $\langle c \rangle$, la texture des produits en alliage de zirconium conduit à une anisotropie des rapports de déformation plastique lors d'essais uniaxiaux. Les coefficients de Lankford permettent de quantifier cet écart à l'isotropie. Pour un essai de traction sur éprouvette plate uniaxiale dans la direction L ou T, ce rapport est défini respectivement par :

$$L_L = \frac{\partial \varepsilon_T^p}{\partial \varepsilon_N^p} \text{ et } L_T = \frac{\partial \varepsilon_L^p}{\partial \varepsilon_N^p} \quad \text{Eq. I.2}$$

Avec ε_T^p , ε_L^p et ε_N^p les déformations plastiques respectivement selon T, L et N. Où 22 est la direction de la largeur de la zone utile, et 33 la direction de l'épaisseur. Ce paramètre est également défini pour des tractions sur tube. Dans le cas d'un écoulement isotrope, il vaut 1. Grange a mesuré les coefficients de Lankford dans les directions transverse et longitudinale du Zircaloy-4 recristallisé à température ambiante lors d'essais de traction à vitesse de déformation imposée, $L_L=P=3.3$ et $L_T=R=4.5$ (Grange 2000). Mahmood a trouvé des valeurs de $P=3.88$ et $R=3.72$, dans les mêmes conditions mais avec une texture plus normale (axes $\langle c \rangle$ plus regroupés autour de DN). Allais observe que pour une tôle de Zr702 recristallisé, les rapports de déformation augmentent en début de plasticité avant de se stabiliser à des valeurs de $P=1.3$ et $R=4.8$ (Allais 1996). Delobelle a déterminé le coefficient P par des tractions axiales sur tubes de Zircaloy-4 détendu ($P=1.38$) et recristallisé ($P=1.94$), entre 25 et 450 °C (Delobelle 1996). L'anisotropie semblerait plus marquée pour l'état recristallisé. De plus, ce rapport est constant avec la déformation plastique (0-5%) mais également avec la température dans l'intervalle étudié.

A l'aide d'essais cycliques et profitant de la bonne stabilité observée, Delobelle a supposé que l'érouissage isotrope était constant avec la déformation. L'érouissage serait donc

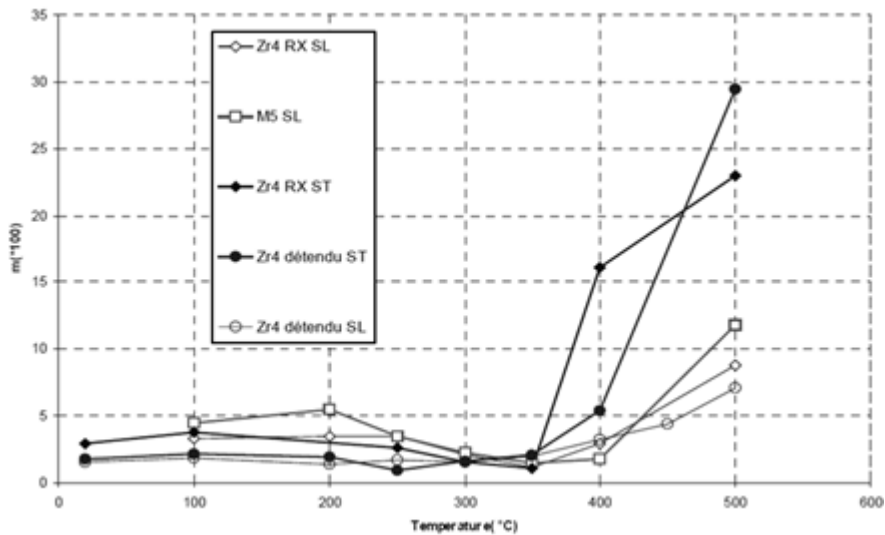


Figure I.11: Evolution de la sensibilité à la vitesse en fonction de la température pour différents alliages et directions, d'après (Elbachiri 2003).

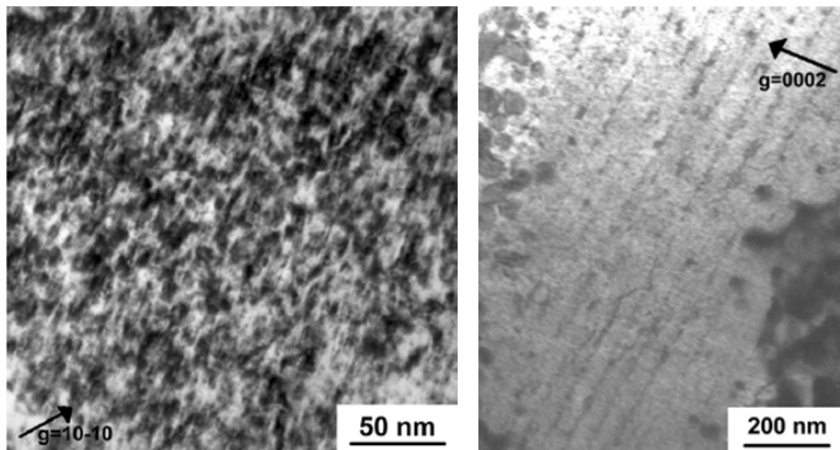


Figure I.12 : Observation au MET des boucles $\langle a \rangle$, Zircaloy-4 recristallisé, $T_{IRR}=280^{\circ}\text{C}$, $0.5 \cdot 10^{25} \text{ n.m}^{-2}$ (gauche) et boucles $\langle c \rangle$, M5, $T_{IRR}=350^{\circ}\text{C}$, $12 \cdot 10^{25} \text{ n/m}^2$ (droite, boucles vues de profil) (Onimus 2003).

principalement dû à la contribution de la composante cinématique (Delobelle 1996). Geyer a utilisé une technique de dissociation des composantes effective et interne (cinématique) développée par Dickson pour estimer la part de la contrainte cinématique lors d'essais de charge-décharge (Geyer 1999). Dans les directions axiale et circonférentielle des tubes de Zircaloy-4 recristallisé à température ambiante, la contrainte cinématique représente plus de la moitié de la contrainte d'écoulement et la contrainte effective semble constante. Onimus a appliqué la même méthode au Zircaloy-4 recristallisé et au M5 à 350°C , et a également observé les mêmes effets (Onimus 2006).

I.2.2.3 Viscosité

Les alliages de zirconium sont viscoplastiques : la valeur de la contrainte d'écoulement est liée à la vitesse de sollicitation. Le coefficient de sensibilité à la vitesse m est introduit :

$$m = \frac{\partial \ln \sigma}{\partial \ln \dot{\epsilon}} \quad \text{Eq. I.3}$$

Ce coefficient est globalement positif dans les différents alliages rencontrés ((Thorpe 1978), (Grange 2000), (Jae-Kyung 1992), (Fregonese 2008)) à la plupart des températures testées.

Cependant une diminution du coefficient de sensibilité à la vitesse est parfois observée entre 300 et 400 °C, sur des alliages recristallisés du fait de phénomènes de vieillissement dynamique ((Derep 1979), (Elbachiri 2003)). Ce palier est attribué aux interactions entre dislocations et atomes d'oxygène en solution. Au-delà de ce palier en température, le coefficient m augmente avec la température (Figure I.11). Pour le Zircaloy-4 recristallisé à température ambiante, des valeurs de m proches de 0.03 ont été mesurées (Geyer 1999; Grange 2000; Elbachiri 2003).

I.2.3 Influence de l'irradiation

En réacteur, les gaines sont soumises à un bombardement neutronique d'énergie importante qui provoque des changements microstructuraux, menant à des modifications des propriétés mécaniques et de leurs modes de déformation. Pour interpréter les éventuelles variations de sensibilités à la CSC-I avec l'irradiation, il est important de comprendre les modifications induites par l'irradiation. Dans le paragraphe qui suit, les principaux effets d'irradiation sont d'abord rappelés, puis comparés à ceux évoqués dans les études portant sur la création de dommages d'irradiation par des particules chargées.

I.2.3.1 Irradiation aux neutrons

Effets sur la microstructure

La section efficace de capture des neutrons par le zirconium étant très faible, les dommages d'irradiation proviennent principalement des collisions élastiques entre neutrons et atomes. Si l'énergie transmise lors de ces chocs est supérieure à l'énergie de déplacement E_d (-40 eV), l'atome cible est éjecté de son site ce qui mène à la création d'une paire de Frenkel (couple interstitiel – lacune). L'atome éjecté agit alors en tant que particule incidente et va impacter ses voisins, et ainsi de suite. Une cascade de déplacement se crée. Pour un neutron incident d'énergie 1 MeV, plus de 200 atomes de Zr sont déplacés (Onimus 2012). Ces défauts ponctuels se recombinent ou s'agglomèrent pour former des cavités ou des boucles de dislocations.

Ces boucles se trouvent principalement dans les plans prismatiques, et sont communément appelées boucles $\langle a \rangle$ (Figure I.12). Elles peuvent être lacunaires et interstitielles, de vecteur de Burgers $1/3\langle 11\bar{2}0 \rangle$. Elles sont observables à basse fluence et basse température. Pour une fluence donnée, la taille et la densité de ces boucles dépendent principalement de la température d'irradiation. Northwood a observé une augmentation de la taille moyenne des boucles de 8.5 à 20.1 nm pour une augmentation de température d'irradiation de 250 à 450 °C (Northwood 1979). Parallèlement, la densité de ces boucles est passée de 3.4 à 0.95 10^{22} m^{-3} . Adamson rapporte une taille moyenne de boucles $\langle a \rangle$ de 10 nm pour des fluences comprises entre 0.6 et 3 10^{25} n.m^{-2} et une température d'irradiation de 327 °C (Adamson 1985). Régnard, pour du Zircaloy-4 irradié à 6 10^{24} n.m^{-2} , trouve des valeurs similaires (Régnard 2002). La taille et la densité de ces boucles semblent saturer dès 1-2 10^{25} n.m^{-2} , en parallèle avec l'évolution des propriétés mécaniques.

A forte dose, des boucles $\langle c \rangle$ apparaissent dans les plans de base (Figure I.12). Elles sont lacunaires, ont tendance à raccourcir la maille hexagonale selon l'axe $\langle c \rangle$ et donc à l'allonger selon $\langle a \rangle$. Les pôles de base étant majoritairement dans le plan radial-circumférentiel, elles causent donc un allongement des gaines en service. Le diamètre de ces boucles est plus important, de l'ordre de 100 nm. Une fluence de 3 10^{25} n.m^{-2} semble nécessaire à l'apparition de ces défauts (Onimus 2003).

Un autre effet de l'irradiation est l'amorphisation (destruction du réseau cristallin) des précipités intermétalliques dans les Zy-2 et Zy-4, pour des fluences inférieures à 1 10^{25} n.m^{-2}

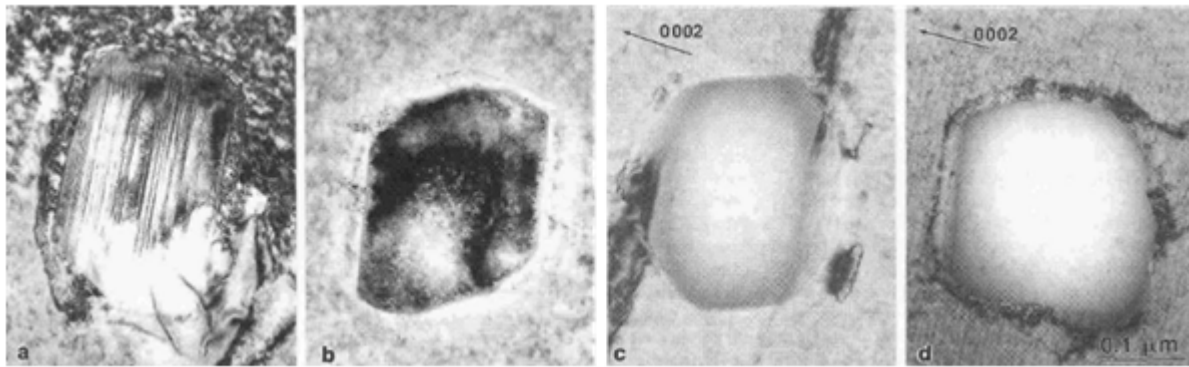


Figure I.13 : Amorphisation des précipités $Zr(Fe,Cr)_2$ dans du Zircaloy-2, irradié à $280\text{ }^\circ\text{C}$, pour des fluences de 0 (a), 0.4 (b), 0.9 (c) et $2\text{ }10^{25}\text{ n.m}^{-2}$ (Griffiths 1996).

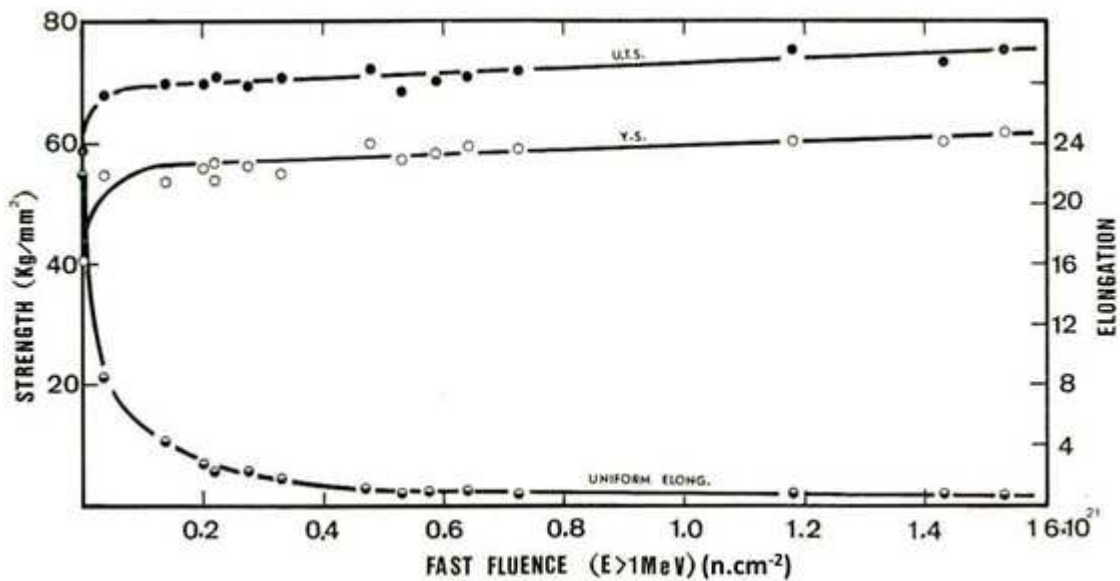


Figure I.14: Modification des propriétés mécaniques à température ambiante avec la fluence neutronique. Cas du Zircaloy-4 recristallisé irradié à des températures comprises entre 320 et $360\text{ }^\circ\text{C}$ (Higgy 1972).

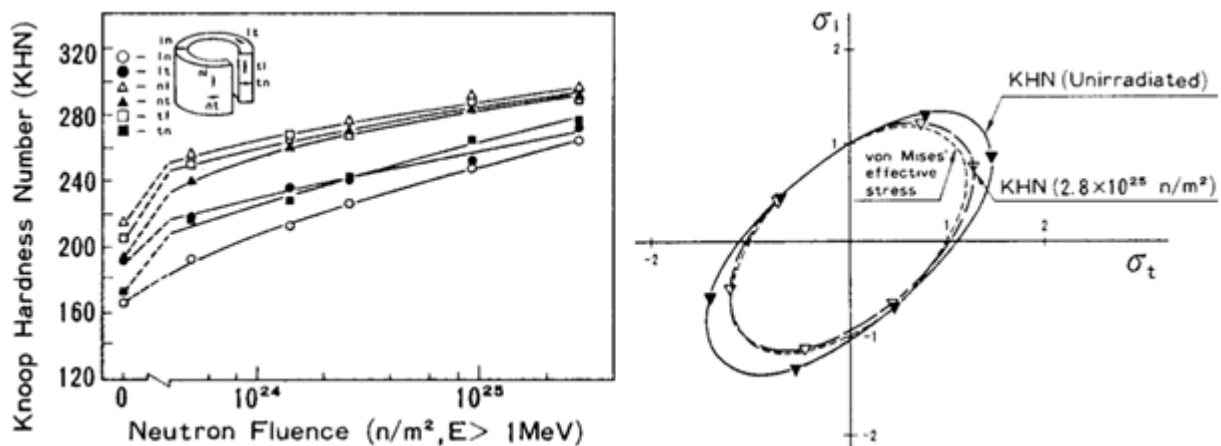


Figure I.15 : Durcissement et modification de l'anisotropie plastique par l'irradiation. Mesure de ces évolutions via l'exploitation d'essais d'indentation Knoop réalisés selon 6 directions dans le matériau irradié (gauche). Exploitation de ces mesures pour tracer les surfaces de charge associées (droite) (Nakatsuka 1987).

(Griffiths 1996). L'amorphisation s'accompagne d'un appauvrissement en fer de ces précipités et donc d'un relâchement dans la matrice. Elle commence en périphérie et progresse vers le cœur du précipité (Figure I.13). Une amorphisation complète peut être atteinte au bout de 2 cycles REP.

Effets sur le comportement mécanique

Les boucles $\langle a \rangle$ sont des obstacles au mouvement des dislocations et provoquent un durcissement du matériau très souvent observé (Morize 1987) (Shimada 1983b). La limite d'élasticité est fortement augmentée avec une amplitude variable selon les études et les fluences. Si Higgy observe une augmentation de l'ordre de 50% (Higgy 1972) pour du Zircaloy-4 recristallisé à une fluence de 10^{25} n.m⁻², cette augmentation atteint 200 à 300% pour Adamson (Adamson 1985) sur Zircaloy-2 à $3 \cdot 10^{25}$ n.m⁻². Onimus a trouvé une augmentation du même ordre pour le Zircaloy-4 et le M5 pour des fluences de 0.6 à $12 \cdot 10^{25}$ n.m⁻² (Onimus 2003).

En revanche, la ductilité est drastiquement réduite après irradiation (Figure I.14). La plupart des auteurs rapportent des allongements à rupture inférieurs à 1% sur matériau irradié (Adamson 1985) (Higgy 1972), (Onimus 2003), (Yasuda 1985). A $0.2 \cdot 10^{25}$ n.m⁻², la ductilité du Zircaloy-4 est divisée par 6 pour atteindre moins de 4% (Figure I.14). Cette perte de ductilité est associée à une localisation de la déformation macroscopique dans des bandes de cisaillement (Regnard 2002).

La stabilisation des propriétés mécaniques à partir d'une fluence de $0.2 \cdot 10^{25}$ n.m⁻², présentée sur la (Figure I.14), est en accord avec celle de la microstructure d'irradiation, discutée précédemment. Une saturation similaire a été observée par Morize à partir de $0.5 \cdot 10^{25}$ n.m⁻², pour du Zircaloy-4 recristallisé, irradié et testé à 20 et 315°C (Morize 1987). L'auteur remarque également que le durcissement est presque deux fois plus important pour le matériau recristallisé que pour le matériau détendu. Après saturation, les deux états métallurgiques présentent des propriétés similaires (Morize 1987).

Par le biais d'indentations Knoop réalisées en surface et sur la section de gaines en Zircaloy-2 irradiées entre 0 et $2.8 \cdot 10^{25}$ n.m⁻², Nakatsuka a observé le durcissement d'irradiation, ainsi qu'une diminution de l'anisotropie de comportement (Nakatsuka 1987). La surface de charge tend à se rapprocher d'une description de Von Mises (Figure I.15).

L'effet de l'irradiation sur la sensibilité à la vitesse de déformation n'est pas clair. Yasuda a mesuré une diminution du coefficient m à 343 °C, qui passe de $37 \cdot 10^{-3}$ à $21 \cdot 10^{-3}$, pour du Zircaloy-2, irradié à une fluence de $3 \cdot 10^{24}$ n.m⁻² (Yasuda 1985). Cette baisse est également observée sur la limite d'élasticité alors que la résistance mécanique n'évolue quasiment pas. Onimus a, quant à lui, observé une augmentation très importante de la sensibilité à la vitesse de déformation avec un coefficient m de $33 \cdot 10^{-3}$ à 350 °C pour du M5 irradié à $3 \cdot 10^{25}$ n.m⁻² (Onimus 2006). Ce coefficient est inférieur à $5 \cdot 10^{-3}$ pour le matériau non irradié. Cette variation serait due au changement de système de glissement principal qui présenterait une sensibilité à la vitesse différente de celle associée au système de glissement opérant sur matériau non irradié. De plus, à la température considérée, le matériau non irradié est sujet au vieillissement dynamique et sa sensibilité à la vitesse de déformation s'en trouve fortement réduite.

Effets sur les modes de déformation

L'irradiation augmente l'hétérogénéité de la déformation plastique à l'échelle du grain. Cette dernière est localisée dans des canaux, libres de tout défaut d'irradiation, créés par annihilation des boucles $\langle a \rangle$ lors du passage de dislocations dans le plan des boucles. Cela engendre un adoucissement local qui contribue à la localisation de la déformation. Une canalisation principalement basale a été mise en évidence par plusieurs auteurs (Regnard

2002; Onimus 2003) lors d'essais mécaniques suivant la direction transverse/circonférentielle. La présence des boucles $\langle a \rangle$ dans les plans prismatiques rendrait le glissement basal $B\langle a \rangle$ plus facile que le prismatique $P\langle a \rangle$. Dans le cas d'une sollicitation axiale (parallèle à la majorité des plans basaux), Onimus n'a observé que des canaux prismatiques et pyramidaux, signifiant l'absence de glissement basal. (Onimus 2003). Macroscopiquement, la localisation de la déformation va engendrer des bandes de cisaillement épaisses visibles au MEB qui vont localiser la déformation à l'échelle de l'éprouvette. La canalisation est le mode de déformation principal.

I.2.3.2 Irradiation aux particules chargées

L'utilisation d'un bombardement par des particules chargées est un moyen de simulation de l'irradiation neutronique. Il s'agit d'une alternative aux moyens très lourds nécessaires aux études sur matériaux irradiés aux neutrons, car il n'active que très peu les matériaux. En contrepartie le dommage d'irradiation ne se localise que sur de faibles distances, d'autant plus faibles que la particule chargée utilisée est lourde. Dans ce paragraphe, on se limitera aux études portant sur des alliages de zirconium irradiés aux protons et la représentativité de ce type d'irradiation par rapport aux irradiations neutroniques.

Zu s'est intéressé aux modifications microstructurales du Zircaloy-4 recristallisé, engendrées par des irradiations aux protons menées à 310 et 350 °C à des doses comprises entre 2 et 7 déplacements par atomes (dpa) (Zu 2005). 2 dpa correspondent à une fluence de neutrons rapides de 10^{25} n.m⁻² environ. Le durcissement d'irradiation (mesuré par microdureté) est équivalent à celui d'irradiation aux neutrons, particulièrement à 310 °C. La microstructure d'irradiation obtenue est représentative de l'irradiation neutronique : présence de boucles $\langle a \rangle$ de diamètre compris entre 7 et 11 nm selon la dose et une densité comprise entre 7 et 15 10^{21} m⁻³. Une amorphisation partielle des précipités est observée mais seulement pour 310 °C (5 dpa). A 350 °C, elle n'a pas été observée.

A partir de ces observations, Serres a réalisé des irradiations aux protons à 305 °C sur du Zircaloy-4 recristallisé, pour une dose de 2 dpa. Une étude détaillée de la microstructure et des systèmes de déformation activés a ainsi pu être réalisée (Serres 2008). Les boucles de dislocations $\langle a \rangle$ sont bien retrouvées, avec une taille moyenne de 10 nm, et une densité de $17 \cdot 10^{21}$ m⁻³. Le durcissement d'irradiation est évalué par micro-indentation Vickers à 44 kg.mm⁻², valeur proche de celle de Zu pour une irradiation à 350 °C pour la même dose. Sur l'ensemble des grains analysés au MET, seulement 3 précipités totalement amorphisés sur 200 sont observés ; aucune amorphisation partielle n'a été remarquée. Pour ce qui concerne les modes de déformation, la canalisation basale a bien été mise en évidence après essais de traction dans le sens travers de la tôle ; elle constitue le mode de déformation principal. Cette canalisation basale apparaît dès 0.5% de déformation plastique macroscopique des éprouvettes. Des calculs par éléments finis suggèrent que, dans l'épaisseur irradiée (30 μ m sur un total de 1.5 mm), la contrainte est comprise entre 70 et 100% de la limite d'élasticité. La canalisation basale se produirait donc avant l'apparition de la plasticité à l'échelle de l'éprouvette. Seul un canal prismatique a été mis en évidence. L'analyse des facteurs de Schmid montre que la cission critique du glissement prismatique est devenue bien supérieure à celle du glissement basal. Des bandes de cisaillement macroscopique sont également observées à partir de 1% de déformation totale. Elles sont aussi larges qu'un grain, bien plus longues et n'apparaissent pas dans la zone non irradiée à ce niveau de déformation. Hormis l'amorphisation des précipités (peut-être liée à un effet du taux de dommage), les analyses montrent la bonne simulation de l'irradiation neutronique par un bombardement aux protons.

Ce point est renforcé par les récentes observations de Tournadre qui montrent que l'irradiation aux particules chargées (ions Zr de 600 keV à 7 dpa et protons de 2 MeV à

11.5 dpa) mène à la création de boucles de composante $\langle c \rangle$ dans du Zircaloy-4 recristallisé (Tournadre 2012). En termes de taille de boucles, les protons simulent mieux les défauts d'irradiation neutronique que les ions Zr.

I.2.4 Modélisation du comportement mécanique

De nombreux modèles de comportement mécanique ont été proposés pour les alliages de zirconium. Ce sont des modèles macroscopiques ou polycristallins selon l'échelle considérée. Quelques exemples de modèle sont présentés ici.

Les modèles macroscopiques traitent le polycristal comme un matériau continu à l'échelle de l'éprouvette et permettent la simulation « rapide » d'éprouvettes de grandes dimensions. En général, ces modèles sont développés et identifiés spécifiquement pour des matériaux de gainage ou des feuillets (tôle), recristallisé ou détendu. Certains de ces modèles ont une base physique comme le modèle développé par Dunlop pour des tôles en Zircaloy-4 détendu et recristallisé, avec évolution de la forêt de dislocations, présence des dislocations mobiles, prise en compte des obstacles à leur mouvement (Dunlop 2005). Ce modèle donne de bons résultats en traction uniaxiale mais sa généralisation en multiaxé et son identification sont complexes. Le modèle phénoménologique de Delobelle a été identifié sur une base importante d'essais monotones et cycliques, pour les deux états métallurgiques des gaines en Zircaloy-4, à température ambiante (paramètres non publiés) et 350 °C (Delobelle 1996). Le formalisme considère des tenseurs d'anisotropie pour les directions d'écoulement, l'érouissage cinématique, la restauration statique et dynamique. Ce modèle a été étendu aux matériaux irradiés par Schäffler avec prise en compte des effets de température entre 350 et 400 °C (Schäffler 2000). Le Saux a identifié un modèle phénoménologique de comportement des gaines en Zircaloy-4 détendu, entre 20°C et 1000 °C, pour des vitesses comprises entre $3 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ et 5 s^{-1} , avec prise en compte de l'irradiation jusqu'à une fluence de $10 \cdot 10^{25} \text{ n.m}^{-2}$ (Le Saux 2008). L'anisotropie n'est prise en compte que par une contrainte équivalente de Hill : la réponse mécanique est mieux simulée pour la direction axiale que circonférentielle. De nombreux auteurs traitent également le comportement des alliages de zirconium en utilisant un érouissage isotrope et d'une contrainte équivalente de Hill (Prat 1998; Grange 2000; Fournier 2009).

Une autre approche consiste à considérer l'activation et le comportement des différents systèmes de déformation à l'échelle du grain ; on parle alors de modèles polycristallins. Ces modèles sont très coûteux en puissance et temps de calcul mais présentent l'avantage de donner une description du matériau à une échelle plus pertinente, notamment pour des problématiques de corrosion sous contrainte (incompatibilité de déformation, contrainte intergranulaire,...). Un nombre de grains limité peut être pris en compte, quelques dizaines au maximum, rendant presque impossible l'étude des effets de structure. Par la définition de l'orientation des grains et les différences d'activation des systèmes de glissement, ces modèles peuvent rendre compte des effets de texture. La détermination des cisssions critiques pour les glissements résulte souvent d'un compromis entre étude microscopique des systèmes activés et optimisation de la réponse mécanique de l'agrégat. Les effets d'irradiations peuvent être naturellement pris en compte par le changement des cisssions critiques et de l'érouissage de chaque système de glissement (Onimus 2009). Une illustration des différentes cisssions critiques de la littérature est présentée dans le Tableau I.4, montrant les dispersions entre études.

On mentionne également l'approche utilisée par Leclercq qui a construit un modèle polycristallin simplifié pour le Zircaloy-4 (Leclercq 2007). Il ne considère que 3 plans de glissements, avec 2 systèmes par plans (de direction 0 et 45°) et des agrégats de six grains seulement. Chacun de ces systèmes est associé à un système réel de glissement. Les orientations des grains sont paramétrées et permettent de retrouver l'orientation moyenne

du cristal. Un tel modèle est facilement identifiable avec un nombre limité d'essais. Les temps de calcul sont 200 fois moins importants que pour un modèle polycristallin classique mais reste 5 fois supérieur à un modèle généralisé quand on effectue un calcul sur une structure, sans considérer les grains. La réponse macroscopique de l'agrégat est en bon accord avec les données expérimentales. Cependant, les problèmes d'utilisation de modèles polycristallins sur des agrégats très volumineux représentatifs de structures persistent.

Tableau I.4: Cissions critiques des systèmes de glissement, utilisées dans la littérature.

Ref.	Mat.	Etat	T (°C)	Irradié	Cission critique des systèmes (MPa)			
					P<a>	Π_1 <a>	B<a>	Π_1 <c+a>
a)	Zy-4	RX	20	Non	65.6	84.6	132.5	190.9
b)	Zy-2	RX	20	Non	110	200		
c)	Zy-4, M5	RX	350	Non	45	60	85	140
c)	Zy-4, M5	RX	350	Oui	240	240	85	300
d)	Zy-4	SR	350	Non	40	110	100	105
d)	Zy-4	SR	350	Oui	168	168	109	264

a) (Priser 2011) b) (Turner 1995) c) (Onimus 2009) d) (Fandeur 2001)

I.3 La Corrosion sous Contrainte par l'Iode

Les matériaux de gainage ayant été décrits, ce paragraphe se focalise sur la CSC-I, sa pertinence vis-à-vis des ruptures de gaine par IPG, les conditions dans lesquelles elle est étudiée en laboratoire et les mécanismes proposés pour l'expliquer. Le paragraphe suivant traitera de l'influence de différents paramètres (environnementaux, mécaniques, matériaux et microstructuraux) sur les résultats d'essais de CSC-I réalisés en laboratoire.

I.3.1 Rupture lors de l'IPG et CSC-I

Des essais en rampe (transitoires de puissance) ont été réalisés afin de déterminer le mode de rupture des gaines pendant l'IPG et ses caractéristiques. Davies rapporte de tels essais réalisés au GETR (General Electric Test Reactor), notamment sur des gaines en Zircaloy-2 recristallisé (Davies 1977). Les ruptures observées sont longitudinales et ne montrent pas de caractère ductile. Plusieurs observations confirment qu'un phénomène de corrosion sous contrainte est à l'œuvre. Les faciès de rupture sont caractéristiques d'une rupture fragile, présentent des zones de fissuration intergranulaire et transgranulaire. Les ruptures transgranulaires consistent en un mélange de grains rompus par clivage et par accommodation plastique appelé dans la suite flutting ou cannelures (Figure I.16). Si les alliages de zirconium non irradiés hors milieu agressif peuvent rompre de façon quasi-fragile à -196°C, les ruptures sont ductiles à cupules pour des températures plus importantes (Wood 1975). Des essais en rampe avec gaines non irradiées et combustible usagé ont mené aux mêmes ruptures, montrant que ce phénomène n'est pas exclusivement lié à l'irradiation. Des rampes de puissance avec gaines irradiées et combustible neuf sans rupture montrent que ces ruptures sont liées à la présence des produits de fission et confirment le rôle de la corrosion sous contrainte.

De nombreuses études en laboratoire ont alors été lancées pour identifier l'espèce responsable et l'intérêt s'est vite porté sur l'iode du fait de son abondance en réacteur et de la forte corrosivité des halogènes. Hofmann a exposé des gaines en Zircaloy-4 à de nombreuses espèces chimiques présentes dans le jeu pastille-gaine et à certains de leurs composés, entre 500 et 1000°C (Hofmann 1981). La présence de césium (Cs) et d'iodure de césium CsI ne mène à aucune réaction chimique. Les essais d'éclatement qu'il a réalisés montrent que seuls l'iode et certains de ses composés (ZrI_4 , TeI_4 et I_2O_5) mènent à la rupture avec une perte significative de ductilité. L'absence de fragilisation par CsI a

également été constatée par Une à 350°C sur du Zircaloy-2 (Une 1978) tout comme celle du cadmium (Cd) ou du césium sur du Zircaloy-4 détendu à 343°C et à 400°C par Barö (Barö 1986). En revanche un mélange Cs/Cd mène à une rupture transgranulaire similaire à celle générée lors de l'application de rampes. Mais la sensibilité accrue à l'iode (Barö 1986) et l'absence de fissuration intergranulaire pour le mélange Cs/Cd (Haddad 1986) tendent à écarter la responsabilité de ce dernier. Si l'iode semble responsable des ruptures par IPG, la forme sous laquelle il agit (seul ou en composé) est toujours sujette à débat.

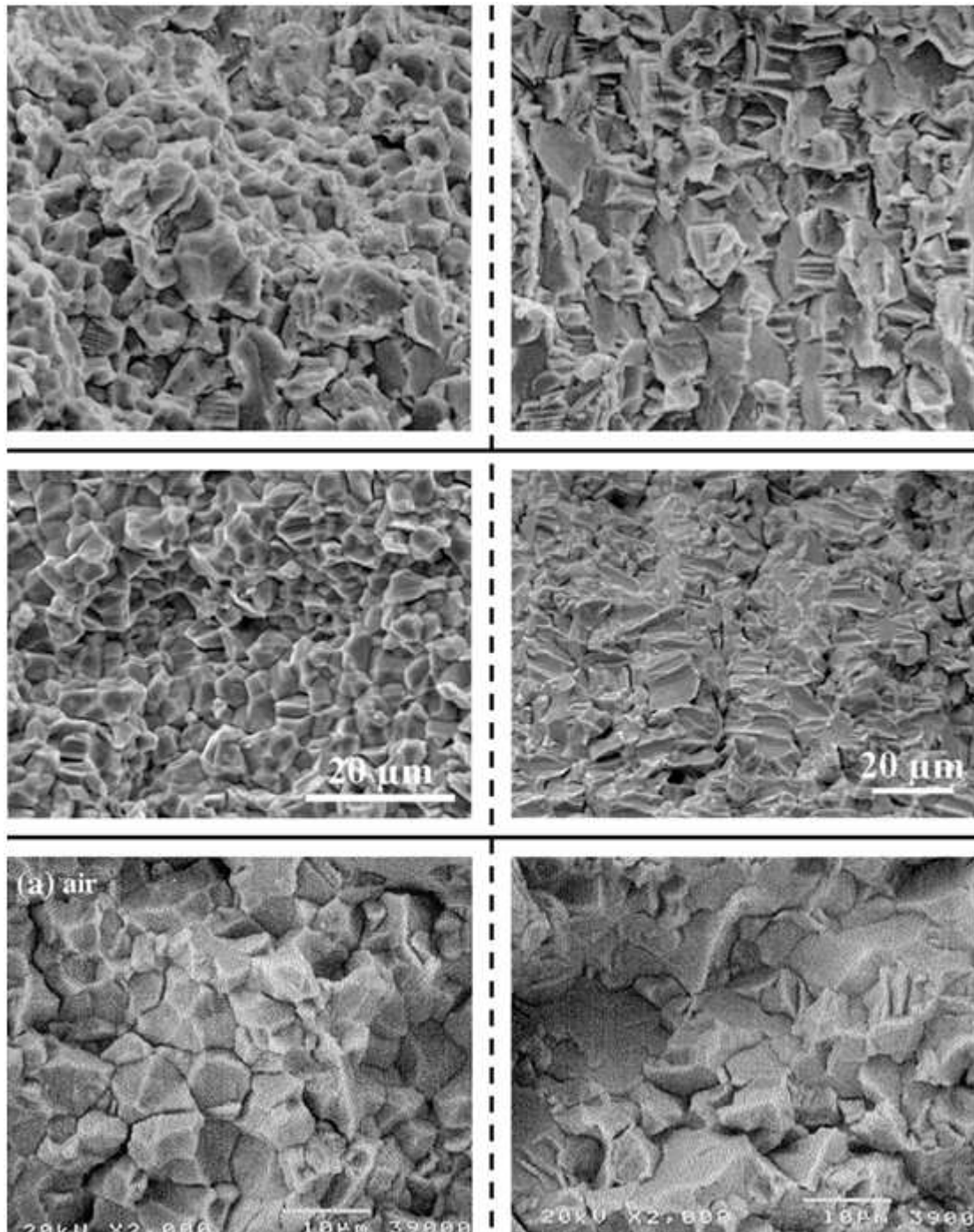


Figure I.16 : Faciès de rupture observés sur des alliages recristallisés pour différents type d'essais. En haut, essai en rampe au GE'TR d'une gaine de Zircaloy-2 irradiée à 8GWj/tU, grossissement x1000 (Davies 1977). Essais de traction à vitesse de déformation imposée sur Zircaloy-4 recristallisé, en méthanol iodé à température ambiante (milieu, (Françon 2008)) et en iode vapeur à 350°C (bas, (Fregonese 1999)). Mise en évidence d'une phénoménologie comparable de fissuration, intergranulaire (à gauche) et transgranulaire (flutting et clivage, à droite).

I.3.2 Etudes en laboratoire

I.3.2.1 Conditions expérimentales

Les études de CSC-I sont faites principalement dans deux milieux, en présence de vapeur d'iode à température élevée ($>300^{\circ}\text{C}$, à 350°C le plus souvent) ou en solution alcoolique avec de l'iode dissout à température ambiante. Le méthanol est le solvant le plus utilisé. Certaines études ont été réalisées avec d'autres alcools (Farina 2004) et/ou à des températures plus élevées ($<100^{\circ}\text{C}$) (Elayaperumal 1972; Nicholson 1980).

Les essais en iode vapeur consistent généralement en des essais de pressurisation interne à contrainte constante de tubes, lisses ou pré-fissurés, prélevés sur des gaines commerciales, dans une atmosphère d'argon ou d'hélium en présence d'iode solide (ou d'iodure de zirconium) qui se vaporise lors de la mise en température. Une composante de traction selon l'axe des tubes peut être ajoutée pour des chargements biaxés (Syrett 1981; Nakatsuka 1982). Des essais sont également menés sur éprouvettes de traction uniaxiales (Goryachev 2001) ou de déformations planes (Une 1979b; Choo 1987). Des éprouvettes dédiées à la mécanique de la rupture peuvent être employées, éprouvette de flexion entaillée (Hwang 1991), DCB (*Double Cantilever Beam*) ou WOL (*Wedge Opening Load*) (Knorr 1982). Des essais d'ouverture d'anneau et de traction sur bague sont également rapportés. Les études de sensibilité à la concentration en iode montrent la rapide saturation des effets de l'iode au-delà d'une concentration limite (cf paragraphe I.4.1.1). La plupart des études se placent à des concentrations importantes, à saturation. En iode vapeur, tous les alliages principaux (Zr, Zr-1%Nb, Zircaloy-2, Zircaloy-4) ont été testés, dans leur état détendu ou recristallisé, vierges ou irradiés.

En méthanol iodé, la plupart des essais réalisés sont des essais de traction sur éprouvettes lisses à force constante ou à vitesse de déformation imposée. Des éprouvettes entaillées ou pré-fissurées ont également été utilisées : éprouvettes de traction entaillées (Serres 2008), CT ou éprouvettes de traction avec fissure centrée (Schuster 1989a). Les concentrations des solutions de méthanol iodé varient entre 10^{-6} g.g^{-1} et $7 \cdot 10^{-2} \text{ g.g}^{-1}$. La quasi-totalité des études portent sur des alliages recristallisés. L'influence de l'irradiation aux neutrons (Hirao 1988; Fregonese 1997) ou aux protons (Serres 2008) a été étudiée.

Le nombre d'études en milieu méthanol iodé est beaucoup plus faible. Si les conditions expérimentales sont bien moins contraignantes, la question de la représentativité de ces essais vis-à-vis de l'iode vapeur se pose. Dans les deux milieux, une même phénoménologie est observée : perte de ductilité importante, développement de fissures intergranulaires puis transgranulaires, perpendiculairement à la contrainte, effet de la déformation sur l'amorçage. Une comparaison des faciès de rupture est proposée sur la Figure I.16. La propagation des fissures est également comparable, en termes de seuils au démarrage et de vitesses (Serres 2008). Malgré ces ressemblances, il faut cependant garder à l'esprit la différence de température entre les milieux, affectant le comportement mécanique et la réactivité chimique des espèces, ainsi que les différences d'environnement comme la présence d'oxygène qui peut entraîner une compétition entre fragilisation et passivation du métal.

Des auteurs rapportent quelques différences entre les milieux. Jacques remarque la présence (très marginale) d'amorces transgranulaires sur ses éprouvettes de Zircaloy-4 recristallisé testées en iode vapeur alors qu'en méthanol iodé, les amorces de fissures sont toutes intergranulaires (Jacques 1994). La densité de fissures est également réduite en iode vapeur. Park observe que l'ensemble des grains des faciès de rupture de ses éprouvettes en iode vapeur présente des piqûres de corrosion plus ou moins larges. Ces observations le conduisent à proposer un mécanisme de fissuration par agglomération de piqûres (Park 2007). Ces piqûres ne sont pas observées en méthanol iodé.

I.3.2.2 Phénoménologie

Dans sa revue, Cox décrit la CSC-I comme la succession de trois étapes (Cox 1990) :

- Une phase d'amorçage de fissures, associée à l'établissement d'un environnement chimique favorable à la fragilisation et/ou à la dépassivation du matériau (déstabilisation ou rupture du film d'oxyde, piqûration...). Cette phase d'endommagement est souvent associée à l'existence d'un temps d'incubation.
- Une phase de croissance intergranulaire de la fissure sur une distance pouvant aller jusqu'à plusieurs dizaines de grains. Cette étape serait liée à des contraintes faibles, et peut ne pas être observée pour des chargements importants (Haddad 1986). Ces deux premières phases sont souvent associées. Videm les désigne comme étant la partie de la fissuration non contrôlée par le facteur d'intensité des contraintes en pointe de fissure K_I (Videm 1979). Pour Schuster, elles peuvent représenter jusqu'à 80% du temps à rupture (Schuster 1989b).
- Une propagation critique transgranulaire quand K_I dépasse une valeur seuil K_I^{seuil} . La fissuration est alors un mélange de grains rompus par quasi-clivage ou par déformation plastique (flutting) selon leur orientation, les plans de clivage étant les plans de base (Kubo 1985a; Haddad 1986; Farina 2004). La vitesse de propagation dépend alors de K_I .

Une rupture finale ductile peut être observée en fin de propagation.

I.3.2.3 Mécanismes proposés

Phase d'amorçage

La première étape de la fissuration est induite par la perte du caractère protecteur de la couche d'oxyde. La rupture mécanique de l'oxyde est le plus souvent invoquée pour expliquer cette étape. Avec une couche d'oxyde micrométrique et en l'absence de sollicitation mécanique, Videm observe que plusieurs jours voire semaines sont nécessaires à l'iode pour réagir avec le zirconium en milieu vapeur à 340°C (Videm 1979). La déformation plastique locale de l'alliage permettrait la rupture de l'oxyde (Lee 1977) et augmenterait ainsi la densité de fissures (Jacques 1999b).

Cependant, un effet purement chimique ne peut être écarté pour expliquer les attaques intergranulaires observées dans différentes études, notamment pour des couches d'oxydes de faibles épaisseurs. En l'absence d'électrolytes dans les deux milieux d'études privilégiés, les mécanismes électrochimiques peuvent être écartés (Elayaperumal 1972). L'observation de zones fortement concentrées en oxygène autour des amorces de fissures permet à Jacques de suggérer une déstabilisation de l'oxyde par l'iode, possiblement par adsorption menant à la formation d'un composé fragile et riche en oxygène (Jacques 1994). Ce mécanisme aurait plus d'importance en méthanol iodé car les conditions ne permettent pas une repassivation du métal.

Propagation intergranulaire

La fissuration intergranulaire se ferait par une corrosion des joints de grains assistée par la contrainte (Videm 1979). La perte de masse observée sur des échantillons exposés à l'iode sans contrainte prouverait un mécanisme de dissolution des joints (Rosenbaum 1966; Elayaperumal 1972; Nicholson 1980). La localisation de la corrosion aux joints de grains en l'absence de contrainte appliquée n'a été expliquée que par la nature désordonnée du cristal à ces endroits qui pourrait abaisser l'énergie de cohésion et favoriser l'attaque chimique (Jacques 1994). Aucune ségrégation d'espèces chimiques n'a en effet été observée sur les

Zircalloys. De plus, les précipités sont uniformément répartis dans le matériau. L'influence sur la CSC-I des contraintes intergranulaires résultant de l'anisotropie de dilatation thermique – qui peuvent atteindre 100 MPa (Turner 1995) – reste néanmoins à investiguer.

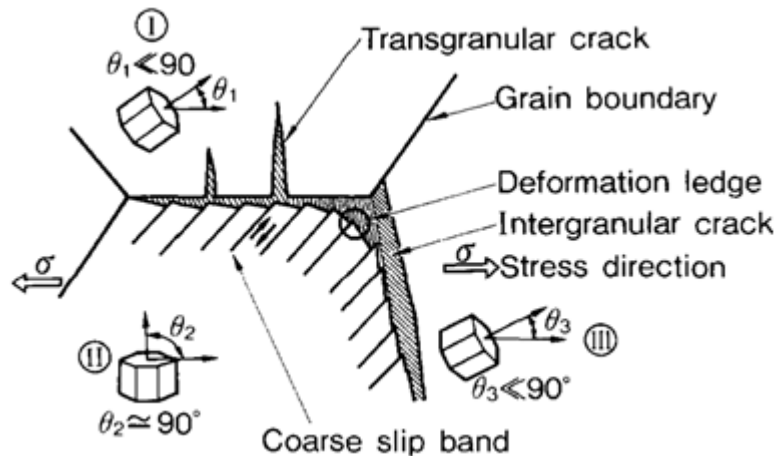


Figure I.17 : Mécanismes d'amorçage de fissures de CSC-I fondé sur les incompatibilités de déformation entre un grain bien orienté pour le glissement prismatique et un grain mal orienté (Kubo 1985a).

Avec un chargement mécanique appliqué, la localisation de la corrosion au droit des joints de grains s'expliquerait par une localisation de la déformation plastique au niveau des joints de grains. L'émergence de bandes de glissement pourrait ouvrir les joints de grains et ainsi favoriser la rupture de l'oxyde et la pénétration de l'iode (Verhaeghe 1997). Kubo a proposé un mécanisme d'amorçage intergranulaire fondé sur la désorientation entre grains voisins et l'émergence de bandes de glissement ((Kubo 1985a), (Figure I.17)). Ces incompatibilités sont à l'origine de contraintes intergranulaires fortes, d'autant plus qu'un grain est bien orienté pour le glissement prismatique et que son voisin ne l'est pas. Jacques a montré que la désorientation n'est qu'un paramètre d'ordre 2 et que le critère principal de fissuration est l'orientation du joint de grain vis à vis de l'axe de chargement (Jacques 1999b). Videm a également constaté que la corrosion intergranulaire est plus importante pour les joints perpendiculaires à l'axe de chargement (Videm 1979). La dissolution intergranulaire est également activée par la contrainte macroscopique (Elayaperumal 1972).

Un mécanisme d'adsorption de l'iode et d'abaissement de l'énergie de surface du zirconium n'est pas à exclure totalement pour la phase intergranulaire. Williford a montré qu'un mécanisme de croissance et de coalescence de nano-cavités, combiné à une perte d'énergie de surface en présence d'iode, pouvait expliquer la fissuration intergranulaire (Williford 1985). Mais cela n'explique pas la perte de masse d'échantillons.

Propagation transgranulaire

Un tel mécanisme d'adsorption-fragilisation est généralement retenu pour la propagation transgranulaire des fissures (Cox 1990). Hwang a montré que le plan de base subissait la plus grande perte d'énergie de surface par adsorption de l'iode (Hwang 1989). Si le déclenchement de la fissuration transgranulaire semble lié au facteur d'intensité des contraintes, les mécanismes de transition ne sont pas connus avec certitude. La plasticité en pointe de fissure serait impliquée dans cette transition. Fregonese suppose que l'accumulation de plasticité permet de multiplier les sites potentiels de départ de fissures transgranulaire, selon le modèle de Kubo (Fregonese 2008). L'accumulation de plasticité permettrait également d'activer de nouveaux systèmes de glissement et notamment ceux correspondant aux plans pyramidaux, permettant ainsi un accès aux plans de base par la création de marches avec une composante selon $\langle c \rangle$ (Verhaeghe 1997).

Galvele propose aussi un modèle fondé sur la propagation de fissure par diffusion de lacunes depuis la pointe de fissure vers les lèvres de cette dernière (Galvele 1987). Cette diffusion serait grandement favorisée par l'adsorption de composés à basse température de fusion comme le ZrI_4 . Les vitesses de propagation prédites par ce modèle sont proches des expériences.

Transport de l'iode dans le matériau

Plusieurs études se sont penchées sur la diffusion de l'iode en volume dans les alliages de zirconium avec des résultats différents. Elles consistent à implanter de l'iode avec un accélérateur sur une éprouvette qui subit ensuite un traitement thermique (entre 300 et 600°C). Le relâchement d'iode ou le changement du profil d'implantation sont alors étudiés. Wood et Fregonese ont conclu à l'absence de diffusion à des températures comprises entre 350 et 600 °C, pour des durées comprises entre 4 et 16 h, avec une échelle d'étude micrométrique (Wood 1975; Fregonese 1997) tandis que Moncoffre l'observe pour des durées et températures similaires mais avec une échelle d'étude nanométrique (Moncoffre 2000). Les mécanismes d'absorption d'iode sont alors généralement écartés. Choo imagine une absorption de l'iode en pointe de fissure pour rendre compte de la sensibilité accrue à la CSC-I d'éprouvettes de déformation plane par rapport à ses éprouvettes uniaxiales (Choo 1987). Une absorption en pointe de fissure sous l'effet de la contrainte hydrostatique pourrait rendre compte des effets de biaxialité, contrairement à une adsorption/fragilisation ou une rupture de film. L'étude de la diffusion de l'iode sous contrainte ou déformation permettrait d'accréditer ou de rejeter un tel mécanisme.

I.4 Facteurs influençant la CSC-I

Dans ce paragraphe, on cite les différents facteurs ayant un impact sur la CSC-I d'après les données de la littérature. La liste n'est pas exhaustive et illustre simplement les différents points d'importance. Une attention particulière est portée sur les données des études réalisées en méthanol iodé.

I.4.1 Paramètres environnementaux

On traite ici des paramètres environnementaux : la concentration de l'espèce agressive, la température de l'essai et la présence d'oxygène dans le milieu.

I.4.1.1 Concentration en iode

De par la nature de l'endommagement considéré, la concentration en iode a une forte influence sur tous les aspects des essais de CSC-I. Bien souvent elle est exprimée par unité de surface de métal exposé (généralement en $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}$) pour les essais en iode vapeur. Des concentrations volumiques, pression partielle ou masse rapportée au volume de la cellule d'essai, sont également utilisées. Pour les essais en milieu méthanol iodé, la concentration de la solution est donnée en masse d'iode dissous par volume de solution (g/L) ou par masse de solvant ($\text{g}(\text{I}_2 \text{ dissout})/\text{g}(\text{méthanol})$, notée $\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ dans la suite).

Tout d'abord, la concentration définit le domaine d'existence de la CSC-I par l'observation de variables macroscopiques (déformation, contrainte et temps à rupture). Une et Amaya ont réalisé des synthèses bibliographiques de différentes études de CSC-I en milieu iode vapeur (Une 1984; Amaya 2004). A cause des nombreux paramètres affectant la CSC-I, les concentrations seuil sont très différentes d'une étude à l'autre, passant de 0.001 à 3 $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}$ ou de 0.004 à 1.14 $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-3}$. En milieu méthanol iodé, beaucoup moins d'études sont disponibles. Les concentrations étudiées sont comprises entre 10^{-6} et 10^{-2} $\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$. La détermination des concentrations seuil pour ce milieu n'est pas rapportée. Seule Serres note

l'absence de fissuration sur des éprouvettes de Zircaloy-4 recristallisé non irradiées pour des concentrations inférieures à $6 \cdot 10^{-6} \text{ g.g}^{-1}$ (Serres 2008) alors qu'elle est observée par Jacques à la même concentration mais à une vitesse presque dix fois inférieures ($1.5 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ contre 10^{-5} s^{-1}) (Jacques 1994).

Dans le domaine de CSC-I en iode vapeur, plusieurs auteurs rapportent l'absence d'effet d'une augmentation de la concentration. C'est notamment le cas de Busby pour des essais de pressurisation interne de tubes en Zircaloy-4 détendu et recristallisé, à 360 et 400°C, pour des concentrations de 0.005 à 0.08 mg.cm^{-2} (Busby 1975). Il apparaît en effet que les effets de la concentration saturent très vite au-delà d'une concentration critique supérieure à la concentration seuil. Wood a observé une telle transition sur des anneaux ouverts en Zircaloy-2 à 300°C sollicités à des contraintes proches de la limite d'élasticité et pour des durées d'essais de 1000 h maximum (Wood 1972). Il a déterminé une concentration seuil de 0.03 mg.cm^{-2} au-delà de laquelle des ruptures se produisent, pour un temps de 300 h environ. A partir de 1 mg.cm^{-2} , les temps à rupture chutent à moins de 1 h. Une transition aussi brutale est également observée sur les déformations à rupture, par Hoffman sur du Zircaloy-4 entre 500 et 900°C entre 1 et 10 mg.cm^{-3} et par Dakin sur des tubes de Zircaloy-2 détendu irradiés ou non vers 1 mg.cm^{-2} (Hofmann 1982; Dakin 1994). Il est donc possible de ne pas observer d'influence de la concentration en iode si l'intervalle de concentration n'est pas balayé assez finement ou si les temps d'essais sont trop courts. En méthanol iodé, Munch a trouvé des déformations à rupture de 17.5%, 14.6% et 3.1% pour des éprouvettes de traction en Zircaloy-4 recristallisé sollicitées à 10^{-5} s^{-1} à des concentrations de 5, 12 et 100 $10^{-6} \text{ mg.cm}^{-2}$ (Munch 2004). Elayaperumal constate une baisse du temps à rupture de 4 à 1 h sur des éprouvettes de traction en Zircaloy-2 contraintes à 75% de la limite d'élasticité, en milieu méthanol bouillant quand la concentration passe de $2 \cdot 10^{-5}$ à $2 \cdot 10^{-4} \text{ g.g}^{-1}$ (Elayaperumal 1972). Il est possible qu'une transition (chute brutale de la ductilité et/ou du temps à rupture) avec la concentration existe également en méthanol iodé mais le manque de données ne permet pas de la mettre clairement en évidence.

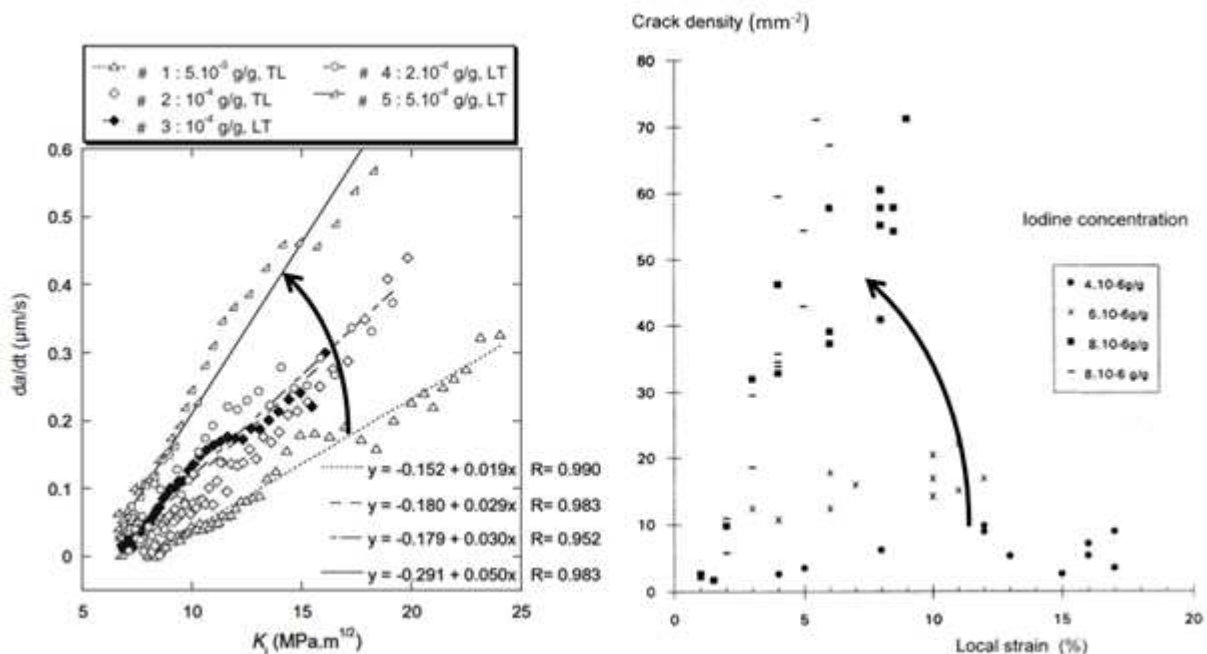


Figure I.18 : Influence de la concentration en iode en milieu méthanol iodé sur la vitesse de propagation des fissures (gauche, Zircaloy-4, de $5 \cdot 10^{-5}$ à $5 \cdot 10^{-4} \text{ g.g}^{-1}$, (Serres 2010)) et la densité de fissure en fonction de la déformation locale (droite, Zr, de 4 à $8 \cdot 10^{-6} \text{ g.g}^{-1}$, (Jacques 1999a)). Les flèches noires ont été rajoutées pour montrer le sens de l'augmentation de la concentration.

La concentration en iode a également un impact sur les modes de fissuration. La proportion de fissuration intergranulaire augmente avec la concentration. Cela a été observé par Angeliu en iode vapeur à plus de 316°C sur des éprouvettes de mécanique de la rupture d'un alliage de zirconium recristallisé non précisé (Angeliu 2009) mais également par Munch en milieu méthanol iodé (Munch 2004). La vitesse de propagation pour un même facteur d'intensité des contraintes croît également avec la concentration comme cela a été montré par Serres en méthanol iodé sur le Zircaloy-4 recristallisé (Serres 2010) (Figure I.18, gauche) ou Ghosal en iode vapeur sur Zircaloy-2 recristallisé. Serres a également observé que le facteur d'intensité des contraintes correspondant à la transition intergranulaire/mixte augmentait légèrement avec la concentration, signe que cette dernière favorise légèrement plus la fissuration inter- que trans-granulaire.

La concentration joue également sur l'amorçage des fissures en surface. Jacques constate une augmentation d'un facteur 5 de la densité de fissures quand la concentration en iode est multipliée par 2, sur des éprouvettes de traction en Zircaloy-4 recristallisé en milieu méthanol iodé (Jacques 1999a) (Figure I.18, droite).

I.4.1.2 Température

On rappelle ici quelques résultats relatifs à l'effet de la température bien que celle-ci sera maintenue constante pour l'ensemble des essais de CSC-I de l'étude. La température est un paramètre essentiel de la CSC-I puisqu'elle a un impact sur le comportement mécanique du matériau (résistance mécanique, activation du fluage) et la réactivité des espèces chimiques (que ce soit l'iode ou l'oxygène pour des phénomènes de repassivation). Là encore, les différences de conditions expérimentales entre études peuvent mener à des effets apparemment contradictoires.

Wood observe une augmentation de la sensibilité à la CSC-I (en termes de temps à rupture pour un chargement assimilable à du fluage) en milieu iode vapeur pour différents alliages quand la température augmente de 220 à 300°C ; il attribue cela à une meilleure réactivité chimique à haute température (Wood 1972). Un même effet est noté par Jones sur du Zircaloy-2 détendu entre 320°C et 360°C où une baisse de la contrainte seuil de 300 à 280 MPa est observée (Jones 1980). Busby a également observé cet effet sur des tubes de Zircaloy-4 détendu et recristallisé entre 360°C et 400°C (Busby 1975). Goryachev constate quant à lui un maximum de sensibilité à 380°C lors de son étude sur des éprouvettes de traction en Zr-1%Nb sollicitées à vitesse de déformation imposée entre 20 et 400°C à une pression partielle d'iode de 900 Pa (Goryachev 1992). L'influence de l'iode sur la ductilité apparaît vers 200°C, atteint son maximum à 380°C (ductilité divisée par 4 par rapport au milieu inerte) mais disparaît presque quand la température atteint 400°C. Ryu a constaté sur des essais de pressurisation interne sur tubes en Zircaloy-4 détendu que la concentration de transition, pour laquelle les effets de l'iode sont importants et saturent, augmente avec la température, de 0.6 à 2 mg.cm⁻² entre 330 et 400°C (Ryu 1988). Du point de vue de la propagation, Angeliu constate la disparition des traces intergranulaires sur le faciès de rupture quand la température passe de 343 à 482°C (Angeliu 2009).

La température a également une influence en milieu méthanol iodé. Ainsi Elayaperumal constate que pour une même concentration de 2.5 10⁻⁵ g.g⁻¹, la perte de masse de ses éprouvettes en Zircaloy-2 recristallisé, contraintes à 75% de leur limite d'élasticité, est deux fois plus importante à 65°C qu'à 22°C (Elayaperumal 1972). La perte de masse suit une loi de type Arrhenius. Gomez-Sanchez a étudié la rupture de fils de Zircaloy-4 recristallisé sollicité à 4.7 10⁻⁶ s⁻¹ dans des solutions de pentane et butanol à des concentrations en iode supérieures à 10⁻² g.g⁻¹ à différentes températures (Gomez-Sanchez 2007). Le temps à rupture est divisé par 4 entre 20 et 90°C et les vitesses d'avancées de fissures augmentent en suivant également une loi d'Arrhenius.

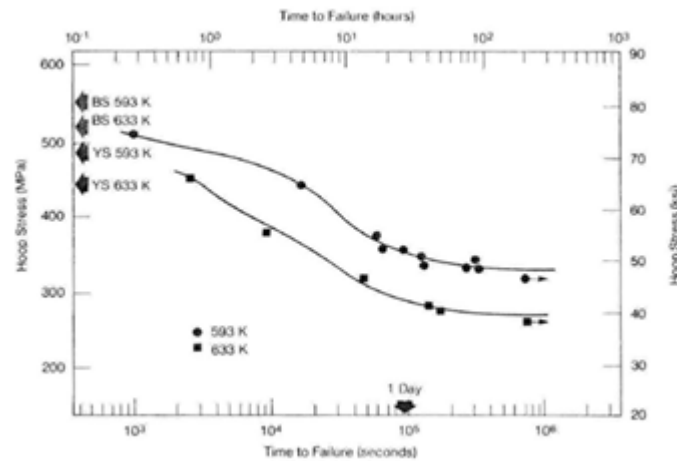


Figure I.19 : Détermination de la contrainte seuil de sensibilité à la CSC-I du Zircaloy-2 détendu testé par pressurisation interne en milieu iode vapeur à deux températures (Jones 1980).

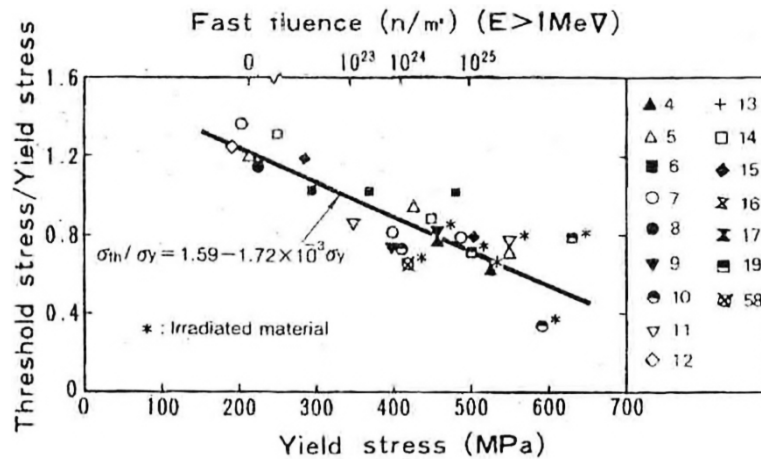


Figure I.20 : Relation entre la contrainte seuil et la limite d'élasticité pour différents alliages, irradiés ou non, détendus ou recristallisés. Compilation de plusieurs études réalisées par Une, (Une 1984).

I.4.1.3 Teneur en oxygène

Les effets protecteurs de la couche d'oxyde (voir paragraphe I.4.3) et la facilité d'oxydation des alliages de zirconium nécessitent de porter une attention particulière à la teneur en oxygène pendant les essais. Fregonese a remarqué que, lorsque l'iode est relâché dans l'air plutôt que dans le vide, les fissures sont moins nombreuses et plus courtes sur des éprouvettes de traction en zirconium pur sollicitées à vitesse de déformation imposée à 350°C (Fregonese 1999). Ce serait le signe d'une compétition entre attaque de l'iode et repassivation du matériau. Cet effet a été observé sur du zirconium car, sur Zircaloy-4, il est masqué par la très grande sensibilité à la CSC-I. Yang a, lui, observé qu'en présence d'oxygène la pression limite en espèce agressive est divisée par 2 lors d'essais sur tubes en Zircaloy-4 testés à 360°C (Yang 1989). Il a utilisé ici des cristaux de ZrI₄ pour endommager le matériau. Il suppose que la présence d'oxygène permet de transformer cet iodure en zircone et ainsi de relâcher de l'iode libre, qui serait encore plus agressif vis-à-vis du matériau. Wood constate également que la présence d'air ou de fer dans le milieu favorise la CSC-I (Wood 1972). La présence d'oxygène dans le milieu, qui n'est pas systématiquement quantifiée, peut avoir des effets importants sur la sensibilité à la CSC-I. Jacques et

Fregonese suppose qu'en méthanol iodé et à température ambiante la repassivation du matériau est peu probable.

I.4.2 Paramètres mécaniques

I.4.2.1 Contrainte

La contrainte joue évidemment un rôle majeur dans la CSC-I. La majorité des essais en iode vapeur consistent en du fluage par pressurisation interne de tubes. Les courbes contraintes appliquées en fonction du temps à rupture pour ces essais ont une forme sigmoïdale avec présence d'un palier pour les temps longs qui définit une contrainte seuil, observée notamment par (Busby 1975) ou (Brunisholz 1987). Une telle forme est illustrée par les résultats de Jones pour des tubes en Zircaloy-2 à deux températures sur la Figure I.19 (Jones 1980). Lors de sa revue bibliographique, Une a mis en évidence que le rapport entre contrainte seuil (pour des essais de durées inférieures à 20h) et limite élastique dépendait linéairement de la limite d'élasticité du matériau dans les conditions d'études (Figure I.20) (Une 1984). Cette relation apparaît valable pour des alliages détendus ou recristallisés, irradiés ou non. Les données de cette référence montrent l'existence d'un seuil proche de 250 MPa (Figure I.27). Bibilashvili a étudié l'influence de la contrainte et du temps sur la phase d'amorçage de fissures de CSC-I sur des tubes de Zr-1%Nb recristallisé à 380°C, via des essais de pressurisation interne interrompus suivis d'observation MEB de la surface exposée (Bibilashvili 1996). Il a ainsi mis en évidence que des fissures de quelques dizaines de microns pouvaient se former en 20 h à faible contrainte (170 MPa), mais en présence de plasticité (3%). La notion de contrainte seuil dépend ainsi du type d'endommagement recherché (amorçage ou rupture), du temps d'essais et de la présence ou non de plasticité.

En méthanol iodé, peu d'études ont été menées à contrainte constante et aucune n'a cherché à déterminer la contrainte seuil. L'existence d'une corrosion intergranulaire sans contrainte macroscopique appliquée rend cette étape non essentielle. Fregonese a mené des essais à rupture sur des éprouvettes de traction Zircaloy-4 recristallisé pour une contrainte appliquée d'environ 75% de la limite d'élasticité à une concentration de 10^{-5} g.g⁻¹ (Fregonese 2008). Elayaperumal a rompu des éprouvettes de Zircaloy-2 recristallisé en milieu méthanol iodé bouillant pour un chargement identique (Elayaperumal 1972). Pour des concentrations supérieures à 10^{-4} g.g⁻¹, la contrainte appliquée multiplie par plus de 10 la perte de masse. Des observations par microscopie optique ont également montré que la contrainte entraînait une localisation importante de la corrosion. L'énergie d'activation de la dissolution intergranulaire est divisée par 2.5 en présence de contrainte. Cette activation serait liée à la présence de plasticité locale qui favoriserait l'adsorption de l'iode. Lors de ses essais de fatigue-corrosion, Schuster a évalué le taux de corrosion intergranulaire par l'observation des faciès de rupture d'éprouvettes de traction testées à 10^{-3} g.g⁻¹ (Schuster 1989b). Celui-ci vaut environ 5 nm.s⁻¹ à 300 MPa et 25 nm.s⁻¹ à 410 MPa. Il n'a pas pu être évalué pour des contraintes plus faibles car la rupture par fatigue prenait alors le pas sur la corrosion.

On constate donc l'effet négatif d'une contrainte sur la résistance à la corrosion intergranulaire. Cependant les niveaux de contrainte utilisés ne permettent pas d'exclure la présence de plasticité et donc de découpler les effets.

I.4.2.2 Etat de contrainte

Du fait de la mise en diabolo de la pastille et de sa multifissuration, on peut s'interroger sur l'effet de l'état de contrainte sur la CSC-I. La plupart des études décrivent des fissures qui se développent perpendiculairement à la contrainte appliquée, que ce soit en iode vapeur ((Barö 1986), (Garlick 1973/74),...) ou méthanol iodé ((Jacques 1999b), (Serres 2008), ...).

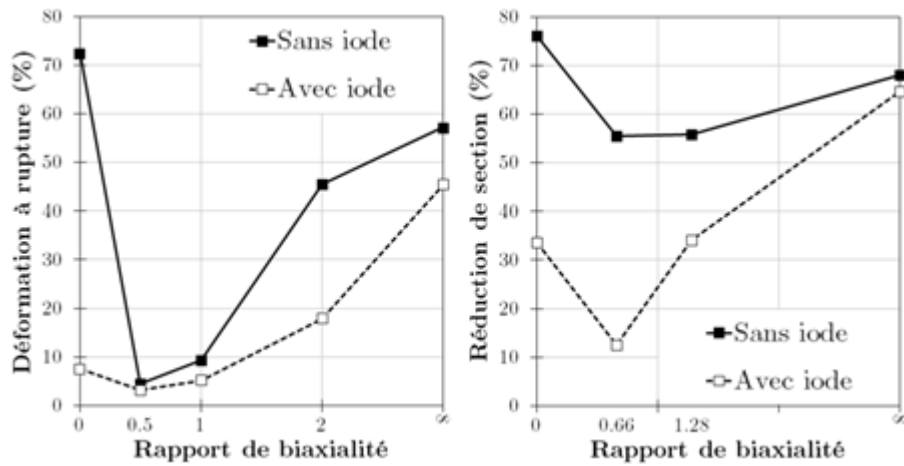


Figure I.21 : Effet du rapport de biaxialité en iode vapeur à 350°C, sur la déformation à rupture de tubes de Zircaloy-2 détendu sollicités en traction-pressurisation à 350°C (gauche, d'après (Nakatsuka 1982)) et sur la réduction de section d'éprouvettes uniaxiales et de déformation plane en Zircaloy-2 recristallisé (droite, d'après (Une 1979b)).

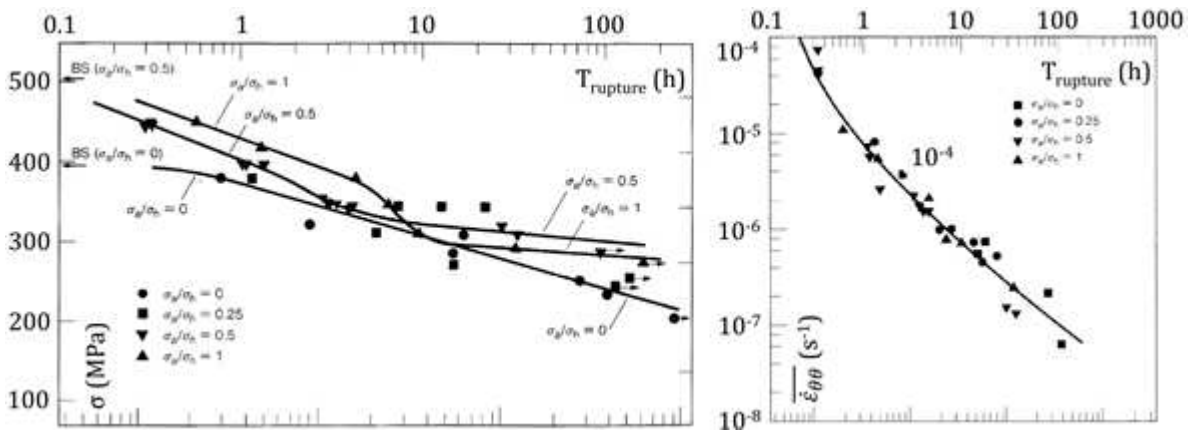


Figure I.22 : Effet positif du rapport de biaxialité sur le temps à rupture pour différentes contraintes circonférentielles pour des tubes de Zircaloy-4 testés à 360°C (gauche). Tracé des vitesses de déformation circonférentielle moyennes en fonction du temps à rupture, regroupement des différents rapports sur une même tendance (droite) (Syrett 1981).

Nakatsuka a étudié la rupture de tubes en Zircaloy-2 détendu, à 350°C et 1 mg.cm^{-2} , sollicités en pression interne et traction axiale pour des rapports de contrainte (circonférentielle sur axiale) de 0, 0.5, 1, 2 et ∞ (Nakatsuka 1982). Des observations par microscopie optique ont montré que les fissures sont toujours perpendiculaires à la contrainte principale, passant d'une fissuration axiale à circonférentielle. Pour évaluer la sensibilité à la CSC-I, il choisit la déformation équivalente à rupture calculée à partir des variations de dimensions des tubes après essais. Le minimum de déformation, avec ou sans iode, est atteint pour un rapport de biaxialité de 0.5 et il en conclut que la biaxialité augmente la sensibilité à la CSC-I (Figure I.21), gauche), même si la baisse relative de déformation due à la présence de l'iode est minimale pour ce rapport. Une a étudié l'effet du rapport des contraintes avec des éprouvettes uniaxiales et de déformations planes en Zircaloy-2 détendu et recristallisé en iode vapeur à 350°C également (Une 1979b). Elle évalue la sensibilité à la CSC-I par la réduction de section des éprouvettes après rupture et elle trouve un maximum de sensibilité pour un rapport de 0.66, comparativement à 0, 1.28 et ∞ , confirmant ainsi les observations de Nakatsuka. Pour lui, la perte relative est aussi maximale pour ce rapport.

Syrett s'est intéressé au cas du Zircaloy-4 détendu à 360°C avec une méthode d'essais identique à celle de Nakatsuka (Syrett 1981). Mais il caractérise la sensibilité à la CSC-I du point de vue du temps à rupture et non d'un critère de ductilité qu'il juge peu fiable du fait de l'impact inhérent de la biaxialité sur le comportement mécanique. Lui aussi retrouve un minimum de déformation à rupture pour une biaxialité proche de 0.5. Cependant, pour une même contrainte circonférentielle, il trouve des temps à rupture beaucoup plus importants pour un état biaxial comparativement à un état uniaxial (Figure I.22, gauche). Par exemple, pour une contrainte circonférentielle de 380 MPa, le temps à rupture passe de 0.8 à 4.4 h. Pour une contrainte supérieure à 300 MPa, la variation est monotone pour un rapport de 0 à 1. En dessous, il y a davantage de dispersion et l'effet de biaxialité semble plus complexe, mais il apparaît que la contrainte seuil varie avec la biaxialité. D'après Syrett, le paramètre critique serait la vitesse de déformation circonférentielle, car le temps à rupture suit une seule et même tendance en fonction de celle-ci (Figure I.22, droite). L'effet de la biaxialité serait lié à l'influence d'un chargement multiaxial sur cette vitesse. Aucune explication n'est avancée pour comprendre l'impact de la vitesse de déformation selon cette direction. L'étude portant sur un alliage détendu, on peut penser que la forme allongée des grains dans la direction du tube expliquerait l'importance de la direction circonférentielle, qui est alors normale à la grande majorité des joints.

L'effet de l'état de contrainte sur la résistance à la CSC-I, même s'il peut être très important n'a donc été étudié qu'en fluage en milieu iode vapeur et n'est pas véritablement compris. En particulier, l'impact de l'état de contrainte sur l'amorçage intergranulaire des fissures n'a pas été déterminé.

I.4.2.3 Déformation

La déformation plastique est l'un des facteurs pouvant mener à la dépassivation du matériau. L'existence d'une déformation plastique seuil est attestée sur plusieurs études en iode vapeur. Bibilashvili constate une déformation seuil de 1.4% au-delà de laquelle on observe les premières fissures de CSC-I sur des tubes de Zr-1%Nb recristallisé testés en fluage à 170 MPa à 380°C (Bibilashvili 1996). Au-delà de ce seuil, la densité de courtes fissures (2-3 μm) augmente exponentiellement avec la déformation. Kubo a également observé l'augmentation de la densité de fissures avec la déformation macroscopique appliquée sur des éprouvettes en Zircaloy-2 recristallisé sollicitées en traction à vitesse de déformation imposée en iode vapeur à 350°C. Jones a tracé les déformations à rupture (mesurées post-essai) en fonction du temps à rupture pour ses essais sur tubes de Zircaloy-2 et Zircaloy-4 détendus en iode vapeur à 320°C et 360°C (Jones 1980). Les points obtenus définissent une courbe en U dont le minimum met en évidence un seuil en déformation. La forme en U montre aussi que la déformation macroscopique n'est pas toujours pertinente pour décrire la sensibilité à la CSC-I. Dans sa revue des valeurs seuils de la CSC-I en iode vapeur, Une montre que la déformation plastique seuil est comprise entre 0.5% et 1% (Une 1984).

Jacques a montré que la densité de fissures était intimement liée à la déformation plastique locale à partir d'observations MEB et de mesures locales par grille sur des éprouvettes de traction en zirconium et Zircaloy-4 recristallisé (Jacques 1994). Cela est notamment illustré pour le zirconium en méthanol iodé sur la Figure I.18 et reste vrai pour le Zircaloy-4 et également en milieu iode vapeur.

La déformation plastique locale semble donc jouer un rôle déterminant sur l'amorçage des fissures. En méthanol iodé, on ne dispose pourtant pas de données sur une éventuelle déformation seuil.

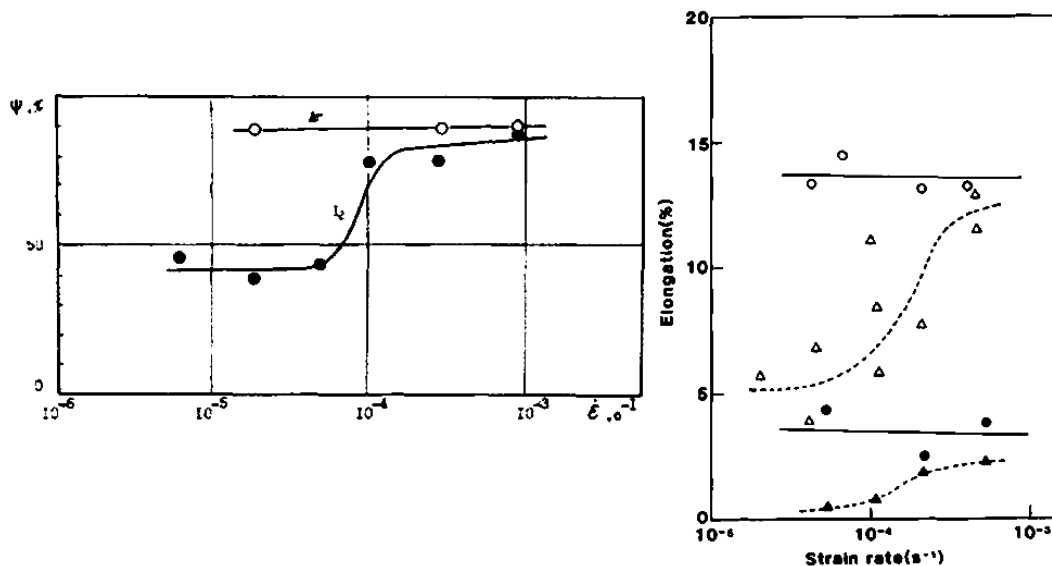


Figure I.23 : Limite du domaine de sensibilité à la CSC-I en vitesse de déformation : cas du Zr-1%Nb en iode vapeur à 360°C (gauche, (Goryachev 1992)) et du Zircaloy-4 à température ambiante en milieu méthanol iodé (droite, (Hirao 1988)). Sur la figure de droite, les ronds désignent les essais sans iode et les symboles pleins les essais sur matériau irradié aux neutrons.

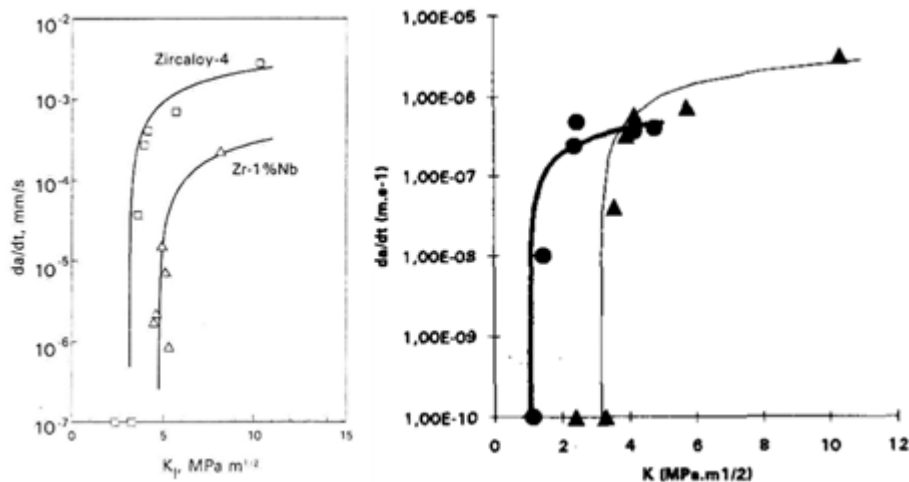


Figure I.24 : Courbes de vitesse de propagation des fissures en fonction du facteur d'intensité des contraintes, obtenues sur tubes pré-fissurés en milieu iode vapeur à 350°C. Comparaison entre Zircaloy-4 et Zr-1%Nb recristallisés (gauche, (Bibilashvili 1995)), et comparaison entre avant (triangles) et après irradiation (ronds) sur du Zircaloy-4 détendu (droite, (Schuster 1995)). On note des K_I^{seuil} compris entre 1 et 5 $\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$.

I.4.2.4 Vitesse de déformation

La vitesse de déformation est également un élément important puisque de nombreuses études ont montré qu'il existe un domaine de vitesse de déformation propice à la CSC-I, où la perte de ductilité est plus importante. Citons Peehs qui a étudié la CSC-I de tubes en Zircaloy (non précisé) pour des vitesses comprises entre $4 \cdot 10^{-9}$ et $5 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ (Peehs 1979). Si une perte de ductilité est observée sur tout ce domaine pour une concentration en iode de $10^{-2} \text{ mg}\cdot\text{cm}^{-2}$, elle est divisée par plus de 4 seulement entre $6 \cdot 10^{-8}$ et $5 \cdot 10^{-7} \text{ s}^{-1}$, avec un maximum à $1.5 \cdot 10^{-7} \text{ s}^{-1}$. Mais les valeurs critiques de vitesse d'une étude à l'autre varient fortement et bien souvent les études relatives à l'effet de vitesse de déformation ne déterminent que la borne supérieure du domaine. C'est notamment le cas de Goryachev sur

des éprouvettes de traction en Zr-1%Nb recristallisé à 350°C et 900 Pa d'I₂ et d'Hirao sur barreaux de Zircaloy-4 recristallisés irradiés ou non testés à température ambiante en méthanol iodé à 10⁻² g.g⁻¹ (Hirao 1988; Goryachev 1992). Dans ces deux études, la limite supérieure de sensibilité à la CSC-I, du point de vue des essais à rupture, est proche de 10⁻⁴ s⁻¹ (Figure I.23). Au-dessus, on n'observe pas de perte de ductilité. En compilant les données de différentes études, Une montre que le maximum de sensibilité à la CSC-I en iode vapeur peut différer de deux ordres de grandeur selon les conditions expérimentales.

Si la limite supérieure en vitesse est associée à l'apparition d'un endommagement purement mécanique, Jones attribue la présence d'une limite inférieure à une vitesse nécessaire pour casser un film fin en surface en cours de formation, ce dernier pouvant être la couche d'oxyde ou une couche d'iodure solide (Jones 1979). Sans la cassure de ce film, la fissure ne peut progresser. Dans sa revue, Une a observé que les expériences utilisant une circulation continue d'iode, avec maintien à une même pression partielle pendant toute la durée de l'essai, ne présentaient pas de limite inférieure en vitesse, contrairement aux essais « clos » avec une quantité d'iode fixe (Une 1984). Une transformation progressive de l'iode en iodures de zirconium, moins volatils ou agressifs, dans les atmosphères fermées et pour des temps longs (et donc des vitesses faibles) expliquerait l'apparente vitesse limite inférieure.

I.4.2.5 Facteur d'intensité de contraintes

Le facteur d'intensité des contraintes est un paramètre très important de la propagation des fissures de CSC-I. La vitesse de propagation et le mode de fissuration (inter- ou transgranulaire) semblent être contrôlés par le facteur d'intensité des contraintes (K_I). Ainsi Videm a observé sur des tubes pré-fissurés en Zircaloy-2 recristallisé à 340°C que la vitesse de propagation augmente de manière affine avec K_I (Videm 1979). Pour un K_I inférieur à 7 MPa.m^{1/2}, la propagation est purement intergranulaire ; au-delà, elle est mixte jusqu'à 8 MPa.m^{1/2}, puis complètement transgranulaire. Une telle transition de mode de fissuration est également observée en milieu méthanol iodé à température ambiante. A partir de la forme des fissures et de formules analytiques pour K_I , Farina a trouvé que le facteur d'intensité des contraintes correspondant à la transition intergranulaire-transgranulaire (K_I^{trans}) était en moyenne de 11 MPa.m^{1/2} pour du Zircaloy-4 recristallisé dans du méthanol notamment (Farina 2004).

Pour une éprouvette avec pré-fissure ou un défaut, le K_I^{seuil} ou K_{ISCC} est défini comme étant la valeur à franchir pour qu'une fissure fragile se propage. Il représente donc la ténacité du matériau en présence d'iode. Ce K_I^{seuil} est le plus souvent obtenu en traçant l'évolution de la vitesse de propagation des fissures (en échelle logarithmique) en fonction de K_I , comme illustré sur la Figure I.24.

Parce que les faciès d'échantillons fissurés sont principalement transgranulaires et que les vitesses de propagation intergranulaires sont souvent très faibles, le K_I^{seuil} est parfois assimilé au K_I^{trans} . Ce n'est pas rigoureusement vrai puisque des fissurations intergranulaires mixtes peuvent être observées sur des échantillons entaillés (Knorr 1982; Norring 1982; Serres 2008). De plus Videm a noté l'absence de seuil sur ces essais et une dépendance en puissance 9 de la vitesse de propagation par rapport au K_I (Videm 1979). Avec la forme des courbes présentées, on définit le seuil de propagation « rapide » de la fissure, mais pas une ténacité au sens strict.

La plupart des vitesses de propagation sont calculées par la détermination de l'étendue intergranulaire après essai et sa division par le temps d'essais (cas des pré-fissures). Serres a étudié la propagation de fissures de CSC-I dans du Zircaloy-4 recristallisé en milieu méthanol iodé par suivi électrique (Serres 2008). Elle a ainsi pu observer une dépendance

quasi linéaire de la vitesse avec K_I , un seuil de fissuration proche de $6 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ et une transition de fissuration (intergranulaire vers mixte) pour environ $13 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$.

I.4.3 Paramètres matériaux et microstructuraux

Le champ d'études de la CSC-I n'est pas extrêmement vaste. De plus, aux variations des conditions expérimentales, s'ajoute la diversité des matériaux étudiés. Ce foisonnement d'états métallurgiques complique l'analyse bibliographique. Il est cependant nécessaire de comprendre dans quelle mesure ces différences d'états métallurgiques ont un impact sur la CSC-I avant de pouvoir comparer diverses études. C'est l'objet de ce paragraphe qui traite de quelques aspects métallurgiques et microstructuraux.

I.4.3.1 Composition de l'alliage

Selon les réacteurs et les époques, les alliages utilisés pour le gainage des crayons diffèrent. On peut s'interroger sur l'effet de la composition chimique sur la sensibilité à la CSC-I.

Il apparaît tout d'abord que les Zircaloy sont beaucoup plus sensibles à la CSC-I que le zirconium pur. Pour Nakatsuka, l'utilisation d'un liner de zirconium, en paroi interne de tubes en Zircaloy-2 testés en traction-pression interne à 350°C , protège totalement de la CSC-I (ductilité identique avec ou sans iode) (Nakatsuka 1982). Bibilashvili constate que la déformation seuil d'apparition de fissures sur des tubes en Zr-1%Nb est doublée à 2.6% en présence d'un tel liner (Bibilashvili 1996). La meilleure résistance du zirconium est attribuée à sa résistance mécanique beaucoup plus faible ; ce point sera repris dans la suite.

Goryachev a comparé la sensibilité à la CSC-I du zirconium, Zircaloy-2, Zircaloy-4 et Zr-1%Nb recristallisé par des essais de traction circonférentielle en milieu iode vapeur (900 Pa , 350°C) en choisissant la déformation à rupture comme indicateur (Goryachev 1992). Il trouve que le Zircaloy-4 est le plus sensible (perte de 72% de ductilité) devant le Zircaloy-2 (64%) et le Zr-1%Nb (30%). Mais cette perte de ductilité est linéaire avec la résistance mécanique des alliages testés. Le zirconium ne présente presque pas de perte de ductilité. Jones a testé des tubes de Zircaloy-2 et Zircaloy-4 détendus en iode vapeur à 350°C et, après avoir constaté des comportements mécaniques proches en milieu inerte, il a établi que les contraintes seuils pour la CSC-I des deux matériaux différaient de seulement 5% (Jones 1980).

La ténacité sous iode pourrait également être sujette à ces variations de « composition ». Park rapporte un K_I^{seuil} en iode vapeur à 350°C plus important pour le Zr-1%Nb que pour le Zircaloy-4, tous deux recristallisés, 4.8 contre $3.3 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$, mais sans préciser les caractéristiques mécaniques (Park 2007). Dans les mêmes conditions, Bibilashvili trouve un K_I^{seuil} de $4.8 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ pour le Zr-1%Nb, légèrement inférieur à celui trouvé par Brunisholz pour le Zircaloy-4 recristallisé ($5.4 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$) (Bibilashvili 1995).

L'effet de la composition chimique sur la sensibilité à la CSC-I semble donc résulter principalement de l'impact de la composition chimique sur le comportement mécanique. L'impact de la résistance mécanique de l'alliage est rappelé le paragraphe suivant.

Peu de données existent sur la seule étape d'amorçage des fissures. Kubo a testé en iode vapeur à 350°C des éprouvettes de traction à vitesse de déformation imposée, en Zircaloy-2 et zirconium recristallisés (Kubo 1985a). Pour une même déformation macroscopique (5 ou 8%), la densité de fissures sur le zirconium est bien plus faible que sur le Zircaloy-2 (environ 10 fois moins).

I.4.3.2 Microstructure

Plusieurs auteurs font état d'une plus faible perte de ductilité pour les alliages recristallisés que détendus en milieu iode vapeur, aussi bien pour le Zircaloy-4 (Busby 1975; Brunisholz 1987) que le Zircaloy-2 (Jones 1980). Mais pour une même contrainte, la différence de comportement mécanique entre les deux états peut rendre le matériau détendu plus résistant à la CSC-I (Jones 1980). Roberts a trouvé des contraintes seuils très proches pour le Zircaloy-2 détendu et recristallisé en iode vapeur ; ces contraintes représentent respectivement 40% et 120% de la limite d'élasticité (Roberts 1979). Lors de sa revue bibliographique des valeurs seuils de la CSC-I, Une a mis en évidence la relation unique qui existe entre contrainte seuil et limite d'élasticité pour les deux états métallurgiques (Une 1984). Cette relation est tracée sur la (Figure I.20) En considérant le rapport entre contrainte appliquée et limite d'élasticité, les alliages recristallisés apparaissent bien moins sensibles à la CSC-I que les alliages détendus.

Park a comparé la propagation des fissures dans le Zircaloy-4 détendu et recristallisé en iode vapeur par des essais de pressurisation interne en iode vapeur à 350°C sur tubes lisses ou pré-fissurés (Park 2008a). Le K_I^{seuil} pour l'alliage recristallisé est de 4.8 MPa.m^{1/2} contre 3.3 MPa.m^{1/2} pour le matériau détendu. De plus les vitesses de propagation sont dix fois moins importantes dans le matériau recristallisé ($\leq 0.1 \mu\text{m.s}^{-1}$). Bibilashvili a replacé les K_I^{seuil} de différents alliages, irradiés ou non, sur une même courbe en traçant leur évolution en fonction de la résistance mécanique ; il montre que celle-ci est le paramètre critique de la sensibilité à la CSC-I (Bibilashvili 1995a).

Ces résultats s'expliqueraient notamment par les différences de limites d'élasticité : pour un K_I donné, souvent déterminé via des formules de mécanique linéaire de la rupture, la taille de la zone plastique en pointe de fissure est plus importante dans les alliages à plus faible limite d'élasticité (par exemple les recristallisés par rapport aux détendus). La concentration réelle des contraintes y est donc inférieure, d'où un K_I^{seuil} plus élevé. Les différences observées d'un alliage à l'autre seraient principalement dues à la résistance mécanique.

Des effets de recuit et de pré-déformation ont également été constatés par différents auteurs et peuvent être reliés à ce qui vient d'être dit. Sur ses éprouvettes de déformation plane testées en iode vapeur, Choo observe qu'un recuit à 630°C fait passer la fissuration de totalement transgranulaire à mixte, laissant supposer une augmentation du K_I^{trans} (Choo 1987). Jacques a réalisé des traitements thermiques sur des tôles de zirconium pour augmenter la taille de grains de 10 à 250 μm avant de les tester en méthanol iodé (Jacques 1999a). Sans mentionner les différences de comportement mécanique, il constate un nombre bien moins important de fissures avec les gros grains.

Fregonese a étudié l'influence d'une pré-déformation plastique sur la CSC-I d'éprouvettes de traction de Zircaloy-4 recristallisé sollicitées à contrainte constante en milieu méthanol iodé à température ambiante (Fregonese 2008). La propagation transgranulaire apparaît favorisée par un écrouissage avant exposition. Etant donnée la faible capacité d'écrouissage du matériau utilisé, cet effet ne semble pas lié à la résistance mécanique mais plus à la création de sites de transition inter-transgranulaires proposés par Kubo, à savoir des bandes épaisses de glissement qui émergent aux joints de grains. Lors de son étude de la corrosion intergranulaire du Zircaloy-2 en méthanol iodé bouillant, Nicholson a immergé des éprouvettes non oxydées avec ou sans déformation plastique préalable (Nicholson 1980). Il n'a pas constaté d'effet sur la cinétique de perte de masse.

Il se pourrait donc qu'une pré-déformation plastique n'affecte que la phase de propagation des fissures, effet de résistance mécanique mis à part. Son influence sur la seule étape d'amorçage des fissures de CSC-I n'est pas claire et nécessiterait une étude plus approfondie.

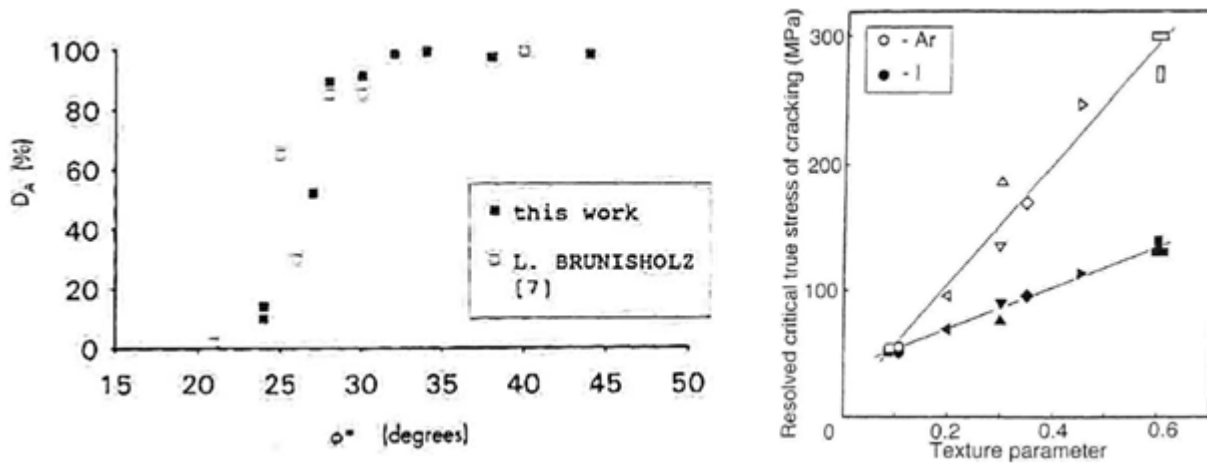


Figure I.25 : Influence de la texture sur la sensibilité à la CSC-I. A gauche la perte relative de ductilité D_A est tracée en fonction de l'angle ϕ^* décrit dans le texte (Schuster 1992). Les symboles concernent aussi bien du Zircaloy-4 détendu que recristallisé, testés en iode vapeur à 350°C. A droite, relation linéaire entre la contrainte critique appliquée sur les plans de base ($\sigma_{SCC.f}$) et la fraction f de pôles de base dans la direction de sollicitation, pour du Zr-1%Nb en iode vapeur à 350°C (Goryachev 2001). Mise en évidence d'une contrainte critique de clivage.

I.4.3.3 Texture cristallographique/orientation de la contrainte

La texture cristallographique est le paramètre microstructural le plus important pour la CSC-I. Son impact majeur concerne la propagation transgranulaire des fissures. Selon l'orientation des grains lors de cette phase, ceux-ci vont casser par flutting (activation du glissement prismatique) ou par clivage (contrainte principale proche de la normale aux plans de base).

Plusieurs études en iode vapeur sur tubes de texture standard ont montré que la sensibilité à la CSC-I dans la direction axiale était très inférieure voire inexistante comparativement à la direction circonférentielle (Une 1979b; Nakatsuka 1982; Brunisholz 1987).

Schuster a étudié l'influence de la texture en comparant la perte relative de ductilité lors d'essais de traction circonférentielle en iode vapeur à 350°C sur anneaux en Zircaloy-4 prélevés sur des tubes issus d'un même lingot mais ayant subi des traitements thermo-mécaniques différents, menant à des textures plus ou moins radiales et des états métallurgiques différents (Schuster 1992). La texture est décrite par l'angle ϕ^* (axe $\langle c \rangle$, direction radiale). Plus ϕ^* est faible et plus la texture est radiale. Dans ces conditions, la sensibilité à la CSC-I des différents tubes ne semble expliquée que par la valeur de ϕ^* comme cela est montré sur la Figure I.25 et non pas par la résistance mécanique. Pour $\phi^* < 25^\circ$, la sensibilité à la CSC-I disparaît. La fissuration transgranulaire est défavorisée à faible ϕ^* au profit de l'intergranulaire. Goryachev a étudié l'effet de la texture notamment du Zr-1%Nb par des essais sur éprouvettes de traction dans les mêmes conditions, mais du point de vue de la contrainte seuil σ_{SCC} et de la fraction f de pôles de base dans la direction de traction (Goryachev 2001). Il trouve une relation linéaire entre la contrainte seuil appliquée sur les plans de base ($\sigma_{SCC.f}$) et f (Figure I.25, droite) qui peut se réécrire de la façon suivante: $(\sigma_{SCC} - \sigma_i)f = \sigma_n$ avec σ_i une constante représentant une contrainte interne et σ_n une constante représentant la contrainte de clivage en présence d'iode. La condition de fragilisation par l'iode serait donc le dépassement par la contrainte effective d'une contrainte de clivage des plans de base dont la valeur dépend de la présence de l'iode, en accord avec un mécanisme d'adsorption/fragilisation des plans de base.

Les résultats de ces deux études concernent des essais à rupture et intègrent un éventuel effet de la texture sur la phase d'amorçage des fissures mais ne peuvent l'isoler.

Pour tester l'influence de la texture sur l'amorçage, Peehs a testé en pression interne un tube usiné dans une plaque épaisse de Zircaloy (non précisé) à texture normale (Peehs 1979). Cela lui permet d'avoir une texture variable en fonction de l'angle dans le repère cylindrique du tube. Elle est radiale pour un angle nul et circonférentielle à 90°. Il observe que les fissures ne s'amorcent pas pour les angles faibles et que le maximum de densité de fissures se trouve entre 50 et 70°. La texture circonférentielle ne serait donc pas la plus propice à l'amorçage des fissures. Cependant, Diard a réalisé des calculs par éléments finis d'une telle géométrie et observé que les lieux d'amorçage privilégiés étaient des lieux de concentration de déformation (Diard 2001). Ce ne serait donc pas un effet intrinsèque de la texture mais une conséquence de l'anisotropie de comportement qui découle de la texture. L'effet de texture sur la phase d'amorçage des fissures n'est pas clair.

Knorr a étudié l'évolution du K_I^{seuil} en iode vapeur en fonction du paramètre de texture f en prélevant des éprouvettes de mécanique de la rupture selon plusieurs plans de deux tôles épaisses en Zircaloy-2 et Zircaloy-4 détendus ou recristallisés (Knorr 1982). Pour les éprouvettes les mieux orientées pour le quasi-clivage ($0.6 < f < 0.7$), il trouve des ténacités de 4 et 6 $\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ respectivement pour les matériaux détendus et recristallisés. Plus la fraction f diminue et plus le seuil augmente, pour atteindre respectivement 17 et 23 $\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$. La présence de fissuration intergranulaire est associée aux matériaux recristallisés à faible K_I , une propagation purement intergranulaire peut mettre être observée. Hwang a observé la même croissance du K_I^{seuil} avec f , de 10 à 14 $\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ pour un intervalle de 0.3 à 0.8, sur des éprouvettes de flexion entaillées en Zircaloy-4 après différents traitements thermomécaniques (Hwang 1991).

Serres a déterminé que, pour un même K_I , les vitesses de propagation sont similaires pour des barreaux entaillés de type LT (chargement selon L, propagation selon T) et de type TL, sollicités à force constante à température ambiante en méthanol iodé (Serres 2010). Ces vitesses varient linéairement avec K_I comme cela est montré sur la Figure I.18. Elle a également mesuré les cinétiques de propagation. L'orientation plus propice au quasi-clivage des plans de base pour le type TL que pour le type LT ne conduit donc pas nécessairement à une propagation plus rapide. De plus, le facteur d'intensité des contraintes de transition entre propagation intergranulaire et mixte est plus faible pour les éprouvettes de type LT. La seule orientation des plans de base par rapport à la contrainte appliquée ne peut expliquer ces résultats. La plasticité en pointe de fissure, l'orientation des plans prismatiques et l'anisotropie mécanique doivent avoir un impact également. Schuster suppose que la taille de la zone plastique pourrait atténuer les effets d'orientation dans le cas d'essais sur matériau à petits grains (Schuster 1989b).

I.1.1.1 Couche d'oxyde

Il est généralement admis que la présence d'une couche d'oxyde en surface des échantillons protège de la CSC-I et que sa rupture est une étape indispensable à la fissuration. Plusieurs études avec éprouvettes oxydées confirment un effet protecteur de la couche d'oxyde mais avec des limitations. Cela est notamment le cas de Yang qui a réalisé des essais de pressurisation sur tubes en Zircaloy-4 détendu à 360°C après traitements thermiques à l'air (Yang 1989). Pour de faibles épaisseurs, la protection apportée par l'oxyde est importante ; le temps à rupture est multiplié par 7 avec une couche de 0.2 μm (Figure I.26, gauche). Pour des épaisseurs plus importantes, l'effet protecteur diminue jusqu'à disparaître pour une épaisseur de 0.4 μm environ. Quand la couche est trop épaisse, elle se craquèle facilement avec les déformations de fluage. Wood a observé que des tubes dont la face interne avait été

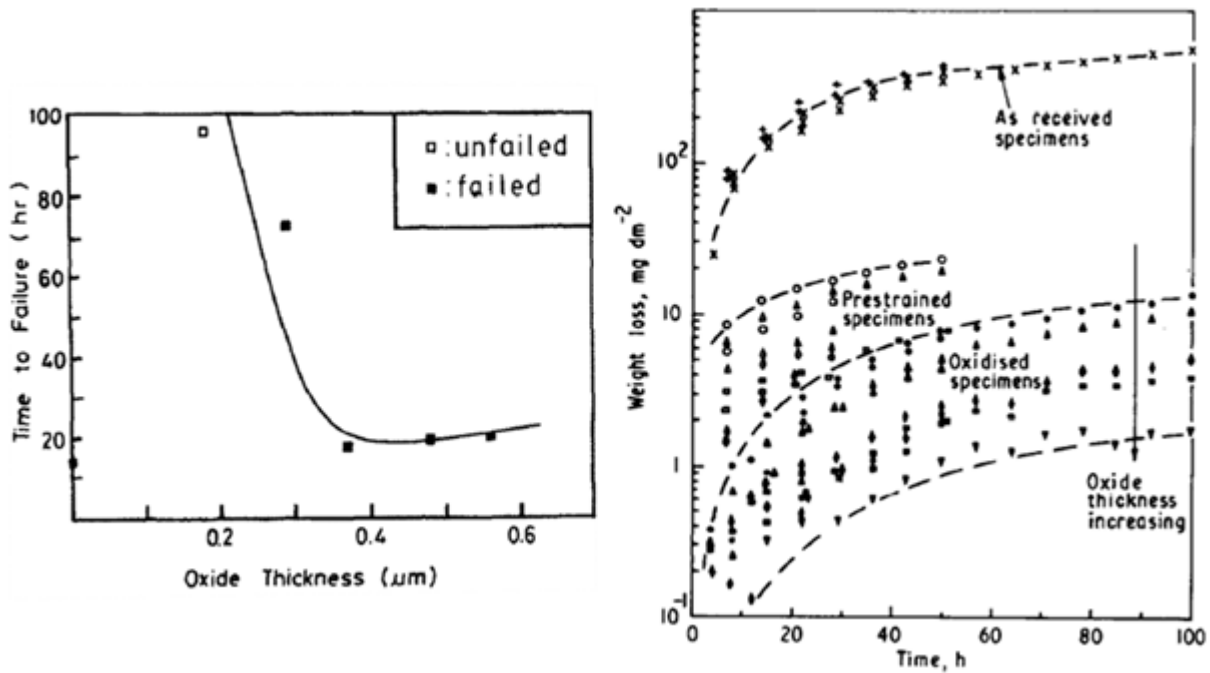


Figure I.26 : Illustrations de l'effet protecteur de la couche d'oxyde sur le temps à rupture de tubes en Zircaloy-4 sous pression en milieu iode vapeur (gauche, (Yang 1989)) et sur la perte de masse d'éprouvettes en Zircaloy-2 en milieu méthanol iodé bouillant (droite, (Nicholson 1980)).

décapée par l'acide fluorhydrique étaient moins sensibles à la CSC-I (température seuil de 280°C au lieu de 220°C) (Wood 1972). Pour expliquer cela, il suppose deux effets, le remplacement de la couche d'oxyde par une nouvelle, plus fine et plus adhérente, mais également la disparition des contraintes résiduelles pouvant exister dans cette couche. Dinu a testé différents anneaux ouverts à 300 MPa et 320°C, après obtention de couches d'oxydes de 2.7, 4.5 et 8 µm (Dinu 2008). Pour la plus petite épaisseur, seules des piqures sont observées tandis que, pour l'épaisseur intermédiaire, de petites amorces de fissures sont notées. Pour la plus grande, elle observe une exfoliation de la couche, menant à l'amorçage de fissures qui propagent dans la matrice. Des analyses par diffraction des rayons X montrent que l'effritement de la couche d'oxyde est lié à sa nature monoclinique, poreuse et fragile, à partir d'une certaine épaisseur. La couche d'oxyde, de structure tétragonale, compacte et adhérente, permet une protection à la CSC-I. La nature de la couche plus que son épaisseur est donc un paramètre déterminant. On comprend alors que des différences de surfaces initiales ou de préparation peuvent entraîner des écarts d'une étude à l'autre.

S'il est clair qu'une rupture mécanique de l'oxyde lui fait perdre son caractère protecteur, l'idée selon laquelle la couche non rompue protège totalement de l'attaque de l'iode n'est pas rigoureusement exacte. Nicholson a étudié la corrosion intergranulaire du Zircaloy-2 en milieu méthanol bouillant ($3.2 \cdot 10^{-4} \text{ g.g}^{-1}$) et mesuré les pertes de masses après exposition sans contrainte d'éprouvettes de référence, oxydées et oxydées puis déformées plastiquement (Figure I.26, droite) (Nicholson 1980). Si la perte de masse est très fortement réduite en présence d'oxyde, divisée par 38 pour une épaisseur de 0.35 µm et par 317 pour 1.84 µm, elle est toujours présente ; ce qui indique que la couche d'oxyde peut être transformée chimiquement. La protection est également perdue après cassure du film par pré-déformation des éprouvettes oxydées. Cette perte de masse du fait de la corrosion intergranulaire a également été observée en milieu iode vapeur par Rosenbaum sur des coupons de zirconium avec ou sans couche d'oxyde créée en autoclave (Rosenbaum 1966).

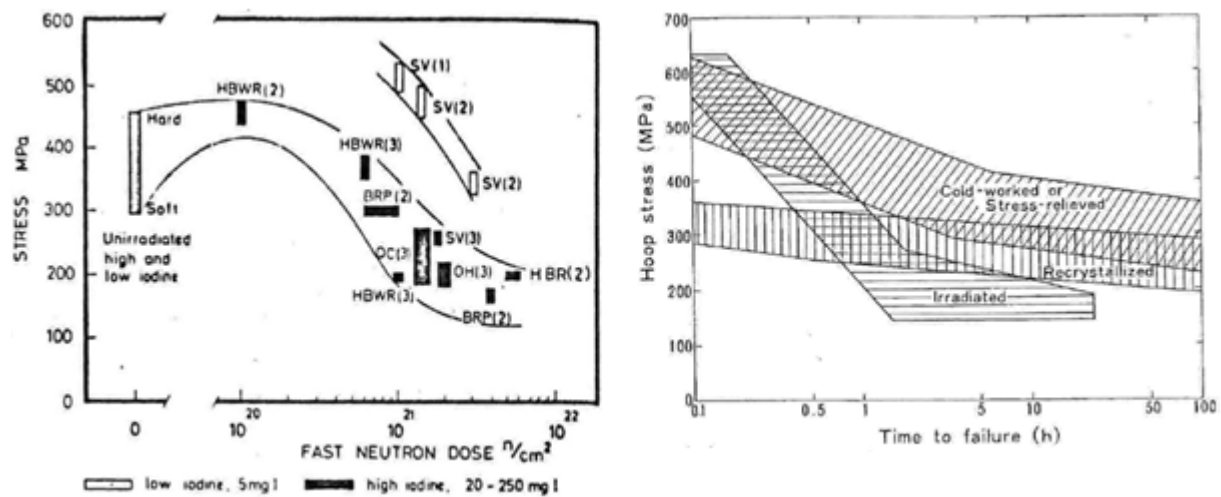


Figure I.27 : Augmentation de la sensibilité à la CSC-I due à l'irradiation. A gauche, évolution de la contrainte menant à des ruptures de 1 à 3 h en fonction de la dose reçue, compilée à partir de différentes études (Lunde 1980). A droite, comparaison des contraintes à rupture entre alliages détendus, recristallisés et irradiés, synthèse de plusieurs études en iode vapeur (Une 1984).

I.4.3.4 Irradiation

L'irradiation, aux neutrons ou particules chargées, induit des modifications microstructurales importantes qui ont notamment un fort impact sur le comportement mécanique. Etant une caractéristique inhérente aux gaines de réacteur, l'étude de son impact sur la CSC-I est essentielle. Mais du fait des contraintes expérimentales liées à l'utilisation des matériaux irradiés, un nombre limité d'études a été réalisé.

La phénoménologie générale de la fissuration semble inchangée par l'irradiation aux neutrons. Les modes de fissuration intergranulaire, mixte ou transgranulaire sont retrouvés. Cela a été constaté aussi bien en iode vapeur sur du Zircaloy-4 détendu (Schuster 1995), sur du Zr-1%Nb (Bibilashvili 2000), sur Zircaloy-2 recristallisé (Shimada 1983), qu'en méthanol iodé sur Zircaloy-4 recristallisé (Fregonese 1997). Des différences sont remarquées par rapport au matériau non irradié. Bibilashvili constate une proportion plus importante de fissuration intergranulaire sur matériau irradié ($1.5 \cdot 10^{22} \text{ n.cm}^{-2}$) sans explication à ce sujet. Fregonese, en revanche, observe du quasi-clivage seulement sur Zircaloy-4 recristallisé irradié ($1.1 \cdot 10^{21} \text{ n.cm}^{-2} = 1.6 \text{ dpa}$) pour une vitesse de déformation imposée de $4.7 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ dans la direction de laminage et pour une concentration de $5 \cdot 10^{-6} \text{ g.g}^{-1}$.

L'irradiation entraîne une sensibilité accrue à la CSC-I. Cela se traduit notamment par la baisse de la contrainte seuil lors d'essais de pressurisation interne sur tubes en milieu iode vapeur. Une a synthétisé les données de différentes études sur Zircaloy-2 et Zircaloy-4, détendu ou recristallisé, irradié (de $2 \cdot 10^{20}$ à $6 \cdot 10^{21} \text{ n.cm}^{-2}$) et les a placées sur un diagramme contrainte - temps à rupture (Figure I.27) (Une 1984). Sur cette figure est également tracée l'évolution de la contrainte à rupture en fonction de la dose reçue, compilée par Lunde à partir de différents programmes de recherche (Lunde 1980). Les contraintes à rupture sont donc abaissées par l'irradiation. Schuster n'a pas trouvé de changement de sensibilité du Zircaloy-4 détendu irradié ($3.27 \cdot 10^{21} \text{ n.cm}^{-2}$) sur des essais de pressurisation de tubes lisses ; les mêmes temps à rupture sont observés pour les mêmes contraintes (400-600 MPa) et les contraintes seuils ne diffèrent que de 20 MPa (Schuster 1995). Ces observations sont contredites par celles de Le Boulch qui constate une très nette chute du temps à rupture avec l'irradiation (1 ou 2 cycles REP, environ 1.6 dpa par cycle) sur des essais de pressurisation interne sur tubes de Zircaloy-4 recristallisé (Le Boulch 2004). A 400 MPa, l'irradiation divise par plus de 6 le temps à rupture, et par plus de 20 à 300 MPa. La

contrainte seuil semble aussi affectée, elle passe ainsi d'environ 300 MPa à moins de 150 MPa.

La sensibilité accrue du matériau irradié a été mise en évidence en milieu méthanol iodé à température ambiante par des essais de traction à vitesse de déformation imposée. Fregonese constate une déformation à rupture des éprouvettes irradiées dix fois plus faible que pour les échantillons non irradiés pour une concentration en iode de 10^{-5} g.g⁻¹ (Fregonese 1997). Hirao observe une chute très importante de la déformation à rupture de barreaux en Zircaloy-4 recristallisé après irradiation lors d'essais à une concentration en iode très élevée de 10^{-2} g.g⁻¹ (Hirao 1988). Ces déformations à rupture sont tracées sur la Figure I.23. On constate de plus sur cette figure que la CSC-I sur matériau irradié garde une sensibilité importante vis-à-vis de la vitesse de déformation. Serres a réalisé des essais sur barreaux en Zircaloy-4 recristallisé dont une partie était irradiée aux protons (2 dpa), avec des concentrations en iode allant de 1 à $6 \cdot 10^{-6}$ g.g⁻¹ (Serres 2008). Des fissures de CSC-I se sont développées dans la couche irradiée alors que, dans les mêmes conditions, le matériau non irradié n'en présentait pas.

L'irradiation impacte également la phase de propagation des fissures. Schuster a déterminé le K_I^{seuil} et les vitesses de propagation de fissures de CSC-I sur Zircaloy-4 irradié par la réalisation d'essais de pressurisation interne sur tubes lisses et entaillés en iode vapeur à 350°C (Schuster 1995). Ses courbes de vitesses de propagation en fonction de K_I sont données sur la Figure I.24, à droite. L'irradiation abaisse le K_I^{seuil} de 3.2 à 1.5 MPa.m^{1/2} et augmente légèrement les vitesses de propagation. Bibilashvili a réalisé des essais dans des conditions similaires sur du Zr-1%Nb avant et après irradiation et a également observé une diminution du K_I^{seuil} de 4.8 à 2.0 MPa.m^{1/2} (Bibilashvili 2000). Mais il constate une forte diminution de la vitesse de propagation pour un même K_I entre matériau non irradié et matériau irradié, ce qui peut être rapproché de la présence plus importante de fissuration intergranulaire.

Plusieurs explications sont proposées pour expliquer la plus grande sensibilité à la CSC-I des alliages irradiés. Dans sa revue de données expérimentales, on a vu qu'Une a tracé les contraintes seuil de la CSC-I en fonction de la résistance mécanique des matériaux et constaté une relation entre les deux ((Figure I.20), (Une 1984)). Les essais sur matériaux irradiés ne s'écartent pas de la tendance mise en évidence. De ce point de vue, l'irradiation n'aurait un impact que par le durcissement qu'elle induit. Une observation similaire avait été faite par Bibilashvili sur les K_I^{seuil} (Bibilashvili 1995a). En traçant les K_I^{seuil} en fonction de la résistance mécanique, cet auteur constate également une relation linéaire, valable pour matériaux non irradiés et irradiés.

Lee et Onchi ont émis l'hypothèse que des changements aux niveaux de l'activation de systèmes de glissement pouvaient causer une sensibilité accrue à la CSC-I et notamment la canalisation basale à l'échelle du grain qui concentre la déformation dans des bandes nettoyées des défauts d'irradiation (Lee 1977; Onchi 1983). Cette hypothèse a été en partie vérifiée par Serres sur Zircaloy-4 recristallisé irradié aux protons (Serres 2008). Elle a corrélié la présence des fissures intergranulaires à celle de bandes de déformation macroscopiques, qui seraient la conséquence du comportement adoucissant de certains grains présentant de la canalisation basale. Quand la concentration augmente, jusqu'à $6 \cdot 10^{-6}$ g.g⁻¹, la fissuration pourrait se faire avant l'apparition des bandes de déformation.

Un tel comportement adoucissant pourrait également expliquer la plus faible ténacité du matériau irradié en présence d'iode. Régnard a effectué des calculs par éléments finis en pointe de fissure d'un matériau avec un comportement adoucissant et a comparé les résultats avec un matériau plastique parfait (Regnard 2002). Le caractère adoucissant entraîne une localisation de la déformation dans une bande située sur le plan de

propagation. Il n'observe pas de développement de grandes zones plastiques à $\pm 55^\circ$ comme pour le matériau plastique. La fissure progresse dans une bande de matériau adoucie et donc de résistance moindre, entraînant une baisse du K_I^{seuil} .

Lors de sa compilation de données issues de différents programmes de recherches, Lunde a observé que le matériau irradié garderait une sensibilité à la quantité d'iode pendant les essais (pour une quantité comprise entre 5 et 55 mg) alors que les effets de l'iode saturent sur le matériau vierge (entre 5 et 100 mg) (Lunde 1980). Une étude plus approfondie de cet effet est nécessaire.

I.5 Modélisation de la CSC-I

On a vu que la fissuration par CSC-I était influencée par un nombre très important de paramètres environnementaux, mécaniques ou microstructuraux et que les mécanismes mis en jeu ne sont pas clairement établis. Il est cependant nécessaire de pouvoir modéliser les ruptures par CSC-I, ne serait-ce que de façon phénoménologique, afin de garantir la non-rupture des crayons lors d'éventuels transitoires de puissance incidentels. Quelques modèles d'endommagement par CSC-I sont exposés ci-après. Les mises en équation des phénomènes renseignent sur les paramètres considérés comme les moteurs de l'endommagement.

I.5.1 Modèle de l'EPRI (Miller 1981)

Il s'agit d'un modèle unidirectionnel qui comprend aussi bien l'amorçage que les propagations intergranulaire et transgranulaire. Dans le cadre d'un calcul par éléments-finis, ce modèle est applicable à une ligne d'éléments situés dans le plan d'une éventuelle fissure de CSC-I. Dans leur article, les auteurs ne prennent pas en compte d'endommagement mécanique mais considèrent uniquement une quantité d'iode locale. Lorsque celle-ci dépasse une valeur critique locale, l'élément est supposé rompu. Pour le premier élément en face interne de la gaine qui va fissurer ou pour le premier élément en pointe d'une fissure existante, la concentration en iode suit l'équation suivante :

$$I = A \cdot e^{\frac{-Q}{RT}} \cdot \left(I_{\text{eff}} \cdot e^{\frac{-\varepsilon_c}{\varepsilon^k}} - I \right) \quad \text{Eq. I.4}$$

Avec ε_c une déformation critique, ε la déformation en pointe de fissure, I la concentration en iode de l'élément considéré et I_{eff} la concentration effective en iode dans le milieu, prise inférieure ou égale à $10^{-1} \text{ mg.cm}^{-2}$ (saturation des effets de l'iode au-delà). La rupture de l'élément se produit si I dépasse une concentration limite I_R . Dès lors, la pointe de fissure se déplace et le modèle s'applique à la nouvelle pointe de fissure.

La fissuration intergranulaire se produit pour une concentration constante $I_R = I_{IG} = 10^{-3} \text{ mg.cm}^{-2}$. La concentration limite de fissuration transgranulaire I_{TG} dépend, quant à elle, de la contrainte appliquée et de la contrainte seuil $\sigma_{CSC} = 448 \text{ MPa}$ (équivalente au dépassement du K_I^{seuil}) via :

$$I_{TG} = I_{IG} \cdot \left(\frac{\sigma_{CSC}}{\sigma} \right)^4 \quad \text{Eq. I.5}$$

En prenant $I_R = \min(I_{IG}, I_{TG})$, la fissuration débute et propage de façon intergranulaire jusqu'à ce que la contrainte en pointe de fissure dépasse, au même titre que le facteur d'intensité des contraintes, une valeur seuil. La propagation est alors transgranulaire. Un seuil en déformation ε_R est également introduit pour la rupture ductile. Si la déformation devient trop importante et que la concentration en iode I n'a pas eu le temps d'atteindre I_R , l'élément est considéré comme rompu. L'influence de l'irradiation est prise en compte par la

modification du comportement mécanique de la gaine et par un abaissement de la déformation critique ϵ_c .

La concentration locale en iode est donc le moteur de l'endommagement. Le couplage entre mécanique et chimie est très limité, la déformation permettant une meilleure diffusion de l'iode. L'absence de dommage mécanique cumulé fait que l'iode précède le dommage. En ne considérant que l'évolution de I comme critère de rupture, la condition $I_R = \min(I_{IG}, I_{TG})$ avec $I_{TG} < I_{IG}$ lors de la phase transgranulaire implique une vitesse de fissuration transgranulaire plus élevée.

I.5.2 Modèle de Besson-Bugat (Besson 2006)

Ce modèle est écrit pour simuler la fissuration d'un matériau par éléments-finis à l'aide d'éléments de zones cohésives. Ce type d'éléments permet théoriquement de s'affranchir de l'influence de la taille des mailles sur la vitesse de propagation des fissures.

Le comportement mécanique de tels éléments est régi par une surface d'écoulement reliant l'ouverture équivalente u^* et une contrainte effective T^* . L'ouverture critique u_c permet de définir une variable d'endommagement $D = u^*/u_c$. Avec la limite d'écoulement T_0 , u_c permet de définir l'énergie de surface minimale nécessaire à la décohésion du joint $G_0 = u_c \cdot T_0$. Le dommage mécanique s'étend alors en amont de la pointe de fissure dans une zone appelée RPZ (*Remote Process Zone*), sur une étendue proportionnelle à G_0/T_0^2 .

La simulation de la corrosion sous contrainte est assurée par un couplage entre l'endommagement mécanique local et la pénétration de l'iode dans le matériau. Celle-ci est supposée régie par un phénomène de diffusion. La présence locale de l'iode fragilise le matériau en diminuant son énergie de surface locale. La diffusion de l'iode dans le matériau est favorisée par l'endommagement mécanique. L'iode va donc principalement diffuser dans la RPZ : le dommage mécanique précède l'iode. La transition entre fissuration intergranulaire et transgranulaire est prise en compte par une augmentation du coefficient de diffusion de l'iode quand la déformation plastique locale atteint un seuil. L'augmentation de la déformation plastique est supposée favoriser la propagation transgranulaire en permettant un accès de l'iode aux plans de base, par l'accumulation de bandes de déformation sur les joints de grain ou l'activation de nouveaux systèmes de glissement. Contrairement au modèle de l'EPRI, l'étape limitante de la fissuration n'est pas uniquement la diffusion de l'iode ; l'accumulation d'un dommage mécanique est nécessaire. Il est à noter que la loi d'endommagement retenue s'apparente au formalisme de la loi de Kachanov (Kachanov 1986).

I.5.3 Modèle Kachanov-EPRI du CEA (Le Boulch 2008)

Ce modèle est écrit pour simuler la fissuration d'un matériau par éléments-finis à l'aide d'éléments massifs. Il a été couplé aux lois de comportement disponibles dans MISTRAL (Limon 2010) utilisable dans CAST3M (CEA) et permet un couplage entre mécanique, endommagement et pénétration de l'iode dans le matériau.

L'endommagement total D est la somme d'un endommagement purement mécanique $D_{méca}$ et d'un endommagement de CSC-I D_{CSC} . L'évolution des dommages suit une loi de Kachanov (Kachanov 1986). En particulier, l'évolution du dommage de corrosion s'écrit :

$$D_{CSC} = A_I \cdot e^{\frac{-Q}{RT}} \cdot \left(\frac{\sigma_p}{(1-D)C_I} - \sigma_0 \right)^{B_I} \quad \text{Eq. I.6}$$

σ_p est la contrainte principale maximale et σ_0 une contrainte seuil. Les paramètres A_I , B_I et C_I dépendent de la concentration en iode I . Par exemple, l'évolution de A_I avec la

concentration en iode I est décrite de la manière suivante : si I est inférieure à une concentration limite I_0 , A_I est nul et aucun dommage de corrosion ne se développe. Si I dépasse une concentration de saturation $I_1 > I_0$, A_I prend une valeur positive et constante afin de simuler une saturation de l'effet de la concentration de l'iode. Entre I_0 et I_1 , A_I varie linéairement avec I .

La pénétration de l'iode dans le matériau est inspirée du modèle de l'EPRI (Miller 1981), l'iode n'est supposé être présent que dans le premier élément non rompu. L'iode ne diffusant pas dans le matériau non contraint, son transport est couplé à la mécanique. La loi de Fick est considérée avec un tenseur anisotrope de diffusion. Les coefficients de diffusion sont reliés à la vitesse de déformation plastique $\dot{\epsilon}_p$, par des équations non détaillées ici. L'augmentation locale de la concentration en iode est nécessairement liée à une mise en charge du matériau. Cette approche est importante pour la prise en compte d'essais à chargements complexes. En effet, les auteurs mentionnent le cas d'essais CSC-I sur tubes en iode vapeur par écrouissage-relaxation, ne menant pas à la rupture malgré des contraintes supérieures à celles causant des ruptures lors d'essais de pressurisation standard.

Ce modèle choisit la contrainte principale comme moteur de l'endommagement mais le transport de l'iode est assuré par une déformation plastique active. Une distinction est alors introduite entre fragilisation par l'iode (pénétration et activation d'un dommage associé) et fissuration (accumulation d'un dommage mécanique). Aucune distinction n'est faite entre fissuration inter- et trans-granulaire.

I.5.4 Modèle de Diard-Musienko-Cailletaud

Sur la base d'une modélisation polycristalline du comportement et d'un endommagement intergranulaire proposés par Diard, Musienko a développé un modèle de CSC-I à l'échelle du grain permettant de faire propager des fissures de CSC-I de façon inter- ou trans-granulaire (Diard 2002; Musienko 2009). Les calculs sont effectués sur des agrégats de grains avec des polyèdres de Voronoï, principalement en 2D. Les joints de grains sont maillés par des éléments massifs (par opposition aux zones cohésives notamment), pour une épaisseur totale de joint égale à 0.1 μm . L'endommagement intergranulaire D ne dépend que de la contrainte dans les joints, via ses composantes normale σ_n et tangentielles τ par une évolution de type Kachanov et de la concentration en iode :

$$\dot{D} = \left(\frac{\sqrt{\sigma_n^2 + \tau^2}}{A(C)} \right)^r (1 - D)^{-k} \quad \text{Eq. I.7}$$

A est un paramètre décroissant exponentiellement avec la concentration en iode C . Bien qu'un mécanisme d'adsorption-fragilisation soit admis, un transport de l'iode est possible dans les joints de grains, décrit par une équation standard de diffusion. Le coefficient de diffusion est décroissant avec l'endommagement, comme dans le modèle de Besson-Bugat mentionné. La grande particularité de ce modèle concerne la propagation transgranulaire. Seul le clivage selon les plans de base est considéré, par l'introduction d'une déformation inélastique normale à ces plans quand la contrainte dans cette direction dépasse un seuil critique. Une évolution de cette déformation avec le temps et un comportement adoucissant permettent une régularisation de la fissuration tout en obtenant des vitesses de propagation importantes. Le modèle complet avec les deux modes de fissuration permet de retrouver des caractéristiques de la fissuration observées dans différentes études expérimentales. La propagation est initialement intergranulaire et devient transgranulaire, principalement au niveau des points triples (Figure I.28), mais également au milieu d'un joint quand les grains entourant la fissure présentent des systèmes de déformation activés très différents.

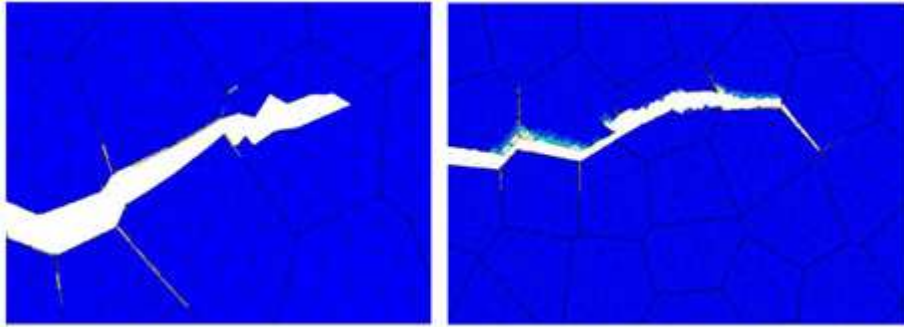


Figure I.28 : Chemin de fissuration mixte inter- et trans-granulaire obtenus par le modèle de Musienko sur deux agrégats 2D de grains, de taille moyenne égale à $10\ \mu\text{m}$. Un chargement en vitesse de déformation imposée ($2\ 10^{-4}\ \text{s}^{-1}$) est appliqué le long de la verticale aux images (Musienko 2009).

Le modèle autorise également un retour à une fissuration intergranulaire après clivage d'un ou plusieurs grains (Figure I.28). Les vitesses de propagation transgranulaires simulées sont bien supérieures à celles intergranulaires.

Si ce modèle adopte une échelle pertinente pour l'étude des paramètres critiques de la CSC-I, plusieurs points limitent son utilisation. Les simulations polycristallines nécessitent des temps de calculs très importants, encore plus quand de l'endommagement est introduit. L'auteur constate des variations de chemins de fissuration quand la densité de maille est trop faible. Les simulations en 3D sont limitées à un agrégat de 20 grains, sûrement inférieur au volume élémentaire représentatif pour les mêmes raisons. La propagation transgranulaire ne consiste qu'en du clivage sur les plans de base. Or de nombreuses études montrent que le flutting est bien souvent majoritaire, notamment lors de sollicitations selon la direction circonférentielle (ou transverse pour les plaques) à cause d'une texture globalement normale. Il reste également à identifier les paramètres du modèle pour retrouver des résultats expérimentaux donnés, comme les temps à l'amorçage, les vitesses de propagation ou les $K_{\text{I}}^{\text{seuil}}$.

I.5.5 Bilan et autres approches

Les modèles présentés considèrent une évolution de l'iode dans le matériau et son impact, progressif ou instantané, sur l'endommagement. Tous sont phénoménologiques dans le sens où ils ne s'appuient pas directement sur des mécanismes possibles. Ils considèrent une pénétration de l'iode dans la fissure et son évolution locale pour rendre compte de la fragilisation locale du matériau. L'échelle de la modélisation (à l'exception du modèle polycristallin) et l'absence de consensus sur les mécanismes ne permettent pas d'établir de modèles physiques. Les variables choisies comme moteur de l'endommagement ou du transport de l'iode diffèrent selon les modèles. La transition entre intergranulaire et transgranulaire est soit directement contrôlée par le facteur d'intensité des contraintes pour le modèle de l'EPRI tandis qu'un critère de plasticité est retenu par Besson, et qu'une contrainte limite normale aux plans de base est introduite par Musienko. La transition n'est pas considérée dans le modèle du CEA. L'activation thermique des phénomènes ne semble pas prise en compte dans les modèles de Besson et de Musienko.

On peut également citer d'autres modèles ne tenant compte de la chimie que par la baisse des propriétés mécaniques en présence d'iode ou par le mode de rupture. Jernkvist utilise un couplage entre un code crayon industriel et des calculs par éléments finis (Jernkvist 1995). Pour une taille de défaut et des sollicitations mécaniques, il calcule par éléments finis l'intégrale J de Rice en pointe de fissure, la compare au $K_{\text{I}}^{\text{seuil}}$. Si la valeur est dépassée, un

relâchement de nœud est effectué dans le code crayon et une nouvelle boucle est réalisée. Un critère de rupture ductile est aussi utilisé pour faire éventuellement avancer la fissure.

Roberts a mis au point un modèle analytique uniaxial pour prévoir la propagation d'une fissure transgranulaire de CSC-I à partir d'un défaut initial en considérant que l'étape limitante de ce mode de fissuration est la rupture par flutting des grains mal orientés pour le clivage (Roberts 1979). En considérant que ces grains cassent pour environ 4% de déformation plastique dans une zone située en amont de la pointe de fissure et qu'ils représentent une fraction f connue du faciès de rupture, il retrouve le déplacement critique, et donc le K_I^{seuil} , de propagation. Des valeurs de 9 et 2 MPa.m^{1/2} sont ainsi trouvées respectivement pour les matériaux vierge et irradié. On peut également citer Serres et Hwang qui proposent des lois de propagation simples reliant la vitesse d'avancée des fissures au facteur d'intensité des contraintes (Hwang 1991; Serres 2008).

I.6 Bilan et démarche de l'étude

Ce premier chapitre a permis de présenter la problématique de la corrosion sous contrainte par l'iode des alliages de zirconium, responsable d'éventuelles ruptures de crayons combustibles lors de transitoires de puissance incidentels. Ce phénomène est la conséquence d'une sollicitation mécanique d'un matériau sensible dans un milieu agressif. Les ruptures par CSC-I consistent généralement en trois étapes : dépassivation du matériau par rupture mécanique ou chimique de la couche d'oxyde, développement intergranulaire et propagation transgranulaire critique d'une fissure.

Les données de la bibliographie ont mis en évidence le nombre important de paramètres jouant sur ces différentes étapes. Les paramètres environnementaux (concentration, température, teneur en oxygène) ont un impact fort sur la sensibilité à la CSC-I des matériaux ; les différences de conditions expérimentales en milieu iode vapeur peuvent mener à une grande variabilité des résultats. La sensibilité à la CSC-I est également très dépendante du temps d'essai adopté. Du point de vue de la mécanique, de nombreux paramètres sont à considérer, comme le niveau et la vitesse de déformation, la contrainte, l'état de contrainte, le facteur d'intensité des contraintes. L'analyse des effets de ces paramètres mécaniques est rendue compliquée par leur occurrence simultanée dans les essais et par le comportement mécanique complexe des alliages de zirconium, présenté dans la première partie de ce chapitre. La microstructure du matériau intervient aussi, principalement par la résistance mécanique de l'alliage considéré, sa texture cristallographique et les dommages d'irradiation. La plupart des essais réalisés sont menés jusqu'à rupture et l'influence des paramètres sur la seule étape d'amorçage n'est pas toujours établie.

Dans ces conditions, ce travail de thèse se focalise sur la détermination des paramètres critiques à l'amorçage des fissures de CSC-I en milieu méthanol iodé à température ambiante sur tôles de Zircaloy-4 recristallisé. Le choix de cet environnement est motivé par plusieurs aspects comme des conditions d'étude plus favorables et une supposée plus faible variabilité expérimentale (température, composition du milieu). De plus, le nombre restreint d'études dans cet environnement encourage cette démarche. En y accumulant les données expérimentales, la représentativité par rapport à l'iode vapeur pourrait notamment être confirmée si des influences similaires de différents paramètres sont trouvées.

Pour répondre à cet objectif, on adopte une démarche fondée sur la réalisation d'essais mécaniques standard ou originaux en présence d'iode couplée à la réalisation systématique de simulations numériques des essais. Le but est de découpler les effets des paramètres mécaniques et de déterminer les conditions mécaniques menant à l'amorçage des fissures. Les paramètres principaux étudiés seront la contrainte, la déformation et le rapport de

biaxialité. Une étude importante de l'influence de la concentration en iode est également menée afin de pouvoir comparer les résultats obtenus aux données dispersées de la littérature. Suite aux travaux d'A. Serres sur les modes de déformation et la fissuration par CSC-I du Zircaloy-4 irradié aux protons, une démarche similaire est entreprise pour déterminer la sensibilité du matériau irradié à la vitesse de déformation et la concentration en iode. Ces sensibilités seront comparées à celles du matériau non irradié testé dans les mêmes conditions.

La suite de ce manuscrit se décompose en quatre chapitres. Le chapitre II concerne la présentation du matériau de l'étude et des procédures expérimentales utilisées. Le chapitre III se focalise sur l'étude du comportement mécanique du Zircaloy-4 recristallisé, à température ambiante, sa modélisation et son utilisation pour la simulation numérique des différents essais de CSC-I réalisés. Le chapitre IV regroupe l'ensemble des essais de CSC-I réalisés au cours de cette thèse, et leur analyse à partir des simulations numériques. Les résultats de ces essais seront discutés et comparés à ceux de la littérature dans le chapitre V. Dans ce chapitre, des expériences complémentaires pour l'étude des mécanismes sont rapportées.

Chapitre II : Matériau et procédures expérimentales

Introduction

Dans ce chapitre, le matériau de l'étude, du Zircaloy-4 recristallisé sous forme de feuillard, est présenté ainsi que les principales techniques expérimentales utilisées pour étudier sa résistance à la corrosion sous contrainte par l'iode (CSC-I). Tout d'abord, le matériau étudié est décrit en termes de microstructure et de dureté. Ensuite, les éprouvettes et essais de caractérisation mécanique sont décrits et les variables mécaniques utilisées dans la suite sont introduites. Les principaux essais de CSC-I sont détaillés, ainsi que les conditions expérimentales associées (traitement de surface, solutions,...). Enfin, les essais complémentaires réalisés pour l'étude des mécanismes de CSC-I et les différentes techniques expérimentales utilisées pour caractériser notamment les matériaux après essais sont décrits.

II.1 Matériau de l'étude

II.1.1 Forme et composition

Des feuillets de Zircaloy-4 recristallisé, fournis par Areva-Cezus (coulée 808731), de 240 mm de largeur, de longueurs comprises entre 380 et 410 mm, et d'épaisseurs comprises entre 450 et 500 μm ont été utilisés au cours de cette étude. L'épaisseur de chaque feuillet, comme celle des différentes éprouvettes de l'étude, est mesurée avec un micromètre ayant une incertitude de 1 μm . Le dernier traitement thermo-mécanique du feuillet est constitué d'un laminage à froid (réduction de 50% de l'épaisseur) suivi d'un traitement thermique à 700 °C pendant 3 à 4 min. Les directions de laminage, transverse (ou travers-long) et normale (ou travers-court) sont respectivement désignées par L, T et N dans la suite (Figure II.1).

L'utilisation de plaques aussi fines présente plusieurs avantages : microstructure homogène, texture cristallographique proche de celle des tubes, réalisation d'éprouvettes de traction ou de flexion peu gourmande en matière, facilité des essais (machine de traction ou montage de fluage en méthanol iodé), choix des directions de prélèvement des éprouvettes et donc des directions de sollicitation. Cependant la transposition des résultats au cas des tubes sous pression et en température n'est pas immédiate et nécessitera de prendre quelques précautions.

La composition du matériau donnée par le fournisseur est rappelée dans le Tableau II.1. Les éléments fer, chrome et nickel sont présents sous forme de précipités d'environ 200 nm du fait de leur faible solubilité dans la phase α du zirconium. Ces précipités sont aléatoirement

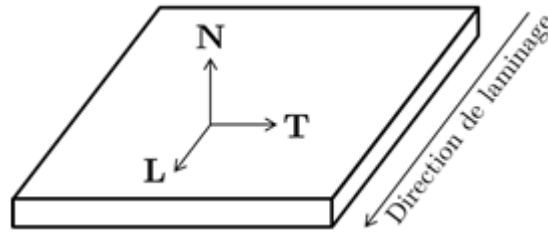


Figure II.1 : Définition des directions principales de la tôle.

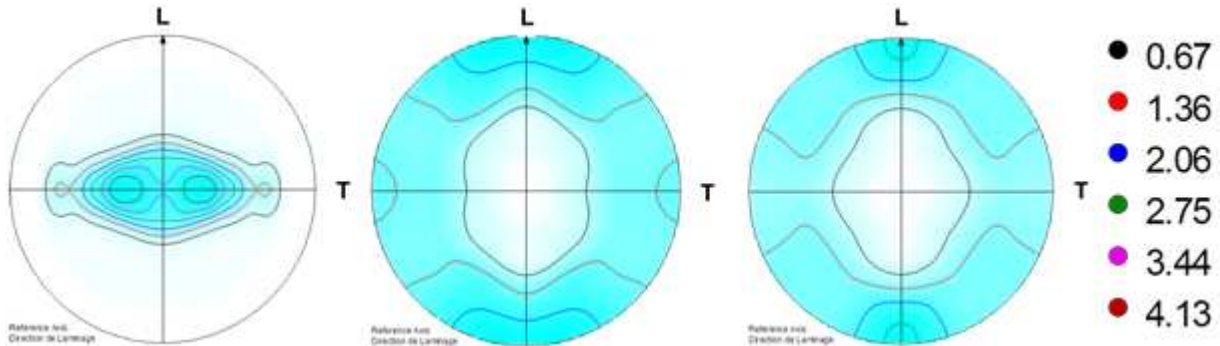


Figure II.2 : Figures de pôles recalculées déterminées en surface de la tôle après polissage suivi d’une attaque acide pour trois directions de la maille : (0002) (gauche), (10 $\bar{1}0$) (milieu) et (11 $\bar{2}0$) (droite).

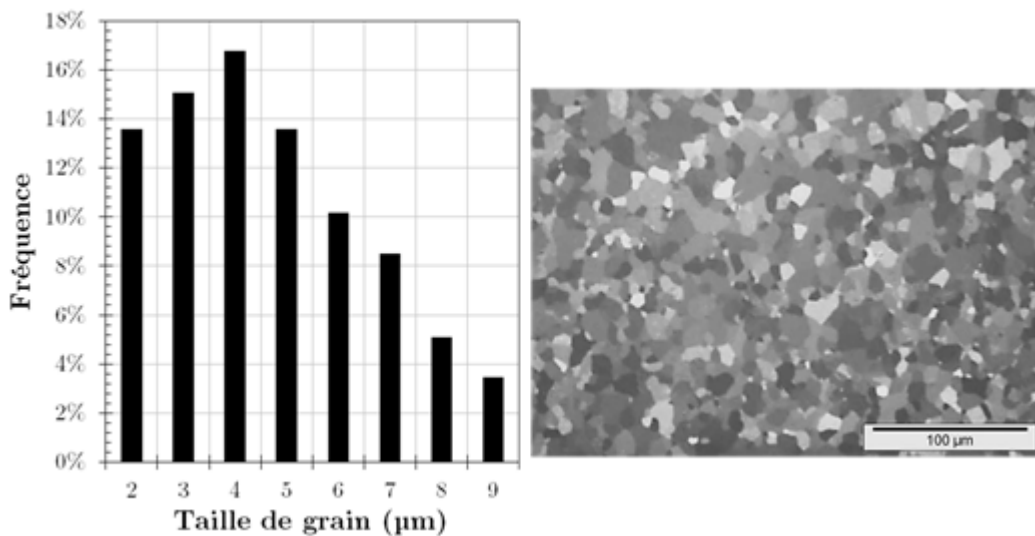


Figure II.3 : Distribution des tailles de grains déterminée par EBSD, pour 1552 grains analysés (gauche). La résolution de l’appareil ne permet pas de distinguer précisément des grains de taille inférieure à 2 µm. Micrographie optique en lumière polarisée illustrant la distribution des grains et leur caractère équiaxe, plan laminage-transverse (TL), après polissage et attaque acide (droite).

Tableau II.1 : Composition du matériau.

Eléments d'alliage (% massique)					impuretés (ppm)					
Sn	Fe	Cr	O	Zr	S	Al	C	Si	Ni	Cu
1.3	0.21	0.11	0.12	bal.	5	20	133	93	23	<10

répartis dans la matrice et les joints de grains, comme cela a été observé par A. Serres sur un Zircaloy-4 recristallisé présentant un état métallurgique très proche (Serres 2008).

II.1.2 Microstructure et texture cristallographique

La texture cristallographique du matériau a été caractérisée par diffraction des rayons X. L'étude de la texture permet de définir la distribution de l'orientation des grains par rapport aux directions du feuillard. Ce paramètre est de première importance, notamment en ce qui concerne l'anisotropie de comportement mécanique. La texture a été déterminée au Laboratoire d'Analyse Microstructurale des Matériaux (SRMA/LA2M) du CEA Saclay. Le diffractomètre utilisé dispose d'un goniomètre automatisé 1/4 cercle Siemens Kristalloflex D500 équipé d'un détecteur solide constitué d'une diode Si-Li et d'un analyseur monocanal permettant d'éliminer les intensités dues aux raies $K\beta$. Les figures de pôles obtenues pour l'alliage étudié sont présentées sur la Figure II.2. Elles sont caractéristiques d'un alliage de zirconium laminé à froid puis recristallisé. La texture est notamment comparable à celles des tubes de gainage : les axes $\langle c \rangle$ sont contenus dans le plan normal-transverse (NT), avec une orientation moyenne de 32.5° par rapport à N. Il est possible de caractériser quantitativement la distribution des orientations des axes $\langle c \rangle$ selon différentes directions par l'utilisation des facteurs de Kearns, définis comme la fraction effective de grains dont les pôles de base sont alignés avec une direction donnée. Ces seuls coefficients ne se substituent pas aux figures de pôles ; ils ne peuvent pas définir l'orientation de la maille hexagonale autour de son axe par exemple, mais permettent des comparaisons rapides entre différents matériaux. Les facteurs de Kearns du Zircaloy-4 de l'étude dans le repère de la tôle sont $(f_N, f_T, f_L) = (0.61, 0.25, 0.14)$.

La population de taille de grains a été déterminée par EBSD (*Electron Back-Scattered Diffusion*) dans le même laboratoire. Les mesures ont été réalisées sur un microscope électronique à balayage (MEB) JEOL 6400. Avant observation, les échantillons ont été polis électro-chimiquement dans une solution d'acide perchlorique (10%), d'éther monobutylque d'éthylène glycol (20%) et d'éthanol (70%). L'indexation des points a été réalisée au grossissement $\times 500$ avec un pas de déplacement de $1 \mu\text{m}$. L'orientation de 1552 grains a été déterminée. La distribution des tailles de grains, définie comme le diamètre du cercle moyen pour le grain concerné, est donnée en Figure II.3. La taille moyenne des grains est de $4.1 \mu\text{m}$.

Des micrographies optiques en lumière polarisée ont été réalisées sur des échantillons polis ayant subi une attaque chimique par une solution OPS-HF (Figure II.3) sur les différents plan de la tôle. Ces micrographies montrent le caractère équiaxe des grains : ils ne présentent pas d'élongation dans une direction particulière.

II.1.3 Essais de microdureté

Des essais de dureté Vickers ont été réalisés. Le corps pénétrant est alors une pointe pyramidale à base carrée, d'angle au sommet égal à 136° . La masse utilisée ici est de 200 g. La mesure des diagonales d_1 et d_2 de l'empreinte permet la détermination de la dureté notée HV0.2 par une formule simple. La dureté Vickers est la plus couramment utilisée, mais elle n'est pas la plus adaptée aux matériaux anisotropes. C'est la raison pour laquelle on a également utilisé la dureté Knoop pour laquelle le pénétrateur est de forme pyramidale à base rectangulaire avec un angle de $172^\circ 30'$ entre deux faces, et 130° pour les deux autres, laissant ainsi une empreinte en forme de losange très écrasé selon une direction. La dureté est alors notée HK0.2. Une illustration des différentes empreintes est donnée en Figure II.4. L'unité de HV0.2 et de HK0.2 est en $\text{kg}\cdot\text{mm}^{-2}$. En multipliant par l'accélération de la gravité, on obtient une contrainte exprimée en MPa.

Tableau II.2 : Mesures de dureté réalisées sur la tôle.

Plan TL			Plan LN			Plan NT		
HV0.2	Nombre mesures	Ecart-type	HV0.2	Nombre mesures	Ecart-type	HV0.2	Nombre mesures	Ecart-type
210.3	21	5.5	171.5	13	2.4	166.7	47	3.4

Plan TL				Plan NT			
Angle/L (°)	HK0.2	Nombre mesures	Ecart-type	Angle/N (°)	HK0.2	Nombre mesures	Ecart-type
0	231.7	20	4.5	0	164.6	18	3.7
27	220.8	13	4.2	90	181.8	21	3.6
-27.6	220.8	11	3.2				
45	220.5	14	4.3				
61.9	216.1	16	4.5				
90	214.3	20	3.9				

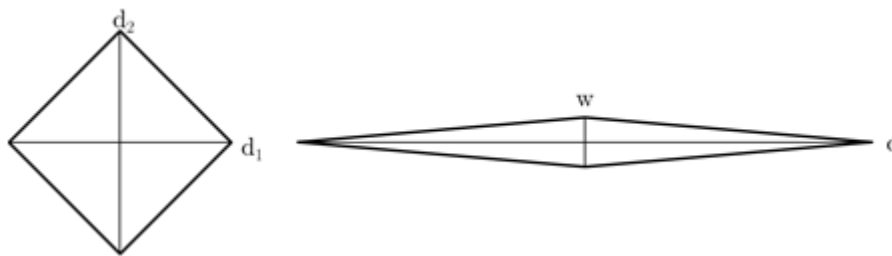


Figure II.4 : Comparaison des différentes empreintes laissées par un indenteur de type Vickers (gauche) et Knoop (droite) avec les dimensions à mesurer.

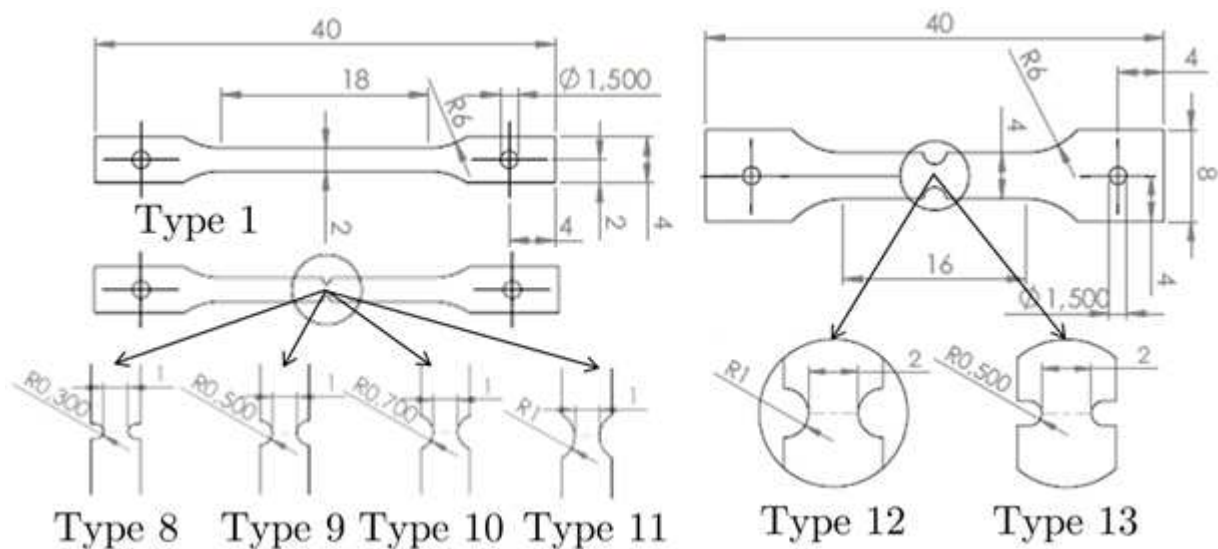


Figure II.5 : Géométrie des éprouvettes de traction. Les dimensions sont données en millimètres.

Une série de mesures de dureté a été réalisée sur le matériau poli (procédure détaillée au paragraphe II.2.3), sur différents plans du feuillard. Les empreintes ont été réalisées à l'aide d'un microduromètre BUEHLER de modèle MicroMet 5104 au SEMI/LM2E avec une masse de 200 g et un temps de maintien de charge de 10 s. Les diagonales des empreintes ont été mesurées via le logiciel Analysis par des observations au microscope optique. Les résultats sont résumés dans le Tableau II.2. Ils mettent clairement en évidence l'anisotropie du matériau. Les duretés Vickers montrent que la direction normale (N) est plus dure que les directions de laminage (L) et transverse (T). L'écart entre ces deux directions a été observé à l'aide de duretés Knoop dans le plan TL.

II.2 Essais de caractérisation mécanique et de CSC-I

II.2.1 Essais de traction à l'air

II.2.1.1 Eprouvettes de traction

Des éprouvettes de traction plates ont été prélevées dans le feuillard par électro-érosion, dans le sens de laminage et dans le sens travers. Les différents types de géométrie et les dimensions associées sont rappelés sur la Figure II.5. Un code est utilisé pour dénommer les éprouvettes et sera utilisé dans la suite de ce manuscrit : AiDj-k, avec $i = (1, 2, \dots)$ le numéro du feuillard dans lequel on prélève l'éprouvette, $D = (T, L)$ qui désigne la direction de prélèvement (travers ou laminage), $j = (1, \dots, 13)$ le type de l'éprouvette et enfin k le numéro de l'éprouvette prélevée dans les conditions (i, D, j) .

Les éprouvettes de traction lisses ont une longueur utile de 18 mm et une largeur de 2 mm dans la zone utile. Les éprouvettes de type 8, 9, 10 et 11 sont des éprouvettes de traction lisses sur lesquelles des entailles semi-circulaires de rayons respectifs (0.3, 0.5, 0.7, 1.0 mm) ont été usinées au milieu de la longueur utile. La longueur du ligament joignant les deux entailles est de 1 mm pour ces éprouvettes. Ces éprouvettes serviront à l'étude de l'effet de la biaxialité des contraintes sur la CSC-I. D'autres éprouvettes entaillées ont été prélevées (type 12 et 13) ; elles sont deux fois plus larges que les précédentes, avec des rayons d'entailles de 1.0 mm et 0.5 mm respectivement, et un ligament joignant les deux entailles de 2 mm. Elles ont été utilisées lors d'essais de traction à l'air suivis par corrélation d'images, technique expliquée dans la suite.

Avant chaque essai, l'épaisseur des éprouvettes est mesurée avec un micromètre, avec une précision de 1 μm . Pour les premiers essais, la largeur des éprouvettes était également mesurée pour vérifier l'usinage des éprouvettes. Un écart maximal de 0.5% a été constaté, correspondant à l'incertitude de la méthode de prélèvement.

II.2.1.2 Machine de traction et précision

La machine de traction utilisée tout au long de cette étude est une machine électromécanique Zwick Z020/TND. La traverse a une course théorique de 1016 mm, avec une vitesse maximale de 1000 mm/min. Elle est équipée par défaut d'une cellule de force de capacité 20 kN. La machine est pilotée par un ordinateur via le logiciel TestExpert. Une télécommande est également disponible pour déplacer manuellement la traverse lors de la mise en place d'un essai. La résistance mécanique du Zircaloy-4 étant inférieure à 600 MPa aux vitesses et températures considérées et les sections d'éprouvettes ne dépassant pas 1 mm², une cellule de force de capacité 1 kN a été installée sur la machine pour améliorer la précision. Il s'agit du modèle « Xforce HP » de la marque Zwick. La machine et les deux cellules de force ont été vérifiées par le fabricant au début de l'étude. La cellule de force 1 kN est de classe 0.5 avec une incertitude mesurée inférieure à 0.5%. La précision du

capteur de déplacement de la traverse est de 0.25% pour un allongement de 5 mm et de 0.05% au-delà. Lors des premiers essais de caractérisation mécanique, un extensomètre axial INSTRON 2630-102 a été utilisé. De longueur initiale de 10 mm et de course ± 5 mm, il permet de mesurer les allongements avec une précision de 0.3%. Les dépouillements des essais avec les données issues du capteur de traverse et celles venant de l'extensomètre ont donné le même résultat (superposition des courbes contraintes-déformation plastique, écart maximal de 0.75%), confirmant que la forme de l'éprouvette permet de concentrer la déformation plastique dans la zone utile et qu'un suivi des essais par la course de la traverse est suffisant. Ce point est important car il permet de ne pas utiliser l'extensomètre lors d'essais de CSC-I.

II.2.1.3 Types d'essais réalisés et dépouillement

Les essais de caractérisation mécanique réalisés sont de deux types : essais à vitesse de déformation imposée et essais de fluage. Pour les premiers, la vitesse de déplacement de la traverse est simplement obtenue en multipliant la vitesse de déformation visée par la longueur utile des éprouvettes. Ainsi des essais ont été réalisés pour des vitesses allant de 10^{-6} s^{-1} à 10^{-2} s^{-1} , dans les directions L et T. Les essais de fluage ont été effectués avec un objectif en force, la valeur de la force cible étant égale à la contrainte cible multipliée par la section initiale de l'éprouvette. La mise en charge des essais de fluage est effectuée à vitesse de déformation imposée de 10^{-4} s^{-1} , et une fois la force cible atteinte, le contrôle se fait à force constante.

Les données sont traitées de la façon suivante. Le déplacement de la traverse ou l'ouverture de l'extensomètre U sont transformés en déformations conventionnelles totales via l'équation Eq. II.1.

$$e^{tot} = \frac{\Delta U}{l_0} \quad \text{Eq. II.1}$$

La force F mesurée par la cellule de force et la section initiale de l'éprouvette S_0 permettent de calculer la contrainte conventionnelle (Eq. II.2).

$$\sigma^{conv} = \frac{F}{S_0} \quad \text{Eq. II.2}$$

Les courbes contrainte-déformation totale conventionnelle permettent de calculer un module d'Young apparent (intégrant la déformation du montage d'essais et de la ligne d'amarrage en plus de celle de l'éprouvette) et de séparer ainsi la partie plastique e^p des déformations conventionnelles de la partie élastique e^{el} . L'erreur relative sur les déformations totales conventionnelles est de 0.75% lors d'essais sans extensomètre. Avec l'incertitude sur la mesure de la force, cette erreur relative est de 1.25% pour les déformations plastiques conventionnelles.

Les courbes conventionnelles sont traduites en courbes rationnelles (ou courbes vraies) par les transformations suivantes :

$$\varepsilon^p = \ln(1 + e^p) \quad \text{Eq. II.3}$$

$$\sigma = \sigma^{conv}(1 + e^p) \quad \text{Eq. II.4}$$

La déformation vraie est le cumul (l'intégrale) des déformations élémentaires. La contrainte vraie σ intègre les changements de section dus à la déformation en supposant celle-ci isochore. Lors d'un essai de traction uniaxiale, elle n'a de sens que pour une déformation uniformément répartie dans la longueur utile, c'est-à-dire avant la striction.

Les essais de traction sur éprouvettes larges entaillées ont été réalisés à vitesse de déplacement de traverse imposée à 18 mm.s^{-1} . Pour les éprouvettes entaillées, on définit une déformation macroscopique E en divisant le déplacement de traverse par le diamètre de l'entaille. La contrainte macroscopique Σ est définie par la force appliquée sur l'éprouvette divisée par la section entre les entailles. A partir des courbes Σ - E , un module d'élasticité apparent est déterminé, permettant de calculer la déformation plastique macroscopique E^P comme pour les courbes conventionnelles des essais uniaxiaux. Le déplacement plastique macroscopique U^P est parfois utilisé, produit de E^P et du diamètre d'entaille.

I.1.1.1. Etude des champs de déformation

La technique de corrélation d'images digitales (CID) en 2D a été utilisée pour déterminer les champs de déformations locales lors d'essais de traction sur les éprouvettes de traction (types 12 et 13), mais également lors d'essais de traction uniaxiale pour étudier l'anisotropie plastique du matériau. Le logiciel de corrélation est CorrelmanuV, développé au LMS/Ecole Polytechnique (Bornert). Il compare les images d'un système entre un état de référence et une configuration déformée. Afin d'obtenir le meilleur contraste possible pour la détermination des points homologues, les éprouvettes entaillées ont été peintes en blanc et une dispersion aléatoire de points de peinture noire a été faite à l'aide d'un aérographe, au SEMI/LCMI. Les éprouvettes de traction uniaxiale ont été utilisées avec l'état de surface initial. Les essais, éclairés à la lumière blanche, ont été filmés à l'aide d'une caméra numérique d'une résolution de 1280×1024 pixels avec une fréquence de 30 Hz. Des images ont été extraites des films, toutes les secondes ou toutes les demi-secondes, pour la corrélation d'image avec CorrelmanuV. Une description détaillée de la technique est donnée dans la thèse de Le Saux (Le Saux 2008). Il évalue la précision de la mesure des déformations à ± 0.01 . Des informations complémentaires sur la précision et les détails pratiques de la corrélation seront présentés dans le chapitre suivant avec les résultats.

II.2.2 Essais de traction en milieu méthanol iodé

II.2.2.1 Préparation des échantillons

Les éprouvettes utilisées lors des essais de CSC-I ou d'immersion en milieu méthanol iodé ont été polies avant essai. Il est très compliqué de polir du Zircaloy-4 recristallisé sur de « grandes » surfaces. Pour avoir un très bon état de surface, des attaques à l'acide fluorhydrique sont possibles, ce qui correspond à la procédure de préparation des éprouvettes notamment utilisée par A. Serres (Serres 2008). Cependant l'utilisation de l'acide fluorhydrique n'est pas anodine, en termes de manipulation comme de déstabilisation de la couche d'oxyde. Etant donné le nombre d'essais à réaliser dans cette étude, il a été décidé de se passer de ces attaques pour l'obtention d'un bon état de surface. Aucune procédure de polissage adaptée n'étant disponible dans la littérature, une procédure originale a donc été mise en place, non sans difficulté.

Ainsi, les éprouvettes sont collées côte-à-côte sur un plot de polissage à l'aide d'un ruban adhésif double face. Les plots de polissage ont un diamètre de 50 mm et permettent de polir 7 éprouvettes de traction en même temps. Le polissage commence par l'utilisation de papiers SiC (non magnétiques ni adhésifs), posés sur une table lisse, de granulométrie 600, 1200, 2400 puis 4000. Toute la procédure de polissage est réalisée à la main, sans polisseuse automatique. Pour chaque papier, des allers-retours sont effectués jusqu'à l'obtention d'une surface bien uniforme. Des suspensions diamantées sur des draps ou feutres sont ensuite utilisées. Les dénominations utilisées sont celles de la marque Escil. Les draps et feutres utilisés sont magnétiques et posés sur le plateau magnétique d'une polisseuse manuelle mais on n'utilise toujours pas la rotation du plateau. Les différentes étapes sont les suivantes :

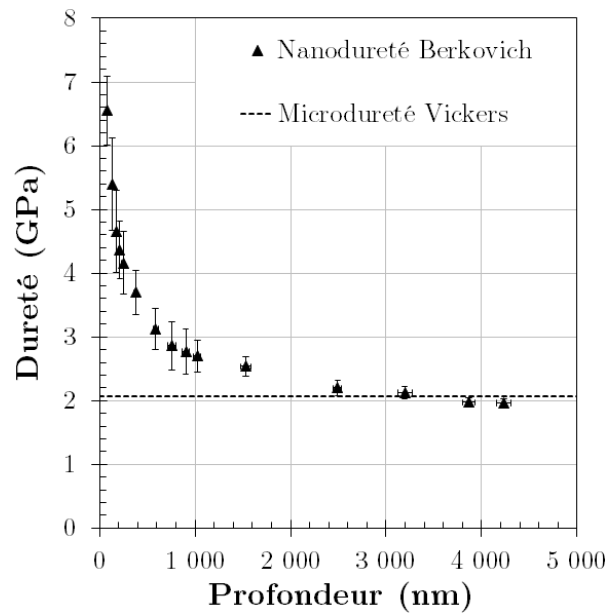


Figure II.6 : Profil de dureté mesuré par nano-indentation. Convergence vers la valeur de dureté Vickers sous 200 g déterminée précédemment au bout de 2 μm . Les barres d'erreur verticales correspondent à l'écart moyen des mesures.

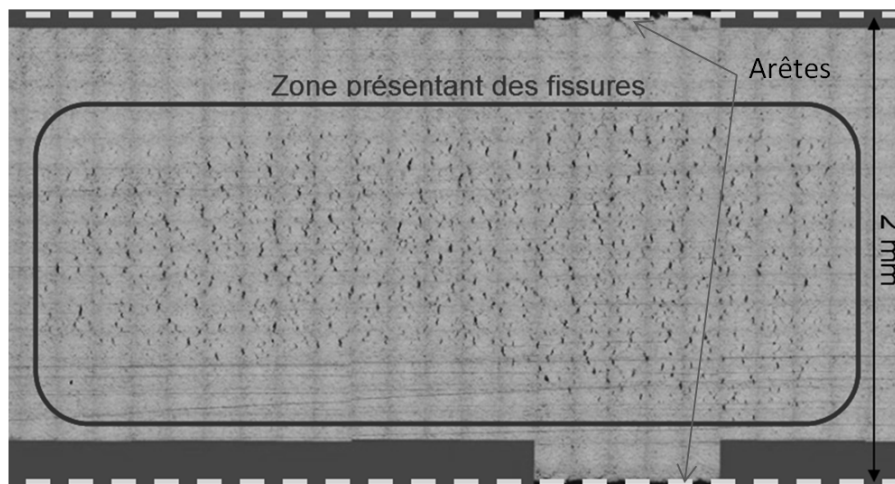


Figure II.7 : Cartographie de l'éprouvette A2T1-54 après essai de CSC-I. Illustration de l'efficacité de la protection des tranches des éprouvettes par la pâte siliconée sur la partie de la longueur utile exposée à l'iode.

- Suspension diamantée 10 μm sur drap D1. L'état de surface à atteindre est asymptotique pour cette taille de grain. Il est grisé, avec de nombreuses rayures dues à la suspension mais présente un bon effet miroir. Cette étape est très particulière car entre l'état de surface initial et l'état souhaité, on passe par un état intermédiaire qui semble à l'œil meilleur que l'état final (pas d'aspect grisé et effet miroir équivalent). Durant cette étape, on appuie assez fortement sur le plot et on effectue des mouvements circulaires. Cette étape peut durer jusqu'à 15 min.
- Suspension diamantée 3 μm sur drap D1. Elle permet d'enlever la plupart des rayures de l'étape précédente. Cependant, cette suspension est propice à la formation de cratères sur la surface. Le temps à passer sur cette étape est compris entre 30 et 45 s selon la taille de la surface à polir.

- Suspension diamantée 1 μm sur feutre FD1 pendant trois minutes en appuyant modérément sur le plot. Les rayures de la première étape disparaissent totalement. Cependant, si l'on saute l'étape du 3 μm , le résultat n'est pas le même. A cette étape, les défauts issus des étapes précédentes sont visibles ; le choix de recommencer la procédure de polissage se fait éventuellement ici.
- Suspension diamantée 1/4 μm sur feutre ALD pendant 4 min.

La rugosité avant et après polissage a été caractérisée par micro-rugosimètre au Laboratoire d'Etude de la Corrosion Aqueuse du Département de Physico-Chimie du CEA Saclay. Un profil de rugosité a été réalisé sur un échantillon non poli et sur un échantillon poli, sur une longueur d'évaluation de 10 mm avec des mesures tous les microns. Les paramètres caractéristiques des états de surface obtenus sont donnés dans le Tableau II.3 ; les résultats illustrent l'efficacité de la procédure.

Tableau II.3 : Caractéristiques des profils de rugosité réalisés.

Paramètre	Signification	Surface initiale	Après polissage
Ra (μm)	Rugosité, écart moyen arithmétique du profil	0.295	0.024
Rz (μm)	Hauteur maximale du profil	2.268	0.1946

Suite au polissage, des essais de nano-indentation sur le plan TL ont été réalisés au SRMA/LC2M, pour évaluer l'écrouissage de surface résiduel avec un indenteur de type Berkovich (pyramide à base triangulaire). Les forces imposées sont comprises en 1 et 500 mN, pour des profondeurs d'indentation comprises entre 70 et 4300 nm. Le profil de dureté obtenu est donné en Figure II.6 : on observe une augmentation exponentielle de la dureté à mesure qu'on se rapproche de la surface. Cela résulte de l'écrouissage de surface mais également de l'influence de la rugosité sur la mesure de dureté. En effet, Bobji a mis au point un modèle numérique permettant d'observer l'influence de la rugosité sur les mesures de dureté à très faible profondeur (Bobji 1998). En considérant la pénétration d'un indenteur conique lisse non déformable dans un solide mou avec une rugosité de 2 nm, il a évalué que la dureté pouvait être multipliée par 5 entre une profondeur de 200 nm et 10 nm. En l'état, on considère que les éprouvettes utilisées pour la CSC-I ont un écrouissage de surface s'étendant en moyenne sur un demi-grain. Cependant, dans les calculs et les dépouillements d'essais, nous n'en tiendrons pas compte.

Les éprouvettes étant découpées par électro-érosion, leurs tranches présentent un aspect brûlé, avec une forte rugosité. Amorcer des fissures de CSC-I à ces endroits ne serait pas représentatif. De plus, les fissures de CSC-I ont tendance à s'amorcer d'abord sur les arêtes d'éprouvettes épaisses (Serres 2008). Pour éviter ces amorçages intempestifs, on utilise une pâte siliconée (Rhodorsil CAF4 de la marque Bluestar Silicon) pour protéger les tranches. En appliquant avec soin la pâte sur les tranches et arêtes, plus des trois quarts de la largeur de la zone utile restent exposés au milieu corrosif. La pâte résiste jusqu'à la striction et son efficacité est illustrée sur la Figure II.7.

La présence éventuelle de contrainte résiduelle à cause de la méthode de découpe a été recherchée notamment par la réalisation de petites empreintes de dureté Vickers (masse de 10 g) sur une section d'éprouvette. Les résultats sont présentés sur la Figure II.8. Aucune tendance n'est mise en évidence à l'approche d'un bord électro-érodé, signifiant l'absence d'écrouissage et de contrainte associée. Lors de la découpe, des parties du matériau sont fondues puis solidifiées. Des contraintes mécaniques, dues aux variations de volume et non nécessairement liées à un écrouissage, peuvent être introduites. Kruth a étudié les contraintes résiduelles induites par cette découpe par une méthode d'amincissement électrolytique : une pièce d'acier C45 est progressivement amincie vers un bord électro-érodé et sa déflexion est une mesure des contraintes. (Kruth 2000). La découpe engendre des

contraintes de traction sur une faible distance, dépendant de la méthode adoptée. Après trois passes de finition, comme pour les échantillons de cette étude, aucune contrainte n'est mesurée à plus de 20 μm du bord. La zone affectée par la découpe est donc très faible et ne devrait pas influencer sur les résultats de cette étude.

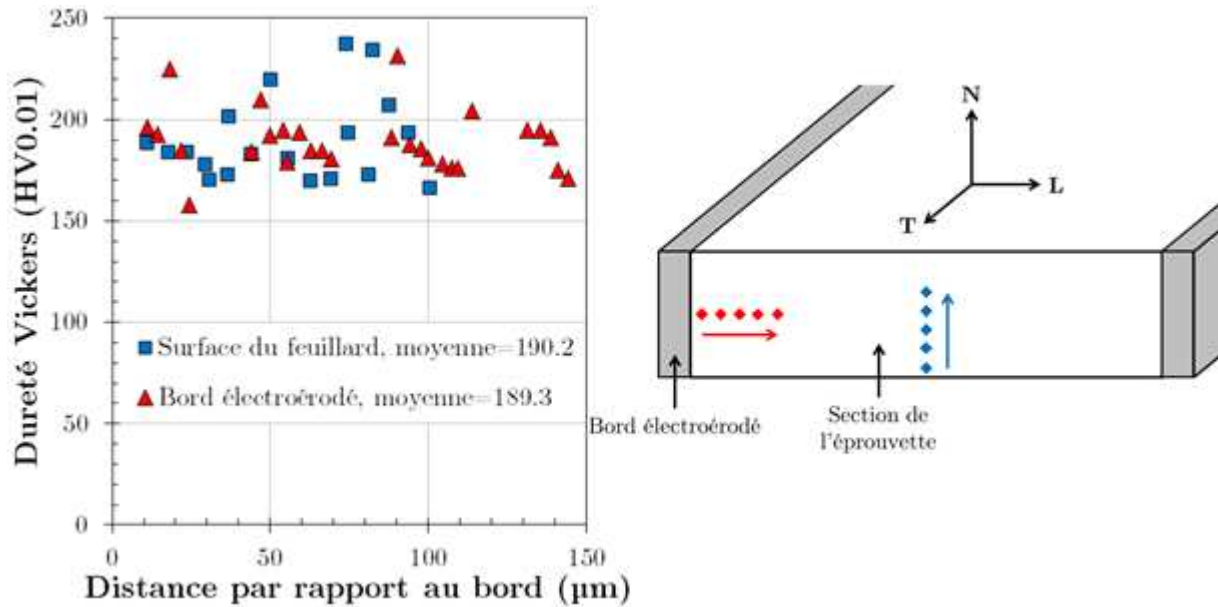


Figure II.8 : Profils de dureté Vickers (masse de 10 g) à partir d'un bord électro-érodé (rouge) et d'une surface du feuillard (bleu) réalisés sur une section d'éprouvette de traction (Plan LN). Mesures (gauche) et schéma explicatif (droite).

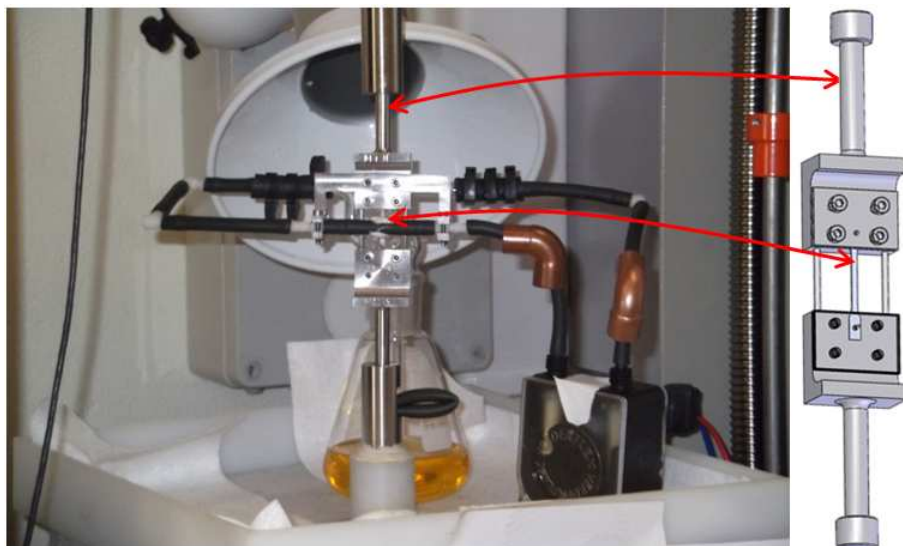


Figure II.9 : Montage complet de circulation du méthanol iodé sur la machine de traction. Un bras aspirant relié à un extracteur d'air à filtre pour capturer les vapeurs de méthanol issues d'une éventuelle fuite sur le montage.

II.2.2.2 Circulation de méthanol iodé

Pour réaliser les essais de CSC-I, il a été choisi de réaliser une circulation de méthanol iodé dans un circuit fermé, installé sur la machine de traction.

L'éprouvette est placée à travers un premier tronçon de tuyau percé radialement (diamètre interne 5 mm) en caoutchouc nitrilé puis un colmatage est effectué avec la même pâte siliconée pour assurer l'étanchéité. L'utilisation de connecteurs rapides entre les tuyaux en caoutchouc permet de venir insérer l'éprouvette, montée sur ses mors, et placée hermétiquement dans ce premier tronçon de tuyau, sur le reste du circuit avant le lancement de l'essai. Auparavant, de part et d'autre de l'éprouvette, les connecteurs auront été fixés aux mors par un dispositif en forme de bras. Ce dispositif permet de reprendre les efforts qui pourraient apparaître lors de la connexion de ce premier tronçon au reste du circuit, et ainsi d'éviter une perte d'étanchéité du circuit au moment du montage. En pratique, l'étanchéité du circuit est garantie jusqu'à une déformation plastique de 10%, soit un déplacement d'environ 2 mm.

En guise de réservoir, on utilise un erlenmeyer de 250 mL muni d'un col rodé 29/32 sur lequel on a placé la tête d'un flacon laveur de gaz permettant de pomper la solution au fond du réservoir et de connecter la sortie du circuit pour le fermer. Un bac de rétention servant également de plateau pour l'ensemble du circuit a été placé sur la ligne de traction.

Pour la circulation du liquide, une pompe péristaltique, de marque VERDEFLEX, est branchée à une alimentation continue 24V ISO-TECH. Cette pompe fonctionne aussi bien pour les gaz et liquides, il n'y a donc pas besoin de l'amorcer manuellement. Aucun élément métallique de la pompe n'entre en contact avec la solution de méthanol iodé.

Une fois le montage complété (Figure II.9), on peut effectuer un essai de traction classique. La très grande majorité des essais de CSC-I sur la machine de traction sont des essais interrompus à vitesse de déformations imposée comprise entre 10^{-5} s^{-1} et 10^{-3} s^{-1} .

La préparation des solutions se fait sous une sorbonne aspirante installée à côté de la machine de traction, par dissolution de billes d'iode solide dans du méthanol et dilutions successives. Les billes d'iode sont pesées sur une balance de marque Sartorius, modèle LA120S, disposant d'une précision de 0,1 mg. Les mélanges et dilutions sont réalisés avec de la verrerie standard (fioles jaugées de 100 et 500 mL, pipette graduée 10 mL). Les concentrations sont exprimées en gramme de diiode solide par gramme de méthanol. Les solutions sont préparées par dissolution d'une masse plus importante que nécessaire dans 100 mL de méthanol, puis par prélèvement du volume correspondant à la masse cible pour 100 mL. On complète alors la solution jusqu'à 100 mL. L'incertitude relative de la concentration provient essentiellement de l'incertitude sur la pesée des billes. Ainsi, pour les plus faibles concentrations des essais de traction ($3 \cdot 10^{-6} \text{ g.g}^{-1}$), on estime la moins bonne des précisions à 4.4%. Au-delà de 10^{-4} g.g^{-1} , elle est inférieure à 1%. Quelques solutions de très faibles concentrations (10^{-8} , $5 \cdot 10^{-8}$ et 10^{-7} g.g^{-1}) ont été réalisées à partir de trois dilutions successives, pour des essais d'immersions. Une dilution supplémentaire ajoute environ 1% d'imprécision avec le matériel utilisé. Au maximum, une incertitude de 6.5% est atteinte.

II.2.2.3 Observations après essai

A la fin de l'essai de CSC-I, l'ensemble du circuit est rincé plusieurs fois avec du méthanol. Une fois détachée du tuyau dans lequel elle était, l'éprouvette est nettoyée aux ultra-sons dans un mélange acétone-éthanol pendant 10 min.

La présence de fissures de CSC-I après essai est déterminée par observation sur un microscope optique, de marque Reichert modèle MeF3, du SEMI/LM2E, par un balayage

minutieux au grossissement $\times 1000$ avec les oculaires. Ce microscope est équipé d'une platine motorisée 3 axes, Märzhäuser Standard Scan IM 65x65, contrôlable manuellement et par le logiciel d'acquisition d'images Analysis. Un module permet la réalisation automatique de cartographies sur une surface définie. A plusieurs reprises, des cartographies complètes des zones exposées au méthanol iodé (environ 8 mm^2) ont été faites au grossissement $\times 500$ afin d'établir des statistiques sur la répartition des fissures. Ce point sera détaillé dans le chapitre traitant des essais de CSC-I.

Quand les essais conduisent à la rupture de l'éprouvette, le faciès de rupture est observé au microscope électronique à balayage (MEB) du SEMI/LM2E, modèle JEOL JSM-5400. Dans la suite du manuscrit, ce microscope sera simplement dénommé « MEB ». Il permet des observations nettes jusqu'à un grossissement $\times 5000$. A plusieurs occasions, il a été possible d'observer quelques échantillons avec un MEB-FEG (*Field Emission Gun* ou canon à émission de champ), GEMINI ZEISS 1525, du Service de Recherche en Métallurgie Physique SRMP du CEA Saclay, appelé « MEB-FEG » dans la suite. Il permet des observations jusqu'au grossissement $\times 200000$. Le choix du microscope optique pour la détection des fissures résulte d'un compromis entre plusieurs facteurs : le nombre très important d'essais réalisés (plus de 200), la rapidité du balayage au microscope optique via une platine motorisée, les faibles capacités du MEB à disposition dans le service (résolution, vitesse d'acquisition) et l'accès limité à un MEB plus performant. En pratique, les fissures de CSC-I sont relativement ouvertes ($> 1 \mu\text{m}$), que ce soit à cause d'une dissolution associée ou de la présence de plasticité. Des fissures de $5 \mu\text{m}$ de longueur sont détectables par la méthode choisie. On considèrera dans la suite la présence de l'endommagement par CSC-I quand de tels défauts auront été repérés. Ce choix sera discuté.

Tableau II.4 : Liste des masses utilisées pour la flexion 4 points et contraintes engendrées pour une éprouvette d'épaisseur $450 \mu\text{m}$, avec ou sans rallonges.

n°		1	2	3	4	5	6	7	8	9
Masse (g)		491.9	396.8	339.1	293.3	252.3	229.5	194.8	160.1	137.1
σ_{nom} (MPa)	$L_{\text{ext}} = 32 \text{ mm}$	428.9	346.0	295.7	255.8	220.0	200.1	169.9	139.6	119.6
	$L_{\text{ext}} = 16 \text{ mm}$	124.7	100.6	85.9	74.3	63.9	58.2	49.4	40.6	34.7

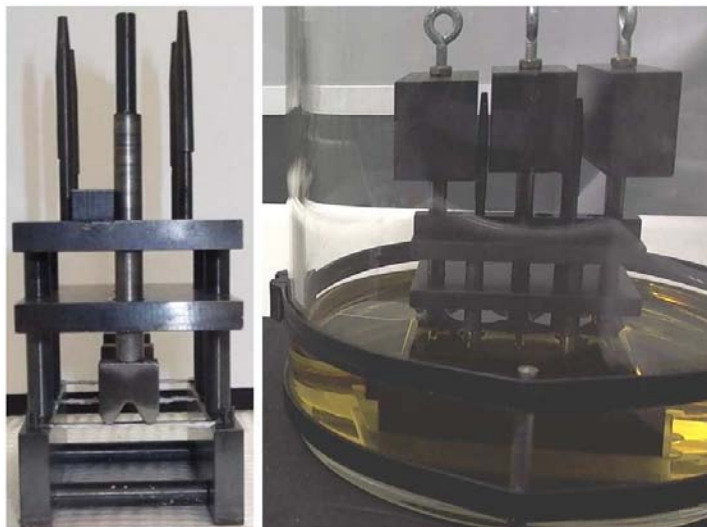


Figure II.10 : Dispositif de flexion quatre points, hors milieu sans chargement (gauche), dans un bocal hermétique lors d'un essai (droite).

II.2.3 Essais de fluage en flexion 4 points en méthanol iodé

Un dispositif autonome de fluage par flexion quatre points a également été développé. Le but initial de ce montage était de réaliser une cartographie de la sensibilité à la CSC-I de notre matériau, en termes de concentration d'iode, de contrainte et de temps. Ce montage permet également de réaliser des essais sur de longues périodes alors que les essais de CSC-I sur machine de traction ne peuvent être réalisés que pendant les heures ouvrables du laboratoire. Le dispositif est présenté sur la Figure II.10. Il a été usiné à partir de plaques épaisses en Zircaloy-4, puis oxydé pour le protéger d'une éventuelle attaque par l'iode.

Les éprouvettes utilisées sont des languettes de 2 mm de largeur pour 40 mm de longueur, découpées dans les feuillets par électroérosion. Seule la face mise en traction des éprouvettes est polie selon la procédure décrite précédemment. Les tranches sont protégées par de la pâte siliconée. L'écartement des appuis extérieurs L_{ext} est de 32 mm et celui des appuis intérieurs L_{int} est de 8 mm. Des rallonges ont été fabriquées pour réduire l'écartement extérieur à 16 mm et ainsi diminuer la déflexion des éprouvettes chargées lors de certains essais. La charge est appliquée par des poids dont la masse m (avec celle des tiges) est comprise entre 137.1 g et 491.9 g, avec une incertitude de 0.1 g. Les contraintes nominales appliquées sur la face en traction des éprouvettes sont calculées par la formule de la résistance des matériaux en élastique, rappelée par l'équation Eq. II.5, avec m en kg, g l'accélération de la gravité en $m.s^{-2}$, b la largeur de l'éprouvette en mm et d son épaisseur en mm. σ^{nom} est alors en MPa. Avec une épaisseur d'éprouvette moyenne de 450 μm , les contraintes sont comprises entre 35 et 430 MPa (Tableau II.4). L'incertitude sur la contrainte est de 1.3%.

$$\sigma^{nom} = \frac{3mg(L_{ext} - L_{int})}{2bd^2} \quad \text{Eq. II.5}$$

Le montage avec les éprouvettes non chargées est placé dans un bocal en pyrex dont le fond dispose d'une empreinte pour caler le montage. Les solutions (de volume 500 mL) y sont versées puis les poids sont placés sur les tiges à la vitesse de déplacement constante de 0.24 $mm.s^{-1}$ à l'aide d'un moteur, de cordelettes et d'une potence. Le bocal est alors hermétiquement fermé. Les essais sont généralement arrêtés au bout de 72 h s'il reste une éprouvette non rompue. Afin d'avoir accès aux temps à rupture, une caméra USB prend des photos du montage à un intervalle de 300 s. Il est donc possible de repérer le temps à rupture en observant la chute du poids, avec une incertitude de 5 min. Les démarches réalisées après essais (nettoyage, observations des fissures et faciès,...) sont les mêmes que pour les essais de traction.

II.3 Essais complémentaires et autres techniques expérimentales

II.3.1.1 Essais d'immersion de godet

Des godets ont été réalisés par emboutissage de disques prélevés dans les feuillets par emporte-pièce. Ces disques n'ont pas été polis avant emboutissage. L'intérêt majeur de ces pièces est de présenter d'importantes contraintes résiduelles. Immergées dans du méthanol iodé, elles apportent des informations sur les mécanismes de fragilisation. Ainsi, un disque de diamètre 66 mm est embouti par un poinçon de diamètre 33 mm, tout en étant maintenu sur sa partie extérieure, autour du poinçon, par un serre-flan, avec une force de serrage de 10 kN et une lubrification à l'huile. La vitesse de descente du poinçon est de 1.33 $mm.s^{-1}$. Différents types de godet ont été faits, à avalement total (100%) ou partiel (arrêt du poinçon à une profondeur prédéfinie), menant à des niveaux et des états de contrainte

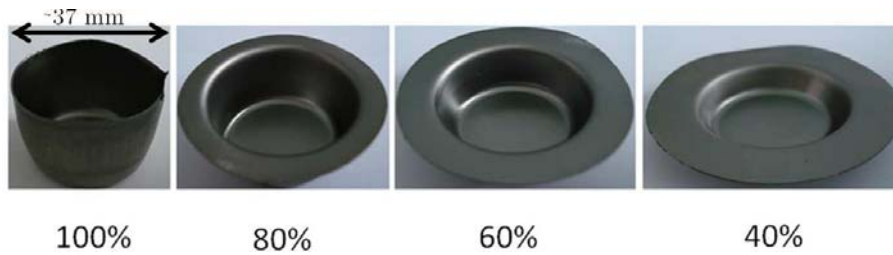


Figure II.11 : Différents types de godets utilisés dans le cadre de cette étude.

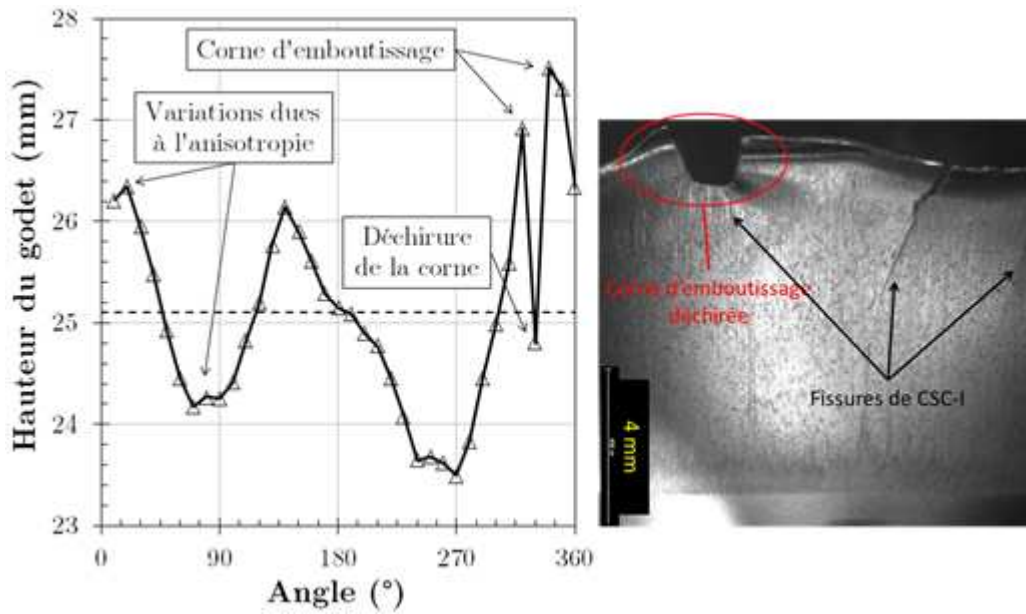


Figure II.12 : Evolution circumférentielle de la hauteur du godet n°7 (100%) les variations de hauteur illustrent l'anisotropie de comportement en plasticité du feuillard. Déchirure d'une corne d'emboutissage (gauche). Observation au microscope du même godet après exposition au milieu agressif.

différents (Figure II.11). Si la géométrie des godets à avalements partiels est très reproductible, ce n'est pas nécessairement le cas pour le godet à avalement total. L'emboutissage ne s'arrêtant qu'une fois le godet complètement libéré du serre-flanc, les dernières parties emprisonnées seront les plus allongées. Ceci est à relier à l'anisotropie de comportement due à la texture du feuillard, La hauteur du godet dépend donc de la direction, avec des variations de plus de 3 mm pour une hauteur moyenne de 24 mm environ. L'ultime partie encore serrée est souvent très allongée et déchirée. Elle est appelée corne d'emboutissage. Un exemple de ces variations de hauteur est donné sur la Figure II.12. Une étude plus détaillée des dimensions des godets, de leurs conditions de fabrication et des contraintes résiduelles résultant de la mise en forme sera proposée dans le chapitre suivant.

Les différents types de godets ont été immergés dans des solutions de méthanol iodé de concentrations comprises entre 10^{-8} g.g^{-1} et 10^{-3} g.g^{-1} , dans des bocaux en verre hermétiquement clos. La fissuration de certains godets 100% a été suivie à l'aide d'une caméra prenant des photographies à intervalle régulier. Des cinétiques de fissuration ont pu ainsi être déterminées, avec une relativement mauvaise précision de mesure ($\pm 0.5 \text{ mm}$) due à la résolution des images et au fait que les fissures ne s'amorcent pas toujours sur le plan de focalisation de la caméra. Généralement, les godets restent 72 h dans le milieu corrosif. Certains essais ont été menés sur des durées beaucoup plus longues.

Après immersion, les godets sont nettoyés et observés à l'aide d'un microscope de fabrication spéciale de la marque Optique Peter disposant d'objectifs Mitutoyo. La distribution des fissures autour de l'axe des godets, ainsi que leurs longueurs dans le cas des godets 100% ont pu être observées. Les languettes fissurées sont découpées ou arrachées et les faciès de rupture sont observés au MEB.

II.3.1.2 Essais d'immersion d'éprouvettes

En plus des godets, des éprouvettes de flexion, ont été immergées dans des solutions de méthanol iodé de concentrations comprises entre 10^{-5} g.g⁻¹ et 10^{-2} g.g⁻¹, sans sollicitation extérieure. Les durées d'exposition sont comprises entre 1 h et 1000 h. Initialement les éprouvettes étaient polies et protégées par de la pâte siliconée, mais cela n'a pas toujours été le cas. Ce point sera repris dans la partie traitant des résultats de ces immersions.

Certaines éprouvettes ont été oxydées avant immersion, à 450 °C à l'air pendant 5 jours. Leur masse a été mesurée avant et après oxydation avec une balance de marque Mettler, modèle AX205 disposant d'une précision de 0.01 mg sur la plage 0-81 g. La surface moyenne de ces éprouvettes est de 1.98 ± 0.03 cm² et la prise de masse moyenne est de 0.64 ± 0.02 mg. L'épaisseur moyenne de la couche d'oxyde créée est ainsi estimée à 2.19 ± 0.12 µm, en considérant des masses volumiques du zirconium et de la zircone égales respectivement à 6.52 et 5.68 g.cm⁻³.

Des éprouvettes de traction, polies et non protégées, ont également été immergées. Ces éprouvettes ont été pré-déformées à la vitesse de 10^{-4} s⁻¹, jusqu'à des déformations totales comprises entre 0 et 12%.

Lors des immersions, les éprouvettes sont régulièrement sorties du milieu, nettoyées, séchées puis pesées afin de suivre leur perte de masse avec le temps. La même balance de précision 0.01 mg est utilisée. Des cinétiques de perte de masse dépendant de la concentration et de la présence ou non d'une couche d'oxyde ont été mises en évidence.

II.3.1.3 Essais de flexion 3 points à l'air

Un dispositif de flexion 3 points a été réalisé afin de tester la résistance mécanique des languettes préalablement immergées dans des solutions de méthanol iodé. Ce dispositif s'intègre à un montage inverseur permettant de faire des essais de compression sur la machine de traction. La distance entre les appuis extérieurs L_{ext} est de 5 mm et l'indenteur est une lame d'épaisseur 1 mm, dont l'extrémité en contact avec les échantillons est cylindrique. Lors de ces essais, la vitesse de descente de l'indenteur a été fixée à 1 mm.s⁻¹. En élasticité, la contrainte en peau externe est donnée par la formule Eq. II.6. F est la force appliquée sur l'indenteur ; les notations de la formule de flexion 4 points (Eq. II.5) sont conservées.

$$\sigma^{nom} = \frac{3FL_{ext}}{2bd^2} \quad \text{Eq. II.6}$$

Aucune lubrification des contacts n'a été effectuée, l'état de surface étant celui issu de l'usinage. Les courbes force-déplacement du poinçon présentent un aspect en dents de scie à cause du frottement. Les variations de la force appliquée sont typiquement de 2 N pour une force maximale de 50 N environ, d'où une incertitude maximale sur la contrainte en peau externe de 4%. Cette formule est utilisée même après la plastification de l'éprouvette et son glissement entre les appuis pour calculer la contrainte maximale appliquée au cours de l'essai. Cette contrainte maximale, qui est une normalisation de la force appliquée par les dimensions de l'éprouvette, sert à comparer rapidement les échantillons en fonction de leurs durées d'exposition, et à déterminer une éventuelle fragilisation conséquence de l'immersion

des éprouvettes. Bien entendu, après plastification de l'éprouvette, la contrainte prédite par cette formule n'a plus de sens. En l'absence de fragilisation, la valeur typique de cette contrainte maximale est de 1000 MPa.

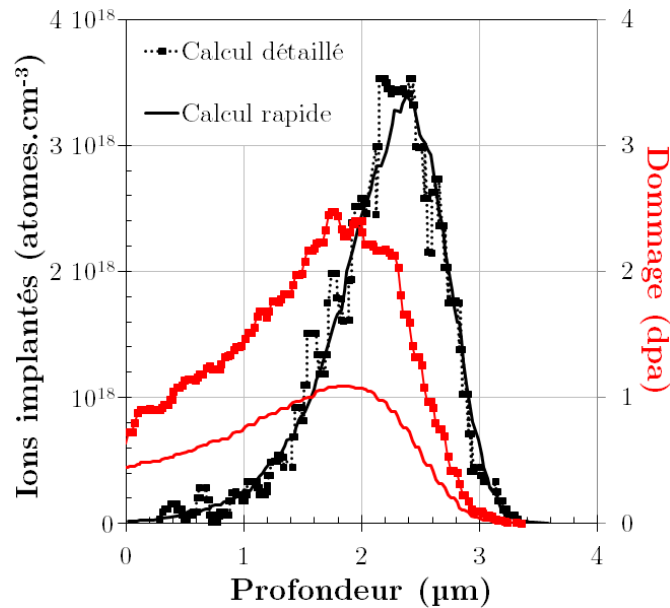


Figure II.13 : Calcul SRIM de la première implantation d'ions I^{4+} . Comparaison de deux types de calculs : détaillé (carré et tirets) et rapide (trait continu). Profil d'implantation (noir) et dommage d'irradiation (rouge).

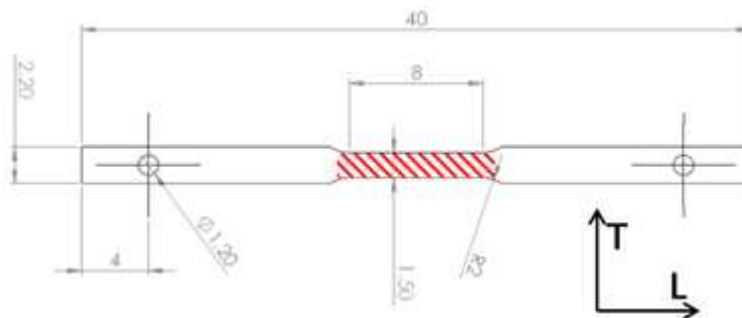


Figure II.14 : Dimensions des éprouvettes prélevées sur la plaque irradiée. La zone irradiée est délimitée par les hachures rouges.

II.3.1.4 Implantation en iode

Afin d'étudier la mobilité de l'iode dans la matrice de α -Zr, deux implantations en iode par bombardement d'ions $^{127}I^{4+}$ d'énergie 10 MeV ont été menées sur la plate-forme JANNUS (*Joint Accelerators for Nanosciences and Nuclear Simulation*) du SRMP du CEA Saclay. Une surface de $10 \times 20 \text{ mm}^2$ est exposée. L'angle d'incidence du faisceau d'ions est de 15° . Toutes les éprouvettes utilisées pour les implantations ont été préalablement polies.

La première implantation en iode a été menée à un flux moyen de $1.05 \cdot 10^{11} \text{ ions.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$, pour une dose finale implantée de $3.59 \cdot 10^{14} \text{ ions.cm}^{-2}$. Au cours de l'irradiation, la température des échantillons n'a augmenté que de 3°C . Cinq éprouvettes de traction lisses (sens T) et cinq petites languettes (sens T, $2 \times 18 \text{ mm}^2$) ont été irradiées.

La seconde implantation s'est déroulée dans des conditions équivalentes, mais avec une dose implantée finale bien plus faible : $1.78 \cdot 10^{13} \text{ ions.cm}^{-2}$. Lors de cette implantation, ont été

irradiées 2 éprouvettes de traction lisses (sens T), 3 éprouvettes de traction entaillées (sens T, type 8) et quatre petites languettes (sens T).

Le logiciel SRIM (*“Stopping and Range of Ions in Matter”*), développé par J. Ziegler, est utilisé pour déterminer le profil d’implantation des ions I^{4+} et le dommage créé (Ziegler). Deux types de calculs sont possibles : rapide ou détaillé. Le calcul détaillé simule l’ensemble de la cascade de déplacement due aux collisions entre l’ion incident et les atomes de la cible jusqu’à ce que l’ensemble des atomes cibles aient une énergie inférieure à l’énergie de déplacement. Dans le cas de très grandes cascades de déplacements, seuls les premiers 8000 déplacements sont considérés. Ce type de calcul est à privilégier pour connaître précisément le dommage créé dans la cible. Le calcul rapide utilise des outils statistiques issus du formalisme de Kinchin-Pease pour déterminer la distribution des ions implantés dans la cible et le dommage créé. L’énergie effective de déplacement pour l’atome de zirconium a été prise à 40 eV, plutôt que la valeur 25 eV adoptée dans SRIM, selon les recommandations de l’ASTM (ASTM 2003).

L’iode étant un atome de masse importante, les déplacements d’atomes qu’il engendre sont nombreux. Les limites matérielles des ordinateurs utilisés ne permettent pas de simuler plus de 1300 ions incidents pour un calcul détaillé, ce qui est insuffisant pour avoir une courbe d’implantation ou de dommage bien lisse. Le calcul rapide permet de simuler dans un temps raisonnable l’implantation de plusieurs dizaines de milliers d’ions. La comparaison des deux approches est illustrée sur la Figure II.13 : s’il n’y a que peu de différences sur les profils d’implantation selon le type de calcul, ce n’est pas le cas des dommages d’irradiation. La prédiction varie du simple au double.

Les éprouvettes de traction ont été sollicitées à différentes vitesses de déformation ou soumises à des essais de fluage. Certaines languettes irradiées ont été encapsulées sous vide puis soumises à des traitements thermiques (500 et 600°C, pendant 97h) pour observer une éventuelle diffusion des atomes d’iode. Les échantillons ont alors été analysés par SIMS, technique décrite dans la suite.

II.3.1.5 Irradiation aux protons

Afin d’étudier l’effet de l’irradiation sur la CSC-I tout en gardant les mêmes conditions expérimentales, il a été choisi de procéder à deux irradiations aux protons. Ces irradiations aux protons ont été réalisées au Michigan Ion Beam Laboratory (MIBL) de l’université du Michigan. Le dispositif d’irradiation est décrit avec précision par A. Serres (Serres 2008). Seule la première irradiation a été exploitée dans cette étude.

Echantillons utilisés

Le maintien des éprouvettes à une température fixée est le résultat de l’équilibre entre l’apport de chaleur par le faisceau d’ions incident sur la face exposée et son évacuation par contact avec un film d’indium liquide sur la face opposée. Pour éviter une vaporisation de l’indium par le faisceau, il faut que les échantillons irradiés soient parfaitement jointifs. Par expérience, le MIBL refuse d’irradier des échantillons de moins de 1 mm d’épaisseur. Pour pouvoir irradier le matériau de l’étude (épaisseur de 0.48 mm), une plaque a été utilisée, plutôt que des échantillons placés côte-à-côte. Cette plaque a été polie avant l’irradiation. Les éprouvettes de traction lisses sont prélevées après irradiation au SEMI/LPCMI à l’aide d’une fraiseuse numérique et des fraises de 0.5 mm de diamètre. Les dimensions sont précisées sur la Figure II.14. Pour éviter les problèmes de différence de déformations entre zone irradiée et non irradiée, la longueur utile des éprouvettes est réduite à 8 mm afin que la zone utile soit entièrement comprise dans la zone irradiée (18 x 10 mm²). De plus, la largeur des éprouvettes a été réduite à 1.5 mm dans la zone utile et 2.2 mm au niveau des

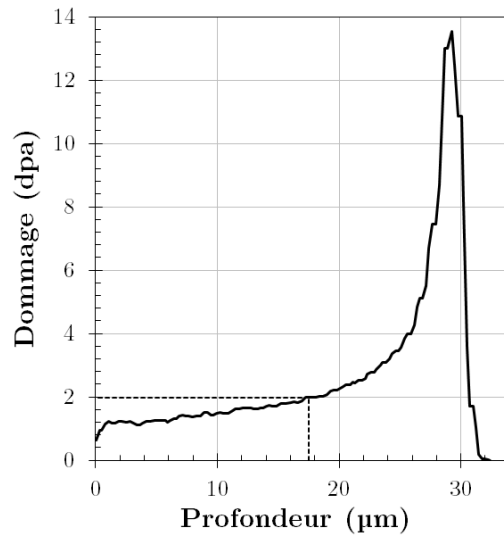


Figure II.15 : Profil du dommage d'irradiation obtenu à partir de calcul SRIM et des données expérimentales d'irradiation.

Tableau II.5 : Mesure du durcissement d'irradiation par dureté avec une masse de 100 g sur le plan TL.

	sens T			sens L			$\Delta H_{T/L}$ (%)	
	NI	IRR	ΔH_{IRR} (%)	NI	IRR	ΔH_{IRR} (%)	NI	IRR
Knoop	214	269	26	231	282	22	8.3	5.2
Vickers	Plan TL							
	NI	IRR	ΔH_{IRR} (%)					
	224	271	21					

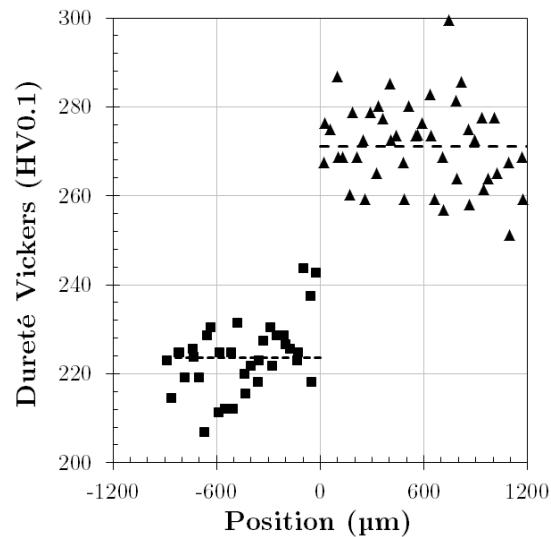


Figure II.16 : Mesure du durcissement d'irradiation par indentation Vickers avec une masse de 100 g. L'écart type des mesures est de 3.6%. Les mesures ont été réalisées pour plusieurs positions dans la longueur des échantillons. Les triangles correspondent aux mesures obtenues dans la zone irradiée et les carrés correspondent aux mesures faites dans la zone non irradiée. La position 0 correspond à la délimitation de la zone irradiée, visible à l'œil.

têtes de traction, afin d'extraire un maximum d'éprouvettes de la plaque irradiée. Des calculs par éléments finis ont été réalisés afin de vérifier le bon dimensionnement des éprouvettes en prenant en compte le durcissement d'irradiation. Ces calculs seront détaillés dans la suite de l'étude. Au final, 7 éprouvettes ont pu être extraites de la zone irradiée ; elles ont été prélevées dans le sens de laminage de la tôle.

Conditions d'irradiations

L'objectif initial était de réaliser l'irradiation dans les mêmes conditions que celles de A. Serres, à savoir une dose cible de 2 dpa, une énergie de protons de 2 MeV et une température d'irradiation de 305°C. En effet, une caractérisation complète de la microstructure après irradiation du Zircaloy-4 recristallisé avait été menée par A. Serres. Cependant, des problèmes de stabilité thermique ont conduit à réaliser cette irradiation à 350°C. De façon à connaître la microstructure des matériaux irradiés, nous nous sommes référés à la littérature. Zu a réalisé des irradiations aux protons du Zircaloy-4 recristallisé à 310 °C (5 dpa) et 350 °C (2, 5, 7 dpa) (Zu 2005). Il observe tout d'abord qu'à 350 °C, la microstructure d'irradiation n'est pas encore saturée à 7 dpa. Pour une même dose de 5 dpa, le durcissement d'irradiation (mesuré par indentation Vickers) est plus important pour une température d'irradiation de 310 °C que pour 350°C. De plus, si un début d'amorphisation des précipités $Zr(Fe,Cr)_2$ est observé à 310 °C, cela n'a pas été le cas pour la température de 350 °C. A une dose de 2 dpa et 350 °C, un diamètre de boucles $\langle a \rangle$ de 7 nm et une densité de $7 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$ ont été déterminés. Pour une irradiation à 305 °C, Serres avait trouvé un diamètre moyen de 10 nm et une densité de $17 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}$ (Serres 2008). La transposition des résultats de la thèse d'A. Serres à notre étude n'est donc pas immédiate. Plus récemment Tournadre a réalisé des irradiations aux protons (2 MeV) à 350 °C à une dose de 11.5 dpa et constaté la présence de boucles $\langle c \rangle$ comme lors de l'irradiation neutronique (Tournadre 2012). Même si le diamètre des boucles obtenues avec des particules chargées est plus faible (à cause des différences de taux de dommage), cela confirme l'intérêt de l'utilisation des protons pour étudier l'influence de l'irradiation.

Pour calculer les doses d'irradiation à partir des flux de particules durant l'irradiation, des calculs SRIM sont nécessaires. Le profil d'endommagement est relativement constant entre 0 et 20 μm puis une forte concentration du dommage est observée à une profondeur de 29.2 μm : c'est le pic de Bragg. La dose de 2 dpa est choisie comme celle à atteindre à une profondeur de 60% du pic de Bragg. Le profil de dommage calculé est donné sur la Figure II.15 en prenant en compte les données expérimentales de l'irradiation : flux moyen de $1.25 \cdot 10^{14} \text{ ions.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ (courant total de 36 μA , ouverture de 1.8 cm^2) et une durée d'irradiation de 35 h. Etant donnée la taille moyenne de grains, l'irradiation affecte jusqu'à 7 grains en surface. La dose des deux premiers grains en surface est d'environ 1.4 dpa.

Mesure du durcissement d'irradiation

Les boucles de dislocation $\langle a \rangle$ issues de l'irradiation agissent comme des obstacles au mouvement des dislocations et induisent un durcissement. Pour le quantifier, des indentations Vickers et Knoop ont été réalisées sur le plan TL, de la première éprouvette irradiée débitée, de part et d'autre de la délimitation de la zone irradiée. Le microduromètre Buelher mentionné précédemment est utilisé avec un poids de 100 g. La diagonale des empreintes Vickers pour cette masse est d'environ 30 μm , distance mesurable précisément en microscopie optique. Srikant a étudié la distribution des déformations plastiques sous une indentation Vickers par micro-dureté sur une demi section de matériau indenté (Srikant 2006). Le matériau considéré était un alliage d'aluminium 7075 présentant des propriétés mécaniques proches du Zircaloy-4 recristallisé. Il a observé que la profondeur de la zone plastique était d'environ deux fois la diagonale de l'empreinte. Pour ne tester que la zone irradiée, il faudrait donc une diagonale d'empreinte Vickers de l'ordre de 15 μm , soit une profondeur de 2 μm environ. Nos mesures sous-estiment donc sans doute le durcissement induit par l'irradiation. La nano-indentation serait donc à privilégier à l'avenir.

Le profil de dureté Vickers sur éprouvette irradiée est donné en Figure II.16. L'ensemble des résultats de dureté est rappelé dans le Tableau II.5. L'utilisation d'une masse plus faible (100 g contre 200 g) se traduit par une augmentation de la dispersion, l'écart-type passant de 5.5 HV0.2 à 8 HV0.1, mais aussi de la valeur moyenne de la dureté, 224 HV0.1 contre 210 HV0.2 (+5%). Ces variations sont liées à la réduction du volume testée et à la texture du matériau, ainsi qu'à la plus faible précision des mesures quand la taille de l'empreinte diminue. L'irradiation induit une augmentation de dureté ΔH_{IRR} de 21.2% pour les empreintes Vickers. Ceci est en accord avec le durcissement mesuré par Serres (21%) pour une dose de 2 dpa à 305 °C (Serres 2008) et celui de Zu (22.9%) pour une dose de 2 dpa à 350 °C (Zu 2005). Les empreintes Knoop ont été faites dans les deux directions du feuillard, une empreinte de sens T correspondant à la grande diagonale orientée selon T. L'écart de dureté entre la direction T et la direction L, $\Delta H_{T/L}$, passe de 8.3% pour le matériau non irradié (NI) à 5.2% pour le matériau irradié (IRR), signe d'une diminution de l'anisotropie.

Essais réalisés sur matériau irradié

Six éprouvettes irradiées ont été soumises à des essais de CSC-I à vitesse de déformation imposée. Etant donné le faible nombre d'éprouvettes et les multiples paramètres à étudier, des essais interrompus successifs ont été réalisés sur chaque éprouvette. Trois vitesses de déformation ont été testées (10^{-5} s^{-1} , 10^{-4} s^{-1} et 10^{-3} s^{-1}) ainsi que trois concentrations en iode (10^{-5} g.g^{-1} , 10^{-4} g.g^{-1} et 10^{-3} g.g^{-1}). En ce qui concerne le matériau non irradié, chaque éprouvette n'était soumise qu'à un seul essai. Ici, une même éprouvette a subi entre 3 et 5 essais, toujours aux mêmes vitesses et concentrations. La question de l'historique de chargement et de l'accumulation ou non du dommage de CSC-I se pose donc dès le second essai réalisé sur une éprouvette. Ce point sera discuté dans le chapitre traitant de ces essais. L'exploitation des essais est identique à celle des éprouvettes non irradiées.

II.3.1.6 Analyses chimiques par SIMS

Principe

Le principe et l'historique de développement de la technique de spectrométrie de masse des ions secondaires (ou SIMS en anglais) sont rappelés par Honig (Honig 1985). Cette technique consiste à bombarder la surface d'un échantillon avec un faisceau d'ions afin de la pulvériser. Les ions ainsi formés sont accélérés et dirigés vers un spectromètre de masse pour analyse. Une analyse SIMS permet d'obtenir différentes informations sur les matériaux (cartographies ioniques des surfaces, spectre de masse, analyse isotopique,...). Il est également possible d'obtenir des profils de répartition d'éléments en profondeur en creusant progressivement la surface.

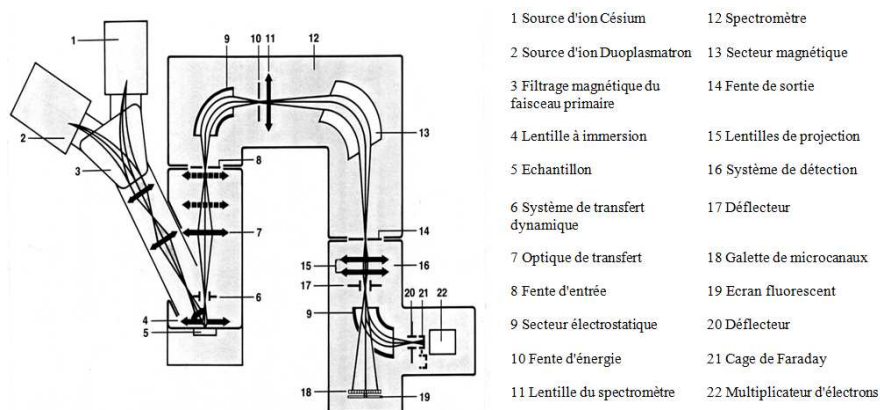


Figure II.17 : Description du système optique ionique de l'IMS 4F utilisé dans l'étude. (INSA Toulouse).

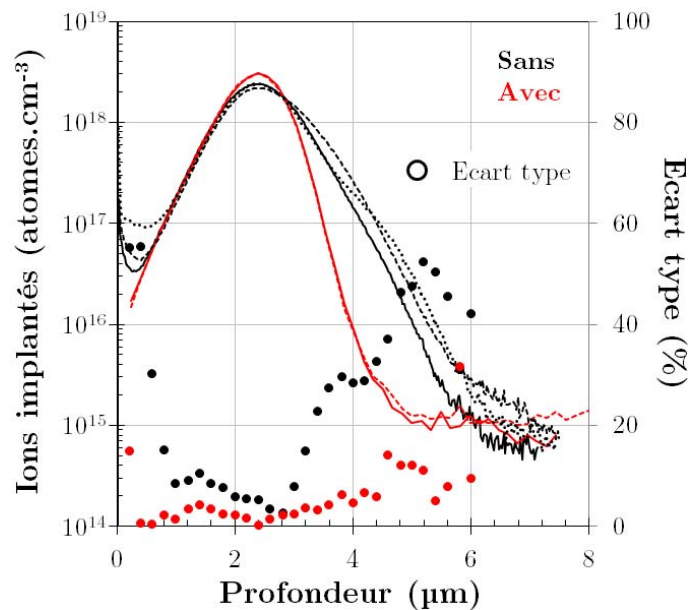


Figure II.18 : Reproductibilité des mesures SIMS, éprouvette A2T1-20, implantation en iode n°1 ($3.59 \cdot 10^{14}$ ions.cm⁻²). Deux profils avec mouvement tournant (rouge) et trois sans (noir). Les écarts types des deux types de mesures sont indiqués (ronds).

Conditions d'analyse

L'appareil utilisé est un CAMECA IMS 4F6 de l'INSA Toulouse, équipé notamment d'une source Césium micro-faisceau. Un schéma est donné en Figure II.17. En choisissant la source au Cs, celle d'ion O⁻ ou celle d'ion O²⁺, tous les éléments de la table périodique peuvent être analysés. La résolution latérale de l'appareil est théoriquement de 0.2 μm, la résolution en profondeur de 2 nm, avec des limites de détection très faibles, de quelques ppm à 0.1 ppb selon les éléments.

On choisit un bombardement de surface par des ions Cs⁺, d'énergie 14.5 keV (énergie de polarisation de 10 keV en sortie de canon et polarisation en tension négative de l'échantillon à -4.5 keV). Lors des différentes analyses, le courant de sortie de canon est proche de 102 nA. Le faisceau balaye un carré de 150 x 150 μm. Deux types d'imagerie sont possibles, directe ou par balayage. Dans le cas de l'imagerie par balayage, le fonctionnement du SIMS est comparable à celui d'un MEB, avec la présence d'un détecteur synchronisé. Ce mode de fonctionnement permet d'atteindre les meilleures résolutions de l'appareil, et ne creuse presque pas la surface de l'échantillon. L'imagerie directe consiste à envoyer les ions arrachés directement sur un écran fluorescent et à visualiser ce dernier. Cela permet l'utilisation de courants bien plus importants et ainsi de faire des analyses en profondeur. Lors des analyses en profondeur (profil de concentration), un diaphragme de diamètre 30 μm est utilisé pour limiter la surface analysée au centre, afin d'éviter les effets de re-déposition d'éléments sur les bords. Etant donnée la taille moyenne des grains du matériau considéré, l'analyse concerne alors environ 50 grains.

Limitations

La principale source d'incertitude de la technique est due aux effets de matrice : modification du taux de pulvérisation suivant la nature de la matrice analysée avec notamment des effets de composition et d'orientation cristallographique. Ici, la texture du matériau rend difficile les déterminations quantitatives et qualitatives des espèces et les images de surface sont à exploiter avec précaution.

Cet effet de matrice a une influence également lors des déterminations de profils de concentration en profondeur. Pour comparer les différentes mesures, les signaux de détection

sont « normalisés » par un coefficient appelé le facteur de sensibilité ou RSF déterminé à partir d'un étalon : le RSF est le rapport du signal (en coups par seconde c/s) d'une espèce analysée (à une concentration connue) par le signal des atomes de la matrice (Z_r) dans la même unité. Dans cette étude, l'iode est l'élément principal recherché dans ces expériences. Les implantations en iode et les calculs SRIM associés ont servi à étalonner l'appareil : la position du pic d'implantation permet de définir la vitesse d'érosion sous faisceau, et la dose totale détermine le RSF. Les concentrations en iode sont alors déterminées en atomes.cm^{-3} alors qu'on ne dispose que d'une analyse qualitative des signaux pour les autres espèces.

Malgré l'utilisation du RSF, la reproductibilité des mesures sur un même échantillon est faible. La Figure II.18, montre les différentes mesures effectuées sur une éprouvette de traction issue de l'implantation en iode à haute dose. L'écart-type peut dépasser 40% entre 4 et 5 μm de profondeur. Pour s'affranchir de ce problème lié aux orientations des grains, il est possible de faire tourner l'échantillon sur lui-même pendant les mesures. Avec cette méthode, la reproductibilité est grandement améliorée. Cependant, seul l'échantillon placé au centre de l'appareil peut être analysé de cette façon. C'est pourquoi son utilisation dans cette étude ne sera pas systématique.

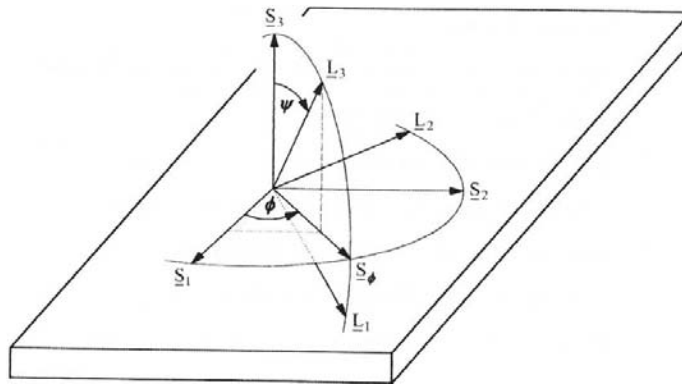


Figure II.19 : Systèmes de coordonnées pour la détermination des contraintes par DRX, d'après (AFNOR 2009).

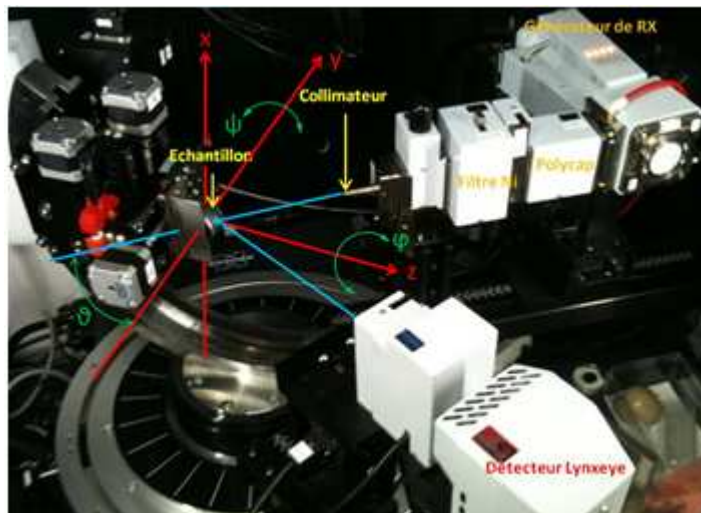


Figure II.20 : Dispositif expérimental pour la détermination des contraintes résiduelles dans un godet 100%, au SRMA/LA2M.

II.3.1.7 Détermination des contraintes résiduelles par DRX

La diffraction des rayons X a également été utilisée pour évaluer les contraintes résiduelles de surface d'un godet à avalement total. Ces évaluations seront comparées à celles obtenues par calcul par éléments finis dans le chapitre suivant.

Principe

La diffraction des rayons X permet de déterminer les contraintes résiduelles par mesure de la distance interréticulaire d_{hkl} d'une famille de plans cristallins $\{hkl\}$ et sa comparaison avec la distance pour le matériau non contraint d_{hkl}^0 . Les angles et axes d'intérêt sont définis sur la Figure II.19. S_1 et S_2 sont les axes dans le plan de l'éprouvette, S_3 est normal à la surface de l'éprouvette. L_1, L_2, L_3 sont les coordonnées du laboratoire, L_3 est perpendiculaire aux plans réticulaires $\{hkl\}$ et bissectrice des faisceaux incidents et diffractés. Φ est l'angle entre S_1 et S_Φ , la projection de L_3 sur le plan de l'éprouvette, Ψ est l'angle entre S_3 et L_3 .

Dans le cas d'un matériau cristallin élastique macroscopiquement isotrope, la déformation dans la direction L_3 s'exprime par l'équation Eq. II.7 en fonction des angles Φ et Ψ et des contraintes définies dans le repère (S_1, S_2, S_3) de l'éprouvette.

$$\begin{aligned} \varepsilon_{\Phi\Psi}^{\{hkl\}} = \ln\left(\frac{d_{\Phi\Psi}}{d_0}\right) &= S_1^{\{hkl\}}[\sigma_{11} + \sigma_{22} + \sigma_{33}] + \frac{1}{2}S_2^{\{hkl\}}\sigma_{33}\cos^2\Psi \\ &+ \frac{1}{2}S_2^{\{hkl\}}[\sigma_{11}\cos^2\phi + \sigma_{22}\sin^2\phi + \tau_{12}\sin 2\phi]\sin^2\Psi \\ &+ \frac{1}{2}S_2^{\{hkl\}}[\tau_{13}\cos\phi + \tau_{23}\sin\phi]\sin 2\Psi \end{aligned} \quad \text{Eq. II.7}$$

$S_1^{\{hkl\}}$ et $S_2^{\{hkl\}}$ sont les constantes d'élasticité de la famille des plans réticulaires. Les composantes de la contrainte σ_Φ et τ_Φ sont définies comme contrainte normale et contrainte de cisaillement dans la direction S_Φ :

$$\sigma_\Phi = \sigma_{11}\cos^2\phi + \sigma_{22}\sin^2\phi + \tau_{12}\sin 2\phi \quad \text{Eq. II.8}$$

$$\tau_\Phi = \tau_{13}\cos\phi + \tau_{23}\sin\phi \quad \text{Eq. II.9}$$

L'équation Eq. II.7 se réécrit alors Eq. II.10. En faisant varier l'angle Ψ , entre des valeurs positives et négatives, la courbe représentative de $\varepsilon_{\Phi\Psi}$ en fonction de $\sin^2\Psi$ est une ellipse. En réalisant des mesures à trois angles Φ différents, le tenseur des contraintes peut être déterminé.

$$\begin{aligned} \varepsilon_{\Phi\Psi}^{\{hkl\}} = \frac{1}{2}S_2^{\{hkl\}}(\sigma_\Phi - \sigma_{33})\sin^2\Psi + \frac{1}{2}S_2^{\{hkl\}}\tau_\Phi\sin 2\Psi + \\ \frac{1}{2}S_2^{\{hkl\}}\sigma_{33} + S_1^{\{hkl\}}Tr(\sigma) \end{aligned} \quad \text{Eq. II.10}$$

Conditions expérimentales et exploitation

Les analyses sont réalisées au SRMA/LA2M sur le diffractomètre Bruker D8-Discover équipé d'un berceau d'Euler $\frac{1}{4}$ de cercle au centre duquel se trouve une platine porte-échantillon mobile dans les 3 axes de direction. De par la forme en tonneau des godets emboutis, la mesure n'est possible qu'en plaçant le plan d'émission/détection des rayons X dans le plan axial/radial du godet. Dans ces conditions, en choisissant S_1 dans la direction axiale du godet, $\Phi=90^\circ$ et donc $S_\Phi = S_{22}$ avec 22 la direction circonférentielle du godet. Une vue du dispositif expérimental est donnée sur la Figure II.20. En supposant l'absence de contrainte normale à la surface, l'équation Eq. II.10 se simplifie (Eq. II.11).

$$\varepsilon_{\Phi\Psi}^{\{hkl\}} = \frac{1}{2}S_2^{\{hkl\}}\sigma_{22}\sin^2\Psi + S_1^{\{hkl\}}(\sigma_{11} + \sigma_{22}) \quad \text{Eq. II.11}$$

A partir de la courbe $\varepsilon_{\Phi\Psi} = f(\sin^2\Psi)$, censée être une droite, on peut déterminer σ_{22} via la pente moyenne. La valeur d_0 de référence est déterminée sur une plaque non polie prélevée dans un feuillard. Les plans considérés ici sont la famille $\{21\bar{1}3\}$. L'angle de diffraction 2ϑ entre faisceau incident et faisceau diffracté est de 118° .

Les valeurs des constantes d'élasticité de la famille des plans réticulaires peuvent être déterminées expérimentalement par l'utilisation d'un dispositif de mise en charge du même matériau à différentes contraintes et la mesure des distances interréticulaires associées (AFNOR 2009). Cette détermination fastidieuse est bien souvent remplacée par l'utilisation des constantes d'élasticité macroscopiques des matériaux via l'équation Eq. II.12 issue de (Lahanier 1983).

$$S_1^{\{hkl\}} = -\nu/E_{Young} ; S_2^{\{hkl\}} = (1 + \nu)/E_{Young} \quad \text{Eq. II.12}$$

Limon a étudié les coefficients d'élasticité de tubes en Zircaloy-4 recristallisés, notamment à température ambiante, et trouvé que l'élasticité pouvait être considérée isotrope dans le plan (ϑ, z) correspondant à (T, L) sur plaques (Limon 1995). Les coefficients élastiques de cette référence sont utilisés pour les calculs par éléments finis de cette étude présentés dans la suite : module d'Young E de 97.7 GPa et un coefficient de Poisson ν de 0.346. En utilisant les constantes d'élasticité d'un monocristal de zirconium, Northwood a calculé les variations des constantes d'élasticité en fonction de l'angle entre direction considérée et axe $\langle c \rangle$ de la maille hexagonale (Northwood 1975). Des variations de 30% sur les constantes d'élasticité sont observées. Bien qu'il y ait plusieurs milliers de grains dans la zone échantillonnée (1 mm de diamètre) lors des mesures, ces variations seront intégrées dans le calcul de l'incertitude sur les contraintes mesurées car elles bornent les valeurs réelles des constantes d'élasticité des familles de plans réticulaires.

Chapitre III : Comportement mécanique du matériau et simulation numérique

Introduction

Dans ce chapitre sont présentées les différentes étapes de la modélisation du comportement mécanique du matériau à température ambiante ainsi que l'utilisation de ce modèle dans la simulation numérique des essais de CSC-I de l'étude. Dans un premier temps, des essais de traction uniaxiale à vitesse de déformation imposée ont été réalisés en milieu inerte, dans la direction de laminage et la direction transverse du feuillard. Ces essais permettent de quantifier les principales caractéristiques mécaniques du matériau : viscosité et anisotropie de comportement. Un modèle de comportement viscoplastique anisotrope a alors été identifié. Une optimisation des paramètres du modèle a été entreprise à partir d'outil numérique et de mesures de champs de déformation sur éprouvettes entaillées. Le jeu de paramètres pertinent ainsi défini a été utilisé dans les simulations numériques par éléments finis de l'ensemble des essais de CSC-I de l'étude : essais de traction sur éprouvettes entaillées, flexion 3 et 4 points, emboutissage et fissuration de godets, éprouvettes irradiées aux protons. L'objectif de cette approche est d'évaluer les champs mécaniques locaux qui sont mis en œuvre dans ces essais de CSC-I. En combinant les observations expérimentales de présence de fissures et ces calculs, les paramètres critiques à l'amorçage des fissures pourront être estimés. Les simulations numériques permettent également de montrer les limites du modèle identifié et son domaine de validité. Les résultats expérimentaux et le modèle adopté sont comparés à ceux de la littérature puis discutés.

III.1 Caractérisation du comportement mécanique du matériau

III.1.1 Eprouvettes lisses

L'ensemble de l'étude a été mené à température ambiante, dans une salle thermo-régulée à 22 °C. La littérature montrant le caractère viscoplastique orthotrope du comportement des alliages de zirconium, nous avons caractérisé son comportement mécanique dans deux directions. L'épaisseur du feuillard étant faible (< 0.5 mm), il n'est pas possible de tester la direction normale (N) autrement que par des essais d'indentation. La majorité des essais de CSC-I réalisée consiste en des essais de traction effectués dans le plan du feuillard. On peut alors raisonnablement penser que les contraintes restent très faibles selon N. L'étude du comportement dans cette direction n'apparaît pas primordiale.

Tableau III.1 : Conditions expérimentales et exploitation conventionnelle des essais uniaxiaux réalisés à la température ambiante. Certains essais ont donné lieu à du suivi par corrélation d'image digitale (CID).

Direction	$\dot{\epsilon}$ (s^{-1})	$Rp_{0.2\%}$ (MPa)	σ_u (MPa)	ϵ_u^p (%)	ϵ_f^p (%)	Nom	CID
L	10^{-6}	309.3	nd **	nd **	9.9*	A1L1-17	-
L	10^{-5}	330.8	431.6	12.5	39.7	A1L1-3	-
L	10^{-5}	332.2	432.9	14	40.8	A1L1-8	-
L	10^{-4}	354.0	455.6	13.9	26.3*	A1L1-2	-
L	$10^{-4}, 10^{-5}, 10^{-3}$	356.4 ($10^{-4} s^{-1}$)	478.3 ($10^{-3} s^{-1}$)	13.3	35.6	A1L1-18	-
L	$2 \cdot 10^{-4}$	356.7	457.9	13.4	30.8	A1L1-6	oui
L	10^{-3}	378.9	480.4	13	25.6*	A1L1-1	-
L	10^{-2}	396.8	490.8	11.7	24.4	A1L1-4	-
T	10^{-6}	343.2	388.6	9.4	15.2*	A2T1-1	-
T	10^{-5}	361.0	403.2	8.9	17.9*	A1T1-15	-
T	10^{-5}	370.4	408.1	8.9	19.9*	A2T1-9	-
T	10^{-4}	393.8	433.1	9.2	24	A1T1-10	-
T	$10^{-4}, 10^{-5}, 10^{-3}$	395.4 ($10^{-4} s^{-1}$)	457.2 ($10^{-3} s^{-1}$)	9.3	18.9*	A2T1-8	-
T	$2 \cdot 10^{-4}$	401.1	439.0	10.5	25.7	A1T1-29	oui
T	10^{-3}	415.8	450.8	9.1	27.5	A1T1-11	-
T	10^{-3}	420.2	454.9	9.6	23.5	A2T1-4	-
T	10^{-2}	448.2	472.0	8.6	20.7	A2T1-7	-
T	10^{-2}	448.7	473.9	8.5	19.8	A1T1-16	-
T	10^{-2}	452.1	475.2	8.1	20.4	A2T1-5	-

* Eprouvette non rompue, valeur de fin d'essai

** Essais interrompus avant la détermination de σ_u

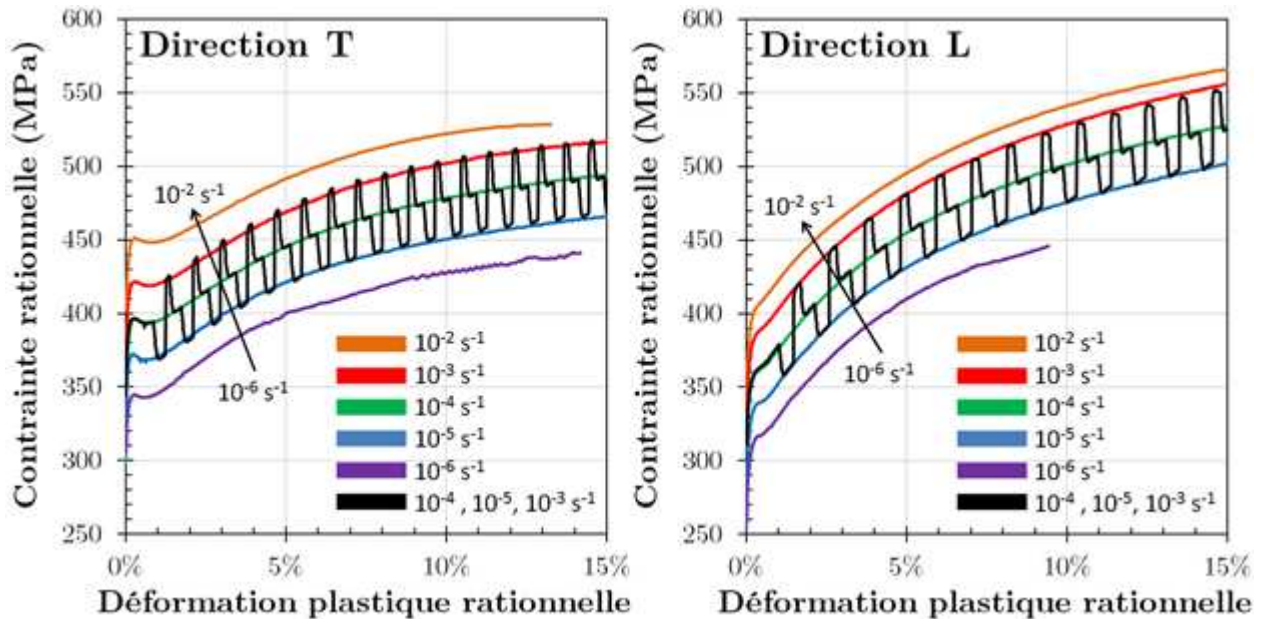


Figure III.1 : Essais de traction à vitesse de déformation imposée et essai avec saut de vitesse, en direction transverse (à gauche) et en direction longitudinale (à droite).

Des éprouvettes lisses de traction ont été prélevées dans la direction de laminage (L) et dans la direction transverse (T). Le Tableau III.1 liste l'ensemble des essais réalisés à vitesse de déformation $\dot{\epsilon}$ imposée et les grandeurs déduites de ces essais comme la limite d'élasticité à 0.2% de déformation plastique ($Rp_{0.2\%}$), la résistance mécanique (σ_u), l'allongement plastique réparti (ϵ_u^p) et l'allongement plastique à rupture (ϵ_f^p). Les vitesses de déformation testées ici encadrent celles de la suite de l'étude. Un essai avec saut de vitesse a également été effectué pour chaque direction, afin de vérifier si la sensibilité à la vitesse de déformation était isotrope et si elle évoluait avec la déformation plastique.

Les courbes rationnelles (ou « vraies ») des essais en sens travers et de laminage sont données en Figure III.1. La différence entre les deux directions apparaît clairement. Pour une vitesse de déformation de 10^{-4} s^{-1} , la limite d'élasticité à 0.2% de déformation plastique est de 394 MPa pour la direction T et de 354 MPa pour la direction L, soit environ 10% de moins dans cette dernière direction. En revanche, la résistance mécanique σ_u est plus importante pour la direction L (456 MPa) que pour la direction TL (433 MPa), ce qui montre un écrouissage plus important. En utilisant la définition du taux d'écrouissage n à partir d'une relation contrainte-déformation de type Hollomon (Eq. I.1), on trouve $n^L=0.134$ pour la direction L et $n^T=0.094$.

L'allongement réparti est plus important pour la direction L à toutes les vitesses considérées, d'environ 4%. Il diminue légèrement, de 2%, avec la vitesse de déformation, entre 10^{-6} et 10^{-2} s^{-1} .

En début de plasticité, on remarque la présence d'une anomalie de comportement sur la courbe contrainte-déformation. Dans le cas de la direction T, il s'agit d'un pic de contrainte suivi d'un léger adoucissement. Pour la direction L, on voit plutôt d'un plateau. Cette baisse/stagnation de la contrainte est associée à la propagation d'une bande de déformation de Lüders et est qualifiée de vieillissement statique ou SSA (*Static strain aging*). Comme le vieillissement dynamique ou l'effet Portevin-Le Chatelier, il s'agit d'une interaction entre atomes en solution d'insertion, ici essentiellement l'oxygène, et les dislocations (Graff 2006). Une distribution initiale de dislocations ancrées sur des clusters (nuages) d'atomes en insertion est présente dans le matériau. Lors de l'apparition de la plasticité, ces dislocations se désancrent, causant un adoucissement (Dunlop 2005). Ce désancrage, qui s'initie sur l'une des têtes des éprouvettes, génère une bande de cisaillement orientée à 45 ou 50° qui se propage tout le long du fût de l'éprouvette. Le déroulement de cette instabilité peut être associé à l'existence d'une contrainte critique qui est atteinte localement dans le congé de raccordement, inévitable, résultant de la conception d'une éprouvette de traction. La différence de comportement mécanique entre les deux directions de traction peut-être due à la nature de l'ancrage et, par là même, aux types de systèmes de glissement activés selon la direction.

L'écart constant entre les courbes à différentes vitesses et la bonne superposition avec l'essai de sauts de vitesses montrent que la viscosité du matériau est indépendante de l'histoire de la déformation et de la direction de sollicitation. Le paramètre de sensibilité à la vitesse (m) identifié à partir de la courbe présentée sur la Figure III.2 est égal à 0.030 ± 0.006 . L'anisotropie plastique a également été étudiée par la détermination des coefficients de Lankford (Eq. I.2) dans les deux directions (Figure III.3). Pour cela, deux essais de traction à $2 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ ont été filmés et les images extraites ont été analysées par le logiciel de corrélation d'images digitales (CID) CorrelmanuV (Bornert). L'état de surface initial des éprouvettes est utilisé, non poli et sans mouchetis. Les champs de déformation axiale (ie. dans la direction de traction) et latérale sont mesurés à chaque seconde et moyennés sur la surface analysée. Un rapport de déformation de -0.78 pour la direction L et de -0.815 dans la direction T ont été mesurés, menant à des coefficients de Lankford respectifs de $L_L=3.54 \pm 0.40$ et $L_T=4.41 \pm 0.50$. L'incertitude provient essentiellement de l'incertitude de la

mesure de la déformation par DIC, estimée à ± 0.01 par Le Saux (Le Saux 2008). Ces valeurs sont bien éloignées du cas isotrope $L_L=L_T=1$, confirmant que l'accommodation selon la direction normale est difficile pour ce type de sollicitation. Les coefficients de Lankford varient avec la direction, montrant encore l'anisotropie de comportement dans le plan du feuillard.

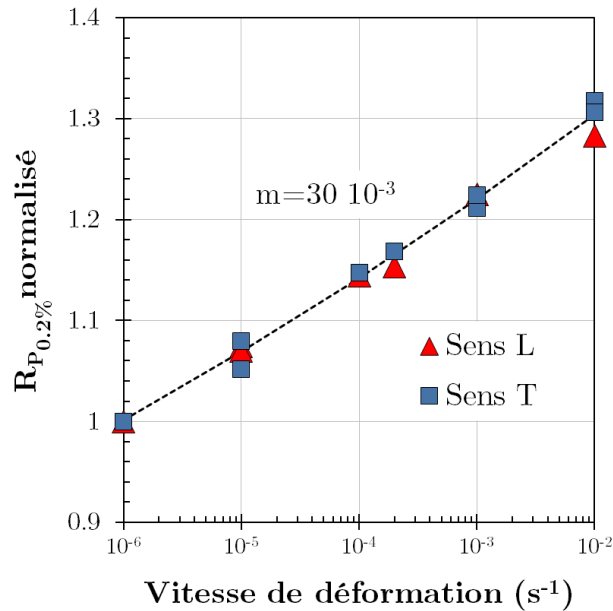


Figure III.2 : Détermination du coefficient de sensibilité à la vitesse de déformation : limite d'élasticité normalisée par sa valeur à $10^{-6} s^{-1}$, en fonction de la vitesse de déformation.

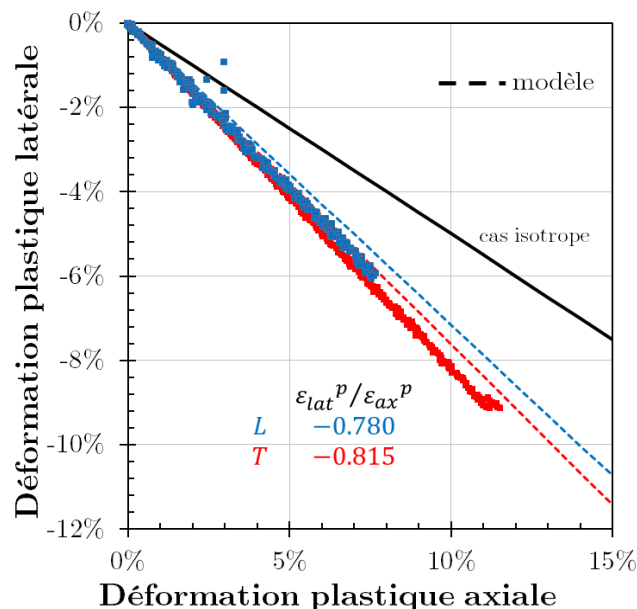


Figure III.3 : Suivi par corrélation d'images de la déformation latérale de l'éprouvette en fonction de la déformation axiale, pour un essai à vitesse de déformation constante de $2 \cdot 10^{-4} s^{-1}$, dans les directions L (bleu) et T (rouge). Ajout des courbes pour le modèle identifié, introduit dans la suite (traits pointillés).

Tableau III.2 : Essais sur éprouvettes entaillées suivis par CID. Les déformations plastiques macroscopiques à la contrainte maximale $E^P(\Sigma_{max})$, à rupture de l'éprouvette E^P_{final} et à l'arrêt de la corrélation d'image $E^P_{fin\ CID}$ sont précisées

Direction	$R_{entaille}$ (mm)	\dot{E} (s^{-1})	Σ_{max} (MPa)	$E^P(\Sigma_{max})$ (%)	E^P_{final} (%)	Nom	$E^P_{Fin\ CID}$ (%)
T	1	$9 \cdot 10^{-4}$	546.2	8.6	35.9	A2T12-1	8
T	0.5	$1.8 \cdot 10^{-3}$	569.8	21.4	75.0	A2T13-1	19
L	1	$9 \cdot 10^{-4}$	559.1	12.2	35.1	A2L12-1	15
L	0.5	$1.8 \cdot 10^{-3}$	609	32.7	65.5	A2L13-1	25

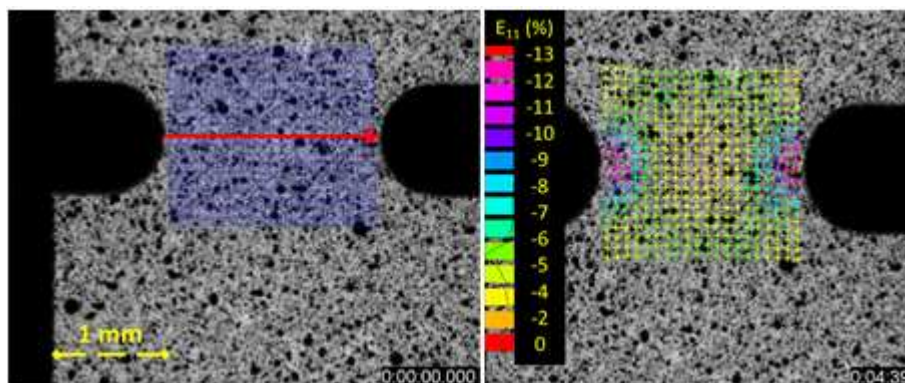


Figure III.4 : Répartition des domaines de corrélation sur une image non déformée (gauche) et champ de déformation latérale (droite), résultant de la corrélation d'images, éprouvette A2T13-1, pour une déformation macroscopique de 16%. La flèche rouge indique le ligament entre entailles le long duquel les déformations locales seront extraites.

III.1.2 Eprouvettes entaillées

Afin d'identifier un modèle le plus représentatif possible, des essais sur éprouvettes entaillées à vitesse de déplacement constante de $18 \cdot 10^{-3} \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ ont été réalisés et suivis par CID. La géométrie des éprouvettes et la définition des variables macroscopiques E et Σ ont été données dans le chapitre précédent. La liste des essais est donnée dans le Tableau III.2.

Un mouchetis (dispersion de points de peinture noirs sur fond blanc) a été appliqué sur ces éprouvettes afin d'obtenir un bon contraste local. La répartition aléatoire des points améliore la détermination des déplacements des domaines de corrélation en diminuant les ambiguïtés. Le choix de la taille du domaine et de la zone de recherche constitue une étape délicate dans la procédure de mise en œuvre de cette méthode. En effet, plus le domaine de corrélation est petit moins il est caractéristique, et plus on a de chances de trouver un faux domaine analogue sur les images déformées. A contrario, plus il est grand et plus on diminue la résolution spatiale des champs de déformation mesurés, car une valeur moyenne de la déformation est fournie par intégration sur le domaine. La taille de la zone de recherche doit être assez grande pour que d'une image à l'autre, on puisse y trouver le domaine. Une taille trop importante ralentit drastiquement la corrélation. Ici, on utilise typiquement 25×25 domaines de corrélation de taille 25 pixels \times 25 pixels. La zone d'intérêt est principalement le ligament entre les deux entailles. On se limite à l'étude d'un rectangle comme illustré en Figure III.4. Cela simplifie la projection des champs de déplacement sur un maillage dans le logiciel Cast3m pour des manipulations ultérieures.

A partir des films des essais, des images sont prélevées toutes les demi-secondes pour l'analyse par CID. Des visualisations des champs sont possibles (Figure III.4) mais on préfère l'exportation des résultats et leur traitement par Cast3m. Avec les paramètres de

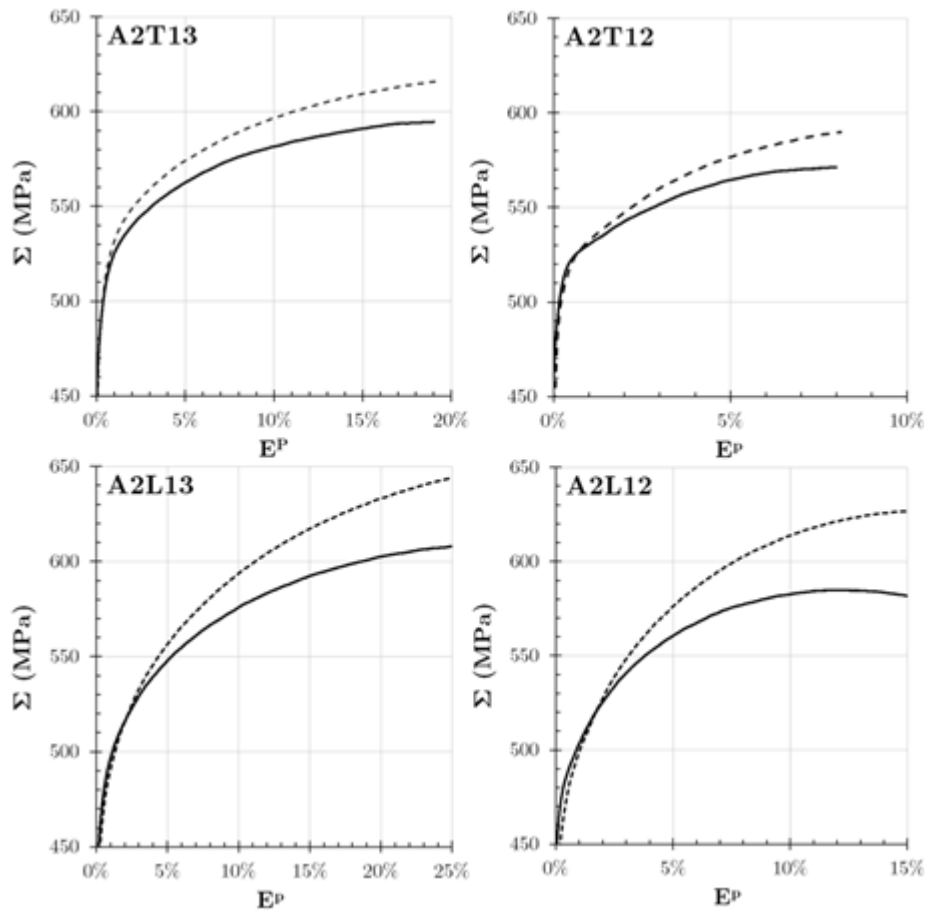


Figure III.5 : Réponse macroscopique des éprouvettes entaillées (traits continus) et prédiction du modèle déterminé au paragraphe III.2. Eprouvettes de directions de prélèvement T (haut) et L (bas) et rayons d'entailles de 0.5 mm (gauche) et 1 mm (droite).

corrélations utilisés, le critère de convergence n'est plus atteint à partir d'un certain déplacement. Les transformations locales sortent du cadre de la zone de recherche et la corrélation automatique s'arrête. Il est possible de la continuer en plaçant manuellement la position des domaines de corrélation posant problème mais cette option n'a pas été retenue pour ne pas introduire d'erreur. Les niveaux de déformation macroscopique de fin de corrélation, donnés dans le Tableau III.2, sont du même ordre que ceux de fin des essais uniaxiaux. On verra dans le chapitre suivant que les fissures de corrosion sous contrainte par l'iode s'amorcent pour de faibles niveaux de déformation. L'identification va se limiter aux déformations avant striction, de l'ordre de 10% pour la traction uniaxiale en sens T.

La réponse macroscopique des essais sur éprouvettes entaillées est donnée sur la Figure III.5. On constate encore une limite d'élasticité plus faible et un écrouissage plus important pour la direction L, suggérant la prédominance de la contrainte axiale (sens de prélèvement de l'éprouvette) dans la contrainte principale maximale. En considérant le déplacement plastique U^p , produit de la déformation plastique E^p par le diamètre de l'entaille, la contrainte maximale est atteinte pour un déplacement plus faible dans la direction T que dans la direction L, comme pour les allongements répartis des essais uniaxiaux. On remarque également que le déplacement plastique à rupture est plus important pour les petites entailles que pour les grandes, dans les deux directions, malgré une triaxialité des contraintes plus importante.

L'étude de l'accord entre modèle et expériences sur les courbes macroscopiques ainsi que l'exploitation des champs de déformations seront faites dans le paragraphe suivant.

III.2 Identification du modèle

Dans ce paragraphe, les résultats des essais mécaniques sont utilisés pour choisir un modèle de comportement, dont le formalisme est adapté aux observations, puis pour identifier ses paramètres.

Après une introduction du formalisme, la méthode initiale d'identification est présentée, et notamment ses simplifications qui ont permis l'obtention de plusieurs modèles simulant correctement les données macroscopiques. Enfin les résultats de CID sur éprouvettes entaillées sont utilisés pour choisir le jeu de paramètres le plus pertinent pour l'étude.

III.2.1 Formalisme du modèle

Pour les calculs par la méthode des éléments finis, le logiciel Cast3m, développé au CEA, a été choisi (CEA 2007). Limon y a implémenté le module MISTRAL (*Material STRAIN Laws*), pour calculer de façon cohérente l'ensemble des déformations du matériau de gainage des REP (élastique, thermique, viscoplastique, induite par l'irradiation) (Limon 2010). Ce module intègre de nombreux modèles de la littérature, ainsi que des lois standard paramétrables. Le module MISTRAL peut être utilisé de manière autonome (c'est-à-dire en dehors de CAST3M) dans le cas où l'on souhaite simuler la réponse d'un modèle intégré dans MISTRAL en situation de chargement unidirectionnel. Dans la suite de ce paragraphe, les valeurs rationnelles des variables sont utilisées.

Dans notre étude, les essais mécaniques se déroulent à température ambiante, les valeurs standard des coefficients de dilatation sont choisies. L'élasticité peut être décrite de façon orthotrope dans MISTRAL. Comme précédemment discuté, elle sera considérée isotrope ici, avec un module d'Young de 97.7 MPa et un coefficient de Poisson de 0.346.

Dans la suite on désignera par $[x]$ une matrice exprimée dans le repère (N, T, L) du feuillard dont les éléments sont x_{ij} , avec i et j les numéros de ligne et de colonne. Pour toute matrice symétrique $[x]$ de dimension 3×3 , on note $[x]^s$ le vecteur colonne à 6 lignes dont les éléments sont $(x_{11}, x_{22}, x_{33}, x_{12}=x_{21}, x_{13}=x_{31}, x_{23}=x_{32})$.

On ne considérera qu'une seule nature de déformation viscoplastique ε . La loi de normalité est retenue : le tenseur des vitesses de déformation viscoplastique est normal à la surface de charge. Cela implique la relation suivante :

$$\frac{d\varepsilon_{ij}^p}{dt} = \frac{\partial \sigma^*}{\partial \sigma_{ij}} v^* \quad \text{Eq. III.1}$$

Avec σ^* une contrainte effective équivalente, fonction des contraintes effectives $S_{ij} = \sigma_{ij} - X_{ij}$, avec X_{ij} les contraintes internes. Par convention la trace des contraintes internes (ou tenseur cinématique) est choisie nulle. v^* est une vitesse de déformation équivalente, ne dépendant des contraintes que par l'intermédiaire de la contrainte équivalente.

La contrainte équivalente la plus utilisée pour décrire les matériaux orthotropes et notamment les alliages de zirconium est la contrainte de Hill (Hill 1950; Prat 1998; Geyer 1999; Grange 2000). A l'aide des coefficients d'anisotropie H_i (dénommés coefficients de Hill dans la suite), la contrainte équivalente est définie dans le repère de la tôle par :

$$\sigma^* = \left[H_N (S_T - S_L)^2 + H_T (S_L - S_N)^2 + H_L (S_N - S_T)^2 + 2H_{NT} S_{NT}^2 + 2H_{TL} S_{TL}^2 + 2H_{LN} S_{LN}^2 \right]^{1/2} \quad \text{Eq. III.2}$$

En introduisant la forme matricielle $[M_H]$ du tenseur d'anisotropie de Hill :

$$[M_H] = \begin{pmatrix} H_T + H_L & -H_L & -H_T & 0 & 0 & 0 \\ -H_L & H_L + H_N & -H_N & 0 & 0 & 0 \\ -H_T & -H_N & H_N + H_T & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & H_{TL} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & H_{LN} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & H_{NT} \end{pmatrix} \quad \text{Eq. III.3}$$

ainsi que celle de la contrainte effective, on peut réécrire l'équation Eq. III.2 par :

$$\sigma^* = \sqrt{{}^t[S]^s \cdot [M_H] \cdot [S]^s} \quad \text{Eq. III.4}$$

Les coefficients de Hill sont définis à une contrainte multiplicative près. Pour lever cette indétermination, la relation $H_N + H_T = 1$ est imposée. Les coefficients pour le cisaillement n'étant pas mesurables directement dans nos essais, les valeurs correspondant à un comportement isotrope sont adoptées (3/2). On suppose le cisaillement nul dans les essais servant à l'identification. En utilisant la définition de la contrainte équivalente et la loi de normalité, le tenseur des vitesses de déformation plastique est donné par :

$$\frac{d[\varepsilon^p]^s}{dt} = \frac{\nu^*}{\sigma^*} [M_H] \cdot [S]^s = \frac{\nu^*}{\sigma^*} [M_H] \cdot ([\sigma]^s - [X]^s) \quad \text{Eq. III.5}$$

La vitesse d'écoulement ν^* est fonction des sollicitations actuelles mais également de son histoire via les variables internes telles que les contraintes internes et une contrainte seuil $R(\varepsilon^*)$ fonction de la déformation équivalente. La forme choisie ici est la loi de Norton suivante :

$$\nu^* = \left\langle \frac{\sigma^* - R(\varepsilon^*)}{\sigma_c} \right\rangle^p \quad \text{Eq. III.6}$$

Avec σ_c une contrainte de normalisation, $p=1/m$ l'inverse de la sensibilité m à la vitesse de déformation. L'utilisation d'une telle loi de type Norton est justifiée par la constance de m sur l'intervalle de vitesse étudié et avec la direction de sollicitation.

La loi retenue pour la contrainte seuil (ou écrouissage isotrope) est la suivante :

$$R(\varepsilon^*) = R_0 + R_1 \varepsilon^* \exp(-G_1 \varepsilon^*) + R_2 (1 - \exp(-G_2 \varepsilon^*)) \quad \text{Eq. III.7}$$

Avec ε^* la déformation plastique équivalente, prise égale à la déformation plastique cumulée, dont la dérivée temporelle est la vitesse de déformation équivalente ν^* . Le deuxième terme de l'équation Eq. III.7 est utilisé pour simuler le vieillissement statique en début de plasticité. Sa présence dans l'écrouissage isotrope ne permettra pas de rendre compte des différences d'écrouissage entre les deux directions de traction. Le troisième terme rend compte de l'écrouissage au-delà du pic/plateau.

L'évolution des contraintes internes (ou écrouissage cinématique) est gouvernée par la loi suivante :

$$\frac{d[X]^s}{dt} = C[E_C] \frac{d[\varepsilon^p]^s}{dt} - D\nu^*[R_D][X]^s \quad \text{Eq. III.8}$$

Avec $[E_C]$ et $[R_D]$, les matrices représentant respectivement les tenseurs d'anisotropie de l'écrouissage cinématique et de la restauration dynamique. Elles sont définies à l'aide de coefficients E_{Ci} et R_{Di} de la même façon que la matrice d'anisotropie de Hill à l'aide des coefficients H_i . Les coefficients C et D sont pris constants. L'utilisation de l'écrouissage cinématique apparaît nécessaire au vu des différences d'écrouissage entre les deux directions de traction, qui viennent s'ajouter aux différences de limite d'élasticité.

III.2.2 Simplifications et premières identifications

La première approche d'identification consistait à négliger la composante cinématique et à trouver un jeu de paramètres permettant de simuler correctement la réponse mécanique de la direction transverse. Dans ces conditions, les rapports des déformations plastiques, et donc les coefficients de Lankford (Eq. I.2), peuvent être directement reliés aux coefficients de Hill.

Pour une sollicitation uniaxiale dans la direction T, les équations Eq. III.2 et Eq. III.5 permettent d'écrire

$$\frac{d\varepsilon_T^p}{d\varepsilon_L^p} = -\frac{H_L + H_N}{H_N} = -\frac{L_T + 1}{L_T} \quad \text{Eq. III.9}$$

Pour une sollicitation uniaxiale dans la direction L, on obtient :

$$\frac{d\varepsilon_L^p}{d\varepsilon_T^p} = -\frac{1}{H_N} = -\frac{L_L + 1}{L_L} \quad \text{Eq. III.10}$$

La détermination du rapport de déformation lors des essais de traction uniaxiale suivi par CID permet alors de déterminer les coefficients de Hill. On trouve alors $(H_N, H_T, H_L) = (0.78, 0.22, 0.18)$.

A partir de ce résultat, les paramètres de l'écroutissage isotrope et de la loi de Norton ont été déterminés pour représenter la direction transverse. Le module MISTRAL autonome est utilisé pour simuler les essais de traction uniaxiale. Les résultats sont importés dans Excel, où ils sont comparés visuellement aux expériences. Un pilotage de ce module par lignes de commande MS-DOS permet de modifier très rapidement un ou plusieurs paramètres et de lancer les simulations.

Il est alors apparu que les limites d'élasticité prédites pour la direction L étaient éloignées des valeurs expérimentales. Ces valeurs des coefficients de Hill ne permettent pas une bonne représentation de la surface de charge. L'anisotropie plastique ne peut donc pas être expliquée simplement par un critère de Hill, la prise en compte de la composante cinématique s'avère nécessaire. On pourrait éventuellement déterminer des coefficients de Hill à différents niveaux de déformation plastique comme l'a fait Maki sur des tubes de Zircaloy-2 (Maki 1975). Mais, paramétrer les coefficients de Hill en fonction de la déformation pour représenter l'anisotropie de l'écroutissage sans utiliser de contrainte cinématique apparaît comme un artifice numérique.

Plutôt que d'utiliser les deux rapports de déformation pour déterminer les coefficients de Hill, on choisit d'imposer une même valeur de la contrainte équivalente dans les deux directions, en début de plasticité. Une nouvelle relation sur les coefficients de Hill est obtenue :

$$\sigma_L^*(\varepsilon^p = 0.2\%) = \sigma_T^*(\varepsilon^p = 0.2\%) \rightarrow \sqrt{H_N + H_L} = \frac{R_{p0.2\%}^L}{R_{p0.2\%}^T} \quad \text{Eq. III.11}$$

Le rapport des limites d'élasticité obtenues expérimentalement est moyenné sur toutes les vitesses utilisées et la valeur trouvée est utilisée dans l'équation Eq. III.11. On utilise alors l'équation Eq. III.9 reliant le coefficient de Hill et le coefficient de Lankford dans la direction transverse. On détermine ainsi de nouveaux coefficients de Hill respectant les différences de limite d'élasticité $(H_N, H_T, H_L) = (0.66, 0.34, 0.18)$. Les simulations numériques confirment que, dans ce cas-là, la différence de limite d'élasticité est bien respectée.

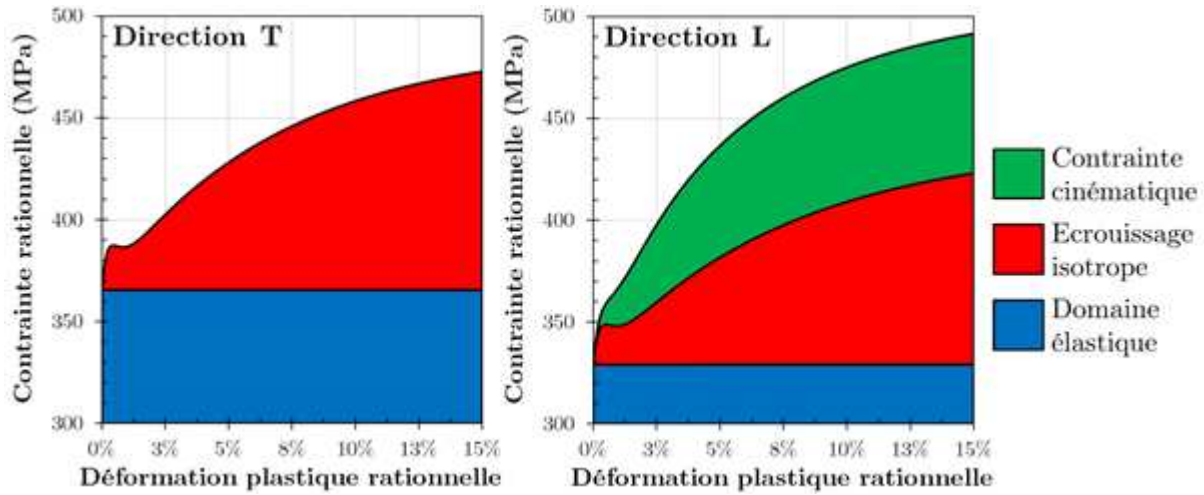


Figure III.6 : Utilisation de la contrainte cinématique pour représenter la différence d'écouissage selon les directions. La baisse de niveau de la contrainte isotrope entre la direction T et la direction L est due à l'utilisation du critère de Hill. Le plus faible écouissage en direction T qu'en direction L est lié à l'absence de contrainte cinématique dans la direction T.

La contrainte cinématique est alors réintroduite pour prendre en compte les différences de taux d'écouissage. La détermination manuelle des 2×6 paramètres des tenseurs de l'équation Eq. III.8 est hasardeuse sans données expérimentales correspondantes. Pour simplifier, on décide de choisir ces tenseurs de telle sorte que la contrainte cinématique soit nulle dans la direction T pour un essai de traction uniaxiale dans cette direction. En effet, il est aisé de déterminer les paramètres de l'écouissage isotrope permettant de bien simuler une direction de sollicitation. La contrainte cinématique n'est utilisée qu'en tant que variable d'ajustement entre les deux directions T et L. La démarche est illustrée sur la Figure III.6. Ce choix donne une expression très simple aux tenseurs d'anisotropie de la contrainte cinématique :

$$[E_C] = [R_D] = \begin{pmatrix} 2/3 & 0 & -2/3 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ -2/3 & 0 & 2/3 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 3/2 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 3/2 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 3/2 \end{pmatrix} \quad \text{Eq. III.12}$$

Il ne reste plus qu'à fixer les valeurs de C et D de l'équation Eq. III.8. Comme pour l'écouissage isotrope, la détermination sera faite par variation manuelle et comparaison calcul-expérience. L'ensemble des paramètres de ce modèle et sa comparaison avec les essais sont donnés dans (Mozzani 2011). Ce modèle constitue la base sur laquelle une optimisation va être réalisée. Celle-ci est décrite au paragraphe suivant.

III.2.3 Optimisation

III.2.3.1 Numérique

Un traitement des données plus objectif qu'une comparaison visuelle est préférable. Pour cela, la simulation des essais uniaxiaux à vitesse de déformation imposée a été faite dans un tableur Excel, en intégrant les équations d'évolution du modèle par différences finies sur un

point. Un pas d'intégration temporel correspondant à 0.05% de déformation axiale est utilisé. Les résultats d'intégration ont été comparés avec succès avec les données de sorties du module MISTRAL autonome et celles issues du post-traitement des calculs par éléments finis.

Les données expérimentales ont été ré-échantillonnées pour que les courbes contrainte-déformation soient toutes définies sur un même domaine de déformation plastique : de 0.05% à 13% par pas de 0.05%. Il est ainsi possible de définir simplement une mesure de l'écart $A_U^{\dot{\epsilon}}$ entre essais et simulation, pour une direction U et une vitesse $\dot{\epsilon}$ données :

$$A_U^{\dot{\epsilon}} = \sum_i \alpha_i \left(\frac{\sigma^{calc}(\epsilon_i) - \sigma^{exp}(\epsilon_i)}{\sigma^{exp}(\epsilon_i)} \right)^2 \quad \text{Eq. III.13}$$

Avec $\sigma^{calc}(\epsilon_i)$ et $\sigma^{exp}(\epsilon_i)$ les contraintes rationnelles calculée et expérimentale, pour une déformation plastique ϵ_i . Les α_i sont des coefficients de pondération. On choisit de prendre $\alpha_i=10$ si $\epsilon_i < 2\%$ et $\alpha_i=1$ au-delà. L'accent est donc mis sur les petites déformations plastiques. S'il existe une différence constante de 2% entre calculs et expériences pour un essai, cet écart vaut 0.232. Un écart global A est obtenu en sommant les écarts des différentes vitesses (5) et directions (2):

$$A = \sum_{U=T,L} \sum_{j=2}^6 A_U^{10^{-j} s^{-1}} \quad \text{Eq. III.14}$$

Pour les essais uniaxiaux, en plus des courbes macroscopiques, on dispose également des rapports de déformation comme données physiques. On peut mesurer également l'écart entre calculs et expériences de ce point de vue. En notant p_T et p_L les pentes respectives des courbes ϵ^P (axiale)- ϵ^P (latérale) pour les directions T et L, on définit un écart B :

$$B = \left(\frac{p_T^{calc} - p_T^{exp}}{p_T^{calc}} \right)^2 + \left(\frac{p_L^{calc} - p_L^{exp}}{p_L^{calc}} \right)^2 \quad \text{Eq. III.15}$$

B est utilisé comme borne physique à l'optimisation. En respectant les rapports de déformation, on peut espérer que les paramètres du modèle ne soient pas dénués de sens physique.

Un écart global E entre essais et calculs est défini par :

$$E = A + 100B \quad \text{Eq. III.16}$$

L'existence d'un écart sous forme scalaire permet d'utiliser le *solver* d'Excel afin d'optimiser l'ensemble ou une partie des paramètres du modèle. A partir du modèle identifié au paragraphe précédent, plusieurs nouveaux modèles ont été obtenus en laissant libre plus ou moins de paramètres du modèle: coefficients de Hill, forme simplifiée ou non de la contrainte cinématique, viscosité et écrouissage isotrope. Sept différents jeux de paramètres ont été retenus avec un écart sur les courbes A inférieur à 2, soit un écart moyen de 1.85%.

III.2.3.2 Utilisation de la CID

La réponse macroscopique de tous ces modèles est donc correcte pour les essais uniaxiaux. Cependant, dans le cadre de l'étude de l'effet de biaxialité sur l'amorçage des fissures de CSC-I, on cherche un modèle de comportement capable d'estimer correctement les déformations locales lors d'un essai de traction sur éprouvette entaillée. Les modèles ont donc été utilisés pour simuler les essais de traction en milieu inerte sur éprouvettes entaillées avec des calculs par éléments finis. Les déformations locales calculées par éléments-finis le long du ligament entre les entailles sont comparées aux résultats de la corrélation d'images.

Tableau III.3 : Paramètres du modèle identifié, avec forme simplifiée de la contrainte cinématique

$[M_H]$ (Eq. III.3)			Viscosité (Eq. III.6)		$[X]^s$ (Eq. III.8)	
H_N	H_T	H_R	σ_c (MPa)	$p=m^{-1}$	C (GPa)	D
0.66	0.34	0.16	435	33.4	2.47	21.2

$R(\epsilon^*)$ (Eq. III.7)				
R_0 (MPa)	R_1 (MPa)	G1	R_2 (MPa)	G2
1	118	305	109	13.2

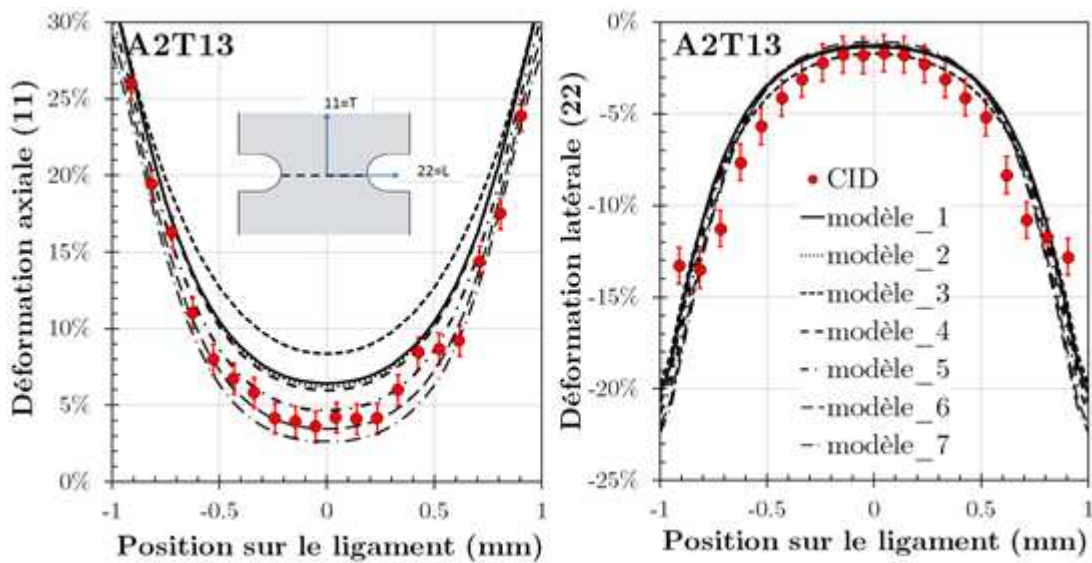


Figure III.7 : Profils de déformation dans la direction de traction (gauche) et dans la direction perpendiculaire (droite) le long du ligament joignant les entailles de l'éprouvette A2T13-1. Les différents modèles provisoires sont comparés aux mesures par CID. Déformation plastique macroscopique de 18%. Le modèle retenu est le n°5.

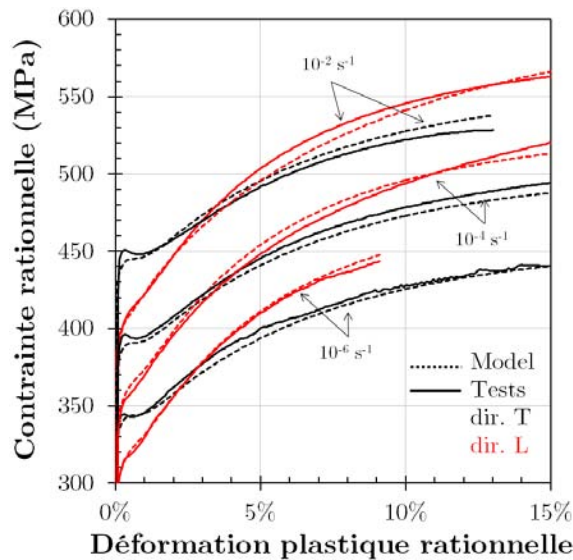


Figure III.8 : Effet de la vitesse de déformation sur la réponse mécanique en traction uniaxiale : comparaison essais/modèle.

Cette comparaison permet de choisir le modèle le plus pertinent. Les détails du calcul par éléments finis seront précisés dans le paragraphe suivant.

Comme la direction principale de sollicitation pendant l'IPG est la direction circonférentielle des gaines, on s'intéresse particulièrement aux essais dans la direction transverse de la tôle. L'éprouvette avec la plus petite entaille (la plus grande biaxialité) est considérée. Il s'agit de l'éprouvette de type 13 ($R_{\text{entaille}}=0.5$ mm, Figure II.5). Les réponses macroscopiques des modèles étant proches, on se place à une déformation macroscopique donnée E^P pour comparer les profils des déformations locales. Sur la Figure III.7, les profils des déformations axiale et latérale sont comparés pour la plus grande valeur d' E^P disponible, 18%. Les champs de déformation sont fortement hétérogènes à cause de la présence des entailles. Les déformations s'y concentrent, elles peuvent être jusqu'à 6 fois plus importantes qu'au centre de l'éprouvette où le profil est plutôt plat et ne dépasse pas les 5%.

Il apparaît que ces modèles de comportement prédisant des réponses macroscopiques très proches donnent des déformations locales très dispersées, allant du simple au triple. Par exemple au centre du ligament, pour la déformation axiale (direction T), les différents modèles donnent des valeurs comprises entre 3 et 8%. Puisque les estimations locales varient beaucoup, il est possible de choisir le modèle le plus cohérent pour ce type d'essais, en l'occurrence le modèle n°5 de la Figure III.7. Dans la suite de l'étude, on le nommera simplement « modèle », en laissant de côté les autres jeux de paramètres identifiés. Les paramètres du modèle en question sont donnés dans le Tableau III.3. Seuls les coefficients C et D sont mentionnés pour l'évolution de la contrainte cinématique car ce modèle possède la formulation simplifiée. La prédominance des petites déformations dans le critère A donne un poids très important à l'écrouissage isotrope qui permet de représenter le vieillissement statique aux dépens de la contrainte cinématique. Cela explique qu'il représente très bien les essais uniaxiaux. En revanche sa plus grande proximité avec les essais pour les profils de déformation ne doit pas être interprétée d'un point de vue physique mais bien numérique.

III.2.4 Accord du modèle avec d'autres essais de caractérisation

Essais uniaxiaux à vitesse de déformation imposée

La réponse du modèle utilisée via MISTRAL dans CAST3M sur un élément de volume est comparée aux essais à vitesse de déformation imposée sur la Figure III.8. Un bon accord est observé, avec un écart moyen de 1.5% sur l'ensemble de courbes de traction (2 directions et 5 vitesses), et un écart ponctuel maximal de 6%. L'intervalle de déformation sur lequel le modèle est pertinent est relativement important (0-15%). La sensibilité à la vitesse de déformation est bien représentée justifiant l'utilisation d'une loi de type Norton, tout comme la contrainte cinématique pour l'anisotropie de l'écrouissage.

Malgré la présence d'un terme spécifique dans l'optimisation des paramètres du modèle, l'anisotropie de déformation plastique n'est pas aussi bien simulée que les courbes macroscopiques. Avec le modèle de comportement, on obtient les coefficients de Lankford suivant : $L_L^{\text{calc}}=2.52$ et $L_T^{\text{calc}}=3.54$. On rappelle qu'expérimentalement les valeurs étaient respectivement de 3.54 et 4.41. A partir de l'étude bibliographique sur la CSC-I, on suppose que l'endommagement est principalement lié aux contraintes qu'il convient donc de représenter de manière fiable afin de localiser les zones propices à l'endommagement. On préfère donc une meilleure prédiction des contraintes à celle de l'anisotropie plastique.

Essais uniaxiaux de fluage

Ces essais ont été réalisés pour tester la validité du modèle pour des vitesses de déformation très faibles. Ils sont listés dans le Tableau III.4. Les mises en charge ont été faites à vitesse de déformation imposée de 10^{-4} s⁻¹ jusqu'à ce que le niveau de contrainte ciblé ait été

Tableau III.4 : Liste des essais uniaxiaux de fluage réalisés

Direction	$\sigma_{imposée}$ (MPa / % de $Rp_{0.2\%}$)	$\dot{\epsilon}^p_{secondaire}$ (s^{-1})	ϵ^p_f (%)	T_{final} (s)	Nom éprouvette
L	335 / 94.6	$3.97 \cdot 10^{-8}$	3.46*	228457	A1L1-16
L	366 / 103.4	$1.26 \cdot 10^{-7}$	5.0*	93281	A1L1-14
L	387 / 109.3	$2.48 \cdot 10^{-7}$	8.3*	97335	A1L1-15
L	387 / 109.3	$6.52 \cdot 10^{-7}$	6.0*	25029	A1L1-20
T	332 / 84.3	$5.05 \cdot 10^{-8}$	6.3*	448819	A2T1-17
T	377 / 95.7	$5.27 \cdot 10^{-7}$	16.4	160523	A2T1-13
T	377 / 95.7	$5.84 \cdot 10^{-7}$	10.6*	94190	A1T1-30
T	397 / 100.8	$4.01 \cdot 10^{-6}$	18	25766	A2T1-10
T	397 / 100.8	$3.01 \cdot 10^{-6}$	24.3	36702	A1T1-28
T	408 / 103.5	$1.07 \cdot 10^{-5}$	15.2*	8547	A2T1-11
T	418 / 106.1	nd**	6.8*	851	A1T1-27
T	418 / 106.1	$2.02 \cdot 10^{-5}$	16.6	4867	A2T1-12

* Non rompu, valeur de fin d'essai

** Non déterminé

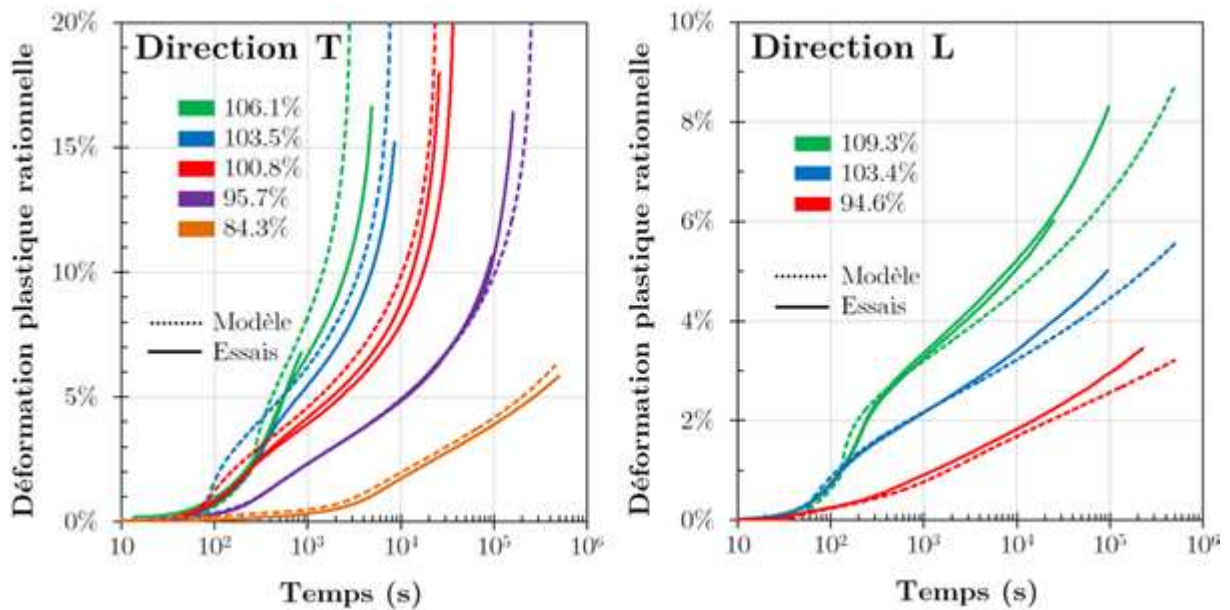


Figure III.9 : Résultats des essais de fluage et comparaison au modèle, pour la direction T (gauche) et L (droite). Les différentes couleurs correspondent à la contrainte de fluage, exprimée en pourcentage de la limite d'élasticité, à la vitesse de mise en charge utilisée.

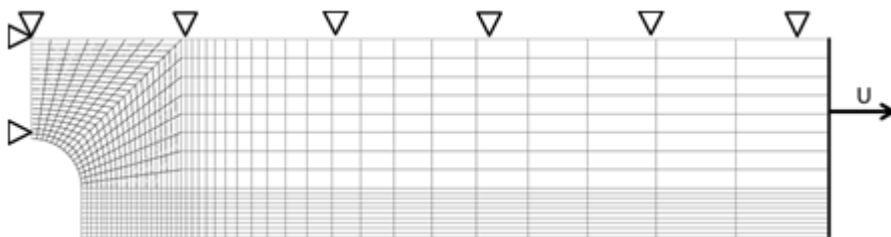


Figure III.10 : Maillage utilisé pour les éprouvettes entaillées de type 13.

atteint. Un contrôle en force est alors imposé pendant une période de 48h. Ces essais n'ont pas servi à l'identification du modèle, ils permettent de le tester en dehors de la base de données qui a été utilisée pour le construire. Certains essais ont été menés à rupture et d'autres ont été arrêtés une fois que le régime de fluage secondaire était installé. Quand cela était possible, les vitesses de déformation dans ce régime ont été déterminées.

Les essais montrent que la direction T est plus sensible au fluage que la direction L. Pour une contrainte appliquée égale à environ 95% de la limite d'élasticité, au bout de 10^5 s, la déformation dans la direction est deux fois supérieure à celle dans la direction L. Toutes les éprouvettes rompues ont été prélevées dans la direction T. Même pour des contraintes plus importantes, les éprouvettes de direction L n'ont pas rompu pendant la durée des essais.

Les simulations numériques avec Cast3m ont également été réalisées sur un élément de volume, en grandes déformations. Les résultats sont visibles sur la Figure III.9. L'incertitude expérimentale sur la valeur de la contrainte appliquée conduit à une grande dispersion des courbes de fluage. Si la cellule de force a une incertitude de 0.5%, l'incertitude pour la déformation est multipliée par l'inverse de la sensibilité à la vitesse d'après l'Eq. III.6, soit environ 16%. La réponse du modèle est comprise dans cet intervalle d'incertitude. Les écarts sont particulièrement faibles pour la direction transverse, notamment pour les faibles contraintes, même pour de fortes déformations. La description de la viscosité par une loi puissance de type Norton reste pertinente. On remarque également que le modèle tend à surestimer la déformation pour la direction T et à la sous-estimer pour la direction L.

Essais sur éprouvettes entaillées

La simulation des essais de traction sur éprouvettes entaillées a été réalisée en 2D avec la formulation des contraintes planes. Un quart d'éprouvette a été maillée, depuis le ligament jusqu'au début de congé de raccordement des têtes de traction. Des éléments rectangulaires et linéaires sont utilisés. 20 éléments sont placés sur le demi-ligament. Les déplacements sont bloqués pour respecter les symétries et le déplacement dans la direction de traction est imposé comme indiqué sur la Figure III.10. La raideur élastique de l'éprouvette dans le calcul est supérieure à celle de l'ensemble du dispositif expérimental de traction. On ne peut se fier au seul temps de l'essai pour recalibrer les courbes. On utilise pour cela les déformations macroscopiques plastiques. On arrive alors à faire correspondre à un pas de calcul, une image prise pendant l'essai et analysée par CID. Les profils de déformation sont extraits et comparés à chaque pourcent de déformation plastique macroscopique pour les éprouvettes de type 13, et à chaque demi-pourcent pour les éprouvettes de type 12. Cela revient à comparer essais et simulation tous les 10^{-2} mm de déplacement plastique.

Les courbes macroscopiques force-déformation plastique des simulations sont superposées à celles des essais sur la Figure III.5. On s'intéresse à la réponse du modèle pour des déformations macroscopiques inférieures à celle pour laquelle la CID n'a plus convergé. Ces déformations limites sont données dans le Tableau III.2. Les écarts sont inférieurs à 4% dans la direction T pour les deux types d'éprouvettes. Ils peuvent atteindre 7% dans la direction L pour les grandes déformations plastiques macroscopiques. Quand celles-ci sont inférieures à 5%, l'écart entre essais et modèle est plus petit que 3%.

Les profils de déformations axiale et latérale pour les quatre éprouvettes testées sont donnés en Figure III.11 et Figure III.12. Il convient tout d'abord de remarquer les grandes différences entre les déformations mesurées, selon la direction de l'essai, la géométrie de l'éprouvette et le niveau de déformation macroscopique. Les profils de déformation sont plus plats dans le cas des grandes entailles (type 12) que pour les petites : ces dernières favorisent la localisation de la déformation en fond d'entaille. Les valeurs de déformation locales au centre du ligament sont plus faibles pour les petites entailles que pour les grandes.

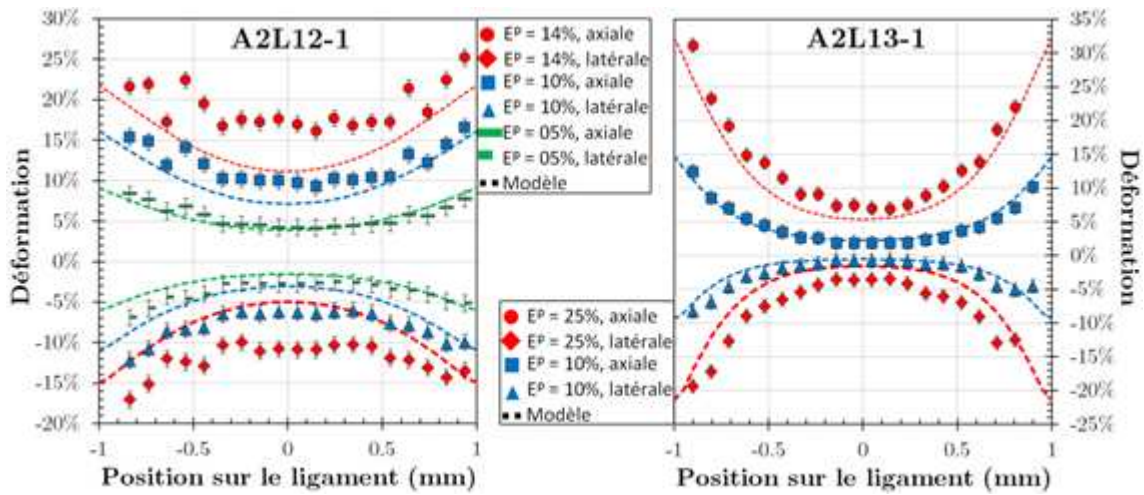


Figure III.11 : Comparaison des profils de déformation des éprouvettes entaillées de sens L, type 12 (gauche) et type 13 (droite), à différents niveaux de déformation plastique macroscopiques.

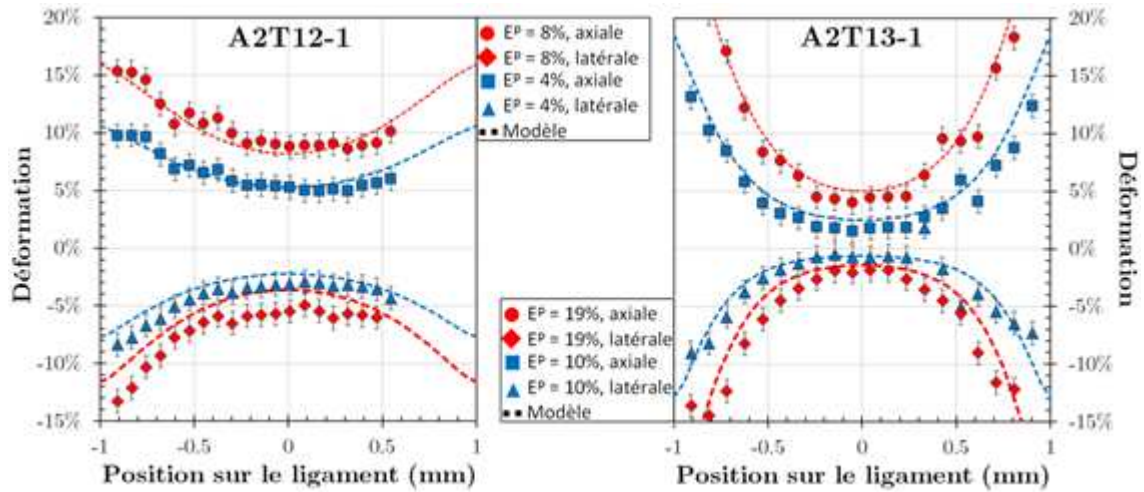


Figure III.12 : Comparaison des profils de déformation des éprouvettes entaillées de sens T, type 12 (R=1 mm, gauche) et type 13 (R=0.5 mm, droite), à différents niveaux de déformation plastique macroscopique.

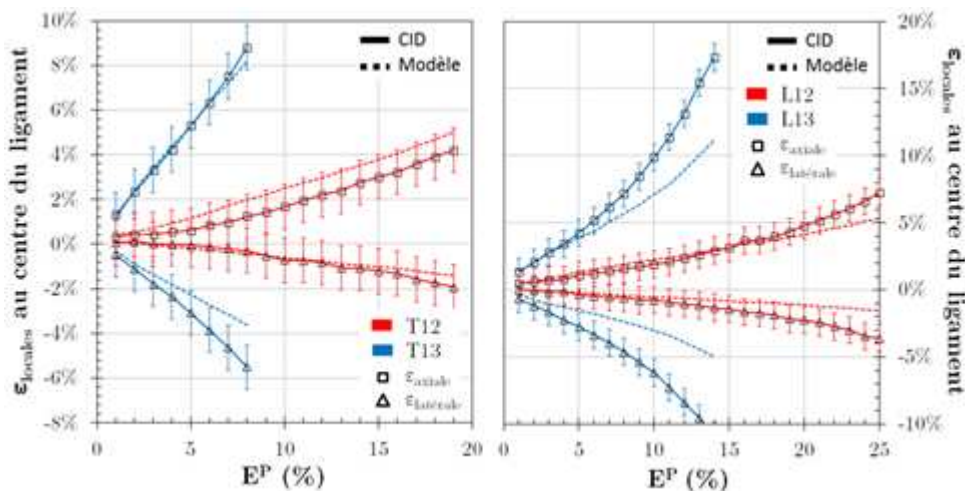


Figure III.13 : Evolution des déformations locales, axiales (carrés) et latérales (triangles), mesurées au centre du ligament des éprouvettes entaillées sollicitées suivant la direction T (gauche) et L (droite), avec des rayons d'entailles de 0.5 mm (type 13, bleu) et de 1 mm (type 12, rouge). Les prédictions du modèle sont également représentées (trait pointillés).

Les résultats montrent que l'accord entre essais et simulation est meilleur pour les éprouvettes de direction T, pour les petites entailles et pour les déformations locales axiales (plutôt que latérales). Globalement, le modèle a tendance à sous-estimer les déformations locales.

En se focalisant sur le centre des éprouvettes (lieu de biaxialité des contraintes maximales), on peut déterminer les intervalles pour lesquels les prédictions du modèle sont pertinentes. Pour cela, on a extrait les évolutions des déformations locales au centre des ligaments en fonction de la déformation plastique macroscopique, pour les calculs et les mesures par CID. La comparaison entre calcul et expériences est effectuée sur la Figure III.13. Pour l'éprouvette de direction T avec un rayon d'entaille de 1 mm (T12), il apparaît que le modèle prédit les déformations locales dans l'intervalle d'incertitude de la CID. Pour celle avec un petit rayon d'entailles (T13), la déformation axiale est bien prédite, car il s'agit du critère sur lequel on a sélectionné le meilleur modèle. En revanche, à partir d' $E^P=6\%$, la déformation latérale prédite par le modèle s'écarte significativement des mesures. Pour les éprouvettes de direction L, les déformations sont bien simulées pour les grandes entailles (jusqu'à $E^P=20\%$). Pour les petites, le modèle s'écarte des mesures à partir d' $E^P=5\%$ de déformation macroscopique.

Malgré les simplifications apportées au formalisme, il est possible d'utiliser le modèle avec les simulations numériques afin de prévoir les champs mécaniques avec une incertitude correcte, tant que les déformations locales ne dépassent pas 5% lors d'essais sur éprouvettes entaillées. Au-delà il faut être conscient des limites du modèle qui sous-estime les déformations locales.

III.3 Calcul des champs mécaniques lors des essais de CSC-I de l'étude

Dans cette partie, le modèle identifié est utilisé pour déterminer les champs mécaniques locaux (contraintes, déformations, vitesses de déformation) lors des différents essais de CSC-I. L'exploitation des essais conduira à localiser les sites d'amorçage et de propagation des fissures de CSC-I. La connaissance des champs mécaniques en ces lieux doit permettre l'identification des variables responsables de l'amorçage de ces fissures (contrainte principale, contrainte équivalente, déformations plastiques...). Une grande partie des essais de CSC-I consiste en des essais de traction uniaxiale à vitesse de déformation imposée. Avec l'approche macroscopique de l'étude, les champs mécaniques y sont homogènes et uniformes. Ils sont de plus représentés avec précision par le modèle de comportement. En revanche, pour des essais conduits sur des éprouvettes de géométries plus complexes, la distribution des contraintes et déformations peut être fortement hétérogène. Il est alors nécessaire de simuler numériquement ces essais à l'aide du modèle de comportement pour en extraire les champs mécaniques. Les différents essais de CSC-I réalisés dans le cadre de cette thèse sont successivement étudiés : traction sur éprouvette entaillée, flexion quatre points, flexion trois points, essais de traction sur éprouvettes avec couche irradiée aux protons, emboutissage et fissuration de godets. L'accent est mis sur la simulation de l'emboutissage car il s'agit d'essais complexes, qui peuvent apporter un nombre important d'informations sur l'amorçage et la propagation de fissures, à condition de disposer d'une simulation adaptée.

III.3.1 Essais de traction et de fluage sur éprouvettes entaillées

L'effet de la biaxialité des contraintes sur l'amorçage des fissures de CSC-I est étudié avec des éprouvettes de traction entaillées. Il avait été envisagé d'utiliser des éprouvettes en croix pour des essais sur machine biaxée mais, en plus des contraintes d'ordre technique que cela impliquait pour la circulation du méthanol iodé, des calculs par éléments finis avaient

montré que, pour une épaisseur constante, la déformation plastique se localise exclusivement dans les congés de raccordement. Ce n'est pas le cas pour les éprouvettes entaillées ; en contrepartie, les champs mécaniques sont fortement hétérogènes. On se propose ici de visualiser certains de ces champs calculés pour illustrer les différences entre géométries et ainsi montrer l'intérêt des éprouvettes entaillées pour l'étude. Les essais sur ces éprouvettes ont été réalisés à vitesse de déformation macroscopique imposée ou à force constante (essais de fluage).

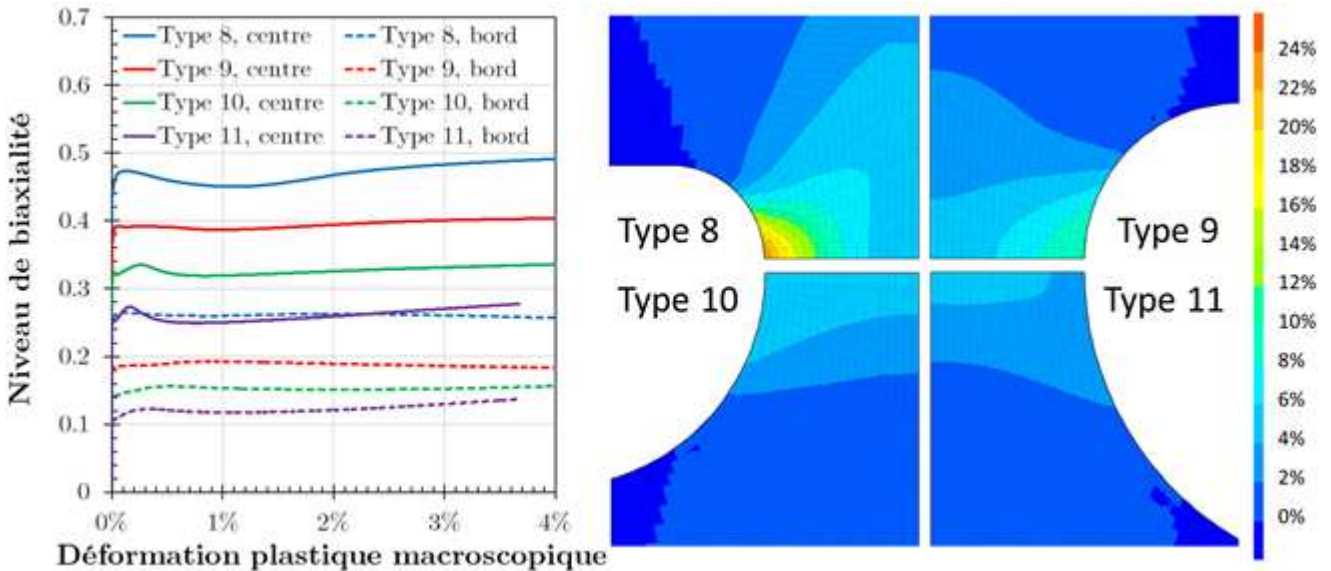


Figure III.14 : Estimation du rapport de biaxialité dans les différentes géométries, au centre et au bord du ligament (gauche), et distributions de la déformation plastique équivalente pour un niveau de déformation macroscopique de 5%.

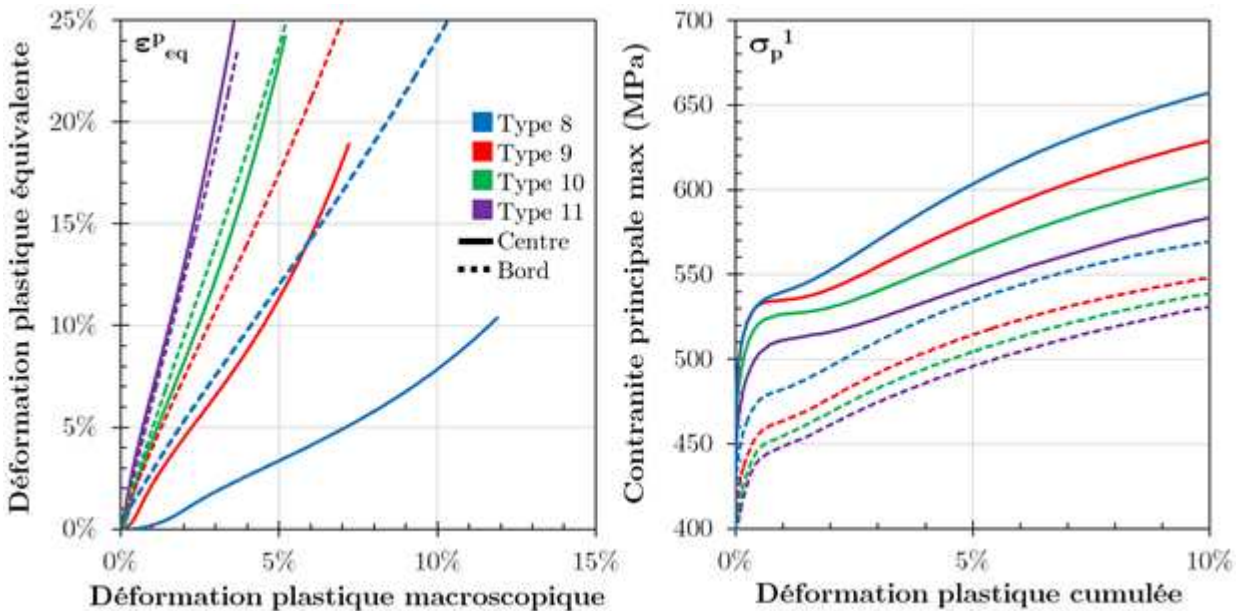


Figure III.15 : Evolution de la déformation plastique cumulée ϵ_{eq}^P en fonction de la déformation macroscopique E^P (gauche) et évolution de la contrainte principale σ_p^1 en fonction de ϵ_{eq}^P .

III.3.1.1 Essais de traction à vitesse de déformation imposée

Ces calculs ont été réalisés dans les mêmes conditions que ceux des éprouvettes entaillées pour la CID. On utilise les mêmes variables macroscopique pour le dépouillement.. On rappelle les différents types d'éprouvettes utilisées et les rayons d'entailles correspondants : type 8 (R=0.3 mm), type 9 (R=0.5 mm), type 10 (R=0.7 mm) et type 11 (R=1.0 mm). La direction axiale correspond à la direction transverse (T) du feuillard. Les vitesses de déformation macroscopiques considérées sont de 10^{-4} s^{-1} pour l'ensemble des éprouvettes, mais aussi de 10^{-3} s^{-1} pour certaines éprouvettes de type 8. Les données de post-traitement se présentent sous deux formes : des iso-valeurs sont utilisées pour illustrer la distribution des champs mécaniques et des courbes d'évolution locales des champs sont tracées en deux points du ligament. Les points choisis sont le centre du ligament et un point du ligament situé à 100 μm du fond d'entaille. La protection des arêtes des éprouvettes par la pâte siliconée masque une partie de la surface que l'on estime à 100 μm . On parlera donc du centre ou du bord du ligament en se référant à ces deux points.

On estime tout d'abord le niveau de biaxialité dans les différentes géométries, défini comme le rapport entre contraintes latérale (L) et axiale (T). Ce rapport est nul dans le cas des éprouvettes lisses de direction T. La Figure III.14 montre qu'il est possible d'obtenir différents états de biaxialité des contraintes en faisant varier le rayon d'entaille. Le rapport de biaxialité va de 0.1 au bord pour les grandes entailles, jusqu'à 0.5 au centre pour les plus petites. On remarque également que le niveau de biaxialité est relativement constant au cours d'un essai. On trace les iso-valeurs de la déformation plastique équivalente, pour une même déformation plastique macroscopique (Figure III.14). Si les champs sont relativement uniformes pour les grandes entailles, la localisation de la déformation en fond d'entaille est très présente sur les plus faibles.

Cela est visible sur les courbes d'évolution de la déformation plastique cumulée en fonction de la déformation plastique macroscopique (Figure III.15) : il y a un « retard » à la plasticité au centre de l'éprouvette de type 8. Les contraintes principales diffèrent selon les éprouvettes à cause des effets de biaxialité principalement mais aussi à cause des différences de vitesse de déformation locale qui varient entre 1 et $8 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$. Les différentes géométries disponibles permettent bien de disposer d'autant de configurations mécaniques pour mettre en évidence les variables pertinentes pour l'amorçage des fissures. Pour l'établissement d'un modèle d'amorçage, les variables disponibles sont : la contrainte équivalente σ^* , la contrainte principale maximale σ_p^1 , la seconde contrainte principale σ_p^2 , les contraintes axiale et latérale σ_{ax} et σ_{lat} , la déformation plastique équivalente (ou cumulée) ε_{eq}^p , les déformations axiale et latérale ε_{ax} et ε_{lat} ainsi que les vitesses de déformation axiale et latérale v_{ax} et v_{lat} . Les combinaisons entre contraintes (ou déformations) sont également considérées.

Les différents essais de CSC-I réalisés permettront de définir les déformations plastiques macroscopiques pour lesquelles les fissures s'amorcent. En traçant des évolutions similaires à celles de la Figure III.15 pour les différents champs mécaniques envisagés, mais en les arrêtant aux déformations d'amorçages, on espère mettre en évidence des tendances renseignant sur les paramètres critiques.

Les courbes force-déformation simulées ont été comparées à celles des essais de CSC-I (non représentées ici). Aucun essai sur ces types d'éprouvettes n'a été fait en milieu inerte mais on peut penser que les courbes macroscopiques expérimentales ne sont que peu modifiées à faible déformation (<1%). Les comparaisons montrent que les simulations numériques surestiment la contrainte macroscopique appliquée. L'écart relatif décroît avec le type d'éprouvette, quand on se rapproche d'une sollicitation uniaxiale : 10% pour le type 8, 8.7%

pour le type 9, 7.4% pour le type 10 et 5.63% pour le type 11. Ces écarts non négligeables devraient être pris en compte, notamment pour l'estimation des contraintes locales.

III.3.1.2 Essais de fluage

Des essais de fluage à faible contrainte et forte concentration en iode (§ IV.2.2) ont également été réalisés sur éprouvettes lisses et entaillées pour étendre l'étude des domaines de fissuration. La durée limite de ces essais est de 48 h et ils ont bien souvent mené à des ruptures. Même si les contraintes appliquées sont telles que le matériau reste élastique dans la plupart des cas, des calculs par éléments finis de ces essais se sont avérés nécessaires car différents lieux d'amorçage ont été observés. Au lieu de ne considérer que deux points pour l'évolution des champs mécaniques (centre et bord du ligament), jusqu'à sept points par type d'éprouvette sont utilisés pour le dépouillement, sur l'axe de symétrie des éprouvettes (milieu de la largeur), à différentes distances du ligament. Il sera montré que les faciès de rupture de ces éprouvettes ne permettent pas de définir la position du lieu d'amorçage dans la largeur de l'éprouvette. On ne connaît alors que la distance entre le lieu d'amorçage et le ligament. Des ruptures ont été observées jusqu'à 4.5 mm du ligament, soit bien au-delà des entailles, dans la partie droite de l'éprouvette. Pour ces essais, on extrait les mêmes variables mécaniques que précédemment.

Les contraintes nominales appliquées lors de ces essais de fluage (définies comme la force de maintien divisée par la section minimale entre les entailles) sont comprises entre 250 et 300 MPa pour le type 8, entre 300 et 400 MPa pour les types 9 et 10 et entre 100 et 350 MPa pour le type 11. Pour les éprouvettes lisses, les contraintes sont comprises entre 90 et 150 MPa.

L'utilisation du modèle permet de savoir dans quel cas la plasticité est activée et son lieu d'apparition. On la considèrera activée, ou significative, quand la déformation plastique équivalente ϵ_{eq}^p dépasse 0.1%. Dans la partie droite, où la section est deux fois plus importante, les contraintes ne sont pas suffisantes pour plastifier. Aux contraintes appliquées, la plasticité n'apparaît pas dans les éprouvettes de type 8. Pour les trois autres types, la plasticité est présente à 350 MPa et absente à 300 MPa.

L'analyse des résultats de fissuration (temps à rupture et localisation) combinée aux calculs par éléments finis sera faite au chapitre suivant.

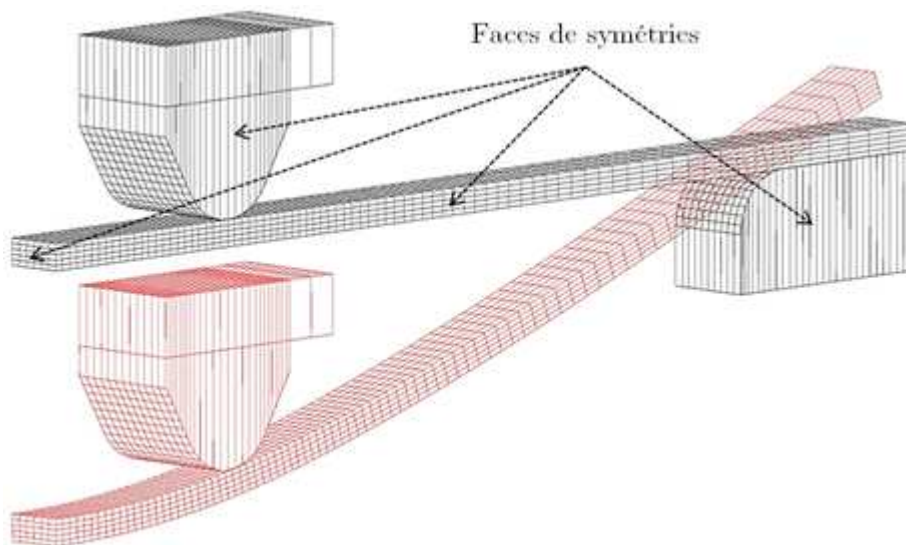


Figure III.16 : Maillage utilisé pour la simulation de la flexion 4 points, configuration de référence (noir) et déformée pour la masse n°1 (472 g, rouge).

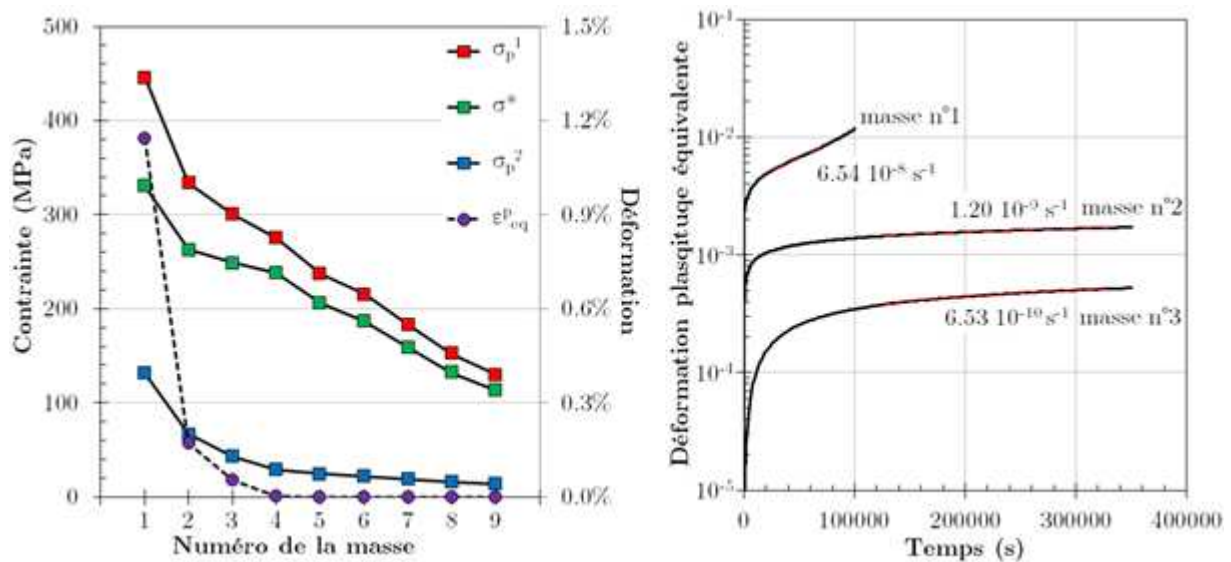


Figure III.17 : Contraintes et déformation plastique équivalente calculées à la fin de l'essai, au centre des éprouvettes de flexion, pour les différentes masses considérées (gauche). Ecartement de 32 mm entre les appuis. Evolution de la déformation plastique au centre de l'éprouvette pour les masses 1, 2 et 3 et vitesses moyennes après mise en charge (droite).

III.3.2 Flexion 4 points

Pour tester l'influence de la concentration en iode et de la contrainte sur la CSC-I, un dispositif de flexion 4 points a été utilisé. Les contraintes appliquées pouvant aller jusqu'à 430 MPa, pour un temps d'essai moyen de 72 h, ces essais sont simulés pour estimer les contraintes et surtout les éventuelles déformations plastiques. La plasticité active est soupçonnée de favoriser l'amorçage des fissures ; ainsi, savoir si elle apparaît durant un essai est important. Pour cela on simule les essais de flexion 4 points par des calculs par éléments finis.

Les éprouvettes utilisées sont des languettes de 2 x 40 mm, de direction T. Les épaisseurs dépendent de la procédure de polissage et sont proches de 450 μm . On choisit une simulation en trois dimensions car quelques languettes avec entailles ont également été testées. Un quart de l'éprouvette (symétries dans le plan LT) est maillée et des éléments cubiques linéaires sont utilisés. La densité de maille est telle qu'il y a 5 éléments dans l'épaisseur et 6 dans la demi-largeur. Un demi-appui extérieur et un demi-appui intérieur sont modélisés et choisis élastiques (Figure III.16). Les frottements entre appuis et éprouvette n'ont pas été pris en compte. On les suppose faibles dans le milieu méthanol iodé, et de plus ils allongent grandement le temps de calcul. Pendant les expériences, la mise en charge est assurée par des masses, placées sur les tiges (appui du milieu) à l'aide d'une potence et d'un fil en nylon. La vitesse de descente des masses est contrôlée par un moteur. En négligeant l'élasticité du fil, cela revient à un chargement en déplacement imposé jusqu'à ce que la force appliquée soit celle du poids des masses. Ce type de chargement est simulé dans les calculs, avec une vitesse de descente de $0.241 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$. Neuf masses (voir Chapitre II) sont disponibles et autant de calculs ont été réalisés.

Comme précédemment, les champs mécaniques obtenus sont observés par des iso-valeurs et des évolutions temporelles sont extraites. Ici, on considère la face en traction, et particulièrement son centre et le point de l'arête le plus proche du centre. La Figure III.17 récapitule les valeurs des contraintes principales, de la contrainte équivalente et de la déformation équivalente calculées à la fin de l'essai, pour les différentes masses utilisées. Le calcul avec la masse la plus importante prévoit que l'éprouvette glisse hors du montage au bout de 28 h d'essai, les valeurs des champs mécaniques sont alors données pour ce temps.

Pour les autres masses, on considère que le temps de fin d'essai est de 72 h. Seuls les essais avec les trois masses les plus importantes présentent de la plasticité significative, pour des contraintes principales supérieures à 300 MPa. Les champs mécaniques ne sont plus rigoureusement uniformes entre les appuis intérieurs quand la plasticité est présente, la plasticité est légèrement plus importante au centre de l'éprouvette que sur le bord. Sur une ligne perpendiculaire à l'axe de l'éprouvette, l'écart ne dépasse pas 10%. Une fois la mise en charge faite, les vitesses de déformation plastique équivalente sont très faibles, comme illustrées en Figure III.17 droite.

Dans la suite, lorsque les combinaisons d'épaisseur et de masse mènent à une contrainte nominale supérieure à 300 MPa, on considèrera que les essais de flexion quatre points sont des essais uniaxiaux à très faible vitesse de déformation. Dans les autres cas, on considèrera que ces essais sont réalisés à contrainte imposée et constante dans le domaine élastique.

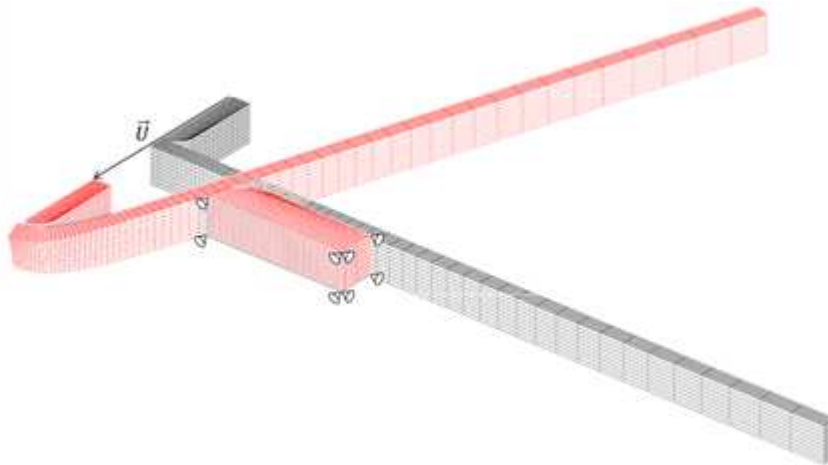


Figure III.18 : Maillage de référence (noir) et déformé (déplacement poinçon de 5 mm, rouge) pour la flexion 3 points. Un quart de l'ensemble poinçon-échantillon-matrice est modélisé.

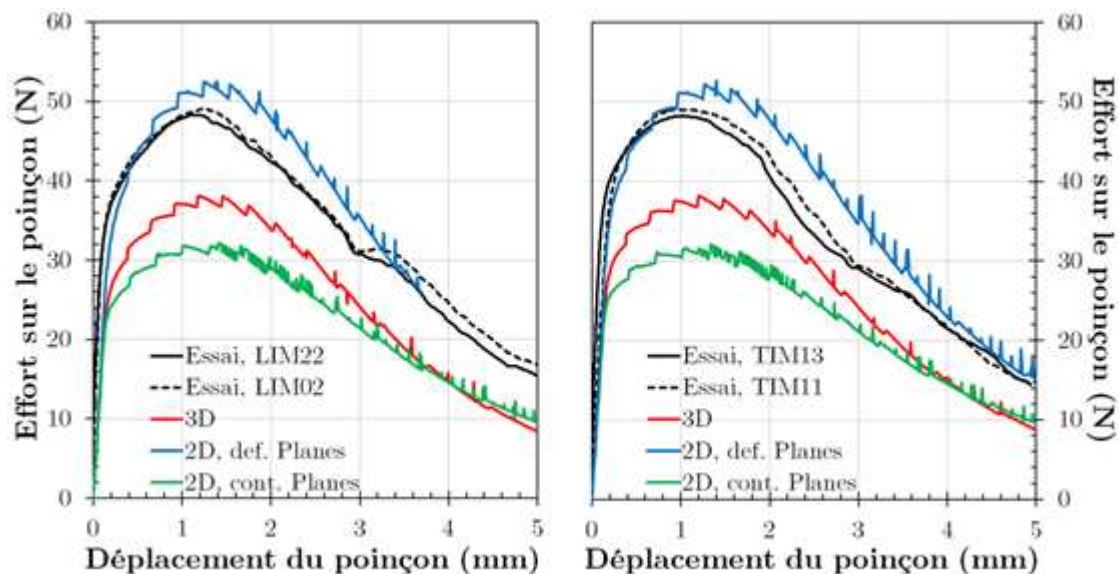


Figure III.19 : Courbes force-déplacement du poinçon pour la flexion 3 points de languettes de direction L (gauche) et T (droite) : expérimentales (noir) et calculées en 3D (rouge), en 2D contraintes planes (bleu) et en 2D déformation planes (vert).

III.3.3 Flexion 3 points

Dans la suite de l'étude, on abordera le problème de la corrosion intergranulaire du matériau sans contrainte extérieure appliquée (Chapitre V). Des essais d'immersion de languettes dans différentes solutions de méthanol iodé ont été menés. Pour tester la perte de résistance mécanique des languettes immergées, on a utilisé un montage de flexion trois points installé sur la machine de traction.

Plusieurs éprouvettes n'ayant pas présenté de fragilisation, immersion de faibles durées, les courbes de flexion trois points expérimentales correspondant ont servi à tester le modèle de comportement pour cet essai à très forte déformation plastique.

Cet essai a été modélisé, en 3D, en maillant un quart du dispositif comme illustré en Figure III.18, mais également en deux dimensions, avec la formulation des contraintes planes et celle des déformations planes. Dans ces cas, la densité de mailles utilisée est équivalente à celle d'une section du maillage 3D. Les frottements ont été pris en compte ici, dans les contacts languette-support et poinçon-languette, avec un coefficient arbitraire de 0.15. Une vitesse de déplacement du poinçon de 1 mm.s^{-1} est utilisée lors des essais.

Les courbes force-déplacement, expérimentales et calculées sont données en Figure III.19. Pour le calcul en 3D, la force appliquée sur le poinçon est grandement sous-estimée. Les essais montrent une force maximale d'environ 48 N pour les deux directions, tandis que les prédictions numériques ne dépassent pas 38 N. On constate un écart relatif compris entre 21% et 25% selon les directions.

Cette simulation montre une des limites du modèle, en ce qui concerne l'écrouissage à forte déformation. Il semblerait qu'il soit sous-estimé. Les essais de traction lisse ne permettent pas d'atteindre des déformations plastiques supérieures à 15%. Ce point sera abordé plus en détail dans la suite de ce chapitre.

III.3.4 Epreuves irradiées

Des éprouvettes irradiées aux protons ont été utilisées lors d'essais de CSC-I. L'impact de l'irradiation sur le comportement mécanique a été discuté dans le chapitre de bibliographie. Estimer les contraintes et déformations de la zone irradiée des éprouvettes nécessite des calculs par éléments finis et un modèle de comportement pour le matériau irradié. Sur la base des données de la littérature et les courbes macroscopiques des essais réalisés, un modèle est proposé.

Morize a déterminé les propriétés mécaniques du Zircaloy-4 recristallisé à $20 \text{ }^\circ\text{C}$ notamment, après irradiation aux neutrons rapides jusqu'à une fluence de $10 \cdot 10^{25} \text{ n.m}^{-2}$, par des essais de traction et des mesures de duretés (Morize 1987). La résistance mécanique augmente très rapidement avec la fluence. Les variations de limite d'élasticité sont plus de deux fois plus importantes que celle de dureté (Figure III.20). L'étude de Serres montre qu'en termes de dommages d'irradiation (taille et densité de boucles $\langle a \rangle$) et de durcissement, une dose de 2 dpa aux protons équivaut à une fluence neutronique comprise entre 0.6 et $1 \cdot 10^{25} \text{ n.m}^{-2}$. Les variations de dureté sur le plan LT mesurées par Zu (23%, (Zu 2005)), Serres (21%, (Serres 2008)) et cette étude (21%) sont cohérents avec cette affirmation. On considère donc, en première approche, une limite d'élasticité du matériau irradié de 90% supérieure à celle du matériau non irradié.

Le taux d'écrouissage ne varie pas beaucoup entre les matériaux irradié et non irradié pour des déformations plastiques inférieures à 2% (Le Saux 2008). En revanche, l'allongement à rupture chute drastiquement. Dans le modèle développé, l'endommagement n'est pas pris en

compte. Il n'y a pas d'information disponible sur les changements de viscosité du matériau irradié à température ambiante. En ce qui concerne l'anisotropie, l'irradiation tendrait à la diminuer légèrement à $3.8 \cdot 10^{25} \text{ n.m}^{-2}$ (Nakatsuka 1987). Pour des fluences plus faibles, l'effet serait encore moins important. Les résultats de caractérisation de la couche irradiée du chapitre précédent montrent que la variation de dureté Knoop entre les directions T et L passe de 8.3% pour le matériau non irradié à 5.2% pour le matériau irradié. Une diminution de l'anisotropie est donc observée, mais celle-ci reste relativement faible. Les données de Morize tendent à montrer que l'augmentation de la limite d'élasticité est légèrement plus importante pour la direction de laminage que pour la direction transverse, confirmant la diminution de l'anisotropie dans le plan TL (Figure III.20).

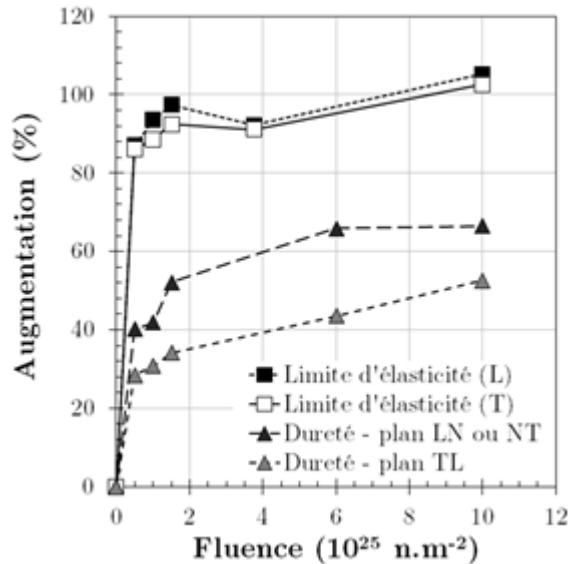


Figure III.20 : Mesures du durcissement d'irradiation à 20°C, après irradiation aux neutrons rapides en température. Les variations par rapport à l'état non irradié sont tracées, d'après (Morize 1987).

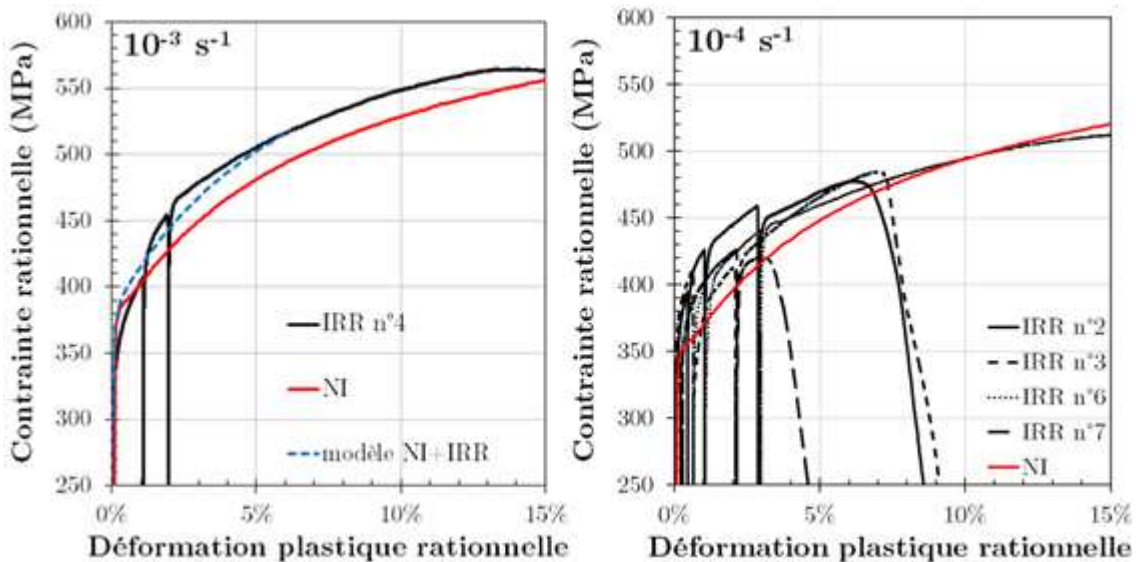


Figure III.21 : Essais de traction à vitesse de déformation imposée (interrompus puis repris, en présence d'iode) sur éprouvettes irradiées (IRR) aux protons (noir), $10^{-3} s^{-1}$ (gauche, haut) et $10^{-4} s^{-1}$ (droite). Comparaison avec les éprouvettes non irradiées (NI, rouge) et avec le modèle NI+IRR (pointillés bleus).

Les éprouvettes irradiées ont été utilisées pour des essais de CSC-I à vitesse de déformation imposée avec interruptions à différents niveaux de déformation, qui seront détaillés dans le chapitre suivant. Les courbes de traction de ces éprouvettes, irradiées sur $30\ \mu\text{m}$ pour une épaisseur totale de $460\ \mu\text{m}$ en moyenne, sont comparées à celles obtenues pour les éprouvettes non irradiées en Figure III.21. La déformation plastique rationnelle calculée est celle de l'éprouvette considérée comme un tout. L'endommagement par l'iode modifie la réponse macroscopique par la présence de fissures. Cependant, on peut observer un durcissement de la structure bi-couche, pour toutes les vitesses de déformations, grâce aux faibles épaisseurs des éprouvettes utilisées. La variation moyenne de la contrainte vraie par l'irradiation $\Delta\sigma_{\text{IRR}}$ est de l'ordre de $30\ \text{MPa}$. On remarque que le plateau de vieillissement statique a disparu. La présence de la couche irradiée rend les champs mécaniques hétérogènes. Le décrochage des dislocations, à l'origine de la chute de contrainte observée sur les éprouvettes non irradiées, ne se fait plus uniformément et son impact sur la contrainte macroscopique est dilué. On remarque également que la variation de contrainte entre éprouvettes non irradiées et irradiées est sensiblement la même pour les différentes vitesses utilisées, laissant imaginer que la viscosité du matériau irradié n'a pas été modifiée significativement.

Pour ces raisons, on choisit le comportement du matériau irradié aux protons comme équivalent à celui du matériau sain, avec un décalage de la résistance mécanique de 90% et l'absence de vieillissement statique. Un profil d'endommagement constant sur une profondeur de $30\ \mu\text{m}$ est supposé. Le résultat d'une modélisation de l'éprouvette bi-couche sollicitée à $10^{-3}\ \text{s}^{-1}$ est visible sur la Figure III.21 gauche. Le durcissement d'irradiation est plutôt bien représenté, notamment au-delà de 3% de déformation plastique. La comparaison au début de la courbe est rendue plus compliquée par l'interruption et la reprise de la déformation lors de différents essais sur une même éprouvette.

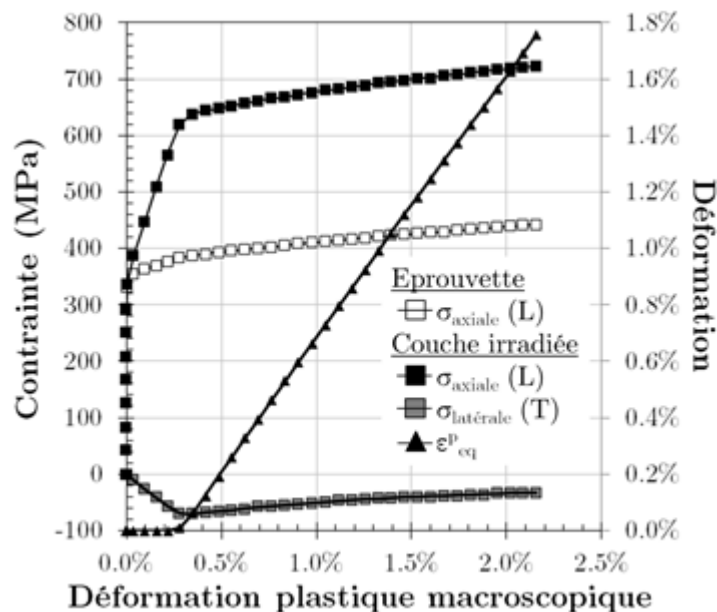


Figure III.22 : Contraintes rationnelles axiale (carrés noirs) et latérale (carré gris) au centre de la surface externe irradiée en fonction de la déformation plastique macroscopique de l'éprouvette sollicitée à $10^{-3}\ \text{s}^{-1}$. Comparaison avec la contrainte rationnelle macroscopique (carrés blancs). Le retard à la plastification de la couche irradiée est notamment visible par le tracé de la déformation plastique équivalente locale (triangles noirs).

Les calculs ont été dépouillés pour obtenir les évolutions des champs locaux comme pour les autres essais/simulation. La contrainte dans la direction de sollicitation (L) σ_{axiale} (IRR) et dans la direction latérale (T) $\sigma_{\text{latérale}}$ (IRR) ainsi que la déformation plastique équivalente $\varepsilon_{\text{eq}}^{\text{p}}$ (IRR) au centre de la surface irradiée sont tracées en Figure III.22 en fonction de la déformation plastique rationnelle de l'éprouvette, ou macroscopique, ε^{p} (NI+IRR). Du fait du durcissement d'irradiation, l'apparition de la plasticité dans la couche irradiée est retardée, mais seulement de 0.3% de ε^{p} (NI+IRR). Au-delà, l'évolution de $\varepsilon_{\text{eq}}^{\text{p}}$ (IRR) est linéaire avec ε^{p} (NI+IRR) avec un coefficient de 0.93. Cela est notamment dû à la géométrie de l'éprouvette utilisée, où l'ensemble de la longueur utile est irradiée, et non une partie seulement, ce qui mènerait à de grandes hétérogénéités de déformations en surface comme dans le cas de Serres (Serres 2008). σ_{axiale} (IRR) est bien supérieure à la contrainte rationnelle de l'éprouvette. La plastification du matériau non irradié sous-jacent induit le développement d'une contrainte latérale de compression $\sigma_{\text{latérale}}$ dans la couche irradiée jusqu'au centre de l'éprouvette. Celle-ci peut atteindre 70 MPa, soit un peu plus de 10% de la contrainte axiale. Ces résultats serviront à l'analyse des essais de CSC-I sur éprouvettes irradiées mais doivent être considérés avec prudence étant données les hypothèses simplificatrices choisies.

III.3.5 Godets à avalement total

Les immersions de godets emboutis sont des essais simples à réaliser, susceptibles d'apporter de nombreuses informations sur l'amorçage et la propagation de fissures de CSC-I, à condition de disposer d'une simulation numérique adaptée. La réalisation de tels calculs n'est pas aisée, surtout avec des codes de calculs non dédiés à l'emboutissage. Toutefois, les calculs associés ont été réalisés, ce qui a permis d'extraire des informations pertinentes et semi-quantitatives pour l'étude de la CSC-I.

On détaille, dans un premier temps, le calcul d'emboutissage et la comparaison avec les courbes d'emboutissage expérimentales. Dans un second temps, les contraintes locales calculées seront comparées à celles estimées par deux méthodes expérimentales. Enfin, la simulation de la fissuration des godets par une méthode de doublement des nœuds est utilisée pour estimer la redistribution des contraintes après fissuration, ainsi que les facteurs d'intensité de contrainte.

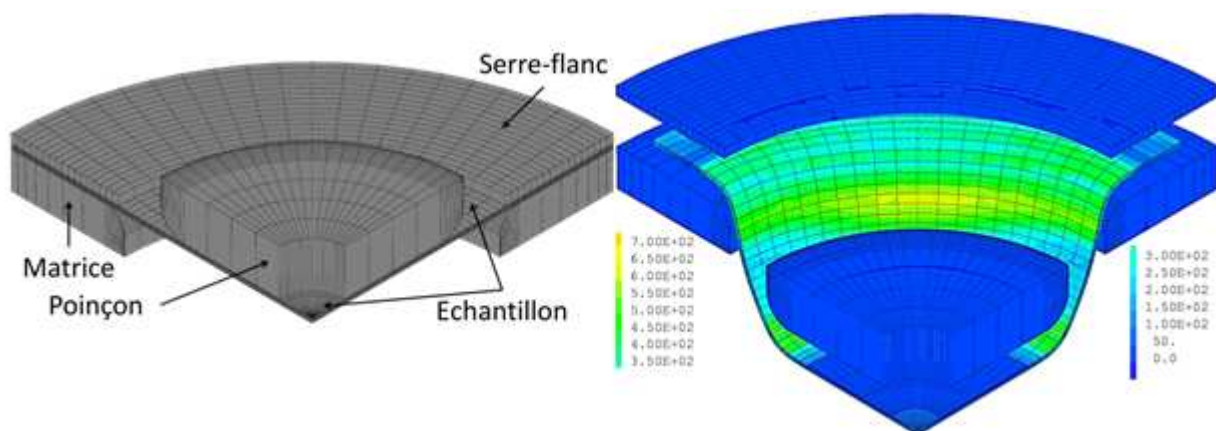


Figure III.23 : Dispositif d'emboutissage modélisé, avant emboutissage (gauche) et après (droite), visualisation de la contrainte équivalente de Von Mises en peau interne d'un godet 60% après déchargement.

III.3.5.1 Déroulement du calcul d'emboutissage

Dans le chapitre précédent, les godets usinés ont été présentés. Pour ceux à avalement total, on a vu que l'anisotropie de comportement mécanique menait à une variation de hauteur des godets le long de la circonférence du sommet. Pour cela, il a été décidé de simuler l'emboutissage en trois dimensions, en maillant un quart du dispositif, avec des éléments cubiques linéaires. Les différentes parties du dispositif sont montrées en Figure III.23. L'échantillon est initialement un quart de disque, de diamètre 66 mm, et le diamètre du poinçon est de 33 mm. Le disque est maillé par rotation autour de son axe de symétrie, avec 20 éléments également répartis sur les 90°. Radialement, pour les éléments qui seront les plus allongés, une dimension de maille de 0.7 mm est utilisée. Dans l'épaisseur (478 μm), 6 éléments sont utilisés. Le poinçon, le serre-flan et la matrice ont un comportement supposé élastique ; ils sont maillés comme l'échantillon en surface, et avec un seul élément dans l'épaisseur. Au final, l'échantillon seul possède plus de 10000 nœuds.

Trois contacts sont donc modélisés, serre-flan-échantillon, échantillon-matrice et poinçon-matrice. Le frottement est pris en compte. Expérimentalement, de l'huile est appliquée sur l'échantillon pour lubrifier. Les coefficients de frottement ont été pris à 0.12 pour les deux premiers contacts et à 0.06 pour le troisième, ces valeurs ayant été recommandées par le laboratoire où les emboutissages ont été réalisés. La prise en compte du frottement est essentielle pour la détermination des contraintes mais elle rallonge beaucoup les temps de calcul.

Avant poinçonnage, le serre-flan est pressé contre l'échantillon positionné sur la matrice. Une force de 10 kN est appliquée. Lors des simulations, cela est réalisé par un déplacement imposé progressif jusqu'à que les forces de réaction soient égales à la force de pression cible. Un contrôle en force prend le relais. Le poinçon est alors mis en mouvement avec une vitesse de déplacement constante de 1.33 $\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$. La formulation des grands déplacements et des grandes déformations est retenue.

Deux scénarios de fin de calcul sont considérés : avec ou sans déchargement. Expérimentalement, dans le cas des godets à avalements partiels (40, 60 et 80%), le poinçon est arrêté à un déplacement prédéfini puis retiré. La même approche est retenue pour la simulation numérique : à un déplacement donné, la vitesse de déplacement du poinçon est inversée. En parallèle, le serre-flan et la matrice sont écartés de l'échantillon, comme cela est illustré en Figure III.23. Dans le cas de l'avalancement total (100%), la course du poinçon n'est expérimentalement arrêtée qu'une fois l'échantillon totalement libéré du serre-flan. Numériquement cette configuration n'est pas acceptable (trop de degrés de liberté) et il faut se donner un critère d'arrêt proche. Dans un premier temps, le nombre d'éléments toujours en contact (serre-flan-échantillon) a été considéré. Quand celui-ci est inférieur à 5, on inverse la course du poinçon comme pour le cas des avalements partiels. Avec cette méthode, lors de la libération de l'échantillon du serre-flan, des instabilités numériques apparaissent et le calcul ne converge plus. Pour remédier à ce problème, des reprises de pas de calcul ont été mises en place. Un premier calcul est réalisé, sans critère de déchargement, jusqu'à la non-convergence. On repère le dernier pas de calcul convergé. On relance le calcul qu'on arrête et sauvegarde à ce dernier pas convergé. On effectue alors un déchargement numérique : on reprend ce pas de calcul et on ne considère plus que l'état mécanique de l'échantillon (on oublie les outils). On déduit des contraintes calculées dans le godet, les forces nodales équivalentes s'appliquant en surface. Ces forces nodales correspondent aux actions du poinçon, du serre-flan et de la matrice. En un temps donné, on fait tendre ces forces nodales progressivement vers 0. Les chargements extérieurs sont alors annulés, comme si on avait déchargé les outils.

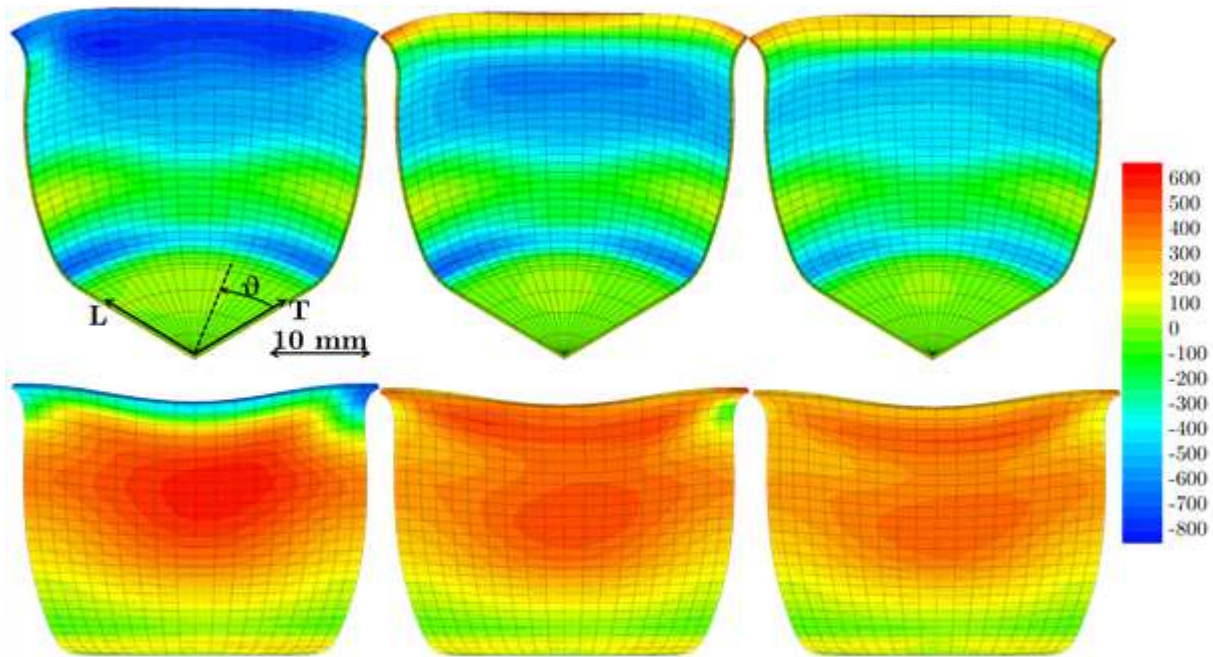


Figure III.24 : Iso-valeurs de la contrainte circonférentielle en peau interne (haut) et externe (bas) d'un godet à avalement total, avant déchargement (gauche), après déchargement (milieu) et après relaxation d'une durée d'un an (bas). Définition de l'angle ϑ , définissant une direction dans le plan de la tôle non emboutie, du repère quasi-axisymétrique du godet. Dans le repère cartésien (x, y, z) du calcul, la direction x correspond à la direction transverse T et y correspond à L .

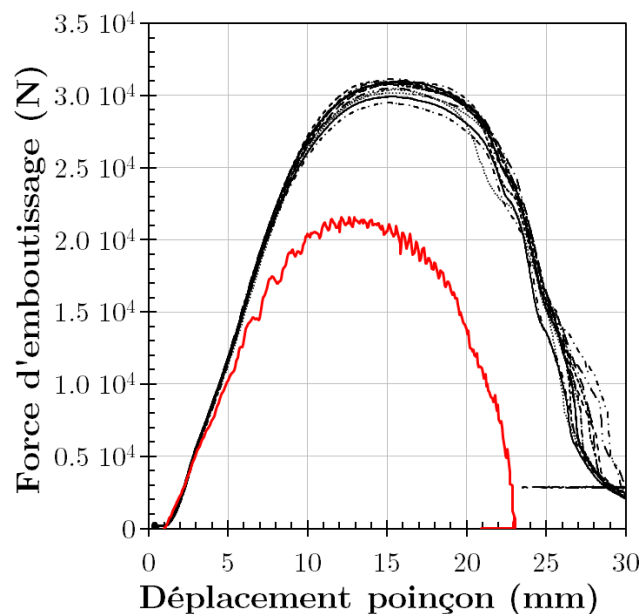


Figure III.25 : Courbes d'emboutissage expérimentales (noir) et calculée (rouge).

En pratique, les reprises de calculs ne sont pas intuitives avec Cast3m et ont été l'objet de nombreux et longs essais. Dans le cas de l'emboutissage, avec les très importantes déformations engendrées, il est impératif que la formulation des grands déplacements et des grandes déformations soit utilisée. Après emboutissage, on peut choisir de travailler en configuration de référence ou déformée. Ici on prend la configuration de référence car les post-traitements successifs réalisés sont facilités par la connaissance exacte de la géométrie (maillage initial plutôt que déformé). De plus, à partir de cette configuration, il est plus

facile de projeter les contraintes et déformations dans le repère cylindrique du disque et donc du godet. De ce choix découlent plusieurs impératifs. Les forces nodales à annuler sont celles de la configuration déformée ; il faut donc se placer temporairement dans cette configuration pour les récupérer et les mettre en entrée de la nouvelle table de calcul. Dans cette table, les contraintes et déplacements du dernier pas de calcul de l'emboutissage constituent l'état initial de la reprise. Il est nécessaire de réitérer le calcul de la matrice de rigidité avant de lancer la reprise sinon il n'y aura pas de convergence. En respectant ces impératifs (dont les détails n'ont pas été exposés ici), il est possible de retravailler à partir de n'importe quel état convergé et sauvegardé d'un calcul Cast3m. L'intérêt d'une telle manipulation est très important car on peut séparer les différentes étapes du traitement des godets plutôt que devoir tout faire en un seul calcul. Par exemple, une fois le calcul d'emboutissage réalisé, on va faire une reprise de calcul pour le déchargement à partir du dernier pas sauvegardé. On reprend alors les résultats de ce déchargement pour lancer un calcul de relaxation de contraintes et ainsi de suite pour tous les post-traitements considérés. On peut également envisager tout changement de chargement. On précise que les champs mécaniques étudiés ont été moyennés par éléments et projetés aux nœuds.

Les contraintes résiduelles issues de l'emboutissage sont très élevées. Elles le sont assez pour qu'il y ait une relaxation des contraintes entre la fin de l'emboutissage et les immersions en méthanol iodé. En pratique les godets ont été testés jusqu'à un an après leur fabrication. Pour cela, après déchargement on considère une relaxation d'une année. L'évolution de la contrainte circonférentielle à la fin de l'emboutissage, après déchargement et après relaxation est illustrée par des iso-valeurs en Figure III.24. En considérant le couple de contrainte circonférentielle (minimale, maximale), pour un godet à avalement total, il passe de (-820, 593) MPa avant déchargement, à (-685, 560) MPa après déchargement, puis à (-543, 464) MPa après relaxation. Cela montre l'importance de la prise en compte de la relaxation, une diminution de 20% de la contrainte est observée. Au bout de 1 s après déchargement, les vitesses de déformation maximales sont de $6 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$, au bout de 10 s, on trouve $5 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$, et pour 100 s on a $5 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$. 140 h après l'emboutissage, les vitesses sont inférieures à 10^{-9} s^{-1} . Après un mois, on peut donc considérer l'état mécanique comme asymptotique.

III.3.5.2 Calcul et mesure des courbes d'emboutissage

Les résultats des calculs sont tout d'abord comparés aux grandeurs macroscopiques mesurées lors de l'opération d'emboutissage. Sur la Figure III.25 sont données les courbes force-déplacement du poinçon, expérimentales et calculées, pour les treize godets à avalement total. On observe une différence très importante entre expérience et calcul. Ce dernier estime la force maximale à 22 kN au lieu de 30 kN en moyenne, soit une sous-estimation de 27%. En plus de la force, la course du poinçon jusqu'à libération du godet est sous-estimée. Le calcul prévoit un retour à force nulle à 23 mm, alors que pour les emboutissages réels on tend vers 27 mm.

Sur la Figure III.26 à gauche, on trace la hauteur du godet simulé après déchargement en fonction de l'angle autour de l'axe de symétrie du godet, avec comme référence 0° pour la direction T. On y ajoute les mesures du godet 100% n°7. Pour le calcul, on obtient une hauteur moyenne de 21.7 mm, contre 24.1 mm pour un vrai godet, soit 90% de la hauteur réelle. L'écart est donc moins important que pour la course du poinçon sur les courbes d'emboutissage. La rigidité totale du dispositif est compliquée à obtenir par les calculs, et la hauteur finale du godet est un paramètre plus objectif. Pour expliquer la différence de hauteur entre calcul et expérience, une première hypothèse serait que la plus grande longueur d'emboutissage expérimentale est en partie due aux « accidents » : formation de

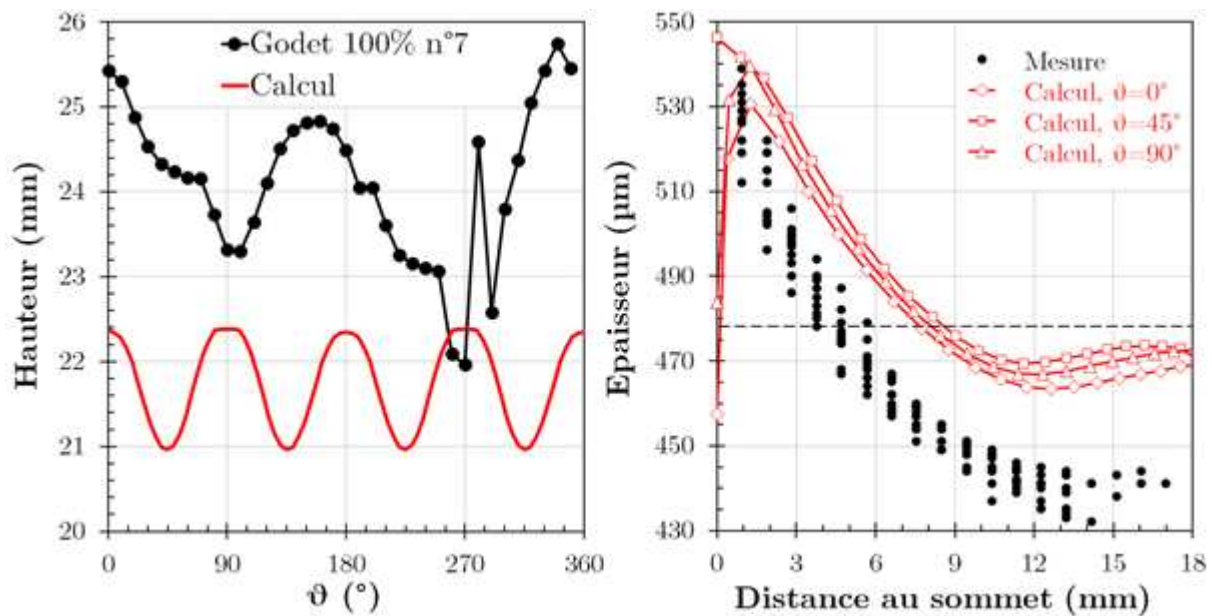


Figure III.26 : Différences géométriques entre calcul et mesures, hauteur du godet (gauche) et épaisseur le long de génératrices en partant du sommet (droite). 0° désigne la direction T, 90° la direction L. Les pointillés à droite désignent l'épaisseur initiale du godet. Les mesures ont été faites sur le godet 100% n°7.

cornes d'emboutissage, ou tout du moins maintien prolongé de certaines parties du godet dans le serre-flanc. Le calcul prévoit une forme assez régulière du godet, avec une hauteur comparable pour la direction T ($\vartheta=0^\circ$) et L ($\vartheta=90^\circ$) alors qu'expérimentalement des creux de hauteur sont observés pour la direction L (à $\vartheta=90^\circ$ et $\vartheta=270^\circ$) et les maxima sont plutôt alignés avec la direction T ($\vartheta=150^\circ$ et $\vartheta=345^\circ$). Pour le calcul, la direction $\vartheta=45^\circ$ est un minimum de hauteur bien marqué alors qu'expérimentalement les variations entre 0° et 90° sont assez régulières. La modélisation simplifiée de l'anisotropie du matériau serait donc en cause.

Cependant cela n'explique pas la différence de force maximale à l'emboutissage. L'écroutissage du matériau ne serait donc pas bien modélisé. La faible force calculée signifierait qu'on sous-estime la capacité d'écroutissage du matériau. Cela est cohérent aussi avec la plus faible hauteur des godets mais aussi avec les observations faites sur la simulation de pliage de languette par flexion trois points. L'écart de force maximal était compris entre 21 et 25% pour ces essais et il est ici de 27%.

Sur la Figure III.26, on trace les variations de l'épaisseur des flancs du godet, le long de génératrices, en partant du sommet. Les mesures ont été faites sur le godet 100% n°7, après fissuration. Si l'on observe bien une augmentation comparable de l'épaisseur vers le sommet, due à la compression circonférentielle nécessaire pour passer le disque dans la matrice, la diminution de l'épaisseur le long de la génératrice est moins importante pour le calcul. Cette diminution d'épaisseur est due à l'allongement axial du godet. A 15 mm du sommet, l'épaisseur moyenne du godet est de $440\ \mu\text{m}$, contre $470\ \mu\text{m}$ pour le calcul (7% de plus). Avant emboutissage, elle était de $478\ \mu\text{m}$. L'étude de l'anisotropie plastique (au paragraphe III.1.1) a montré que lors d'une sollicitation uniaxiale dans le plan du feuillard, l'épaisseur (dans la direction normale) se réduit de quatre à six fois moins que ne s'allonge la dimension selon la direction de sollicitation (d'après les coefficients de Lankford expérimentaux). Le modèle prévoit que l'épaisseur se réduit de 3 à 5 fois moins que ne s'allonge la direction de sollicitation (d'après les coefficients de Lankford calculés au paragraphe III.2.4). Cela confirme que le modèle tend à sous-estimer la réduction d'épaisseur.

Il existe donc des écarts non négligeables entre simulation et réalité pour l'emboutissage de godets. Cependant il faut replacer ces analyses dans le contexte de l'étude, et notamment en ce qui concerne le modèle de comportement identifié et les moyens de calcul. Comme pour les essais de fluage uniaxiaux, la flexion et les petites éprouvettes entaillées, ces essais n'ont pas servis à l'identification du modèle. On rappelle que pour celle-ci, seuls des essais de traction, dans seulement deux directions du plan du feuillard ont été utilisés. De ce point de vue, un écart de 30% sur la force d'emboutissage maximale et de seulement 10% sur la hauteur du godet paraissent être des résultats encourageants.

III.3.5.3 Calcul et mesure des contraintes résiduelles.

L'objectif initial de la simulation de l'emboutissage est de prédire les contraintes à l'amorçage des fissures de CSC-I pour les comparer aux résultats des autres essais réalisés. Les différences observées sur la réponse macroscopique de l'emboutissage montrent qu'il est nécessaire de vérifier la réponse locale du modèle par des mesures car on ne peut faire confiance au modèle a priori. Deux techniques ont été employées pour mesurer les contraintes résiduelles circonférentielles en peau externe, la diffraction des rayons X (DRX) et l'ouverture d'anneaux prélevés sur les godets.

Mesures par DRX

Le principe des mesures de contraintes résiduelles par DRX a été présenté dans le chapitre précédent. Les mesures de DRX ont été réalisées sur quatre génératrices nommées 1, 2, 3 et 4. Un schéma sur la Figure III.28 montre leur position. Les génératrices 1 et 3 correspondent à la direction de laminage de la tôle ($\vartheta = -90^\circ$ et 90°). Dans ce cas-là, la direction circonférentielle du godet correspond à la direction transverse du feuillard. La génératrice 2 correspond à la direction T ($\vartheta = 0^\circ$). La génératrice 4 est située à -135° . Sur les génératrices 1 et 2, on dispose de quatre points de mesures, distants de 5 mm. Sur la génératrice 3, trois mesures ont été effectuées, dont deux au même endroit pour tester la reproductibilité de la technique. Ces deux mesures n'étaient pas temporellement successives et correspondent géométriquement aux deux points les plus hauts des génératrices 1 et 2. Sur la quatrième génératrice, seuls deux points ont été mesurés.

Mesures par ouverture d'anneaux

La deuxième méthode utilisée consiste à découper des anneaux par électroérosion dans la partie quasi-cylindrique d'un godet 100% et à les ouvrir pour observer la déflexion induite par les contraintes résiduelles. On suppose pour cela que les contraintes circonférentielles ne sont que peu relaxées par la découpe en anneaux. Par mesure de l'ouverture des anneaux, on peut remonter à une estimation de la contrainte circonférentielle en supposant sa distribution initiale dans l'épaisseur et en considérant un matériau élastique. Des formules analytiques ont été établies, notamment par Timoshenko pour les petites ouvertures d'anneaux présentant des contraintes résiduelles (Timoshenko 1969). Expérimentalement, les ouvertures mesurées sont assez grandes et la formule de Timoshenko pour les petits angles ne s'applique plus. On a donc choisi de simuler l'ouverture des anneaux avec Cast3m.

Les anneaux découpés ont une largeur de 2 mm. Avant de prélever le premier anneau, on découpe le haut du godet pour niveler la hauteur. Selon l'orientation, on enlève jusqu'à 2 mm depuis le sommet. Au total, 7 anneaux ont été découpés. Ils sont mesurés précisément à l'aide d'un microscope équipé d'une platine motorisée, puis ouverts par électroérosion. L'enlèvement de matière par cette technique est pris en compte (diamètre de fil de 0.3 mm). L'angle du lieu d'ouverture n'a pas été relevé. Cependant on peut imaginer que la position angulaire de l'ouverture ne change pas radicalement l'écartement observé qui intègre les contraintes de toute la circonférence.

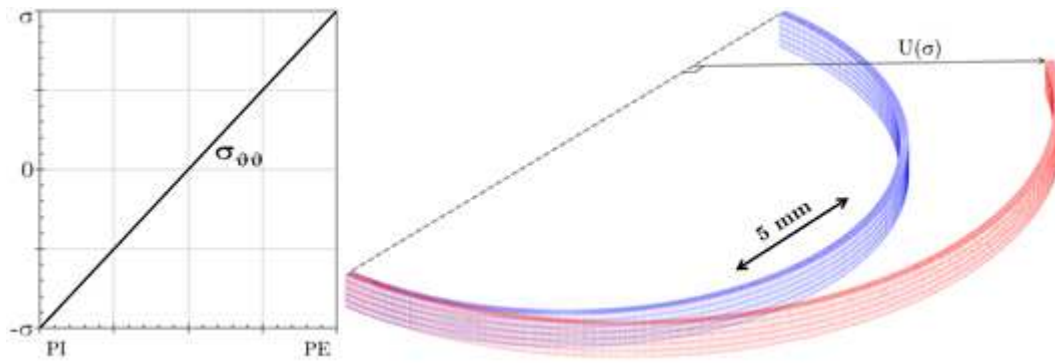


Figure III.27 : Profil de contrainte supposé pour le calcul d'ouverture de l'anneau (gauche), géométries avant (bleu) et après (rouge) relâchement des nœuds (droite) pour une contrainte de 300 MPa pour un rayon extérieur de 18.6 mm.

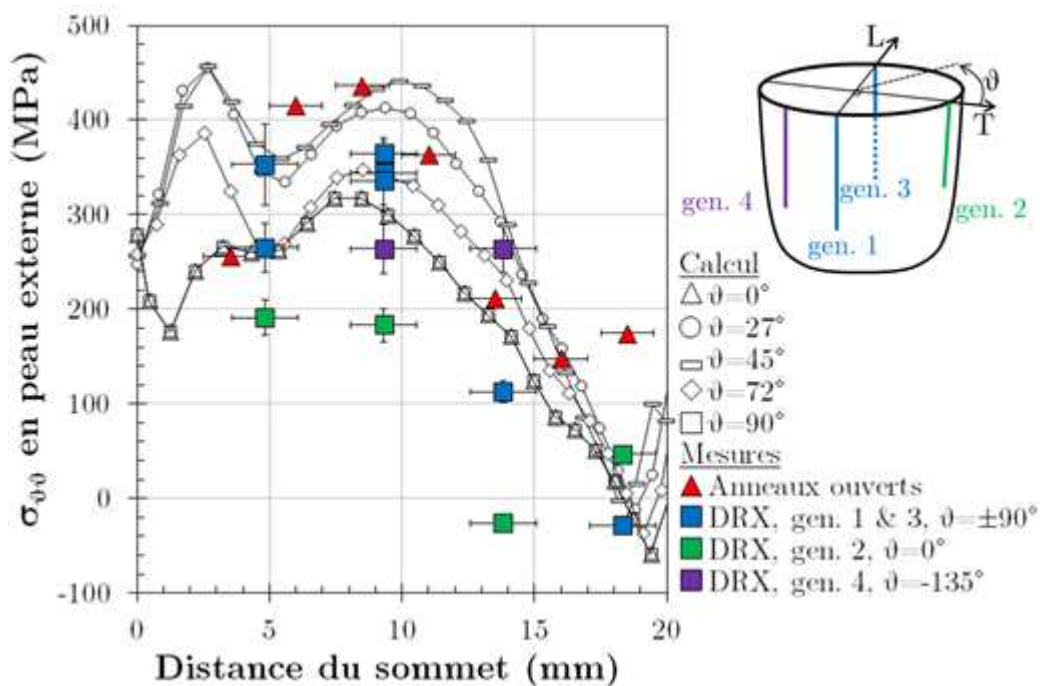


Figure III.28 : Evolution de la contrainte circonférentielle en peau externe, le long de différentes génératrices du quart de godet, 0° désignant la direction T. Superposition des résultats de DRX (carrés bleus, verts et violets) et des résultats d'ouverture d'anneaux (triangles rouges) sur les courbes calculées (traits noirs).

Pour la détermination des contraintes circonférentielles en peau externe, on présuppose un état de contrainte initial : absence de contrainte axiale (dans la largeur de l'anneau), contrainte circonférentielle linéaire et symétrique dans l'épaisseur et contrainte radiale très faible permettant d'équilibrer les contraintes. Pour déterminer à quelle ouverture correspondent de telles contraintes, une série de calculs par éléments finis est réalisée. Pour un anneau donné, dont la hauteur moyenne dans le godet était l avant la découpe, on associe une épaisseur $e(l)$ à partir des mesures présentées sur la Figure III.26, ainsi que le rayon extérieur, mesuré avant ouverture. On modélise alors un demi-anneau élastique avec ces dimensions, avec 6 éléments dans l'épaisseur et 100 sur la demi-circonférence, sur lequel on impose le champ de contraintes précédemment décrit (Figure III.27 gauche). Sur une des deux sections du demi-anneau, une condition de symétrie est imposée. Sur l'autre, on calcule les forces nodales correspondantes au champ de contraintes initial. Ces forces sont progressivement relâchées pour simuler l'ouverture de l'anneau suite à la découpe, comme

illustré sur la Figure III.27. L'ouverture finale est « mesurée » dans le post-traitement du calcul. En réitérant le calcul pour des contraintes comprises entre 10 et 450 MPa, on peut repérer à quelle contrainte moyenne de surface l'ouverture expérimentale est associée et ainsi estimer les contraintes résiduelles.

Comparaison avec les calculs

Les résultats des deux méthodes de mesure sont comparés aux calculs sur la Figure III.28, par le tracé des évolutions de la contrainte circonférentielle le long de différentes génératrices. Il apparaît tout d'abord que les contraintes pour la direction T (0°) et L (90°) se superposent alors que les mesures de DRX diffèrent beaucoup entre les génératrices 1 (90°) et 2 (0°). Le calcul avait déjà prédit à tort une même hauteur de godet selon les deux directions. La superposition quasi-parfaite des courbes calculées pourrait être liée aux conditions aux limites définies dans le calcul : sur les surfaces de symétrie les déplacements normaux sont imposés nuls. Il pourrait également s'agir d'une conséquence de la façon dont l'anisotropie est modélisée.

Les prédictions du calcul sont plutôt en accord avec les mesures DRX pour 90° . On surestime donc la contrainte dans la direction 0° , là où la hauteur du godet était surestimée également. Pour la direction à -45° , à 10 mm du sommet, la contrainte mesurée est entre celles des directions 0° et 90° , il y aurait donc un gradient angulaire. Par contre à 15 mm, la mesure donne une valeur plus importante que pour les autres directions. Cela traduit la complexité de la distribution des contraintes dans un tel échantillon. Malgré cela, les tendances sont globalement respectées, et les résultats de l'ouverture des anneaux semblent le confirmer. Les techniques expérimentales ne permettent pas d'approcher le sommet du godet et ainsi de confirmer les contraintes là où les fissures vont s'amorcer. Malgré cela, on peut considérer que le modèle de comportement, associé au calcul par élément de l'emboutissage, permet d'avoir une estimation raisonnable des contraintes résiduelles et donc des contraintes permettant l'amorçage de fissure.

III.3.5.4 Distribution des contraintes résiduelles prédite par le calcul

Etant donnée la phénoménologie de la fissuration des godets (qui sera décrite dans le chapitre suivant), les contraintes circonférentielles au sommet du godet sont supposées avoir le plus d'importance. Pour les godets à avalement total, la Figure III.28, la Figure III.24 et la Figure III.29 détaillent la répartition des contraintes circonférentielles calculées dans le godet. Sur la face interne, les contraintes sont majoritairement compressives, à l'exception de la zone proche du sommet. Les contraintes sur la face externe sont quant à elles de traction avec des évolutions axiales et angulaires détaillées sur les figures. On remarque qu'au sommet les contraintes ne varient que peu avec l'angle.

Les contraintes ne sont pas maximales au sommet mais quelques millimètres plus bas et pourtant, les fissures s'amorcent au sommet. On peut interpréter ce résultat de plusieurs façons. L'état de surface en fin d'emboutissage (au sommet) est beaucoup plus irrégulier qu'ailleurs, et donc propice à des concentrations de contraintes favorisant l'amorçage. Dans certaines régions du sommet, la tranche du disque initial est complètement écrasée. Il y a également le fait que les contraintes circonférentielles au sommet sont positives en peau interne et en peau externe (courbes violettes de la Figure III.29) et donc que les fissures qui vont s'y amorcer traverseront l'épaisseur. Aux endroits où ces contraintes sont maximales en peau externe, elles sont fortement négatives en peau interne (courbes rouges de la Figure III.29). Les fissures ont alors peu de chances de traverser l'épaisseur et le facteur d'intensité des contraintes associé sera faible. La propagation de fissures est donc favorisée au sommet.

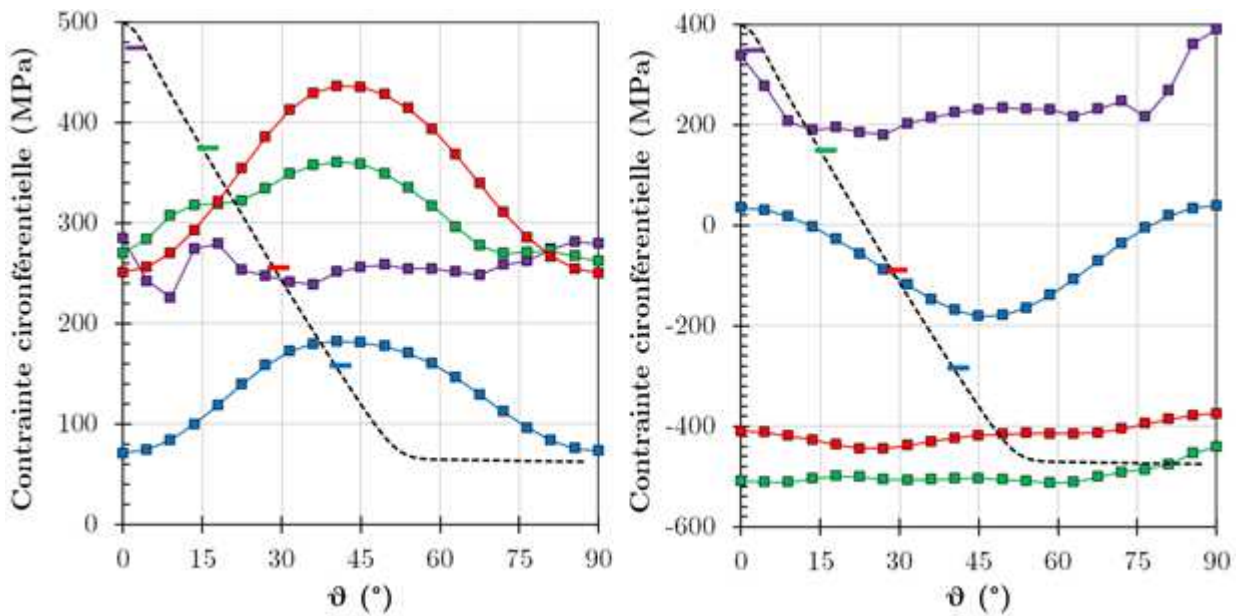


Figure III.29 : Evolution de la contrainte circonférentielle en peau externe (gauche) et interne (droite), en fonction de l'angle ϑ , $\vartheta=0^\circ$ désignant la direction T. Le trait pointillé illustre le profil du godet, et les tirets la position des différentes évolutions angulaires sur le profil.

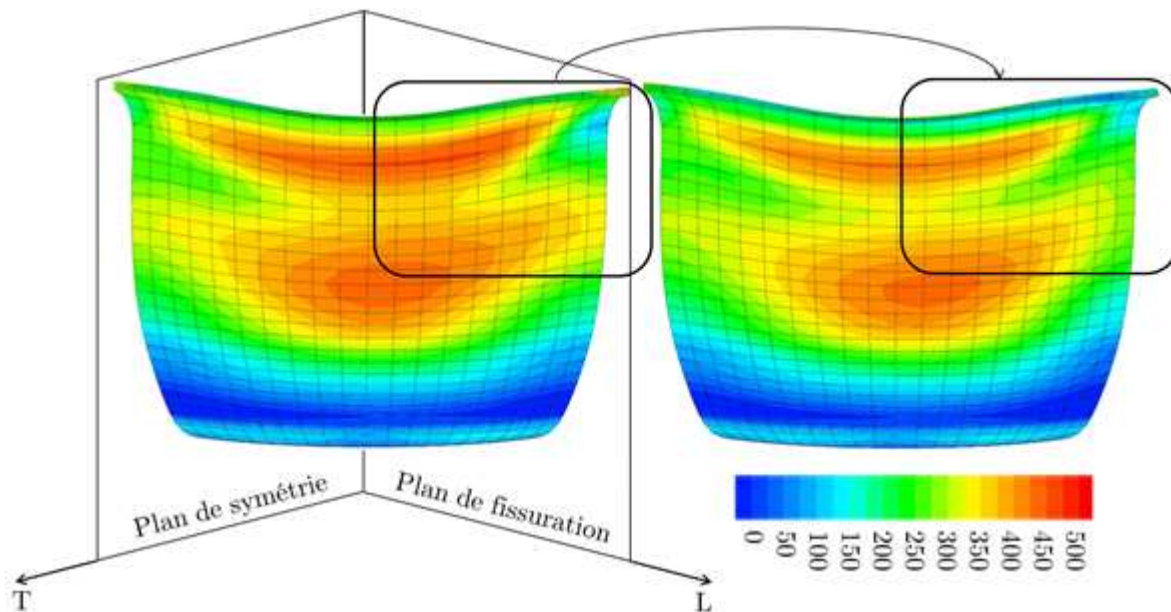


Figure III.30 : Contraintes circonférentielles moyennées par éléments, en peau externe, avant (gauche) et après (droite) ouverture d'une fissure par relâchement de nœuds.

III.3.5.5 Redistribution des contraintes par fissuration

Objectifs et démarche

Les phénoménologies de fissuration des godets emboutis seront décrites en détail dans le chapitre suivant (§ IV.2.3). Quelques caractéristiques sont données ici pour comprendre les choix de modélisation. Les fissures de CSC-I s'amorcent au sommet du godet et propagent « axialement » vers le fond. Selon la concentration, certaines s'arrêtent au bout de 8 mm, d'autres atteignent le fond. Il y a toujours plus de 6 fissures. Et quand la concentration est supérieure ou égale à 10^{-5} g.g^{-1} , il y en a plus de 20. Les fissures ne s'amorcent pas toutes au même instant. Avec ce nombre important de fissures, il semble inévitable que les fissures

interagissent. Pouvoir modéliser la relaxation des contraintes due à la fissuration permettrait de mieux cerner les contraintes à l'amorçage.

Pour cela, la présence de fissures dans le godet a été simulée par éléments finis par une méthode de relâchement de nœuds. On choisit de placer initialement la fissure à $\vartheta=90^\circ$, où les prédictions du modèle sont les plus proches des mesures de contraintes par DRX. Ce choix est renforcé par la facilité accrue de simuler une fissure sur une face de symétrie, mais aussi par le fait que cela est équivalent à deux fissures dans tout le godet. Ne modélisant qu'un quart de la géométrie, placer une fissure au milieu du quart modélisé serait équivalent à 4 fissures dans tout le godet.

Une reprise de calcul est effectuée après le calcul d'emboutissage en changeant les conditions limites sur cette face : sur une longueur de fissure L_1 , à partir du sommet, les conditions de symétrie sont remplacées par un chargement en forces nodales équivalentes ; Au temps 0 de la fissuration, elles équilibrent les contraintes du godet après emboutissage. On les fait alors tendre progressivement vers 0, pour faire de cette surface une surface libre. On a ainsi simulé la présence d'une fissure de longueur L_1 . Cependant il faut noter que cette méthode ne permet pas de reproduire le véritable historique des champs mécaniques lors de la fissuration progressive. On ne dispose que de l'état « final », celui d'une fissure de longueur L_1 ne propageant plus.

Ouverture d'une fissure

Comme illustré sur la Figure III.30, le relâchement des forces nodales n'implique pas une très grande redistribution des contraintes dans les godets à l'exception du sommet. Et c'est au sommet que les fissures de CSC-I s'amorcent. On trace alors les évolutions de la contrainte circonférentielle au sommet du godet, en peau externe, en fonction de l'angle par rapport à l'axe de symétrie. Ces courbes sont données en Figure III.31. Il apparaît que la présence de la fissure modifie grandement les contraintes au sommet, et que cette modification dépend de la profondeur de la fissure considérée. Cependant, à partir de 9 mm de longueur, la longueur de la fissure n'a plus d'influence sur la distribution des contraintes au sommet. A un écartement angulaire de 10° de la fissure, la contrainte a été divisée par deux par rapport au godet non fissuré.

Les essais décrits dans le chapitre suivant montreront que pour la majorité des concentrations utilisée, on n'observe pas de localisation angulaire particulière des fissures. Si on ajoute à cela l'incertitude des contraintes calculées par rapport aux mesures locales, le fait de considérer la fissure seulement pour un angle de 90° change peu de chose. Cette méthode donnera une estimation de la contrainte à l'amorçage et n'a pas la prétention de la déterminer précisément.

C'est à partir de ce type de courbes que l'on va estimer des bornes de contraintes à l'amorçage des fissures de CSC-I. En effet, partant de l'écart angulaire moyen ψ entre deux fissures, déterminé expérimentalement sur un godet donné, on peut imaginer que l'ensemble des contraintes au sommet prédites pour $0^\circ < \vartheta < \psi$ sont des bornes inférieures à la contrainte seuil de fissuration. La contrainte seuil serait même celle à $\vartheta = \psi$.

Cependant, cette méthode suppose que les fissures s'amorcent successivement plutôt que simultanément. Les résultats expérimentaux montrent qu'il existe deux types de fissures : les principales et les secondaires. Les principales s'amorcent rapidement et se propagent de façon simultanée. Entre deux fissures principales, on peut parfois observer une secondaire, dont le temps à l'amorçage est plus long et la longueur finale plus courte. La méthode décrite s'applique donc plutôt à ces fissures. Pour les primaires, il est raisonnable de penser qu'elles n'ont que peu d'influence les unes sur les autres en tout début de fissuration et donc que leur contrainte d'amorçage est la contrainte résiduelle au sommet du godet.

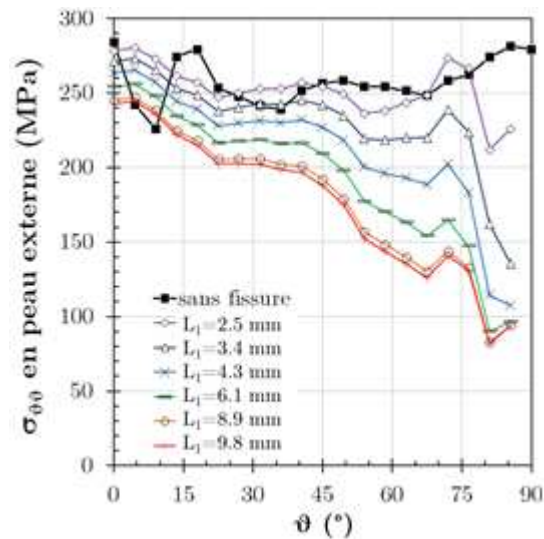


Figure III.31 : Relaxation des contraintes circonférentielles, au sommet du godet et en peau externe, autour d'une fissure placée à $\vartheta=90^\circ$, pour différentes profondeurs de fissures L_1 . Le nœud au sommet situé sur la lèvre de la fissure n'est pas pris en compte sur le profil angulaire (la contrainte tangentielle est nulle à cet endroit).

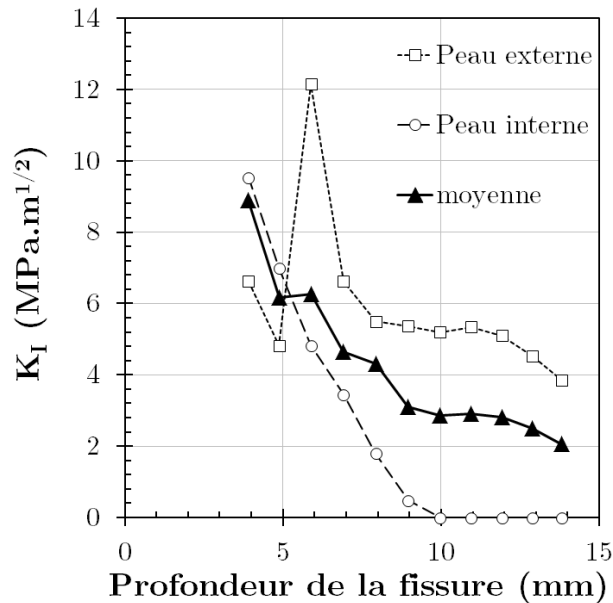


Figure III.32 : Evaluation du facteur d'intensité des contraintes en mode I, K_I en fonction de la longueur de la fissure, par la méthode des déplacements.

Calcul du K_I

A partir de cette méthode « d'ouverture » de fissure, il a été possible d'évaluer les facteurs d'intensité des contraintes en Mode I (K_I) sur ces géométries par l'utilisation de l'opérateur SIF présent dans Cast3m (CEA). Cet opérateur calcule K_I pour des matériaux élastiques isotropes en extrapolant les déplacements autour de la pointe de fissure entre l'état initial et l'état fissuré. En effet, dans ces conditions, les déplacements sont proportionnels aux facteurs à K_I multiplié par la racine de la distance à la pointe de fissure. En plus de l'élasticité isotrope, on suppose ici que le front de fissure est perpendiculaire à la direction de propagation. Une reprise de calcul comparable à celle de la relaxation des contraintes est réalisée, mais en considérant le matériau élastique.

Les résultats de cette estimation sont présentés sur la Figure III.32. K_I est donné pour le nœud en peau interne ; celui en peau externe et moyenné sur le front de fissure. On ne peut accéder au sommet du godet car il est nécessaire que la fissure s'étende sur au moins trois éléments pour que l'opérateur SIF puisse extrapoler les déplacements. Le gradient de contrainte circonférentielle dans l'épaisseur implique une grande dispersion de K_I . En paroi interne, il devient nul à partir d'une longueur de fissure de 10 mm alors qu'il reste au-dessus de $4 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ en peau externe. En pratique, le front de fissure n'a que peu de chances d'être perpendiculaire à la direction de propagation dans ces conditions, la longueur de fissure serait plus importante en paroi externe. Les observations du chapitre suivant confirmeront cette impression. Cependant la courbe moyenne obtenue sera quand même utilisée pour estimer K_I , lors de l'établissement de courbes d'avancées de fissures.

Simulation de la multifissuration

Cette méthode de relâchement de nœud a montré que la présence d'une fissure (2 par symétrie) peut modifier de façon importante la distribution des contraintes dans l'ensemble du godet. Il apparaît clairement que la présence d'une fissure supplémentaire va accentuer la relaxation des contraintes dans le godet. Considérer la relaxation des contraintes due à une seule fissure pour estimer la contrainte à l'amorçage d'une fissure voisine est donc une approximation. Cela donne au mieux une borne supérieure de la contrainte restante entre deux fissures. Il faut prendre en compte la multifissuration.

Une autre façon de délimiter les contraintes à l'amorçage consiste à s'intéresser aux contraintes qui peuvent encore exister entre deux fissures ayant propagé, après la multifissuration du godet (en fin d'essai). S'il reste une contrainte circonférentielle positive entre deux fissures à la fin de l'essai, sa valeur donne la borne inférieure de la contrainte à l'amorçage pour un temps égal à celui de l'essai, à savoir 72 h en moyenne.

Une méthode de doublement/relâchement de nœuds a été mise en place pour ajouter l'ouverture d'une fissure sur une tranche du godet située entre les faces de symétrie du quart de godet. Couplée à la méthode décrite dans le paragraphe précédent, on peut alors simuler l'ouverture des deux fissures, simulant 4 fissures dans le godet entier (cas des deux faces de symétrie ouverte) ou 6. Cependant, il s'est avéré qu'on ne peut utiliser cette technique que pour des espacements importants de fissure. En effet, la nouvelle fissure doit être placée sur une tranche de nœuds présents dans le maillage initial. La densité de nœuds du calcul d'emboutissage est telle qu'il y a 20 éléments pour un angle de 90° . En théorie, on peut donc au mieux simuler deux fissures écartées de 4.5° sur un élément. En pratique, le relâchement des contraintes ne converge pas pour moins de trois éléments entre deux fissures. Un écartement minimal de 13.5° est donc possible, avec seulement trois éléments pour observer la relaxation des contraintes. Expérimentalement, le nombre de fissures varie entre 7 et 30 fissures. Pour 30 fissures, l'écart moyen est donc de 12° , écart inférieur au minimum simulable.

Pour régler en partie ce problème, nous avons choisi de réaliser des calculs d'emboutissage sur des portions de godets, plutôt que sur un quart. Pour une portion de godet d'angle Θ , et un relâchement de nœud sur l'une des deux surfaces de symétrie, on simule une multifissuration du godet tous les 2Θ , soit $(360^\circ/2\Theta)$ fissures uniformément réparties. On améliore de plus la « résolution angulaire » du calcul : 5 éléments sont considérés pour la rotation autour de l'axe de symétrie du disque initial. Tant que Θ est inférieur à 22.5° , la taille angulaire des éléments est plus petite que pour le calcul sur un quart de godet. Par contre, on perd la prise en compte de l'anisotropie du modèle de comportement avec ce type de simulation. Les mesures de DRX ont montré que les contraintes résiduelles dans le godet n'étaient pas uniformes, et que l'anisotropie introduite dans le modèle ne permet pas de retrouver ces variations (variations de hauteur, profils de contraintes). Les tendances et

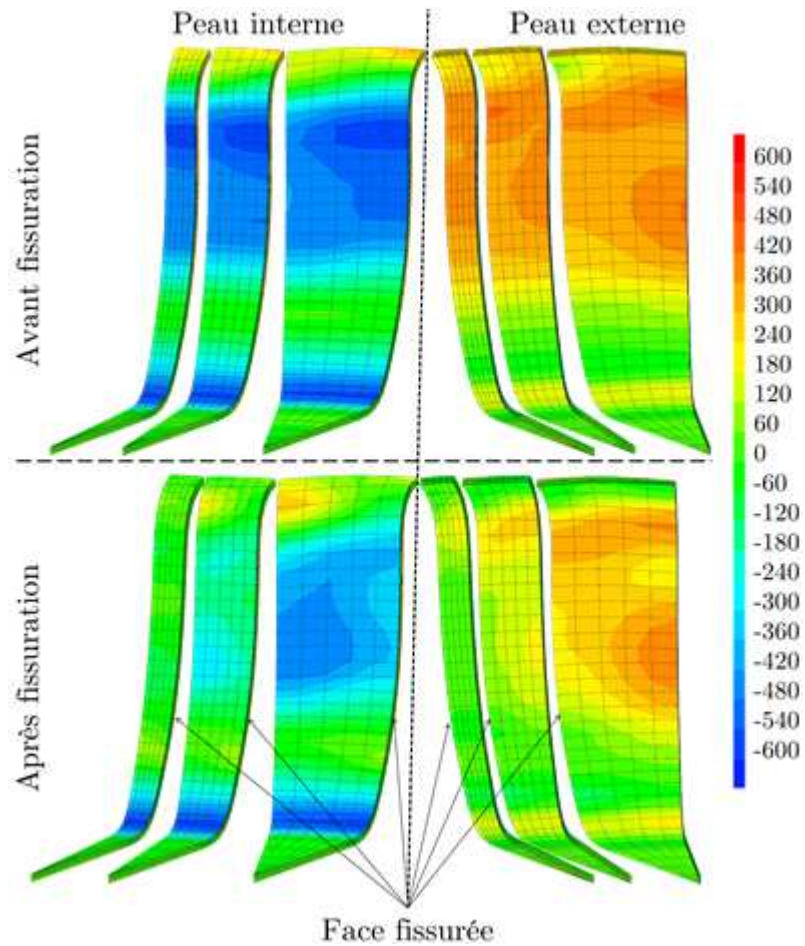


Figure III.33 : Géométrie des trois portions calculées (1, 2 et 3, de gauche à droite). Tracé des isovaleurs de la contrainte circonférentielle en peau interne (gauche) et peau externe (droite), avant relâchement des nœuds (haut) et après (bas).

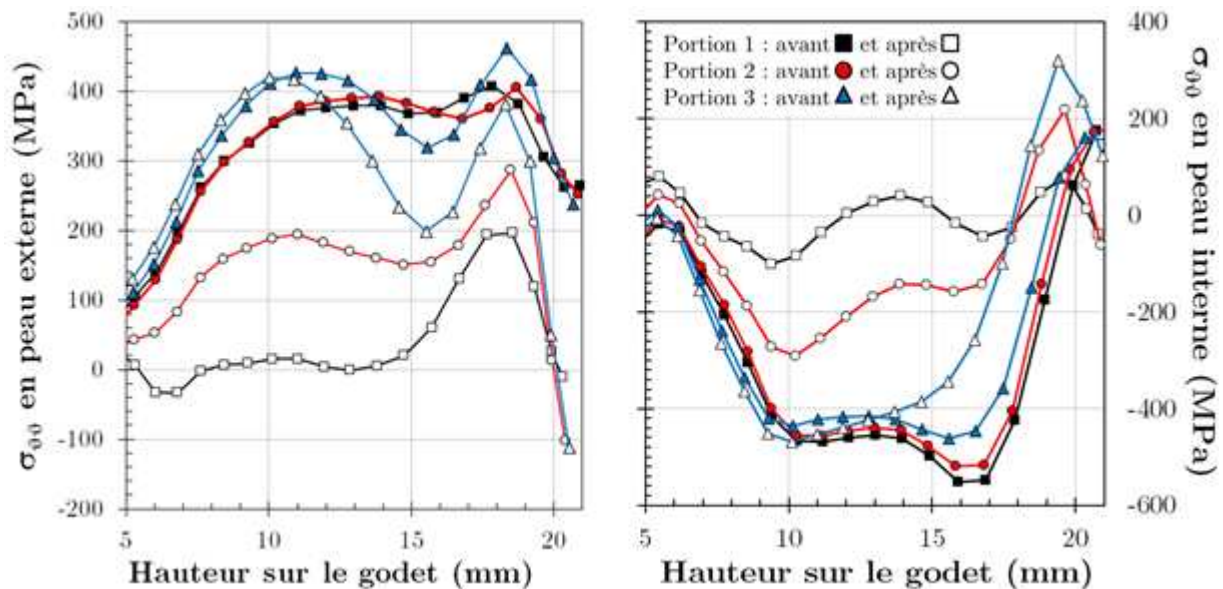


Figure III.34 : Relaxation des contraintes sur l'inter-fissure, en peau externe (gauche) et interne (droite), avant fissuration (symboles pleins) et après (symboles vides) pour les portions 1 (traits noirs), 2 (traits rouges) et 3 (traits bleus).

ordres de grandeur sont tout de même respectés, comme cela a été montré sur la Figure III.28. Les courbes à $\vartheta=0^\circ$ et $\vartheta=90^\circ$ (direction T et L) se placent au milieu de l'ensemble des points de mesures (DRX + ouverture anneau). On choisit alors de définir les portions de godet de telle sorte que l'une des deux faces soit le long de T, c'est-à-dire de normale L. De plus, c'est sur cette face que le relâchement de nœud sera fait.

A partir des observations expérimentales, trois portions ont été considérées avec des angles Θ de 5.625° (Portion 1), 11.25° (Portion 2) et 22.5° (Portion 3), correspondant respectivement à 32, 16 et 8 fissures. La simulation de l'emboutissage est faite comme pour le quart de godet, en bloquant les déplacements circonférentiels sur les deux tranches latérales de la portion. Les géométries des portions sont illustrées sur la Figure III.33, avec les isovaleurs de la contrainte circonférentielle avant et après relâchement de nœud sur la surface $y=0$. La relaxation des contraintes, conséquence de la présence de la fissure, est clairement visible, et est d'autant plus importante que la portion est petite, et donc que le nombre de fissures est important. Pour la plus petite portion, les contraintes sont presque totalement relaxées en peau externe, à l'exception d'une zone proche du sommet.

S'il reste une contrainte positive, elle doit être maximale entre les deux fissures, sur l'inter-fissure, en peau externe. Sur la Figure III.34 sont tracés les profils de contrainte circonférentielle aux inter-fissures des trois portions, avant et après relâchement des nœuds, en peau interne et externe. Il apparaît que la contrainte au sommet est nulle ou négative pour les trois portions. En revanche un maximum de contrainte existe à environ 2 mm du sommet sur les deux peaux. L'importance de ces maxima varie beaucoup avec la portion considérée. Pour la plus grande (Portion 3), la relaxation des contraintes est partielle, et les maxima valent 380 et 320 MPa, respectivement en peau interne et externe. Pour la portion intermédiaire (Portion 2), ils passent à 280 et 200 MPa. Enfin, pour la plus petite des portions (Portion 1), les contraintes ne dépassent pas 200 et 79 MPa.

Il subsiste donc une zone en traction au milieu des portions. Si l'on n'observe pas de fissures à ces endroits-là, cela pourrait signifier que la contrainte dans cette zone est inférieure à la contrainte seuil d'amorçage de fissures de CSC-I. On utilisera ces résultats pour déterminer ce seuil en fonction de la concentration en iode dans le chapitre suivant.

III.3.6 Godets à avalement partiel

En plus des godets à avalement complet (100%), des godets à avalement partiel ont été utilisés et leur emboutissage simulé. Le même type de calcul que celui décrit précédemment est utilisé. Pour la fin de calcul, le critère d'arrêt d'emboutissage est un déplacement maximal autorisé du poinçon, comme pour l'usinage. Le déchargement par le retrait des outils est réalisé. Comme pour les godets à 100%, une phase de relaxation des contraintes d'une année suit l'emboutissage. Le critère d'arrêt en déplacement permet d'avoir des godets simulés et réels de même dimension, contrairement aux godets à avalement total. Dans la suite, on appellera colerette la partie du godet toujours emprisonnée par le serre-flan à la fin de l'emboutissage ; il s'agit donc de la partie plane, située en haut des godets. On dénommera également le coude comme étant la partie incurvée, transition entre la colerette et la partie quasi-cylindrique du godet. Le fond du godet désigne la partie plane qui était située sous le poinçon (Figure III.35).

Les distributions de contraintes circonférentielles dans les godets d'avalement 40% (Figure III.35), 60% (Figure III.36) et 80% (Figure III.37) sont étudiées par l'observation des isovaleurs en peaux interne (PI) et externe (PE), et le tracé des évolutions selon les génératrices à $\vartheta=0^\circ$ (direction T), $\vartheta=45^\circ$ et $\vartheta=90^\circ$ (direction L).

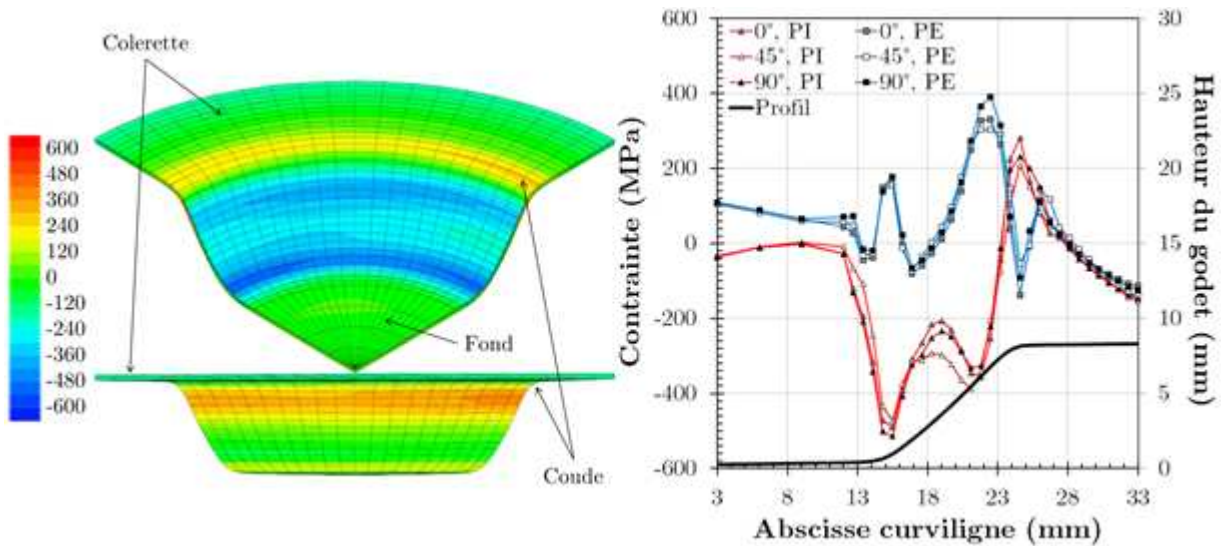


Figure III.35 : Distribution des contraintes circonférentielles en surface du godet 40%, isovaleurs en peau interne (en haut à gauche) et en peau externe (en bas à gauche). Evolutions radiales (droite) en peau externe (PE, bleu) et peau interne (PI, rouge), en fonction de l'abscisse curviligne, avec tracé du profil du godet (noir).

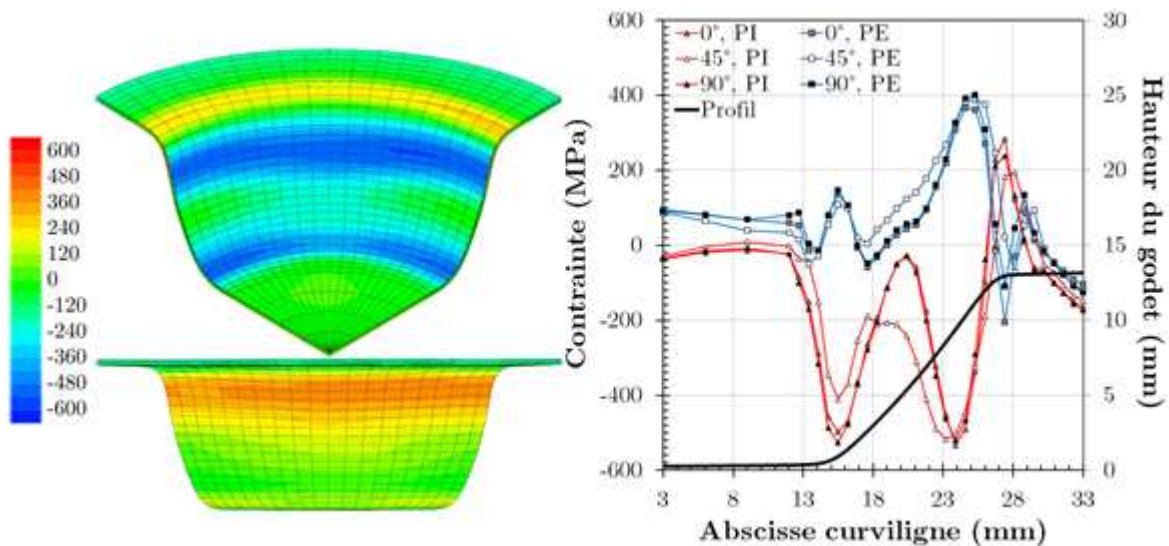


Figure III.36 : Distribution des contraintes circonférentielles en surface du godet 60%, isovaleurs en peau interne (en haut à gauche) et en peau externe (en bas à gauche). Evolutions radiales (droite) en peau externe (PE, bleu) et peau interne (PI, rouge), en fonction de l'abscisse curviligne, avec tracé du profil du godet (noir).

Tout d'abord, on remarque que pour le godet à 40%, la distribution des contraintes circonférentielles est presque à symétrie cylindrique. Peu de différences sont observées entre les trois génératrices étudiées. L'extrémité de la colerette est en compression, en peau interne comme en peau externe à environ -150 MPa. Il paraît donc peu probable que les fissures de CSC-I s'y amorcent. En se rapprochant du centre du godet, le long des génératrices, la contrainte augmente progressivement jusqu'à atteindre un maximum positif. En peau interne, ce maximum est situé au rayon de courbure maximal du coude, alors que pour la peau externe, il est légèrement décalé vers le bas, dans une partie plus droite du

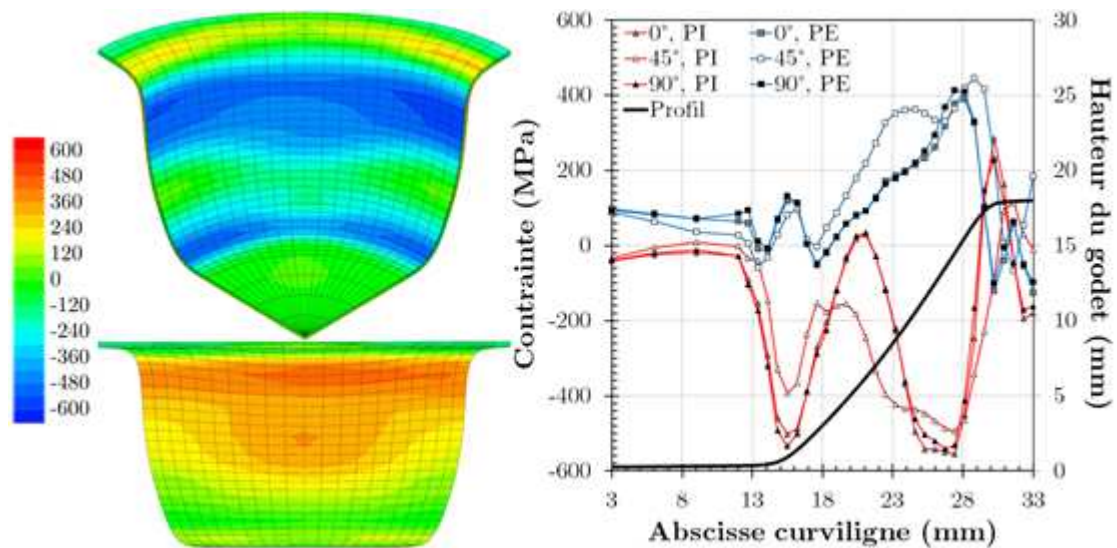


Figure III.37 : Distribution des contraintes circonférentielles en surface du godet 80%, isovaleurs en peau interne (en haut à gauche) et en peau externe (en bas à gauche). Evolutions radiales (droite) en peau externe (PE, bleu) et peau interne (PI, rouge), en fonction de l'abscisse curviligne, avec tracé du profil du godet (noir).

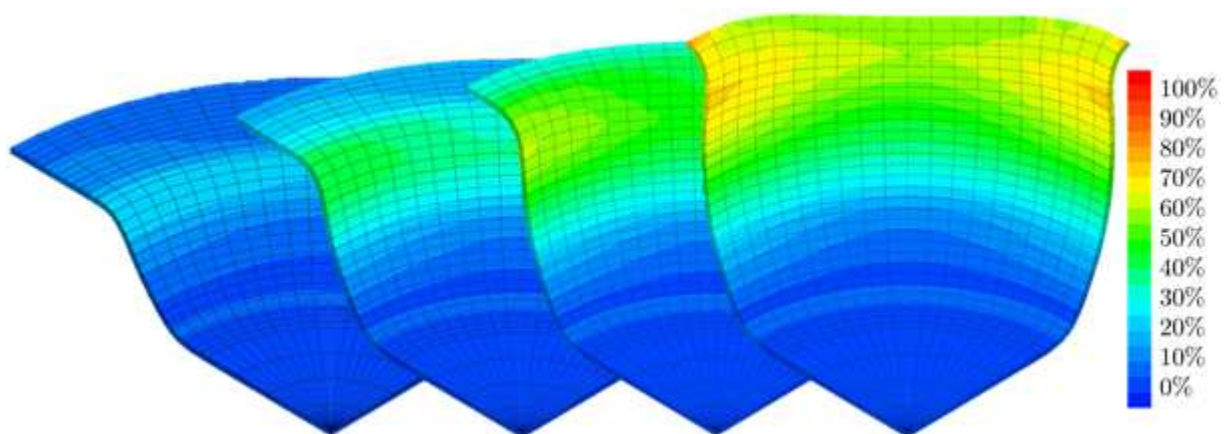


Figure III.38 : Isovaleurs de la déformation plastique équivalente après emboutissage, pour des godets d'avalement de 40%, 60%, 80% et 100% (de gauche à droite).

godet. Le niveau maximal de contrainte est prédit entre 200 et 300 MPa en peau interne et entre 300 et 400 MPa en peau externe. Au delà du coude, les contraintes diminuent très rapidement, en étant fortement négatives en peau interne et globalement positives en paroi externe. Un nouveau pic de contrainte en paroi externe est observé au niveau du congé entre partie cylindrique et fond du godet, avec un niveau maximal ne dépassant pas 200 MPa.

Pour un godet d'avalement 60%, la répartition des contraintes est très similaire : les positions des maxima sont les mêmes. L'extrémité de la colerette reste en compression. On remarque quand même que les niveaux de contrainte maximale sont légèrement plus importants que pour les godets à 40%. Si les contraintes sont identiques sur les faces de symétries ($\vartheta=0^\circ$ et $\vartheta=90^\circ$), on commence à voir apparaître les effets d'anisotropie (artefact du modèle) à 45° , principalement dans la partie cylindrique du godet. Sur la génératrice à 45° , en peau externe, la contrainte est plus importante d'environ 50 MPa par rapport aux génératrices 0° et 90° . En paroi interne, alors que les contraintes remontent pour quasiment s'annuler pour 0° et 90° , elle reste fortement négative à -200 MPa à 45° .

Pour le godet 80%, ces effets d'anisotropie s'amplifient. Un maximum local de contrainte en peau externe dans la partie cylindrique apparaît, prémice de ce que sera la distribution des contraintes dans un godet 100% (Figure III.28). Ce point mis à part, la répartition des contraintes reste comparable à celle des deux autres godets, avec des maxima quasi-identiques au godet 60%. L'extrémité de la colerette (dont la taille est très réduite) est de moins en moins en compression, et est même en traction en peau externe à 45°. Des différences d'amorçage et de propagation de fissures par rapport aux godets 40% et 60% peuvent donc être attendues.

Les niveaux des contraintes maximales calculées sont assez proches pour l'ensemble des godets, même pour celui à avalement total. On pourrait donc s'attendre à des fissurations comparables. Sans trop s'avancer sur le chapitre suivant, il s'avère que ce n'est pas le cas. Si les lieux d'amorçage sont similaire dans ces différents type de godet, en paroi externe au niveau du coude, des différences de fissuration seront observées notamment en ce qui concerne le nombre d'amorces. Ces différences ne peuvent être expliquées par les niveaux des contraintes résiduelles calculées. L'analyse des champs mécaniques (autres que la contrainte circonférentielle) sera donc nécessaire. Pour illustrer les différences existant entre godets, les isovaleurs de la déformation plastique équivalente (ou cumulée) pour l'ensemble des godets sont données en Figure III.38.

III.3.7 Commentaires sur les simulations effectuées

En plus des incertitudes expérimentales et des approximations du modèle identifié, les méthodes de simulation ne sont pas nécessairement neutres, notamment en ce qui concerne l'indépendance par rapport à la taille de maille ou la prise en compte du frottement. L'influence de tels paramètres est discutée ici d'un point de vue empirique.

On rappelle que l'ensemble des calculs par éléments finis sont linéaires, de type TRI3 ou QUA4 pour les éléments surfaciques et TET4 ou CUB8 pour les éléments volumiques. Les éléments quadratiques permettent de meilleures convergence et approximation des champs non linéaires mais leur utilisation avec Cast3m est plus complexe. Dans Cast3m, il n'y a pas de différences entre la géométrie et le maillage. Il faut paramétrer l'ensemble de la géométrie avec des densités de nœuds, et il est plus aisé de connaître la répartition des nœuds avec des éléments linéaires. De plus, les surfaces de contact doivent être composées d'éléments linéaires. Il était donc plus facile et plus cohérent de travailler sur des éléments linéaires.

Essais de traction uniaxiale

Les essais de traction à vitesse de déformation imposée sur éprouvette lisse ont été modélisés sur un élément de volume ainsi que sur un maillage d'un quart de longueur utile d'éprouvette lisse (2 symétries). Aucune différence n'a été observée entre les résultats calculés. Les essais ultérieurs, réalisés avec la même géométrie d'éprouvette, ont été simulés sur un élément de volume seul. Pour ces essais, les équations du modèle ont été implémentées dans Excel dans une procédure d'optimisation. Elles sont intégrées en un point géométrique, par différences finies, avec un pas constant en déformation. Pour toutes les vitesses de déformation, il a été vérifié que ce pas était suffisamment petit (pas de variation de la réponse en le diminuant). En revanche, pour les essais de fluage, l'intégration en temps dans Excel nécessite un nombre de pas très important et est très sensible à ce pas. Pour cela, la réponse du modèle pour les essais de fluage sur éprouvette lisse n'a pas été utilisée dans l'optimisation des paramètres du modèle de comportement.

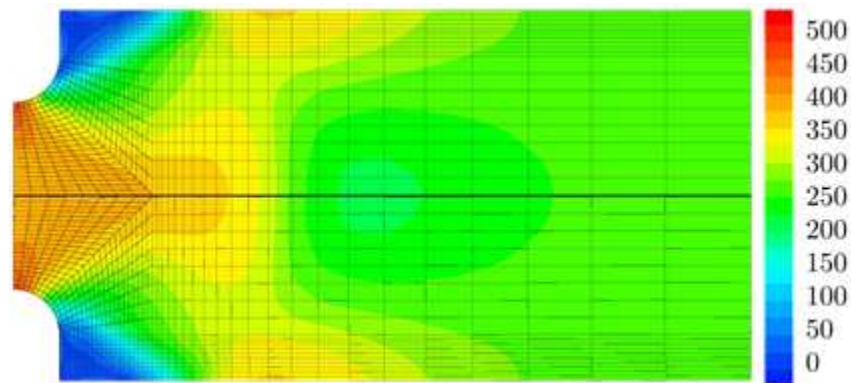


Figure III.39 : Isovaleurs de la contrainte équivalente de Hill, pour un calcul en 2D contraintes planes (moitié supérieure) et en surface pour un calcul en 3D (moitié inférieure), pour une éprouvette de type 13 (largeur de ligament de 2 mm, rayon d'entaille de 0.5 mm), pour une déformation macroscopique totale de 5.4%.

Essais de traction sur éprouvette entaillée

Les calculs sur éprouvettes entaillées ont été menés en 2 dimensions avec la formulation des contraintes planes car le temps de calcul est grandement raccourci et la contrainte dans l'épaisseur est a priori très faible. Les champs mécaniques calculés en 2D et ceux en surface pour un calcul 3D devraient être identiques. Pour vérifier cette hypothèse, un calcul 3D a été réalisé, pour une éprouvette de type 13, utilisée pour la corrélation d'image, de largeur de ligament de 2 mm et de rayon d'entailles 0.5 mm. Les champs ont été comparés et les différences entre les deux approches sont infimes, comme cela est illustré sur la Figure III.39. Le reste des calculs sur éprouvettes entaillées a donc été réalisé en 2D contraintes planes et les données extraites de ces calculs serviront à l'établissement d'un modèle d'amorçage de fissure de CSC-I.

Emboutissage de godets

Dans les codes commerciaux d'emboutissage de tôles, les éléments coques sont très souvent utilisés. De manière générale, on utilise couramment ces éléments quand l'épaisseur de la pièce considérée est inférieure à 10% des autres dimensions. Expérimentalement, les effets d'anisotropie sur les godets sont visibles à l'œil et il paraissait important d'utiliser le modèle de comportement identifié pour éventuellement les retrouver. Cependant le module MISTRAL qui calcule les contraintes et déformations n'est programmé que pour les éléments massifs. Par conséquent, l'emboutissage a été simulé avec des éléments massifs, comme présenté précédemment.

La question de la dépendance au maillage et plus particulièrement du nombre d'éléments dans l'épaisseur du quart de disque à emboutir se pose. On a vu que les parois du godet sont soumises à un très fort gradient de contrainte, notamment circonférentielle, dans l'épaisseur. Dans le pire des cas, on observe une variation de presque 1000 MPa sur les 478 μm d'épaisseur initiale. On peut penser que le nombre d'éléments va avoir une forte influence sur le résultat. Plusieurs simulations ont donc été lancées avec différentes géométries mais une limitation a vite été atteinte. A partir de 7 éléments dans l'épaisseur et en gardant les mêmes densités de nœuds dans les autres directions, l'état de contrainte local est tel que des mailles finissent par être écrasées sur elles-mêmes, menant à l'arrêt du calcul. Des calculs sur la plus petite portion, avec 5 éléments pour la rotation, ont pu être menés à terme pour 2, 5, 10, 15 et 20 éléments dans l'épaisseur. Cela montre que c'est la densité de nœuds autour de l'axe de rotation qui limite le raffinement du maillage. A cause des contacts et frottements, le temps de calcul est très sensible à la densité de maille en surface,

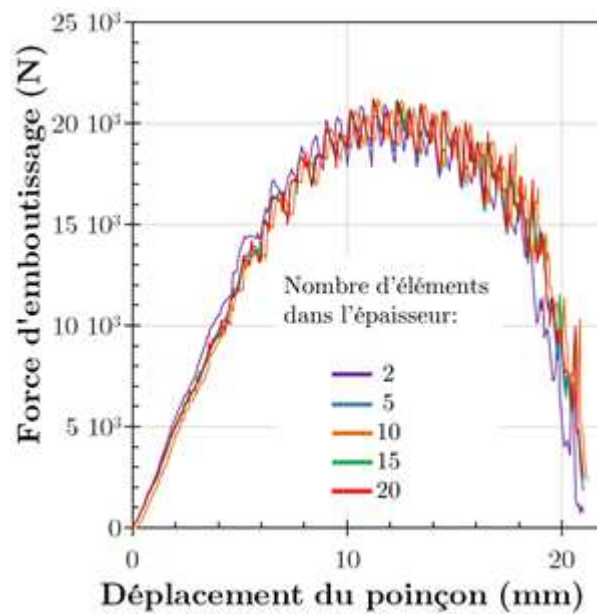


Figure III.40 : Courbes d'emboutissage pour la portion la plus petite (5.625°), avec un nombre différent d'éléments dans l'épaisseur du maillage.

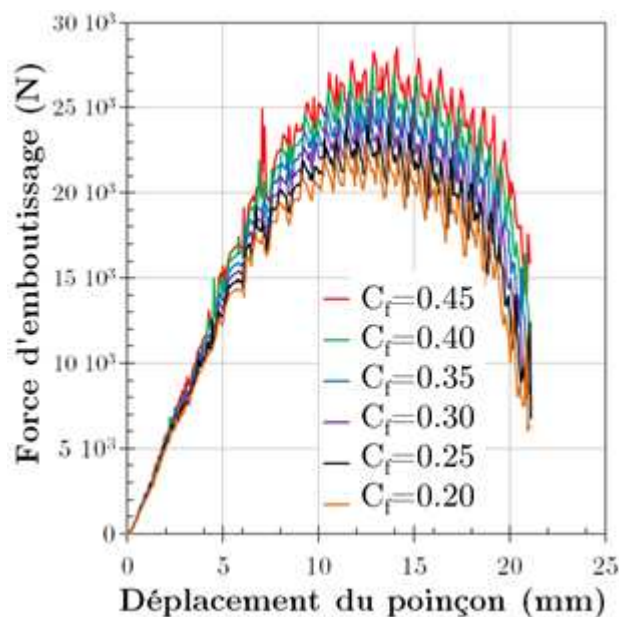


Figure III.41 : Influence du coefficient de frottement C sur la force d'emboutissage.

et les temps de calcul explosent quand on augmente cette densité. En conséquence, il n'a pas été possible de raffiner le maillage d'un quart de godet jusqu'à la disparition de l'effet de la taille de maille dans la direction circonférentielle.

Les calculs sur les portions ont montré que la réponse macroscopique était indépendante du nombre d'éléments dans l'épaisseur (Figure III.40). La résistance de l'échantillon à l'emboutissage serait donc principalement due à la compression circonférentielle (réduction du rayon à l'entrée de la matrice) puis à la traction axiale (allongement de la partie cylindrique du godet en sortie de matrice). La non dépendance au nombre d'éléments dans l'épaisseur laisse supposer que les contraintes normales au feuillard sont très limitées.

Pour un quart de godet, avec un maillage grossier (2 éléments dans l'épaisseur, 10 pour la rotation autour de l'axe de symétrie et 15 radialement), la courbe d'emboutissage présente

une rigidité plus importante, et une force maximale augmentée de presque 30% (de 21 à 27 kN). Cela montre encore la grande sensibilité à la taille de maille « circonférentielle ». Cela laisse également supposer que l'écart calcul-expérience sur les courbes d'emboutissage sera encore plus accentué pour un maillage plus fin que celui utilisé dans les simulations.

Les coefficients de frottement utilisés dans le calcul d'emboutissage ont été conseillés par les personnes qui ont réalisé les godets, sur la base de leur retour d'expérience concernant la fabrication de godets en aciers inoxydables et de leurs simulations numériques associées. Des calculs sur portion de largeur angulaire de 6° ont été faits en faisant varier les coefficients de frottement C_f de 0.2 à 0.45. Ces coefficients sont pris identiques pour les trois contacts. Les courbes d'emboutissage pour ces différents calculs sont superposées sur la Figure III.41. Une différence de 5 kN est mise en évidence en faisant varier C . Cependant, les valeurs de coefficient de frottement sont extrêmes, même en l'absence de lubrification. La plus faible force d'emboutissage prédite par le modèle par rapport aux essais ne peut donc pas être expliquée par une mauvaise prise en compte du frottement.

Une autre interrogation concerne le calcul du facteur d'intensité des contraintes après ouverture d'une fissure par relâchement de nœuds. Il a déjà été précisé que cette estimation est imprécise du fait de la géométrie du front de fissure considérée. Comme les contraintes en peau interne sont en compression, il est très probable que la fissure propagera en travers, et sera plus profonde en peau extérieure qu'en peau intérieure. La méthode employée suppose également que le matériau est élastique pendant l'ouverture de la fissure. Les données de la bibliographie tendent à accréditer cette hypothèse car les fissures de CSC-I sont très fragiles, et aucune plasticité macroscopique n'est observée. Si l'on en croit les résultats du calcul de K_I , on peut estimer la taille de la zone plastique en pointe de fissure par la formule d'Irwin. Il apparaît alors que la zone plastique est plus petite que 100 μm , bien inférieure à la taille de maille. L'opérateur SIF (*Stress Intensity Factor*) de Cast3m utilisé pour le calcul de K_I n'est plus entretenu depuis plusieurs années et n'était pas adapté aux fissures aussi ouvertes que celle considérée. Sa programmation a donc été modifiée pour convenir aux besoins de l'étude. L'opérateur a ensuite été testé sur un maillage d'éprouvette CT au comportement élastique. La comparaison avec une formule analytique ainsi qu'avec un autre opérateur (G-THETA) calculant l'intégrale J montre que SIF était bien apte à évaluer K_I dans le domaine utilisé ici.

III.4 Discussion

III.4.1 Résultats expérimentaux

III.4.1.1 Propriétés mécaniques

Dans ce paragraphe on se propose de comparer succinctement les résultats des essais de caractérisation mécaniques aux données disponibles dans la littérature. Le nom Zircaloy-4 est lié à la composition chimique du matériau. Même si le procédé de mise en forme utilisé est le même, c'est-à-dire le laminage à froid, les différences de réduction par passe mais surtout de traitements thermiques finaux de recristallisation mènent à des microstructures différentes, en termes de taille de grain et de texture. La comparaison directe des valeurs des propriétés mécaniques d'une étude à l'autre n'est pas forcément pertinente. L'étude des tendances, notamment en ce qui concerne l'anisotropie, est plus caractéristique des modes de déformations activés et est signe de l'appartenance à une même famille de matériaux.

Tableau III.5 : Propriétés mécaniques du Zircaloy-4 recristallisé à température ambiante dans différentes études de la littérature, dans le cas d'éprouvettes plates (repère N, T, L) ou tubulaires (repère r, ϑ , z).

Ref.	Forme	Vitesse (s^{-1})	$R_{P0.2}^{L(z)}$ (MPa)	$R_{P0.2}^{T(\vartheta)}$ (MPa)	$\sigma_u^{(z)}$ (MPa)	$\sigma_u^{(\vartheta)}$ (MPa)	$\epsilon_u^{(z)}$ (%)	$\epsilon_u^{(\vartheta)}$ (%)	m
1	Plaque	$5 \cdot 10^{-5}$	339	535	-	-	-	-	$29 \cdot 10^{-3}$
2	Plaque	10^{-3}	411	422	522	484	11.3	10.4	$27 \cdot 10^{-3}$ *
3	Plaque	$1.6 \cdot 10^{-4}$	289	293	393	395	14	7	-
4	Plaque	10^{-4}	353.9	383	493	476.1	11.6	8.2	-
5	Plaque	-	385	395	470	440	12	10	-
6	Tube	10^{-3}	375	-	480	-	14	-	$18 \cdot 10^{-3}$ *, **
7	Tube	$2 \cdot 10^{-4}$	430*	497.5*	-	-	-	-	$26 \cdot 10^{-3}$ *

1, (Elbachiri 2003)

2, (Grange 2000)

3, (Mahmood 1989)

4, (Cockeram 2012)

5, (Morize 1987)

6, (Prat 1998)

7, (Geyer 1999)

* Données recalculées à partir de courbes de traction

** Teneur en hydrogène de 145 ppm

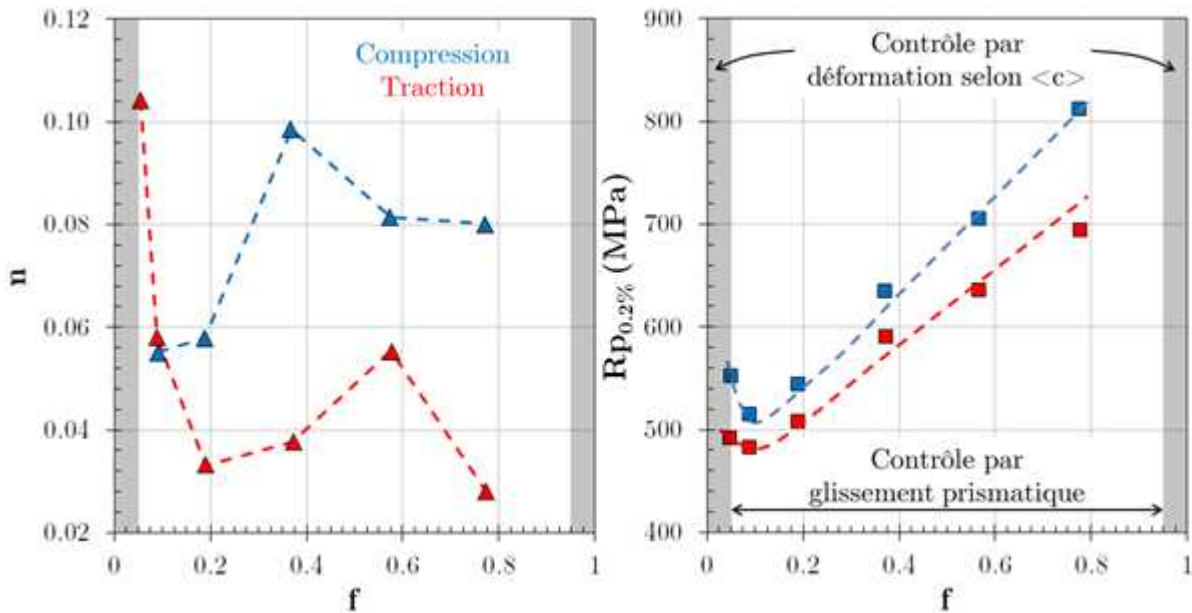


Figure III.42 : Influence de la fraction f de pôles de base dans la direction de sollicitation sur l'exposant n de la loi d'écroutissage d'Hollomon (gauche) et la limite d'élasticité (droite). Illustration des systèmes de glissement contrôlant la déformation. Cas de tôles de Zircaloy-2 détendues à température ambiante, d'après (Ballinger 1981).

Le Tableau III.5 regroupe les différentes propriétés mécaniques de différents Zircaloy-4 recristallisés issues de la littérature. L'utilisation en réacteur des alliages de Zirconium se faisant pour une température proche de $350 \text{ }^\circ\text{C}$, il n'y a qu'un nombre limité de données à température ambiante. Les limites d'élasticité à 0.2% de déformation plastique ($R_{P0.2}$), les résistances mécaniques (σ_u), les allongements plastiques à rupture (ϵ_u) et la sensibilité à la vitesse de déformation (m) sont donnés. L'anisotropie de limite d'élasticité et de résistance mécanique mesurée dans cette étude est bien conforme aux données de la littérature avec

une limite élastique plus faible dans la direction de laminage (L ou z) comparativement à la direction traverse (T ou ϑ) mais une résistance mécanique plus importante, traduisant un taux d'écrouissage plus important. Dans la direction T, le comportement est proche d'un matériau viscoplastique parfait. Le paramètre m déterminé expérimentalement est également proche de ceux des autres études, aux alentours de $30 \cdot 10^{-3}$. Dans cette étude, ce paramètre a été identifié et testé avec succès sur une très large gamme de vitesses de déformation ($5 \cdot 10^{-8} - 10^{-2} \text{ s}^{-1}$).

Les propriétés mécaniques sont intimement liées à la texture du matériau car le glissement prismatique est le système de déformation majoritaire avec la plus faible cission critique (Geyer 1999). Ballinger a étudié l'influence de la proportion f de pôles du plan de base (0001) dans la direction de sollicitation sur les propriétés mécaniques de tôles en Zircaloy-2 détendues (Ballinger 1981). Trois zones de fraction de pôles ont été mises en évidence (Figure III.42) ; la plus étendue est celle où les propriétés mécaniques sont liées à l'activation et au durcissement du glissement prismatique $P\langle a \rangle$. A faible f (axes $\langle c \rangle$ quasi perpendiculaires à la direction de sollicitation), l'orientation est très favorable au glissement prismatique d'où une limite d'élasticité faible (Figure III.42 gauche). Par contre, pour accumuler de la déformation, il faut pouvoir l'accommoder selon les axes $\langle c \rangle$, par glissement pyramidal $\langle c+a \rangle$ ou maclage. Ces deux systèmes étant très difficiles à activer pour cette orientation, cela se traduit par un taux d'écrouissage plus important (Figure III.42 droite). Les facteurs de Kearns mentionnés dans le chapitre précédent sont les fractions de pôles de base selon les directions du feuillard de l'étude, que l'on rappelle ici (f_N, f_T, f_L) = (0.61, 0.25, 0.14). Les valeurs de ces facteurs sont en accord avec les propriétés mécaniques observées.

III.4.1.2 Anisotropie plastique

La technique de corrélation d'images digitales a permis de déterminer les rapports de déformations plastiques pendant des essais de traction unaxiales dans les directions T et L. Les coefficients de Lankford L correspondants ont été déterminés à $L_L=R=3.54$ et $L_T=P=4.41$. On rappelle également que dans le cas d'un matériau isotrope, ces rapports sont égaux à 1.

Des valeurs très proches ont été trouvées par Grange, $R=3.3$ et $P=4.5$ pour une tôle de Zircaloy-4 recristallisé à température ambiante (Grange 2000). Mahmood, dans les mêmes conditions, a trouvé des valeurs de $R=3.88$ et $P=3.72$ avec une texture légèrement plus normale (Mahmood 1989). Vedoya a, quant à lui, trouvé $R=2.95$ et $P=3.8$ (Vedoya 1988). A partir des données de la thèse de Geyer, on a pu estimer le coefficient $P=4$ pour un tube à température ambiante, soumis à une traction circonférentielle jusqu'à 2% de déformation plastique (Geyer 1999).

Elbachiri a montré que l'anisotropie de la limite d'élasticité des alliages de zirconium tend à diminuer quand la température augmente, plus pour les alliages détendus que pour les recristallisés (Elbachiri 2003). Cependant Delobelle a observé que le coefficient de Lankford R n'évoluait pas avec la température et restait égal à 1.85.

Allais avait trouvé que les coefficients de Lankford augmentaient rapidement avec la déformation plastique avant de se stabiliser, pour une tôle de Zr702 recristallisée, à température ambiante (Allais 1996). Dans notre étude, les rapports des déformations ont été déterminés continûment dans les directions L et T jusqu'à 8% et 11% de déformation plastique axiale respectivement, et une telle variation en début de plasticité n'a pas été mise en évidence. Les différences de systèmes de glissement activés selon les matériaux sont peut-être responsables de ces observations.

Van Swam a déterminé le rapport R sur plusieurs tubes en Zircaloy-2 et Zircaloy-4, détendus et recristallisés, par des essais de traction axiale jusqu'à 2% de déformation plastique, à une température non précisée mais supposée ambiante. Il a montré que ce rapport est directement corrélé à la texture, notamment par le facteur de Kearns dans la direction radiale (Van Swam 1979). En considérant un monocristal dont l'axe $\langle c \rangle$ est orienté dans le plan radial-circconférentiel avec un angle égal à l'angle moyen observé sur les figures de pôles, et que le seul glissement prismatique $P \langle a \rangle$ est activé, une formule simple est établie entre le coefficient de Lankford $R=L_L$ et le facteur de Kearns radial (Eq. III.17).

$$f_r = \cos^2 \Phi_{eff} = \frac{R}{R+1} \quad \text{Eq. III.17}$$

La formule a été vérifiée avec succès par Mahmood pour le cas d'une tôle (Mahmood 1989). En l'appliquant à la présente étude, elle prédit une valeur de R de 1.56, assez éloignée de celle déterminée par les essais de traction suivis par CID (3.54). En considérant la position du maximum de la figure de pôle dans le plan LT (32.5°), plutôt que l'angle moyen (38.6°), un rapport R de 2.46 est obtenu. Les études de Van Swam et Mahmood ne précisent pas les facteurs de Kearns dans les deux autres directions. Une différence de distribution des pôles des plans de base dans le plan radial-axial (plan NL) pourrait être responsable de l'écart observé.

La Figure III.43 illustre la grande sensibilité des coefficients de Lankford en fonction du rapport u de déformation latérale/axiale mesuré lors d'un essai uniaxial, de par sa définition. Plus on s'écarte du cas isotrope, plus la sensibilité est importante. Ces coefficients sont donc aussi très sensibles à la méthode de mesure des déformations par l'incertitude qu'elle apporte. Par exemple, dans le cas où la déformation latérale est déterminée par CID avec une erreur absolue de ± 0.003 (voir paragraphe suivant) et la déformation axiale par le déplacement de la traverse avec une erreur relative de 0.25%, l'erreur relative sur le rapport u est supérieure à 10% pour des déformations inférieures à 3%. Une telle erreur autour d'une valeur du coefficient u de -0.78 fait passer du simple au double la valeur du coefficient de Lankford. Les différences entre études doivent donc être relativisées, surtout lorsqu'on ne connaît pas la précision des mesures employées.

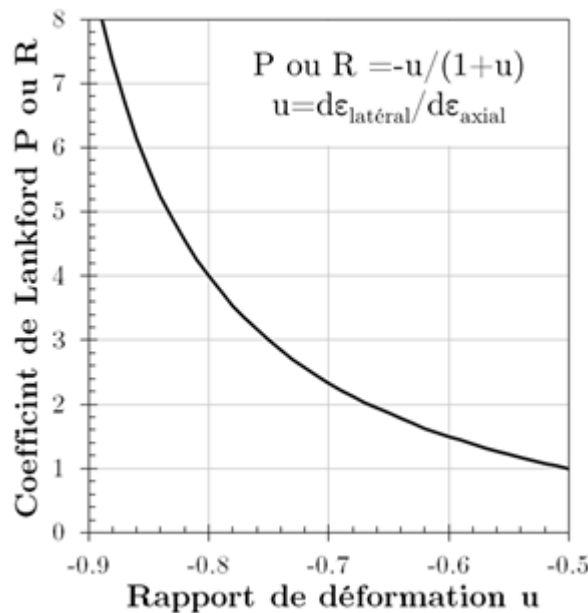


Figure III.43 : Variation du coefficient de Lankford en fonction du rapport de déformation (latérale/axiale) mesuré, d'après sa définition.

III.4.1.3 Incertitudes sur les essais et mesures

On traite ici des différentes incertitudes sur les essais et les mesures réalisés. Pour les essais de traction sur éprouvettes lisses, le sujet a déjà été discuté dans le chapitre précédent. Il s'agit des seuls essais où l'on connaît à la fois la réponse macroscopique (courbes force-déplacement) et les champs mécaniques locaux (en considérant un milieu continu homogène). Pour les autres essais, on ne connaît au mieux que la réponse macroscopique, au pire le seul chargement mécanique.

Essais de flexion quatre points

Dans le cas des essais de flexion quatre points on ne connaît que le chargement mécanique via la masse posée sur les appuis intérieurs. Celle-ci est placée à vitesse de déplacement imposée, en négligeant l'élasticité du fil qui la porte initialement. Le coefficient de frottement entre éprouvettes et montage (en Zircaloy-4 recristallisé et oxydé) n'a pas été mesuré et le frottement n'a pas été considéré dans les calculs. Or ce paramètre peut être de première importance pour la déflexion de l'éprouvette et donc la localisation de la déformation plastique si elle existe. L'absence de mesure de déflexion lors de ces essais ne permet pas de valider les calculs. Malgré cela, on accorde une bonne confiance à ces simulations car il s'agit d'essais quasi-uniaxiaux à faible déformation plastique (<2%), domaine pour lequel le modèle est performant. C'est d'autant plus le cas lorsque la simulation ne prévoit pas de plasticité (contrainte inférieure à 300 MPa).

Les simulations ont été réalisées pour des éprouvettes d'épaisseur 450 μm . Dans la suite, on analysera ces essais de flexion en calculant la contrainte nominale appliquée, avec la masse utilisée et l'épaisseur réelle, et on interpolera ou extrapolera les résultats des simulations (Figure III.17) pour cette contrainte.

Essais de flexion trois points

Pour la flexion trois points on connaît la réponse mécanique de l'éprouvette testée, avec le déplacement du poinçon et la force appliquée connus avec les incertitudes de la machine de traction. Le coefficient de frottement est encore une fois inconnu. Cependant, cet essai ne sert en réalité qu'à observer et quantifier la fragilisation de languette. La force maximale de pliage d'une languette est rapportée à une valeur standard en l'absence de fragilisation. La chute de force est associée à une profondeur de fragilisation. Ce qu'il manque le plus est une estimation fiable de la reproductibilité d'un tel essai. Sans fragilisation (observée après immersion), on ne dispose que de deux essais dans chaque direction (L et T) pour évaluer la reproductibilité, estimée alors à 2% d'erreur relative sur la contrainte maximale appliquée.

Mesures par corrélation d'images

Le suivi des déformations locales par corrélation d'images digitales est une technique de mesure sans contact, particulièrement adaptée aux essais de traction réalisés sur éprouvettes plates. La précision théorique de la technique a été discutée par Le Saux notamment, qui estime que les déformations sont connues à ± 0.01 (Le Saux 2008). Le principe de cette méthode consiste à suivre la position d'un domaine de corrélation (DC) au sein d'un domaine de recherche (DR) par comparaison du contraste local.

Avec les essais sur éprouvettes lisses réalisés dans cette étude et suivis par CID, il est possible d'estimer expérimentalement l'erreur de la mesure. Pour cela on compare les déformations plastiques axiales obtenues à partir du déplacement de la traverse à celles mesurées par CID. Les évolutions temporelles des deux déformations plastiques axiales pour les deux essais de traction lisses suivis sont données en Figure III.44. Le départ de l'essai et celui du film étant différés, un recalage par simple translation a été effectué. Les déformations totales issues de CorrelmanuV ont été transformées en déformations plastiques

à l'aide des courbes de traction expérimentales. On observe alors un faible écart entre les deux mesures, de l'ordre de ± 0.003 .

Ponctuellement (à seulement trois reprises pour l'essai en sens L), des écarts d'environ 0.015 ont été observés, dus à une mauvaise détermination de la position d'un domaine de corrélation. On rappelle que, pour ces essais, l'état de surface initial a été utilisé, alors que l'application d'un mouchetis a été réalisée pour les essais sur éprouvettes entaillées. On remarque de plus que du fait des jeux dans le montage de traction (mors à accroches rapides, non vissés aux lignes d'amarrage), un déplacement de corps rigide de 1 mm se fait lors de la mise en tension. Lors de ce mouvement, les déformations ont été calculées. Le fait qu'elles soient nulles, montre que la prise en compte d'un tel mouvement est bien gérée par CorrelmanuV.

Lors des essais de traction sur éprouvettes entaillées, on a typiquement une résolution de 0.23 pixel/ μm , presque deux fois inférieure à celles des essais sur éprouvettes lisses. Les DC utilisés ont une taille de 20x20 pixels² et la distance entre les centres de 2 DC voisins est de 25 pixels. La largeur de la zone analysée est d'environ 1.8 mm (la largeur du ligament est de 2 mm). Etant donnée la résolution des images et les écarts de mesure obtenus pour les essais uniaxiaux, on estime la précision de la CID sur éprouvettes entaillées à ± 0.006 (soit 2 fois celle des essais uniaxiaux). Cette précision est proche de la précision avancée par Le Saux.

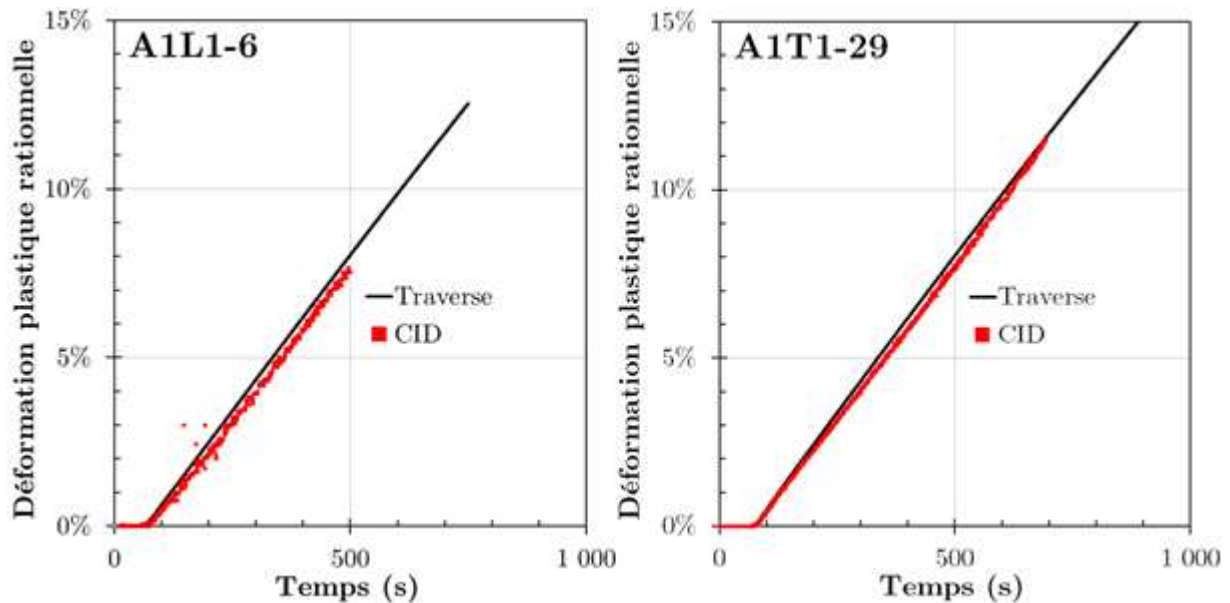


Figure III.44 : Comparaison des déformations plastiques rationnelles axiales calculées par le déplacement de la traverse (noir) et par CID (rouge), pour deux essais de traction à vitesse de déplacement imposée, dans la direction L (gauche) et la direction T (droite).

Mesures des contraintes résiduelles par DRX et fabrication des godets

De par la forme atypique des godets, la mesure des contraintes résiduelles par DRX soulève des interrogations. Plusieurs facteurs limitant existent rendant la technique peu précise ou impossible à réaliser : gradient de contrainte, non-planéité des surfaces, rugosité. La norme NF EN 15305 liste les conditions à respecter pour les deux premiers facteurs limitant (AFNOR 2009). En considérant que les constantes d'élasticité des plans réticulaires considérés sont les mêmes que les constantes macroscopiques, il faut que le gradient de contrainte dans l'épaisseur respecte la relation suivante :

$$\frac{\partial \sigma}{\partial Z} < \frac{1}{z} \frac{1 + \nu}{E} \frac{1}{500} \quad \text{Eq. III.18}$$

Avec z la profondeur de pénétration des rayons X (estimé à $3 \mu\text{m}$), E le module d'Young, ν le coefficient de Poisson. Il faut donc que le gradient de contrainte soit inférieur à $48 \text{ MPa} \cdot \mu\text{m}^{-1}$. D'après les calculs, la variation maximale de contrainte entre peau interne et peau externe est de 1000 MPa et elle quasi linéaire avec la position dans l'épaisseur. Ainsi, le gradient ne dépasse pas $3 \text{ MPa} \cdot \mu\text{m}^{-1}$, très inférieur à la valeur limite recommandée.

Il faut également que la taille de la zone irradiée soit inférieure à 40% du rayon de courbure de la zone analysée. Le rayon de courbure sur le flan du godet est compris entre le rayon du poinçon utilisé et le rayon du trou dans la matrice, à savoir 18.5 mm . Le faisceau incident de rayons X est focalisé et délimité par un collimateur de diamètre 1 mm . Même avec l'étalement du faisceau sur la surface de l'échantillon dû à l'inclinaison, la taille de la zone analysée est très inférieure à 6 mm . Là encore, il n'y a pas de limitation à l'utilisation des DRX.

Reste la question de la rugosité. Celle-ci n'est pas abordée dans les recommandations de la norme citée précédemment, il n'y a pas de critère précis. La distance inter-réticulaire avant emboutissage a été mesurée sur une portion du feuillard dont la rugosité a été mesurée à $0.3 \mu\text{m}$. L'état de surface du godet après emboutissage est dégradé par rapport à la tôle initiale. Cependant, la rugosité n'a pas été mesurée et son influence sur les mesures reste inconnue.

La reproductibilité de la mesure a été testée en réalisant deux mesures (non successives dans le temps) de la contrainte circonférentielle, à un même endroit de la troisième génératrice ($\vartheta=90^\circ$, direction L), à environ 10 mm du sommet. Des valeurs égales à 357.1 MPa et 354.7 MPa ont été obtenues, montrant ainsi la bonne reproductibilité de la technique ($<1\%$).

Cette bonne reproductibilité ne peut donc expliquer les différences de contraintes observées entre la génératrice n°3 et la génératrice n°1, diamétralement opposées (Figure III.28). Ces écarts ne peuvent être imputés qu'à la fabrication du godet, et notamment aux « accidents » dus à l'imprécision de l'emboutissage : certaines parties du godet ont été emprisonnées plus que d'autres dans le serre-flan, créant de fortes différences d'allongement et donc de contrainte. Si ces accidents étaient seulement causés par l'anisotropie du matériau, une symétrie orthotrope devrait être respectée mais ce n'est pas le cas.. Cela illustre la grande incertitude de la distribution des contraintes dans les godets et de leurs mesures. On peut espérer que cette grande variabilité soit absente ou tout du moins fortement réduite dans le cas des godets à avalements partiels. Malheureusement, du fait de leur géométrie, les contraintes résiduelles dans ces types de godet n'ont pas été mesurées car l'accès aurait été limité à la collerette ou au fond du godet pour des avalements de 40% ou 60%.

Mesures des contraintes résiduelles par découpe et ouverture d'anneaux

Initialement la méthode décrite par Timoshenko a été utilisée (Timoshenko 1969). Elle suppose l'élasticité linéaire isotrope de l'anneau, ainsi qu'une évolution linéaire de la contrainte circonférentielle, de $-\sigma_0$ à σ_0 , entre le rayon intérieur et le rayon extérieur. Une formule simple reliant l'ouverture de l'anneau à la contrainte σ_0 est donnée, dans le cas des petites ouvertures. Sept anneaux ont été prélevés, mesurés précisément, ouverts et remesurés. Les ouvertures mesurées sont comprises entre 47% et 150% du rayon initial de l'anneau. On comprend bien que l'approximation des petits angles n'est plus valable. Pour cela, la méthode avec calcul par éléments finis, décrite précédemment, a été utilisée.

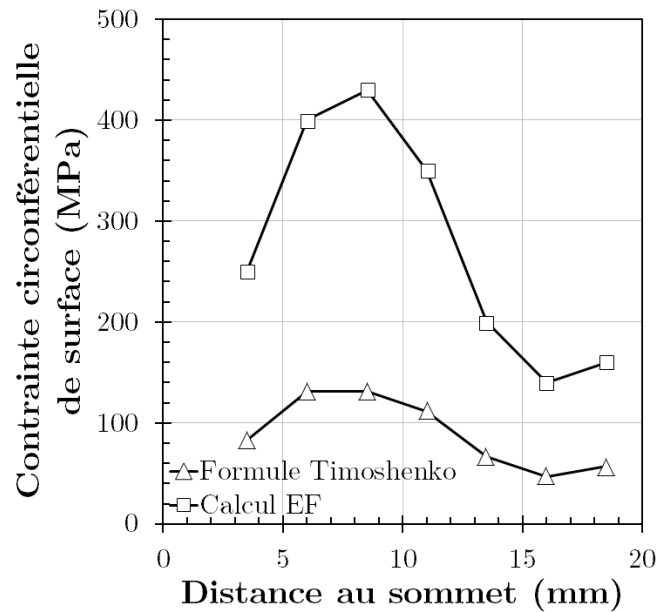


Figure III.45 : Comparaison des prédictions de la contrainte circonférentielle en surface externe par la formule de Timoshenko (triangles) et les calculs éléments finis (carrés).

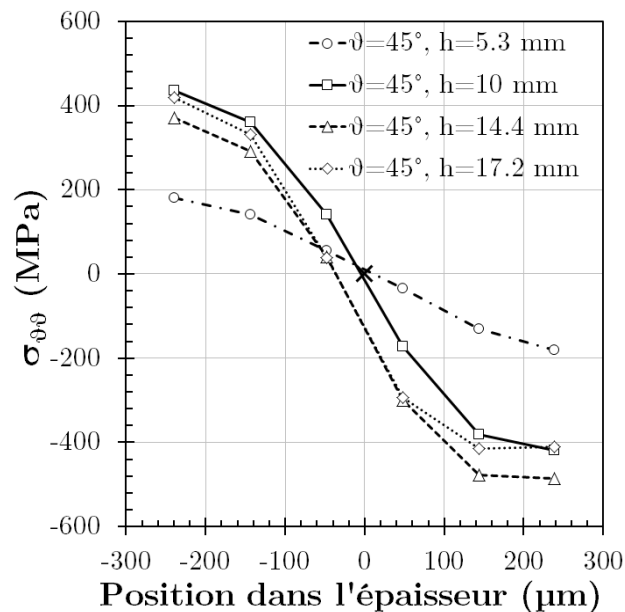


Figure III.46 : Evolution de la contrainte circonférentielle calculée à travers l'épaisseur du godet 100%, à un angle de 45° , pour une hauteur par rapport au fond du godet de 5.3 mm (ronds), 10 mm (carrés), 14.4 mm (triangles) et 17.2 mm (losanges).

Les résultats des deux approches sont comparés sur la Figure III.45. Les prédictions par calcul sont plus de trois fois supérieures à la formule analytique. Cela ne dit pas que la méthode par calcul est meilleure, mais au moins qu'une telle approche est nécessaire.

La détermination des contraintes résiduelles repose sur plusieurs hypothèses. On suppose tout d'abord que la découpe des anneaux dans la partie cylindrique ne modifie pas la contrainte circonférentielle. La découpe des anneaux ne relaxerait que la contrainte axiale dans les godets. Pour vérifier cette hypothèse, il aurait fallu mesurer précisément le godet avant découpe (forme en tonneau) pour connaître le rayon de courbure en fonction de la hauteur. Si le rayon de l'anneau est le même que celui de la portion du godet d'où il

provient, alors l'hypothèse peut être faite. De telles mesures n'ont pas été entreprises avant la découpe et l'hypothèse ne peut donc pas être vérifiée.

Une autre hypothèse de la méthode est la linéarité de la contrainte dans l'épaisseur de l'anneau entre deux valeurs opposées. On a vu précédemment que le sommet du godet 100% est en traction circonférentielle en peau interne et en peau externe. En revanche dans le reste de la partie cylindrique, la peau interne est globalement en compression et la peau externe en traction. La Figure III.46 montre différents profils de contrainte circonférentielle dans l'épaisseur du godet, prédit par le calcul, pour un angle de 45° (à mi-chemin des génératrices L et T), pour différentes hauteurs. Si l'on se fie au calcul, supposer une évolution linéaire dans l'épaisseur n'est donc pas absurde.

Enfin, les deux méthodes testées supposent une symétrie cylindrique de la contrainte dans l'anneau. Or il est clair que cela n'est pas le cas, tant au niveau des prédictions du modèle, que des mesures par DRX (Figure III.28). L'hypothèse d'une contrainte uniforme en surface des anneaux est donc très forte. L'effet d'un gradient de contrainte sur l'ouverture des anneaux n'est pas intuitif. On peut tout de même supposer que cette méthode va donner une estimation de la contrainte moyenne en surface autour de l'axe du godet.

III.4.2 Représentativité physique du modèle

Dans ce paragraphe, les conséquences des simplifications du formalisme et de l'identification du modèle sont étudiées en comparant différentes propriétés mécaniques. Le but est de vérifier que le modèle ne prédise pas un comportement non physique en dehors du domaine d'identification de ses paramètres. Pour cela, une estimation de la surface de charge réelle est confrontée à celle de la contrainte de Hill identifiée, le comportement simulé de la direction normale du feuillard est analysé et l'écroûissage à forte déformation est discuté.

III.4.2.1 Surface de charge

Les limites d'élasticité ne sont mesurées expérimentalement que dans deux directions (L et T) du feuillard. Leur rapport, respecté par la simulation, constitue une des relations liant les coefficients de Hill. Avec en plus un coefficient de Lankford, la détermination de ces coefficients est complète. Mais cela n'assure pas que l'anisotropie entre les directions L et T sera bien simulée. On utilise alors une méthode de détermination expérimentale de la surface de charge, proposée par Wheeler pour les alliages de zirconium, par des mesures de duretés Knoop sur les différents plans du feuillard (Wheeler 1966).

Cette méthode suppose que la dureté Knoop, sur un plan et dans une direction définie, est représentative du tenseur des contraintes déviatoriques, dont le rapport entre composantes est imposé par la géométrie de l'indenteur. Pour un tel indenteur, la longueur l est environ 7 fois plus grande que la largeur w et environ 30 fois plus grande que la profondeur h . Il propose donc de considérer que la direction de l'écoulement pendant l'indentation est telle que la contrainte déviatorique dans la direction de la largeur w est 7 fois plus importante que dans la direction de la longueur l .

$$\begin{cases} \underline{\underline{S}} = \underline{\underline{\sigma}} - \frac{1}{3} Tr(\underline{\underline{\sigma}}) \underline{\underline{I}} \\ \frac{S_w}{S_l} = \alpha = 7 \end{cases} \quad \text{Eq. III.19}$$

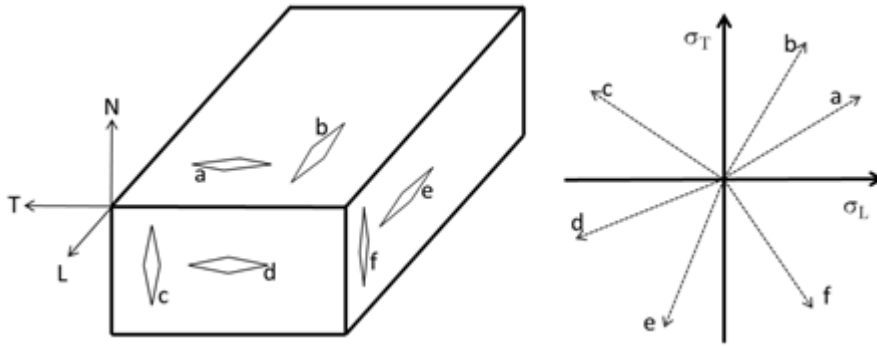


Figure III.47 : Indentations Knoop sur les différents plans du feillard pour la détermination de la surface de charge (gauche) et directions correspondantes dans le plan des contraintes du plan LT (droite).

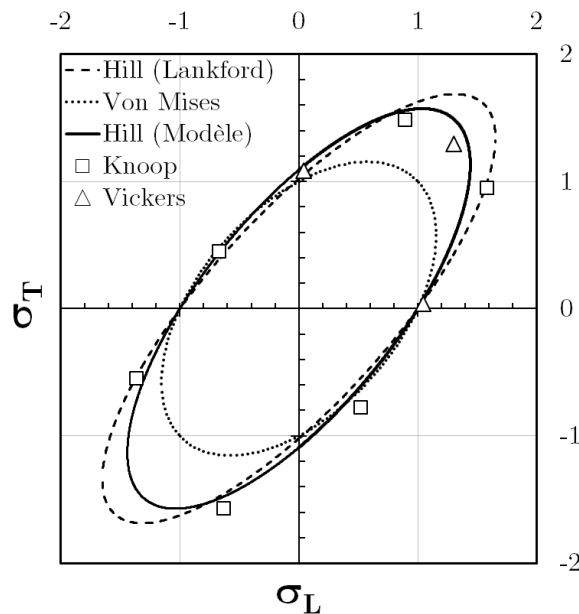


Figure III.48 : Surfaces de charge issues de l'utilisation de la contrainte de Hill avec les coefficients du modèle identifié (trait continu) et les coefficients issus des coefficients de Lankford (grands pointillés). Comparaison avec le critère de Von Mises (petits pointillés) et les estimations provenant des duretés Knoop (carrés) et Vickers (triangles).

La justification de la valeur du ratio α provient de comparaisons entre mesures et surfaces réelles. En réalisant les duretés Knoop sur les trois plans d'orthotropie du feillard, dans les deux directions principales pour chaque plan (Figure III.47), on peut reconstruire une surface de charge dans le repère des contraintes (N, T, L) et par projection ($\sigma_N=0$) sur le plan LT.

Par exemple, pour l'indentation « a », sur le plan LT, dans la direction T, on a

$$\frac{S_L}{S_T} = \alpha = 7 \quad \text{Eq. III.20}$$

En se plaçant sur le plan $\sigma_N=0$ (projection), les contraintes déviatoriques s'expriment simplement en fonction des deux autres composantes :

$$\begin{cases} S_L = \sigma_L - \frac{1}{3} Tr(\underline{\underline{\sigma}}) = \frac{1}{3}(2\sigma_L - \sigma_T) \\ S_T = \sigma_T - \frac{1}{3} Tr(\underline{\underline{\sigma}}) = \frac{1}{3}(2\sigma_T - \sigma_L) \end{cases} \quad \text{Eq. III.21}$$

On peut donc déterminer le rapport des contraintes dans le plan LT et ainsi déterminer la direction par :

$$\sigma_L = \frac{2\alpha + 1}{2 + \alpha} \sigma_T \quad \text{Eq. III.22}$$

La même démarche est appliquée pour les 6 indentations mentionnées. Les six directions obtenues sont montrées sur la Figure III.47.

On suppose alors que la dureté Knoop est proportionnelle à la norme du tenseur déviatorique. Comme les contraintes obtenues seront normalisées dans la suite, on considère l'égalité :

$$HK0.1 = \|\underline{\underline{S}}\| = \left\| \begin{pmatrix} \frac{1}{3}(\sigma_T + \sigma_L) \\ \frac{1}{3}(2\sigma_T - \sigma_L) \\ \frac{1}{3}(2\sigma_L - \sigma_T) \end{pmatrix} \right\| = |\sigma_L| \sqrt{\frac{2}{3}(1 + v^2 - v)} \quad \text{Eq. III.23}$$

Avec v le rapport de la contrainte dans le sens T sur la contrainte dans le sens L. On peut alors placer les points (σ_L, σ_T) correspondant sur le plan des contraintes. L'ellipse ajustant au mieux les 6 points est déterminée et la valeur de σ_L en $\sigma_T=0$ est utilisée pour normaliser les données. On compare alors à la contrainte de Von Mises et la contrainte de Hill identifiée.

Cette technique a été utilisée dans d'autres études, pour observer l'influence de l'irradiation sur l'anisotropie du Zircaloy-2 recristallisé (Nakatsuka 1987) ou celle d'un recuit/recristallisation sur du Zr-1%Nb (Farhat 2008). Lucas l'a également utilisée pour mesurer les variations d'anisotropie avec la température sur une plaque épaisse de Zircaloy-4 sans traitement thermique après laminage (Lucas 1975). Des mesures de limites d'élasticité en compression selon les trois axes de la plaque à 25 °C ont montré, qu'après normalisation des mesures Knoop par rapport à la limite d'élasticité d'une direction, les deux autres limites d'élasticité (différentes de 30% expérimentalement) étaient prédites avec une erreur de moins de 2%.

On applique alors la méthode à cette étude, en l'étendant également au cas des mesures de dureté Vickers sur les trois plans TL, LN et NT, pour lesquels les directions des diagonales correspondent aux directions du feuillard. Pour cela, au lieu de prendre un rapport des contraintes déviatoriques α égal à 7, on utilise le rapport des diagonales des empreintes mesurées. La seule justification pour ce choix est la correspondance entre α et le rapport de la largeur sur la longueur des empreintes Knoop. Le même coefficient de normalisation que pour la dureté Knoop est utilisé. Cela permet de rajouter trois points à la surface de charge du plan (σ_L, σ_T) , deux sur les axes et un à 45°.

La comparaison entre la surface de charge simulée par la contrainte de Hill de notre modèle et les données issues de la dureté par la méthode de Wheeler est faite sur la Figure III.48. Les données issues de la dureté Vickers y sont ajoutées, tout comme la surface prédite par un critère de Von Mises. Cette méthode permet de bien retrouver les limites d'élasticité du matériau, $\sigma_L \approx 1$ en $\sigma_T=0$, et $\sigma_T \approx 1.1$ en $\sigma_L=0$. Si l'on se fie à cette méthode, la surface de charge réelle s'écarte significativement de la contrainte de Von Mises, et l'accord entre modèle et expérience est plutôt bon.

Sur ce graphique a également été rajoutée la surface de charge issue de la contrainte de Hill, avec les coefficients de Hill identifiés uniquement avec les coefficients de Lankford au paragraphe III.2.2, à savoir $(H_N, H_T, H_L)=(0.78, 0.22, 0.18)$. Avec ce jeu, la différence de limite d'élasticité est sous-estimée entre les deux directions du plan. L'accord avec les points de la dureté Knoop est assez bon. En revanche, l'écart avec le point correspondant à la dureté Vickers à 45° est plus élevé que ce que donne le modèle identifié qui semble donc meilleur.

Il aurait été intéressant de réaliser des essais de traction pour des directions comprises entre L et T afin de pouvoir déterminer les coefficients de Hill sur la seule base des limites d'élasticité. Si l'on néglige le cisaillement hors plan, deux directions supplémentaires suffisent pour identifier les trois coefficients de Hill en traction et celui de cisaillement dans le plan.. Une relation similaire à l'Eq. III.11 peut alors être établie, entre limites d'élasticité et coefficient de Hill.

$$\begin{aligned} \sigma_{45^\circ}^*(\varepsilon^p = 0.2\%) &= \sigma_L^*(\varepsilon^p = 0.2\%) \\ \rightarrow \frac{1}{2}\sqrt{H_T + H_L + 2H_{TL}} &= \frac{R_{p0.2\%}^L}{R_{p0.2\%}^{45^\circ}} \end{aligned} \quad \text{Eq. III.24}$$

On a donc mis en évidence que, malgré les simplifications apportées et le manque d'essais dans des directions intermédiaires, les coefficients de Hill identifiés permettent une bonne représentation de la surface de charge du matériau avant écrouissage.

III.4.2.2 Comportement dans la direction normale

Le modèle de comportement mécanique a été identifié à partir d'essais uniaxiaux dans le plan LT. Même si dans l'ensemble des essais réalisés la direction normale n'est pas directement sollicitée, vérifier la réponse du modèle dans cette direction constitue une partie de l'évaluation des fondements physiques du modèle. Avec le formalisme choisi, la limite élastique selon N est évaluée à partir d'une relation identique à l'Eq. III.11.

$$\sigma_N^*(\varepsilon^p = 0.2\%) = \sigma_T^*(\varepsilon^p = 0.2\%) \rightarrow \sqrt{H_T + H_R} R_{p0.2\%}^N = \sqrt{H_N + H_R} R_{p0.2\%}^T \quad \text{Eq. III.25}$$

De la formule de l'Eq. III.25, il découle que la limite d'élasticité selon N est 28% plus importante que celle correspondant à la direction T.

Cahoon a établi une relation entre mesures de dureté et limite d'élasticité, vérifiée pour des alliages de cuivre, d'aluminium et des aciers, travaillés à froid (Cahoon 1971) :

$$R_{p0.2\%} = \left(\frac{H}{3}\right) 0.1^n \quad \text{Eq. III.26}$$

Avec H la dureté mesurée à partir d'un indent réalisé par un indenteur pyramidal et n l'exposant (ou taux) d'écrouissage de la loi d'Hollomon. La viscosité n'est pas prise en compte. Cette relation est utilisée pour estimer les rapports de limites d'élasticité dans les différentes directions du feuillard à partir des mesures de dureté présentées dans le chapitre précédent. Elle a tout d'abord été testée sur les directions T et L. Les taux d'écrouissage moyens dans ces deux directions ont été déterminés par le fit des courbes de traction avec une loi puissance de type Hollomon. On trouve alors $n^L=13.4 \cdot 10^{-2}$ et $n^T=9.4 \cdot 10^{-2}$. Avec ces valeurs, la relation de Cahoon prédit que la limite d'élasticité de la direction L est égale à 88.7% de celle de la direction T. Expérimentalement, le rapport vaut 89.8%. Pour estimer la limite d'élasticité de la direction N, il faudrait une idée du taux d'écrouissage de cette direction. Avec les simplifications apportées au formalisme du modèle pour la contrainte cinématique, l'écrouissage simulé de la direction N est identique à celui de la direction L. En

supposant que c'est le cas dans la réalité, la relation Eq. III.26 prédit une limite d'élasticité selon N de 12% supérieure à celle de T. De ce point de vue, le modèle la surestimerait.

Les données expérimentales sur le comportement des tôles laminées dans la direction normale sont peu nombreuses. Ballinger a déterminé les propriétés mécaniques du Zircaloy-2 détendu dans les trois directions de la tôle (Ballinger 1981). Les variations avec la fraction f de pôle associé au plan de base dans la direction de sollicitation sont présentées en Figure III.42. En supposant que ces variations sont applicables au cas du Zircaloy-4 recristallisé, on peut estimer les propriétés mécaniques de la direction N. Pour cela on extrapole les variations observées aux facteurs de Kearns des différentes directions du feuillard de l'étude, puis on normalise par les propriétés mécaniques de la direction T. Avec cette méthode, on évalue $R_{p0.2}^N$ à 117% de $R_{p0.2}^T$, estimation située entre celle utilisant la méthode de la dureté et la prédiction du modèle. Pour la direction L, on trouve un $R_{p0.2}^L$ à 93% de $R_{p0.2}^T$, alors qu'expérimentalement on a 89%. La même approche est adoptée pour les taux d'écroutissage n , même si des différences importantes existent entre les deux états métallurgiques. En fixant la valeur de $n^T=9.4 \cdot 10^{-2}$ (pour $f=f_T=0.25$), les tendances mises en évidence par Ballinger prédisent $n^L=12.3 \cdot 10^{-2}$ (pour $f=f_L=0.14$), valeur assez proche de celle déterminée expérimentalement ($13.4 \cdot 10^{-2}$). Pour la direction N, le taux d'écroutissage estimé est $n^N=13.7 \cdot 10^{-2}$, relativement proche de celui de la direction L. Si l'on se fie à cette méthode, ainsi qu'à celle de la dureté, on peut supposer que les paramètres du modèle, identifiés par des essais dans le plan LT, mènent à une estimation correcte du comportement dans la direction normale du feuillard.

III.4.2.3 Ecroutissage à forte déformation

La base d'identification du modèle étant constituée d'essais de traction uniaxiale, les déformations utilisées ne dépassent pas l'allongement réparti, compris entre 8% et 14% selon la direction et les vitesses de chargement. A l'allongement réparti, la contrainte conventionnelle atteint son maximum, avec une dérivée par rapport à la déformation nulle. Les écroutissages (isotrope et cinématique) ont en première approche une forme exponentielle inverse en fonction de la déformation, qui les fait tendre vers une valeur asymptotique après un régime transitoire. Si les paramètres identifiés du modèle sont tels que les écroutissages « saturent » à partir de $x\%$ de déformation locale, toute déformation supplémentaire se fait sans écroutissage, d'où une sous-estimation des forces appliquées dans le cas d'essais à très grande déformation. Si l'on considère l'équation d'évolution de l'écroutissage isotrope (Eq. III.7) et les valeurs des coefficients identifiés du Tableau III.3, on constate que cet écroutissage atteint 95% de sa valeur maximale pour une déformation équivalente de 22.6% (99% à 34.8%). On rappelle également que pour une sollicitation uniaxiale dans le sens T, la composante de la contrainte cinématique dans la même direction est nulle. Pour un essai dans la direction L, l'intégration des équations de comportement montre que la composante L de la contrainte cinématique atteint 95% de sa valeur maximale à 10% de déformation plastique équivalente (99% à 16.2%). Donc pour un essai uniaxial, toute déformation locale au-delà de 35% se fait sans apport supplémentaire de contrainte. Pour des sollicitations multiaxées, l'estimation de la contrainte cinématique est plus compliquée mais comme elle a été introduite pour combler les différences d'écroutissage entre les directions L et T, il est raisonnable de penser que son évolution est semblable à celle qui vient d'être décrite. Lors de l'emboutissage du godet, les déformations dépassent 80%, on comprend pourquoi la force d'emboutissage est sous-estimée. Cela est également le cas pour la simulation du pliage de languettes par flexion trois points, essai quasi uniaxial mais qui permet d'atteindre de très fortes déformations plastiques locales.

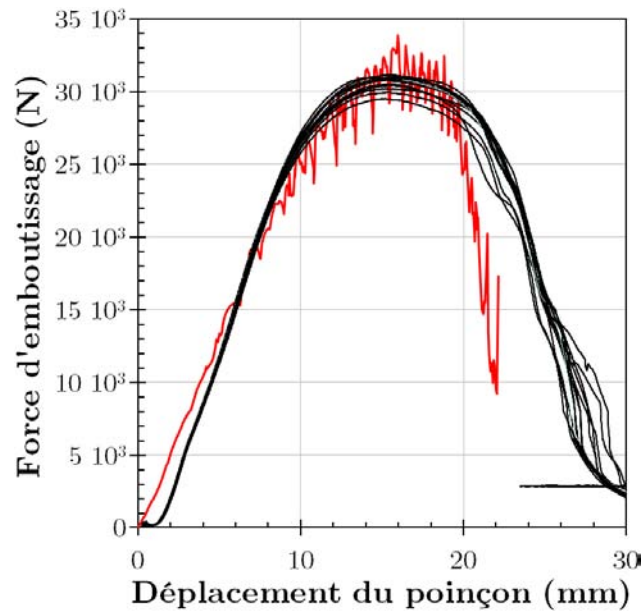


Figure III.49 : Courbes d'emboutissage réelles (noire) et simulée (rouge) pour un modèle plastique isotrope à écrouissage linéaire de module 2 GPa. Calcul réalisé sur une portion de godet.

Tableau III.6 : Coefficients de Hill déterminés à partir de la surface de charge.

Ref.	Mat.	Etat	Forme	T (°C)	H _N (H _r)	H _T (H _θ)	H _L (H _z)	R _{p0.2} ^L /R _{p0.2} ^R
1)	Zy-4	RX	Tube	20	0.63	0.36	0.077	84.1%
1)	Zy-4	RX	Tube	20	0.64	0.36	0.067	84.1%
2)	Zy-4	RX	Plaque	20	0.66	0.34	0.18	89.8%
3)	Zy-4	RX	Tube	350	0.666	0.333	0.264	96.4%
4)	Zy-2	SR	Tube	350	0.732	0.268	0.246	98.9%

1) (Geyer 1999), essais de traction - pression interne

2) Cette étude

3) (Delobelle 1996), essais de traction - pression interne - torsion

4) (Nakatsuka 1982), essais de traction - pression interne

Tableau III.7 : Coefficients de Hill déterminés à partir des coefficients de déformation de Lankford.

Ref.	Mat.	Etat	Forme	T (°C)	H _N (H _r)	H _T (H _θ)	H _L (H _z)	R _{p0.2} ^L /R _{p0.2} ^R
a)*	Zy-4	RX	Plaque	20	0.795	0.205	0.214	100.4%
b)	Zy-4	RX	Plaque	20	0.818	0.182	0.248	103.3%
c)*	Zy-2	RX	Plaque	350	0.806	0.194	0.716	123.4%
c)*	Zy-2	SR	Plaque	350	0.781	0.219	0.402	108.8%
d)	Zy-4	SR	Tube	20	0.580	0.420	0.408	99.1%
e)	Zy-4	RX	Plaque	20	0.78	0.22	0.18	98.0%

a) (Mahmood 1989)

b) (Grange 2000)

c) (Une 1979b)

d) (Le Saux 2008)

e) Cette étude

* Coefficients recalculés à partir des rapports de déformation

Le modèle avec les paramètres identifiés n'est donc pas apte à représenter des essais à forte déformation plastique. Etant donné l'utilisation principale visée initialement (essais de traction à faibles déformations plastiques), un écart de 30% sur les efforts à appliquer dans le domaine des déformations plastiques élevées reste malgré tout un bon résultat.

Plusieurs calculs d'emboutissage sur des portions de godets ont été réalisés avec un modèle de comportement isotrope plastique linéaire ($\sigma = \sigma_0 + H \cdot \varepsilon_p$), afin de déterminer le module d'écrouissage H qui permet de retrouver la bonne force d'emboutissage. La limite d'élasticité a été choisie égale à 450 MPa, valeur dans la direction T pour les essais de traction uniaxiale à la plus grande vitesse de déformation (10^{-2} s^{-1}). Un module H de 2 GPa a été obtenu, et la courbe d'emboutissage correspondante est donnée en Figure III.49. Avec un tel module, lors d'un essai de traction, la contrainte rationnelle augmenterait de 200 MPa sur 10% de déformation plastique. En réalité, un écrouissage maximal de 70 MPa dans la direction T est observé. Un tel modèle ne peut donc être retenu. En revanche, cela illustre la mauvaise prise en compte de l'écrouissage à forte déformation. Une identification sur la base de l'ensemble des essais réalisés (flexion 3 points et emboutissage inclus) pourrait être mise en place mais nécessite une boucle d'optimisation beaucoup plus lourde que celle que nous avons utilisée. On remarque également sur la Figure III.49 que, malgré la bonne représentation de l'effort d'emboutissage obtenue expérimentalement par le modèle plastique isotrope, le déplacement final du poinçon reste sous-estimé. Cela confirmant l'idée selon laquelle la hauteur du godet est étroitement liée aux effets d'anisotropie, par l'étirement de directions plus propices à la déformation, menant entre autre aux cornes d'emboutissage.

III.4.2.4 Comparaison à d'autres modèles macroscopiques

Plusieurs auteurs ont adopté un point de vue macroscopique pour décrire le comportement et l'anisotropie des alliages de zirconium. Bien souvent, la surface de charge est décrite à l'aide de la contrainte équivalente de Hill (ou ses dérivées) plutôt que celle de Von Mises. Les coefficients sont déterminés de deux façons, avec un but différent : certains déterminent expérimentalement la surface de charge par des essais multiaxés et trouvent les paramètres de la meilleure ellipse (Tableau III.6), et d'autres se servent des coefficients de Lankford expérimentaux (Tableau III.7) comme cela avait été fait pour l'identification du premier jeu de coefficients de Hill. Cette dernière méthode est privilégiée dans les études où l'accent est mis sur la simulation de la déformation, au détriment de la contrainte, notamment quand un modèle d'endommagement ductile est rajouté et/ou quand un écrouissage purement isotrope est considéré (Prat 1998; Grange 2000; Le Saux 2008).

Le Tableau III.6 et le Tableau III.7 regroupent les différentes estimations des coefficients de Hill selon la méthode utilisée, ainsi que le rapport des limites d'élasticité axiale z (ou de laminage, L) sur circonférentielle ϑ (ou transverse, T). On remarque que, comme ce fut le cas initialement dans cette étude, une détermination des coefficients de Hill à l'aide des seuls rapports de déformation mène à une mauvaise représentation de l'anisotropie de limite d'élasticité, en surestimant la limite d'élasticité dans la direction L (z). Le coefficient de Hill dans la direction radiale ou normale est alors supérieur à 0.78, à une exception près. Quand la surface de charge est déterminée expérimentalement, ce coefficient est plus faible, inférieur à 0.67 pour le Zircaloy-4 recristallisé.

Dans le cadre de cette étude, les coefficients de Hill ont été déterminés par une méthode intermédiaire. Ne disposant des limites d'élasticité que dans deux directions, un rapport de déformation est également utilisé (Eq. III.9 et Eq. III.11). On trouve lors des coefficients (0.66, 0.34, 0.18) plus proches de ceux issus des études de surface de charge (notamment ceux de Geyer et Delobelle) que l'on peut imaginer plus proche de la réalité. D'ailleurs le bon accord entre surface simulée de charge théorique et celle déterminé par dureté va dans ce sens.

Une des conséquences de ce choix est la moins bonne représentation de l'anisotropie plastique et de l'obligation d'introduire une anisotropie de l'érouissage pour combler cela. Le modèle de Delobelle introduit en plus de la contrainte équivalente de Hill, une contrainte cinématique dont l'évolution est régie par trois tenseurs d'ordre 4, un pour l'érouissage linéaire, un pour la restauration statique et un pour la restauration dynamique (Delobelle 1996). Pour les identifier et leur attribuer un sens expérimental, il dispose d'essais monotones et cycliques sur tubes avec des chargements composés de traction, torsion et pression interne.

Allais a modélisé le comportement d'une tôle de Zr702 dans le plan LT en utilisant une contrainte de Hill et une fonction d'anisotropie qui pondère l'érouissage « isotrope » avec la direction (Allais 1996). Pour identifier son modèle, il ne réalise que des essais de traction sur éprouvettes lisses prélevées avec différents angles dans la tôle. La contrainte de Hill est identifiée à partir des limites d'élasticité et d'un coefficient de Lankford. La fonction d'anisotropie est déterminée par l'ajustement des courbes de traction simulées et expérimentales. L'identification est simple et les écarts sur les courbes de traction sont relativement faibles (<5%) pour toutes les directions testées (0°=L, 30°, 45°, 60° et 90°). En revanche, l'anisotropie de déformation plastique est moins bien prédite. Le coefficient de Lankford utilisé pour l'identification (90°) est bien simulé, comme celui à 60°. Au-delà, un écart de 50% sur ces rapports est observé dans les autres directions.

Le formalisme choisi dans cette étude a permis de trouver un compromis entre les différentes méthodes : des coefficients de Hill permettant une bonne représentation de la surface de charge et l'introduction d'une contrainte cinématique pour simuler au mieux l'anisotropie plastique. Le caractère non physique de cette contrainte cinématique très anisotrope sera discuté au paragraphe suivant. Le critère principal d'identification du modèle est avant tout le très bon accord sur les courbes de traction uniaxiale.

III.4.2.5 Nature des contraintes

Le formalisme initial du modèle permet de simuler un érouissage isotrope ainsi que la contrainte cinématique, avec prise en compte de la restauration dynamique et de la restauration statique. Les différentes simplifications apportées ont permis d'aboutir à un modèle macroscopique performant sur son domaine d'identification. Ces simplifications ont un impact sur le sens physique des contraintes mises en jeu : la contrainte cinématique X est réduite à un rôle de variable d'ajustement pour représenter les différences d'érouissage. Or cette contrainte est primordiale si l'on souhaite simuler des essais avec inversion de la direction d'écoulement. On se propose ici de discuter de sa part réelle dans les essais mécaniques.

Plusieurs études ont montré que la contrainte cinématique était le principal moteur de l'érouissage des alliages de zirconium. Pour mettre en évidence la contrainte cinématique, le mieux est de disposer d'essais cycliques pour inverser le signe de la vitesse de déformation plastique. Lors de l'établissement de son modèle de comportement de tubes en Zircaloy-4 recristallisé à 350°C, Delobelle a conclu de ses essais cycliques que l'érouissage cinématique ne varie que peu et a décidé de le considérer comme constant (Delobelle 1996). Prat a réalisé des essais de traction-compression sur tubes en Zircaloy-4 recristallisé à température ambiante, pour des cycles de déformation $\Delta\varepsilon/2$ (Prat 1998). A partir des courbes de cycles stabilisés, le paramètre β est introduit par :

$$\beta = \frac{M + R}{M} \quad \text{Eq. III.27}$$

Avec M la contrainte maximale de traction pendant le cycle et R la contrainte pour laquelle la plasticité apparaît pendant le chargement inversé. Dans le cas d'un écrouissage purement isotrope, les limites d'élasticité en traction et en compression sont opposées $R=-M$ et donc $\beta=0$. Dans le cas extrême où l'on re-plastifie dès la décharge amorcée, $R=M$ et $\beta=2$. Le paramètre β permet de mesurer la contrainte cinématique, définie comme la position du milieu du domaine élastique pendant un déchargement, $X \approx (M+R)/2 = \beta M/2$. Si β est supérieur à 1, la plastification en déchargement se fait alors que l'éprouvette est toujours en traction. Pour les différentes amplitudes de déformation testées $\Delta\varepsilon/2 = (0.4, 0.5, 0.7)\%$, Prat a mesuré les valeurs respectives β suivantes : (0.61, 0.77, 0.95). La part de contrainte cinématique est donc importante et croissante avec le niveau de déformation et pour des déformations plastiques supérieures à 1%, on peut s'attendre à observer l'effet Bauschinger lors d'essais de traction avec déchargement.

En supposant l'existence de cet effet, Geyer a appliqué une méthode de séparation de contrainte initialement proposée par Cotrell et modifiée notamment par Dickson (Dickson 1984) afin de déterminer la contrainte cinématique à partir d'essais de traction avec déchargements (Geyer 1999). Cette méthode consiste à séparer la contrainte macroscopique en une contrainte cinématique et une contrainte effective. Cette contrainte effective, elle-même somme d'une contrainte athermique et d'une contrainte visqueuse, est la contrainte nécessaire localement pour que les dislocations franchissent des obstacles. La contrainte cinématique traduit les interactions à longue distance (précipités, amas de dislocations, incompatibilités de déformation grain à grain,...). Lors d'un déchargement pendant un essai de traction, la réponse mécanique peut être séparée en trois domaines : une phase non linéaire correspondant à la chute de la contrainte visqueuse sensible à la vitesse de chargement, une partie élastique, et éventuellement une nouvelle partie non linéaire, signe de l'effet Bauschinger. Si l'on suppose que la contrainte cinématique n'a pas varié pendant la première phase non linéaire (pour un déchargement « rapide »), elle est déterminée par le milieu du domaine élastique. La méthode est facile à utiliser mais repose sur plusieurs hypothèses et la détermination du domaine d'élasticité est sujette aux incertitudes expérimentales (jeu dans le montage, précision des mesures).

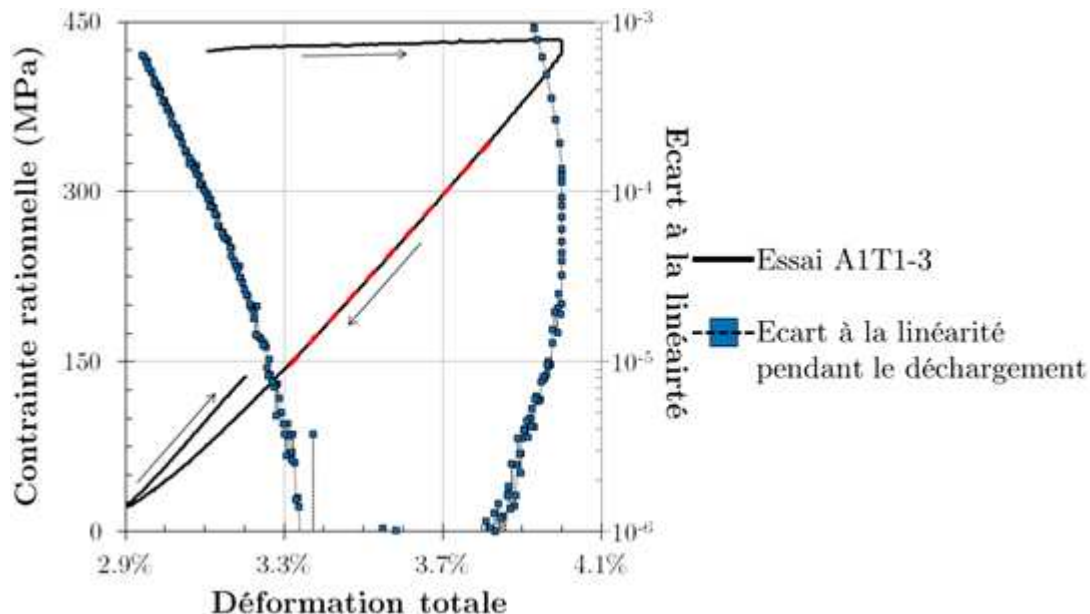


Figure III.50 : Détermination du domaine d'élasticité lors d'un déchargement pour l'essai A1T1-3, contrainte rationnelle (trait noir) et écart à la linéarité (carrés bleus), les pointillés rouges représentent la portion la plus linéaire du déchargement.

Geyer a donc utilisé cette technique pour déterminer la contrainte cinématique lors d'essais de traction axiale et circonférentielle sur des tubes de Zircaloy-4 recristallisé à température ambiante pour des vitesses de chargement comprises entre $2 \cdot 10^{-7} \text{ s}^{-1}$ et $2 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ (Geyer 1999). Il apparaît que la contrainte cinématique est à l'origine de l'écroutissage et représente plus de la moitié de la contrainte macroscopique. Onimus a appliqué la même technique au Zircaloy-4 recristallisé et M5, à 350°C , avec des conclusions comparables en ce qui concerne la part de la contrainte cinématique. (Onimus 2009).

Cette méthode a été utilisée dans la présente étude, sur un essai de traction à vitesse de déformation imposée de 10^{-3} s^{-1} , pour une éprouvette de sens T. Des déchargements sont effectués tous les pourcents de déformation totale, à la même vitesse. Chaque partie de la courbe de traction correspondant à un déchargement est analysée, comme cela est présenté à la Figure III.50. A partir de la détermination de la partie la plus linéaire du déchargement, un écart à la linéarité est calculé. Pour une valeur fixée de cet écart, on détermine une taille de domaine élastique et le milieu de ce domaine donne la contrainte cinématique. Pour des écarts de 10^{-4} , 10^{-5} et 10^{-6} , la position du milieu du domaine élastique, et donc la contrainte cinématique, ne varie pas. Seule la décomposition de la contrainte effective est affectée par un changement d'écart à la linéarité.

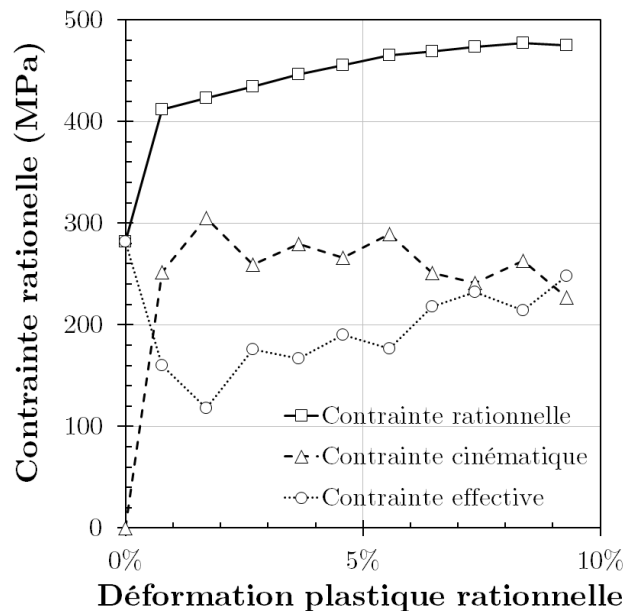


Figure III.51 : Décomposition de la contrainte macroscopique en contrainte cinématique et contrainte effective sur l'ensemble de l'essai de traction à vitesse de déformation imposée avec décharges.

La décomposition pour tous les déchargements permet d'accéder à l'évolution de la contrainte cinématique en fonction de la déformation plastique rationnelle (Figure III.51). Il apparaît que la contrainte cinématique représente plus de la moitié de la contrainte macroscopique, qu'elle augmente très rapidement (elle atteint son maximum en 2% de déformation plastique). La chute de contrainte effective serait due au décrochage des dislocations préexistantes et ancrées sur les atomes d'oxygène en solution. La nature uniquement isotrope de la contrainte lors d'un essai uniaxial en sens T, qui découle des simplifications du formalisme, n'a donc pas de justification physique. L'analyse des valeurs de contrainte cinématique données par le modèle n'a pas de sens, et le modèle n'est pas apte à représenter un essai avec inversion de la vitesse d'écoulement.

Parmi les simulations d'essais réalisées, seul l'emboutissage pourrait être affecté par une mauvaise prise en charge de la contrainte cinématique. En effet, lors du déchargement des

outils, au sommet du godet et en peau interne, la contrainte circonférentielle passe d'environ -600 MPa à +400 MPa (Figure III.24). Il n'est pas impossible qu'une inversion de direction d'écoulement se produise alors. Pour les autres essais, le chargement mécanique est croissant et on peut donc se fier au modèle identifié.

III.5 Conclusions

Ce chapitre s'inscrit dans la démarche de l'étude de l'effet de différents paramètres mécaniques sur l'amorçage de fissures de CSC-I. Dans la mesure où les essais ont été réalisés sur un feuillard de faible épaisseur, un état biaxial est obtenu par la présence d'entailles dans la longueur utile d'éprouvettes de traction. Il était nécessaire de disposer d'un modèle de comportement viscoplastique anisotrope couplé à des outils de simulation afin de caractériser les champs mécaniques locaux sur ce type d'échantillons. Un tel modèle a été identifié dans ce chapitre, à partir d'essais mécaniques. Il a permis de définir les géométries d'essais permettant de développer des champs de contrainte et de déformation qui peuvent être à la fois calculés et validés expérimentalement. Le but final est exploiter ces simulations pour déterminer les conditions d'amorçage de fissure de CSC-I.

Dans un premier temps, le comportement mécanique du matériau à température ambiante a été caractérisé par des essais de traction sur éprouvette lisse, entre 10^{-2} et 10^{-6} s⁻¹, dans les directions de laminage et transverse du feuillard. Cette caractérisation fournit les données nécessaires à la modélisation et permet également de replacer le matériau de l'étude parmi ceux de la littérature. L'anisotropie du matériau a été mise en évidence, en termes de limites d'élasticité, de différences d'écrouissage et d'écoulement plastique. A une vitesse donnée, la limite d'élasticité de la direction L est plus faible de 10% que celle de la direction T, mais la résistance mécanique σ_y est plus importante de 5%. L'allongement à rupture est également plus grand. Ces résultats sont caractéristiques d'alliages de zirconium laminés à froid et de texture proche. Un coefficient de sensibilité à la vitesse de déformation de $30 \cdot 10^{-3}$ a été trouvé, proche de ceux de la littérature pour le même matériau. La viscosité a été quantifiée à partir d'essais à différentes vitesses de déformation et a été trouvée constante dans le domaine de vitesse considéré, et identique dans les deux directions de sollicitation. L'utilisation de la corrélation d'images digitales a permis d'étudier l'anisotropie de déformation plastique sur deux essais et de déterminer les coefficients de Lankford du matériau dans la direction de laminage, $L_L=3.54$, et dans la direction transverse, $L_T=4.41$. Cette technique d'observation a aussi été utilisée pour des essais de traction sur éprouvettes entaillée afin d'observer la distribution hétérogène des déformations lors de telles sollicitations.

Un modèle de comportement viscoplastique anisotrope a été établi à partir de ces essais, sur la base d'un formalisme disponible dans MISTRAL. L'objectif principal du modèle est de bien représenter les courbes de traction sur éprouvettes lisses ainsi que l'anisotropie plastique. Pour cela, une contrainte équivalente de Hill a été introduite, dont les coefficients ont été identifiés à partir du rapport de limites d'élasticité dans les deux directions et d'un coefficient de Lankford. Les valeurs des coefficients (H_N , H_T , H_L) correspondantes sont (0.66, 0.34, 0.18). Il a été montré que ce jeu de coefficients permettait une bonne représentation de la surface de charge initiale du matériau dans le plan du feuillard. L'utilisation d'une telle contrainte équivalente avec un écrouissage isotrope seul s'est avérée insuffisante pour représenter l'anisotropie d'écrouissage. Une contrainte cinématique a été introduite pour cela, avec des simplifications de formalisme permettant de l'utiliser comme variable d'ajustement de l'écrouissage dans les deux directions du feuillard. La viscosité a été prise en compte par une loi puissance de type Norton, valable sur l'ensemble du domaine de vitesse considéré.

Une boucle d'optimisation des paramètres du modèle a été mise en place, via l'intégration des équations constitutives dans un tableur, pour des sollicitations uniaxiales. Plusieurs jeux

de coefficients ont été trouvés, selon le nombre de paramètres laissés libres par rapport aux résultats expérimentaux, tous permettant une bonne représentation des essais uniaxiaux. La simulation des essais sur éprouvettes entaillées a permis de choisir le modèle le plus performant par la comparaison des profils de déformation entre les entailles avec ceux déterminés expérimentalement par corrélation d'images.

L'accord modèle et essais de traction uniaxiale est très bon, dans les deux directions, avec un écart moyen inférieur à 2% et un écart ponctuel maximal de 6%, sur une plage de déformation importante (0-15%). A l'aide d'essais de fluage, le modèle a pu être évalué avec succès pour des sollicitations uniaxiales en dehors de son domaine d'identification, jusqu'à des vitesses de $5 \cdot 10^{-8} \text{ s}^{-1}$.

La réponse macroscopique des éprouvettes entaillées est également bien prédite par le modèle, avec un écart relatif en contrainte inférieur à 3% pour une déformation macroscopique inférieure à 5%. Les déformations locales prédites lors de tels essais sont en accord avec les mesures de corrélation d'images, dans l'intervalle d'incertitude de la mesure (± 0.01) quand ces déformations ne dépassent pas 4%. Au-delà l'écart dépend fortement de la direction principale de l'essai et du rayon d'entaille de l'éprouvette.

Cependant, le modèle sous-estime légèrement l'anisotropie de déformation plastique, malgré la présence d'un critère spécifique dans la boucle d'optimisation. Les coefficients de Lankford prédits par le modèle sont $R_{\text{modèle}}=2.52$ et $P_{\text{modèle}}=3.54$. L'écart par rapport aux essais provient du choix de bien représenter les contraintes au détriment des déformations. L'anisotropie de déformation plastique peut être facilement simulée par une contrainte de Hill en l'absence de contrainte cinématique, mais en contrepartie la surface de charge s'en trouve détériorée. Les tendances sont néanmoins respectées et l'écart important à l'isotropie est bien reproduit.

La cohérence du modèle avec le comportement réel du matériau a été discutée, notamment en ce qui concerne le comportement de la direction normale et la nature des contraintes. Les équations du modèle concernent les trois directions du feuillard mais l'identification des paramètres n'a été faite qu'à partir de données dans le plan principal. Les propriétés mécaniques simulées de la direction normale découlent de cette identification limitée. Malgré cela, elles sont en accord avec des données de la bibliographie, en termes de limite d'élasticité et de taux d'érouissage.

En revanche, la contrainte cinématique telle qu'elle a été introduite dans le modèle n'a pas de sens physique. Par exemple, elle est prise nulle dans la direction transverse pour un essai uniaxial dans cette direction, pour faciliter l'identification du modèle. L'analyse d'un essai de traction avec décharges par la méthode de Dickson a montré qu'elle représente en réalité plus de la moitié de la contrainte macroscopique, comme cela avait déjà été vu dans d'autres études. L'utilisation du modèle lors d'essais avec inversion de la direction d'écoulement n'est donc pas recommandée.

A partir du modèle identifié, les différents essais de l'étude ont été simulés par des calculs par éléments finis, avec le logiciel Cast3m. Les champs mécaniques locaux prédits ont été extraits pour l'analyse des résultats expérimentaux de CSC-I (éprouvette entaillée, flexions 3 et 4 points). Une part importante des travaux de simulation a concerné l'emboutissage et la fissuration de godets. La fissuration de ces échantillons regorge de très nombreuses informations sur l'amorçage et la propagation des fissures si l'on dispose d'une simulation pertinente. Les calculs pour ces essais ont mis en évidence les limites du modèle, notamment par la mesure des contraintes résiduelles et les comparaisons de courbes d'emboutissage. Les prédictions du modèle restent cependant plus qu'acceptables pour des essais aussi éloignés du domaine d'identification, et les résultats seront utilisés. Du point de vue de la seule simulation numérique, les apports de l'étude ne sont pas négligeables en ce qui concerne la

faisabilité de l'emboutissage et les traitements ultérieurs par l'utilisation de reprises de calculs.

Une adaptation du modèle au cas du matériau irradié aux protons a été proposée sur la base de résultats expérimentaux et d'études bibliographiques. A une dose de 2 dpa, la dureté Vickers de la couche irradiée, dans la direction normale au plan du feuillard, est plus importante de 21% par rapport au matériau initial. La contrainte rationnelle moyenne des éprouvettes présentant une couche irradiée de 30 μm est elle aussi plus importante, d'environ 30 MPa. Cette augmentation visible, due aux faibles épaisseurs d'éprouvettes utilisées, a permis de déterminer que la limite d'élasticité du matériau irradié est égale à 190% de celle du matériau non irradié. Les essais de traction sur des éprouvettes avec couche irradiée ont été simulés, les différences de comportement ont été retrouvées et les champs mécaniques dans la couche irradiée ont pu être estimés. Il apparaît que la couche irradiée rentre en plasticité pour une déformation plastique rationnelle de l'éprouvette de 0.3%.

Les perspectives d'amélioration du modèle sont multiples et nécessitent de nouveaux essais mécaniques. Des essais de traction uniaxiale dans des directions situées entre la direction transverse et celle de laminage pourraient être réalisés afin d'étendre la caractérisation mécanique du matériau. On pourrait ainsi déterminer complètement les coefficients de Hill sur la seule base des limites d'élasticité, afin d'améliorer la représentation de la surface de charge initiale. De plus les différences (non linéaires) d'écroûissage selon les directions permettraient une détermination plus physique de la contrainte cinématique, qui ne constituerait plus uniquement une variable d'ajustement entre deux directions.

L'optimisation du modèle mise en place dans un tableur permet d'ajouter à volonté des contraintes dans les évolutions des paramètres du modèle ou des variables mécaniques. Il est ainsi possible d'imposer l'évolution de la contrainte cinématique, à partir de sa détermination par la méthode de Dickson par exemple, selon une ou plusieurs directions. Les paramètres de l'écroûissage isotrope et des tenseurs d'anisotropie de la contrainte cinématiques seraient alors ajustés pour que la réponse macroscopique du modèle soit correcte. Une meilleure modélisation de la contrainte cinématique permettrait la simulation d'essais avec historiques de chargement complexes. L'impossibilité de tester le feuillard dans sa direction normale fait qu'il restera toujours des paramètres du modèle non associés à des propriétés physiques.

Une modification du formalisme est également envisageable, notamment pour les écroûissages. Les essais de flexion trois points et les emboutissages de godets ont montré que l'écroûissage à forte déformation reste sous-estimé. La forme en exponentielle saturante de l'écroûissage, valable entre 0 et 15% de déformation plastique, pourrait être remplacée par une fonction puissance par exemple.

Il est également envisageable d'ajouter les calculs par éléments finis d'éprouvettes entaillées ou de flexion trois points (importantes déformations) à la boucle d'optimisation. Cela éviterait de sélectionner plusieurs modèles a priori, de réaliser les calculs avec tous les modèles pour choisir le meilleur. Mais cela ne serait pas garant d'une détermination plus rapide du modèle car la boucle actuelle avec les seuls essais uniaxiaux convergent en quelques minutes, permettant de tester des milliers de combinaisons.

L'adaptation du modèle au matériau irradié a été faite pour la direction de laminage seule puisque les seules éprouvettes disponibles étaient orientées dans cette direction. Des essais dans la direction transverse permettraient d'observer une éventuelle diminution de l'anisotropie et de la quantifier. Une caractérisation par nano-dureté de la couche irradiée, sur les trois plans d'orthotropie du feuillard pourrait en partie répondre à cette question, assez rapidement. Une autre voie d'amélioration, qui avait été envisagée, consisterait à

amincir les éprouvettes par leur partie non irradiée pour donner plus d'importance à la couche irradiée dans la réponse mécanique de l'éprouvette lors d'une sollicitation, jusqu'à éventuellement enlever tout la partie non irradiée. Avec les moyens à disposition pour le polissage des éprouvettes, des amincissements à moins de 70 μm d'épaisseur se sont avérés très aléatoires, en termes d'uniformité d'épaisseur et de déchirement d'éprouvette.

Les simulations numériques pourraient également être améliorées, notamment en utilisant des moyens de calculs plus importants afin d'affiner les maillages jusqu'à être certain de l'indépendance du résultat avec la taille de maille, notamment pour l'emboutissage. La généralisation de calcul 3D plutôt qu'en 2D contraintes planes est à prévoir même si des vérifications ont montré que les champs mécaniques en surface ne différaient que de très peu entre les deux approches.

Malgré les simplifications apportées dans le formalisme et les écarts observés pour des essais à forte déformation, le modèle identifié permet de prédire avec précision les réponses macroscopiques et les champs mécaniques locaux des essais de tractions réalisés dans la suite de l'étude, sur éprouvette lisse ou entaillée, quand les déformations macroscopiques ne sont pas trop importantes. Une modification pour le matériau irradié aux protons a été proposée, sur la base de données bibliographiques et de résultats expérimentaux.

Les simulations présentées dans ce chapitre ont permis d'accéder aux champs mécaniques locaux des différents essais de CSC-I. Les résultats de ces essais vont être présentés dans le chapitre suivant et seront analysés à l'aide des travaux présentés ici, dans le but de déterminer les paramètres critiques à l'amorçage de fissure de CSC-I et d'établir un modèle simple.

Chapitre IV : Essais de corrosion sous contrainte par l'iode

Introduction

Dans ce chapitre, sont présentés les résultats des essais de corrosion sous contrainte réalisés ; l'influence de différents paramètres identifiés comme des facteurs du premier ordre sur la sensibilité à la CSC-I de l'alliage étudié est analysée. Les essais sont séparés en deux catégories, selon la présence ou l'absence de plasticité active à l'amorçage de fissures.

Ainsi, l'influence de la vitesse de déformation sur la sensibilité à la CSC-I du Zircaloy-4 est étudiée par la réalisation d'essais de traction interrompus sur éprouvettes lisses testées dans la direction T à vitesse de déformation imposée. Combinés à la détection de la présence de fissures par observation en microscopie optique, ces essais permettent d'estimer la déformation plastique à l'amorçage, pour une concentration et une vitesse de déformation données. La multiplication de tels essais pour trois vitesses différentes et un large intervalle de concentrations a permis de délimiter trois domaines de fissuration. Les effets de concentration sont mis en évidence. L'influence de la direction de chargement est également étudiée : des éprouvettes ont été testées dans la direction L et le domaine de fissuration obtenu est comparé à celui défini en testant les éprouvettes dans la direction T.

A une concentration donnée, l'influence de la biaxialité des contraintes sur l'amorçage des fissures de CSC-I a été analysée via l'utilisation d'éprouvettes entaillées sollicitées en sens T. A l'aide du modèle de comportement mécanique identifié au chapitre précédent, les champs mécaniques locaux à l'amorçage sont estimés et un modèle simple d'amorçage de fissures est proposé.

L'influence de l'irradiation sur l'amorçage de fissures est étudiée grâce aux irradiations aux protons présentées précédemment. Par des essais à vitesse de déformation imposée interrompus, les effets de vitesse et de concentration ont été mis en évidence malgré le faible nombre d'éprouvettes disponibles.

Dans un souci de compréhension des mécanismes intervenant lors de la fissuration intergranulaire, des essais sans plasticité active ont été menés. Des essais fluage en flexion 4 points et des essais d'immersion de godets permettent de mettre en évidence le rôle de la contrainte sur le temps à rupture, et cela sur plusieurs ordres de grandeurs de concentration en iode.

Enfin, des essais de fluage en traction sur éprouvettes entaillées, avec maintien à faible force imposée et forte concentration, sont réalisés afin d'observer un éventuel effet de biaxialité des contraintes dans le domaine d'élasticité.

Tableau IV.1 : Liste des essais de CSC-I à vitesse de déformation imposée. Les noms en gras désignent une fissuration observée Les noms soulignés désignent une rupture de l'éprouvette. ϵ_p^f désigne la déformation plastique rationnelle finale de l'essai et/ou celle à la force appliquée maximale. $[I_2]$ désigne la concentration en iode de la solution utilisée pour l'essai.

Dir.	Nom	$\dot{\epsilon}$ (s^{-1})	$[I_2]$ ($g \cdot g^{-1}$)	ϵ_p^f (%)	Dir.	nom	$\dot{\epsilon}$ (s^{-1})	$[I_2]$ ($g \cdot g^{-1}$)	ϵ_p^f (%)
T	A2T1-70	10^{-5}	$6 \cdot 10^{-5}$	9.43	T	A2T1-64	10^{-3}	$6 \cdot 10^{-5}$	9.59
T	A2T1-61	10^{-5}	$6 \cdot 10^{-5}$	6.49	T	A2T1-71	10^{-3}	$6 \cdot 10^{-5}$	8.04
T	A2T1-62	10^{-5}	$6 \cdot 10^{-5}$	3.25	T	A2T1-30	10^{-3}	$6 \cdot 10^{-5}$	5.28
T	A2T1-79	10^{-5}	$1 \cdot 10^{-4}$	7.46	T	A2T1-74	10^{-3}	$6 \cdot 10^{-5}$	3.33
T	A2T1-80	10^{-5}	$1 \cdot 10^{-4}$	3.56	T	A2T1-26	10^{-3}	$1 \cdot 10^{-4}$	5.20
T	A2T1-81	10^{-5}	$1 \cdot 10^{-4}$	2.05	T	A2T1-28	10^{-3}	$1 \cdot 10^{-4}$	3.26
T	A2T1-78	10^{-5}	$1 \cdot 10^{-4}$	1.07	T	A2T1-36	10^{-3}	$3 \cdot 10^{-4}$	4.20
T	A2T1-42	10^{-5}	$3 \cdot 10^{-4}$	1.77	T	A2T1-54	10^{-3}	$6 \cdot 10^{-4}$	9.46
T	A2T1-85	10^{-5}	$3 \cdot 10^{-4}$	1.51	T	A2T1-59	10^{-3}	$6 \cdot 10^{-4}$	7.80
T	A2T1-34	10^{-5}	$3 \cdot 10^{-4}$	0.46	T	A2T1-72	10^{-3}	$6 \cdot 10^{-4}$	5.67
T	A2T1-60	10^{-5}	$6 \cdot 10^{-4}$	2.34	T	A2T1-55	10^{-3}	$6.3 \cdot 10^{-4}$	3.32
T	A2T1-66	10^{-5}	$6 \cdot 10^{-4}$	0.46	T	A2T1-84	10^{-3}	$1 \cdot 10^{-3}$	9.59
T	A2T1-63	10^{-5}	$1 \cdot 10^{-3}$	1.23	T	A2T1-27	10^{-3}	$1 \cdot 10^{-3}$	3.25
T	A2T1-65	10^{-5}	$1 \cdot 10^{-3}$	0.12	T	A2T1-41	10^{-3}	$1 \cdot 10^{-3}$	1.42
T	A2T1-57	10^{-4}	$1 \cdot 10^{-5}$	8.70	T	A2T1-87	10^{-3}	$1 \cdot 10^{-3}$	0.56
T	A2T1-82	10^{-4}	$2 \cdot 10^{-5}$	7.98	T	A2T1-86	10^{-3}	$1 \cdot 10^{-3}$	0.00
T	A2T1-39	10^{-4}	$2 \cdot 10^{-5}$	6.08	L	A2L1-24	10^{-4}	$3 \cdot 10^{-6}$	8.23
T	A2T1-31	10^{-4}	$3 \cdot 10^{-5}$	3.42	L	A2L1-9	10^{-4}	$3 \cdot 10^{-6}$	6.98
T	A2T1-58	10^{-4}	$3 \cdot 10^{-5}$	9.75	L	A2L1-11	10^{-4}	$3 \cdot 10^{-6}$	5.12
T	A2T1-56	10^{-4}	$6 \cdot 10^{-5}$	9.69	L	A2L1-6	10^{-4}	$1 \cdot 10^{-5}$	7.77
T	A2T1-68	10^{-4}	$6 \cdot 10^{-5}$	7.97	L	A2L1-8	10^{-4}	$1 \cdot 10^{-5}$	5.64
T	A2T1-29	10^{-4}	$6 \cdot 10^{-5}$	2.42	L	A2L1-18	10^{-4}	$1 \cdot 10^{-5}$	4.01
T	A2T1-51	10^{-4}	$6.2 \cdot 10^{-5}$	6.81	L	A2L1-3	10^{-4}	$1 \cdot 10^{-5}$	3.45
T	A2T1-52	10^{-4}	$6.3 \cdot 10^{-5}$	3.34	L	A2L1-26	10^{-4}	$2 \cdot 10^{-5}$	4.27
T	A2T1-53	10^{-4}	$6.4 \cdot 10^{-5}$	0.69	L	A2L1-23	10^{-4}	$2 \cdot 10^{-5}$	3.29
T	A2T1-67	10^{-4}	$1 \cdot 10^{-4}$	7.17	L	A2L1-16	10^{-4}	$3 \cdot 10^{-5}$	3.13
T	A2T1-38	10^{-4}	$1 \cdot 10^{-4}$	3.22	L	A2L1-10	10^{-4}	$3 \cdot 10^{-5}$	2.27
T	A2T1-33	10^{-4}	$3 \cdot 10^{-4}$	3.38	L	A2L1-20	10^{-4}	$6 \cdot 10^{-5}$	3.03
T	A2T1-35	10^{-4}	$3 \cdot 10^{-4}$	1.99	L	A2L1-1	10^{-4}	$1 \cdot 10^{-4}$	3.29
T	A2T1-69	10^{-4}	$6 \cdot 10^{-4}$	5.24	L	A2L1-7	10^{-4}	$1 \cdot 10^{-4}$	2.43
T	A2T1-43	10^{-4}	$6 \cdot 10^{-4}$	1.26	L	A2L1-4	10^{-4}	$1 \cdot 10^{-4}$	1.23
T	A2T1-77	10^{-4}	$1 \cdot 10^{-3}$	6.63	L	A2L1-21	10^{-4}	$2 \cdot 10^{-4}$	2.11
T	A2T1-23	10^{-4}	$1 \cdot 10^{-3}$	3.93	L	A2L1-25	10^{-4}	$2 \cdot 10^{-4}$	1.21
T	A2T1-37	10^{-4}	$1 \cdot 10^{-3}$	1.32	L	A2L1-22	10^{-4}	$2 \cdot 10^{-4}$	0.84
T	A2T1-44	10^{-4}	$1 \cdot 10^{-3}$	0.59	L	A2L1-12	10^{-4}	$3 \cdot 10^{-4}$	2.22
T	A2T1-88	10^{-3}	$1 \cdot 10^{-5}$	9.28	L	A2L1-17	10^{-4}	$3 \cdot 10^{-4}$	1.68
T	A2T1-24	10^{-3}	$1 \cdot 10^{-5}$	7.90	L	A2L1-13	10^{-4}	$3 \cdot 10^{-4}$	0.69
T	A2T1-89	10^{-3}	$2 \cdot 10^{-5}$	7.90	L	A2L1-19	10^{-4}	$6 \cdot 10^{-4}$	0.73
T	A2T1-83	10^{-3}	$3 \cdot 10^{-5}$	9.39	L	A2L1-2	10^{-4}	$1 \cdot 10^{-3}$	3.25
T	A2T1-40	10^{-3}	$3 \cdot 10^{-5}$	7.87	L	A2L1-5	10^{-4}	$1 \cdot 10^{-3}$	0.37
T	A2T1-32	10^{-3}	$3 \cdot 10^{-5}$	4.64	L	A2L1-14	10^{-4}	$1 \cdot 10^{-3}$	0.15

Les paramètres influents sont identifiés pour chaque type d'essai dans ce chapitre. Cependant, une discussion complète des résultats avec comparaison aux résultats de la bibliographie fera l'objet de la première partie du chapitre V.

IV.1 Essais de CSC-I à vitesse de déformation imposée

Dans un premier temps, on s'intéresse aux essais de traction avec déformation plastique active lors de l'exposition au milieu corrosif. L'étude bibliographique a montré le manque de données disponibles sur l'amorçage des fissures en méthanol iodé, notamment pour ce qui concerne l'influence de la vitesse de déformation et de l'état de contrainte. L'observation de tendances cohérentes avec celles observées en milieu iode vapeur permettrait de confirmer ou d'infirmer le caractère représentatif des essais en méthanol iodé. De plus, ces informations orienteraient la proposition d'un mécanisme d'endommagement.

Les résultats obtenus sur éprouvettes lisses sont d'abord rapportés ; la phénoménologie est détaillée et l'influence des différents paramètres sur la sensibilité à la CSC-I du matériau étudiée. A partir de ces analyses, une concentration en iode adaptée est choisie pour étudier l'effet de la biaxialité des contraintes sur cette sensibilité en travaillant sur éprouvettes entaillées. Les résultats expérimentaux couplés aux simulations numériques mènent à l'établissement d'un modèle d'amorçage simple.

Des essais de traction à vitesse de déformation imposée sur éprouvettes lisses irradiées ont été menés dans des conditions similaires à ceux réalisés pour le matériau non irradié. Les résultats obtenus pour ce qui concerne l'amorçage des fissures et la rupture des éprouvettes sont analysés et comparés aux prédictions du modèle d'amorçage pour montrer l'effet de l'irradiation sur l'amorçage des fissures de CSC-I.

IV.1.1 Eprouvettes lisses

IV.1.1.1 Conditions d'étude et essais réalisés

Les essais consistent en une rampe de vitesse de déformation constante jusqu'à un niveau de déformation totale prédéfini. Les éprouvettes utilisées sont toutes polies avec la procédure présentée précédemment (§ II.2.2.1) ; leurs tranches sont protégées par de la pâte siliconée et elles sont insérées dans le circuit de méthanol iodé, de telle sorte qu'une seule face est exposée au milieu agressif. Un large intervalle de concentrations en iode a été balayé, de 10^{-6} g.g⁻¹ à 10^{-3} g.g⁻¹, afin de déterminer les concentrations seuils et d'éventuels effets de saturation. Trois vitesses de déformation ont été testées, 10^{-5} s⁻¹, 10^{-4} s⁻¹ et 10^{-3} s⁻¹, pour des éprouvettes prélevées dans la direction transverse du feuillard. L'influence de la direction de sollicitation est étudiée par l'utilisation d'éprouvettes prélevées dans la direction L du feuillard ; ces éprouvettes sont soumises à des essais de CSC-I avec des concentrations en iode variables, et une vitesse de déformation constante de 10^{-4} s⁻¹. Les caractéristiques de ces essais sont regroupées dans le Tableau IV.1. A partir des résultats obtenus pour différentes conditions expérimentales, les domaines de fissuration ont pu être établis dans un plan concentration-déformation pour chaque vitesse testée.

Si l'éprouvette n'a pas rompu, elle est déchargée une fois la déformation limite atteinte. Après nettoyage, elle est observée au microscope optique au grossissement x1000 pour détecter une éventuelle fissuration. Pour des éprouvettes sollicitées à 10^{-4} s⁻¹, des cartographies complètes de la zone exposée, au grossissement x500, ont été réalisées pour déterminer des statistiques de fissures : densité et taille moyenne. Six éprouvettes prélevées dans la direction L du feuillard ont été cartographiées (A2L1-01, 02, 12, 16, 20, 26) contre

8 éprouvettes prélevées dans la direction T (A2T1-23, 31, 33, 37, 38, 52, 67, 77). Si l'essai a été mené à rupture, le faciès est observé au MEB. Dans ce cas, les différents modes de propagation sont identifiés et les conditions dans lesquelles ils sont observés sont précisées.

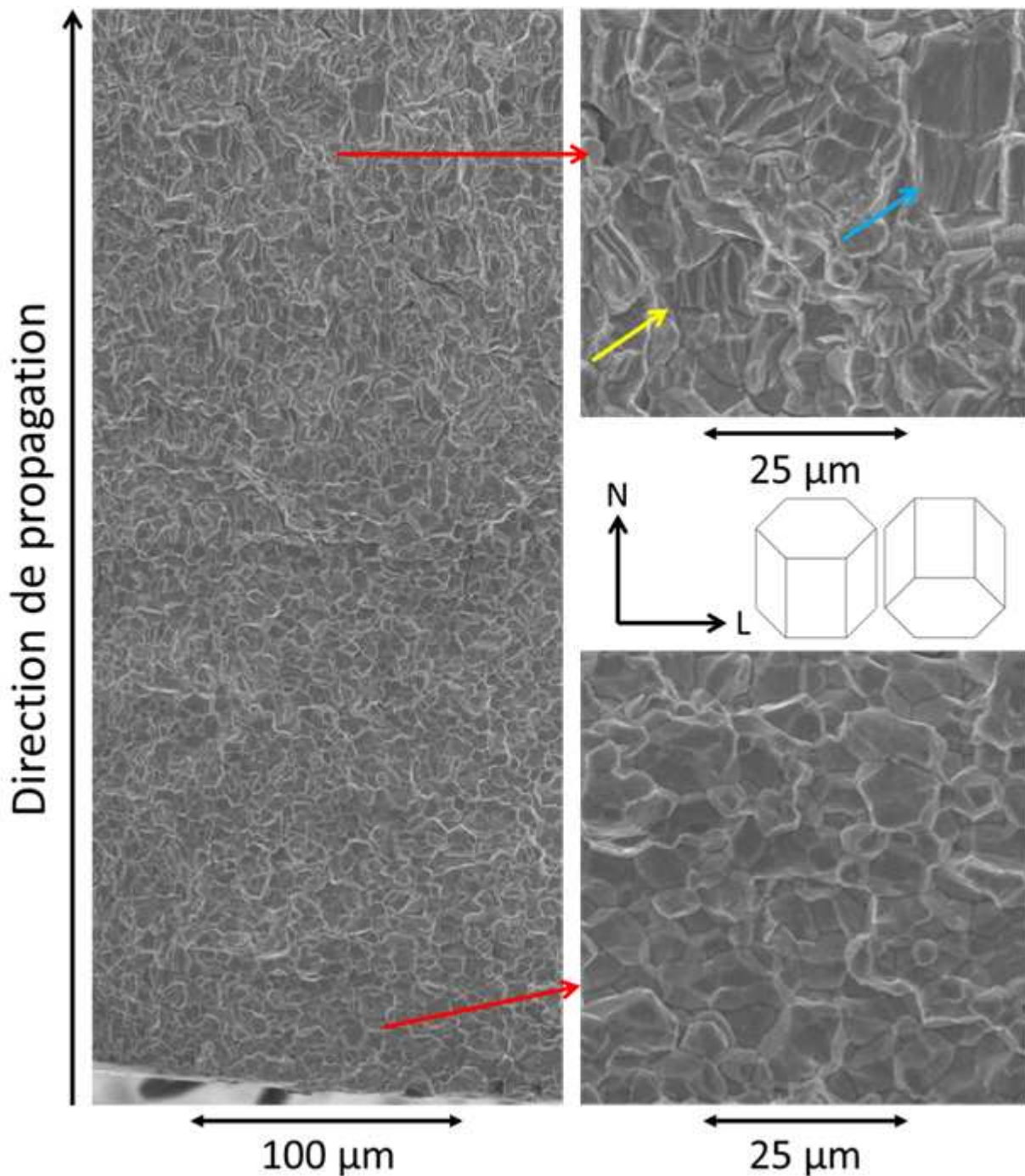


Figure IV.1 : Observation au MEB d'une partie du faciès de rupture de l'éprouvette A2T1-60 soumise à une rampe de déformation à 10^{-5} s^{-1} , pour $[I_2]=6 \cdot 10^{-4} \text{ g.g}^{-1}$. Rupture initiée à $\epsilon^p = 2.34\%$. La propagation est totalement intergranulaire sur plus de 200 μm . Passage en mode mixte au-delà avec présence de fluting (flèche jaune). Avant la rupture de l'éprouvette, du fluting beaucoup plus large, dans le sens de la propagation de la fissure, est observé (flèche bleue).



Figure IV.2 : Amorces de fissures observées au microscope optique, pour l'éprouvette A2L1-17 (gauche), A2L1-21 (milieu) et A2L1-26 (droite).

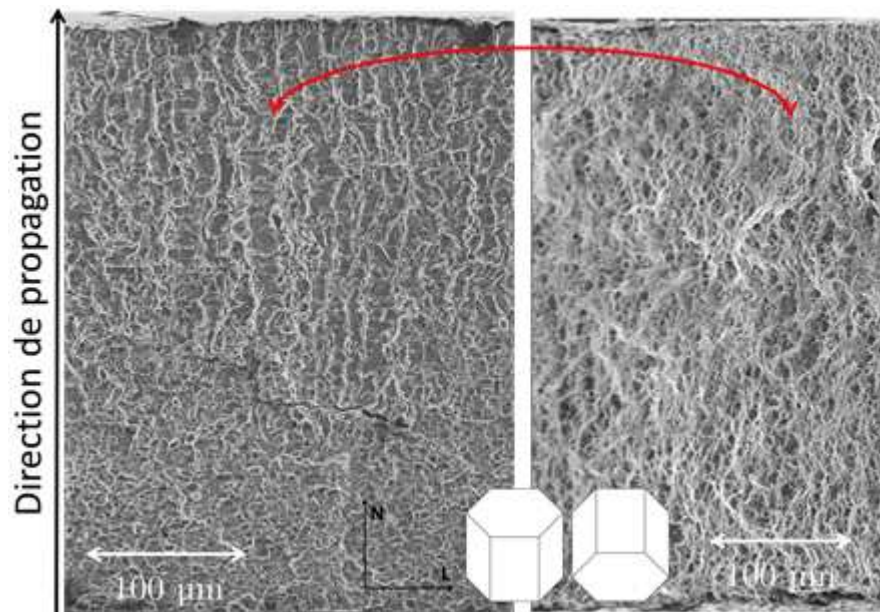


Figure IV.3 : Faciès de rupture de l'éprouvette A2T1-77 (gauche) et de l'éprouvette A1T1-10 (droite, rompue en milieu inerte) observés au MEB. Illustration de la différence entre la fin de la propagation d'une fissure de CSC-I et la rupture ductile à cupules.

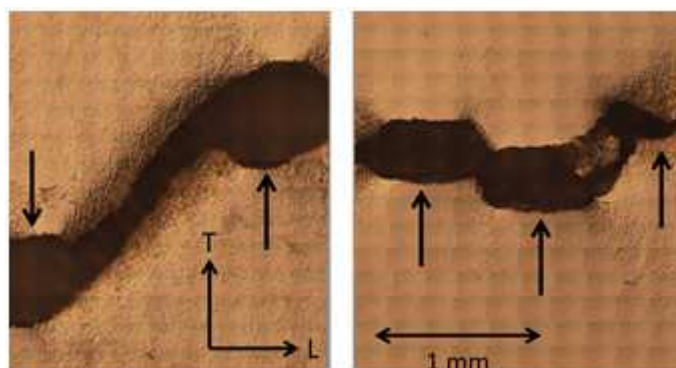


Figure IV.4 : Ruptures des éprouvettes A2T1-79 (gauche) et A2T1-63 (droite), observées au microscope optique, depuis la face d'amorçage des fissures. Mise en évidence des déchirures ductiles entre les différentes fissures de CSC-I (flèches).

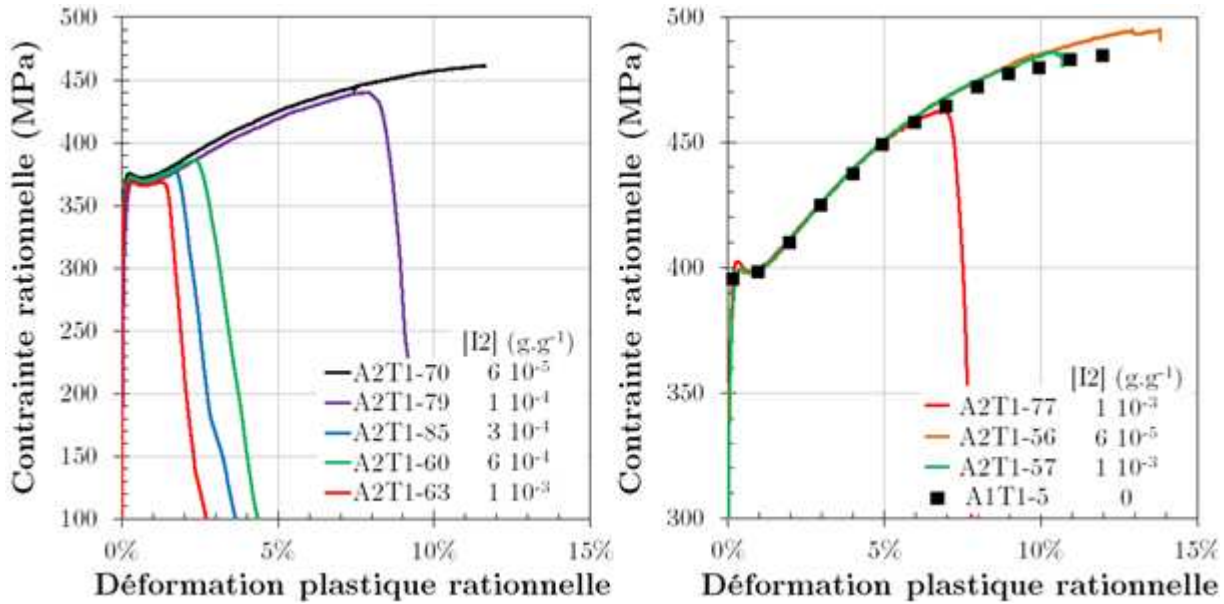


Figure IV.5 : Courbes rationnelles des essais de CSC-I réalisées sur éprouvettes prélevées dans le sens T et sollicitées à 10^{-5} s^{-1} (gauche) et à 10^{-4} s^{-1} (droite). La chute de contrainte en fin de courbe, pour A2T1-56 et A2T1-57, est due au déchargement de l'éprouvette amorcé manuellement. Comparaison avec un essai de traction réalisé à l'air (A1T1-5, 10^{-4} s^{-1}).

IV.1.1.2 Résultats et analyses

IV.1.1.2.1 Phénoménologie

La phénoménologie observée lors de ces essais est très proche de ce qui a été décrit dans la bibliographie.

L'amorçage des fissures de CSC-I est toujours intergranulaire, pour toutes les conditions testées, comme illustré sur la Figure IV.1. Pour les essais interrompus avant rupture, le caractère intergranulaire des fissures se manifeste par un aspect en dents de scie de la fissure qui dessine un ou plusieurs grains en surface (Figure IV.2). Bien souvent, on observe un grain au milieu de la fissure qui apparaît déchaussé : tous les joints qui l'entourent semblent fissurés. Il arrive que ce grain disparaisse pendant le passage des éprouvettes aux ultra-sons. On observe alors un cratère, comme cela est illustré pour l'éprouvette A2L1-17 (Figure IV.2, gauche). Ces amorces intergranulaires sont orientées perpendiculairement à la direction de sollicitation, que celle-ci soit la direction T ou L. Cela est d'autant plus visible que la fissure est longue. On vérifie également qu'une seule face de l'éprouvette est attaquée avec le dispositif utilisé.

La propagation est initialement purement intergranulaire, sur une étendue pouvant atteindre 200 μm . La taille de la zone intergranulaire n'a pas pu être corrélée à la concentration en iode, d'autres facteurs rentrant probablement en jeu, notamment le nombre de fissures amorcées. On observe ensuite une rupture fragile transgranulaire, composée majoritairement de fluting, ou cannelures, toujours en présence de la fissuration intergranulaire (propagation mixte). La propagation des fissures dans l'épaisseur de la tôle fait qu'il n'y a que peu de grains bien orientés pour le quasi-clivage, qui n'est donc observé que très marginalement.

La rupture finale de l'éprouvette n'est pas identique à la rupture ductile par croissance et coalescence de cavités observée en milieu inerte (cupules) mais elle en a certaines caractéristiques. A la fin de la propagation en milieu iodé, on observe des sortes de

cannelures orientées dans le sens de la propagation de la fissure, qui sont beaucoup plus larges que les cannelures du fluting, (Figure IV.1). Ces larges cannelures peuvent s'étendre sur plus de la moitié de l'épaisseur de l'éprouvette. Elles sont collées les unes aux autres et les ligaments qui les raccordent présentent des signes de ductilité (Figure IV.3). Dans la zone de transition entre mode mixte et rupture finale, on peut observer des ramifications de la fissure vers un autre plan (Figure IV.3).

Le faciès de rupture n'est que très rarement composé d'une seule fissure de CSC-I. La plupart du temps, plusieurs fissures s'amorcent et commencent à se propager. Lors de la rupture de l'éprouvette, des déchirures ductiles se produisent pour raccorder les différentes fissures qui ne sont pas dans le même plan (Figure IV.4). Des éprouvettes rompues présentes dans le Tableau IV.1, seule l'A2T1-60 semble n'avoir qu'une seule fissure de CSC-I sur le faciès.

Pour ce qui concerne le comportement mécanique, les ruptures par CSC-I sont associées à une perte de ductilité. Mais la présence d'iode ne semble pas modifier pas la réponse mécanique des éprouvettes (limite d'élasticité et écrouissage). Les essais à 10^{-5} s^{-1} montrent que la perte de ductilité est d'autant plus importante que la concentration en iode est importante (Figure IV.5). La déformation plastique rationnelle au maximum de contrainte, dont l'utilisation est abusive pour des éprouvettes fissurées, passe de 7.46% (10^{-4} g.g^{-1}) à 1.23% (10^{-3} g.g^{-1}). En milieu inerte, on rappelle que la déformation plastique rationnelle uniforme était de $\ln(1+8.9\%)=8.5\%$ (Tableau III.1). Pour le seul essai rompu à 10^{-4} s^{-1} (10^{-3} g.g^{-1}), le maximum de contrainte conventionnelle (non tracée ici) est atteint pour une déformation plastique rationnelle de 6.63% (au lieu de 8.8% en milieu inerte).

IV.1.1.2.2 Détermination des domaines de fissuration

Des domaines de fissuration ont été déterminés pour les éprouvettes prélevées dans la direction T pour chacune des trois vitesses de déformation testées (10^{-5} s^{-1} , 10^{-4} s^{-1} et 10^{-3} s^{-1}). La frontière, entre un domaine de fissuration et un domaine pour lequel aucune fissuration n'est observée, est définie par des couples de valeurs correspondant à la déformation plastique à l'amorçage pour une concentration en iode donnée. Pour la direction L, un seul domaine a été déterminé correspondant à une vitesse de déformation de 10^{-4} s^{-1} . Les résultats obtenus sont visibles en Figure IV.6. Chaque point correspond à une éprouvette testée et observée au microscope optique pour détecter la présence de fissure(s). Les points verts indiquent des essais sans amorce de fissures, les points oranges des essais avec des amorces de fissures et les points rouges correspondent aux essais ayant conduit à la rupture.

Il apparaît que les frontières des domaines ne sont pas des droites ; elles se décomposent en plusieurs segments qui permettent d'identifier des plages de concentration en iode correspondant à des comportements distincts. Ainsi, un plateau de déformation à l'amorçage est observé pour les concentrations moyennes, autour de 10^{-4} g.g^{-1} . Sur ce plateau, une déformation plastique d'au moins 1% est nécessaire pour amorcer des fissures. Aux faibles concentrations, on observe une augmentation de la déformation à l'amorçage quand la concentration en iode diminue ; on peut donc déterminer une concentration en iode seuil I_0 . Le domaine de fissuration a alors une asymptote verticale. Aux fortes concentrations, la déformation chute quand la concentration en iode augmente, à partir d'une concentration de transition I_1 . Le domaine de fissuration présente donc une marche ; pour les fortes concentrations en iode, les déformations plastiques à l'amorçage sont alors inférieures à 0.5%. Dans certains cas, il semble même que la déformation plastique ne soit pas nécessaire pour l'amorçage de fissures.

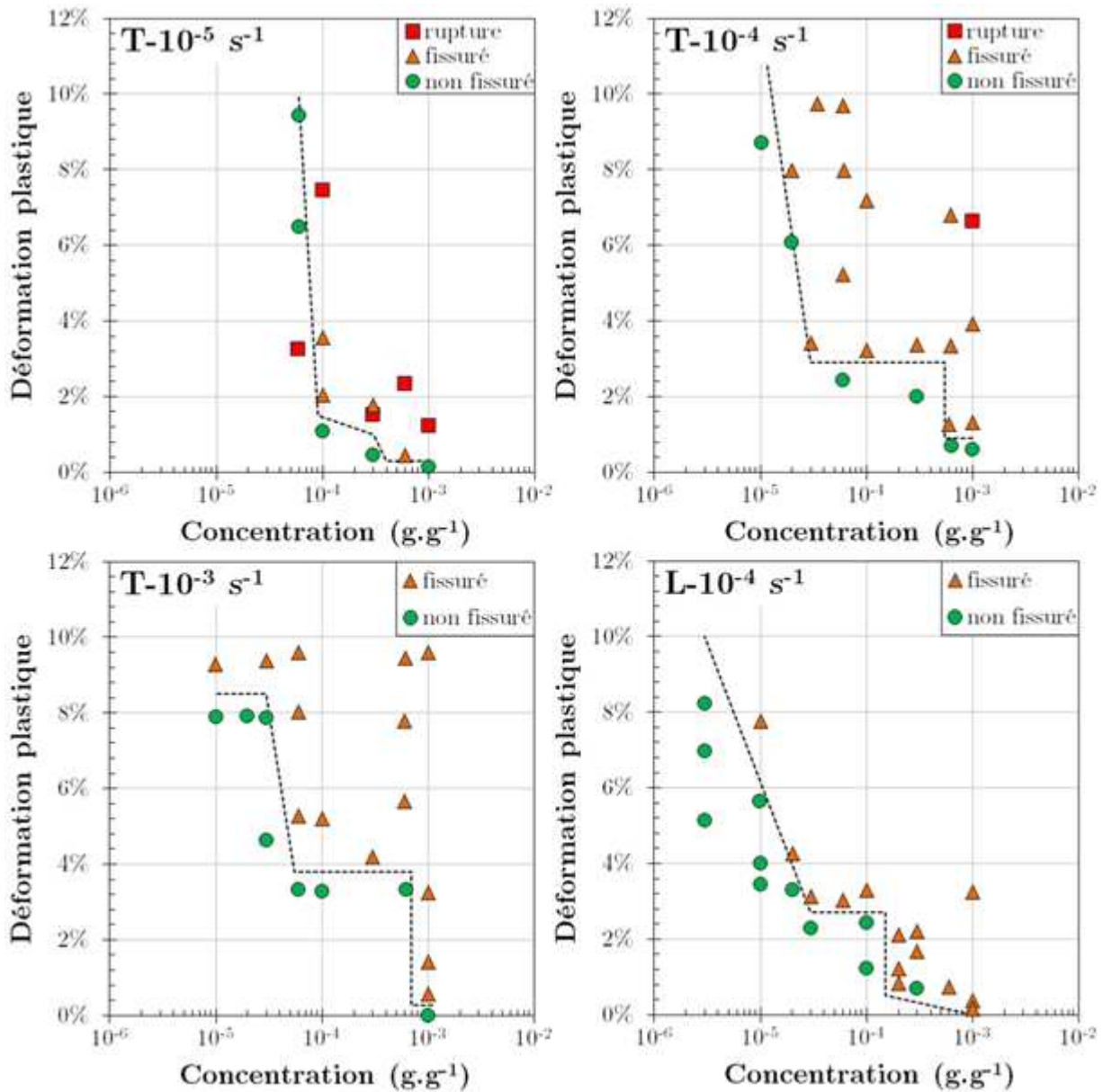


Figure IV.6 : Détermination des domaines de fissuration pour des essais dans le sens T, à 10^{-5} s^{-1} (haut, gauche), à 10^{-4} s^{-1} (haut, droit) et à 10^{-3} s^{-1} (bas, gauche), ainsi que pour des essais dans le sens L à 10^{-4} s^{-1} (bas, droite)

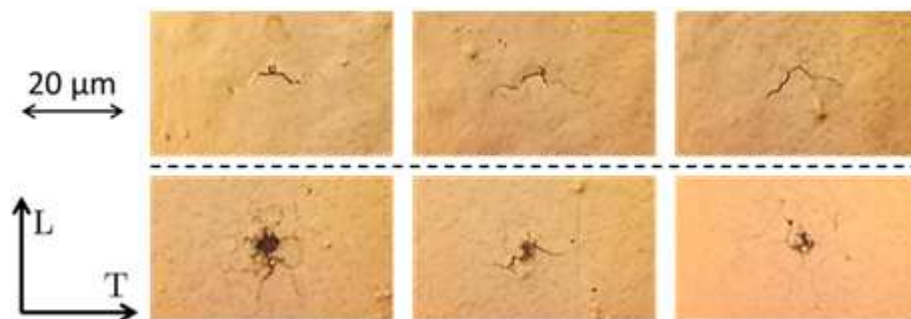


Figure IV.7 : Comparaison des formes des amorces de fissures pour les éprouvettes A2L1-20 (haut, 10^4 g.g^{-1} , 3%) et A2L1-5 (bas, 10^3 g.g^{-1} , 0.37%). Mise en évidence de deux modes d'amorçage.

On remarque d'emblée un effet de la vitesse de sollicitation sur les domaines pour les éprouvettes prélevées dans la direction T. A 10^{-3} s^{-1} , le niveau du plateau de déformation plastique est de 3.8%. A 10^{-4} s^{-1} , il passe à 3% et à 10^{-5} s^{-1} , il est situé entre 1% et 1.5%. Pour cette dernière vitesse d'ailleurs, le plateau n'est que peu marqué. De même, la concentration de transition I_1 varie avec la vitesse de déformation. Celle-ci est située entre 6.27 et $10 \cdot 10^{-4} \text{ g.g}^{-1}$ à 10^{-3} s^{-1} , entre 3 et $6.42 \cdot 10^{-4} \text{ g.g}^{-1}$ à 10^{-4} s^{-1} et entre 1 et $3 \cdot 10^{-4} \text{ g.g}^{-1}$ à 10^{-5} s^{-1} .

Ces résultats amènent à penser qu'il existe peut-être deux mécanismes d'amorçage de fissures de CSC-I, l'un à forte concentration en iode et pour lequel la déformation plastique n'apparaît pas indispensable à la fissuration, et un autre pour des concentrations moyennes en iode et pour lequel la plasticité semble jouer un rôle important. Cette affirmation est supportée par la morphologie des fissures, comme cela est illustré en Figure IV.7 pour des éprouvettes prélevées dans la direction L. Pour de fortes concentrations en iode, on observe des joints de grains attaqués, tout autour d'un grain déchaussé ou d'un trou, caractéristique d'une attaque chimique. En revanche, pour des concentrations faibles et moyennes, les fissures ne sont que peu ramifiées et passent d'un joint de grain à un autre, en suivant un chemin plus perpendiculaire à la direction de la contrainte appliquée qu'à forte concentration. Ces deux mécanismes sont dépendants du temps puisque dépendants de la vitesse de déformation, comme le montrent les variations de niveau des plateaux et les variations de concentrations de transition quand la vitesse de déformation varie.

A forte déformation, la détection de la présence de fissures est rendue plus difficile par la rugosité de surface due aux différences de déformations d'un grain à un autre. Les éprouvettes sont observées en lumière polarisée rasante et les ombres de certains grains peuvent être prises pour des joints de grains fissurés. Quand ce cas de figure se produit, on change l'orientation de la lumière pour qu'elle arrive de la direction opposée. On peut alors trancher avec une faible incertitude. Néanmoins, cette incertitude est plus grande qu'aux petites déformations. La détermination de la concentration seuil I_0 est donc sujette à ce problème car les déformations à l'amorçage sont plus grandes quand on s'en approche. La valeur de I_0 est d'environ 10^{-5} g.g^{-1} pour les essais à forte vitesse de déformation. A 10^{-5} s^{-1} , elle serait plutôt de 10^{-4} g.g^{-1} . Une telle différence est bien supérieure à l'incertitude de la détection.

Le domaine identifié pour les essais sur éprouvettes prélevées dans la direction L est proche de celui tracé pour les éprouvettes prélevées dans la direction T à la même vitesse, pour ce qui concerne la concentration seuil et le niveau du plateau de déformation (2.8%). En revanche, il apparaît que la concentration de transition I_1 est plus faible pour la direction L, entre 1 et $2 \cdot 10^{-4} \text{ g.g}^{-1}$. S'il est clair que la texture joue un rôle prépondérant sur la propagation transgranulaire des fissures du fait de l'orientation des plans de base par rapport à la contrainte, cet effet d'orientation concernant la fissuration intergranulaire n'est pas expliqué.

Si l'on s'intéresse à la propagation des fissures, la perte de ductilité de l'éprouvette n'est observée qu'à la plus faible vitesse de sollicitation, pour des concentrations en iode moyennes et fortes, ainsi que pour la vitesse intermédiaire pour la plus forte concentration. A partir des domaines déterminés, on peut estimer les vitesses de propagation moyennes des fissures. En effet, pour une vitesse et une concentration données, le temps à l'amorçage est celui nécessaire pour atteindre la déformation à l'amorçage. La différence de temps pour aller jusqu'à la déformation à rupture est en première approximation le temps de propagation pour traverser l'épaisseur. Les vitesses calculées sont présentées dans le Tableau IV.2 pour les éprouvettes prélevées dans la direction T du feuillard. Ces vitesses

Tableau IV.2 : Vitesses de propagation moyenne V , exprimées en $\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$, calculées à partir des essais de traction uniaxiale. Eprouvettes prélevées dans la direction T du feuillard.

		[I ₂] (g·g ⁻¹)			
		10 ⁻⁴	3 10 ⁻⁴	6 10 ⁻⁴	10 ⁻³
$\dot{\epsilon}$ (s ⁻¹)	10 ⁻⁵	6.5 10 ⁻²	8.2 10 ⁻¹	2.2 10 ⁻¹	4.8 10 ⁻¹
	10 ⁻⁴	-	-	-	6.8 10 ⁻¹



Figure IV.8 : Cartographie de l'éprouvette A2T1-77 (10^{-4} s^{-1} , $10^{-3} \text{ g}\cdot\text{g}^{-1}$, 6.6%). 560 images au grossissement x500 ont été utilisées. L'image originale a une résolution de 6900x25000 pixels.

Tableau IV.3 : Statistiques de fissuration d'éprouvettes testées à 10^{-4} s^{-1} , obtenues à partir de cartographies des surfaces d'amorçage. N_{fis} est le nombre de fissures observées, D_{fis} la densité de fissures, $L_{\text{fis}}^{\text{moy}}$ la longueur moyenne des fissures et $L_{\text{fis}}^{\text{tot}}$ la longueur totale fissurée.

Nom	$\dot{\epsilon}$ (s ⁻¹)	[I ₂] (g·g ⁻¹)	ϵ_p^f (%)	N_{fis}	D_{fis} (mm ⁻²)	$L_{\text{fis}}^{\text{moy}}$ (μm)	$L_{\text{fis}}^{\text{tot}}$ (μm)
A2L1-26	10 ⁻⁴	2 10 ⁻⁵	4.27	3	0.4	18.9	75.8
A2L1-16	10 ⁻⁴	3 10 ⁻⁵	3.13	3	0.4	16.1	48.4
A2L1-20	10 ⁻⁴	6 10 ⁻⁵	3.03	11	1.4	17.3	190.4
A2L1-01	10 ⁻⁴	1 10 ⁻⁴	3.29	18	2.3	21.0	378.2
A2L1-12	10 ⁻⁴	3 10 ⁻⁴	2.22	11	1.4	38.5	423.7
A2L1-02	10 ⁻⁴	1 10 ⁻³	3.25	208	26.0	32.6	6787.2
A2T1-31	10 ⁻⁴	3 10 ⁻⁵	3.42	4	0.5	14.5	58.0
A2T1-38	10 ⁻⁴	1 10 ⁻⁴	3.22	21	2.6	30.9	649.6
A2T1-67	10 ⁻⁴	1 10 ⁻⁴	7.17	241	30.1	19.0	4572.2
A2T1-33	10 ⁻⁴	3 10 ⁻⁴	3.38	78	9.8	23.6	1844.4
A2T1-52	10 ⁻⁴	6.3 10 ⁻⁴	3.34	10	1.3	28.6	286.1
A2T1-37	10 ⁻⁴	1 10 ⁻³	1.32	3	0.4	56.8	170.3
A2T1-23	10 ⁻⁴	1 10 ⁻³	3.93	195	24.4	37.1	7234.8
A2T1-77	10 ⁻⁴	1 10 ⁻³	6.63	319	39.9	67.3	21464.7

sont cohérentes avec les données des cinétiques de fissuration obtenues par Serres dans son étude sur Zircaloy-4 recristallisé à température ambiante en milieu méthanol iodé : entre 1.3 et $3.6 \cdot 10^{-1} \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ pour des concentrations en iode comprises entre $5 \cdot 10^{-5}$ et $5 \cdot 10^{-4} \text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ (Serres 2008).

IV.1.1.2.3 Cartographies d'éprouvettes

Après les essais interrompus ou à rupture décrits précédemment, les surfaces d'amorçage de certaines éprouvettes ont été cartographiées à l'aide d'une platine motorisée 3 axes installée sur le microscope optique. Le but de cette cartographie est d'évaluer la densité et la longueur moyenne de fissures de CSC-I en fonction des conditions d'essai.

Pour ne pas saturer la mémoire de l'ordinateur contrôlant les prises de vue, un grossissement $\times 500$ est utilisé. Les surfaces peuvent ainsi être complètement balayées avec moins de 600 images. A chaque prise de vue, un autofocus rudimentaire est utilisé ; il choisit l'image la plus nette parmi les 15 acquises sur un intervalle de hauteur prédéfini. Ainsi, la cartographie de l'éprouvette prend jusqu'à 5 heures. Une telle cartographie est présentée en Figure IV.8. Cette figure illustre deux points abordés précédemment. Ce faciès de rupture est constitué d'au moins 7 fissures de CSC-I, reliées entre elles par des déchirures ductiles. On remarque également l'orientation à 90° des fissures par rapport à l'axe de l'éprouvette.

Avec le grossissement utilisé ici, on ne mesure que des fissures de plus de $10 \mu\text{m}$ de longueur, les autres étant trop difficiles à distinguer. De plus, on ne peut modifier la direction de la lumière polarisée pendant la cartographie, pour atténuer les effets d'ombrages. Lors du décompte des fissures, on ne garde que celles pour lesquelles il n'y a pas de doute. Dans ces conditions, il se peut qu'on minimise le nombre de fissures pour les fortes déformations.

Le Tableau IV.3 regroupe les statistiques obtenues sur différentes cartographies réalisées. A partir des données de ce tableau, il est possible de tracer différentes courbes pour mettre en évidence les paramètres influents sur l'amorçage et la propagation des fissures.

Des éprouvettes ont été choisies pour leur niveau final similaire de déformation plastique ε_p^f . On dispose ainsi de 4 éprouvettes de direction T pour un ε_p^f compris entre 3.22% et 3.42%, et de 4 éprouvettes de direction L pour un ε_p^f compris entre 3.03% et 3.29%. L'influence de la concentration sur la densité de fissures est alors mise en évidence, indépendamment de ε_p^f , sur la Figure IV.9 : quelle que soit la direction de prélèvement des éprouvettes, l'évolution de la densité de fissures avec la concentration en iode semble à peu près linéaire pour des concentrations inférieures à $10^{-4} \text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ (avec une échelle logarithmique), elle devient exponentielle au-delà. Cela correspond au passage de la concentration de transition I_1 mentionnée précédemment. Il apparaît donc que les deux mécanismes d'amorçage des fissures de CSC-I se différencieraient non seulement par l'importance de la déformation plastique sur l'amorçage, mais aussi par la densité d'amorces beaucoup plus importante pour le mécanisme observé à forte concentration en iode.

De plus, les résultats montrent qu'une augmentation de la concentration en iode favorise également la propagation des fissures (Figure IV.9) : la longueur moyenne des fissures augmente avec la concentration en iode de manière quasi-linéaire. On n'observe pas d'accélération de la propagation des fissures au passage de la concentration de transition. Globalement, la longueur moyenne des fissures est multipliée par 2 quand la concentration en iode est multipliée par 50. Ces observations sont cohérentes avec les vitesses de

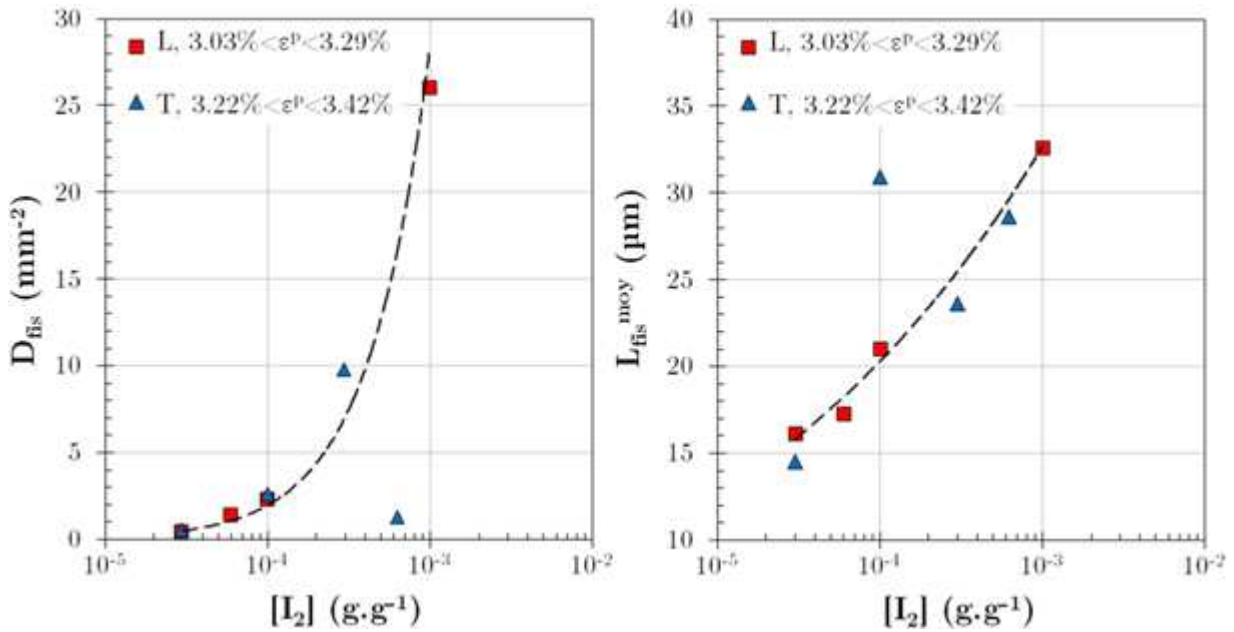


Figure IV.9 : Influence de la concentration sur la densité de fissures (gauche) et la longueur moyenne des fissures (droite), pour des essais à 10^{-4} s^{-1} , avec des déformations finales proches de 3%, dans les directions T (triangles bleus) et L (carrés rouge).

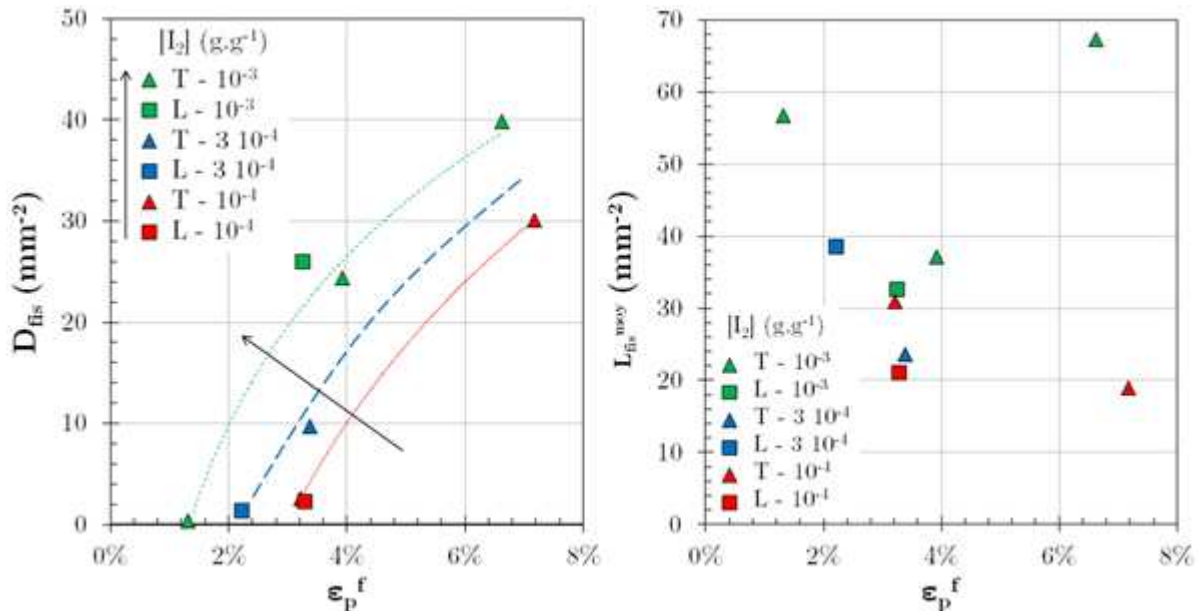


Figure IV.10 : Influence de la déformation plastique sur la densité de fissures (gauche) et la longueur moyenne des fissures (droite), pour des essais à 10^{-4} s^{-1} , pour des éprouvettes prélevées dans les directions T et L, à différentes concentrations en iode.

propagation moyennes calculées à partir d'éprouvettes rompues (Tableau IV.2). Ainsi, même si la concentration en iode a un impact sur la vitesse de propagation des fissures de CSC-I, la transition vers les fortes concentrations aurait plus d'impact sur l'amorçage que sur la propagation des fissures.

La Figure IV.10 rend compte de l'influence de la déformation sur la densité de fissures et sur leur longueur moyenne, pour différentes concentrations en iode. A une concentration donnée, une augmentation de la déformation plastique se traduit par un accroissement de la densité de fissures, pour les deux directions testées. Par exemple à 10^{-4} g.g^{-1} , la densité de fissures est multipliée par 3 quand la déformation plastique passe de 4 à 7%. Les mêmes tendances sont observées pour les différentes concentrations en iode testées. Autrement dit, l'effet de concentration est présent à toute déformation, et pas seulement à 3%.

L'influence de la déformation plastique sur la longueur moyenne de fissure n'est pas clairement établie. A l'exception d'un point, la tendance serait plutôt à une diminution de la longueur moyenne quand la déformation augmente, et cela pour les trois concentrations utilisées. Une explication possible de cette tendance serait l'interaction ou l'écrantage des différentes fissures. Effectivement, la déformation favorise beaucoup l'amorçage des fissures ; toutefois, plus il y a de fissures et plus la contrainte autour de ces fissures va être relaxée entraînant un ralentissement de la propagation des fissures qui sont alors plus courtes.

Les résultats obtenus ont montré que l'influence de la déformation et de la concentration en iode sur la densité de fissures et sur leur longueur moyenne est similaire pour les deux directions testées. Or, pour les domaines de fissuration, des différences ont été mises en évidence entre les deux directions testées. Il est probable que le nombre d'essais réalisés ici ne soit pas suffisant pour discriminer les deux directions pour ce qui concerne la sensibilité à la CSC-I.

IV.1.1.3 Etudes de la variabilité des résultats

En plus des rampes de déformation, deux autres chargements ont été utilisés lors d'essais sur éprouvettes lisses dans le domaine plastique. Le but de ces essais est d'observer la reproductibilité des essais à rupture, aux faibles vitesses de déformation.

Les caractéristiques de ces essais sont données dans le Tableau IV.4. Le premier type de chargement consiste en une rampe de déformation à 10^{-4} s^{-1} jusqu'à une déformation totale conventionnelle de 2% (déformation plastique rationnelle de 0.5% environ), suivie d'un maintien de la force jusqu'à la rupture. Il s'agit donc d'essais de fluage. Lors du régime de fluage secondaire, la vitesse de déformation plastique est proche de 10^{-5} s^{-1} . Le deuxième type de chargement est une double rampe de déformation, à la vitesse de 10^{-4} s^{-1} jusqu'à 2% de déformation totale conventionnelle, puis à 10^{-5} s^{-1} jusqu'à rupture. Les courbes rationnelles de ces essais sont données en Figure IV.11. Les deux types de chargement ne sont pas rigoureusement identiques : les essais de fluage se déforment globalement plus vite car la transition entre la mise en charge et le régime de fluage secondaire n'est pas instantanée.

D'après le domaine de fissuration identifié à 10^{-4} s^{-1} , la première rampe de déformation ne mène pas à un endommagement du matériau.

Le domaine de fissuration identifié à 10^{-5} s^{-1} montre, qu'à la concentration considérée pour les essais double-rampe, une simple rampe de déformation mène à la rupture pour une déformation de 2.34% (essai A2T1-60 du Tableau IV.1). Pour les essais double-rampe, la

Tableau IV.4 : Essais complémentaires réalisés avec des chargements composés. ϵ^p et ϵ_p^f désignent respectivement la déformation plastique rationnelle et la déformation plastique rationnelle à la fin de l'essai.

Dir.	Nom	Chargement	[I ₂] (g.g ⁻¹)	ϵ_p^f
T	A2T1-45	$\epsilon_p = 0 \xrightarrow{10^{-4}s^{-1}} 0.52\% \xrightarrow{F_{constante}} \text{rupture}$	$5.4 \cdot 10^{-4}$	4.70%
T	A2T1-48	$\epsilon_p = 0 \xrightarrow{10^{-4}s^{-1}} 0.50\% \xrightarrow{F_{constante}} \text{rupture}$	$5.1 \cdot 10^{-4}$	4.06%
T	A2T1-49	$\epsilon_p = 0 \xrightarrow{10^{-4}s^{-1}} 0.39\% \xrightarrow{10^{-5}s^{-1}} \text{rupture}$	$5.8 \cdot 10^{-4}$	3.14%
T	A2T1-50	$\epsilon_p = 0 \xrightarrow{10^{-4}s^{-1}} 0.46\% \xrightarrow{10^{-5}s^{-1}} \text{rupture}$	$5.8 \cdot 10^{-4}$	2.30%

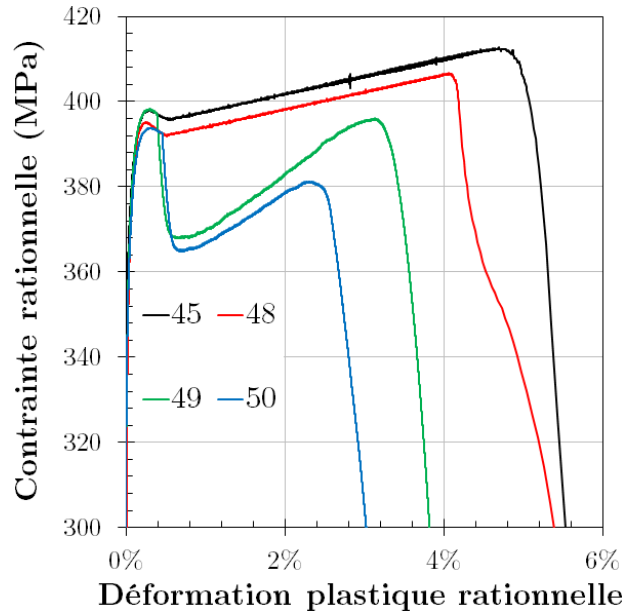


Figure IV.11 : Courbes rationnelles des essais avec chargements composés.

déformation cumulée à 10^{-5} s^{-1} est de 1.84% et 2.75%, pour les éprouvettes A2T1-50 et A2T1-49 respectivement. Les résultats des essais double rampe encadrent donc le résultat de l'essai simple rampe correspondant. Il se pourrait qu'une pré-déformation plastique à 0.39% ait un effet positif sur la rupture des éprouvettes, alors qu'à 0.46%, l'effet serait négatif. Mais, à ce stade, l'explication qui apparaît la plus plausible est que ces essais mettent en relief la variabilité des résultats d'un essai à l'autre.

Cette variabilité est observée sur les essais de fluage également. En effet, un écart de déformation plastique à rupture de 0.7% est observé, pour un même chargement. L'écart des concentrations utilisées est de 6% et de plus l'éprouvette testée à la plus forte concentration est celle qui rompt le plus tard. On estime alors l'écart-type absolu des déformations à rupture à 0.4%.

Ces résultats mènent alors à s'interroger sur l'incertitude des déformations à l'amorçage obtenues lors de l'établissement des domaines de fissuration (paragraphe IV.1.1.2.2). L'incertitude pourrait seulement porter sur la propagation et la rupture. Mais, lors du balayage des conditions pour l'obtention des domaines de fissuration, les essais n'ont pas été doublés car ils étaient déjà très nombreux. On ne dispose donc que d'une éprouvette pour une vitesse, une concentration et une déformation finale données. En revanche, on peut observer quelques anomalies présentes sur ces domaines (Figure IV.6), à savoir des points situés du mauvais côté de la délimitation fissuré/non fissuré.

Pour la direction T, à 10^{-3} s^{-1} et 10^{-4} s^{-1} , aucune anomalie n'est relevée. En revanche, à 10^{-5} s^{-1} , deux anomalies sont présentes. La première concerne l'éprouvette A2T1-85 qui a rompu à $\varepsilon_p^f = 1.51\%$, alors que l'éprouvette A2T1-42 ne présentait que des fissures à $\varepsilon_p^f = 1.77\%$ à la même concentration de $3 \cdot 10^{-4} \text{ g.g}^{-1}$. Cette anomalie peut être imputable à la variabilité des déformations à rupture discutée précédemment. L'autre anomalie concerne l'éprouvette A2T1-62, testée à $6 \cdot 10^{-5} \text{ g.g}^{-1}$, qui a rompu à $\varepsilon_p^f = 3.25\%$, alors que les éprouvettes A2T1-61 et A2T1-70 ne présentaient même pas de fissures pour des ε_p^f de 6.49% et 9.43% respectivement. L'analyse du faciès de rupture de l'éprouvette A2T1-62 au MEB n'a pas révélé d'amorçage prématuré sur les tranches de l'éprouvette, ni de défaut préexistant pouvant expliquer un tel résultat. Ces résultats mettent également en relief la variabilité des résultats.

Pour la direction L, et donc à 10^{-4} s^{-1} , le tracé de la délimitation laisse apparaître une anomalie à la concentration de $3 \cdot 10^{-4} \text{ g.g}^{-1}$, pour l'éprouvette A2L1-13. Cette éprouvette non fissurée apparaît dans le domaine fissuré. En réalité, ce n'est qu'une conséquence du tracé simplifié du domaine de fissuration.

On estime alors que la reproductibilité des essais est assez bonne, et particulièrement pour les vitesses les plus importantes. A la plus faible vitesse, en ne considérant que l'amorçage des fissures et pas la propagation, il n'y a qu'un seul point qui pourrait être aberrant (le résultat A2T1-62 comparé aux résultats A2T1-61 et A2T1-70).

La comparaison entre fluage et double-rampe laisse penser que le mode de pilotage des essais n'a pas d'influence sur la rupture des éprouvettes. Tous ces résultats valident à la fois le dispositif expérimental et la méthode de détection des fissures.

IV.1.1.4 Estimation du $K_{IG/M}$

On a vu dans la bibliographie que le passage d'une fissuration intergranulaire à une fissuration transgranulaire ou mixte était gouverné par le facteur d'intensité des contraintes en pointe de fissure, que l'on appellera $K_{IG/M}$. A partir des observations des faciès de rupture au MEB, il est possible de délimiter les zones de propagation intergranulaire. En utilisant de plus des formules analytiques empiriques pour calculer le facteur d'intensité de contrainte en mode I en pointe de fissure, on peut estimer la valeur de ces facteurs à la transition intergranulaire/mixte (IG/M). On considère les formules analytiques de Newman et Raju obtenues à partir de calculs par éléments finis, dans le cadre de solides tridimensionnels fissurés soumis à une contrainte de traction uniaxiale et uniforme, appliquée loin de la fissure (Newman 1984). Les fissures prises en compte sont semi-elliptiques, centrées par rapport à la largeur de la plaque, s'amorcent en surface et se propagent dans l'épaisseur perpendiculairement à l'axe de sollicitation. Dans ces conditions, une formule est disponible pour calculer K_I :

$$K_I = S \sqrt{\frac{\pi \cdot a}{Q \left(\frac{a}{c}\right)}} F_S \left(\frac{a}{c}, \frac{a}{t}, \frac{c}{b}, \varphi\right) \quad \text{Eq. IV.1}$$

avec S la contrainte appliquée sur la section de barre, Q le facteur de forme et F_S une fonction prenant en compte les dimensions finies de la section et l'angle paramétrique de l'ellipse du point considéré sur le front de fissure (non détaillée ici). Les paramètres a, b, c, t et φ sont décrits sur la Figure IV.12.

Pour un essai de CSC-I mené jusqu'à rupture, les observations MEB nous permettent de déterminer les dimensions du défaut (a, b, c et t), comme illustré sur la Figure IV.12. Pour la contrainte S, on choisit de prendre la contrainte rationnelle maximale durant l'essai. Le

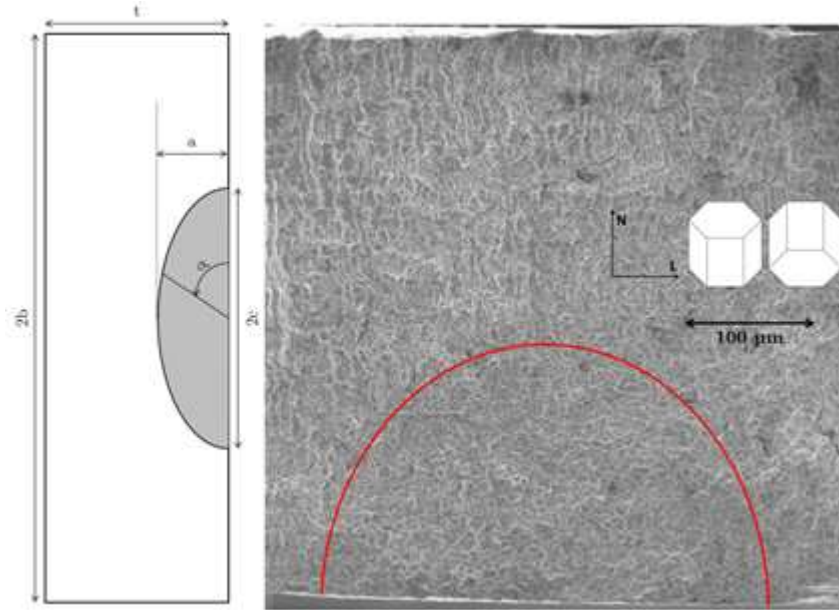


Figure IV.12 : Description des paramètres de l'équation du calcul de KI (gauche). Délimitation de la zone de propagation intergranulaire d'une fissure de CSC-I de l'éprouvette A2T1-63 (droite).

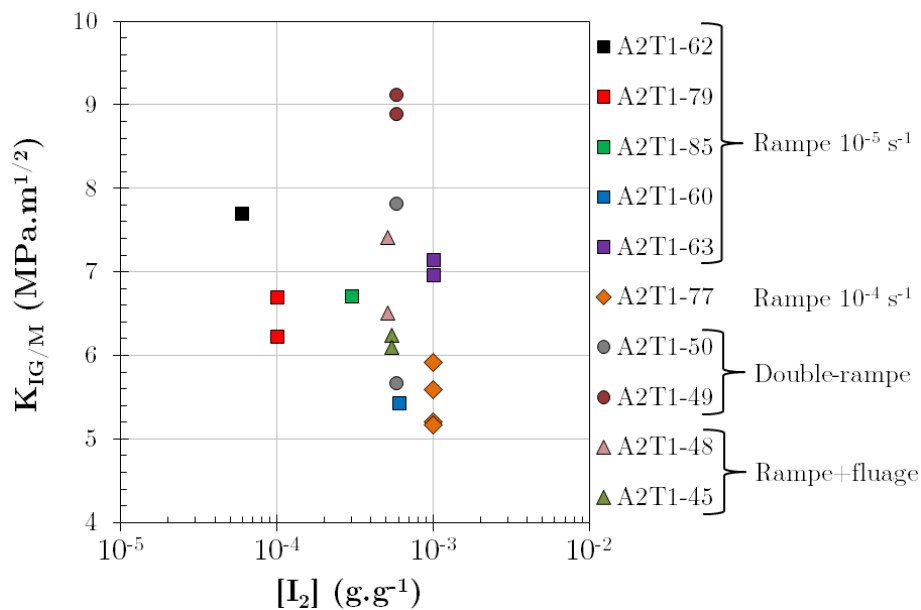


Figure IV.13 : Valeurs du $K_{IG/M}$ en fonction de la concentration en iode, pour les différents types d'essais à rupture réalisés sur éprouvettes lisses.

facteur d'intensité des contraintes est alors moyenné sur le front de fissure, de $\varphi=0$ à $\varphi=180$. Malgré la présence de plusieurs amorces de CSC-I sur un même faciès, on choisit d'appliquer la formule en dehors de son domaine de validité. On obtient ainsi plusieurs valeurs de $K_{IG,M}$ par faciès.

Les résultats sont présentés sur la Figure IV.13, rangés par type d'essais effectués. Les valeurs sont très dispersées et il ne se dégage pas vraiment de tendance en fonction de la concentration. La variabilité des longueurs de fissures et la simplicité de la méthode sont peut-être en cause. On peut également penser que la valeur du $K_{IG/M}$ varie peu avec la

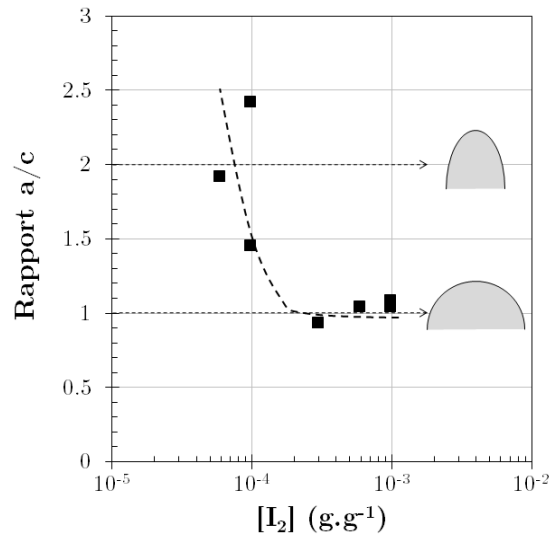


Figure IV.14 : Evolution du rapport de forme a/c de la zone intergranulaire en fonction de la concentration en iode des solutions pour les essais à 10^{-5} s^{-1} . Illustration de la forme de la zone pour un rapport de 1 et de 2.

concentration. Cela signifierait que l'augmentation de la concentration favorise autant la propagation intergranulaire que transgranulaire. Dans ce cas-là, on détermine une valeur moyenne et un écart-type à partir de tous les essais, $K_{IG/M} = 6.4 \pm 1.3 \text{ MPa.m}^{1/2}$. Si on ne considère que les essais mono-rampe à 10^{-5} s^{-1} , on trouve $K_{IG/M} = 6.6 \pm 0.9 \text{ MPa.m}^{1/2}$.

On ne dispose que d'un seul essai rompu à la vitesse de 10^{-4} s^{-1} , à 10^{-3} g.g^{-1} , avec cinq valeurs de $K_{IG/M}$. En moyenne, on obtient une valeur de $5.3 \text{ MPa.m}^{1/2}$. Pour la même concentration, à 10^{-5} s^{-1} , on trouve en moyenne $8.0 \text{ MPa.m}^{1/2}$. On aurait donc une forte influence de la vitesse de déformation sur le facteur de transition. Cet effet traduirait plutôt l'influence du temps sur la taille de la zone intergranulaire. En effet, plus la vitesse de déformation est lente, plus la durée de l'essai est longue et l'étendue de la propagation intergranulaire importante. $K_{IG/M}$ est proportionnel à la racine de cette étendue. Ce point sera discuté dans la suite.

L'utilisation de cette méthode a permis d'observer avec attention les formes des zones de propagation intergranulaire et notamment le rapport (a/c). Quand celui-ci vaut 1, la fissure est circulaire. S'il est supérieur à 1, la fissure est plus profonde que large. L'évolution de ce rapport en fonction de la concentration est donnée sur la Figure IV.14 pour les essais de rampe à 10^{-5} s^{-1} . On remarque une évolution de la forme de la fissure avec la concentration en iode, alors qu'aucune tendance sur $K_{IG/M}$ n'apparaissait. Aux faibles concentrations, les fissures sont deux fois plus allongées qu'à forte concentration. Le mode de propagation des fissures serait également affecté par une augmentation de la concentration en iode.

IV.1.2 Eprouvettes entaillées

IV.1.2.1 Conditions d'étude et essais réalisés

Pour étudier l'effet de la biaxialité des contraintes, on utilise les éprouvettes avec entailles circulaires de type 8, 9, 10 et 11. La géométrie de ces éprouvettes a déjà été présentée (§ II.2.1). On en rappelle ici les principales caractéristiques : rayons d'entaille respectifs de 0.3, 0.5, 0.7 et 1 mm, pour une seule largeur de ligament de 1 mm. La largeur de la « zone utile » au-delà de l'entaille est de 2 mm.

Tableau IV.5 : Liste des essais de CSC-I sur éprouvettes entaillées, réalisés à vitesse de déplacement imposée. Les noms d'éprouvettes en gras indiquent la présence de fissures. Quand la déformation plastique macroscopique E^P à la contrainte maximale n'est pas celle de la fin de l'essai, elle est indiquée entre parenthèses.

Essais interrompus					
Nom	R_{entaille} (mm)	\dot{E} (s^{-1})	$[I_2]$ ($g \cdot g^{-1}$)	Σ_{max} (MPa)	E^P_f (%)
A2T8-5	0.3	10^{-4}	10^{-4}	480.7	2.21
A2T8-15	0.3	10^{-4}	10^{-4}	495.0	2.81
A2T8-12	0.3	10^{-4}	10^{-4}	487.0	0.80
A2T8-16	0.3	10^{-4}	10^{-4}	498.5	3.66
A2T8-6	0.3	10^{-4}	10^{-4}	502.1	4.88
A2T8-11	0.3	10^{-4}	10^{-4}	507.3	5.83
A2T8-13	0.3	10^{-4}	10^{-4}	507.3	8.92 (7.18)
A2T9-3	0.5	10^{-4}	10^{-4}	480.0	0.98
A2T9-4	0.5	10^{-4}	10^{-4}	490.0	1.64
A2T9-6	0.5	10^{-4}	10^{-4}	495.0	1.81
A2T9-2	0.5	10^{-4}	10^{-4}	500.0	2.04
A2T9-5	0.5	10^{-4}	10^{-4}	505.0	3.76
A2T10-6	0.7	10^{-4}	10^{-4}	359.8	0.00
A2T10-7	0.7	10^{-4}	10^{-4}	456.2	0.28
A2T10-8	0.7	10^{-4}	10^{-4}	480.0	0.76
A2T10-9	0.7	10^{-4}	10^{-4}	488.0	1.15
A2T10-5	0.7	10^{-4}	10^{-4}	495.6	1.74
A2T10-4	0.7	10^{-4}	10^{-4}	500.9	2.28
A2T10-2	0.7	10^{-4}	10^{-4}	500.1	2.60
A2T11-6	1	10^{-4}	10^{-4}	402.3	0.04
A2T11-9	1	10^{-4}	10^{-4}	439.9	0.15
A2T11-5	1	10^{-4}	10^{-4}	451.2	0.26
A2T11-4	1	10^{-4}	10^{-4}	464.5	0.37
A2T11-7	1	10^{-4}	10^{-4}	464.8	0.63
A2T11-3	1	10^{-4}	10^{-4}	493.6	2.14
A2T11-2	1	10^{-4}	10^{-4}	503.3	2.85
Essais menés à rupture					
Nom	R_{entaille} (mm)	\dot{E} (s^{-1})	$[I_2]$ ($g \cdot g^{-1}$)	Σ_{max} (MPa)	E^P_f (%)
A2T8-1	0.3	10^{-3}	10^{-3}	563.4	24.93 (14.18)
A2T8-2	0.3	10^{-3}	10^{-4}	575.7	43.83 (14.96)
A2T8-3	0.3	10^{-3}	10^{-5}	572.2	57.81 (15.26)
A2T8-4	0.3	10^{-4}	10^{-4}	504.8	47.19 (4.65)
A2T9-1	0.5	10^{-4}	10^{-4}	507.8	21.18 (5.75)
A2T10-1	0.7	10^{-4}	10^{-4}	506.4	11.39 (4.00)
A2T11-1	1	10^{-4}	10^{-4}	505.5	14.53 (3.15)
A2T11-8	1	$3 \cdot 10^{-5}$	10^{-4}	476.2	8.15 (2.41)

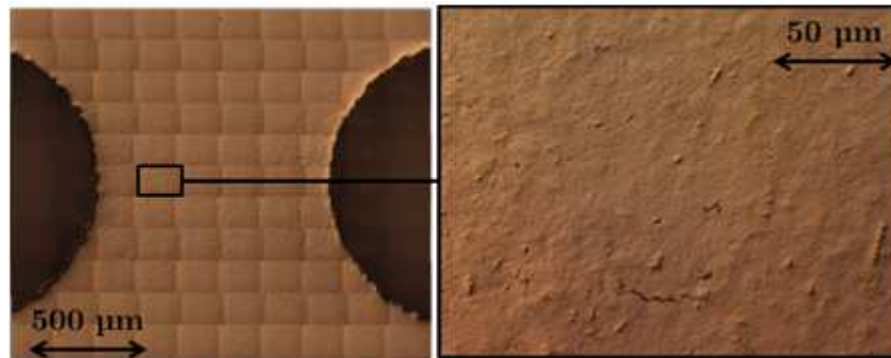


Figure IV.15 : Cartographie de l'éprouvette A2T9-2. Zoom sur une zone présentant une fissure intergranulaire.

A partir des domaines de fissuration identifiés sur éprouvettes lisses, l'effet de la concentration en iode a été mis en évidence sur l'amorçage des fissures. Etant donné le temps nécessaire à l'exploitation d'un essai de CSC-I, il n'a pas été possible de balayer l'ensemble des concentrations pour les éprouvettes entaillées. On a donc choisi de se placer à une seule concentration, 10^{-4} g.g^{-1} . Cette concentration est plus faible que la concentration de transition I_1 . On se place donc au niveau des plateaux de déformation plastique à l'amorçage où la mécanique semble jouer un rôle important sur l'amorçage. A ce titre, l'effet de la biaxialité des contraintes, s'il existe, y serait plus visible.

Les notations du chapitre précédent concernant les éprouvettes entaillées sont conservées. On appellera ainsi E la déformation macroscopique, rapport du déplacement de la traverse de la machine et du diamètre de l'entaille considérée, \dot{E} sa dérivée temporelle et Σ la contrainte conventionnelle macroscopique, rapport de la force appliquée sur l'éprouvette par la section initiale entre les entailles. A partir des courbes Σ - E , on définit la déformation plastique macroscopique E^p , comme on le ferait pour les essais uniaxiaux. On utilisera également U^p , le déplacement plastique macroscopique pour comparer les différentes géométries d'éprouvettes. U^p est le produit de E^p par le diamètre d'entaille.

Les essais rapportés dans ce paragraphe ont été réalisés à vitesse de déformation macroscopique \dot{E} constante. La plupart ont été interrompus. Comme pour les éprouvettes lisses, on utilise les essais interrompus pour déterminer les conditions à l'amorçage des fissures de CSC-I. Une seule vitesse de déformation macroscopique \dot{E} de 10^{-4} s^{-1} a été utilisée. Ce choix est guidé par la recherche d'un compromis entre les faibles vitesses pour lesquelles la reproductibilité est moins bonne et les fortes vitesses synonymes de faibles durées d'essais, défavorables du point de vue de la corrosion.

Des essais à rupture ont également été menés, souvent avant les essais interrompus, pour vérifier que dans les conditions expérimentales choisies, la CSC-I était active pour chaque type d'éprouvette. Quelques essais à rupture ont été menés en changeant la vitesse de déformation et/ou la concentration. Tous les essais sont listés dans le Tableau IV.5. Il est à noter qu'on ne dispose pas d'essai en milieu inerte pour comparaison.

La méthode d'exploitation des essais est similaire à ce qui a déjà été présenté. Pour les essais à rupture, les faciès sont observés au MEB pour déterminer l'étendue des propagations intergranulaires et transgranulaires (fragiles ou ductiles). Les surfaces d'amorçage des essais interrompus sont observées au microscope optique pour la détection des fissures. Si des fissures sont trouvées, la surface est cartographiée, comme cela est illustré en Figure IV.15.

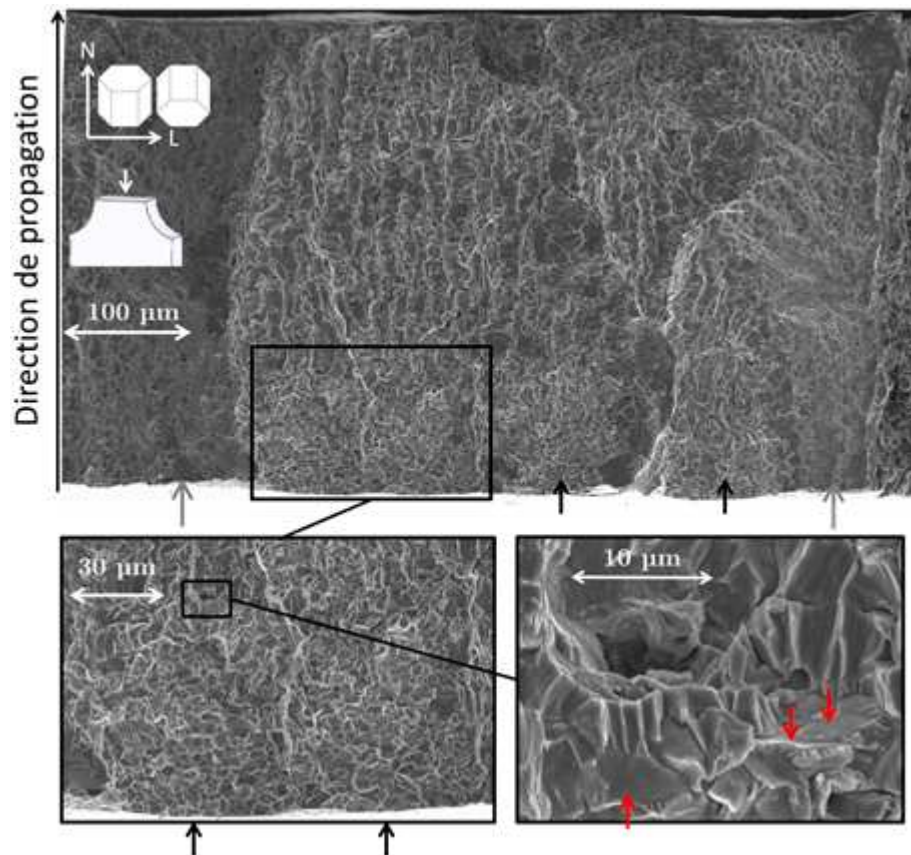


Figure IV.16 : Faciès de rupture de l'éprouvette A2T10-1. Les flèches noires indiquent des amorces de fissures de CSC-I, les flèches grises les déchirures ductiles près des tranches de l'éprouvette. On observe la présence plus importante du quasi-clivage (flèches rouges).

IV.1.2.2 Résultats et analyse

IV.1.2.2.1 Phénoménologie de la fissuration

La phénoménologie est observée sur les éprouvettes rompues. Elle est très proche de ce qui a été montré pour les éprouvettes lisses. Elle est illustrée par le cas de l'éprouvette A2T10-1 en Figure IV.16. L'amorçage et le début de la propagation sont intergranulaires. L'étendue de la zone intergranulaire semble dépendre de la géométrie de l'éprouvette et apparaît plus faible que dans le cas des éprouvettes lisses. Elle ne dépasse pas 100 µm dans les conditions choisies. Au-delà de cette zone intergranulaire, on retrouve la propagation mixte avec présence de fluting et aussi de quasi-clivage. La présence du quasi-clivage semble renforcée par rapport aux éprouvettes lisses mais ce mode de fissuration reste marginal. L'étendue de la zone mixte semble elle-aussi moins importante, au profit de la rupture finale, à caractères ductiles et fragiles (Figure IV.3), qui occupe entre la moitié et les deux tiers de l'épaisseur.

Les lieux de rupture sont tous situés au niveau des entailles, proches du ligament (largeur minimale d'éprouvettes). Comme pour les éprouvettes lisses, les faciès de rupture sont constitués de plusieurs fissures de CSC-I reliées les unes aux autres par des déchirures ductiles. Dans ces conditions de vitesse de déformation et de concentration, les essais sur éprouvettes lisses ne mènent pas à rupture, même pour 10% de déformation plastique. La concentration de contrainte, la triaxialité et la localisation de la déformation, toutes dues à la présence des entailles, pourraient être responsable du résultat observé ici en favorisant la rupture ductile finale des éprouvettes.

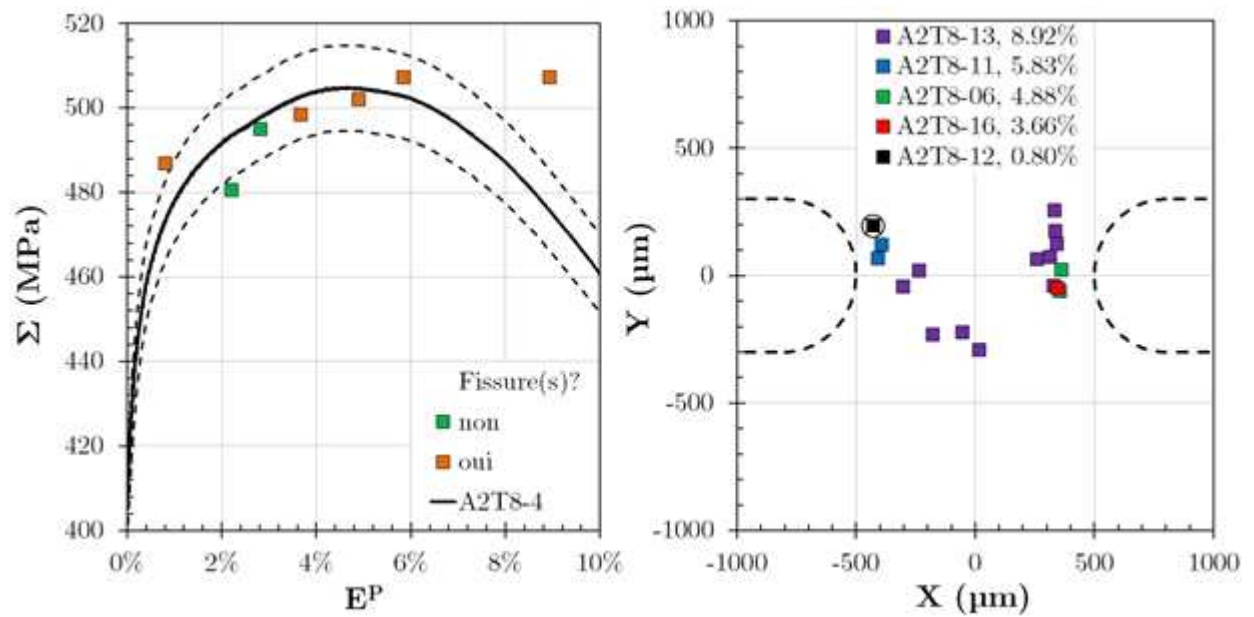


Figure IV.17 : Détermination de la déformation plastique à l'amorçage E^P pour les éprouvettes de type 8 ($R=0.3$ mm) par la réalisation d'essais interrompus (gauche). Superposition de la courbe de l'essai à rupture (trait continu), avec un intervalle d'erreur de 2% (traits pointillés). Localisation des fissures sur la face d'amorçage, après cartographies des essais interrompus (droite). Ajout du profil du type d'éprouvette. Le cercle barré correspond à un essai jugé non représentatif (voir texte).

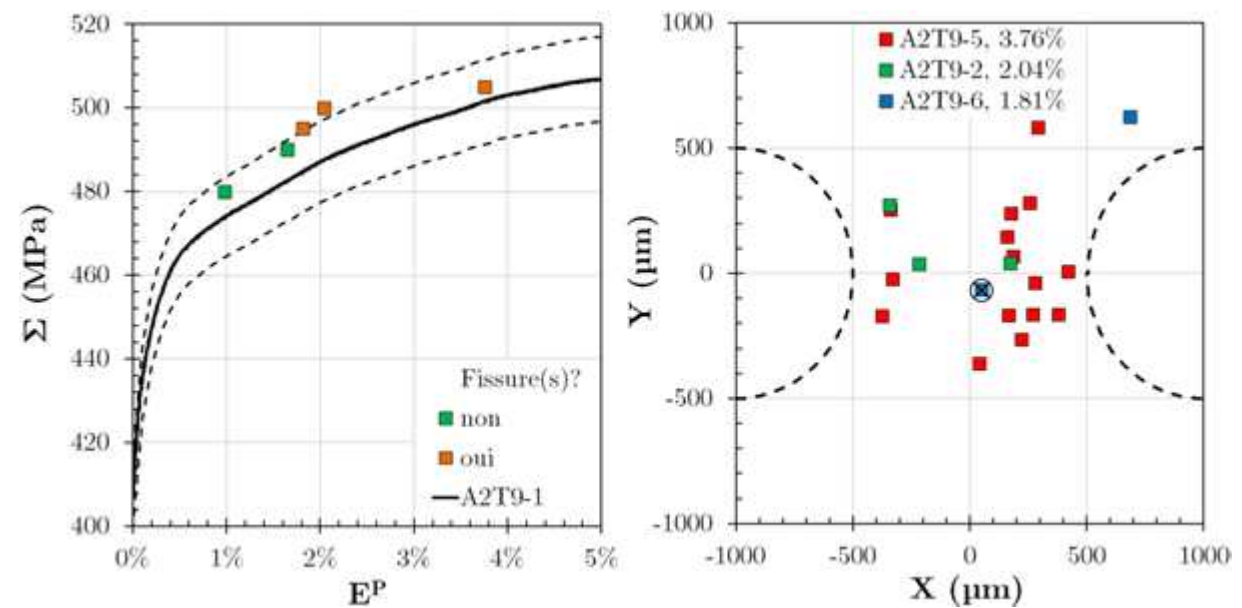


Figure IV.18 : Détermination de la déformation plastique à l'amorçage E^P pour les éprouvettes de type 9 ($R=0.5$ mm) par la réalisation d'essais interrompus (gauche). Superposition de la courbe de l'essai à rupture (trait continu), avec un intervalle d'erreur de 2% (traits pointillés). Localisation des fissures sur la face d'amorçage, après cartographies des essais interrompus (droite). Ajout du profil du type d'éprouvette. Le cercle barré correspond à un essai jugé non représentatif (voir texte).

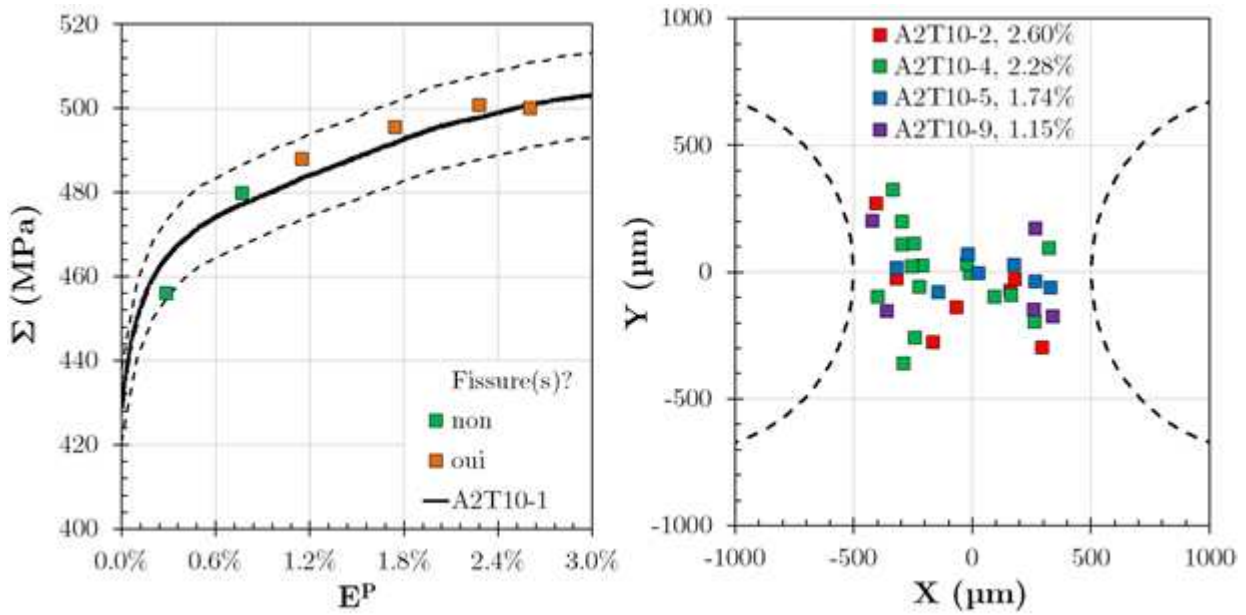


Figure IV.19 : Détermination de la déformation plastique à l'amorçage E^P pour les éprouvettes de type 10 ($R=0.7$ mm) par la réalisation d'essais interrompus (gauche). Superposition de la courbe de l'essai à rupture (trait continu), avec un intervalle d'erreur de 2% (traits pointillés). Localisation des fissures sur la face d'amorçage, après cartographies des essais interrompus (droite). Ajout du profil du type d'éprouvette.

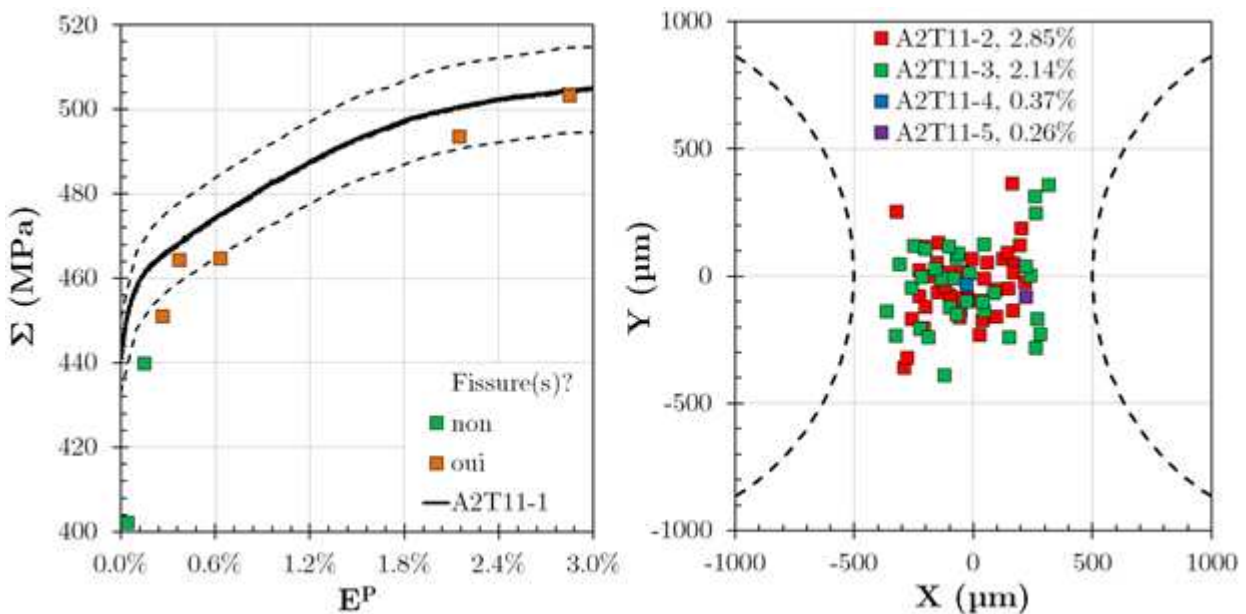


Figure IV.20 : Détermination de la déformation plastique à l'amorçage E^P pour les éprouvettes de type 11 ($R=1.0$ mm) par la réalisation d'essais interrompus (gauche). Superposition de la courbe de l'essai à rupture (trait continu), avec un intervalle d'erreur de 2% (traits pointillés). Localisation des fissures sur la face d'amorçage, après cartographies des essais interrompus (droite). Ajout du profil du type d'éprouvette.

Tableau IV.6 : Statistiques des fissures obtenues après cartographies des surfaces d'amorçage. L'écart-type concerne la longueur des fissures. ϑ_{fis} est l'angle entre la fissure et l'axe de l'éprouvette et $\vartheta_{\text{fis}}^{\text{moy}}$ sa valeur moyenne.

Nom	E_f^p (%)	N_{fis}	$L_{\text{fis}}^{\text{moy}}$ (μm)	$L_{\text{fis}}^{\text{tot}}$ (μm)	Ecart-type (μm)	$\vartheta_{\text{fis}}^{\text{moy}}$ ($^\circ$)
A2T8-12	0.80%	1	33.5	33.5	-	99.1
A2T8-16	3.66%	1	11.2	11.2	-	61.7
A2T8-6	4.88%	2	8.1	16.2	0.6	92.4
A2T8-11	5.83%	2	18.0	36.1	4.7	77.8
A2T8-13	8.92%	11	35.7	393.2	41.6	91.0
A2T9-6	1.81%	2	31.6	63.2	38.5	96.5
A2T9-2	2.04%	3	53.4	160.2	14.3	84.1
A2T9-5	3.76%	15	19.4	291.3	5.8	91.5
A2T10-9	1.15%	5	43.4	217.0	29.2	103.0
A2T10-5	1.74%	7	22.2	155.5	8.5	89.4
A2T10-4	2.28%	16	25.3	405.0	11.1	91.7
A2T10-2	2.60%	7	36.0	251.9	14.4	89.0
A2T11-5	0.26%	1	15.9	15.9	-	101.3
A2T11-4	0.37%	1	14.4	14.4	-	100.6
A2T11-3	2.14%	33	20.2	667.9	9.8	91.4
A2T11-2	2.85%	40	31.0	1240.5	13.4	87.9

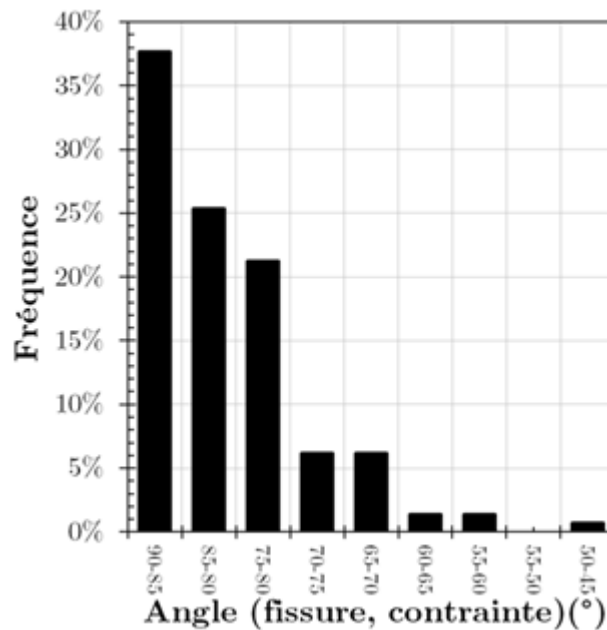


Figure IV.21 : Angle entre fissures et axe de l'éprouvette pour l'ensemble des essais sur éprouvettes entaillées présentant des fissures. 147 fissures ont été mesurées au total.

IV.1.2.2.2 Amorçage des fissures de CSC-I

Après chaque essai, la surface exposée au milieu est observée au microscope optique pour détecter la présence de fissures. A partir des courbes de traction, on calcule la déformation plastique macroscopique finale E_f^p ainsi que la contrainte macroscopique Σ_{\max} maximale de l'essai. En replaçant chaque essai sur un diagramme E^p - Σ , on peut estimer la déformation plastique macroscopique à l'amorçage E_{am}^p . Cela est fait sur la partie gauche de la Figure IV.17, de la Figure IV.18, de la Figure IV.19 et de la Figure IV.20, pour les éprouvettes de type 8, 9, 10 et 11 respectivement. On en déduit ainsi que E_{am}^p est compris entre 2.81% et 3.66% pour les éprouvettes de type 8, entre 1.64% et 1.81% pour celles de type 9, entre 0.76% et 1.15% pour celles de type 10 et entre 0.04% et 0.26% pour celles de type 11. Plus le rayon d'entaille est grand et plus la déformation à l'amorçage est petite. La déformation macroscopique n'est pas une mesure des déformations locales. Une même vitesse \dot{E} n'assure pas le même historique de chargement local, d'une géométrie à une autre. Pour cela, on ne fait que mentionner ces résultats, qui seront analysés plus finement avec les simulations numériques dans la suite.

Des cartographies des éprouvettes présentant des fissures sont donc réalisées, et les fissures sont alors comptées et positionnées sur la surface d'amorçage ; leur longueur est mesurée, tout comme leur orientation. Le chargement n'étant plus uniaxial, il se pourrait que les fissures ne soient plus perpendiculaires à l'axe des éprouvettes. La position des fissures est montrée sur la partie droite des figures mentionnées dans le paragraphe précédent. Les statistiques des fissures par essai sont données dans le Tableau IV.6.

A l'exception des éprouvettes de type 10 (0.7 mm), des essais interrompus ne présentant qu'une seule fissure ont été obtenus pour les autres types. Cela montre que l'encadrement des déformations à l'amorçage est plutôt bon, du moins par la limite supérieure.

L'évolution du nombre de fissures avec la déformation plastique macroscopique est beaucoup plus faible pour les faibles rayons d'entailles que pour les grands. Par exemple, pour les éprouvettes de type 11 (1.0 mm), entre l'apparition de la première fissure et l'observation de 40 fissures, seulement 2.47% de déformation supplémentaire a été nécessaire. Pour les éprouvettes de type 8 (0.3 mm), après 5% de déformation supplémentaire après l'apparition de la première fissure, on n'en compte que 11. Ce point illustre les différences de distribution des champs mécaniques locaux, et déjà l'effet positif de la biaxialité des contraintes sur la résistance à l'amorçage.

L'orientation des fissures a été mesurée en relevant les positions des extrémités des fissures en surface. Cette mesure est donc d'autant plus précise que la longueur de la fissure est importante. La Figure IV.21 montre la distribution des orientations des fissures par rapport à l'axe des éprouvettes. On remarque que plus de 80% des fissures observées sont orientées à 90° de l'axe, à plus ou moins 15°. Pour les essais aux plus fortes déformations et donc présentant le plus grand nombre de fissures, l'orientation moyenne des fissures est de 90°±3°. Ce point est important pour discerner les champs mécaniques critiques pour la fissuration. Il laisse supposer que la contrainte axiale (principale) joue un rôle prépondérant.

IV.1.2.2.3 Mise en évidence d'un effet de la biaxialité

La manifestation d'un effet de la biaxialité des contraintes sur l'amorçage des fissures de CSC-I est mise en évidence par la localisation des fissures. En effet, comme cela a été vu (§ III.3.1), la distribution des contraintes, déformations et rapport de contrainte locaux est fortement hétérogène sur les surfaces d'amorçage. En combinant les localisations des fissures, les déformations macroscopiques à l'amorçage et les champs mécaniques locaux

issus des calculs par éléments finis, on peut extraire les évolutions locales des champs mécaniques menant à l'amorçage.

En toute rigueur, il faudrait faire ce travail pour chaque fissure observée. Cependant, l'automatisation du procédé n'a pas été réalisée et le maillage utilisé pour les calculs devrait être affiné. Comme cela avait été indiqué au chapitre précédent, on va se limiter à l'étude de deux points sur le ligament, le centre, lieu de biaxialité maximale, et le bord, à 150 μm de la tranche.

A partir de la Figure IV.19 et de la Figure IV.20, respectivement pour les éprouvettes de types 10 ($R=0.7$ mm) et 11 ($R=1.0$ mm), il apparaît que les fissures s'amorcent d'abord au bord des éprouvettes (carrés violets) puis au centre après ajout de déformation (carrés bleus). Pour un lieu donné, centre ou bord, on estime la déformation plastique macroscopique à l'amorçage comme la moyenne entre celle du dernier essai non fissuré à ce lieu et celle du premier essai fissuré à ce lieu. Pour les éprouvettes de type 11, on estime alors que les fissures au bord apparaissent pour $E^p=0.21\%$ et au centre pour $E^p=0.32\%$. Pour les éprouvettes de type 10, on trouve respectivement 0.96% et 1.45% .

Pour les éprouvettes de type 9 ($R=0.5$ mm, Figure IV.18), on estime que les fissures s'amorcent au bord pour une déformation plastique de 1.93% . De plus, il apparaît qu'au centre de l'éprouvette, on n'arrive toujours pas à fissurer pour $E_p=3.56\%$. En effet, l'éprouvette A2T9-6, correspondant à $E^p=1.81\%$, ne présente que deux fissures. La première se situe au-delà des entailles, donc loin du ligament. La seconde est presque au centre de l'éprouvette. Cependant les essais suivants, à plus forte déformation, n'ont pas montré de fissure à cet endroit, mais bien au bord. On n'a donc considéré la seconde fissure d'A2T9-6 comme non représentative et elle a été écartée.

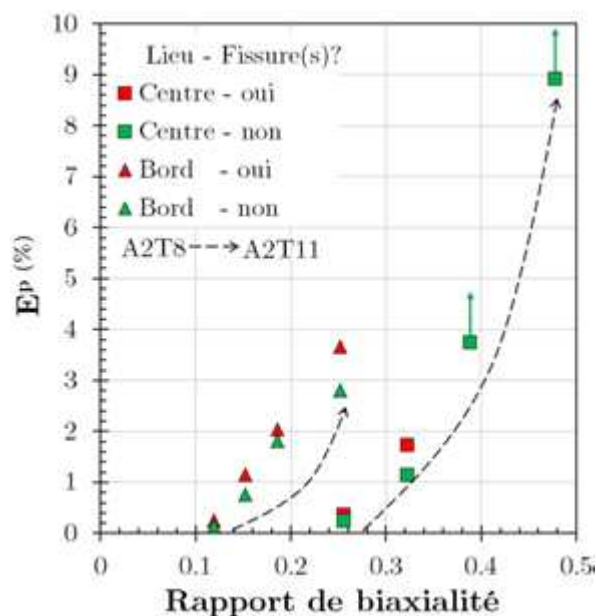


Figure IV.22 : Effet de la biaxialité des contraintes sur la déformation plastique macroscopique à l'amorçage, au bord du ligament (triangles) et au centre du ligament (carrés).

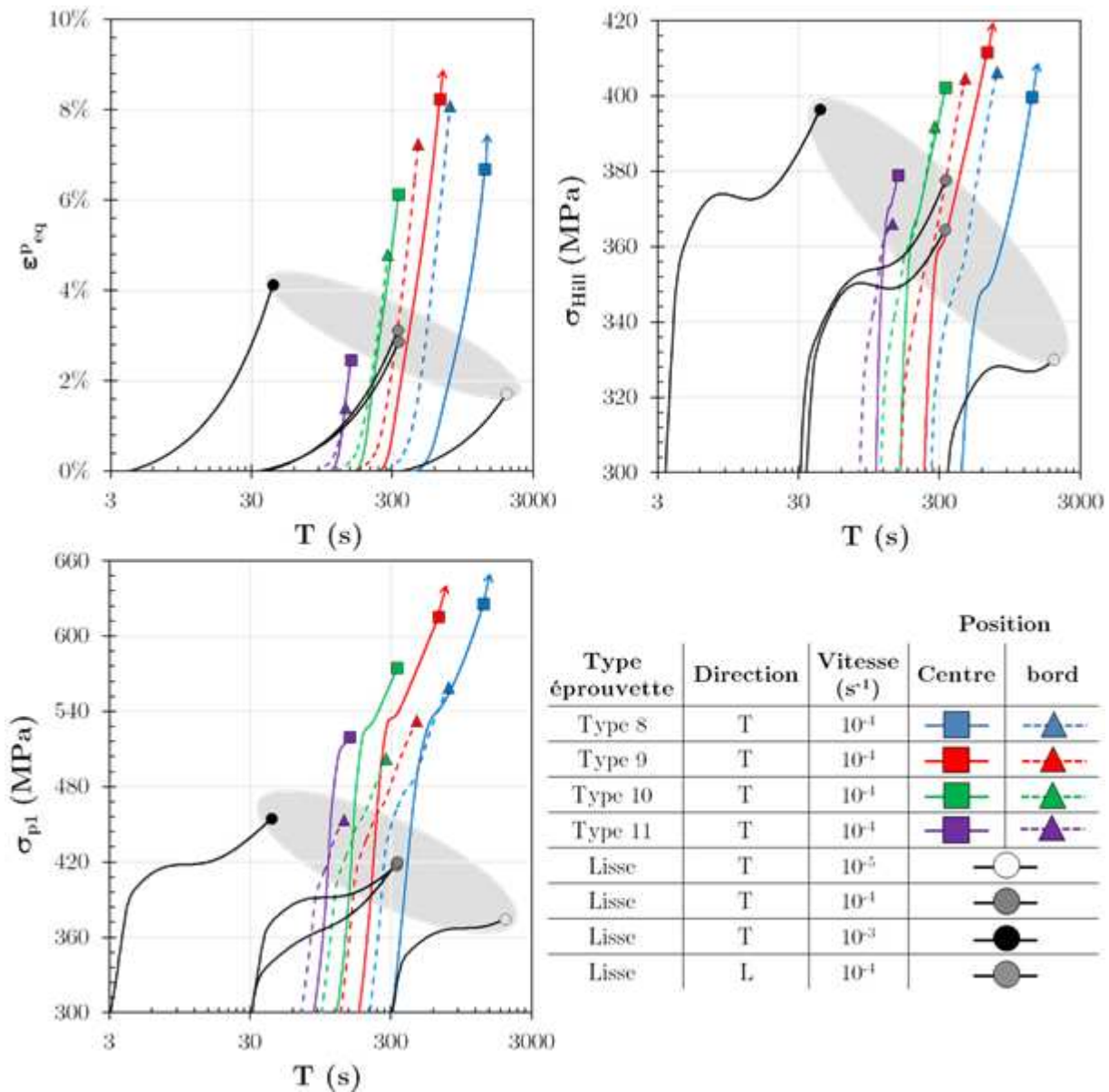


Figure IV.23 : Evolutions temporelles locales de la déformation plastique équivalente ϵ^p_{eq} (haut, gauche), de la contrainte de Hill σ_{Hill} (haut, droite) et de la contrainte principale maximale σ_{p1} (bas, gauche) pour les différentes éprouvettes lisses ou entaillées. Les courbes sont arrêtées à la première apparition des fissures. Les zones grisées mettent en évidence une tendance pour les essais uniaxiaux.

Pour les éprouvettes de type 8 ($R=0.3$ mm, Figure IV.17), on n'a pas observé de fissure au centre de l'éprouvette malgré des déformations macroscopiques importantes de 8.92%. On dénote également la présence d'un essai non représentatif, l'éprouvette A2T8-12 à $E^p=0.80\%$, pour lequel une fissure a été observée alors que deux autres essais à $E^p=2.21\%$ et $E^p=2.81\%$ n'ont pas montré de fissures. Cet essai est donc écarté et la déformation plastique macroscopique à l'amorçage sur le bord est estimée à 3.24%.

A partir des rapports de biaxialité calculés dans le chapitre précédent, on met en évidence l'influence de ce rapport sur la déformation macroscopique à l'amorçage sur la Figure IV.22. L'absence de fissures aux centres des éprouvettes avec les plus petites entailles malgré de très grandes déformations montre à quel point cet effet est important. On observe deux tendances parallèles, traduisant l'augmentation de E^p_{am} avec le rapport de biaxialité. Le fait que les deux tendances ne soient pas confondues montre qu'en plus du

rapport de biaxialité, d'autres paramètres locaux ont une influence sur l'amorçage des fissures. Il est donc nécessaire de disposer des champs mécaniques locaux pour analyser ces résultats. Cela valide l'approche adoptée dans cette étude, à savoir l'utilisation du calcul par éléments finis pour l'exploitation d'essais expérimentaux complexes.

Pour être certain qu'il existe un effet de biaxialité, il faut dépouiller les essais avec les paramètres locaux uniquement. Sur la Figure IV.23 sont tracées les évolutions temporelles de variables mécaniques locales. Comme on l'avait vu pour les essais uniaxiaux, l'amorçage des fissures de CSC-I dépend du temps. Les courbes de la Figure IV.23 sont arrêtées aux déformations plastiques macroscopiques à l'amorçage quand elles ont pu être estimées, ou à la déformation plastique maximale (éprouvettes de type 8 et 9, au centre). Dans ce dernier cas, une flèche indique que la valeur à l'amorçage est encore plus grande.

Des tendances sont observées pour les éprouvettes uniaxiales : par exemple, quand la vitesse diminue, la déformation à l'amorçage diminue (zones grisées sur la Figure IV.23). Les points correspondant aux éprouvettes de type 11 ($R=1.0$ mm, biaxialité la plus faible) ne sont pas très éloignés de ces tendances. Pour les autres éprouvettes entaillées, une baisse vitesse de sollicitation ne s'accompagne d'un amorçage anticipé et les déformations à l'amorçage sont bien plus grandes. Cela mettrait en évidence le fort effet protecteur de la biaxialité.

La déformation plastique équivalente à l'amorçage est comprise entre 1.7% et 4.1% pour les éprouvettes lisses sollicitées à des vitesses comprises entre 10^{-5} s⁻¹ et 10^{-3} s⁻¹. Pour les éprouvettes entaillées de type 8 ($R=0.3$ mm) ou 9 ($R=0.5$ mm), on peut atteindre des déformations de plus de 7% à l'amorçage pour des vitesses comparables. On remarque de plus que, du fait des petites entailles, la contrainte principale est bien plus importante sur une éprouvette entaillée que sur une éprouvette lisse. Et, malgré cela, on a un retard à la fissuration. La même constatation vaut pour la contrainte de Hill. Ces observations mettent en évidence un effet « protecteur » ou tout du moins retardant de la biaxialité des contraintes sur l'amorçage des fissures de CSC-I. On rappelle également que, d'après le chapitre précédent (§ III.2.4), le modèle de comportement sous-estime les déformations locales sur éprouvettes entaillées quand celles-ci dépassent 5%. L'effet réel de la biaxialité est donc encore plus important que celui observé par l'utilisation du modèle.

IV.1.2.2.4 Paramètres influant sur la rupture des éprouvettes

Vitesse de déformation

L'influence de la vitesse de déformation macroscopique sur la rupture des éprouvettes entaillées a été observée par la réalisation d'un essai à 10^{-3} s⁻¹ pour une éprouvette de type 8 ($R=0.3$ mm), A2T8-2. Sa réponse macroscopique est comparée à celle de l'éprouvette A2T8-4, sollicitée à 10^{-4} s⁻¹ jusqu'à rupture, sur la Figure IV.24. On remarque tout d'abord la différence de contrainte résultante due à la sensibilité du matériau à la vitesse de déformation. Les déformations à rupture semblent être proches (environ 43.9% pour la vitesse rapide et 47.2% pour la vitesse lente). Cependant l'allure des courbes est très différente. La contrainte maximale est atteinte pour 4.7% de déformation macroscopique à 10^{-4} s⁻¹ contre 15.0% à 10^{-3} s⁻¹. La rupture est nette pour la forte vitesse alors qu'elle s'étend sur un très grand domaine de déformation pour la faible vitesse. Cela laisse supposer que, pour un même niveau de déformation, les fissures de CSC-I se sont plus développées à faible vitesse (et donc à temps plus longs).

Cela est visible sur les faciès de ces éprouvettes, dont une partie est montrée en Figure IV.24. On y délimite la zone complètement intergranulaire par une demi-ellipse.

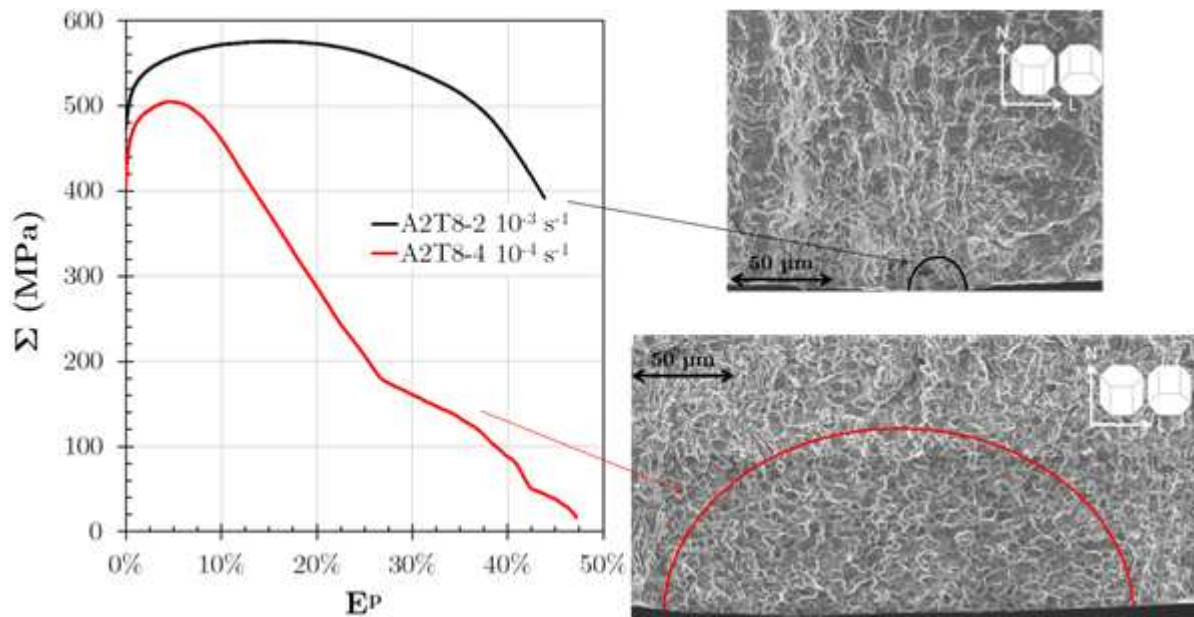


Figure IV.24 : Effet de la vitesse de déformation macroscopique sur la réponse macroscopique (gauche) et la taille de la fissuration intergranulaire (droite) ; pour des éprouvettes de type 8 ($R=0.3$ mm) à une concentration en iode de 10^{-4} g.g $^{-1}$.

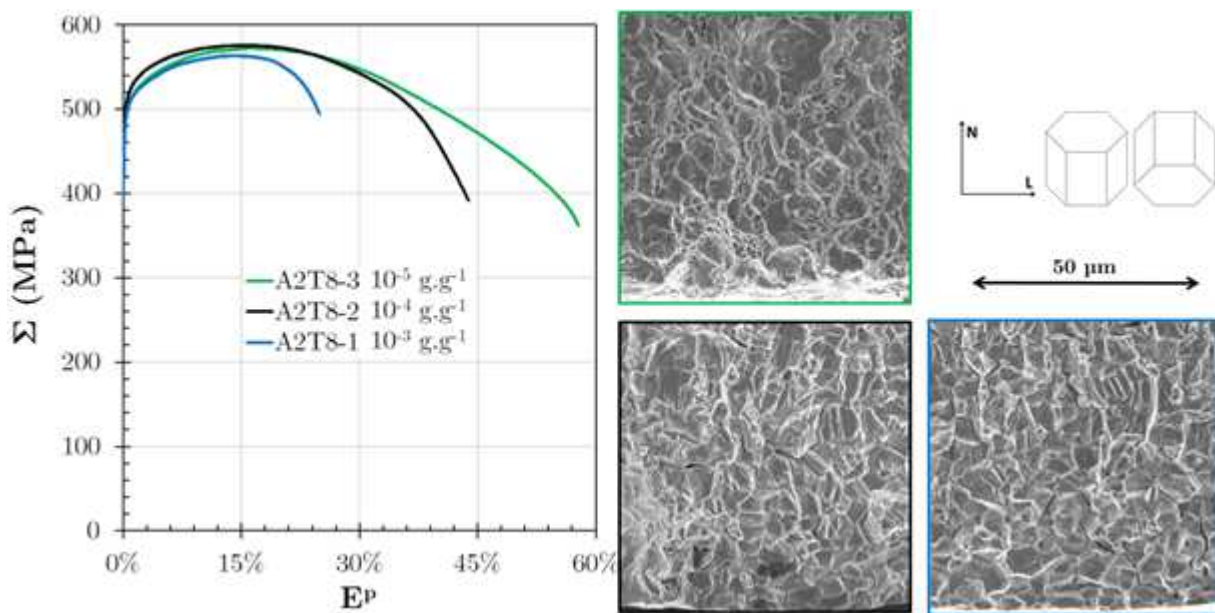


Figure IV.25 : Effet de la concentration sur la réponse macroscopique (gauche) et la fissuration (droite) pour des éprouvettes de type 8 ($R=0.3$ mm) sollicitées à 10^{-3} s $^{-1}$. La couleur des cadres des images MEB correspond à celle des courbes.

On constate que cette zone est large d'environ 230 μm et profonde d'environ 180 μm pour la faible vitesse. Pour la forte vitesse, la zone intergranulaire est réduite à un amas de 5 ou 6 grains, de taille inférieure à 30 μm . A cette vitesse, la rupture « finale » ressemblant à des grandes cannelures est déclenchée rapidement, la zone de propagation mixte étant elle-même très réduite. On observe plusieurs amorces de fissures sur le faciès, toutes de tailles comparables. Pour celles se situant au milieu (loin des tranches), la rupture « finale » à cannelures ne s'étend que sur la moitié de la profondeur. Au-delà, on observe une rupture ductile à cupules, similaire à ce qui avait été observé pour des essais rompus à l'air. Par ailleurs, le faciès de rupture de cette éprouvette est majoritairement ductile.

Ces essais montrent l'importance du temps sur le développement des fissures de CSC-I. En effet, les niveaux de déformation sont similaires pour les deux vitesses, et la contrainte est plus importante pour la forte vitesse. Malgré cela, l'étendue de la fissuration fragile est beaucoup plus faible à forte contrainte.

Concentration en iode

L'effet de la concentration a été étudié sur des éprouvettes de type 8 ($R=0.3$ mm) sollicitées à une vitesse de déformation macroscopique de 10^{-3} s^{-1} . Ces essais à rupture ont été réalisés avant les essais interrompus, pour définir les conditions pertinentes d'étude en termes de concentration et de vitesse. Les essais à rupture ont été menés à des concentrations de 10^{-3} , 10^{-4} et 10^{-5} g.g^{-1} . Les courbes macroscopiques correspondantes, ainsi que l'observation au MEB du début de la propagation sont données en Figure IV.25. A 10^{-5} g.g^{-1} , l'étude du faciès montre que la rupture est entièrement ductile, sans aucune trace de fragilité. La déformation plastique macroscopique à rupture est alors de 57.8%. La ductilité globale de l'éprouvette est fortement impactée par la concentration en iode. Pour la concentration de 10^{-4} g.g^{-1} , utilisée pour les essais interrompus, la déformation à rupture est de 43.8%. A 10^{-3} g.g^{-1} , elle passe à 24.9%, valeur plus de deux fois inférieure à la ductilité initiale.

On a vu qu'à 10^{-4} g.g^{-1} , la zone de fissuration intergranulaire ne concernait que 5 à 6 grains, pour une taille inférieure à 30 μm , et que la majorité du faciès présentait une rupture ductile à cupules, sur plus de la moitié de la profondeur. A 10^{-3} g.g^{-1} , la largeur de la zone intergranulaire est de l'ordre de 100 μm et sa profondeur d'environ 40 μm . La zone de fissuration mixte est aussi grande qu'à plus faible concentration. En revanche, la zone de rupture par grandes cannelures est beaucoup plus grande. Elle s'étend sur presque deux tiers de la profondeur. La rupture ductile à cupules ne s'étend plus que sur 50 μm , contre plus de 200 μm à 10^{-4} g.g^{-1} . La concentration en iode favoriserait donc ce mode de rupture ayant des caractéristiques fragiles et ductiles.

Géométrie de l'éprouvette

Pour chaque type d'éprouvette, on dispose d'un essai à rupture effectué dans les mêmes conditions de vitesse (10^{-4} s^{-1}) et de concentration (10^{-4} g.g^{-1}) que les essais interrompus. L'influence de la géométrie sur la rupture peut donc être étudiée. L'utilisation de la déformation plastique macroscopique E^P n'est pas la plus adaptée pour comparer des éprouvettes; on utilise alors le déplacement plastique macroscopique U^P . Les courbes macroscopiques de ces essais à rupture, ainsi que des parties de faciès de rupture associés sont données en Figure IV.26. On remarque que les maxima en contrainte sont très proches, aux alentours de 500 MPa, ce qui conforte l'utilisation de la déformation macroscopique pour imposer le chargement : une même vitesse macroscopique (10^{-4} s^{-1}) donne bien un même niveau de contrainte macroscopique.

La forme des courbes macroscopiques ne suit pas une évolution continue avec le rayon d'entailles. Pour les deux rayons intermédiaires (type 9, $R=0.5$ mm et type 10, $R=0.7$ mm), on n'observe pas d'inflexion des courbes quand on se rapproche de la rupture.

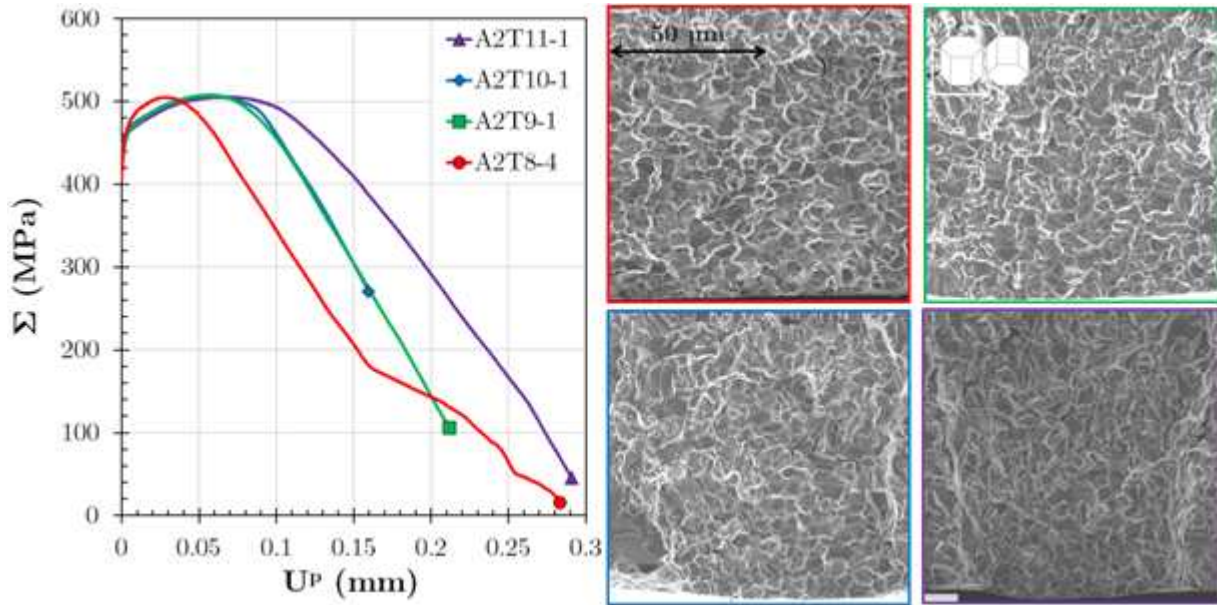


Figure IV.26 : Influence de la géométrie sur la rupture d'éprouvettes sollicitées à 10^{-4} s^{-1} et 10^{-4} g.g^{-1} . Courbes macroscopiques (gauche) et faciès de rupture près de la surface d'amorçage (droite). La couleur des cadres des images MEB correspond à celle des courbes.

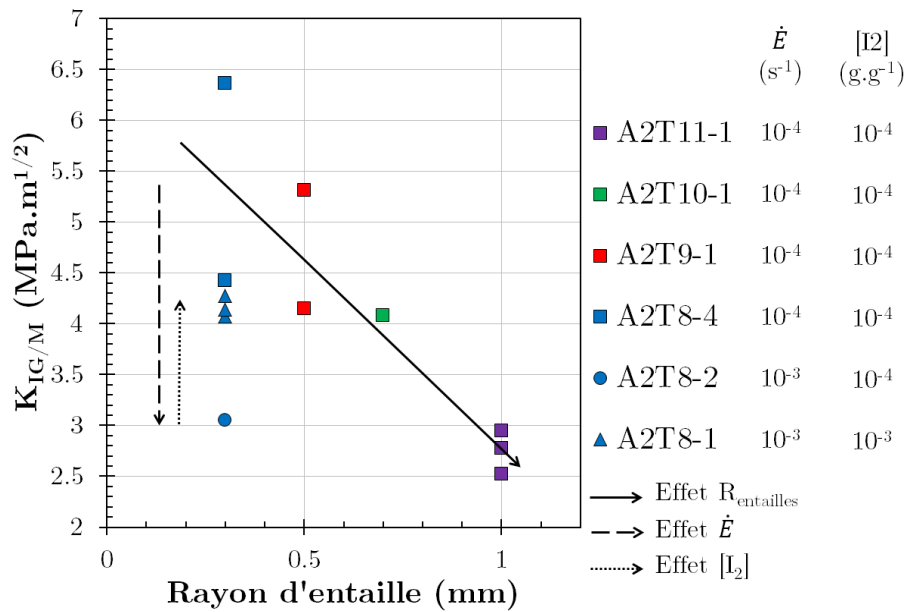


Figure IV.27 : Estimation du $K_{IG/M}$ pour les essais menés à rupture sur éprouvettes entaillées. Une couleur correspond à un type d'éprouvette et une forme de symboles à des conditions d'essais.

Pour le plus grand rayon (type 11, 1.0 mm), on observe un changement de pente (augmentation), comme pour une rupture d'éprouvette entaillée en milieu inerte. Pour le plus petit, on observe également un changement de pente, mais un ralentissement de la chute de contrainte. La chute de contrainte est lente et on ne remarque pas d'instabilité ; la contrainte tend vers 0. L'évolution des déplacements plastique à rupture n'est pas corrélée au rayon d'entaille.

On propose d'analyser ces résultats de la façon suivante : la propagation des fissures de CSC-I serait favorisée par la présence d'entailles de faibles rayons. Cette affirmation est notamment soutenue par les différences d'étendue de la zone intergranulaire en fonction du rayon d'entaille. On voit bien sur la partie droite de la Figure IV.26 que la taille de la zone de fissuration intergranulaire diminue quand le rayon d'entaille augmente. Cela pourrait être causé par les différences de contraintes principales dans les éprouvettes. Les calculs ont montré que la contrainte principale maximale peut être 30% supérieure dans les éprouvettes de type 8 par rapport aux éprouvettes de type 11 (Figure IV.23). Ces calculs ont cependant été réalisés avant fissuration. Le comportement de l'éprouvette de type 11 serait quasi-similaire à celui sans iode. Pour les éprouvettes de types 9 et 10, la taille de fissures influencerait la rupture finale de l'éprouvette en déclenchant plus rapidement l'instabilité plastique que pour les éprouvettes de type 11. Pour l'éprouvette de type 8, la forme particulière de la courbe s'expliquerait par la progression de la fissure : on aurait atteint les conditions de vitesse et de contrainte les plus favorables à la propagation de la fissure pendant la déformation de l'éprouvette.

On aurait ainsi mis en évidence deux effets inverses des entailles. Plus les entailles sont petites et plus la biaxialité en surface est importante et plus son effet « protecteur » à l'amorçage des fissures est important. En revanche la biaxialité importante se traduit aussi par une contrainte principale maximale plus grande que pour de forts rayons d'entailles ou des éprouvettes lisses. Cette contrainte et cette biaxialité des contraintes influenceraient donc la phase de propagation des fissures, de telle sorte que la ductilité finale des éprouvettes à petits rayons d'entaille serait plus faible que pour les grandes entailles, malgré un retard à l'amorçage des fissures de CSC-I. En d'autres termes, les faibles rayons entailles protègent de l'amorçage des fissures de CSC-I, mais ils génèrent de fortes contraintes principales locales qui favorisent la propagation des fissures de CSC-I. Enfin, les faibles rayons d'entailles augmentent la biaxialité des contraintes et favorisent la rupture ductile finale des éprouvettes.

IV.1.2.2.5 Estimation du $K_{IG/M}$

Comme cela avait été fait pour les éprouvettes lisses, le facteur d'intensité des contraintes à la transition entre propagation intergranulaire et propagation mixte $K_{IG/M}$ a été calculé à partir des observations MEB des faciès de rupture des éprouvettes entaillées. Une approximation supplémentaire s'est avérée nécessaire. En effet l'état de contrainte est loin d'être uniforme et pourtant on considère la contrainte macroscopique axiale (contrainte conventionnelle de l'éprouvette) pour le calcul de $K_{IG/M}$. Les résultats obtenus sont donnés en Figure IV.27. Il semble que le $K_{IG/M}$ diminue de façon claire avec l'augmentation du rayon d'entaille. On passe ainsi d'environ 5.5 à 2.7 MPa.m^{1/2} du type 8 au type 11 pour les mêmes conditions d'essais. De même, on observe une chute quand la vitesse est multipliée par 10 pour une concentration identique, de 5.5 à 3.1 MPa.m^{1/2}. Quand la concentration est multipliée par 10, pour une vitesse de déformation macroscopique de 10⁻³ s⁻¹, le $K_{IG/M}$ augmente de 3.1 à 4.2 MPa.m^{1/2}.

On n'avait observé que peu d'influence de la concentration sur le $K_{IG/M}$ pour les éprouvettes lisses. Il oscillait sans tendance autour de 7 MPa.m^{1/2}, pour une vitesse de

déformation uniaxiale de 10^{-5} s^{-1} et une concentration comprise entre $6 \cdot 10^{-5}$ et 10^{-3} g.g^{-1} . En revanche, un effet de vitesse avait été observé avec un passage de 7.1 à 5.2 $\text{MPa.m}^{1/2}$ quand la vitesse a été multipliée par 10.

La tendance observée avec le rayon d'entaille laisse à penser que la valeur asymptotique (pour une éprouvette uniaxiale) est inférieure à $3 \text{ MPa.m}^{1/2}$ pour une vitesse de 10^{-4} s^{-1} et une concentration de 10^{-4} g.g^{-1} . Dans ces conditions, une valeur de $5.3 \text{ MPa.m}^{1/2}$ avait été obtenue sur éprouvette lisse. Les résultats obtenus sur éprouvettes lisses et sur éprouvettes entaillées ne sont pas quantitativement compatibles entre eux a priori.

Les approximations faites pour les éprouvettes lisses étaient déjà nombreuses et sujettes à discussion. Ici, on applique la formule à un essai biaxé en considérant la contrainte macroscopique. Les valeurs d'un tel calcul ne sont donc pas très fiables ; elles servent plutôt d'indication.

Ce qui apparaît intéressant pour l'étude est l'étendue de la zone intergranulaire, plus que la valeur du $K_{IG/M}$. La contrainte locale, la concentration et du temps semblent être les données pertinentes à garder en mémoire pour proposer un mécanisme d'amorçage des fissures de CSC-I. Les contraintes principales sont plus importantes pour les petits rayons d'entailles que pour les grands. Si cette contrainte a une influence directe sur la taille de la zone intergranulaire, il est normal de trouver une zone plus grande pour les petites entailles et donc un $K_{IG/M}$ plus grand car ce dernier est proportionnel à la racine de la profondeur.

IV.1.3 Etablissement d'un modèle phénoménologique d'amorçage

Les essais réalisés ont donc permis de déterminer les conditions menant à l'amorçage de fissures de CSC-I. Les domaines de fissuration établis pour les essais uniaxiaux ont permis de mettre en évidence l'effet de la concentration en iode et de la vitesse de sollicitation. A partir de ces résultats, des essais sur éprouvettes entaillées ont été entrepris à concentration et vitesse macroscopique données. L'observation des fissures et surtout de leur localisation a montré l'existence d'un effet de la biaxialité des contraintes sur l'amorçage.

Les différents modèles macroscopiques de la littérature, cités dans le chapitre bibliographique, traitent de l'amorçage et de la propagation des fissures de CSC-I en milieu iode vapeur. Ils simulent le transport de l'iode dans le matériau, la fragilisation de celui-ci liée à la présence locale de l'iode et l'amorçage puis la fissuration du matériau. Les modèles de l'EPRI, de Besson et du CEA prennent en compte une influence de la mécanique sur le transport de l'iode (Miller 1981; Besson 2006; Le Boulch 2008). Ces modèles font l'hypothèse que l'endommagement mécanique, couplé à la présence d'iode, est piloté par la contrainte, via l'utilisation du formalisme de la loi d'endommagement de Kachanov.

Un des objectifs de l'étude est de proposer un modèle phénoménologique d'amorçage des fissures de CSC-I, à savoir connaître les conditions mécaniques et chimiques menant à l'amorçage. Dans ce cadre, il n'est pas nécessaire de prendre en compte la fissuration au travers d'un endommagement couplé. L'utilisation d'un modèle utilisable en post-traitement de calcul suffit. En outre, il permet d'étudier la phénoménologie de l'amorçage des fissures de CSC-I sans les coûts de calcul que représenterait l'usage de modèles d'endommagement couplés.

On fait ici le choix de rendre compte des effets de concentration d'iode de façon phénoménologique et indépendante des champs mécaniques. Le moteur de l'endommagement doit lui aussi être choisi. La littérature suggère la contrainte plutôt que

la déformation. Le développement du modèle s'est effectué pendant la réalisation des essais de CSC-I. Initialement le modèle a été établi pour les essais uniaxiaux. L'effet de vitesse observé montre la dépendance au temps de l'amorçage et pour cela l'endommagement est défini par sa dérivée temporelle. La forme générale de l'endommagement d est inspirée du formalisme de la loi de Kachanov et s'écrit :

$$d = \left(\frac{V}{V_0}\right)^{pv} \delta(\varepsilon^p - \varepsilon_0) f(I) \quad \text{Eq. IV.2}$$

Avec V une variable mécanique pouvant être la contrainte de Hill σ_{Hill} , la contrainte principale maximale σ_{p1} , la déformation plastique équivalente $\varepsilon_{\text{eq}}^p$ ou la vitesse de déformation plastique $\dot{\varepsilon}$. $\delta(x)$ est la fonction indicatrice telle que $\delta(x)=0$ si $x<0$ et $\delta(x)=1$ sinon. Cette fonction a été introduite car, dans la littérature, il est souvent supposé qu'une déformation plastique est nécessaire pour l'amorçage des fissures de CSC-I (pour rompre la couche d'oxyde notamment). $f(I)$ est une fonction de la concentration en iode I , utilisée pour représenter la transition et la présence d'un seuil. L'évolution de cette fonction est donnée sur la Figure IV.28. Il s'agit du produit d'une fonction tangente hyperbolique centrée à la concentration de transition I_1 , valant 1 au-delà de I_1 et 0.1 en deçà, et d'une exponentielle tendant vers 0 près de la concentration seuil I_0 . I_0 est prise constante pour tous les essais à 10^{-5} g.g^{-1} et I_1 varie avec la direction de sollicitation uniquement et vaut $6 \cdot 10^{-4} \text{ g.g}^{-1}$ pour la direction T et $2 \cdot 10^{-4} \text{ g.g}^{-1}$ pour la direction L. Une fois cette fonction définie, il ne reste plus qu'à identifier la variable de normalisation V_0 et la puissance pv , pour la variable d'endommagement V choisie, pour que le modèle reproduise correctement la déformation plastique à l'amorçage sur le plateau de déformation.

Quatre modèles d'endommagement ont été identifiés à partir des résultats sur éprouvettes lisses, avec les quatre variables mécaniques que l'on a citées. Les paramètres mécaniques locaux sont issus des calculs par éléments finis. L'intégration du dommage est réalisée par différence finie dans un tableur où les évolutions des champs mécaniques locaux sont listées. Les paramètres du modèle sont choisis par comparaison visuelle entre prédictions et données expérimentales. Aucun seuil en déformation plastique n'a finalement été utilisé. Les paramètres de ces modèles sont donnés dans le Tableau IV.7. Ces modèles sont comparés aux domaines de fissuration et aux déformations macroscopiques à l'amorçage pour les éprouvettes entaillées sur la Figure IV.29. On constate qu'il est possible de retrouver les tendances des plateaux de déformations à l'amorçage avec toutes les variables utilisées. Le modèle en vitesse de déformation tend à s'écarter des autres et à donner de moins bons résultats. Le formalisme du modèle avec une fonction puissance est adapté pour représenter les effets de vitesse observés.

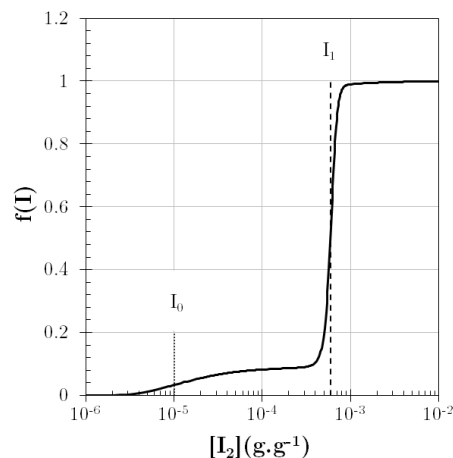


Figure IV.28 : Fonction $f(I)$ utilisée pour la prise en compte des effets de concentrations

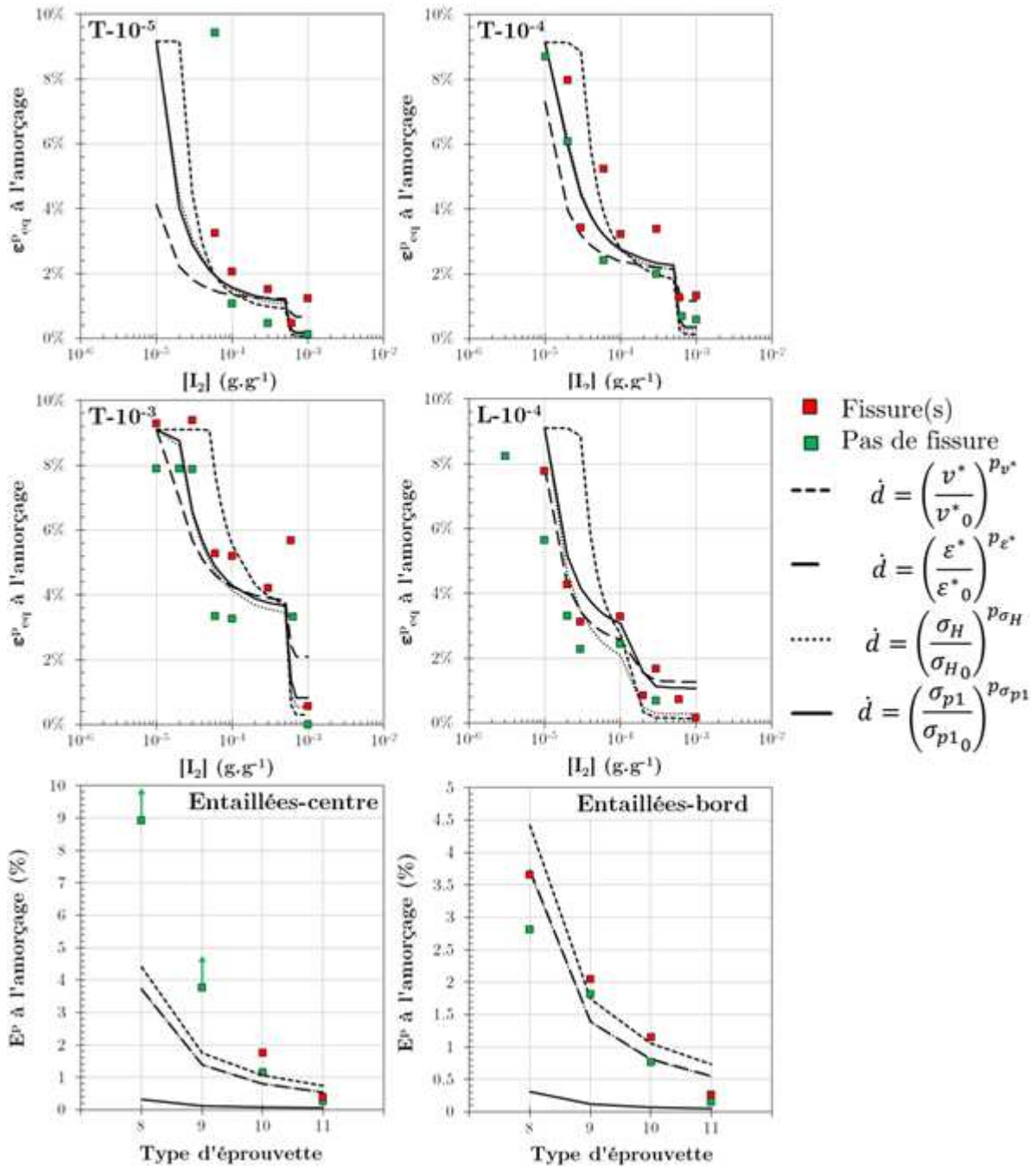


Figure IV.29 : Identification des quatre modèles d'endommagement utilisant une variable mécanique différente. Comparaison aux domaines de fissuration déterminés expérimentalement pour les éprouvettes lisses de direction T à des vitesses de 10^{-5} s^{-1} (haut, gauche), 10^{-4} s^{-1} (haut, droite) et 10^{-3} s^{-1} (milieu, gauche), et de direction L à 10^{-4} s^{-1} (milieu, droite). Ainsi qu'aux résultats sur éprouvettes entaillées, au centre du ligament (bas, gauche) et au bord (bas, droit).

Tableau IV.7 : Variables de normalisation et puissances des différents modèles

v^*		ϵ^* (ϵ^p_{eq})		σ_H		σ_{p1}	
$v^*_0 \text{ (s}^{-1}\text{)}$	$5 \cdot 10^{-3}$	ϵ^*_0	4%	$\sigma_{H0} \text{ (MPa)}$	400	$\sigma_{p10} \text{ (MPa)}$	460
p_{v^*}	0.7	p_{ϵ^*}	3	p_{σ_H}	22	$p_{\sigma_{p1}}$	20

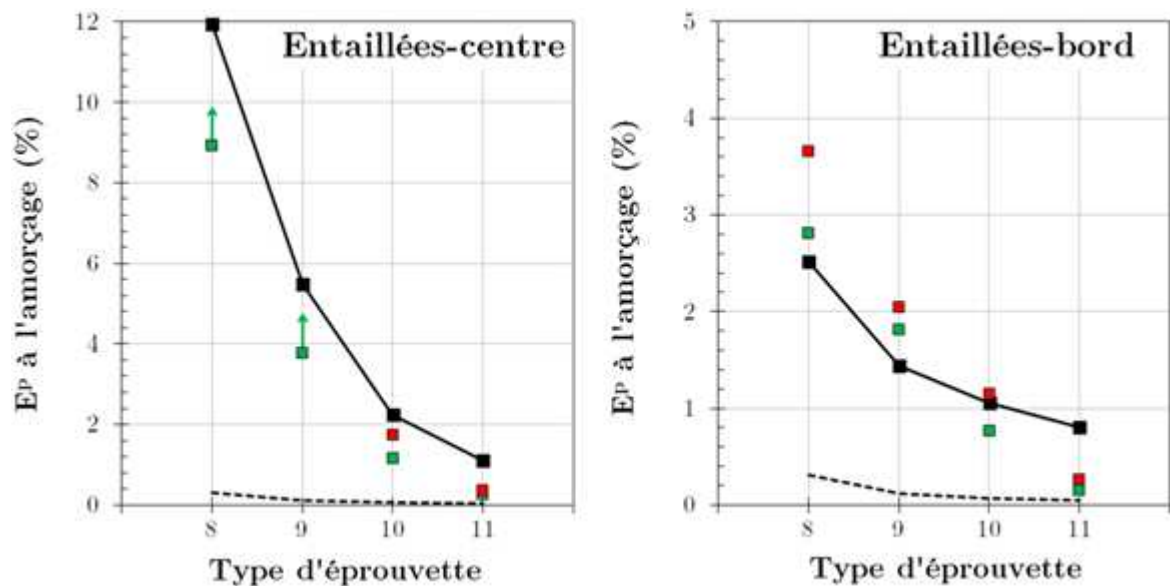


Figure IV.30 : Réponse du modèle d'endommagement avec combinaison linéaire des contraintes principales (trait noir avec symboles) et comparaison aux déformations plastiques macroscopiques à l'amorçage pour les éprouvettes entaillées. Les traits pointillés représentent le modèle avec la seule contrainte principale maximale.

Ces modèles sont comparés aux résultats sur éprouvettes entaillées et tous sous-estiment la déformation plastique macroscopique à l'amorçage au centre du ligament. Autrement dit, ils ne permettent pas de retrouver l'effet de biaxialité observé expérimentalement. Au bord du ligament, la contrainte de Hill et/ou la déformation plastique équivalente locale permettent de retrouver la tendance expérimentale. L'effet de la biaxialité sur les déformations à l'amorçage s'expliquerait par les différences de déformation plastique avec la géométrie des éprouvettes. Ce n'est pas le cas pour le centre du ligament.

Il est donc nécessaire d'apporter une correction au modèle pour prendre en compte la biaxialité. Pour cela, on choisit de repartir du modèle identifié pour la contrainte principale maximale. En effet, les fissures sont orientées à 90° en moyenne par rapport à l'axe des éprouvettes et donc à la contrainte principale maximale. On a vu que cela était le cas pour les éprouvettes lisses et les éprouvettes entaillées. On peut penser que cette contrainte est le moteur de l'endommagement. De plus, à forte concentration, la déformation plastique n'apparaît plus comme nécessaire pour amorcer les fissures de CSC-I. Ce choix est cohérent avec ce qui a été vu dans la littérature. Pour rendre compte de l'effet de biaxialité, on décide de remplacer la contrainte principale maximale par une combinaison linéaire des deux premières contraintes principales. L'évolution du dommage est alors régie par :

$$d = \left(\frac{\sigma_{p1} - \alpha \sigma_{p2}}{\sigma_{p0}} \right)^{p_{\sigma_p}} f(I) \quad \text{Eq. IV.3}$$

α est un coefficient compris entre 0 et 1. Le changement de σ_{p1} par $\sigma_{p1} - \alpha \sigma_{p2}$ n'affecte pas les prédictions pour les essais uniaxiaux pour lesquels seule la contrainte principale maximale est non nulle. Les valeurs de σ_{p0} et p_{σ_p} du modèle uniaxial sont conservées. Une valeur de 0.8 est prise pour le coefficient α . Les prédictions de ce modèle pour les éprouvettes entaillées sont données en Figure IV.30 et comparées à celles du modèle « uniaxial ». Ce modèle permet de rendre compte de l'effet de biaxialité observé expérimentalement mais également des résultats uniaxiaux. Ce modèle sera utilisé sur les autres essais réalisés dans l'étude pour évaluer sa pertinence hors de son domaine d'identification et discuter de son sens physique.

IV.1.4 Eprouvettes lisses irradiées aux protons

IV.1.4.1 Conditions d'étude et essais réalisés

Tableau IV.8 : Liste des essais de CSC-I réalisés sur les éprouvettes irradiées. Les déformations plastiques équivalentes mesurées après chaque essai interrompu sont données. Elles sont soulignées quand la présence de fissures a été détectée. Les valeurs cumulées (depuis le premier essai) du temps d'essai et de la déformation plastique sont données. Les variables rationnelles sont données, bien que non pertinentes après striction.

Numéro d'éprouvette	$\dot{\epsilon}$ (s ⁻¹)	[I ₂] (g.g ⁻¹)	$\epsilon_{\text{rat}}^{\text{p}}$	σ_{rat} (MPa)	Temps (s)			
2	10 ⁻⁴	10 ⁻⁴	0.45%	394.6	300.5			
			<u>1.04%</u>	426.2	701.0			
			2.86%	457.5	1232.9			
			5.88% - striction	476.9	-			
			9.12% - rupture	147.6	1977.1			
3	10 ⁻⁴	10 ⁻⁴	0	139.9	100.5			
			<u>0.65%</u>	411.9	501.1			
			2.10%	412.4	940.9			
			6.72% - striction	483.8	-			
			10.21% - rupture	150.3	1885.5			
4	10 ⁻³	10 ⁻⁴	1.08%	407.4	40.6			
			<u>1.96%</u>	442.9	76.9			
			10.63% - striction	552.6	-			
			17.98% - rupture	411.7	327.5			
5	10 ⁻⁵	10 ⁻⁴	0.05%	263.1	2637.4			
			<u>0.38%</u>	344.6	5122.0			
			0.88% - striction	372.3	-			
			2.68% - rupture	220.4	9305.7			
			6	10 ⁻⁴	10 ⁻⁵	0.65%	387.0	308.7
						<u>1.06%</u>	396.2	684.7
2.97%	438.5	1234.6						
10.64% - striction	498.2	-						
19.27% - rupture	411.3	3818.0						
7	10 ⁻⁴	10 ⁻³	<u>0.21%</u>	339.7	338.1			
			0.29%	350.2	574.4			
			2.14%	424.3	997.5			
			2.12% - striction	426.2	-			
			5.30% - rupture	128.1	1402.0			

Les éprouvettes irradiées ont été décrites précédemment (§ III.3.4) : leur géométrie et la dose d'irradiation ont été précisées. Ces éprouvettes ont été soumises à la même préparation que les éprouvettes non irradiées, en termes d'état de surface (avant irradiation) et de protection des tranches. On s'intéresse à l'effet de l'irradiation sur l'amorçage des fissures de CSC-I. A. Serres avait montré dans sa thèse que le matériau irradié aux protons était sensible à la CSC-I dans un domaine de vitesse (10⁻⁵ s⁻¹) et de concentrations en iode (entre 1 et 6 10⁻⁶ g.g⁻¹) dans lequel le matériau non irradié ne l'était

pas. On choisit ici de se placer dans des conditions similaires aux essais sur éprouvettes lisses non irradiées afin de quantifier l'effet de l'irradiation. De plus, trois vitesses de déformation pour une même concentration et trois concentrations pour une même vitesse de déformation, ont été testées. Pour atteindre ces objectifs avec seulement 6 éprouvettes, il était nécessaire d'effectuer plusieurs essais interrompus par éprouvette. La représentativité de tels essais sera discutée à la fin de ce paragraphe. La liste des essais réalisés est donnée dans le Tableau IV.8. Les déformations et contraintes rationnelles y figurant sont celles de l'éprouvette considérée comme un tout homogène, pour comparaison avec les données macroscopiques des éprouvettes non irradiées. Le dépouillement des contraintes et déformations locales est fait plus loin. On précise également que, suite à une erreur, les éprouvettes irradiées sont de direction L et pas de direction T, contrairement à la majorité des essais réalisés sur le matériau non irradié.

IV.1.4.2 Résultats et analyses

IV.1.4.2.1 Phénoménologie de la fissuration

Les conditions de référence de l'étude sont une vitesse de déformation de 10^{-4} s^{-1} et une concentration de 10^{-4} g.g^{-1} . Les effets de vitesse et de concentration sont étudiés autour de ces valeurs. Après plusieurs essais interrompus utilisés pour déterminer les conditions d'amorçage des fissures, toutes les éprouvettes ont été sollicitées jusqu'à rupture pour observation des faciès. On ne dispose pas de faciès de rupture pour une éprouvette non irradiée sollicitée dans le sens L. On peut penser qu'ils ne diffèrent que peu des faciès d'éprouvettes de sens T. En effet, la proportion de pôles de base alignés avec la direction L est encore plus faible que pour la direction T, $f_L=0.14$ contre $f_T=0.25$, et on n'avait que très rarement observé du quasi-clivage sur les éprouvettes de sens T. Dans la suite, on fera référence aux éprouvettes irradiées simplement par leur numéro, en se rapportant au Tableau IV.8 pour les conditions expérimentales.

Le faciès de rupture de l'éprouvette n°3 est illustré en Figure IV.31. La phénoménologie de la fissuration ne semble pas affectée par la présence d'une couche irradiée. Elle est d'abord intergranulaire, sur une largeur d'environ $150 \mu\text{m}$ et une profondeur de $75 \mu\text{m}$, soit bien au-delà de la couche irradiée. On observe également une zone mixte avec présence de fluting sur environ $50 \mu\text{m}$ au-delà de la zone entièrement intergranulaire. Le passage vers la fissuration à grosses cannelures est donc rapide. La rupture finale de l'éprouvette est ductile, comme la majorité du faciès de rupture : on n'observe que deux amorces de CSC-I, celle présentée en Figure IV.31 et une autre située à proximité, de forme et taille comparables. Ces deux amorces se situent sur une même moitié de section (par rapport au plan de symétrie de l'éprouvette). La seconde moitié a rompu de manière totalement ductile avec une orientation à 45° par rapport à l'axe de l'éprouvette.

On n'a pas sollicité jusqu'à rupture d'éprouvettes non irradiées dans les mêmes conditions. On ne dispose donc pas de faciès de référence. Cependant, les statistiques issues de cartographies d'éprouvettes non irradiées montrent que, pour la même vitesse et la même concentration, une éprouvette non irradiée de direction T déformée jusqu'à 7.2% (A2T1-33) présentait des fissures de largeur moyenne en surface de moins de $20 \mu\text{m}$. On avait également vu que les densités et dimensions de fissuration étaient similaires pour les deux directions de sollicitations. La déformation plastique à striction de l'éprouvette 3 est de 6.7%, proche de la déformation finale de l'éprouvette A2T1-33. Ceci est un premier aperçu de la sensibilité plus importante des éprouvettes irradiées.

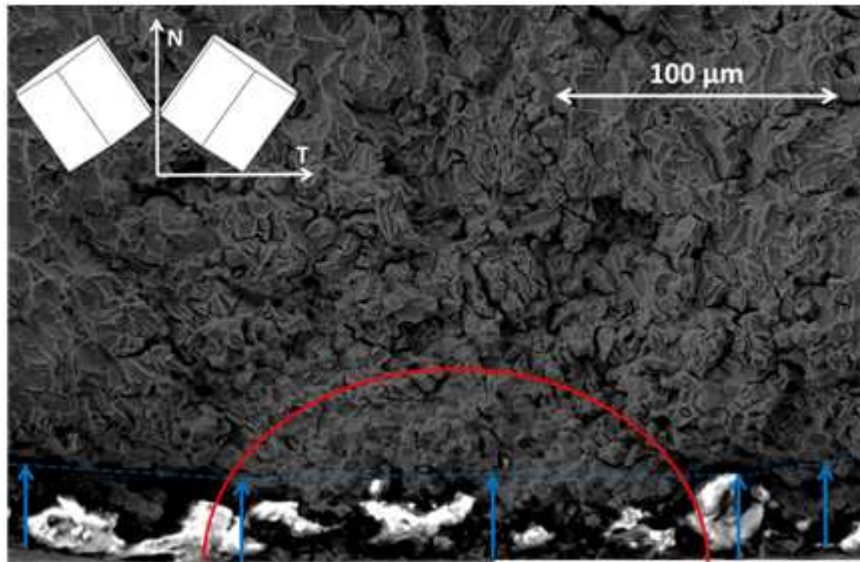


Figure IV.31 : Faciès de rupture de l'éprouvette irradiée n°3 (10^{-4} s^{-1} , 10^{-4} g.g^{-1}). Les flèches et pointillés bleus délimitent la zone affectée par l'irradiation. La demi-ellipse rouge délimite la fissuration intergranulaire. Les dépôts blancs sont des morceaux de pâte siliconée qui peuvent se déposer en surface après rupture des éprouvettes et qui s'enlèvent difficilement.

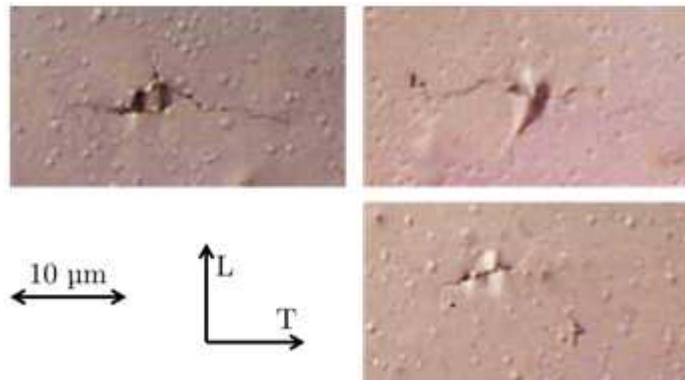


Figure IV.32 : Micrographies optiques de la surface exposée de l'éprouvette 3, essai 2 : première apparition de fissures à $\epsilon_{e,q}^p=0.65\%$. On peut observer la présence de grains déchaussés au milieu de la fissure (haut, gauche) ou d'un relief (haut et bas, droite).

La seule éprouvette non irradiée rompue à 10^{-4} s^{-1} est celle référencée A2T1-77, à la concentration de 10^{-3} g.g^{-1} , pour une déformation à rupture de 6.63%. Sur le faciès de cette éprouvette, cinq fissures de CSC-I ont été observées au MEB et les zones intergranulaires ont été mesurées. La largeur moyenne de ces zones était de $127 \mu\text{m}$ pour une profondeur moyenne de $87 \mu\text{m}$. Ces dimensions sont proches de celles mesurées pour l'éprouvette irradiée n°3, sollicitée à la même vitesse, jusqu'à une déformation comparable mais avec une concentration d'iode dix fois plus faible (10^{-4} g.g^{-1}). Ceci montre la plus grande sensibilité du matériau irradié à la CSC-I.

Une des conséquences de cette sensibilité plus importante est la perte de ductilité, par rapport aux essais de CSC-I réalisés dans les mêmes conditions sur matériau non irradié. A 10^{-4} s^{-1} et 10^{-4} g.g^{-1} , les éprouvettes n°2 et n°3 montrent que la contrainte maximale est atteinte pour une déformation plastique rationnelle comprise entre 5.9% et 7.2%. Dans les mêmes conditions, l'essai sur matériau non irradié A2T1-67, interrompus à 7.2% de déformation, montre un taux d'écrouissage de 0.10 à l'arrêt, signe que la striction est

encore loin d'être atteinte. La perte de ductilité est encore plus importante à faible vitesse. L'éprouvette n°5, sollicitée à 10^{-5} s^{-1} , à 10^{-4} g.g^{-1} , présente le maximum de contrainte à 0.9% de déformation plastique, alors qu'il est atteint à 7.4% pour l'éprouvette non irradiée A2T1-79 dans les mêmes conditions.

Pour une concentration en iode de dix fois plus faible (10^{-5} g.g^{-1}), à 10^{-4} s^{-1} , la striction du matériau irradié est atteinte à 10.64% (éprouvette n°6). En milieu inerte et sans irradiation, on trouve 12.9% (éprouvette A1L1-2). La perte de ductilité dans ces dernières conditions est donc très faible. Les effets de concentration et de vitesse (ou de temps) qu'on avait observé sur matériau non irradié subsistent donc sur le matériau irradié.

IV.1.4.2.2 Amorçages des fissures de CSC-I

Comme sur les éprouvettes lisses et entaillées, la présence de fissure est détectée au microscope optique. Dans les conditions de référence (une vitesse de déformation de 10^{-4} s^{-1} et une concentration de 10^{-4} g.g^{-1}), deux éprouvettes irradiées ont été testées. La première à avoir présenté des fissures est l'éprouvette n°3, à la fin du deuxième essai interrompu, pour un niveau de déformation plastique cumulée de 0.65%. Trois exemples d'amorces de CSC-I observées au microscope optique sont montrés sur la Figure IV.32. Les fissures ont un aspect similaire à celui que l'on observe sur le matériau non irradié. Elles sont bien intergranulaires et globalement perpendiculaires à la direction de sollicitation (L, ici). On observe également des grains déchaussés au milieu des fissures, ou qui ont l'air d'avoir été attaqués chimiquement (présence de relief). Les bandes de déformations macroscopiques ne sont pas visibles à ce niveau de déformation, tout du moins au microscope optique.

Dans les mêmes conditions de vitesse et concentration, l'essai 2 de l'éprouvette n°2 a été arrêté pour une déformation plastique cumulée de 1%. Alors qu'à 0.65%, on n'a observé que 6 amorces de fissures toutes inférieures à $30 \mu\text{m}$, 25 fissures ont été observées à 1%. Leur taille moyenne est de $20 \mu\text{m}$, mais certaines mesurent plus de $100 \mu\text{m}$. Pour le matériau non irradié, dans les mêmes conditions, il faut atteindre 3% de déformation plastique pour avoir plus de 20 fissures de taille comparable. Le matériau irradié semble donc beaucoup plus sensible à la déformation plastique.

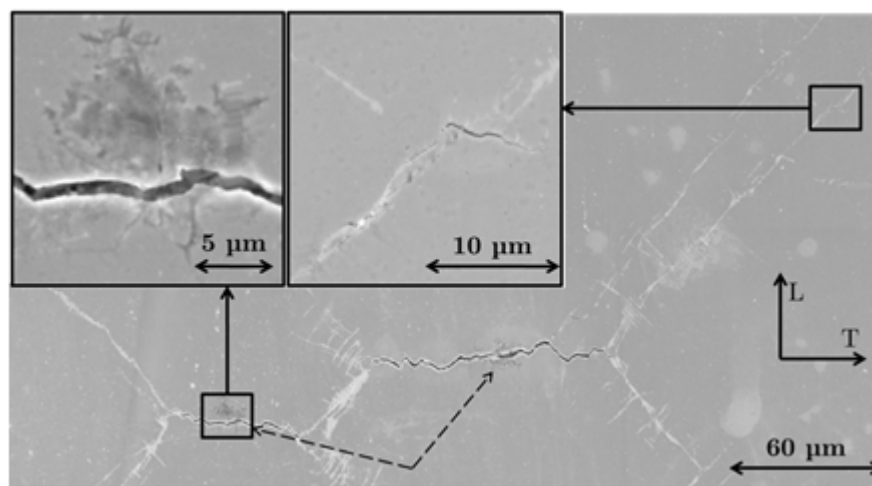


Figure IV.33 : Observation au MEB de la surface d'amorçage de l'éprouvette n°2, après l'essai 2 (1%). Présence de bandes de déformation macroscopique. Attaque chimique sur un grain (détail gauche) et amorçage d'une fissure le long d'une bande de déformation et à l'intersection avec un joint de grain (détail droit).

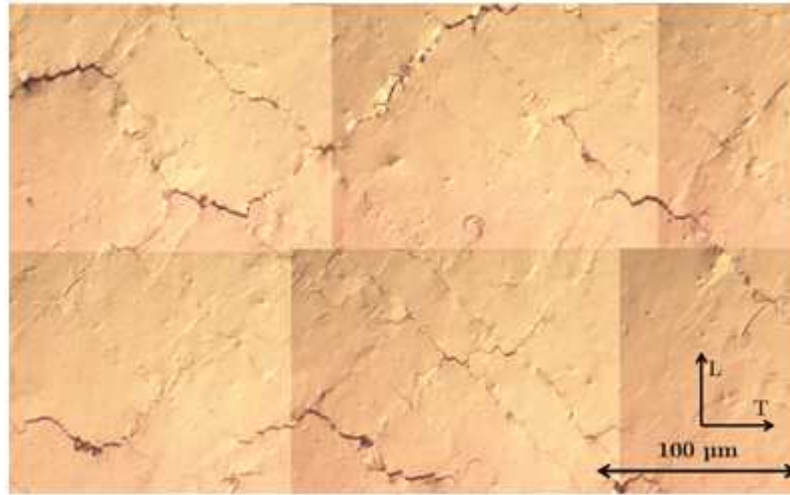


Figure IV.34 : Surface d'amorçage de l'éprouvette n°2 après l'essai 3 (2.86%). Le nombre de fissures est très important et les bandes de glissement fissurées sont difficilement distinguables des non fissurées.

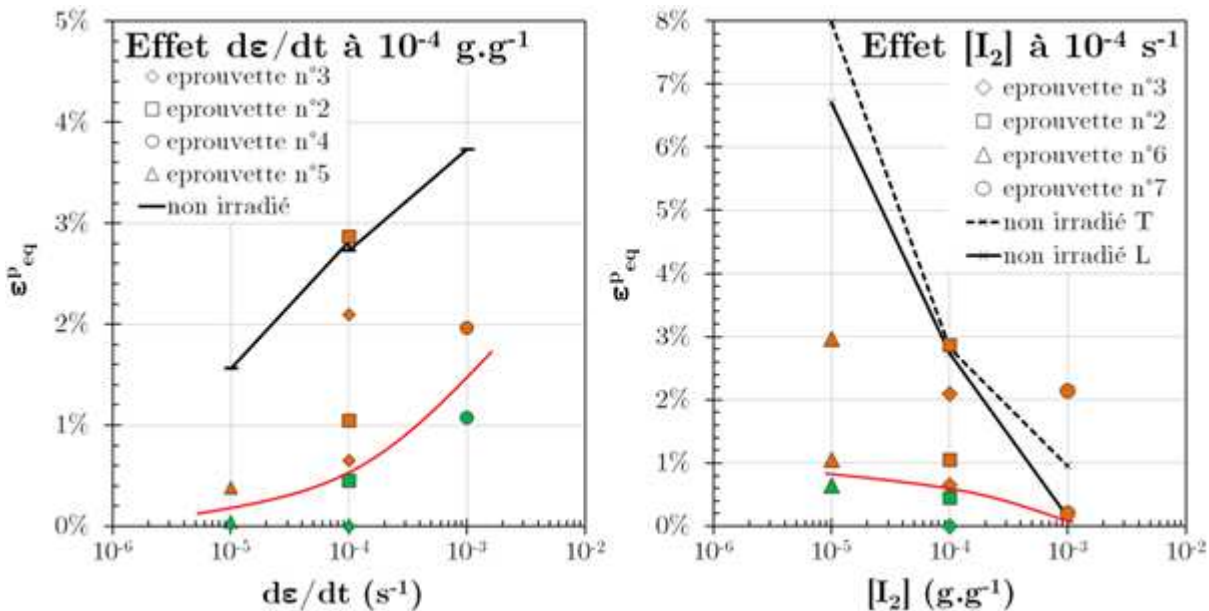


Figure IV.35 : Effet de la vitesse de déformation à concentration fixée (gauche) et de la concentration à vitesse fixée (droite) sur la déformation plastique cumulée à l'amorçage. Comparaison du matériau irradié (traits rouges) au non irradié (traits noirs). Les points de couleur orange indiquent des essais présentant des fissures, contrairement aux points de couleur verte.

Cette éprouvette a été observée au MEB pour observer les amorces de fissures. La Figure IV.33 montre l'une de ces observations. On remarque la présence des bandes de déformations macroscopiques mentionnées dans la littérature. Dans les conditions d'observation du MEB, ces bandes apparaissent blanches. Elles sont orientées à 45° de l'axe de l'éprouvette. Sur cette figure, on observe deux grandes fissures ; chacune semble avoir été amorcée par une piqûre de corrosion. Ces fissures se sont développées et les contraintes et déformations aux extrémités des fissures ont généré des bandes de déformation. Ces bandes sont des longs filaments étroits partant des extrémités des fissures, de plusieurs centaines de microns et orientés à 45° de la fissure. On observe

également des séries de courtes bandes rapprochées, normales aux bandes principales, donnant une impression de rayonnement des extrémités des fissures.

Ces bandes de déformations sont des lieux d'amorçages de fissures, quand elles rencontrent un joint de grain normal à la direction de sollicitation, mais aussi quand elles longent un joint de grain. Cela est illustré sur l'un des zooms de la Figure IV.33. On comprend alors l'emballement du nombre de fissures une fois la première amorcée. De plus la génération des bandes de déformation n'est pas limitée aux extrémités des fissures : il s'en crée dans l'ensemble de la couche irradiée quand celle-ci est déformée plastiquement. Ce point sera rediscuté dans la suite. L'état de surface obtenu après l'essai 3 (2.86%) sur l'éprouvette n°2 illustre cet emballement et l'impossibilité d'établir des statistiques fiables sur les fissures (Figure IV.34). Dans une première approche, on se limitera donc à évaluer la sensibilité à la CSC-I, du point de vue de l'apparition de la première fissure.

IV.1.4.2.3 Effets de vitesse et de concentration

A partir de ces observations au microscope optique et des courbes de traction macroscopiques, on a pu mettre en évidence la sensibilité accrue du matériau irradié pour ce qui concerne l'amorçage des fissures de CSC-I. Grâce aux essais interrompus, il a été possible d'encadrer les déformations plastiques à l'amorçage pour les différentes conditions de vitesse et de concentration. Ces valeurs sont comparées au cas du matériau non irradié sur la Figure IV.35. Il apparaît que le matériau irradié est beaucoup plus sensible à la CSC-I en termes de déformations à l'amorçage, pour toutes vitesses et concentrations. On parle ici des déformations calculées à partir du déplacement de la traverse, c'est-à-dire de l'éprouvette prise comme un tout. L'évaluation des champs mécaniques dans la couche irradiée sera faite dans la suite.

A la concentration de 10^{-4} g.g⁻¹, on observe toujours un effet de la vitesse de déformation. Plus on sollicite rapidement le matériau et plus il faut le déformer pour faire apparaître la première fissure. L'éprouvette n°5 sollicitée à 10^{-5} s⁻¹ présente une déformation plastique à l'amorçage comprise entre 0.05% (essai 1) et 0.38% (essai 2). Pour ces deux essais, il n'a pas été observé de bandes de déformation macroscopique au microscope optique. Pour l'essai 2, seule une fissure a été observée sur l'ensemble de la surface exposée au milieu agressif. A 10^{-4} s⁻¹, l'utilisation de deux éprouvettes a permis d'encadrer précisément la déformation à l'amorçage, entre 0.45% et 0.65%. Elle est plus importante que la borne supérieure pour les essais à 10^{-5} s⁻¹. On note de plus la présence de bandes de déformation sur l'éprouvette n°3, dès 0.45%. A 10^{-3} s⁻¹, les bornes sont entre 1.08% et 1.96%. Ces essais ne permettent cependant pas de savoir si cet effet de vitesse n'est pas qu'un effet de temps, comme on se le demandait déjà pour le matériau non irradié. D'autres essais seraient nécessaires pour répondre à cette question. En comparaison avec le matériau non irradié, on observe une chute de la déformation à l'amorçage pour toutes les vitesses, que l'on pourrait estimer par un décalage d'environ 2%.

Les éprouvettes n°6 et 7 ont servi à étudier l'effet de la concentration en iode des solutions sur l'amorçage des fissures à une vitesse de déformation constante de 10^{-4} s⁻¹. Les résultats de la détection de fissure sont également donnés sur la Figure IV.35. Le matériau irradié est beaucoup plus sensible à la CSC-I que le matériau non irradié. Pour les trois concentrations testées, la déformation à l'amorçage est toujours inférieure à 1%, même à 10^{-5} g.g⁻¹ où la déformation à l'amorçage pour le matériau non irradié était supérieure à 7%. Malgré la très forte sensibilité à la CSC-I, on remarque encore un effet de la concentration. Si l'on prend la valeur moyenne de l'encadrement, la déformation plastique à l'amorçage vaut 0.85% à 10^{-5} g.g⁻¹, 0.55% à 10^{-4} g.g⁻¹ et moins de 0.21% à 10^{-3} g.g⁻¹.

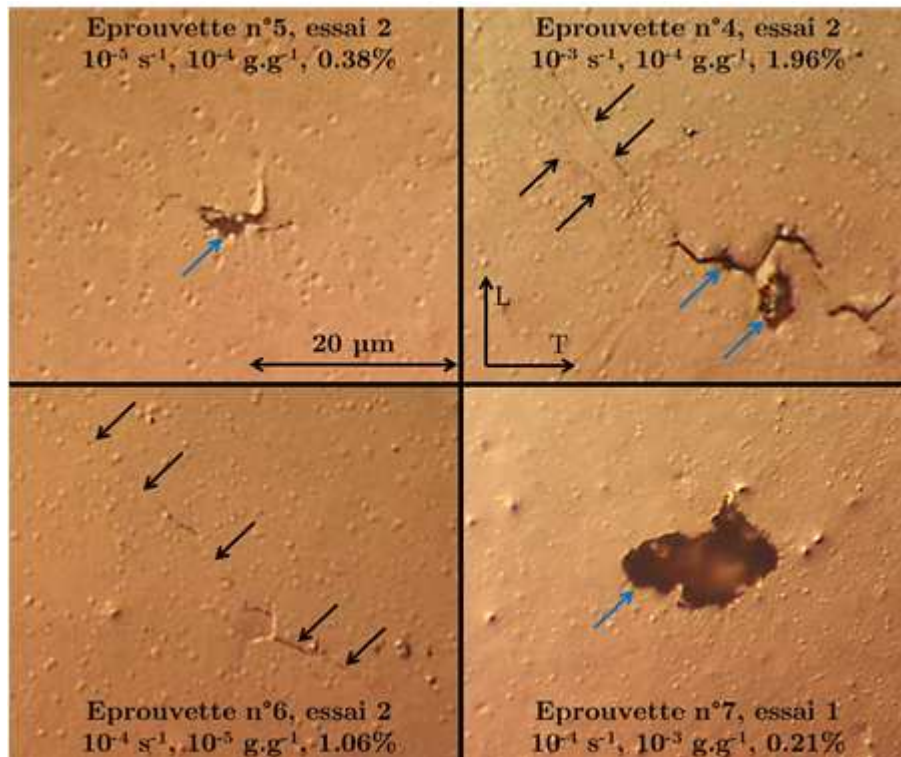


Figure IV.36 : Micrographies optiques de différentes éprouvettes à la détection des premières fissures. Mise en évidence des différences de forme des défauts. Les flèches noires indiquent la présence de bandes de déformation. Les flèches bleues pointent vers des défauts larges, peut-être liés à une piqûration.

En effet, dès le premier essai sur l'éprouvette 7 à forte concentration (0.21%), de l'endommagement a été observé, en l'absence de bande de déformation. On ne dispose donc pas de borne inférieure pour la plus forte concentration.

Les faciès des éprouvettes n°3 (10^{-4} s^{-1} , 10^{-4} g.g^{-1}), n°6 (10^{-4} s^{-1} , 10^{-5} g.g^{-1}) et n°7 (10^{-4} s^{-1} , 10^{-3} g.g^{-1}) ont été observés au MEB. Pour l'éprouvette n°3, deux amorces ont été observées sur le faciès. Les zones intergranulaires sont de largeurs respectives de $159 \mu\text{m}$ et $178 \mu\text{m}$, et de profondeurs respectives de $82 \mu\text{m}$ et $65 \mu\text{m}$. Pour l'éprouvette n°6, le faciès est presque exclusivement ductile, avec la présence d'une amorce intergranulaire de profondeur inférieure à $30 \mu\text{m}$. Pour l'éprouvette n°7, on observe une unique et très grande zone intergranulaire, de largeur supérieure à $450 \mu\text{m}$ et de profondeur d'environ $150 \mu\text{m}$. La taille de la zone intergranulaire dépend donc fortement de la concentration. Les calculs de $K_{IG/M}$ pour les éprouvettes n°3 et n°7 donnent respectivement $5.3 \text{ MPa.m}^{1/2}$ (moyenne des deux amorces) et $7.8 \text{ MPa.m}^{1/2}$. Pour le matériau non irradié et des éprouvettes de sens T, sollicitées à 10^{-5} s^{-1} , on avait trouvé des valeurs moyennes de $6.5 \text{ MPa.m}^{1/2}$ (A2T1-79, 10^{-4} g.g^{-1}) et $7.1 \text{ MPa.m}^{1/2}$ (A2T1-63, 10^{-3} g.g^{-1}). Le matériau irradié serait donc plus sensible. Cependant il faut considérer ces résultats avec précaution car l'irradiation ne concerne que les $30 \mu\text{m}$ et que les fissures observées ne sont pas entièrement comprises dans cette couche..

Les différentes observations ont montré que les bandes de déformation macroscopiques apparaissaient entre 0.38% (éprouvette n°5, essai 2) et 0.65% (éprouvette n°3, essai 2) de déformation plastique macroscopique. Cela implique donc qu'il est possible d'amorcer des fissures de CSC-I sans la présence de ces bandes, pour l'éprouvette n°5 (10^{-5} s^{-1} et 10^{-4} g.g^{-1}) et pour l'éprouvette n°7 (10^{-4} s^{-1} et 10^{-3} g.g^{-1}), c'est-à-dire à faible vitesse et/ou forte concentration. La sensibilité accrue du matériau irradié n'est donc pas uniquement due à la

présence de ces bandes, mais à une sensibilité plus importante à la piqûration. La Figure IV.36 regroupe les différentes morphologies des premières fissures observées pour différentes conditions de concentration, vitesse et niveau de déformation. On y observe que pour une concentration de 10^{-4} g.g⁻¹, les endommagements observés se caractérisent par une piqûration ou une attaque chimique, que ce soit en présence de bande de déformation ou non. A 10^{-3} g.g⁻¹ (en bas à droite sur la Figure IV.36), cette attaque chimique semble être la seule cause de l'endommagement. Pour l'éprouvette n°7, dès l'essai 1 (0.21%), on observe quatre cratères correspondant à l'enlèvement d'un amas de grains. Le diamètre d'un tel cratère peut atteindre dix fois la taille moyenne de grain. De tels cratères n'ont pas été observés pour le matériau non irradié. A faible vitesse et concentration moyenne (en haut à gauche sur la Figure IV.36), on observe une fissure qui se développe autour d'une piqûre, sans l'assistance des bandes de déformation. A forte vitesse et concentration moyenne (en haut à droite sur la Figure IV.36), on observe à la fois une piqûre de corrosion et une fissure qui se développe autour, peut-être avec l'aide des bandes de déformations. Seules les faibles concentrations (en bas à gauche sur la Figure IV.36) permettent d'observer des fissures sans la présence d'attaque chimique. On retrouve une fissure qui se développe autour d'un grain qui apparaît déchaussé, comme pour le matériau non irradié. On remarque une bande de déformation macroscopique qui « passe » par ce grain fissuré.

On mettrait ainsi en évidence le double effet de l'irradiation sur la sensibilité à la CSC-I. Le premier et principal effet serait lié à la réactivité du matériau et se traduirait par une augmentation de la sensibilité à la corrosion par piqûres, celles-ci servant de défaut initial pour la fissuration. Du fait de cette piqûration, les déformations à l'amorçage chutent pour les moyennes et fortes concentrations ($\geq 10^{-4}$ g.g⁻¹). Quand la concentration en iode est insuffisante pour amorcer des fissures à partir d'une piqûre de corrosion, la chute de déformation à l'amorçage est assurée par l'émergence des bandes de déformation macroscopique. Ces bandes sont également responsables des très fortes densités de fissures observées par rapport au matériau non irradié, à toute concentration. Ces deux effets seront discutés dans le chapitre suivant.

IV.1.4.2.4 Utilisation de la simulation numérique

Un modèle de comportement du matériau irradié a été proposé précédemment (§ III.3.4) sur la base de mesures de dureté et de l'étude bibliographique. Le renforcement de l'éprouvette à cause de la présence de la couche irradiée est bien simulé par les calculs par éléments finis. Malgré la simplicité de l'approche adoptée, on utilise ce modèle pour estimer les contraintes et déformations plastiques en surface de la couche par des calculs.

La Figure IV.37 récapitule les résultats obtenus avec le maillage utilisé. Les contraintes dans la couche irradiée, supposée uniforme, sont bien supérieures à celle du matériau non irradié, du fait du durcissement d'irradiation. On observe également que la plasticité dans la couche irradiée est déclenchée avec un retard d'environ 0.25% de déformation plastique macroscopique. L'apparition des bandes de déformation macroscopique se ferait donc toujours en présence de plasticité. Avec un tel retard à la plasticité, seul le deuxième essai sur l'éprouvette n°7 (10^{-4} s⁻¹, 10^{-3} g.g⁻¹, 0.21%) exhiberait des fissures, tout en restant dans le domaine d'élasticité de la couche. Cela renforce l'idée selon laquelle l'endommagement à forte concentration peut se produire en l'absence de plasticité comme cela était le cas pour quelques essais sur matériau non irradié. Tous les autres essais présentant des fissures se trouvaient dans le domaine plastique.

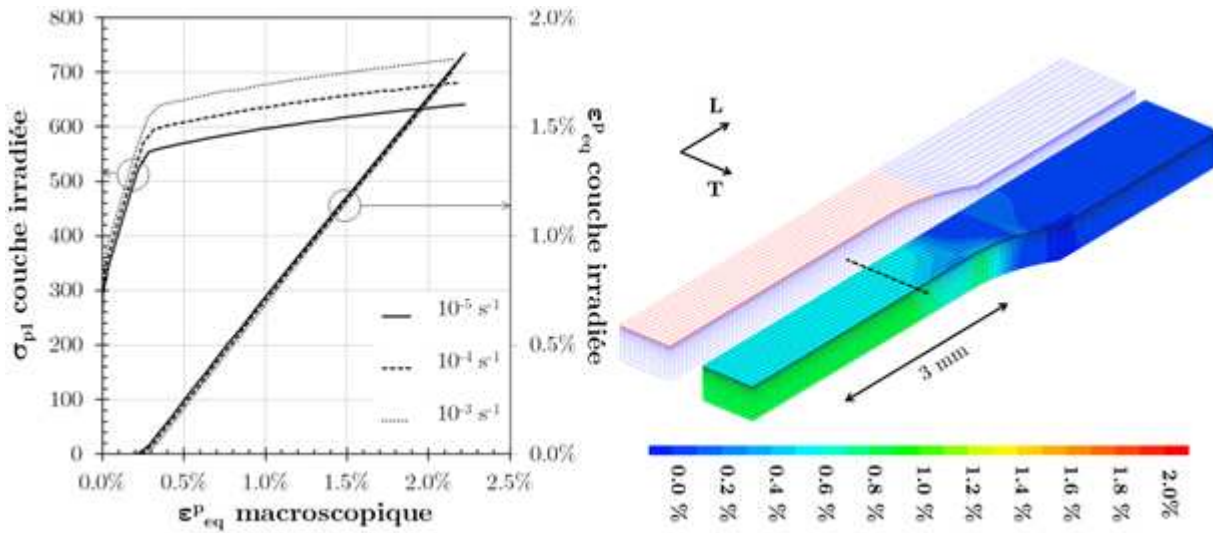


Figure IV.37 : Evolutions de la contrainte principale et de la déformation plastique équivalente dans la couche irradiée en fonction de la déformation plastique macroscopique, pour les trois vitesses de sollicitation (gauche). Maillage utilisé pour les calculs par éléments finis (droite). Un quart d'éprouvette est simulé, la couche irradiée (rouge) a 5 éléments dans son épaisseur (30 μ m). Iso-valeurs de la déformation plastique équivalente pour une déformation totale de 1.5%. Les pointillés noirs marquent la fin de la zone exposée à l'iode.

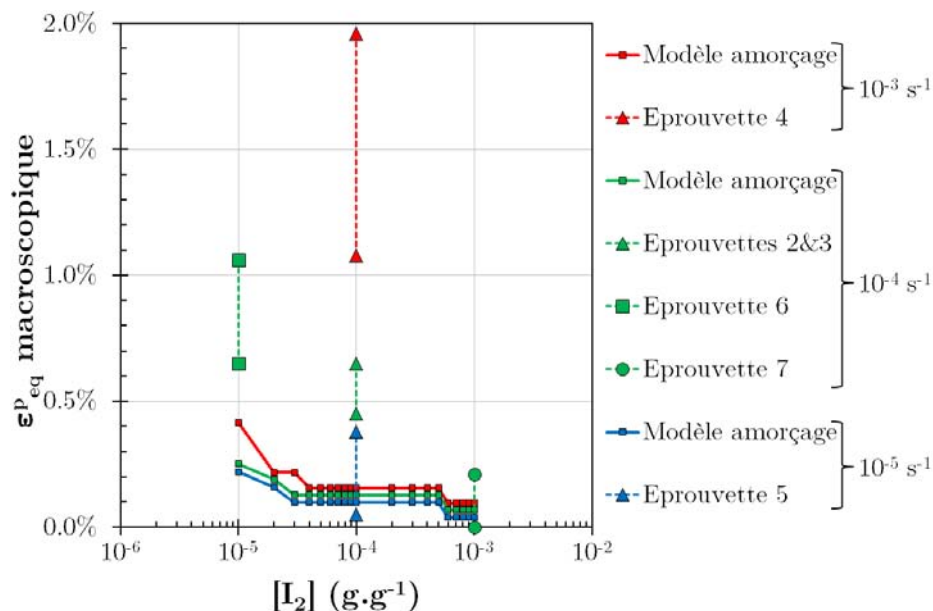


Figure IV.38 : Prédiction des déformations plastiques macroscopiques à l'amorçage sur éprouvette irradiée avec le modèle d'amorçage identifié sur matériau non irradiée (traits continus), pour les différentes vitesses de sollicitation : $10^{-5} s^{-1}$ (bleu), $10^{-4} s^{-1}$ (vert) et $10^{-3} s^{-1}$ (rouge). Comparaison avec les encadrements expérimentaux (traits pointillés).

Disposant des contraintes axiales et latérales et des déformations dans la couche irradiée en fonction du temps, on peut appliquer le modèle d'amorçage pour les essais sur matériau irradié. On obtient ainsi des domaines de fissuration prédits, que l'on compare aux déformations à l'amorçage expérimentales. Cette comparaison est faite en Figure IV.38. Le modèle sous-estime très fortement la déformation à l'amorçage pour toutes les vitesses de déformation et concentrations, à l'exception de 10^{-3} g.g^{-1} . Ces sous-estimations proviennent des valeurs très importantes de la contrainte principale dans la couche irradiée et du formalisme adopté pour la vitesse de l'endommagement. En effet, il s'agit d'une loi puissance sur la contrainte principale normalisée, avec un exposant p_{σ_p} supérieur à 20. Si la contrainte de normalisation σ_{p0} ne change pas, une augmentation de la contrainte de 90% implique un amorçage prédit beaucoup plus rapide. En prenant σ_{p0} égal à 660 MPa et p_{σ_p} égal à 8, on retrouve les déformations à l'amorçage pour la concentration 10^{-4} g.g^{-1} , mais pas à plus faible concentration.

Plus qu'un ajustement des paramètres, les résultats sur matériau irradié montrent qu'il est nécessaire de changer le formalisme du modèle. En effet, Les deux termes multiplicatifs de l'équation du dommage (Eq. IV.3) semblent obsolètes. On a vu que la sensibilité à la corrosion du matériau irradié est bien plus importante que celle du matériau non irradié, d'où la nécessité d'une modification de la fonction $f(I)$. De plus, lorsque la concentration n'est pas trop élevée, le moteur de l'amorçage semble être la déformation plastique, avec l'apparition des bandes de déformation macroscopique, plus que la contrainte principale comme cela était le cas pour le matériau non irradié.

IV.1.5 Conclusions

Dans cette première partie, les essais de CSC-I en présence de plasticité active ont été présentés. Les variations de conditions expérimentales ont permis d'étudier l'effet de la concentration et de la vitesse de déformation sur l'amorçage des fissures sur éprouvettes lisses prélevées dans le sens travers de la tôle.

Tout d'abord, les conditions expérimentales mises en place permettent de fissurer le matériau en présence d'iode dissous dans du méthanol, avec une phénoménologie très proche de celle rapportée dans la littérature. Les amorces de fissures sont intergranulaires, de forme lenticulaire ; l'étape d'amorçage est suivie par une propagation mixte intergranulaire-transgranulaire, avec fluting. La présence de quasi-clivage est très marginale, à cause de l'orientation des plans de base par rapport à la direction de sollicitation.

Les résultats montrent un fort effet de la concentration en iode sur les déformations plastiques à l'amorçage. Une concentration seuil I_0 proche de 10^{-5} g.g^{-1} a été observée, en dessous de laquelle on n'amorce plus de fissure de CSC-I dans les conditions d'essais. Au-dessus de cette concentration seuil, on note la présence d'un plateau de déformation à l'amorçage jusqu'à une concentration de transition I_1 supérieure à 10^{-4} g.g^{-1} , au-delà de laquelle les déformations à l'amorçage chutent. Une fissuration en l'absence de plasticité est alors possible. A déformation plastique constante, une augmentation de la concentration favorise exponentiellement la densité de fissures, notamment au passage de I_1 . La largeur moyenne de fissure augmente également quand la concentration en iode augmente mais dans une proportion moindre. L'endommagement semble changer de nature autour de I_1 . Pour des concentrations moyennes, les fissures semblent propager de part et d'autre d'un grain déchaussé, en suivant les joints des grains voisins, perpendiculairement à la contrainte appliquée. Aux fortes concentrations, on observe des zones chimiquement attaquées, avec enlèvement d'un ou plusieurs grains et fissuration des joints des grains alentours. On aurait ainsi deux modes d'amorçage intergranulaire, l'un plus mécanique lié

à la plasticité et l'autre plus dépendant de la réactivité du matériau vis-à-vis de l'environnement.

A ces effets de concentration viennent s'ajouter les effets de vitesse de déformation. Si la concentration seuil I_0 ne varie pas trop avec la vitesse, le niveau du plateau de déformation et son étendue en termes de concentration en iode en dépendent fortement. Pour une concentration moyenne proche de 10^{-4} g.g⁻¹, le niveau du plateau passe de 3.8% à 3%, quand la vitesse passe de 10^{-3} s⁻¹ à 10^{-4} s⁻¹ puis à 1.25% à 10^{-5} s⁻¹. L'étendue du plateau est impactée par la diminution de la concentration de transition, qui passe environ de 8 à $2 \cdot 10^{-4}$ g.g⁻¹ quand la vitesse diminue de 10^{-3} à 10^{-5} s⁻¹. Cela montre que le temps est un paramètre essentiel des deux modes d'amorçage observés.

Les statistiques de fissures obtenues à partir des cartographies réalisées montrent que la déformation plastique a une forte influence sur la densité de fissures, à toutes les concentrations. Cependant, elle ne semble pas jouer un rôle important sur la taille moyenne des fissures. Comme les essais réalisés étaient tous à vitesse de déformation imposée, on ne peut découpler les effets de la déformation plastique et du temps.

Des essais sur éprouvettes prélevées dans le sens de laminage ont montré de grandes similarités de fissuration entre les deux directions testées. Un même niveau de plateau de déformation à l'amorçage est observé, et les densités et longueurs moyennes des fissures se superposent pour les deux directions testées. Une différence non expliquée est constatée sur la valeur de la concentration de transition.

Des essais ont ensuite été menés sur éprouvettes prélevées dans la direction transverse avec des entailles semi-circulaires de différents rayons de part et d'autre du milieu de la longueur utile. Ces essais ont été réalisés à une concentration de 10^{-4} g.g⁻¹, pour se placer au niveau des plateaux de déformation où la mécanique semble jouer un rôle important sur la fissuration. Une même phénoménologie de fissuration est observée sur ces éprouvettes. Des localisations préférentielles des fissures ont été observées près des entailles pour tous les types d'éprouvettes, et une absence de fissure au centre des éprouvettes avec les plus petites entailles.

La réalisation de simulations par éléments finis avec le modèle de comportement identifié au chapitre précédent a montré que ces effets de localisation n'étaient pas simplement dus à la distribution hétérogène de champs mécaniques locaux (déformation, contrainte ou vitesse) et qu'il existe un effet de la biaxialité des contraintes. Cet effet est positif sur la résistance à la CSC-I : les fissures ne s'amorcent pas dans des zones contraintes de façon biaxée, pour des déformations locales équivalentes de plus de 10%, une contrainte principale maximale de plus de 600 MPa et des vitesses de déformation comparables à celles des essais uniaxiaux.

A partir des simulations numériques, il a été possible d'extraire les évolutions locales des champs mécaniques pour définir un modèle phénoménologique de l'amorçage. L'influence de la concentration y est prise en compte à l'aide d'une fonction simulant une sensibilité accrue à la CSC-I au-delà de la concentration de transition. La contrainte principale maximale est choisie comme moteur mécanique de l'endommagement, car les fissures de CSC-I lui sont perpendiculaires, et que la plasticité n'est pas toujours requise pour fissurer. Les effets de biaxialité sont pris en compte pour les essais biaxés en remplaçant la seule contrainte principale par une combinaison linéaire avec la seconde contrainte principale. Dans ces conditions, un bon accord entre modèle et expériences est trouvé.

L'effet de l'irradiation sur la sensibilité à la CSC-I a été étudié sur des éprouvettes prélevées sur une plaque irradiée aux protons à une dose de 2 dpa. La phénoménologie de

fissuration ne semble pas affectée par l'irradiation. En revanche, la sensibilité à la CSC-I est beaucoup plus importante pour le matériau irradié que pour celui non irradié. On constate notamment une perte de ductilité à 10^{-5} g.g^{-1} et 10^{-4} s^{-1} , alors qu'aucune fissure n'est observée dans ces conditions sur matériau non irradié. Par rapport au matériau non irradié, les déformations à l'amorçage chutent et ne dépassent pas 1% pour l'ensemble des concentrations testées à 10^{-4} s^{-1} . Dans ces conditions, on observe quand même un effet de concentration ainsi qu'un effet de la vitesse de sollicitation. Ici encore, on ne peut découpler l'effet de vitesse et celui du temps.

Les observations au microscope optique et électronique ont montré un changement du mode d'amorçage des fissures. A faibles et moyennes concentrations, l'émergence de bandes de déformation macroscopiques dans la couche irradiée conduit à l'amorçage intergranulaire prématuré de fissures sur des joints de grains le long des bandes de déformation ou croisés par celles-ci. La sensibilité à la corrosion de la couche irradiée apparaît également plus prononcée que celle du matériau non irradié. Des traces de piquuration sont visibles sur des fissures amorcées à concentrations moyennes, alors que de telles amorces étaient observées à forte concentration uniquement sur matériau non irradié. A fortes concentrations, on constate des défauts intergranulaires de plusieurs dizaines de microns de diamètre et profondeur, créés en l'absence de déformation plastique.

IV.2 Essais de CSC-I sans déformation plastique active

La première partie de ce chapitre a permis de montrer l'influence de différents paramètres sur la CSC-I dans le cadre d'essais sur éprouvettes de traction avec plasticité active lors de l'exposition au milieu corrosif. A partir des résultats expérimentaux et de simulations numériques, on a supposé que le paramètre pertinent pour l'amorçage des fissures était la contrainte principale. Les statistiques de fissuration ont montré que le niveau de déformation plastique en fin d'essai avait une influence sur la densité de fissures. Pour distinguer cet effet d'un simple effet du temps, des essais de mise en contrainte sans plasticité active ont été réalisés en milieu méthanol iodé. Les différents essais et leurs résultats sont présentés ici.

IV.2.1 Essais de fluage en flexion 4 points

IV.2.1.1 Conditions d'études et essais réalisés

Dans un premier temps, on traite des résultats obtenus avec le montage de fluage en flexion 4 points utilisés avec des languettes, immergées dans des solutions de méthanol iodé. On rappelle tout d'abord quelques données sur ces essais. Les languettes de flexion, également appelées éprouvette de type 3, ont une largeur de 2 mm et une longueur de 40 mm. Avant modification du montage, l'écart entre les appuis extérieurs était de 32 mm et celui entre appuis intérieurs de 8 mm. Les concentrations testées sont comprises entre 10^{-6} et 10^{-3} g.g^{-1} . Neuf masses différentes sont disponibles pour la mise en charge. L'épaisseur moyenne des éprouvettes est de 450 μm . La face en traction des éprouvettes est polie avec la même procédure que pour les éprouvettes de traction. Les tranches des éprouvettes sont également protégées avec la pâte siliconée. En tout, 234 languettes ont été testées avec les deux montages de flexion, dont seulement 24 prélevées dans la direction L. Parmi les languettes prélevées dans la direction T, 12 présentaient une entaille de rayon 0.3 mm (éprouvettes de type 4, non mentionnées dans la présentation des procédures expérimentales). La très grande majorité des essais concerne donc des languettes lisses prélevées dans la direction T. Par soucis de place, on ne donne pas ici la liste détaillée des

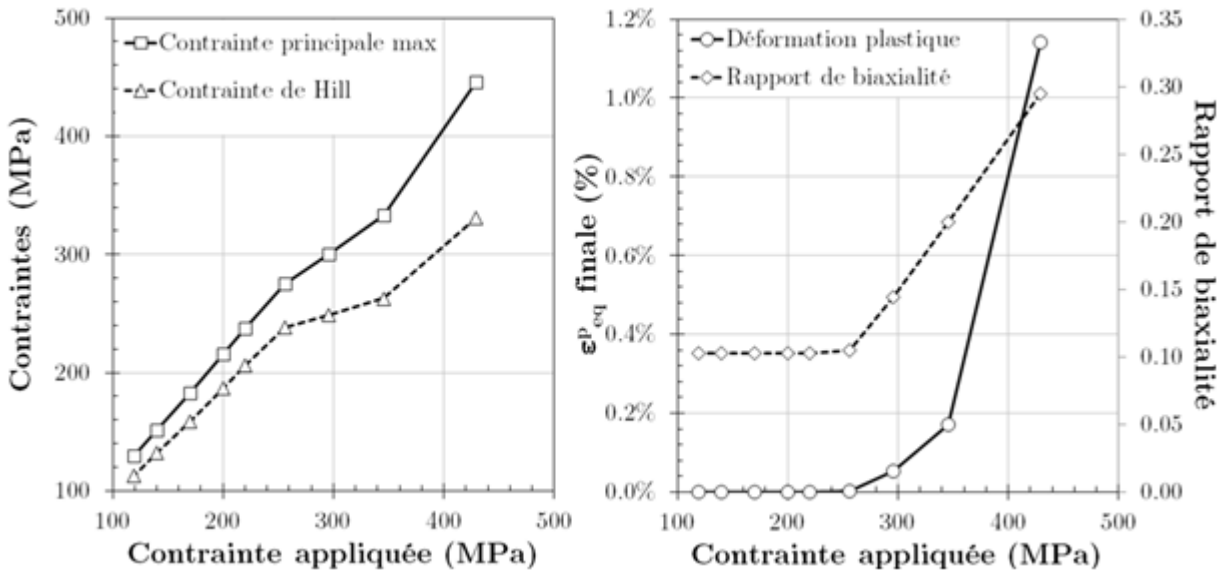


Figure IV.39 : Evolution de la contrainte principale maximale et de la contrainte de Hill au centre de la face en traction en fonction de la contrainte de flexion appliquée (gauche). Evolution de la déformation plastique équivalente et du rapport de biaxialité (droite) au centre de la face en traction. Les valeurs de fin d'essai sont données. L'éprouvette se déforme plastiquement à partir d'une contrainte appliquée de 300 MPa (renvoi adéquat au paragraphe du chapitre mécanique).

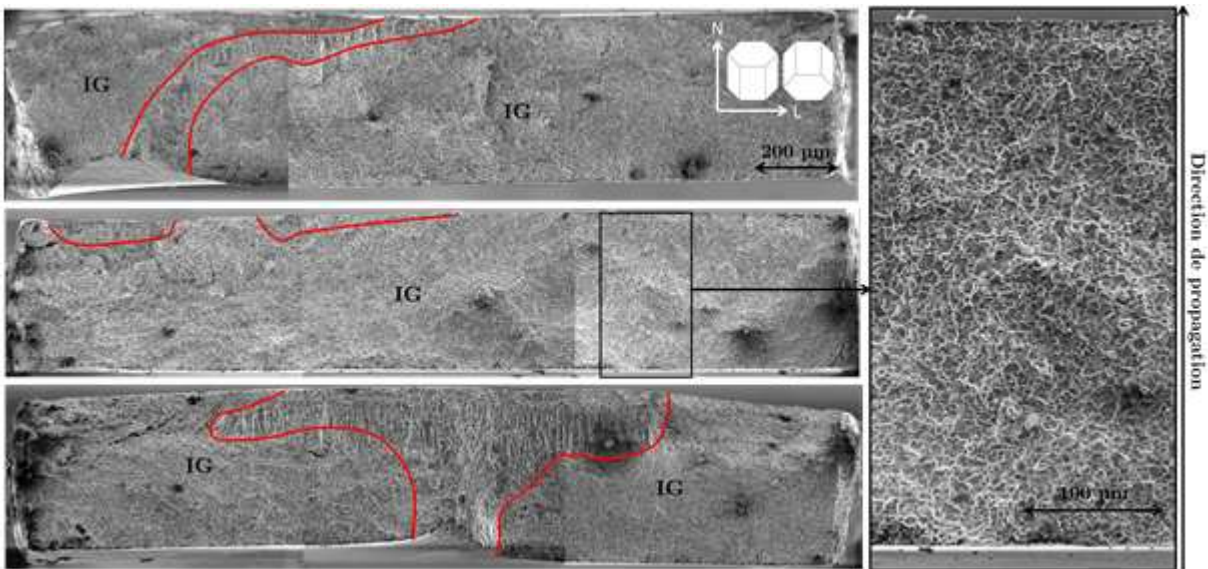


Figure IV.40 : Faciès de rupture de trois éprouvettes de flexion 4 points de direction T : A1T3-9 (haut, $2.5 \cdot 10^{-4} \text{ g.g}^{-1}$, 209 MPa, 41.7 h), A1T3-12 (milieu et détail, $2 \cdot 10^{-4} \text{ g.g}^{-1}$, 257 MPa, 19.6 h) et A1T3-13 (bas, $3.1 \cdot 10^{-4} \text{ g.g}^{-1}$, 318 MPa, 32.2 h). Les traits rouges délimitent les zones qui ne sont pas exclusivement intergranulaires (mixte ou ductile). Sur tous les clichés, la face en traction est en bas.

essais. Pour chaque éprouvette mentionnée, on précisera la concentration de la solution utilisée, la contrainte de flexion appliquée et éventuellement le temps à rupture. Le temps d'essai est limité à 72h ; toutes les éprouvettes non rompues ont donc été exposées pendant 72h au méthanol iodé tout en étant sollicitées mécaniquement.

On rappelle également les résultats obtenus avec les simulations numériques sur la Figure IV.39. Pour une contrainte de flexion, calculée à partir de la formule de résistance des matériaux (Eq. II.5), on étudie les champs mécaniques locaux. On a vu au chapitre précédent qu'ils étaient relativement uniformes sur la face en traction, entre les appuis intérieurs. On s'intéresse aux valeurs au centre de l'éprouvette. Les résultats montrent que la plasticité macroscopique n'est pas activée pour des contraintes de flexion inférieures à 300 MPa. On trace également la valeur du rapport de biaxialité qui s'est avéré être important pour l'amorçage des fissures. Tant qu'on reste dans le domaine élastique, ce rapport est proche de 0.1 au centre de la face en traction de l'éprouvette (la flexion induit une contrainte latérale de traction au centre de cette face car la partie en compression résiste à la déformation de la partie en traction, et réciproquement). Quand l'éprouvette commence à plastifier, il augmente car le rapport de la déformation latérale sur la déformation axiale devient plus grand que le coefficient de Poisson. Les valeurs finales des champs au centre de la face en traction sont données, mais on dispose également des évolutions temporelles si besoin.

IV.2.1.2 Résultats et analyse

IV.2.1.2.1 Phénoménologie

L'objectif initial de cet essai était l'accumulation de nombreuses données pour délimiter le domaine d'action de la CSC-I, l'observation des faciès de rupture au MEB ou celle des amorces en surface au microscope optique n'ont pas été systématiques. Ainsi, ces données sont disponibles pour des concentrations comprises entre 10^{-4} et 10^{-3} g.g⁻¹ et des contraintes comprises entre 230 et 330 MPa.

Les faciès de rupture de trois éprouvettes sont montrés en Figure IV.40. Il apparaît que la propagation des fissures est presque exclusivement intergranulaire. La présence de propagation mixte ou ductile est très marginale et limitée à la rupture finale de l'éprouvette, au niveau de la face initialement en compression (Figure IV.40, milieu) ou entre deux fissures traversantes de CSC-I (Figure IV.40, haut et bas). Comme pour les éprouvettes de traction, la propagation transgranulaire est très majoritairement constituée de fluting, et le quasi-clivage n'est que peu observé (Figure IV.41). Contrairement à ce que l'on pourrait penser à partir de la Figure IV.40, la présence de plusieurs fissures sur le faciès est rare. On note de plus que, sur tous les faciès observés, aucune amorce de CSC-I n'a été remarquée partant de la face en compression de l'éprouvette.

Ce type d'essais est donc particulièrement adapté pour étudier l'influence de la contrainte sur la partie intergranulaire de la fissuration par CSC-I.

IV.2.1.2.2 Reproductibilité et domaine de rupture

Sur les 234 éprouvettes testées, 75 l'ont été après modifications des conditions d'essais. Les modifications concernent l'écartement des appuis extérieurs pour la flexion, et l'utilisation d'une nouvelle pâte siliconée plus « déformable ». Ces modifications ont été apportées suite à l'analyse des résultats obtenus initialement.

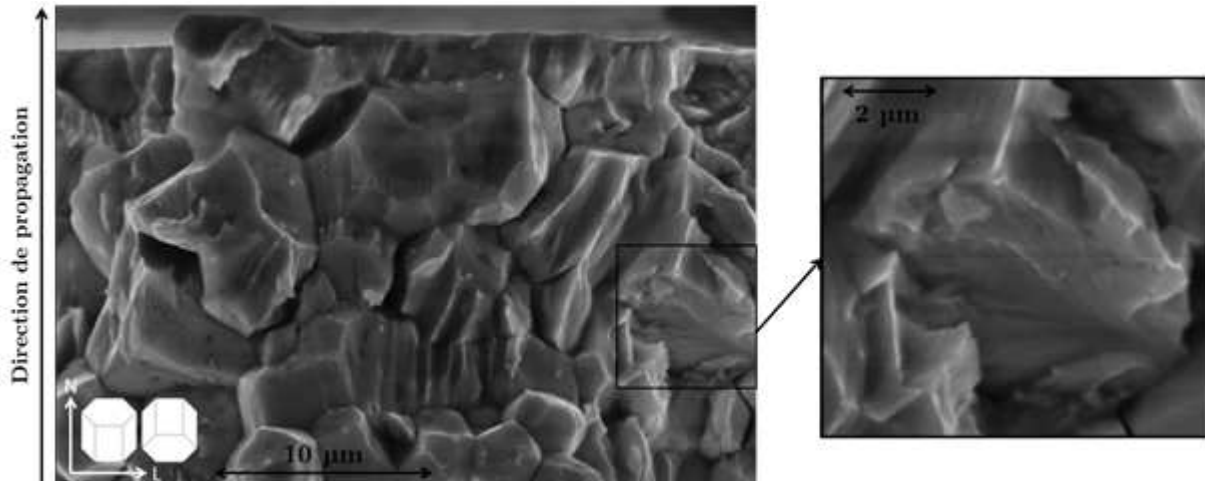


Figure IV.41 : Fissuration mixte en fin de propagation pour l'éprouvette A1T3-9 ($2.5 \cdot 10^{-4} \text{ g}\cdot\text{g}^{-1}$, 209 MPa, 41.7 h), présence de fluting et de quasi-clivage.

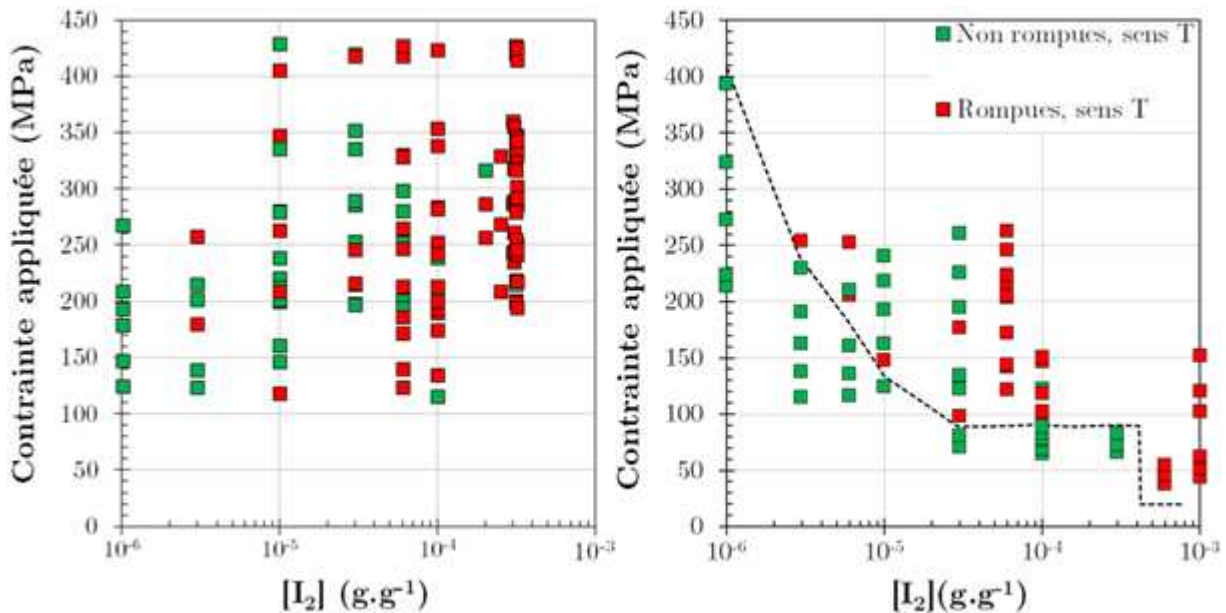


Figure IV.42 : Domaines de rupture identifiés sur les essais de flexion quatre points sur éprouvettes de direction T, avant modification du dispositif (gauche) et après (droite).

Le domaine de rupture est obtenu en plaçant chaque éprouvette dans le diagramme contrainte appliquée – concentration. Une éprouvette est représentée par un point rouge en cas de rupture et par un point vert sinon. La Figure IV.42 regroupe les deux domaines de rupture établis avant et après modifications.

Avant la modification, on observe une très grande dispersion des résultats. Pour toutes les concentrations testées, à l'exception de $10^{-6} \text{ g}\cdot\text{g}^{-1}$, il existe des points aberrants. A une concentration donnée, on a des éprouvettes qui n'ont pas rompu pour une contrainte σ alors qu'une ou plusieurs éprouvettes ont rompu pour des contraintes inférieures à σ . Cela apparaît clairement pour la concentration de $10^{-5} \text{ g}\cdot\text{g}^{-1}$ pour laquelle on observe 4 transitions entre des ruptures et des non ruptures quand la contrainte augmente. Les temps à rupture pour une même concentration ne semblent pas suivre une évolution logique avec la contrainte appliquée. Ce dernier point sera détaillé dans le paragraphe suivant.

On peut interpréter ces résultats de deux façons. La première hypothèse consiste à considérer que chaque point rouge situé sous un point vert est la conséquence d'un amorçage intempestif, qui serait causé par une mauvaise protection des arêtes, un déchirement de la pâte ou la présence d'un défaut non représentatif sur la surface d'amorçage. De ce point de vue, on n'observerait donc pas de rupture d'éprouvette en moins de 72 h pour une contrainte de 420 MPa (et donc avec plasticité) à une concentration de $3 \cdot 10^{-5} \text{ g.g}^{-1}$. Cela n'apparaît pas cohérent avec les résultats d'essais de traction sur éprouvettes lisses pour lesquels on amorce des fissures de CSC-I en moins de 300 s à cette concentration (3% de déformation plastique à 10^{-4} s^{-1} , Figure IV.6. L'autre hypothèse considère qu'il existerait une variabilité naturelle de la CSC-I qui mènerait à des non-ruptures même si on a rompu pour des contraintes plus faibles ; sur cette base, on ne prendrait pas en compte les points verts situés au-dessus de points rouges. De ce point de vue, on ne peut tirer que deux informations du domaine identifié : la présence d'une concentration seuil comprise entre 1 et $3 \cdot 10^{-6} \text{ g.g}^{-1}$ pour une contrainte inférieure ou égale à 275 MPa, et éventuellement la présence d'une contrainte seuil proche de 100 MPa pour les autres concentrations testées. Mais le montage initial ne permet pas de tester des contraintes plus faibles : on ne dispose pas de masses assez petites et l'écartement entre les appuis extérieurs est trop grand.

Pour essayer d'y voir plus clair, on a donc apporté des modifications au dispositif. La pâte siliconée initiale a été remplacée par une autre pâte siliconée qui a un allongement à rupture deux fois plus important. Cela devrait fournir une meilleure protection des tranches et donc réduire la dispersion. De plus, des rallonges sont ajoutées sur les montages afin de réduire l'écartement entre appuis extérieurs à 16 mm au lieu de 32 mm. Cela permet de tester des contraintes plus faibles, pour une même masse utilisée, mais aussi de réduire la déflexion de l'éprouvette pour une même contrainte et ainsi diminuer le risque d'un déchirement de la pâte siliconée.

C'est dans ces conditions que 75 éprouvettes de direction T ont été testées. Le domaine de rupture identifié est donné sur la partie droite de la Figure IV.42. En gardant l'hypothèse selon laquelle les contraintes limites sont inférieures à la plus basse des contraintes à rupture (on considère le point rouge le plus bas), on met en évidence un domaine dans le plan contrainte-concentration ayant une allure similaire aux domaines de fissuration obtenus à partir des essais de traction sur éprouvettes lisses, et définis par un diagramme déformation-concentration. Le domaine se décompose en trois parties. On observe d'abord un plateau de contraintes correspondant à une contrainte seuil proche de 90 MPa, en dessous de laquelle on n'observe pas de rupture pour des concentrations comprises entre $3 \cdot 10^{-5}$ et $3 \cdot 10^{-4} \text{ g.g}^{-1}$. Pour des concentrations inférieures, on observe une transition vers les fortes contraintes, correspondant à l'existence d'une concentration seuil, proche de 10^{-6} g.g^{-1} , comme cela était le cas pour la flexion avant modification du montage, mais aussi pour les essais de traction uniaxiale. Pour des concentrations supérieures, on note encore une fois l'existence d'une concentration de transition au-delà de laquelle on n'observe plus de contrainte seuil pour la rupture. Le niveau minimal de contrainte atteignable est de 37 MPa. Si une contrainte seuil existe encore dans ce domaine, elle y est inférieure.

Ces essais ont donc montré que la déformation plastique n'est pas nécessaire pour endommager le matériau dans le milieu méthanol iodé. En effet, pour des concentrations moyennes et un temps de fin d'essai donné, on a mis en évidence l'existence d'un seuil en contrainte pour la rupture des éprouvettes. Ce seuil est compris entre 82 et 98 MPa et est donc largement inférieur à la valeur de la contrainte appliquée au-delà de laquelle l'éprouvette se déforme plastiquement. A forte concentration, la contrainte seuil est inférieure à 37 MPa, si elle existe. Quand la concentration diminue et tend vers la

concentration seuil, on observe une augmentation de la contrainte à rupture. Il existe donc une interaction entre contrainte et amorçage intergranulaire de fissures de CSC-I.

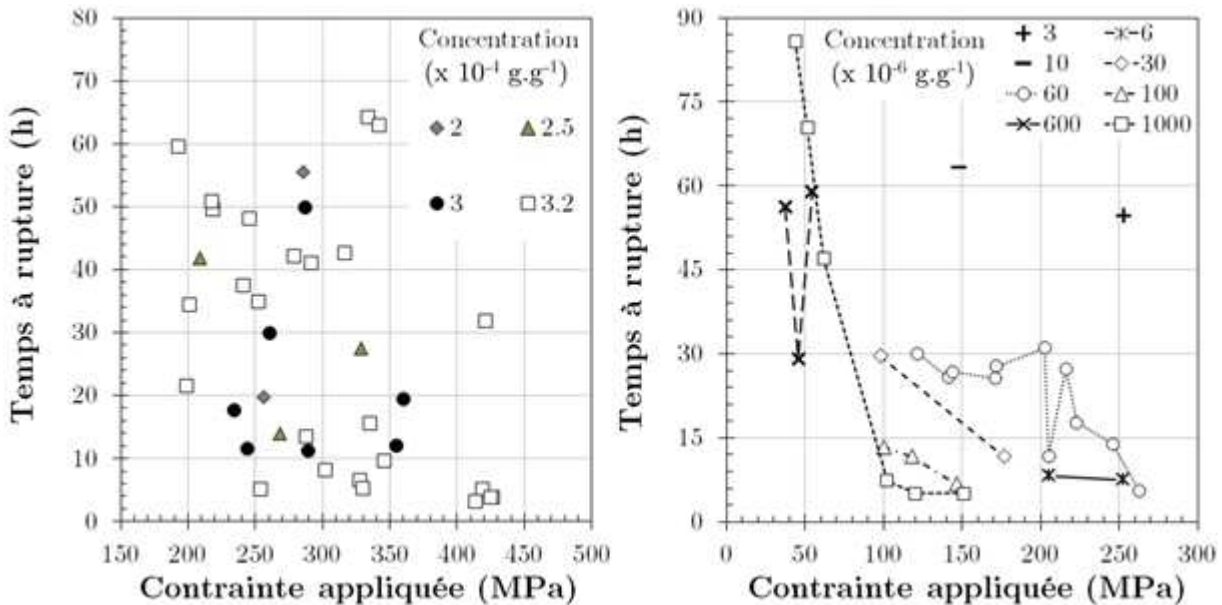


Figure IV.43 : Temps à rupture mesurés pour différentes contraintes et concentrations, avec le dispositif initial (gauche) et le dispositif modifié (droite).

IV.2.1.2.3 Influence de la contrainte sur le temps à rupture

Les montages de flexion quatre points sont pris en photo à intervalle régulier de cinq minutes pendant les essais afin d'estimer les temps à rupture par l'observation de la chute des masses.

Avant les modifications du dispositif d'essai, on a pu ainsi évaluer l'influence de la contrainte sur le temps à rupture, pour une concentration donnée. Comme cela est visible sur la Figure IV.42, de nombreux essais ont été réalisés à rupture, pour une concentration comprise entre 2 et $3.2 \cdot 10^{-4} \text{ g.g}^{-1}$. Les essais ont été répétés car il ne se dégageait pas de tendance sur les temps à rupture en fonction de la contrainte appliquée. Ces temps à rupture sont donnés sur la partie gauche de la Figure IV.43. Les concentrations utilisées sont très proches. Malgré le nombre important d'essais, on ne met en évidence qu'une vague tendance qui illustre la mauvaise reproductibilité des essais.

Avec les modifications apportées au montage, la même approche montre de nettes tendances du temps à rupture en fonction de la contrainte appliquée (partie droite de la Figure IV.43), malgré le nombre limité d'essais disponibles. Pour 10^{-3} g.g^{-1} , l'évolution est particulièrement bien définie. On retrouve la présence du seuil d'environ 40 MPa, dans le domaine des fortes concentrations, avec une augmentation exponentielle du temps à rupture quand on s'en approche. Le niveau du plateau de contrainte est également visible puisque les courbes s'arrêtent à 100 MPa, quand elles concernent des concentrations inférieures ou égales à 10^{-4} g.g^{-1} . A cette contrainte de 100 MPa, on peut estimer l'effet de la concentration en iode sur le temps à rupture : il faut 29.3 h pour rompre une éprouvette à $6 \cdot 10^{-5} \text{ g.g}^{-1}$, 13.4 h à 10^{-4} g.g^{-1} , et 7.35 h à 10^{-3} g.g^{-1} .

On remarque également qu'il n'a pas été observé de temps à rupture inférieur à 5 h pour les différents essais du dispositif modifié, que ce soit à 260 MPa à $6 \cdot 10^{-5} \text{ g.g}^{-1}$ ou 150 MPa à 10^{-3} g.g^{-1} . Pour le dispositif non modifié, ce même temps minimal est observé pour des

contraintes inférieures ou égales à 330 MPa. Il pourrait s'agir d'une sorte de temps d'incubation, une durée nécessaire à l'établissement des conditions pour la fissuration. Au-delà de 400 MPa, on peut trouver des temps à rupture de 3 h seulement. L'apparition de la plasticité pourrait raccourcir ou faire disparaître ce temps minimal. On retrouverait l'influence de la plasticité sur l'amorçage des fissures, déjà évoquée pour les éprouvettes de traction lisses. On peut également imaginer que le fait de ne trouver que très rarement une multifissuration sur les éprouvettes de flexion provient de l'absence de plasticité.

Avec la prise de photographies des dispositifs durant les essais, on peut repérer le moment où la tige et la masse commencent à descendre du fait de la fissuration. Ce premier mouvement n'est que de quelques millimètres mais il est toujours suivi de la rupture de l'éprouvette sous 20 minutes maximum. A partir de formules de résistance des matériaux, on peut estimer l'impact de la fissuration sur la position des masses. Pour une poutre soumise à une flexion quatre points, avec un écartement entre appuis intérieurs de $L/2$, et une distance entre appuis extérieurs de L (ce qui est le cas ici avec $L=16$ mm), la flèche de l'éprouvette, au niveau des appuis intérieurs, est donnée par :

$$f = \frac{PL^3}{96E_x I} \quad \text{Eq. IV.4}$$

avec P la force appliquée sur l'éprouvette, E_x le module de flexion et I le moment quadratique de la poutre. Pour une poutre de section rectangulaire de largeur b et d'épaisseur h , le moment quadratique vaut :

$$I = \frac{bh^3}{12} \quad \text{Eq. IV.5}$$

Ainsi la flèche au niveau des appuis intérieurs, et donc la position de la masse lors de l'essai de flexion, est inversement proportionnelle au cube de l'épaisseur. Si on suppose que l'éprouvette est fissurée sur toute sa largeur, avec une profondeur a (ce qui n'est pas absurde d'après les faciès observés), le rapport des flèches avant et après fissuration est :

$$\frac{f(a)}{f(0)} = \left(\frac{h}{h-a}\right)^3 = \left(\frac{1}{1-a/h}\right)^3 \quad \text{Eq. IV.6}$$

Pour une fissure de profondeur égale à la moitié de l'épaisseur, ce rapport vaut donc 8. La flèche initiale due à la mise en charge de l'éprouvette n'a pas été mesurée, mais on peut raisonnablement penser qu'elle est de l'ordre de 2 mm sur le dispositif modifié. Si on observe un déplacement de la masse de 2 mm lors du suivi de l'essai, d'après l'Eq. IV.6, cela correspond à une profondeur de fissure égale à 20% de l'épaisseur. La position de la masse est donc un bon indicateur de la fissuration. Cela permet de dire que la fissuration de l'éprouvette ne s'étale que sur une vingtaine de minutes au maximum, entre le premier mouvement de la masse observé et la chute complète.

Si le temps de fissuration est inférieur à 20 minutes, pour une épaisseur moyenne de 450 μm , on obtient une vitesse de fissuration minimale de 0.375 $\mu\text{m.s}^{-1}$. Cette vitesse est proche de celles estimées sur les essais de traction uniaxiale (Tableau IV.2) et est donc cohérente. Le temps de fissuration serait donc très inférieur au temps total à rupture, qui est toujours supérieur à 5h. Cela montre qu'en l'absence de plasticité, l'amorçage des fissures est relativement long. De plus, les courbes de temps à rupture de la Figure IV.43 traduisent l'influence de la concentration et de la contrainte sur le temps à l'amorçage puisque le temps de propagation est très court.

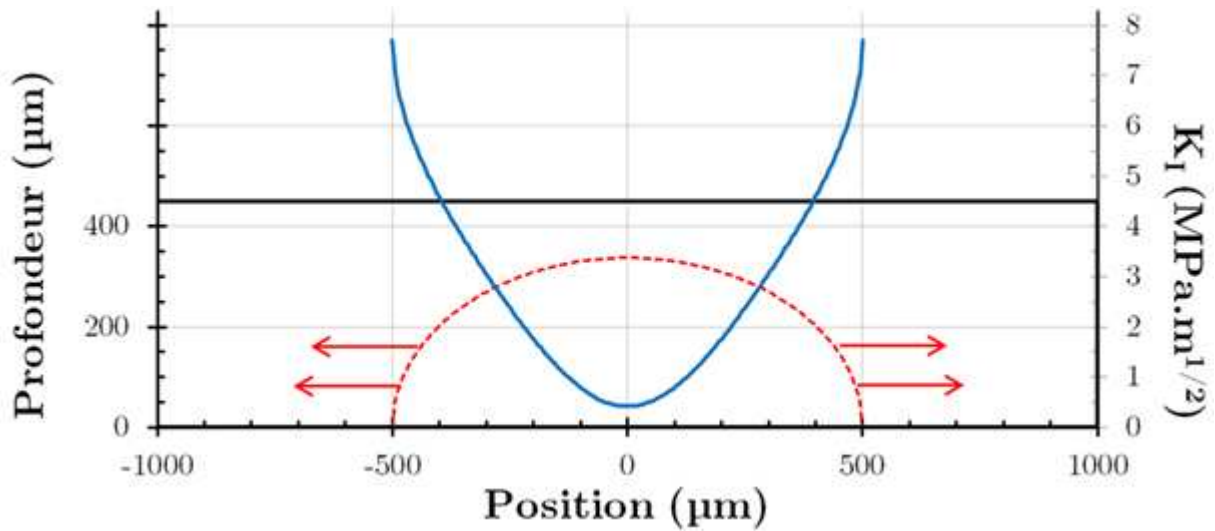


Figure IV.44 : Valeurs du K_I (bleu) le long du front d'une fissure semi-elliptique pour une contrainte de flexion de 300 MPa. La fissure est délimitée par les tirets rouges. Les flèches indiquent l'extension probable de la fissure. La largeur de la fissure est choisie égale à 50% de celle de l'éprouvette et sa profondeur est choisie égale à 75% de l'épaisseur de l'éprouvette. La valeur moyenne du K_I est de $3.2 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$.

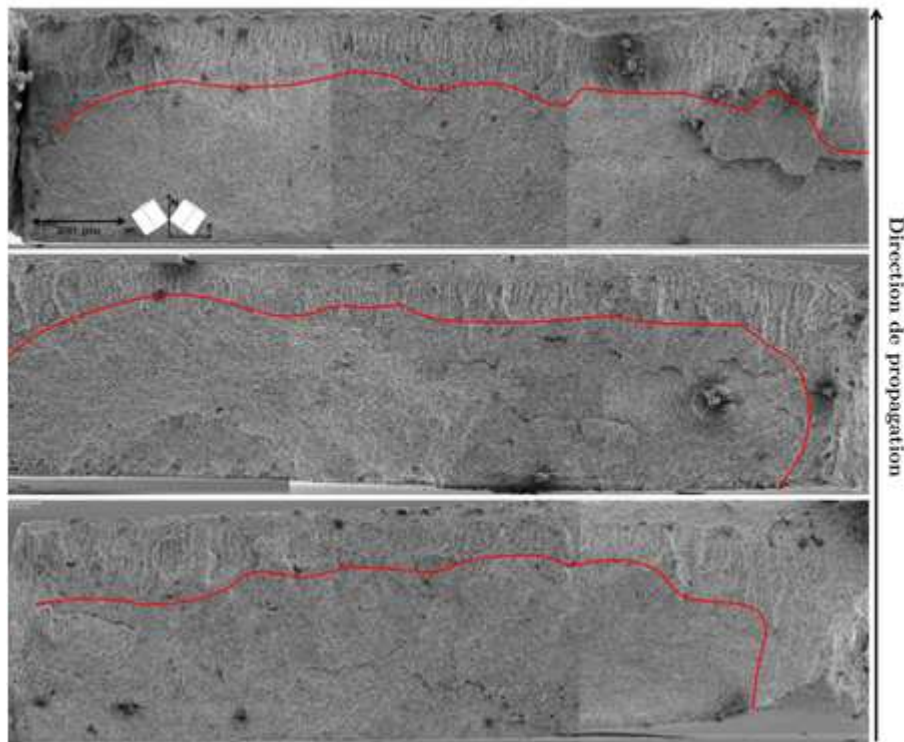


Figure IV.45 : Faciès de rupture de trois éprouvettes de flexion 4 points de direction L : A1L3-13 (haut, $10^{-3} \text{ g}\cdot\text{g}^{-1}$, 316 MPa, 3.9 h), A1L3-6 (milieu et détail, $1 \cdot 10^{-4} \text{ g}\cdot\text{g}^{-1}$, 247 MPa, 21.9 h) et A1L3-16 (bas, $2.9 \cdot 10^{-4} \text{ g}\cdot\text{g}^{-1}$, 309 MPa, 6.3 h). Les traits rouges délimitent les zones qui ne sont pas exclusivement intergranulaires (mixte ou ductile).

IV.2.1.2.4 Transition vers la fissuration mixte

L'observation des faciès de rupture montre que la fissuration intergranulaire représente la quasi-totalité de la fissuration et qu'elle s'étend sur toute la largeur de l'éprouvette. Pour les essais de traction, les zones intergranulaires ne dépassaient presque jamais la moitié de l'épaisseur et étaient confinées dans la largeur. On essaie d'expliquer les différences de morphologie des fissures à l'aide des formules analytiques du facteur d'intensité des contraintes K_I de Newman et Raju (Newman 1984), également disponibles pour la flexion. On détaille ici l'évolution du K_I sur tout le front de fissure. La validité de ces formules est limitée aux fissures semi-elliptiques, de largeur de fissure inférieure ou égale à la moitié de la largeur de l'éprouvette.

On considère ici une contrainte de flexion de 300 MPa. Les faciès observés appartiennent à des éprouvettes testées à des contraintes comparables à cette valeur. Pour des contraintes plus faibles, il suffit d'appliquer un rapport de proportionnalité aux valeurs données ci-dessous. Les valeurs du K_I sur la fissure sont données en Figure IV.44 pour une fissure de largeur choisie égale à la moitié de celle de l'éprouvette et une profondeur choisie égale à 75% de l'épaisseur de l'éprouvette. La valeur moyenne du K_I sur le profil est de $3.19 \text{ MPa.m}^{1/2}$, valeur inférieure au $K_{IG/M}$ moyen déterminé sur les essais de traction, qui est d'environ $6.6 \text{ MPa.m}^{1/2}$. Localement, les valeurs de K_I sont plus importantes sur les points débouchant en surface et peuvent dépasser cette valeur de $K_{IG/M}$ qui avait été calculé en moyenne. De ce point de vue, aux limites de validité de la formule analytique, il apparaît logique que la fissuration reste intergranulaire.

Les valeurs plus importantes vers les points débouchant signifient que la fissure aura plus tendance à s'élargir qu'à s'approfondir, ce qui semble cohérent avec les observations MEB montrant une étendue intergranulaire sur presque toute la largeur de l'éprouvette. Du fait de la flexion, la partie de la section vers laquelle la fissure progresse est en compression. Cela va donc favoriser une propagation de la fissure vers les tranches de l'éprouvette plutôt qu'à travers.

La formule analytique de Newman et Raju a été utilisée au-delà de sa limite de validité pour estimer l'étendue pour laquelle on dépasse le $K_{IG/M}$. Pour une profondeur de 80% de l'épaisseur de l'éprouvette, la valeur moyenne du K_I dépasse le $K_{IG/M}$ quand la largeur de la fissure dépasse 90% de celle de l'éprouvette.

A l'aide d'une formule analytique simple pour le K_I , les résultats expérimentaux ont été analysés et l'étendue de la fissuration intergranulaire semble cohérente avec l'existence d'un seuil $K_{IG/M}$ de l'ordre de $7 \text{ MPa.m}^{1/2}$.

IV.2.1.2.5 Eprouvettes de direction L

24 essais de fluage en flexion ont été réalisés sur des éprouvettes de direction L, avant modification du dispositif, pour des concentrations comprises entre 10^{-4} g.g^{-1} et 10^{-3} g.g^{-1} et des contraintes comprises entre 225 et 320 MPa. Les conditions ne sont donc pas réunies pour étudier d'éventuelles différences de contraintes seuil, de concentration limite ou de concentration de transition. En revanche, on dispose d'images MEB des faciès de rupture et ceux-ci montrent de légères différences avec ceux des éprouvettes de direction T (Figure IV.45). Les faciès présentent une rupture mixte et ductile bien plus importante que pour les éprouvettes de direction T dans des conditions identiques. On observe également plus de ramifications des fissures hors du plan du faciès. Ces ramifications ne sont pas uniquement situées près du changement de mode de fissuration. La rupture ductile anticipée est certainement due à la plasticité, activée pour une contrainte plus faible dans la direction L que dans la direction T.

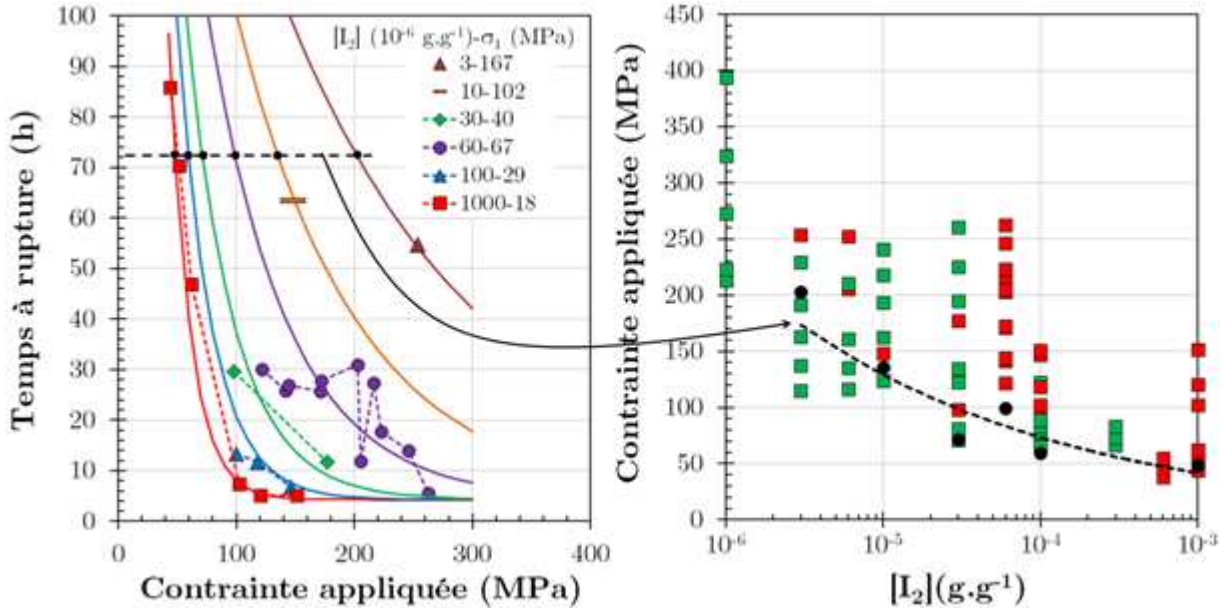


Figure IV.46 : Modélisation de l'influence de la contrainte sur le temps à rupture (gauche). Points et traits pointillés de couleur sont les données expérimentales, les traits continus sont le modèle identifié dans ce paragraphe. Prédiction des contraintes à l'amorçage au bout de 72h avec le modèle et superposition au domaine de rupture (droite). Les éprouvettes rompues sont en rouge, les non rompues en vert.

IV.2.1.2.6 Apports à la modélisation de l'endommagement

Les résultats obtenus à partir des essais de fluage en flexion permettent de confirmer ce qui avait été supposé lors des essais sur éprouvettes de traction. Tout d'abord, ils montrent qu'il est possible de fissurer des éprouvettes en l'absence de plasticité, y compris en dessous de la concentration de transition. Les contraintes seuil observées sont inférieures à 100 MPa selon la concentration, et il paraît peu probable que la plasticité soit activée à un tel niveau. De plus, on retrouve l'existence d'une transition en concentration au-delà de laquelle des contraintes encore plus faibles mènent à rupture. Avec les faibles contraintes limites observées, l'absence de seuil dans la loi d'endommagement est plausible. Le formalisme de l'endommagement adopté dans le paragraphe IV.1.3 semble donc cohérent avec ces essais.

On peut donc essayer de prévoir les temps à rupture des essais de flexion avec ce modèle d'endommagement. En l'absence de plasticité, le taux de dommage est constant et est obtenu uniquement à partir de la contrainte principale appliquée et du rapport de biaxialité existant. Ainsi à $10^{-4} \text{ g}\cdot\text{g}^{-1}$, pour une contrainte de 100 MPa, et un rapport de biaxialité b de 0.1, on obtient un taux d'endommagement de :

$$d = \left(\frac{\sigma_{p1} - \alpha \sigma_{p2}}{\sigma_{p0}} \right)^{p_{\sigma p}} f(I) \quad \text{Eq. IV.7}$$

$$d = \left(\frac{100 \cdot (1 - ab)}{460} \right)^{20} 0.082 = 6.91 \cdot 10^{-16} \text{ s}^{-1}$$

Le modèle prévoit donc un temps d'amorçage de $4 \cdot 10^{11} \text{ h}$ au lieu des 72 h sur la frontière du domaine de rupture. Ce modèle n'est donc pas du tout adapté pour décrire les essais de flexion. Cela serait dû à la différence de mécanisme d'amorçage suivant la présence ou l'absence de plasticité lors des essais. Les paramètres du modèle ont été identifiés dans le domaine plastique, et donc pour de fortes contraintes. Avec le formalisme adopté, l'amorçage à faibles contraintes est grandement sous-estimé par l'utilisation d'une forte contrainte de normalisation et de la fonction puissance. Malgré les caractéristiques mettant

en avant l'influence de la contrainte principale sur l'amorçage (orientation des fissures, effet de biaxialité), cette étape d'amorçage serait principalement liée à la plasticité pour les essais de traction présentés dans la première partie de ce chapitre.

A partir des courbes de la Figure IV.43, à droite, il est possible d'établir un modèle simple de l'influence de la contrainte sur le temps à rupture T_{rupt} en fonction de la concentration :

$$T_{rupt} = T_1 e^{-\frac{(\sigma-\sigma_0)}{\sigma_1(I_2)}} + T_0 \quad \text{Eq. IV.8}$$

avec T_1 , T_0 et σ_0 des constantes valant respectivement 191 h, 4.3 h et 3 MPa, et $\sigma_1(I_2)$ identifiée pour chaque concentration où l'on dispose de temps à rupture. La forme en exponentielle décroissante avec seuil semble bien correspondre aux formes des courbes expérimentales. Par souci de simplicité et manque de données, on ne fait pas dépendre le seuil en contrainte σ_0 de la concentration. Les courbes obtenues sont superposées aux résultats expérimentaux sur la partie gauche de la Figure IV.46.

En fixant le temps à rupture à 72h (temps final des essais), on peut déterminer les contraintes à l'amorçage pour chaque concentration en inversant la formule de l'Eq. IV.8. On reporte alors ces valeurs sur le domaine de fissuration (partie droite, Figure IV.46) et on constate que ce modèle simple donne des prévisions cohérentes de contraintes seuil. Le manque d'essais rompus à 1 et 3 10^{-4} g.g⁻¹ ne permet pas de trouver les valeurs de $\sigma_1(I_2)$ permettant de simuler le palier. En réalisant un nombre d'essais plus importants pour déterminer précisément les cinétiques de rupture, à différentes concentrations, on pourrait compléter ce modèle, en affinant la dépendance de σ_1 en fonction de la concentration. Le seuil en contrainte σ_0 pourrait aussi en faire dépendre, pour éventuellement retrouver les seuils du domaine de rupture (Figure IV.42) : 100 MPa ou 37 MPa de part et d'autre de la transition. Malgré tout, il apparaît que ce modèle simple représente bien l'interaction qui existe entre contrainte et concentration, ainsi que le temps « d'incubation » (le paramètre T_0 du modèle), nécessaire pour amorcer une fissure en l'absence de plasticité.

La présence de ce seuil en temps implique également que ce modèle ne peut rendre compte des amorçages sur éprouvettes de traction lisses, pour lesquelles un amorçage est possible en quelques dizaines de secondes. Ce modèle est censé prendre en compte l'influence de la contrainte et de la concentration, en l'absence totale de plasticité.

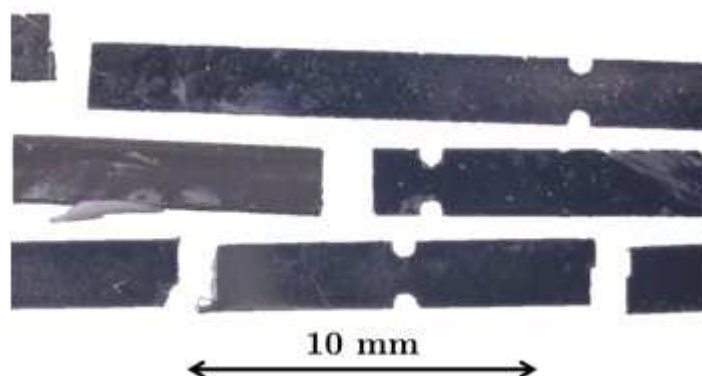


Figure IV.47 : Observation au microscope des lieux de rupture de trois éprouvettes entaillées ($R=0.3$ mm) testées en flexion 4 points.

IV.2.1.2.7 Essais sur éprouvettes entaillées

12 éprouvettes de flexion présentant des entailles circulaires de 0.3 mm ont été testées en flexion 4 points, à des concentrations proches de $3 \cdot 10^{-4} \text{ g.g}^{-1}$. Comme les éprouvettes de traction, la largeur du ligament entre les entailles est de 1 mm, pour une largeur d'éprouvette de 2 mm hors entaille. Les contraintes de flexion appliquées (entre entailles) étaient comprises entre 240 et 360 MPa. Ces essais ont été réalisés avant les modifications des dispositifs de flexion.

Sur l'ensemble des éprouvettes testées, toutes ont été rompues (en plus de deux morceaux parfois) et aucune de ces ruptures ne s'est produite entre les entailles de l'éprouvette (Figure IV.47). Ces essais ont été réalisés avant les essais de traction sur éprouvettes entaillées, et il paraissait alors improbable que la biaxialité des contraintes ait un effet protecteur tel que les ruptures se trouvent préférentiellement dans la partie droite des éprouvettes, deux fois plus large qu'entre les entailles. De plus, avant les modifications du montage, on avait des doutes sur la protection par la pâte siliconée des tranches des éprouvettes. Au regard de ces résultats qui paraissaient alors absurdes, il avait été décidé de ne plus utiliser le montage de flexion.

Ce n'est qu'une fois les essais sur éprouvettes de traction réalisés, et qu'un effet de la biaxialité a été observé, que le montage a été modifié et que les résultats présentés précédemment ont été obtenus. Il n'y avait alors plus de temps pour faire des essais sur éprouvettes entaillées et simuler la flexion quatre points pour de telles éprouvettes. Néanmoins, ces résultats montrent que la biaxialité des contraintes aurait une influence sur l'amorçage des fissures de CSC-I, dans un domaine où la plasticité est absente. Ce point est développé dans le paragraphe suivant.

IV.2.2 Essais de fluage en traction à faible contrainte et forte concentration

IV.2.2.1 Conditions d'étude et essais réalisés

Suite aux résultats précédents, il est apparu pertinent d'étudier l'influence de la biaxialité des contraintes sur l'amorçage intergranulaire des fissures de CSC-I, en l'absence de plasticité. Pour cela, une série d'essais à faible contrainte a été réalisée, à forte concentration (10^{-3} g.g^{-1}) pour obtenir des temps à rupture relativement courts. Les éprouvettes utilisées sont des éprouvettes de traction identiques à celles utilisées dans la première partie de ce chapitre (lisses et entaillées, non irradiées), avec la même préparation de surface et la même protection des tranches.

Les essais consistent en une mise en charge, à la vitesse de 10^{-4} s^{-1} , jusqu'à une force cible puis en un maintien à cette force, jusqu'à rupture, un temps final programmé ou au maximum 48 h. La liste des essais réalisés est donnée dans le Tableau IV.9. On précise également dans ce tableau le lieu de la rupture, puisque, comme pour les essais de fluage en flexion sur éprouvettes entaillées, certaines ruptures se produisent hors entaille. Après essais, les éprouvettes sont observées au microscope optique pour observer la présence des fissures, et les faciès de rupture sont observés au MEB.

Comme pour les essais de la première partie, le modèle de comportement est utilisé pour estimer les contraintes et les déformations lors de ces essais. Dans la majorité des cas, on reste dans le domaine élastique. Dans un premier temps, les essais sont dépouillés de façon simple dans des diagrammes contraintes – temps à rupture, en ne prenant que les

Tableau IV.9 : Liste des essais de mise en charge réalisés à force constante et forte concentration en iode (10^{-3} g.g^{-1}). La section S_0 est ici celle entre les entailles.

Nom	R_{entaille} (mm)	F/S_0 (MPa)	Rupture/Lieu	T_{final} (h)
A2T1-90	-	178	Non/-	2.0
A2T1-91	-	150	Oui/Partie droite	3.6
A2T1-92	-	150	Non/-	3.0
A2T1-94	-	150	Oui/Partie droite	3.5
A2T1-95	-	127	Oui/Partie droite	5.0
A2T1-101	-	100	Non/-	48.0
A2T8-7	0.3	300	Oui/Partie droite	2.0
A2T8-8	0.3	250	Non/-	48.0
A2T8-9	0.3	275	Oui/Partie droite	3.4
A2T8-10	0.3	263	Oui/Entre entailles	3.0
A2T9-7	0.5	360	Oui/Partie droite	3.7
A2T9-8	0.5	375	Oui/Partie droite	2.5
A2T9-9	0.5	400	Oui/Entre entailles	1.7
A2T9-10	0.5	350	Oui/Entre entailles	24.5
A2T9-11	0.5	300	Non/-	48.0
A2T9-12	0.5	300	Non/-	3.2
A2T10-10	0.7	400	Oui/Entre entailles	7.1
A2T10-11	0.7	350	Oui/Partie droite	2.1
A2T10-12	0.7	350	Oui/Partie droite	2.9
A2T10-13	0.7	300	Oui/Partie droite	5.5
A2T11-10	1	350	Oui/Partie droite	3.2
A2T11-11	1	300	Oui/Entre entailles	1.1
A2T11-12	1	200	Oui/Entre entailles	2.9
A2T11-13	1	100	Non/-	48.0

contraintes nominales, égales à la force appliquée divisée par la section de l'éprouvette au lieu de rupture (épaisseur x 1 mm entre entailles, x 2 mm dans la partie droite). En faisant la distinction sur les lieux de rupture, un essai donne deux conditions de contraintes et de temps à rupture (ou de non rupture), selon que l'on s'intéresse aux entailles ou à la partie droite.

Dans un second temps, la position des lieux de rupture est déterminée sur l'axe des éprouvettes, et donc la distance entre ces lieux et le ligament entre entailles. Les valeurs des contraintes et déformations sont alors extraites à ces endroits à partir des calculs par éléments finis. Cela permet de quantifier l'influence de la biaxialité des contraintes.

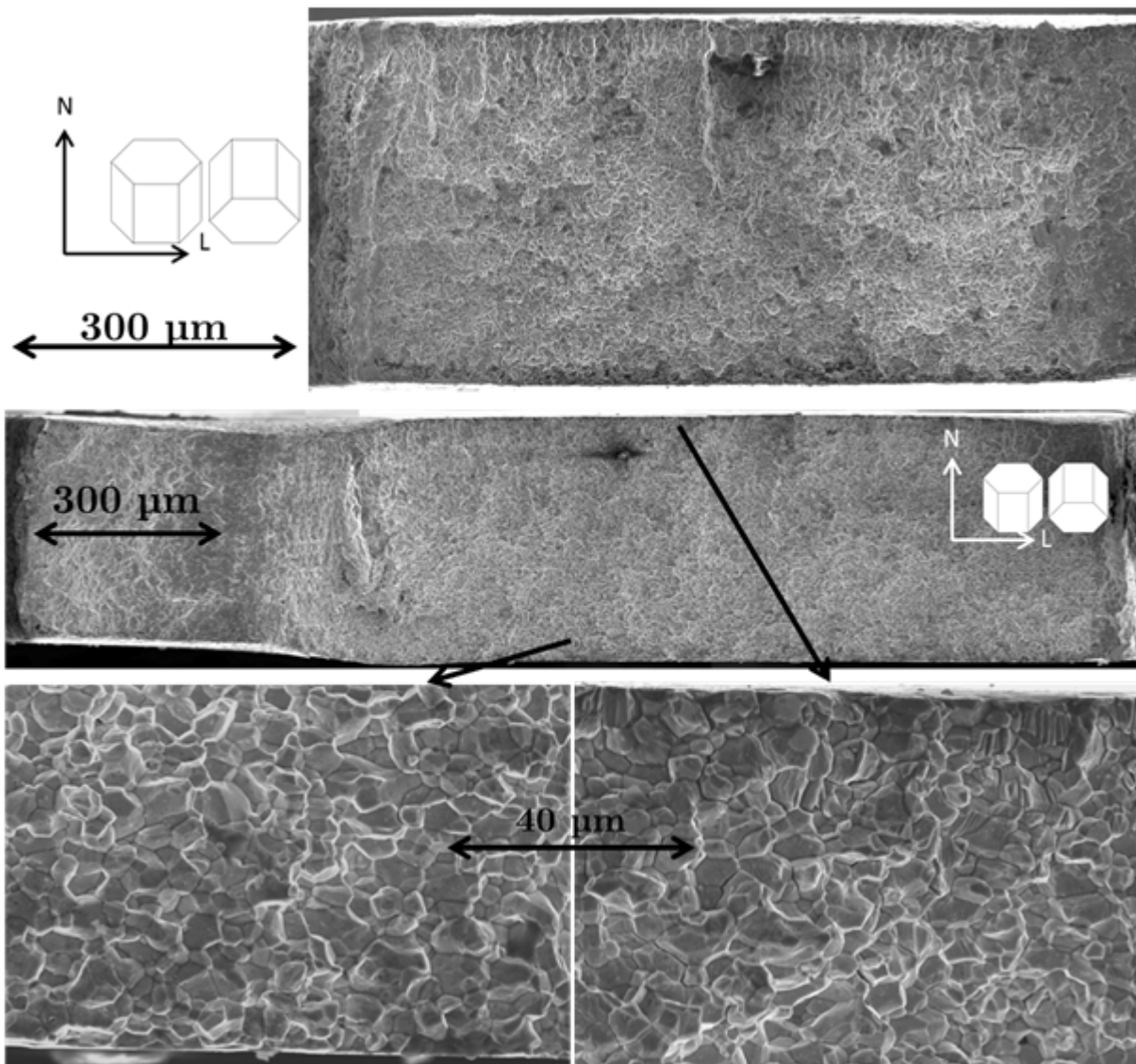


Figure IV.48 : Faciès de rupture des éprouvettes A2T8-10 (haut, rupture entre entailles) et A2T8-7 (milieu et bas, rupture hors entailles) testées respectivement à une contrainte nominale entre entailles de 263 et 300 MPa et ayant rompu hors entailles. Détail du faciès de l'éprouvette A2T8-7 près de la surface d'amorçage (bas, gauche) et près de la face opposée (bas, droite). On remarque la présence de fluting quand la fissure débouche.

IV.2.2.2 Résultats et analyse

IV.2.2.2.1 Phénoménologie

Les observations MEB des faciès de rupture montrent que, pour ces essais, la fissuration est très majoritairement intergranulaire. Pour les éprouvettes ayant rompu dans leur partie droite (éprouvettes lisses ou hors entailles), le faciès est presque exclusivement intergranulaire, avec présence de ductilité proche des tranches pour la rupture finale de l'éprouvette, et la présence marginale de propagation transgranulaire, avant la déchirure ductile, et/ou quand la fissure débouche sur l'autre face de l'éprouvette. Pour une rupture se produisant entre les entailles, la rupture finale de l'éprouvette occupe une place plus importante. Néanmoins, la fissuration intergranulaire représente entre 50 et 75% de l'épaisseur (Figure IV.48). Ces essais peuvent donc servir à étudier l'effet de la contrainte et de la biaxialité des contraintes sur la fissuration intergranulaire. Contrairement aux essais de traction réalisés dans le domaine plastique, on n'observe généralement qu'une

seule fissure sur le faciès de rupture. On précise également que toutes les fissures ou ruptures observées sont normales à la contrainte appliquée.

Le temps d'essai maximal a été fixé à 48 h pour ces essais. Les temps à rupture observés sont tous inférieurs à 10 h, à une exception près. Cela montre qu'un nombre plus important d'essais est nécessaire pour se rapprocher des contraintes seuil de fissuration. Plusieurs essais ont été faits dans les mêmes conditions pour tester la reproductibilité de l'essai. Trois essais sur éprouvettes lisses ont été menés à 150 MPa (A2T1-91, A2T1-92 et A2T1-94). L'un de ces essais a été arrêté au bout de 3 h et ne présentait pas d'endommagement. Les deux autres ont été menés à rupture, pour des temps finaux très proches de 3.5 h et 3.6 h. Deux essais identiques ont également été réalisés sur éprouvettes de type 10 à 350 MPa (A2T10-11 et A2T10-12), pour des temps à rupture de 2.1 h et 2.9 h. Ces essais de fluage en traction en milieu méthanol iodé sont donc caractérisés par une assez bonne reproductibilité.

De plus, on peut également estimer les vitesses de propagation des fissures. En effet, le temps de propagation est inférieur à 30 min, pour une contrainte de 150 MPa sur une éprouvette lisse d'épaisseur de 419 μm . La vitesse de propagation moyenne est donc supérieure à 0.23 $\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$. Celle-ci avait été estimée à 0.48 et 0.68 $\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ sur les éprouvettes de traction uniaxiale à des vitesses respectives de 10^{-5} s^{-1} et 10^{-4} s^{-1} , et une même concentration de $10^{-3} \text{ g}\cdot\text{g}^{-1}$ (paragraphe IV.1.1.2.3). Pour les essais de flexion, la vitesse de propagation avait été évaluée à 0.38 $\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$. La valeur trouvée ici apparaît donc cohérente, surtout pour une contrainte plus de deux fois inférieure à celle d'un essai de traction dans le domaine plastique.

IV.2.2.2 Influence de la contrainte sur les temps à rupture

L'influence de la contrainte sur le temps à rupture est d'abord observée sur les résultats d'éprouvettes lisses. Un premier domaine de rupture (diagramme temps-contrainte) est obtenu sur ces essais et est tracé en haut à gauche de la Figure IV.49. Avec les conditions expérimentales choisies, on observe la présence d'un seuil en contrainte, proche de 100 MPa. Avec une échelle logarithmique pour les temps à rupture, les points des essais à rupture et ceux des essais interrompus permettent de définir clairement la frontière du domaine de rupture, pour une contrainte comprise entre 100 et 200 MPa.

Les résultats des essais sur éprouvettes entaillées sont placés dans des diagrammes identiques. Ces essais sont dépouillés avec deux contraintes nominales, entre et hors entailles, sans prise en compte des rayons d'entailles. Ces diagrammes sont également donnés en Figure IV.49. Les carrés correspondent aux contraintes dans la partie droite des éprouvettes et sont assimilés à des résultats sur éprouvettes lisses. Les triangles correspondent aux contraintes entre entailles. Le remplissage rouge des marqueurs est associé à une rupture d'éprouvette et est appliquée sur les symboles correspondant aux lieux de la rupture. Ainsi un essai non rompu est représenté par un carré et un triangle, tous deux de couleur verte. Si la rupture s'est produite entre les entailles, l'essai est représenté par un triangle rouge et un carré vert. Hors entaille, ce sera un carré rouge et un triangle vert. Pour chaque type d'éprouvettes, cela permet d'estimer deux frontières de domaines, entre et hors entailles.

La frontière identifiée à partir des essais sur éprouvettes lisses est reportée sur chacun des diagrammes d'éprouvettes entaillées. Il apparaît que les ruptures dans les parties droites suivent les mêmes tendances que les ruptures d'éprouvettes lisses. Si on peut observer un tel comportement, c'est parce que la présence d'entailles ne mène pas nécessairement à une

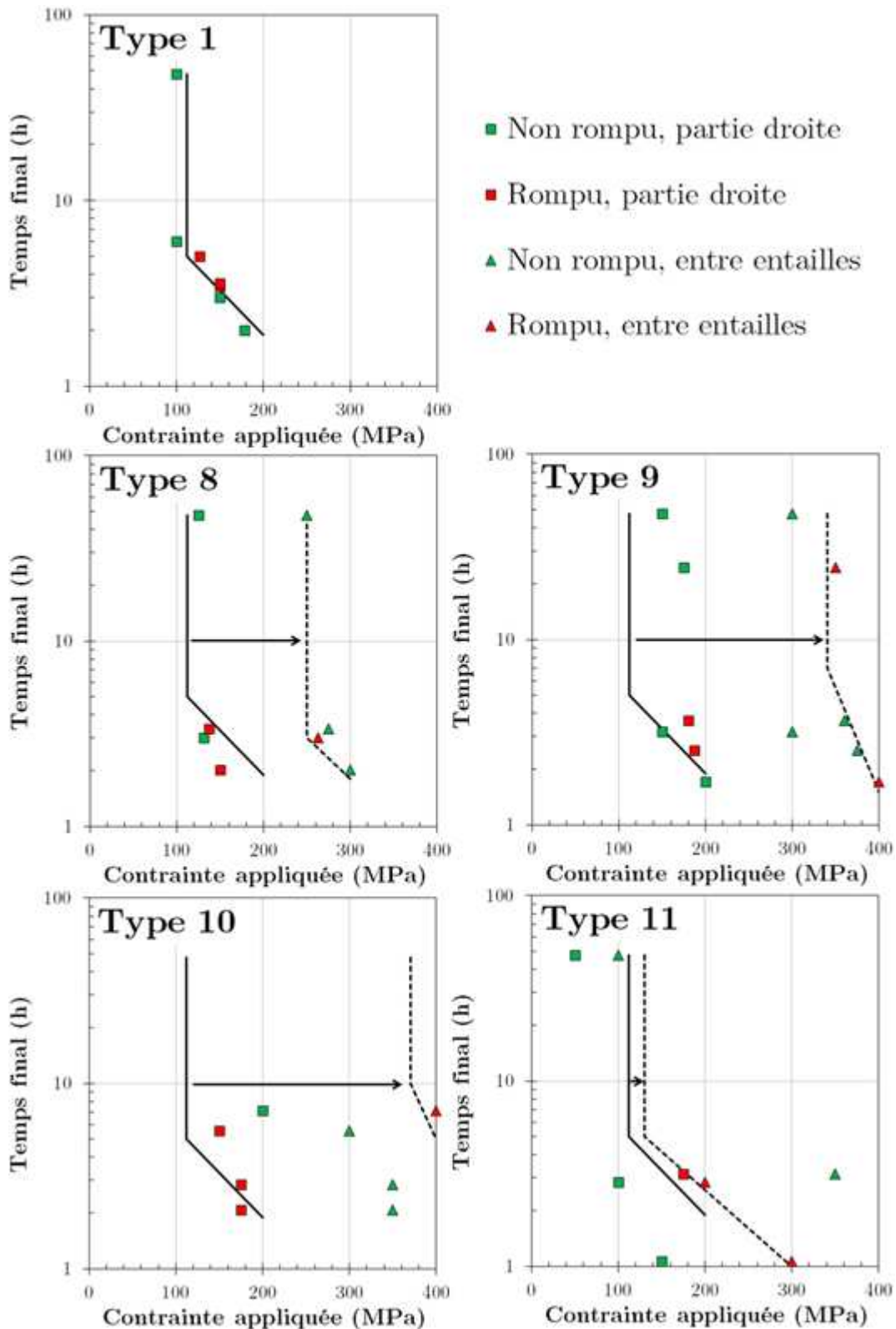


Figure IV.49 : Domaines de rupture identifiés à partir des essais sur les différents types d'éprouvettes : type 1 (lisse) et types 8 à 11 ($R=0.3, 0.5, 0.7$ et 1.0 mm respectivement). Distinction entre rupture hors entailles (symboles carrés) et entre entailles (symboles triangulaires). La délimitation pour les éprouvettes lisses (trait noir continu) est reportée sur les autres graphiques. Les traits pointillés délimitent les ruptures entre entailles. Les flèches indiquent l'écart entre les deux délimitations.

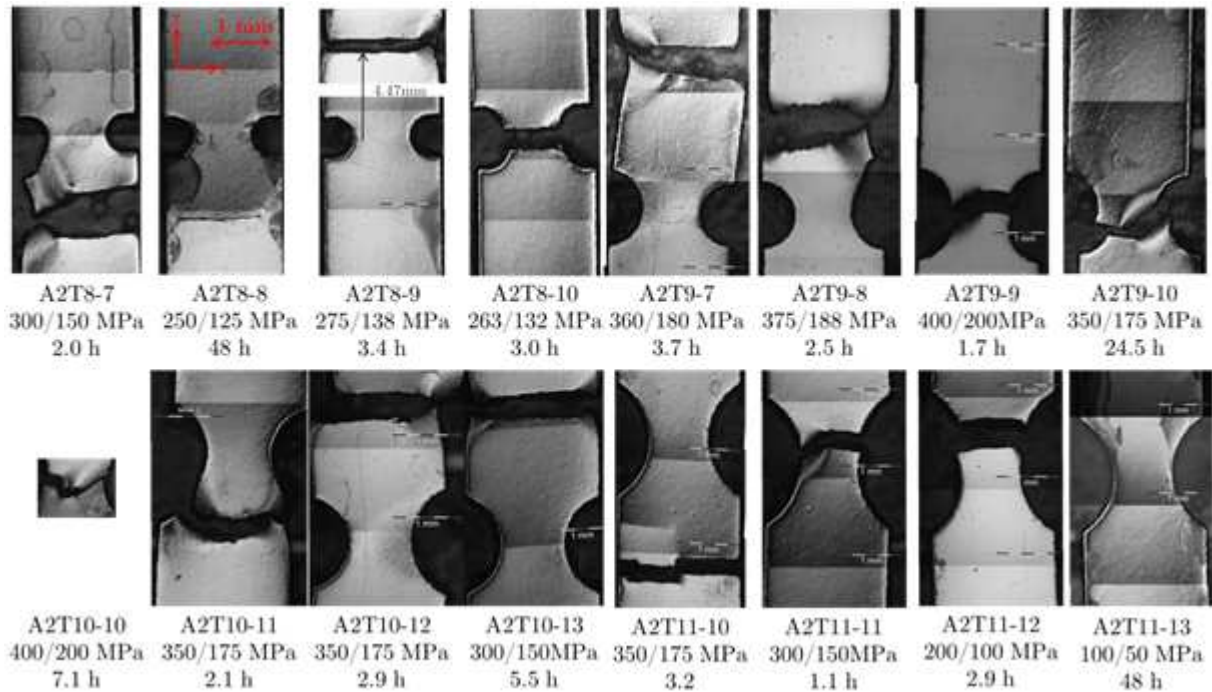


Figure IV.50 : Lieux de rupture pour les différentes éprouvettes entaillées testées.

rupture anticipée, malgré la réduction de section. Les frontières de rupture estimées entre les entailles s'écartent notablement de celle des éprouvettes lisses. Cet écart est illustré par les flèches noires sur la Figure IV.49. Puisque les contraintes appliquées entre entailles sont deux fois supérieures à celles dans les parties droites, cet écart serait une manifestation d'un effet de la biaxialité des contraintes sur l'amorçage des fissures de CSC-I.

Un autre indice de la présence de cet effet serait la variation de l'écart avec le type d'éprouvette, et donc le rayon d'entaille. On remarque que, pour les plus grandes entailles, les essais à rupture entre entailles sont très proches de ceux montrant des ruptures hors entailles. Plus les entailles sont grandes et plus le rapport de biaxialité est faible, et plus on tend vers un état uniaxial. Cet effet de biaxialité apparaît bien plus important pour les éprouvettes de types 9 ($R=0.5$ mm) et 10 ($R=0.7$ mm) que pour celles de type 8 ($R=0.3$ mm). On avait observé un effet croissant de la biaxialité lors des essais de traction dans le domaine plastique, maximal pour les éprouvettes de type 8. Les domaines ont été tracés ici avec les contraintes nominales égales à la force divisée par la section initiale au lieu considéré. Pour mieux évaluer l'effet de la biaxialité, il est nécessaire de prendre en compte l'influence du rayon d'entaille sur les contraintes principales. C'est notamment l'objet du paragraphe suivant.

IV.2.2.2.3 Utilisation de la simulation numérique

La présence d'entailles n'implique donc pas nécessairement une rupture entre celles-ci, bien que la section soit deux fois moins importante que dans la partie droite. Les lieux de rupture des différentes éprouvettes entaillées sont donnés sur la Figure IV.50. La distinction en seulement deux groupes, hors entailles et entre entailles, réalisée dans le paragraphe précédent est un raccourci. Certaines ruptures se produisent réellement sur le ligament entre les entailles, d'autres entre le ligament et la partie droite. Ces variations de lieux de rupture sont causées par une distribution hétérogène des champs mécaniques et l'utilisation des simulations numériques est nécessaire pour mieux analyser ces résultats.

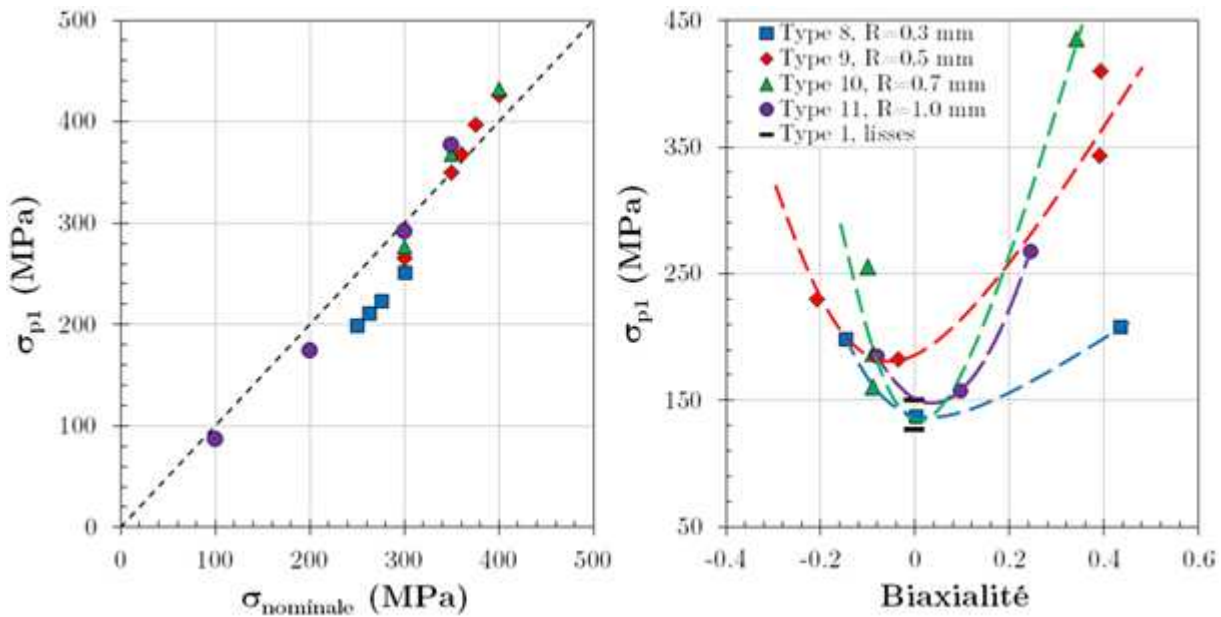


Figure IV.51 : Valeur de la contrainte principale maximale au centre du ligament en fonction de la contrainte nominale appliquée entre entailles (gauche). Estimation de la contrainte principale aux lieux de ruptures des éprouvettes en fonction de la biaxialité (droite). Les symboles ont la même signification sur les deux graphiques.

En plus des contraintes, les simulations permettent d'estimer la présence de plasticité dans les essais. En effet, une contrainte nominale de 350 MPa entre entailles peut localement mener à une contrainte principale ou équivalente plus grande, et il y a un risque de dépasser la limite d'élasticité (400 MPa à 10^{-4} s⁻¹).

Il existe cependant une limite à cette approche. Puisque la très grande majorité du faciès de rupture est intergranulaire, et que seulement une seule fissure est visible, on ne peut pas déterminer la position du départ de la fissure dans la largeur de l'éprouvette. On ne considère donc que la distance du faciès de rupture par rapport au ligament entre entailles (cote), et le point situé à cette cote sur l'axe de symétrie de la surface d'amorçage. On a vu précédemment que la biaxialité était maximale au centre du ligament. On se place donc par choix sur les lieux de biaxialité maximale. Il est donc possible qu'on surestime la biaxialité à l'amorçage avec cette méthode. En revanche, cela bornera de façon inférieure les effets de biaxialité. En effet, si l'on observe un fort effet pour une biaxialité de 0.3 sur l'axe de symétrie, mais qu'en réalité l'amorçage de la fissure se fait dans une zone où la biaxialité ne vaut que 0.15, on sous-estime l'influence de la biaxialité. De plus, sur le ligament, la déformation plastique peut apparaître aux entailles, bien avant d'arriver au centre du ligament. Pour ne pas sous-estimer les effets de la déformation plastique, on prend en compte à la fois sur le point de l'axe, et également sur un point à la même côte mais décalé de 300 μm vers la tranche. La pâte siliconée recouvrant entre 100 et 250 μm , un décalage de 300 μm correspond au point le plus éloigné de l'axe qui reste exposé à l'iode.

Contrairement à ce qui avait été vu pour les éprouvettes entaillées dans le domaine plastique, la contrainte principale maximale au milieu du ligament ne dépend que très peu de la géométrie des éprouvettes (Figure IV.51, gauche). Cela est vrai jusqu'à 350 MPa, et peut-être au-delà mais les calculs se sont limités aux essais réalisés. Sur cette figure, on voit aussi que l'écart entre la contrainte nominale appliquée et la contrainte principale au milieu du ligament est faible pour ces essais.

La position des lieux de rupture, présentés sur la Figure IV.49, est relevée et la contrainte principale et le rapport de biaxialité sont extraits après calcul au point à la côte correspondante. Les résultats de ces analyses sont montrés à droite de la Figure IV.51. Il apparaît clairement que la contrainte principale seule n'explique pas les ruptures observées. En effet, des ruptures se produisent aussi bien pour des contraintes principales de 150 MPa que pour 400 MPa, selon que la biaxialité est nulle ou importante (0.4). Il apparaît donc qu'un effet de la biaxialité des contraintes existe, même en l'absence de plasticité. Les résultats suggèrent de plus que l'évolution de la contrainte à rupture suit une parabole centrée à la biaxialité nulle. L'effet serait donc toujours positif pour une contrainte latérale de compression. Le modèle prédit des rapports de biaxialité négatifs dans les parties droites des éprouvettes, c'est-à-dire au-delà des entailles.

La présence de déformation plastique a également été recherchée sur l'ensemble des essais simulés, aux lieux de rupture uniquement. Il apparaît qu'elle n'est significative ($>0.01\%$) que pour trois éprouvettes : A2T10-10 (400 MPa, 7.1 h), A2T9-9 (400 MPa, 1.7 h) et A2T9-10 (350 MPa, 24.5 h). Pour tous les autres essais, les simulations prédisent l'absence de plasticité au lieu d'amorçage des fissures. Ces trois essais avec plasticité correspondent à des ruptures au niveau des entailles. Ces ruptures semblent également différentes de celle de l'éprouvette A2T8-10 (Figure IV.50). Cette dernière présente un faciès de rupture presque entièrement fragile et droit, de forme cohérente avec un amorçage au centre de l'éprouvette et une propagation symétrique. Les trois ruptures avec plasticité présentent des formes dissymétriques. La moitié du faciès est occupée par la rupture ductile finale orientée à 45° de la contrainte appliquée. Cela laisse donc supposer que l'amorçage des ruptures a eu lieu du côté opposé et donc plutôt près des entailles qu'au centre du ligament. Et comme la plasticité se concentre aux entailles, on peut supposer que ces ruptures ont été initiées par celle-ci.

IV.2.2.2.4 Evolution du lieu de rupture

Ayant observé l'influence de la biaxialité et de la déformation plastique, on peut essayer d'expliquer les variations de lieux d'amorçage avec la contrainte appliquée. Pour les éprouvettes de type 8 ($R=0.3$ mm), on constate une transition de la partie droite vers les entailles quand la contrainte appliquée diminue (Figure IV.50). Au-dessus de 275 MPa (nominale), la rupture est dans la partie droite ; à 263 MPa, elle est entre les entailles. Pour les éprouvettes de type 10 ($R=0.5$ mm), on observe deux transitions quand la contrainte diminue : on passe d'une rupture entre entailles à 400 MPa, à une rupture dans la partie droite pour 375 et 360 MPa puis à une rupture entre entailles à 350 MPa. Pour les éprouvettes de type 10 ($R=0.7$ mm), on passe d'une rupture entre entailles à une rupture dans la partie droite lorsque la contrainte diminue, avec une contrainte de transition de 350 MPa. Enfin, pour les éprouvettes de type 11 ($R=1.0$ mm), on passe d'une rupture droite à une rupture entre entailles entre 350 et 300 MPa. Il y aurait donc deux changements de lieux de rupture des éprouvettes entaillées. A forte contrainte, elles rompent au niveau des entailles, à moyenne contrainte dans la partie droite et de nouveau au niveau des entailles aux plus faibles contraintes.

On propose une explication à partir des résultats, en s'appuyant sur le schéma de la Figure IV.52. A partir des essais et des calculs, on a obtenu la courbe des contraintes principales à rupture en forme de parabole (courbe limite). Plus on s'écarte de la traction uniaxiale (biaxialité nulle), plus la contrainte à rupture est importante. Pour une force appliquée sur l'éprouvette, on considère la contrainte nominale entre entaille et celle dans la partie droite (deux fois moins importante). Le premier cas de figure est l'application d'une force F_1 assez faible pour que les deux contraintes se trouvent en dessous de la courbe limite (cas1,

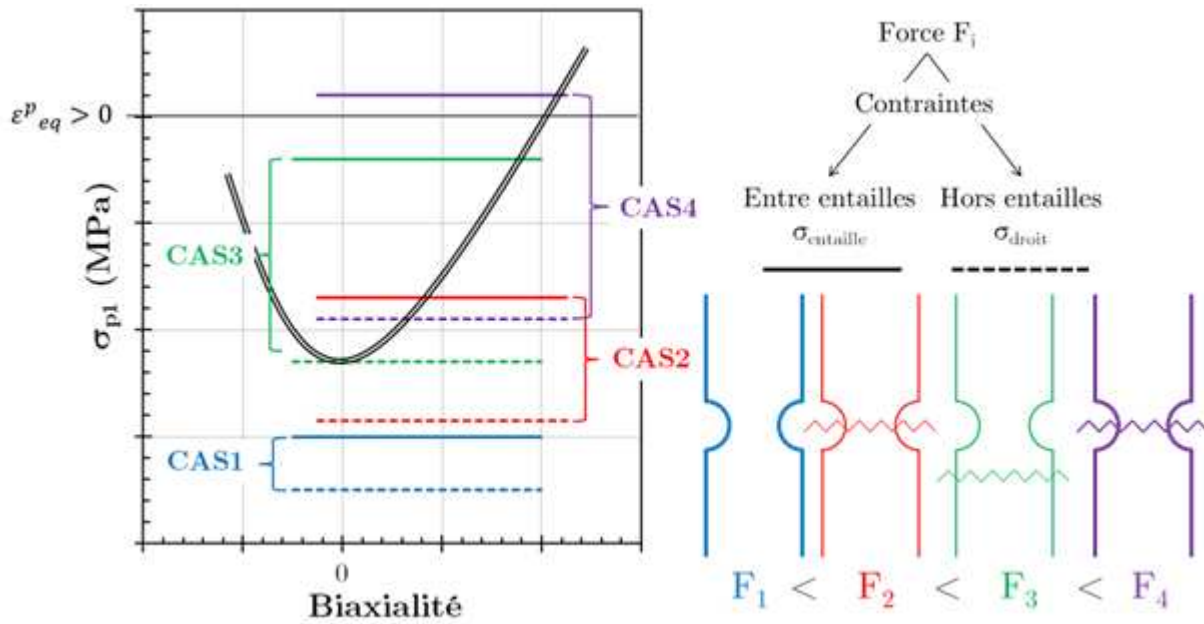


Figure IV.52 : Schéma explicatif des variations de lieux de rupture sur une éprouvette entaillée. La contrainte principale à rupture (double-trait noir) est tracée en fonction de la biaxialité. Quatre cas de figure (couleurs différentes) sont considérés selon la valeur des contraintes principales entre entailles (traits continus) et dans la partie droite (traits pointillés). Les lieux de rupture pour chaque cas sont illustrés par les dessins à droite.

couleur bleue sur la Figure IV.52). Dans ce cas, on n'observe pas de rupture, pour le temps final d'essai considéré. Pour une force F_2 un peu plus importante, il est possible d'obtenir une contrainte entre entaille au-dessus de la courbe limite, tout en gardant la contrainte dans la partie droite en dessous (cas2, couleur rouge sur la Figure IV.52). Dans ce cas, la rupture est possible seulement entre entailles. En appliquant une force F_3 encore plus importante, la contrainte dans la partie droite peut dépasser le seuil à biaxialité nulle (cas3, couleur verte sur la Figure IV.52). Les deux contraintes sont alors suffisantes pour mener à rupture. Malgré la section plus importante dans la partie droite, il semblerait que la rupture dans cette zone l'emporte sur la rupture éventuelle entre entailles. Si on augmente encore la force appliquée, on peut activer la plasticité en fond d'entailles (cas4, couleur violette sur la Figure IV.52). L'influence de la plasticité sur l'amorçage des fissures a déjà été notée précédemment. Sa présence favorise l'amorçage des fissures, et une rupture entre les entailles est de nouveau observée.

IV.2.2.2.5 Estimation des K_I

Le facteur d'intensité des contraintes, moyenné sur le front de fissure, est estimé pour ces essais, quand la rupture se produit dans la partie droite des éprouvettes. On rappelle que la formule analytique n'est valide que pour une fissure centrée de largeur inférieure à la demi-largeur de la section de l'éprouvette. Il faut également que la profondeur soit inférieure à l'épaisseur de la section.

On applique néanmoins la formule pour une fissure la plus large possible, avec une profondeur de 99% de l'épaisseur et une contrainte uniaxiale éloignée égale à 180 MPa, valeur maximale appliquée lors des essais dans les parties droites d'éprouvettes ayant rompu hors entailles. On trouve alors une valeur moyenne du K_I de $6.8 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$, très proche de la valeur du $K_{IG/M}$ déterminé sur les essais de traction à vitesse de déformation imposée. On a supposé précédemment que la transition vers la propagation mixte est gouvernée par le franchissement du $K_{IG/M}$ proche de $7 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$. Les résultats de ce

paragraphe ne viennent pas contredire cette hypothèse. Avec les niveaux de contrainte utilisés, il est logique qu'une très grande partie du faciès de rupture soit intergranulaire du fait des faibles facteurs d'intensité des contraintes mis en jeu.

IV.2.3 Immersion de godet

Les essais présentés dans cette partie de chapitre ont montré qu'il était possible d'amorcer et de propager des fissures de CSC-I en l'absence de déformation plastique active, la seule présence de contraintes pouvant suffire. L'effet de la biaxialité des contraintes est également mis en évidence dans ce régime. Son importance est telle que dans certaines conditions, une éprouvette avec entailles rompt préférentiellement là où la contrainte appliquée est uniaxiale. Il semblerait que l'apparition locale de la plasticité court-circuite cet effet et favorise très fortement l'amorçage. Son influence avait également été observée lors d'essais de traction uniaxiale dans le domaine plastique.

On peut également s'interroger sur l'éventuel effet d'une déformation plastique antérieure à l'exposition à l'iode sur l'amorçage des fissures de CSC-I. Pour cela, on a utilisé les pièces embouties que l'on appelle godets, qui présentent à la fois de fortes contraintes résiduelles, des déformations plastiques résiduelles importantes et l'absence de déformation plastique active (après la relaxation suivant l'emboutissage). La pertinence de tels échantillons pour des études de corrosion sous contrainte a déjà été montrée pour des aciers austénitiques en présence d'hydrogène (Cugy 2011).

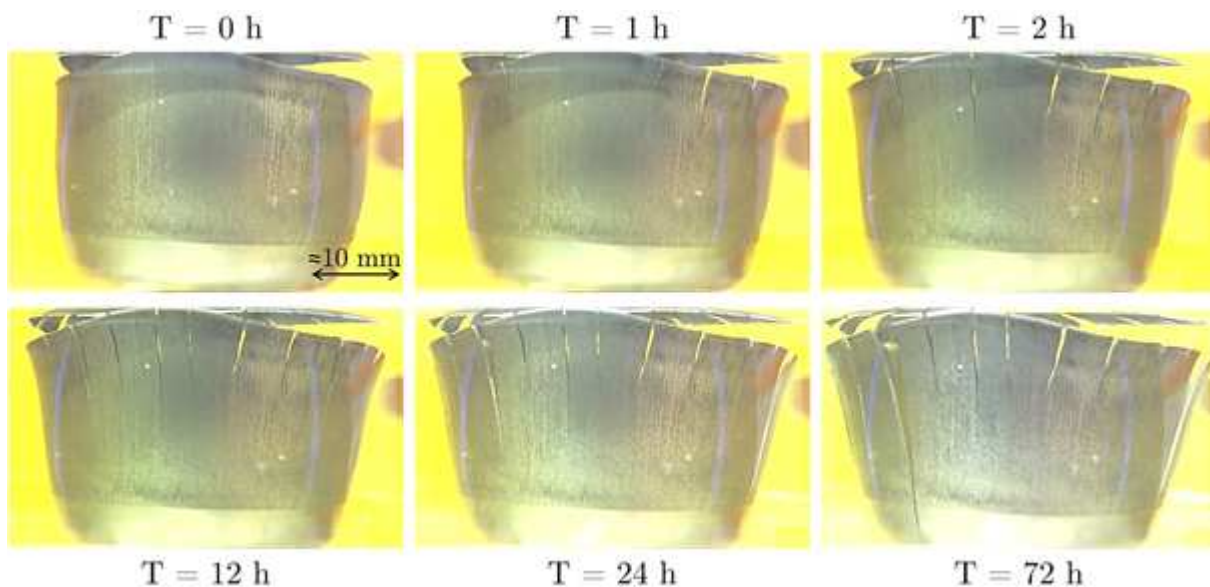
IV.2.3.1 Conditions d'études et essais réalisés

Les godets ont été exposés au méthanol iodé dans les bocalux utilisés également pour les montages de flexion quatre points. Les immersions ont été faites à température ambiante, à des concentrations comprises entre 10^{-8} et 10^{-3} g.g⁻¹ et généralement pour des durées proches de 72 h, afin de comparer les résultats avec ceux obtenus lors de la flexion. Les quatre types de godets présentés dans les chapitres précédents sont utilisés. On rappelle que les mesures de contraintes résiduelles n'ont été faites que pour un godet à avalement total (100%). L'accord avec les simulations numériques est relativement bon. Pour les avalements intermédiaires (40%, 60% et 80%), on ne dispose donc que du modèle de comportement pour analyser les résultats.

La liste des godets testés est donnée dans le Tableau IV.10. Pour certaines immersions, les godets ont été photographiés à intervalle régulier pour estimer le temps à l'amorçage et la vitesse de propagation des fissures, notamment pour des godets 100%. La résolution de la caméra USB utilisée est de 1920x1080 pixels. L'intervalle moyen de prise de vue est de 5 min. Pour les autres, on ne fait que constater la présence ou l'absence de fissure après exposition, contrairement aux essais de flexion où la chute des masses indiquait la rupture. Après chaque immersion, les godets sont rincés et nettoyés aux ultra-sons. A l'aide d'un microscope, la position angulaire des fissures (angle par rapport à la direction de laminage avant emboutissage) et leur longueur sont déterminées pour l'ensemble des godets. Dans la suite, on appellera languette une portion d'un godet comprise entre deux fissures. Dans plusieurs cas, ces languettes ont été découpées ou arrachées au godet afin d'observer le faciès de rupture au MEB. Cela a été fait pour tous les godets 100% et pour un seul godet de chaque avalement intermédiaire.

Tableau IV.10 : Liste des godets testés en méthanol iodé.

Type	N°	[I ₂] (g.g ⁻¹)	Durée (h)	Fissures	Essai filmé
40%	1	10 ⁻³	71.5 (±0.5)	oui	non
40%	2	10 ⁻⁴	73.6 (±0.5)	oui	non
40%	3	10 ⁻⁵	71.7 (±0.5)	oui	non
40%	4	10 ⁻⁶	72.7 (±0.5)	non	non
40%	5	3 10 ⁻⁶	71.8 (±0.5)	non	non
40%	6	5 10 ⁻⁶	72 (±2)	non	non
60%	1	10 ⁻⁵	71.5 (±0.5)	oui	non
60%	2	10 ⁻⁴	73.5 (±0.5)	oui	non
60%	3	10 ⁻⁵	71.7 (±0.5)	non	non
60%	4	3 10 ⁻⁵	72.5 (±0.5)	oui	non
60%	5	2 10 ⁻⁵	72 (±2)	oui	non
80%	1	10 ⁻³	71.3 (±0.5)	oui	oui
80%	2	10 ⁻⁴	73.4 (±0.5)	oui	non
80%	3	10 ⁻⁵	71.6 (±0.5)	oui	non
80%	4	10 ⁻⁶	74.0 (±0.5)	non	non
80%	5	3 10 ⁻⁶	72.5 (±0.5)	oui	non
80%	7	2 10 ⁻⁶	72 (±2)	non	non
100%	2	10 ⁻⁴	73.2 (±0.5)	oui	oui
100%	3	10 ⁻⁵	71.5 (±0.5)	oui	oui
100%	4	10 ⁻⁶	73.8 (±0.5)	oui	oui
100%	5	10 ⁻⁷	93.3 (±0.5)	oui	non
100%	6	10 ⁻⁷	72 (±2)	oui	non
100%	7	10 ⁻³	70.5 (±0.5)	oui	oui
100%	9	10 ⁻⁶	72.0 (±0.5)	oui	non
100%	11	10 ⁻³	1244 (±2)	oui	oui

Figure IV.53 : Observation de la fissuration du godet 100% n°2 (10⁻⁴ g.g⁻¹) au cours de l'immersion.

IV.2.3.2 Résultats et analyses

IV.2.3.2.1 Phénoménologie

La phénoménologie de la fissuration des godets est illustrée par le cas du godet 100% n°2, immergé dans une solution à 10^{-4} g.g⁻¹ pendant 73.2 h. Il servira de référence pour les analyses de l'effet de la concentration et de la géométrie du godet, détaillées après.

Comme cela est visible sur la Figure IV.53, des fissures se développent très rapidement sur le godet immergé. Ces fissures s'amorcent au sommet du godet et sont plutôt verticales. On les qualifiera d'axiales dans la suite. Cela justifie l'intérêt de l'étude des contraintes circonférentielles, à la fois expérimentalement et numériquement. Les fissures ne se développent pas toutes au même moment. Au bout d'une heure, on n'observe que quatre fissures, contre neuf en fin d'immersion avec la même vue. Elles ne s'arrêtent pas non plus de façon simultanée. Les fissures « courtes » semblent avoir déjà atteint leur longueur finale au bout de 12 h, alors que les longues arrêtent leur propagation quand elles arrivent au fond du godet, en 24 h environ.

Cela confirme également que des fissures de CSC-I s'amorcent sans plasticité active. Les godets ont été testés plusieurs mois après leur fabrication. Si l'on se fie aux simulations (§ III.3.5), la relaxation post-emboutissage n'intervient plus alors. Il apparaît aussi qu'un nombre très important de fissures s'amorcent et se propagent sur un tel échantillon. On dénombre ici 30 fissures. Les différentes observations au microscope permettent de placer angulairement ces fissures : chaque fissure axiale correspond à une propagation dans une direction donnée de la tôle avant emboutissage. Dans le repère cylindrique du godet, un angle désigne une telle direction. La direction de laminage est choisie comme référence (angle 0°), contrairement au chapitre précédent où $\vartheta=0^\circ$ désignait la direction T. Les prises de vue sur le côté du godet permettent également de mesurer la longueur de ces fissures. Les longueurs des différentes fissures en fonction de leur position angulaire sont données sur la Figure IV.54, à gauche. On remarque que toutes ont une longueur supérieure à 8 mm. Les deux tiers des fissures ont une longueur d'environ 10 mm. Les fissures du dernier tiers sont toutes plus grandes que 20 mm. Il n'y a pas de longueurs intermédiaires. Les grandes fissures ont l'air de se concentrer autour de la direction de laminage (0°, 180° et 360°), plutôt qu'autour de la direction transverse (90° et 270°). On remarque également que la plupart du temps il y a des fissures courtes entre deux fissures longues. Les fissures sont réparties sur le sommet du godet de façon assez uniforme.

Les points de couleur sur la Figure IV.54 (à gauche) correspondent aux fissures qui se sont développées devant la caméra pendant l'immersion. La caméra ne dispose pas d'un étalonnage et on observe des fissures qui ne sont pas nécessairement situées sur le même plan. La position du front de fissure est suivie et son avancée est exprimée en pourcentage de la hauteur du godet. Sur cet essai, six fissures ont été suivies. Les avancées de ces fissures sont données sur la Figure IV.54, à droite. Les évolutions temporelles de ces avancées ont une forme exponentielle saturante, avec des vitesses à l'origine proches. La fissure n°1, qui est la plus grande fissure à 72 h sur la Figure IV.53, semble suivre la même évolution que les autres, démarrage rapide puis stabilisation, avant de redémarrer pour atteindre le fond du godet. On remarque également une fissure s'amorçant et propageant bien avant les autres. Malgré cela, elle fait partie des fissures les plus courtes.

En prenant une hauteur moyenne de godet 100% égale à 24 mm, la vitesse initiale moyenne des fissures est de 0.32 mm.s^{-1} , près de 1000 fois supérieure aux vitesses de fissuration des autres essais. Les temps à l'amorçage des différentes fissures sont assez

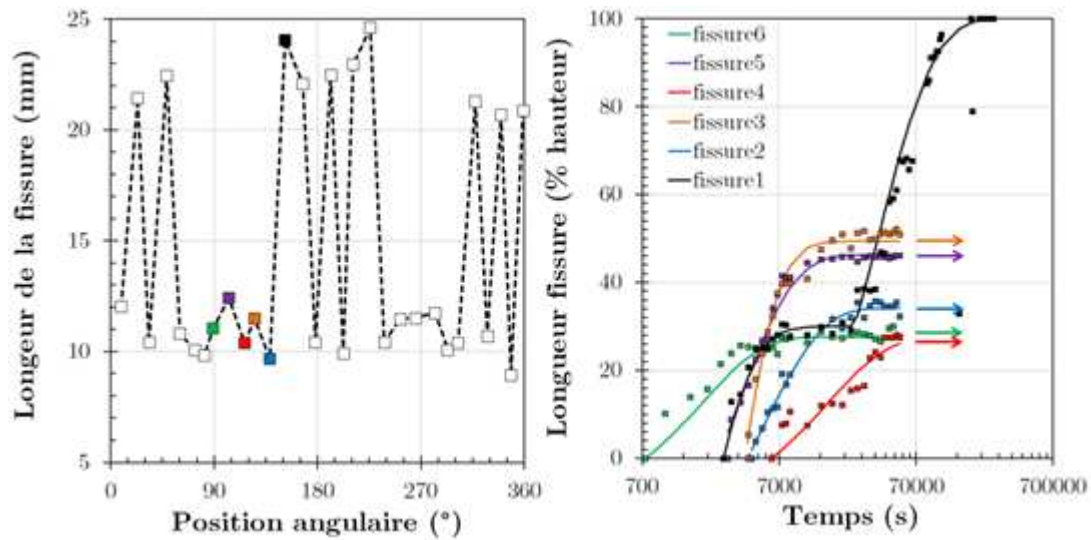


Figure IV.54 : Longueurs des fissures en fonction de leur position angulaire, toutes deux obtenues par observation au microscope (gauche). Evolution temporelle de l'avancée de la fissure déterminée à partir des images de la caméra USB (droite). Le code couleur est le même pour les deux graphiques.

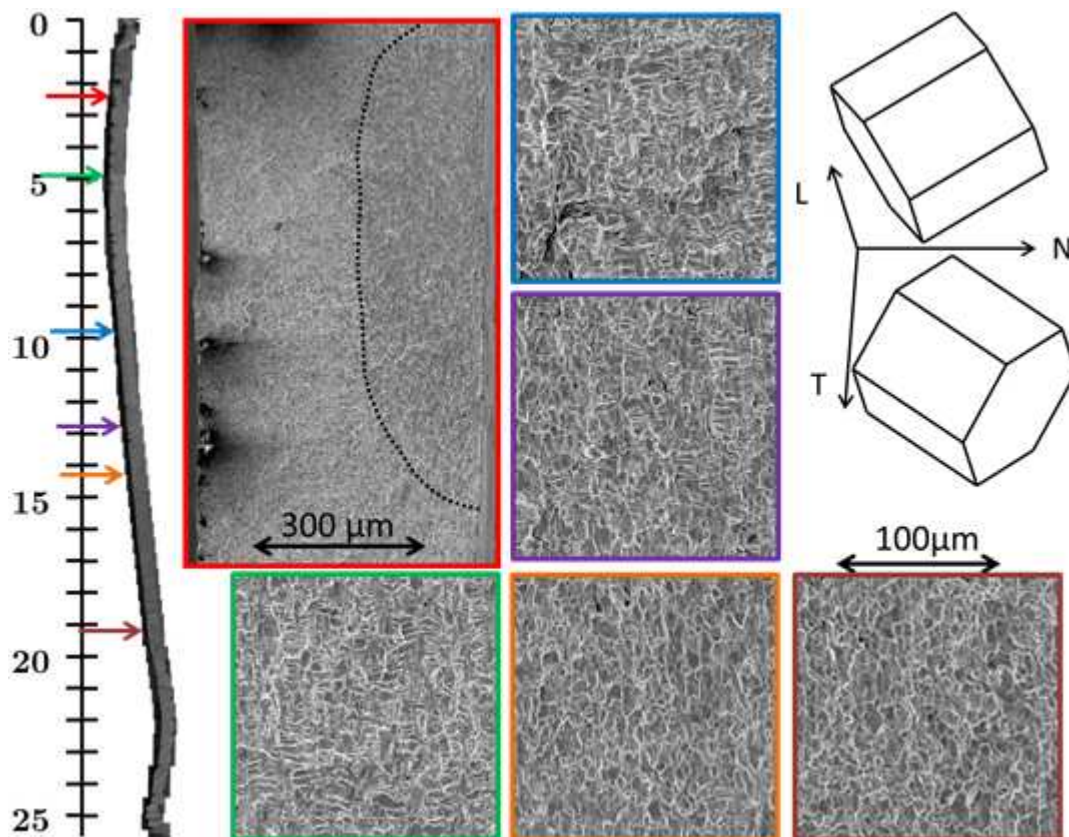


Figure IV.55 : Etude du faciès de rupture le long d'une longue fissure située à 152° de la direction de laminage, sur le godet 100% n°2 (10^{-4} g.g $^{-1}$). L'échelle à gauche est en millimètres et un assemblage de l'ensemble des clichés MEB de la tranche y est accolé. Les flèches de couleur indiquent la position à laquelle a été pris le cliché MEB encadré avec la même couleur. Les cinq images carrées à droite partagent la même échelle (100 μm). La face externe (en traction) est située à droite pour l'ensemble des images. Les pointillés dans le cadre rouge délimitent une zone intergranulaire.

dispersés et compris entre 740 et 6200 s. Ils sont à la fois supérieurs aux temps d'amorçage des essais de traction dans le domaine plastique, mais aussi inférieurs aux temps de rupture des éprouvettes de fluage en flexion.

Le faciès de rupture de la fissure longue a été observé sur toute sa longueur pour déterminer le type de fissuration mis en jeu. La Figure IV.55 illustre les différences de fissuration que l'on peut trouver sur les faciès de rupture de godets 100%. Sur près de 10 mm (en partant du sommet du godet), la fissuration est presque exclusivement transgranulaire (cadre vert). Le quasi-clivage est plus visible que lors des essais de traction mais sa proportion reste faible par rapport au fluting. Dans cette zone transgranulaire, on remarque la présence d'une enclave intergranulaire de forme semi-elliptique, de presque 1 mm de large, et de profondeur égale à la moitié de l'épaisseur du godet (cadre rouge). Cette partie intergranulaire est à 2.5 mm du sommet, sur la face externe du godet (en traction). Il semblerait que ce soit l'amorce intergranulaire à partir de laquelle la propagation transgranulaire a débuté. Sur les photographies, on observait que les fissures partaient du sommet et pas d'en dessous. Il est possible que les fissures soient si fermées, qu'on ne puisse les observer macroscopiquement avant qu'elles ne rejoignent le sommet.

Au bout d'environ 10 mm de propagation, on commence à voir apparaître une zone intergranulaire, d'abord à partir de la face interne (cadre bleu) mais aussi de la face externe pour une profondeur plus grande. La zone intergranulaire progresse avec l'avancée de la fissure (cadre violet), jusqu'à ce que la fissuration transgranulaire devienne marginale (cadre orange) puis disparaisse complètement (cadre rouge foncé). On n'observe plus de propagation transgranulaire jusqu'à l'arrêt de la fissure. La transition d'un mode à l'autre se fait en moins de 5 mm d'avancée de fissure.

IV.2.3.2.2 Influence de la concentration en iode

Comme indiqué dans le Tableau IV.10, un large intervalle de concentration a été balayé. Un premier résultat est l'absence de concentration limite pour les godets à avalement total dans la gamme de concentrations testée. En effet, à 10^{-8} g.g⁻¹, on observe toujours la présence de fissures. On rappelle que, pour les essais de flexion, il n'y a pas eu de rupture pour une languette sollicitée à 10^{-6} g.g⁻¹ et 400 MPa pendant 72 h.

Chacun des godets 100% testés a été analysé comme le n°2 présenté précédemment. On dispose donc de la répartition de fissures et de leur taille. La partie gauche de la Figure IV.56 regroupe ces résultats. Une concentration plus élevée augmente le nombre de fissures et leur longueur moyenne. On passe ainsi de 8 fissures de longueur moyenne de 8.5 mm pour 10^{-8} g.g⁻¹ à 30 fissures de longueur moyenne de 14.5 mm pour 10^{-4} g.g⁻¹. On note également la grande incertitude inhérente à la fabrication des godets : à 10^{-3} g.g⁻¹, on trouve moins de fissures et des moins longues qu'à 10^{-4} g.g⁻¹. Cela peut aussi être le signe d'une saturation du nombre de fissures à partir de 10^{-5} g.g⁻¹.

Ce n'est qu'en dessous de 10^{-5} g.g⁻¹ que le nombre de fissures devient assez faible pour observer une localisation préférentielle des fissures sur les godets. La partie droite de la Figure IV.56 indique la position angulaire des fissures pour les différentes concentrations utilisées. A partir de 10^{-6} g.g⁻¹, on observe de grandes portions sans fissure. A 10^{-5} g.g⁻¹, l'écart angulaire maximal entre deux fissures est de 20°. Cet écart maximal est respectivement de 95°, 201° et 221° pour des concentrations de 10^{-6} , 10^{-7} et 10^{-8} g.g⁻¹. Dans les zones présentant des fissures, on n'observe pas de localisation particulière. La fabrication du godet et les défauts au sommet qu'elle implique sont sûrement responsables de la localisation préférentielle des fissures sur une moitié de godet, masquant un éventuel effet de la seule texture cristallographique.

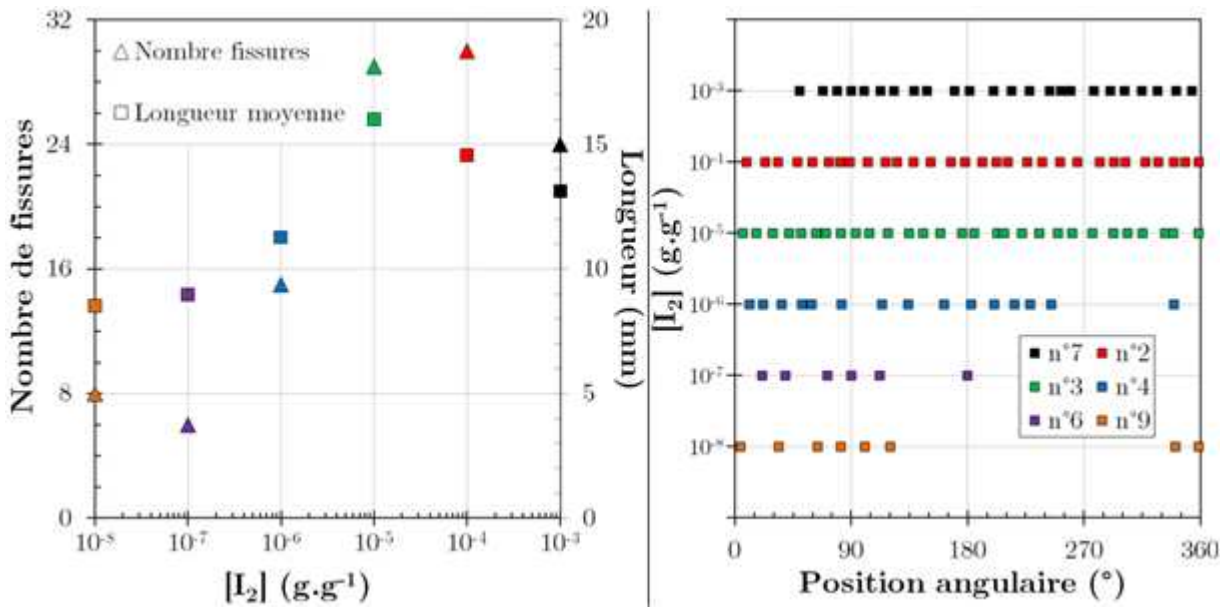


Figure IV.56 : Variation du nombre de fissures (triangles) et de la longueur moyenne des fissures (carrés) en fonction de la concentration en iode de la solution (gauche). Position angulaire des fissures observées pour les différentes concentrations testées (droit). Cas de godets à avalement total immergés pour des durées proches de 72 h.

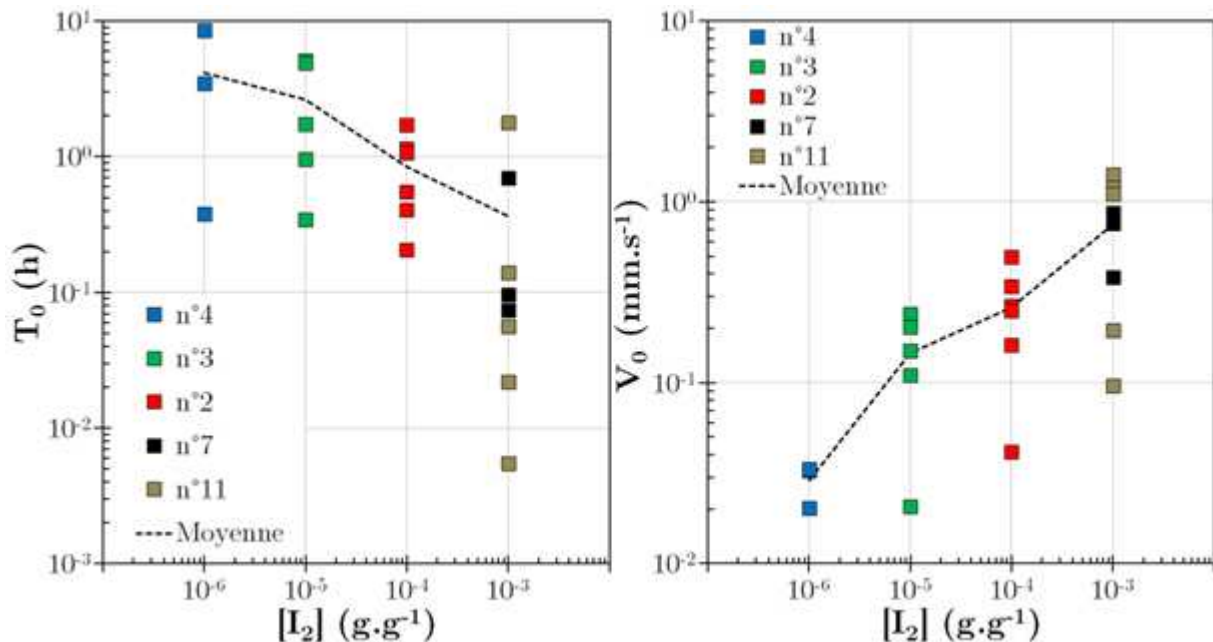


Figure IV.57 : Influence de la concentration sur le temps d'amorçage des fissures (gauche) et sur la vitesse initiale de propagation des fissures (droite). Les traits pointillés relient les valeurs moyennes par concentration. Cas des godets à avalement total.

La présence de fissures longues aux alentours de la direction de laminage plutôt que transverse, observée sur le godet 100% n°2, n'a pas été retrouvée sur les autres godets 100%.

Avec les immersions filmées, il a été possible d'observer l'influence de la concentration sur les temps à l'amorçage et les vitesses de propagation. A toute concentration, les évolutions temporelles ont sensiblement la même forme en exponentielle saturante. Pour comparer les essais sans avoir à superposer toutes les courbes, on détermine les paramètres de la fonction suivante permettant d'ajuster les courbes d'avancées de fissures:

$$l(T) = l_f \left(1 - e^{-\frac{V_0(T-T_0)}{l_f}} \right) \quad \text{Eq. IV.9}$$

l est la longueur de la fissure suivie à l'instant T , l_f sa valeur asymptotique, T_0 le temps d'amorçage et V_0 la vitesse à T_0 ou vitesse initiale. La hauteur moyenne de godet de 24 mm est utilisée pour déterminer V_0 . On observe alors l'influence de la concentration sur les paramètres T_0 et V_0 sur la Figure IV.57.

Le temps moyen d'amorçage des fissures est divisé par plus de 10 entre 10^{-6} et 10^{-3} g.g⁻¹. Si l'on s'intéresse au temps minimal d'amorçage relevé par concentration, on observe qu'il diminue d'abord légèrement avec la concentration, de 1330 à 740 s entre 10^{-6} et 10^{-4} g.g⁻¹, puis radicalement, de 740 à 20 s entre 10^{-4} et 10^{-3} g.g⁻¹. Cette chute brutale pourrait être due au passage de la concentration de transition discutée précédemment. Pour un essai de traction à vitesse de déformation imposée, un temps de 20 s à la vitesse de 10^{-3} s⁻¹ correspond à une déformation totale de 2%. Un temps de 700 s correspond à 7%. On retrouve donc des ordres de grandeur de temps à l'amorçage comparables à ceux observés lors des essais de traction dans le domaine plastique les plus rapides.

La vitesse initiale est également influencée par la concentration. Son évolution semble plus lisse que celle du temps à l'amorçage. On observe alors une multiplication par plus de 25 entre 10^{-6} et 10^{-3} g.g⁻¹. Malgré cela, les vitesses de propagation aux plus faibles contraintes sont déjà supérieures de plusieurs ordres de grandeurs à celles déterminées lors des essais de traction ou flexion.

On a vu pour le godet 100% n°2 que les modes de fissuration changent avec la profondeur de la fissure et que la concentration en iode joue sur les longueurs de fissure. Des observations MEB ont été conduites sur tous les godets 100%, et donc pour des concentrations comprises entre 10^{-8} et 10^{-3} g.g⁻¹. Ces observations ont été faites sur les languettes les plus longues car plus facilement détachables du reste du godet. On ne se place donc pas à une texture constante.

Il apparaît que l'amorçage des fissures se fait le plus souvent au sommet du godet en face externe et de façon intergranulaire (IG). La taille de cette zone diminue fortement avec la concentration et peut atteindre plusieurs centaines de microns. A toute concentration, la propagation est principalement transgranulaire (TG), depuis le sommet du godet (hors zone d'amorçage). Au bout d'une certaine longueur de fissure, on observe toujours un passage vers une fissuration IG sur la peau interne (initialement en compression). En revanche, on n'observe pas toujours de fissuration purement IG en fin de propagation.

Pour le godet 100% n°9 (10^{-8} g.g⁻¹), la fissuration IG reste confinée près de la peau interne, et est absente de la peau externe. La fissure s'arrête alors qu'elle est toujours transgranulaire sur 80% de l'épaisseur, à 8.5 mm du sommet. On remarque également une partie non fissurée, ouverte lors de l'arrachage de la languette. Ce type de faciès est

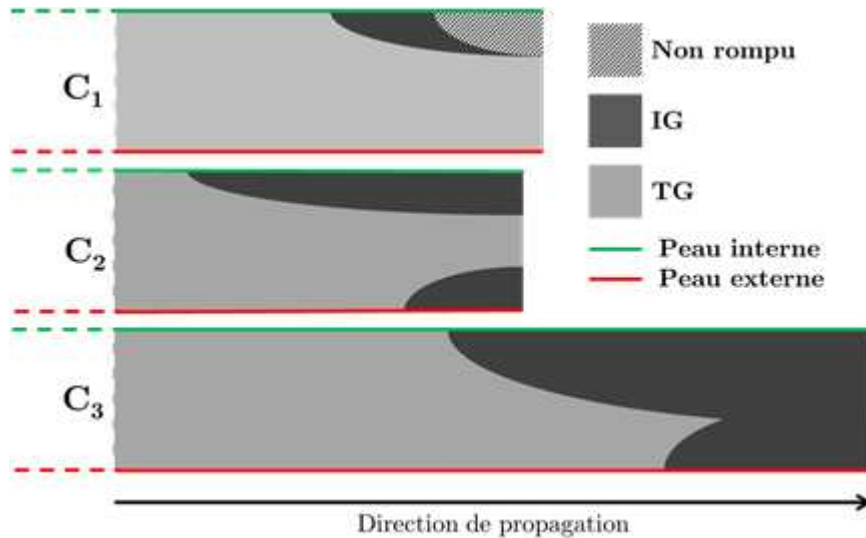


Figure IV.58 : Schématisation du faciès de rupture des fissures axiales sur godets 100%, pour trois concentrations en iode $C_1 < C_2 < C_3$, en fin de propagation.

schématisé sur la Figure IV.58, en haut. Il semblerait que la fissure se propage de biais ; le front de fissure n'est pas perpendiculaire à la direction de propagation, et la fissure serait plus longue en face externe qu'en face interne.

Pour le godet 100% n°5 (10^{-7} g.g^{-1}), la fissure observée est plus courte que celle du godet précédent, et pourtant on observe l'apparition de la fissuration IG sur la peau externe. De plus, la fissuration IG en peau interne apparaît bien plus tôt, à 3.95 mm du sommet au lieu de 8 mm pour le godet 100% n°9. L'augmentation de la concentration favoriserait donc le mode IG. Malgré cela, on ne constate toujours pas de fissuration purement IG. Le faciès est schématisé sur la Figure IV.58, au milieu.

Pour le godet 100% n°4 (10^{-6} g.g^{-1}), on observe une fissure bien plus longue que les précédentes, d'environ 13 mm. Le faciès de rupture ressemble à celui du godet 100% n°5, avec la présence de fissuration IG en peau interne puis en peau externe, l'absence de fissuration 100% IG sur l'épaisseur. Mais les zones IG apparaissent beaucoup plus tard que sur les autres godets, à 10 mm du sommet pour la face interne et à 12 mm du sommet en face externe. La fissuration 100% TG s'étend donc sur 10 mm environ, comme pour le godet de référence. L'augmentation de concentration a donc fortement favorisé le TG.

Pour le godet 100% n°3 (10^{-5} g.g^{-1}), le début du faciès est très proche de celui du godet précédent : amorçage IG au sommet, fissuration TG sur 10 mm environ, apparition de la fissuration IG en peau interne à 9.7 mm du sommet et en peau externe à 12.1 mm. La fissure observée est plus longue, d'environ 17 mm. A partir de 14 mm du sommet, la fissuration devient exclusivement IG. Le faciès est schématisé sur la Figure IV.58, en bas. On retrouve la phénoménologie du godet 100% n°2 (10^{-4} g.g^{-1}) présentée dans le paragraphe précédent.

A 10^{-3} g.g^{-1} , on dispose de deux godets, le 100% n°7 (70.5 h) et le n°11 (1244 h). Deux fissures ont été observées sur le n°7 et une sur le n°11. On observe le même type de fissuration pour ces trois fissures que pour les godets 100% n°2. On observe l'apparition de la fissuration IG en peau interne à des distances de 10.9, 8.5 et 8.2 mm du sommet. La fissuration IG en peau externe se manifeste à 12.9, 11.9 et 11.9 mm du sommet. La fissuration 100% IG est observée à partir de 14.2, 13 et 12.5 mm.

Le mode de fissuration est donc constant à partir d'une concentration de 10^{-5} g.g⁻¹. Au-delà, l'influence de la concentration porterait principalement sur la longueur de la zone intergranulaire avant l'arrêt de la fissure (influence sur la propagation IG donc), les temps à l'amorçage des fissures et leurs vitesses initiales de propagation. On avait déjà remarqué une saturation du nombre de fissures. Aux très faibles concentrations, la concentration semblait favoriser l'apparition de la fissuration IG. Mais on a également vu qu'au-delà de 10^{-5} g.g⁻¹ la portée de la fissuration purement TG était bien plus grande qu'en dessous.

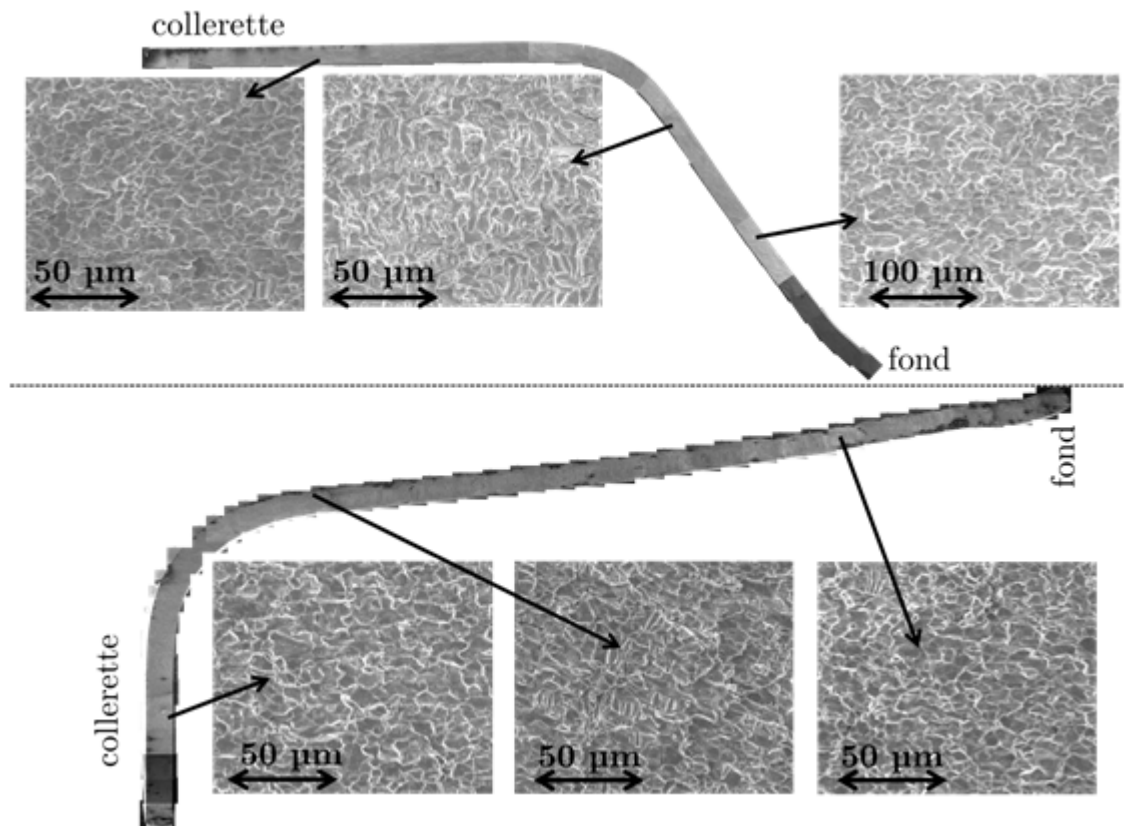


Figure IV.59 : Faciès de rupture du godet 40% n°1 (10^{-3} g.g⁻¹) (haut) et du godet 80% n°1 (10^{-3} g.g⁻¹) (bas). Les flèches indiquent la position sur le faciès global des détails. Ces derniers sont centrés au milieu de l'épaisseur des godets. Illustration de la présence de propagation mixte près des coudes.

IV.2.3.2.3 Godets à avalements partiels

Des godets à avalements partiels ont été immergés dans les mêmes conditions que les godets 100%. L'étude de ces godets est plus compliquée. Les fissures s'amorcent toutes au niveau des coudes (jonction entre collerette et flanc cylindrique du godet). Après immersion, les observations optiques montrent des fissures sur le coude, propageant de part et d'autre. Certaines de ces fissures traversent la collerette pour rejoindre le sommet (extrémité) du godet. Dans ces conditions, les fissures sont également bien plus profondes (proches du fond du godet). Bien souvent les fissures observées sont la jonction de deux amorces ou plus, donnant ainsi une forme saccadée à la fissure dans sa longueur, comme un éclair.

Le godet 80% n°1 a été suivi par caméra. Ce suivi a permis de confirmer l'amorçage près des coudes, mais n'a pas permis de savoir s'il se faisait d'abord en peau externe ou en peau

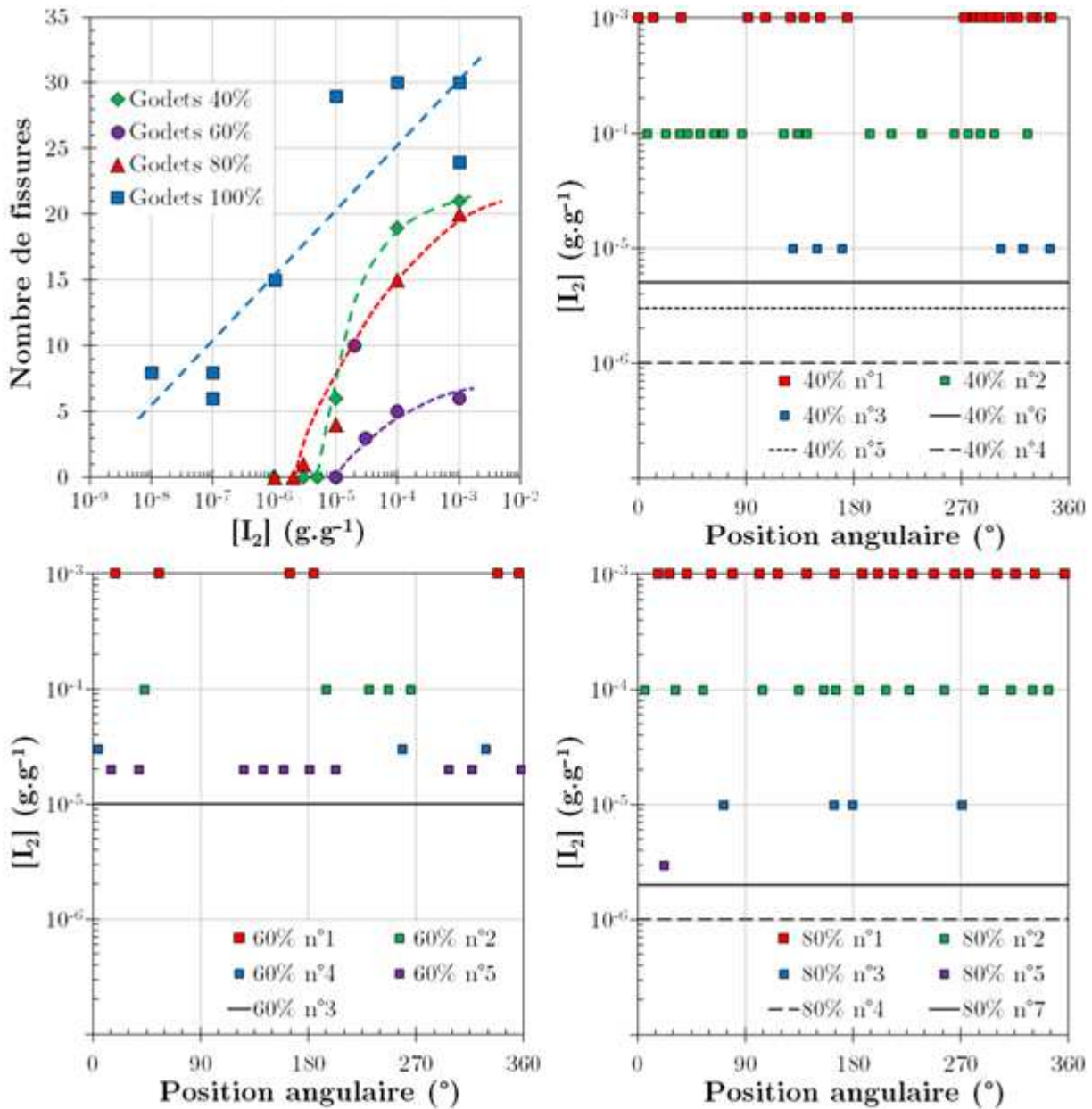


Figure IV.60 : Evolution du nombre de fissures en fonction de la concentration pour les différents types de godets immergés pendant 72 h environ (haut, gauche). Positions angulaires des fissures à différentes concentrations pour les godets 40% (haut, droit), 60% (bas, gauche) et 80% (bas, droite). Les traits noirs (pointillés ou continus) indiquent des concentrations pour lesquelles aucune fissure n'a été observée.

interne. Les calculs par éléments finis du chapitre précédent (§ III.3.5) ont montré qu'au niveau du coude, les contraintes circonférentielles sont de traction sur les deux faces. Les faciès de rupture, décrits ci-dessous, ne permettent pas non plus de répondre à cette question. L'analyse complète de ces godets nécessite des études plus approfondies que celles réalisées ici avec le temps imparti. Pour cela, on décide de se placer uniquement du point de vue de l'amorçage des fissures. Pour chaque godet et chaque concentration, la présence de fissure est recherchée optiquement. Le nombre et la position angulaire des fissures sont alors relevés.

Les faciès de rupture ont quand même été observés au MEB pour un godet de chaque type testé à forte concentration (10^{-3} g.g⁻¹). La Figure IV.59 regroupe différents clichés pris pour les godets 40% n°1 et 80% n°1. La fissuration de ces godets est très majoritairement intergranulaire (IG). Au niveau des collerettes (jusqu'à l'extrémité du godet) ou sur la plus grande partie des flancs, on n'observe pas de propagation transgranulaire (TG), malgré les contraintes et la déformation plastique résiduelle importantes. La présence de fluting ou de quasi-clivage est observée dans la partie inférieure des coudes et en haut des flancs. A son maximum d'importance, elle ne représente que la moitié de l'épaisseur du godet. Proche des surfaces (peau interne ou externe), on n'observe que de la fissuration IG, sur l'ensemble du faciès analysé. La zone transgranulaire est confinée au cœur de l'épaisseur et ne rejoint pas les bords, comme cela était le cas pour les godets 100%.

Les statistiques de fissuration (nombre et positions angulaires) sont données sur la Figure IV.60. Pour ces godets à avalement partiel, on retrouve l'existence d'une concentration seuil proche de celles observées pour les essais de traction et flexion. Cette concentration seuil semble varier avec le type de godet : elle est comprise entre $5 \cdot 10^{-6}$ et 10^{-5} g.g⁻¹ pour les godets 40%, entre 1 et $2 \cdot 10^{-5}$ g.g⁻¹ pour les 60% et entre 2 et $3 \cdot 10^{-6}$ g.g⁻¹ pour les 80%. Le nombre de fissures en fonction de la concentration augmente fortement à partir de la concentration seuil puis se stabilise assez rapidement. Dans tous les cas de figure, on trouve moins de fissures que pour les godets à avalement total.

Une localisation angulaire préférentielle des fissures a également été recherchée quand on s'approche de la concentration seuil à partir des trois autres graphiques de la Figure IV.60. Pour les godets 40%, le manque d'essais fait que le minimum de fissures observées est de 6 à 10^{-5} g.g⁻¹. L'écart angulaire moyen entre les fissures et la direction de laminage est de 34.4°. Pour des fissures aléatoirement réparties, on trouverait 45°. Pour des fissures le long de la direction transverse, on trouverait 90°. Pour les godets 60% à $2 \cdot 10^{-5}$ g.g⁻¹, on trouve étrangement un nombre assez important de fissures par rapport aux concentrations plus importantes. L'écart angulaire moyen est alors de 30°. Pour la concentration supérieure la plus proche, on trouve 3 fissures et un écart moyen de 38.2°. Enfin pour les godets 80%, à $2 \cdot 10^{-6}$ g.g⁻¹, on obtient le seul essai où une seule fissure est présente. Celle-ci se trouve à 22° de la direction de laminage. Pour la concentration supérieure la plus proche, on trouve 4 fissures, pour un angle moyen de 44.4°, soit une répartition aléatoire. On ne met donc pas clairement en évidence une localisation angulaire préférentielle des fissures, comme cela était le cas pour les godets à avalement total.

IV.2.3.3 Utilisation de la simulation numérique

La simulation numérique de l'emboutissage puis de la fissuration des godets a représenté une part importante de la modélisation car elle est indispensable à l'exploitation de ces essais complexes. La pertinence du modèle de comportement mécanique et des techniques numériques pour ce type d'essais a été discutée dans le chapitre précédent. Les résultats ici sont donc à prendre avec précaution même si les contraintes résiduelles sont plutôt bien simulées.

IV.2.3.3.1 Amorçage des fissures

D'après les simulations, les contraintes circonférentielles maximales dans les godets 100% ne sont pas au sommet (environ 260 MPa) mais à 3 mm en dessous, où elles peuvent atteindre 460 MPa. Les mesures par DRX donnent une valeur de 300 MPa à 5 mm du sommet. Il n'est pas possible de réaliser de telles mesures au sommet. Le décalage du maximum pourrait expliquer l'amorçage de la fissure du godet 100% n°2, pris comme référence, pour lequel on observait une amorce intergranulaire de grande taille à 2.5 mm du

sommet. Cependant, toutes les autres observations de godet 100 % ont montré un amorçage au sommet, notamment à partir de micro-déchirures. Ces accidents d'emboutissage expliqueraient l'extrême sensibilité à la CSC-I de ce type de godet (fissuration à 10^{-8} g.g^{-1}).

L'estimation des contraintes résiduelles dans les godets à avalement partiel abonde dans ce sens. En effet, les contraintes circonférentielles dans le coude de ces godets atteignent 400 MPa et pourtant on observe une absence de fissure en dessous de $3 \cdot 10^{-6} \text{ g.g}^{-1}$. Si l'amorçage des fissures de CSC-I sur les godets 100% n'est pas conforme ou comparable aux autres essais, ces godets montrent néanmoins que la propagation est possible à des concentrations extrêmement faibles et dans des proportions non négligeables (6 à 8 fissures de longueur moyenne de 8 mm).

Tableau IV.11 : Valeurs moyennes des contraintes circonférentielles et axiales, du rapport de biaxialité et de la déformation plastique équivalente au maxima de contraintes circonférentielles en peau externe (gauche) et interne (droite).

Type godet	Peau externe				Peau interne			
	$\sigma_{\theta\theta}$ (MPa)	σ_{zz} (MPa)	b	ϵ_{eq}^p (%)	$\sigma_{\theta\theta}$ (MPa)	σ_{zz} (MPa)	b	ϵ_{eq}^p (%)
80%	411.3	102.7	0.25	55.8	236.2	14.6	0.06	23.2
60%	377.1	100.6	0.27	39.9	232.0	35.3	0.15	37.0
40%	333.4	68.7	0.21	20.6	123.5	39.6	0.32	49.0

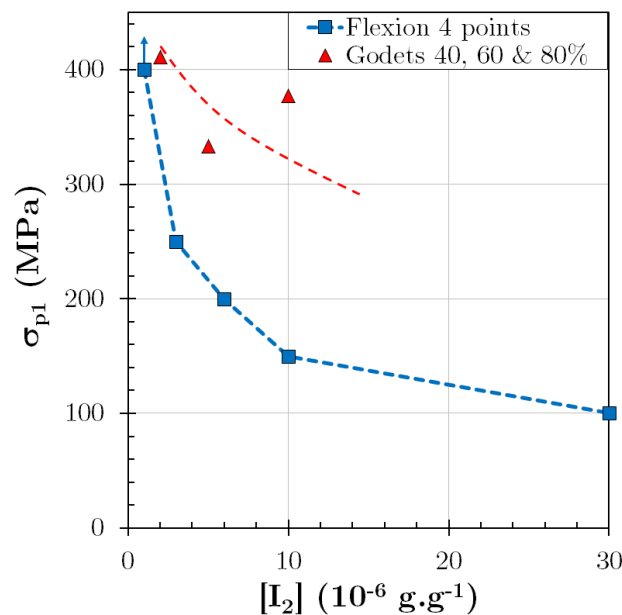


Figure IV.61 : Contraintes principales limites observées à différentes concentrations pour un temps d'exposition au méthanol iodé de 72 h. Les carrés et traits pointillés bleu représentent la frontière établie pour les essais de flexion 4 points. Les rouges, les godets à avalement partiels testés.

On peut se demander si ces estimations numériques sont capables d'expliquer les différences entre les avalements partiels, et notamment pourquoi les godets 60% semblent mieux résister (en termes de concentrations limites et de nombre de fissures) que ceux avec un avalement de 40% et de 80%. Les variations étant importantes en fonction de l'angle autour de l'axe du godet et le modèle n'étant pas forcément pertinent sur l'anisotropie, on s'intéresse aux valeurs moyennes des contraintes circonférentielles mais aussi axiales pour vérifier un éventuel effet de la biaxialité, ainsi que de la déformation plastique équivalente.

Ces valeurs sont regroupées dans le Tableau IV.11. D'après les valeurs de contraintes, les fissures s'amorceraient plutôt en peau externe qu'interne. Cependant, les rapports de biaxialité sont également supérieurs en peau externe. Les essais de traction à faible contrainte et forte déformation ont montré que la biaxialité avait une forte influence sur les contraintes principales à l'amorçage. Là encore un doute subsiste sur le lieu d'amorçage.

Les valeurs rapportées dans le Tableau IV.11 ne permettent pas non plus d'expliquer la meilleure résistance des godets 60% par rapport aux 40% et 80%, à moins d'imaginer un très fort effet de la biaxialité entre 0.21 et 0.27. L'évolution de la déformation plastique moyenne aux lieux potentiels d'amorçage est régulière avec la valeur de l'avallement et n'apportent pas plus d'éclairage.

Les simulations numériques permettent de répondre à la question de la déformation plastique résiduelle. Les couples (contrainte circonférentielle, concentration limite), issus de la Figure IV.60 et du Tableau IV.11, sont comparés à la frontière établie pour les essais de fluage en flexion sur la Figure IV.61. Aux concentrations limites déterminées pour chaque type de godet, la contrainte circonférentielle résiduelle est supérieure à la contrainte limite des essais de flexion. Cela montre que la présence de déformation plastique antérieure à l'exposition n'a pas d'influence négative sur les contraintes seuils à appliquer pour fissurer, ou tout du moins que cette influence est éclipsée par l'effet de biaxialité. On rappelle ici que le rapport de biaxialité lors des essais de flexion est d'environ 0.1 pour des contraintes inférieures à 300 MPa.

On rappelle également que l'état de surface des godets, non quantifié, est bien plus dégradé que celui des éprouvettes de flexion car ils n'ont pas été polis avant emboutissage et des rayures « axiales » ont été faites lors de la mise en forme du fait des frottements. L'impact de l'état de surface sur la concentration limite semble donc limité.

IV.2.3.3.2 Propagation

Les calculs du chapitre précédent ont permis d'estimer le facteur d'intensité des contraintes en fonction de la profondeur pour une seule fissure sur un quart de godet 100% (deux par symétrie sur le godet entier) (Figure III.32). Cette estimation ne prend donc pas en compte la multifissuration du godet. Une autre approximation forte de ce calcul concernait la normalité du front de fissure par rapport à la direction de propagation. Les observations ont montré que les fissures propageaient probablement de biais, et étaient plus profondes en peau externe qu'en peau interne. Les calculs permettent de corroborer ce point puisqu'il apparaît que le facteur d'intensité des contraintes est plus faible en peau interne, et qu'il s'annule de ce côté pour une profondeur d'environ 10 mm.

Malgré les fortes approximations, on utilise ces résultats pour établir les courbes de vitesses de propagation en fonction du facteur d'intensité des contraintes pour les fissures dans les godets dont l'immersion a été suivie par caméra. On a vu que l'avancée (ou profondeur) des fissures en fonction du temps était modélisable par des fonctions exponentielles saturantes. On considère ces fonctions approchées pour décrire l'avancée de chaque fissure

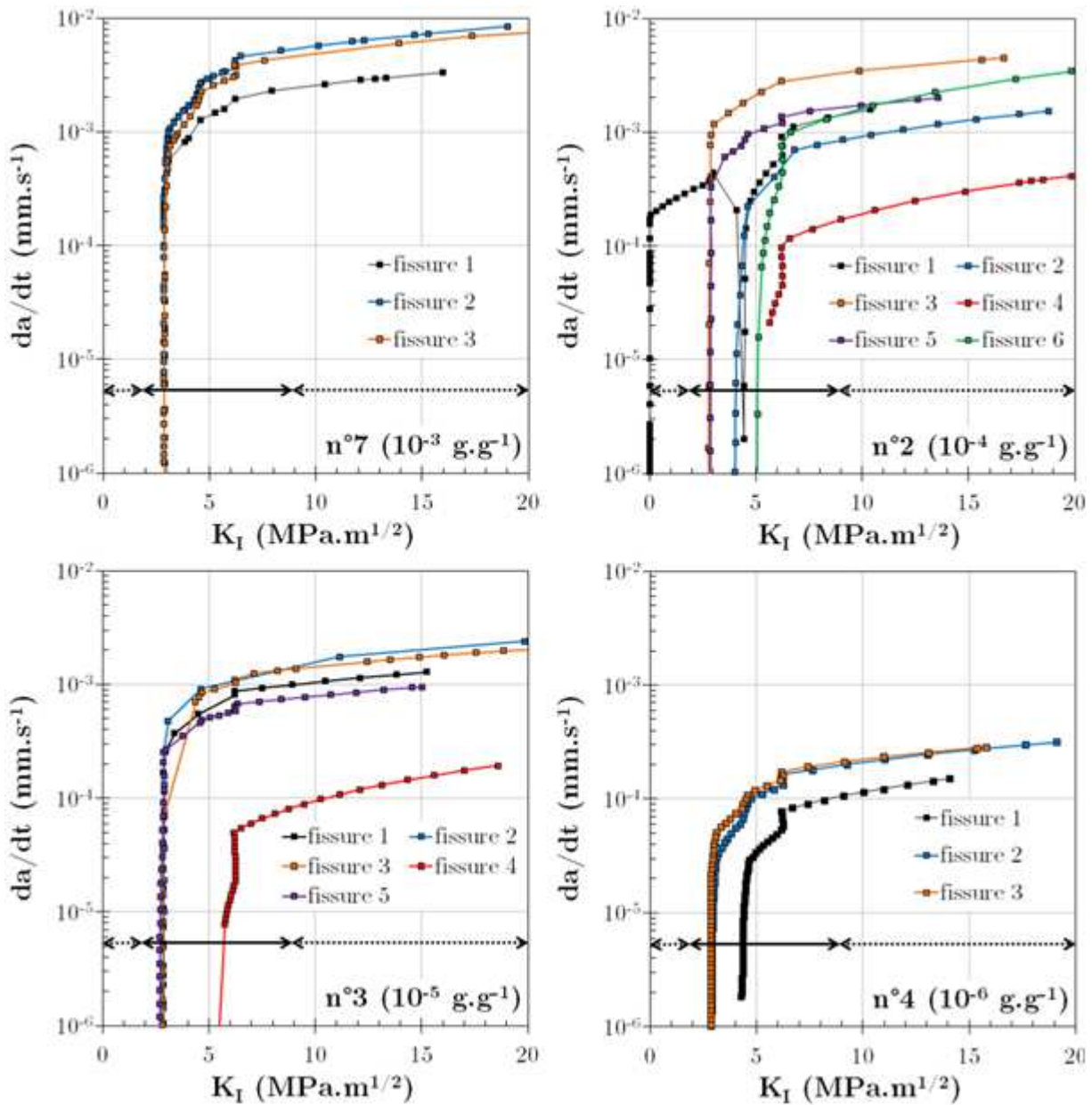


Figure IV.62 : Vitesses de propagation des fissures observées lors du suivi des immersions pour les godets 100% n°7 (10^{-3} g.g^{-1} , en haut à gauche), n°2 (10^{-4} g.g^{-1} , en haut à droite), n°3 (10^{-5} g.g^{-1} , en bas à gauche) et n°4 (10^{-6} g.g^{-1} , en bas à droite). Les doubles flèches continues délimitent l'intervalle où K_I est interpolé à partir des calculs par éléments finis. Au-delà, il est extrapolé (pointillés).

et sa vitesse. La détermination expérimentale de l'avancée des fissures étant approximative, le calcul des vitesses de propagation donne des tendances très saccadées difficilement exploitables. Les fonctions approchées permettent de prendre en compte des évolutions lissées.

Ces courbes ont été établies pour quatre concentrations différentes. Elles sont rassemblées sur la Figure IV.62. Pour chaque fissure dont l'avancée est décrite par une équation similaire à l'équation Eq. IV.9, on calcule sa dérivée. Pour une profondeur donnée, on interpole ou extrapole les valeurs du K_I obtenu par éléments finis. Sur les 17 fissures suivies, 16 ont une longueur finale comprise entre 6 et 12 mm, se traduisant par un seuil en K_I compris entre 3 et 6 $\text{MPa.m}^{1/2}$. Une seule fissure sort du lot, de 24 mm de longueur. Elle correspond à la courbe noire de la Figure IV.54. Le début de sa propagation est

similaire à celui de ses voisines mais stabilisation, la fissuration reprend pour atteindre le fond du godet. Cela se traduit sur les courbes de vitesses par l'existence d'un seuil à $4.5 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ puis d'un redémarrage de la fissuration vers les K_I nuls. Cette fissuration « supplémentaire » est intégralement intergranulaire. Ces courbes seront comparées à d'autres issues de la littérature dans le chapitre suivant. On remarque également la forte augmentation de la vitesse de propagation avec la concentration en iode.

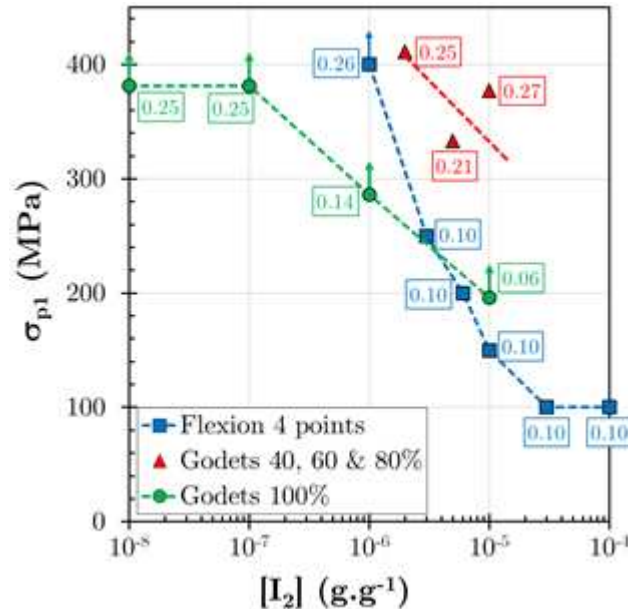


Figure IV.63 : Bornes inférieures de la contrainte principale seuil de fissuration du godet 100% identifiées à partir des calculs par éléments finis de contraintes résiduelles dans des portions après fissuration (points et traits pointillés verts). Comparaison avec les données issues des calculs sur godets à avalements partiels (rouge) et pour les essais de flexion quatre points (bleu). Les rapports de biaxialité pour chacun des points sont donnés dans les encadrés.

IV.2.3.3.3 Après propagation

Pour les raisons évoquées précédemment, il est risqué d'estimer les contraintes à l'amorçage sur les godets 100% à partir des valeurs de contraintes au sommet des godets du fait de leur fabrication. Cela s'applique après emboutissage ou après fissuration. En revanche, on peut s'intéresser aux contraintes résiduelles dans le godet après multifissuration, en dessous du sommet. Pour cela, on utilise les calculs réalisés sur des portions de godets. On rappelle les dimensions de ces dernières : angles Θ de 5.625° (Portion 1), 11.25° (Portion 2) et 22.5° (Portion 3), correspondant respectivement à 32, 16 et 8 fissures uniformément réparties sur un godet.

La Figure IV.56 regroupe le nombre et la répartition des fissures sur les godets 100% testés à différentes concentrations. Du seul point de vue du nombre, la portion 3 peut être reliée aux godets n°9 et n°6, présentant respectivement 8 et 6 fissures, la portion 2 au godet n°4 présentant 15 fissures et la portion 1 au godet n°2 présentant 30 fissures.

Les calculs du chapitre précédent ont montré qu'il restait une contrainte circonférentielle de traction après relâchement des nœuds simulant la fissuration des portions. Ces contraintes sont maximales sur l'inter-fissure en peau externe. S'il subsiste une contrainte de traction sur ces portions sans fissure supplémentaire, c'est qu'elle est inférieure à la contrainte seuil pour une exposition de 72 h à une concentration donnée. Comme cela est montré sur la Figure III.34, un maximum local de contrainte circonférentielle existe à

environ 2.5 mm du sommet du godet. On relève ces valeurs comme borne inférieure de la contrainte seuil et on les place sur un graphique avec les données des essais de traction et des godets à avalement intermédiaires, sur la Figure IV.63. Les valeurs du rapport de biaxialité sont ajoutées pour l'ensemble des données. Les résultats sur godets 100% sont compatibles avec les données des essais précédents, sans superposition parfaite. On remarque également que toutes les contraintes à l'amorçage supérieures à 300 MPa sont associées à des rapports de biaxialité supérieurs à 0.20. Les données à très faibles concentrations ($<10^{-6}$ g.g⁻¹) sont à prendre avec précaution car la répartition des fissures n'est pas uniforme sur les godets et surtout, l'amorçage des fissures.

Mais les résultats sont encourageants étant données les difficultés numériques et les dispersions expérimentales. Des efforts supplémentaires sur ces deux points permettraient d'améliorer la précision des résultats et éventuellement de rapprocher les différentes techniques.

IV.2.4 Conclusions

Les essais présentés dans cette partie ont mis en évidence plusieurs caractéristiques de la fissuration par CSC-I en se plaçant dans le domaine d'élasticité pour découpler les effets de contrainte et déformation plastique.

Les essais de flexion quatre points ont prouvé que la plasticité n'est pas nécessaire à l'amorçage de fissures ; une contrainte seule suffit, même si elle ne dépasse pas 25% de la limite d'élasticité et que la concentration en iode est inférieure à la concentration de transition. Le suivi de ces essais par caméra a montré que le temps de fissuration n'excédait pas 20 min pour un temps total à rupture pouvant dépasser 80 h. L'influence de la contrainte sur le temps à rupture et donc sur le temps à l'amorçage a été déterminée : ces derniers décroissent de façon exponentielle vers un temps minimal proche de 5 h quand la contrainte augmente. Les différentes conditions expérimentales ont permis d'observer l'influence de la concentration sur les contraintes à rupture (établissement du domaine de rupture). Un aspect similaire aux domaines de fissuration décrits pour les essais de traction à vitesse de déformation imposée a été mis en évidence avec la présence d'une concentration limite proche de 10^{-6} g.g⁻¹, d'un plateau de sollicitation mécanique menant à rupture (contrainte seuil proche de 100 MPa) et d'une concentration de transition comprise entre 3 et 6 entre 10^{-4} g.g⁻¹, au-delà de laquelle les éprouvettes rompent pour une contrainte inférieure à 40 MPa, soit moins de 10% de la limite d'élasticité. Les différences avec les essais de traction uniaxiale à vitesse de déformation imposée montrent clairement l'effet délétère de la déformation plastique active lors de l'exposition au milieu corrosif sur l'amorçage des fissures de CSC-I.

Ces résultats ont été confirmés par la réalisation d'essais de fluage à faible contrainte et forte concentration sur des éprouvettes de traction lisses et entaillées. L'analyse des lieux de rupture couplée aux calculs par éléments finis a montré que la biaxialité des contraintes avait un effet bénéfique sur la sensibilité à l'amorçage des fissures dans le domaine élastique ; cet effet pouvait même être plus important dans le domaine élastique que dans le domaine plastique. Les changements de lieu de rupture quand la contrainte appliquée est augmentée montrent aussi la très forte influence de la plasticité active lors de l'exposition au méthanol iodé sur l'amorçage des fissures.

Les godets emboutis ont été initialement utilisés pour déterminer l'influence de la déformation plastique accumulée avant exposition au milieu agressif sur l'amorçage des fissures. Les godets à avalement total (100%) présentent de longues fissures à des concentrations 100 fois plus faibles que la concentration limite de 10^{-6} g.g⁻¹ identifiée sur les

autres essais. Si l'amorçage précoce peut être relié aux conditions de fabrication du godet, cela montre néanmoins que la propagation des fissures peut se faire bien en deçà des concentrations limites pour l'amorçage. L'augmentation de la concentration en iode favorise l'amorçage des fissures et augmente également leur vitesse de propagation. Les simulations numériques ont permis d'exploiter ces essais en calculant les contraintes résiduelles après emboutissage et après fissurations. L'existence de concentrations limites comprises entre 10^{-5} g.g⁻¹ et 10^{-6} g.g⁻¹ pour les godets à avalements partiels, du même ordre de grandeur des celles trouvées sur les domaines de fissurations des éprouvettes lisses et sur le domaine de rupture des éprouvettes de flexion, montre que la déformation plastique résiduelle n'a pas d'impact sur cette limite. Les godets à avalement total présentent des amorçages très rapides, comparables aux essais avec plasticité active. Cependant l'état du matériau au niveau des sites d'amorçage n'est pas représentatif. L'absence de suivi de la fissuration des godets à avalements partiels ne permet pas de conclure à un amorçage prématuré causé par une déformation plastique résiduelle. Les facteurs d'intensité des contraintes K_I en pointe de fissure ont été calculés pour des fissures sur des godets 100% et les courbes de vitesses de propagation en fonction de K_I ont été établies. Elles ont une allure classique et montrent un seuil en K_I compris entre 3 et 5 MPa.m^{1/2}.

L'ensemble des résultats de ce chapitre va être synthétisé et discuté dans le chapitre suivant à partir des données disponibles dans la littérature.

Chapitre V : Analyse des résultats et essais complémentaires

Introduction

Dans ce chapitre, les résultats des essais de CSC-I sont discutés et comparés à ceux de la littérature. L'influence de chaque paramètre est analysée, indépendamment des autres lorsque cela est possible. A partir de ces résultats et des mécanismes proposés dans la littérature, des expériences complémentaires ont été réalisées et sont détaillées ici. Cette démarche conduira à discuter des mécanismes et à s'orienter vers celui qui nous paraît le plus probable.

V.1 Analyse des résultats

V.1.1 Synthèse de la démarche adoptée

En premier lieu, on rappelle la démarche de l'étude et on replace les différents essais les uns par rapport aux autres.

L'objectif initial de ce travail est de déterminer dans quelles conditions mécaniques les fissures de CSC-I s'amorcent en milieu méthanol iodé à température ambiante. Pour cela, des essais de traction à vitesse de déformation imposée de 10^{-4} s^{-1} , interrompus, ont été réalisés pour encadrer les déformations plastiques d'apparition des fissures. La direction d'étude choisie est la direction transverse du feuillard, s'apparentant à la direction circonférentielle de la gaine, qui est souvent considérée comme la direction principale de la sollicitation. Cette analyse a été réalisée pour plusieurs concentrations en iode dans l'intervalle $10^{-6} - 10^{-3} \text{ g.g}^{-1}$ et de forts effets de concentration ont été mis en évidence (seuil et transition). On utilise alors le terme de domaine de fissuration pour désigner les déformations d'amorçage des fissures en fonction de la concentration en iode, pour une vitesse de sollicitation donnée.

Si les programmes internationaux d'études en rampe de puissance des crayons combustibles tendent à estimer la vitesse de sollicitation de la gaine par la pastille à 10^{-4} s^{-1} (Adamson 2006), les régimes transitoires et la viscosité de la gaine nécessitent une étude de la CSC-I avec d'autres chargements, et donc notamment à différentes vitesses. Pour cela, les domaines de fissuration des vitesses 10^{-3} s^{-1} et 10^{-5} s^{-1} ont également été déterminés. Les effets de vitesse sur les différentes parties des domaines ont alors été mis en évidence.

L'effet de la biaxialité des contraintes sur l'amorçage des fissures a aussi été étudié. Comme nous ne disposons que de feuillards pour cette étude, les pistes des éprouvettes en croix ou entaillées ont été explorées pour induire de la biaxialité. Des calculs préliminaires par éléments finis ont montré la grande difficulté de localiser de la déformation plastique au milieu des croix. Comme nous ne disposons pas non plus de machine dédiée pour ces

éprouvettes, cette piste a été écartée au profit des éprouvettes entaillées qu'il est possible de tester sur une machine de traction standard. Mais les champs mécaniques de ces éprouvettes sont fortement hétérogènes et la simulation numérique est nécessaire pour analyser ce type d'essais. Un modèle de comportement mécanique macroscopique, viscoplastique et anisotrope, a été développé dans cette optique. Avec un formalisme relativement simple, il permet d'estimer correctement contraintes et déformations.

Pour étudier différents taux de biaxialité, il est nécessaire d'utiliser différentes géométries d'éprouvettes et donc de multiplier les essais. Il a alors été choisi de se placer à une concentration et une vitesse de déformation macroscopique données. Les quatre géométries retenues permettent d'explorer l'effet du rapport entre la contrainte dans la direction de laminage et la contrainte dans la direction transverse dans l'intervalle $[0, 0.5]$. En réacteur, l'IPG peut mener à des rapports allant jusqu'à 1 (Gittus 1972). Ces essais sur éprouvettes entaillées ont été réalisés dans le domaine plastique, comme les essais sur éprouvettes lisses précédents. Du fait de l'hétérogénéité des champs mécaniques, l'étude des différentes vitesses de sollicitation est utile pour découpler l'effet de vitesse des autres contributions. Les résultats obtenus montrent un fort effet de la biaxialité sur l'amorçage des fissures intergranulaires.

Dans la littérature, l'effet de la biaxialité des contraintes est très souvent rapporté à un effet de la direction de la contrainte principale par rapport aux plans de base car la propagation transgranulaire des fissures dépend fortement de la texture. Peu de données sont disponibles sur l'amorçage intergranulaire. Pour écarter un simple effet d'orientation ou d'anisotropie de comportement, le domaine de fissuration à 10^{-4} s^{-1} dans la direction de laminage a été déterminé et il est apparu très proche de celui de la direction transverse.

A partir de ces expériences, un modèle d'amorçage a été proposé en considérant la contrainte principale comme le moteur de l'endommagement, du fait de l'orientation des fissures, de l'effet de biaxialité observé et de la possibilité de rompre sans plasticité aux fortes concentrations en iode. Ce modèle phénoménologique permet de retrouver les domaines de fissuration identifiés.

Les données de la littérature montrent l'importance de la déformation plastique sur l'amorçage des fissures, mais également la possibilité de rompre des éprouvettes sollicitées à une fraction ($> 50\%$) de la limite d'élasticité. Il est alors apparu important d'essayer de démêler les effets de contrainte et de plasticité sur l'amorçage des fissures. Pour cela, des essais de flexion quatre points ont été menés, pour des contraintes comprises entre 40 et 400 MPa. Ces essais ont permis de montrer qu'il était possible de rompre des éprouvettes en l'absence de plasticité, mais pour des durées bien plus longues que ceux des essais de traction. L'amorçage des fissures lors de la détermination des domaines de fissuration et de l'étude de la biaxialité serait principalement lié à la déformation plastique.

Des essais de fluage en traction et forte concentration en iode ont montré que l'effet de biaxialité observé n'était pas uniquement lié à la plasticité mais se manifestait également dans le domaine d'élasticité. L'atténuation progressive de cet effet protecteur en augmentant la charge appliquée montrerait que la plasticité active le court-circuite par la création de site d'amorçage.

Initialement, les immersions de godets emboutis en milieu méthanol-iodé avaient comme seul but de vérifier si l'on pouvait amorcer et propager des fissures de CSC-I avec de fortes contraintes résiduelles et en l'absence de plasticité active. Cela est clairement le cas et a été analysé plus en détails à l'aide des essais de flexion quatre points. Devant les résultats obtenus sur les godets, et notamment l'observation de la propagation de fissures sur plus de 10 mm en moyenne, il a été décidé d'utiliser la simulation numérique pour analyser ces pièces embouties. Les mesures de contraintes résiduelles sur godets 100% ont montré que les

prédictions des simulations n'étaient pas absurdes, malgré les lacunes du modèle de comportement aux fortes déformations (Chapitre III). Le calcul des contraintes résiduelles sur les godets à avalements partiels permet d'étudier l'influence d'une pré-déformation plastique sur l'amorçage des fissures. Une technique de relâchement de nœuds pour simuler la fissuration des godets à avalement total a permis d'estimer le facteur d'intensité des contraintes en pointe de fissure K_I et de tracer l'évolution de la vitesse de propagation en fonction de K_I .

A. Serres a mis en évidence dans sa thèse les changements de mode de déformation du Zircaloy-4 recristallisé induits par l'irradiation aux protons et leur conséquence sur la sensibilité à la CSC-I pour des essais de traction lente à faible concentration (Serres 2008). La même approche a été adoptée dans cette étude pour approfondir ces résultats. La sensibilité à la CSC-I a été étudiée à différentes vitesses de déformation et pour différentes concentrations, dans les mêmes conditions que le matériau non irradié. Un effet de vitesse et un effet de la concentration sur l'amorçage des fissures ont pu être mis en évidence.

A partir de cette large base d'essais, le rôle de chaque paramètre influant (mécanique, environnemental ou microstructural) sur l'amorçage des fissures de CSC-I va être discuté et comparé avec les données de la bibliographie.

V.1.2 Analyse et comparaison des résultats avec la bibliographie

V.1.2.1 Influence de la concentration

De par la nature du phénomène d'endommagement, la concentration en iode a un impact très fort sur tous les aspects de la fissuration. Comme cela a déjà été dit, en méthanol iodé, il est peu probable qu'une compétition avec l'oxydation existe.

Dans cette étude, une attention particulière a été portée à déterminer l'influence de la concentration en iode, menant à la réalisation d'un nombre d'essais très important de traction et de flexion entre 10^{-6} et 10^{-3} g.g⁻¹. Une forme complexe des domaines de fissuration et de rupture a ainsi été mise en évidence : présence d'une concentration seuil I_0 en dessous de laquelle il n'y a pas d'amorçage de fissure de CSC-I suivie d'un intervalle en concentration où l'ajout d'iode ne semble plus avoir d'effet sur la résistance à l'amorçage ou à rupture. En augmentant encore plus la concentration, une chute de cette résistance est observée au passage d'une concentration de transition I_1 . Les essais de flexion ont permis de définir I_0 et I_1 de façon plus objective que les essais de traction car le temps d'essais, la vitesse de chargement et la présence de plasticité n'interviennent pas (Figure IV.42). La concentration seuil I_0 est égale à 10^{-6} g.g⁻¹ et le domaine de saturation intermédiaire en iode s'étend de $3 \cdot 10^{-5}$ g.g⁻¹ à $I_1 = 4 \cdot 10^{-4}$ g.g⁻¹.

Les différentes études accessibles dans la bibliographie ne rapportent pas l'existence de concentrations seuils en méthanol iodé à température ambiante. Des essais de traction lente ($< 5 \cdot 10^{-6}$ s⁻¹) entre 3 et $8 \cdot 10^{-6}$ g.g⁻¹ sur Zircaloy-4 recristallisé et zirconium mènent à une fissuration (Jacques 1994; Fregonese 1997). A 10^{-5} s⁻¹, Serres n'observe pas de fissures sur ses échantillons entre 1 et $6 \cdot 10^{-6}$ g.g⁻¹ alors que Munch en observe à $5 \cdot 10^{-6}$ g.g⁻¹ (Munch 2004; Serres 2008). Le domaine de fissuration à 10^{-5} s⁻¹ identifié dans cette étude (Figure IV.6) montre également l'absence de fissuration à ces concentrations, avec une concentration seuil proche de 10^{-4} g.g⁻¹, bien supérieure à celle des essais plus rapides. On mettrait en évidence une chute de sensibilité à cette vitesse, mais seulement du point de vue de la concentration seuil et pas des déformations à l'amorçage pour des concentrations supérieures.

Une chute brutale des propriétés du Zircaloy-4 recristallisé en méthanol iodé à température ambiante n'est pas mise en évidence dans la littérature, car peu d'études font varier significativement la concentration en iode et, d'une étude à l'autre, la concentration peut être très différente (de 10^{-6} à $2 \cdot 10^{-1}$ g.g⁻¹). Munch, à 10^{-5} s⁻¹, observe que la déformation à rupture passe de 17.5% à 14.6% puis à 3.1% quand la concentration varie de $5 \cdot 10^{-6}$ à $1.2 \cdot 10^{-5}$ puis 10^{-4} g.g⁻¹ (Munch 2004). A cette dernière concentration et à la même vitesse, l'un de nos échantillons a rompu pour 7.46% de déformation plastique. Pour Jacques, tous les essais réalisés à plus de 10^{-5} g.g⁻¹ mènent à des ruptures en l'absence de plasticité macroscopique (Jacques 1994). Les différences de sensibilité d'une étude à l'autre sont donc très importantes et ne permettent pas de comparer quantitativement les résultats. Les résultats de fissuration ou rupture de la littérature suggèrent que les échantillons utilisés ici ont une plus faible sensibilité à l'amorçage par CSC-I, à l'exception de ceux d'Hirao (Hirao 1988). La préparation de surface est peut-être responsable de ce résultat.

A 66°C en méthanol bouillant, Elayaperumal observe une baisse du temps à rupture d'éprouvettes de Zircaloy-2 recristallisé sollicitées à 221 MPa (75% de la limite d'élasticité), passant de 4.1 h à 0.8 h quand la concentration augmente de $2.5 \cdot 10^{-5}$ à $1.9 \cdot 10^{-4}$ g.g⁻¹ (Elayaperumal 1972). Le temps à rupture diminue avec la concentration en iode sur tout le domaine testé, mais ces deux valeurs semblent délimiter une accélération de la diminution. Un balayage plus fin des concentrations aurait peut-être permis de mettre en évidence une rupture franche.

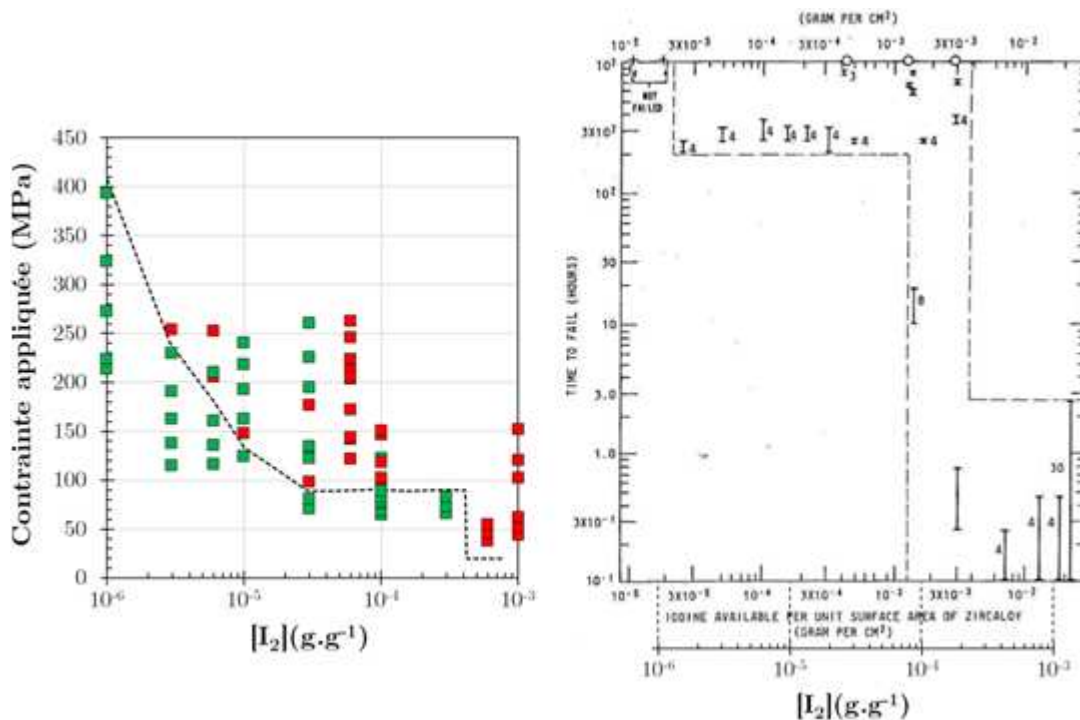


Figure V.1 : Observation d'une chute au-delà d'une concentration de transition: à gauche, domaine de rupture identifié sur les essais de flexion quatre points en méthanol iodé dans cette étude. A droite, évolution du temps à rupture en fonction de la concentration pour des anneaux en Zircaloy-2 écroui ouverts à une contrainte de 310 MPa, en iode vapeur à 300°C (Wood 1972). Rajout d'un axe de concentration équivalente en g.g⁻¹ à partir des estimations précisées dans le texte. Les concentrations seuil et de transition sont équivalentes dans les deux cas.

Wood a étudié la CSC-I de différents Zircaloy en iode vapeur à 300°C, et notamment l'effet de la concentration en iode, en ouvrant des anneaux jusqu'à la limite d'élasticité (Wood 1972). Il observe une évolution similaire à ce que l'on a vu : existence d'une concentration

seuil suivie d'un plateau de saturation apparente sur plus d'une décade de concentration et chute du temps à rupture au-delà d'une concentration seuil (Figure V.1). Un point intéressant, pouvant n'être qu'une pure coïncidence, est l'équivalence des concentrations utilisées avec celle en méthanol : dans les essais de Wood, 20 mg.cm^{-2} correspondent à 4 mg.cm^{-3} . D'après Goryachev, une concentration volumique de 0.1 mg.cm^{-3} correspond à une pression partielle en iode de 900 Pa (Goryachev 1992). En termes d'atomes par unité de volume, Jacques estime qu'une pression partielle en iode de 1300 Pa correspond à une concentration de $4 \cdot 10^{-5} \text{ g.g}^{-1}$ en méthanol iodé (Jacques 1999a). Ainsi la concentration seuil déterminée par Wood ($\sim 0.03 \text{ mg.cm}^{-2}$) serait équivalente à $1.7 \cdot 10^{-6} \text{ g.g}^{-1}$ en méthanol iodé et la concentration de transition (2 mg.cm^{-2}) à $1.1 \cdot 10^{-4} \text{ g.g}^{-1}$, très proches des valeurs trouvées ici. Cette équivalence est assez surprenante et doit être prise avec précaution, la thermochimie étant sûrement très différente entre 25 et 300°C . Hofmann a, quant à lui, étudié l'influence de la concentration notamment sur la déformation à rupture, par des essais en pression interne sur tubes de Zircaloy-4 entre 700 et 900°C (Hofmann 1982). A 700°C , il a mis en évidence une concentration critique de 1 mg.cm^{-3} au-delà de laquelle les déformations à rupture chutent drastiquement. Cette concentration correspondrait à $2.8 \cdot 10^{-4} \text{ g.g}^{-1}$ en méthanol iodé, valeur peu éloignée de la concentration I_1 trouvée.

Les domaines de fissuration et de rupture ont mis en évidence l'influence de la concentration sur l'apparition de la première fissure de CSC-I. On a également pu déterminer l'influence de la concentration sur la densité et la longueur en surface des fissures pour une déformation plastique donnée proche de 3% et pour une vitesse de 10^{-4} s^{-1} (Figure IV.9). La densité de fissures augmente exponentiellement avec le logarithme de la concentration alors que l'évolution est plus linéaire pour la longueur de fissure. On passe ainsi d'une densité de 2 à 26 mm^{-2} entre $6 \cdot 10^{-5}$ et 10^{-3} g.g^{-1} . La longueur moyenne est doublée pour atteindre $35 \mu\text{m}$. Pour Jacques, l'effet de la concentration sur la densité de fissures sur du zirconium, exprimée en fonction de la déformation *locale*, est bien plus important : la densité peut être multipliée par 8, à 80 mm^{-2} , quand la concentration est seulement multipliée par 2, à $8 \cdot 10^{-6} \text{ g.g}^{-1}$ (Jacques 1999a). Il constate également que la taille moyenne des fissures passe de $50 \mu\text{m}$ à moins de $20 \mu\text{m}$. Ce résultat pourrait s'expliquer par les différences de techniques de détection des fissures. Une augmentation de la concentration multiplierait les amorces, et notamment de petites tailles, pouvant ainsi entraîner une apparente diminution de la longueur moyenne. Dans son étude et la nôtre, les fissures sont détectées par microscope optique, au même grossissement ($\times 500$). Le polissage électrolytique utilisé par Jacques rendrait éventuellement les amorces plus visibles.

Comme cela a été dit dans le chapitre I, une augmentation de la concentration en iode favoriserait la fissuration intergranulaire (IG). Les fissures de godets à avalement total abondent dans ce sens. Aux très faibles concentrations, 10^{-8} et 10^{-7} g.g^{-1} , l'augmentation de concentration accroît la proportion d'IG sur le faciès de rupture. Pour une augmentation plus importante, la fissuration transgranulaire (TG) est également fortement favorisée mais on remarque qu'il est alors possible d'obtenir une fissuration totalement intergranulaire en fin de propagation sur plusieurs millimètres dès 10^{-6} g.g^{-1} . En dessous, la fissure pouvait s'arrêter en étant TG sans repasser IG. Ce résultat est intéressant, et a été obtenu notamment par l'originalité de l'essai sur godets : la fissure propage à K_I décroissant, les contraintes résiduelles sont plus faibles en bas du godet et se relaxent avec l'avancée de la fissure. Cela mettrait en évidence qu'une concentration limite est nécessaire pour la fissuration IG et qu'elle est plus importante que la concentration limite de la fissuration TG. Il est également apparu que la concentration augmentait les vitesses de propagation. Ce point sera développé dans le paragraphe dédié à la propagation des fissures, comme pour l'influence sur les facteurs d'intensité de contrainte seuils et de transition.

Le changement de morphologie des fissures, illustré sur la Figure IV.14, soutient cette analyse concernant la fissuration intergranulaire. Si la profondeur des zones intergranulaires

n'est que peu modifiée sur les essais de traction à rupture à 10^{-5} s^{-1} pour des concentrations comprises entre $6 \cdot 10^{-5}$ et 10^{-3} g.g^{-1} , leur largeur est multipliée par 2 pour aboutir à une forme semi-circulaire. L'activation de la fissuration intergranulaire, qui est très probablement liée à une dissolution des joints de grains, par la concentration pourrait expliquer la chute des déformations à l'amorçage au-delà de la transition.

Mais on observe également un changement de la forme des fissures en surface quand la concentration augmente, si l'on peut encore parler de fissures. La Figure IV.7 montre les défauts de surface engendrés par la CSC-I sur des éprouvettes lisses de sens L sollicitées à 10^{-4} s^{-1} . A moyenne concentration (10^{-4} g.g^{-1}), il s'agit bien de fissures fines. A forte concentration (10^{-3} g.g^{-1}), on observe plutôt des défauts massifs, ressemblant à des piqûres de corrosion, à partir desquels les fissures vont s'amorcer. L'amorçage anticipé au-delà de la concentration de transition pourrait également être causé par une déstabilisation de la couche d'oxyde. On mettrait ainsi en évidence la frontière entre fissuration et corrosion par piqûres, qui est peu connue et supposée étroite (Cox 1990a). Le terme de piqûres n'est peut-être pas le plus adapté, car sur les faciès de rupture, on ne distingue pas de zone particulièrement plus attaquée que les autres sur laquelle la fissure s'est amorcée. Il pourrait simplement s'agir d'une dissolution accélérée des joints autour d'un grain donné.

Avec les essais réalisés jusque-là il est difficile de voir dans quelle mesure le premier ou le second des deux effets activés par la concentration (dissolution intergranulaire et déstabilisation de l'oxyde) est le principal responsable de la transition observée. Dans la seconde partie de ce chapitre, des expériences complémentaires seront réalisées pour tenter de répondre à cette question.

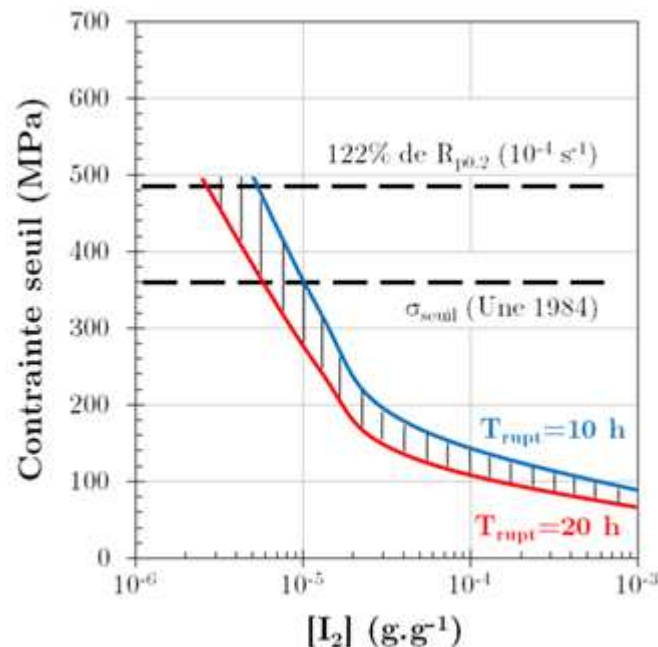


Figure V.2 : Contrainte seuil en fonction de la concentration en iode, estimée à partir des évolutions lissées et extrapolées des temps à rupture des essais de flexion en méthanol iodé, pour une durée de 10 h (bleu) et de 20 h (rouge). Ajout de la contrainte seuil prédite par la formule de Une, établie à partir de plusieurs études en iode vapeur (Une 1984).

V.1.2.2 Influence de la contrainte

L'influence de la contrainte sur la CSC-I, en l'absence de plasticité active, a pu être étudiée grâce aux essais de flexion quatre points sur toute l'étendue des concentrations et grâce aux essais de fluage en traction à faible force et à forte concentration en iode. Ces essais ont montré qu'il était possible d'amorcer et propager des fissures de CSC-I par les seules contraintes, et qu'on pouvait alors obtenir des faciès de rupture presque 100% IG. De telles ruptures sans propagation transgranulaire en méthanol iodé avaient déjà été observées par Cox sur des éprouvettes U-bend en Zircaloy-2 recristallisé entre 10^{-4} et 10^{-2} g.g⁻¹, mais les contraintes appliquées n'étaient pas précisées (Cox 1972). Les observations MEB n'étaient pas systématiques pour les essais de flexion, mais un faciès 100% IG a été observé pour une contrainte appliquée de 260 MPa à $2 \cdot 10^{-4}$ g.g⁻¹. Il serait intéressant d'étendre les observations à tous les échantillons de flexion, malgré leur nombre, pour confirmer ou infirmer ce fait.

L'influence de la contrainte a été mise en évidence à la fois sur le domaine de rupture rappelé sur la Figure V.1 mais également par l'évolution des temps à rupture en fonction de la contrainte pour différentes concentrations (Figure IV.46). Une décroissance exponentielle du temps à rupture avec la contrainte a été montrée, avec une sensibilité dépendant fortement de la concentration en iode. Ces courbes montrent également que la contrainte seuil est une notion très relative : par exemple, sur nos essais de flexion, à $6 \cdot 10^{-5}$ g.g⁻¹, selon que le temps d'essai maximal est fixé à 10 h ou 70 h, on peut estimer respectivement une contrainte limite de 260 ou 100 MPa. Pour une durée d'essais d'environ 72 h, on trouve que la contrainte limite au-delà de la transition est proche de 40 MPa (10% de la limite d'élasticité) et de 90 MPa sur le plateau de concentration (23% de la limite d'élasticité) (Figure V.1).

La détermination de l'influence de la contrainte permet une comparaison en méthanol iodé et iode vapeur. Dans sa revue des valeurs seuils de la CSC-I en iode vapeur, Une a mis en évidence une relation entre contrainte seuil σ_{seuil} et limite d'élasticité σ_y (Figure I.20) qui définissait une tendance que l'ensemble des matériaux semblait respecter (différents alliages, états métallurgiques et doses d'irradiation) (Une 1984):

$$\sigma_{seuil} = 1.59 \cdot \sigma_y - 0.00172 \cdot \sigma_y^2 \quad \text{Eq. V.1}$$

Cette contrainte seuil est définie pour des temps à rupture compris entre 10 et 20 h. En appliquant cette formule sur notre matériau, dont la limite d'élasticité est d'environ 400 MPa, on obtiendrait une contrainte seuil de 380 MPa. Cette valeur est comparée à celles prédites par les essais de flexion sur la Figure V.2, à différentes concentrations. Elle n'apparaît valable que sur un faible intervalle de concentrations, entre $6 \cdot 10^{-6}$ et 10^{-5} g.g⁻¹. Cet intervalle serait alors représentatif des conditions en iode vapeur, du seul point de vue de la contrainte limite. Si l'on détaille plus les données fournies par Une, on se rend compte que la contrainte seuil des alliages recristallisés est en moyenne 22% supérieure à leur limite élastique pour des temps à rupture compris entre 10 et 20 h. L'intervalle représentatif serait alors délimité par 2.5 et $5.5 \cdot 10^{-6}$ g.g⁻¹. Mais les déformations à rupture sont très différentes entre les deux milieux comparés: elles sont faibles en iode vapeur (<2% (Une 1984)) et très importantes en méthanol iodé. A $5 \cdot 10^{-6}$ g.g⁻¹, Munch et Fregonese trouvent respectivement des allongements à rupture de 17.5% (28% sans iode) et 24% (39% sans iode) (Fregonese 1997; Munch 2004). Dans cette étude, aucune fissure n'est observée pour 8% de déformation plastique à 10^{-5} g.g⁻¹. On ne peut donc pas comparer directement méthanol iodé et iode vapeur : différents paramètres ne le permettent pas (température, teneur en oxygène, nature de l'iode dans le milieu, comportement mécanique des échantillons...).

Dans l'ensemble des essais réalisés ici sur matériau non irradié, les fissures fragiles se sont toujours développées perpendiculairement à la contrainte principale, que ce soit pour des

sollicitations uniaxiales (Figure IV.8) ou biaxiales (Figure IV.21, Figure IV.50 et Figure IV.53). Cela est en accord avec les données de la bibliographie pour les deux milieux d'études (§ I.3.2). Cela reste vrai en présence ou en l'absence de plasticité active. Le développement des fissures semble donc contrôlé par la contrainte principale macroscopique. Ce serait particulièrement le cas pour la partie intergranulaire de la fissuration. Pour Schuster, une augmentation de contrainte de 300 à 400 MPa peut multiplier par 5 la vitesse de fissuration intergranulaire, à 25 nm.s^{-1} (Schuster 1989b). Elayaperumal a établi que l'application d'une contrainte (75% de la limite d'élasticité) multipliait par 10 la perte de masse des éprouvettes (Elayaperumal 1972). Le suivi des essais de fluage en flexion (une photographie toutes les cinq minutes) ne permet pas de mesurer de tels effets. En revanche, la fissuration ne semble pas prendre plus de 20 minutes ; le temps à rupture est donc très proche du temps à l'amorçage.

Les évolutions que l'on a pu mettre en évidence ici concernent donc l'effet de la contrainte et de la concentration en iode sur la déstabilisation de la couche d'oxyde en l'absence de plasticité active (on n'envisage pas de plasticité à 25% de la limite d'élasticité).

Se pose alors la question de savoir comment la couche d'oxyde est déstabilisée en l'absence de déformation plastique. Parmi les modes de déstabilisation observés expérimentalement, la littérature cite l'apparition d'une piqûration en surface. Rozhnov a testé des portions de tubes de divers alliages en traction circonférentielle (par insertion d'un mandrin conique dans un média placé dans les tubes) à 80% de la limite d'élasticité, en milieu méthanol iodé à 10^{-2} g.g^{-1} et à température ambiante (Rozhnov 2010). Par des expositions de 8 h au milieu corrosif, avec ou sans contrainte, il a montré que la présence des piqûres de corrosion, précurseurs des fissures de CSC-I, nécessitait forcément l'application d'une contrainte. L'observation d'un temps minimal d'amorçage d'environ 5 h sur nos essais de flexion appuierait cette hypothèse. Mais l'observation au microscope optique de quelques amorces de CSC-I sur des éprouvettes de flexion rompues ne permet pas de montrer une activation de la piqûration.

L'une des expériences complémentaires présentée dans la seconde partie de ce chapitre consistera en l'immersion sans contrainte d'échantillons pour déterminer si la contrainte a une influence sur ce mode d'endommagement.

V.1.2.3 Influence de la déformation plastique

Les différents essais de CSC-I présentés au chapitre précédent ont permis de mettre en évidence l'importance de la plasticité sur l'amorçage des fissures. Il a été montré que la contrainte seule pouvait endommager le matériau, mais pour des temps minimaux de plusieurs heures. A 10^{-3} s^{-1} , une déformation plastique de 4% est atteinte en une cinquantaine de secondes et mène à une fissuration en présence d'iode. On a donc deux modes d'amorçages distincts en compétition.

Même si des ruptures sans plasticité sont observées lors de nos essais, la notion de déformation seuil à l'amorçage n'est pas nécessairement obsolète. Est-ce qu'une déformation plastique de 0.001% déclenche l'amorçage ou est-ce plutôt 1% ?

Les essais de fluage sur éprouvettes de traction entaillées ont montré que l'activation de la plasticité ($>0.01\%$) dans les entailles menait à un changement de localisation de la rupture (§ IV.2.2).

Les domaines de fissuration identifiés sur les essais de traction lisse à vitesse de déformation imposée (Figure IV.6) montrent des résultats dispersés à très forte concentration (10^{-3} g.g^{-1}). Pour les essais de direction T, la déformation plastique seuil est supérieure à 0.12% (10^{-5} s^{-1})

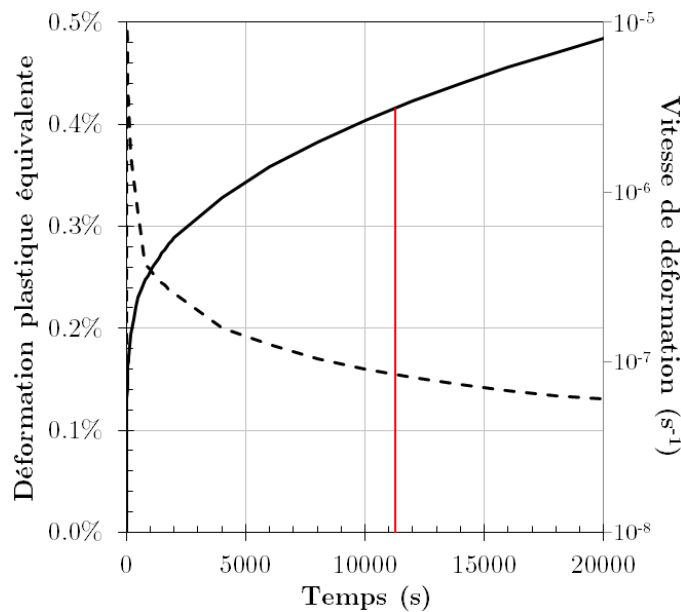


Figure V.3 : Niveau (ligne continue) et vitesse (pointillés) de déformation plastique prédits par la simulation numérique d'un essai de flexion quatre points à forte contrainte (variant de 400 à 430 MPa avec le temps). La ligne rouge indique le temps minimal à rupture (3 heures) observé sur ce type d'essais.

et 0.59% (10^{-4} s^{-1}) et inférieure à 0.56% (10^{-3} s^{-1}). Pour la direction L à 10^{-4} s^{-1} , elle est inférieure à 0.15%. Sur les plateaux, les niveaux de déformation plastique à l'amorçage sont bien plus grands, entre 1 et 4% selon la vitesse de déformation. L'influence de la vitesse sur ces plateaux (discutée dans le paragraphe suivant) est trop importante pour conclure sur une éventuelle déformation seuil.

Les essais de flexion quatre points permettent également d'avoir une idée de l'ordre de grandeur d'une éventuelle déformation plastique seuil. L'étude des temps à rupture en fonction de l'amorçage (Figure IV.43) montre que, pour des contraintes comprises entre 100 et 300 MPa, il y a un temps minimal à rupture d'environ 5 h, valable pour les différentes concentrations utilisées. Ces essais ne mènent pas à la plastification des éprouvettes (§ III.3.2). Pour les quelques essais réalisés à plus de 400 MPa (avant les modifications du montage), et qui mènent à la plastification (Figure III.17), on observe une accélération de la CSC-I et donc une diminution du temps à rupture vers environ 3 h. Les simulations numériques présentées au Chapitre III permettent d'évaluer la déformation plastique pour ces essais. Les résultats sont retracés sur la Figure V.3. La déformation plastique, évaluée au bout de 3 heures, est d'environ 0.42% pour une vitesse proche de 10^{-7} s^{-1} .

Ces valeurs mises à jour sont proches des déformations limites de la littérature en iode vapeur et notamment celles compilées par Une (Une 1984). Selon les études, sur matériaux détendus ou écrouis, cette déformation *plastique* est comprise entre 0.3% et 1%. Verhaeghe rappelle qu'une déformation *totale* de 0.4% est suffisante pour rompre une couche d'oxyde épaisse de 1 à 3 μm (Verhaeghe 1997). Les déformations plastiques minimales menant à un amorçage anticipé, trouvées sur nos essais, sont cohérentes avec l'idée de l'existence d'une dépassivation du matériau qui serait principalement mécanique, via la déformation plastique. Cette dépassivation « court-circuiterait » celle liée uniquement à la contrainte et la concentration du milieu, mise en évidence dans le paragraphe précédent.

Ce mécanisme est cohérent avec l'augmentation de la densité de fissures avec la déformation observée sur les essais de traction lisse cartographiés, de part et d'autre de la concentration de transition (Figure IV.10). La densité de fissure augmente de façon presque linéaire avec

le niveau de déformation plastique, de telle sorte qu'un pourcent de déformation plastique rajoute une soixantaine de fissures pour une surface exposée d'environ 8 mm^2 . L'augmentation importante de la densité de fissures avec la déformation macroscopique (plastique ou totale) a été observée dans plusieurs études. En iode vapeur, Kubo observe une densité de fissures multipliée par plus de 3 entre 5 et 8% de déformation plastique (Kubo 1985a). L'effet est exponentiel aux faibles déformations ; Peehs observe une multiplication par un facteur proche de 50 du nombre de fissures entre 0.2 et 2% d'allongement total (Peehs 1979).

Jacques a montré que la densité de fissures était surtout liée au niveau de déformation plastique « locale » (déterminée par la déformation de grilles de $500 \times 250 \text{ }\mu\text{m}^2$, pour une taille de grains moyenne de $30 \text{ }\mu\text{m}$) sur des plaques de zirconium et Zircaloy-4 en méthanol iodé et iode vapeur (Jacques 1994). Pour une déformation macroscopique de 10%, les déformations locales peuvent atteindre 15%. Il a pu mettre en évidence une différence importante entre les milieux : absence de déformation seuil locale pour le méthanol iodé, contrairement à l'iode vapeur (5%). La notion de déformation seuil en méthanol iodé, si elle existe, est peut-être à rechercher à l'échelle du polycristal plutôt que macroscopiquement, par des mesures de champs de déformation dans les grains.

Un autre effet intéressant de la déformation plastique concerne la longueur moyenne des fissures. Sur la Figure IV.10, on note également que cette longueur moyenne diminue avec la déformation plastique. Malgré la multiplication de la densité de fissures ($\times 3.4$) sur ses éprouvettes, Kubo ne constate qu'une augmentation très faible de la longueur moyenne, d'environ 6.9 à $7.6 \text{ }\mu\text{m}$ quand la déformation passe de 5 à 8% (Kubo 1985a). Une façon d'expliquer ces résultats consisterait à attribuer une influence de la déformation plastique sur la seule création de sites d'amorçage. Le développement de fissures à ces endroits est assuré par la contrainte et le temps, ce qui expliquerait que les fissures sont toujours orientées à 90° de la contrainte principale macroscopique. Cet effet nous a induits en erreur lors du développement du premier modèle d'amorçage à partir des essais de traction à vitesse de déformation imposée. L'utilisation de la seule contrainte principale ne semble plus pertinente pour prédire l'apparition du dommage de CSC-I lors de ces essais. A la lumière des différents résultats obtenus, il apparaît nécessaire de combiner déformation plastique et contrainte si on souhaite modéliser correctement l'amorçage de la CSC-I.

Les godets à avalements partiels ont permis de mettre en évidence qu'une pré-déformation plastique, même importante (entre 20% et 80%), n'a pas d'importance significative sur l'amorçage intergranulaire et les concentrations limites (Figure IV.60). Par ces essais, on essayait éventuellement de mettre en évidence un effet des incompatibilités de déformation. Plus la pré-déformation est importante, plus on accumule ces incompatibilités et donc des contraintes locales aux joints de grains. L'influence de ces contraintes intergranulaires sur la dépoussage du matériau semble donc faible par rapport à celle des contraintes macroscopiques. Ces résultats rejoignent ceux de Nicholson qui n'a pas observé d'effet d'une pré-déformation sur la perte de masse d'éprouvettes (avec oxyde natif) (Nicholson 1980).

Sur ces godets, le mode de fissuration est très majoritairement intergranulaire. Le mode d'ouverture de la fissure, au milieu de la tôle emboutie (coude) ou à partir d'un bord (sommet) est donc prédominant : de fortes contraintes et un écrouissage important ne sont pas gages d'une propagation transgranulaire. Mais il a également été montré que la déformation plastique favorisait la fissuration transgranulaire (Fregonese 2008). La pré-déformation pourrait affecter le facteur d'intensité des contraintes de transition entre les fissurations. Ce point sera repris dans le paragraphe traitant de la propagation des fissures.

Les vitesses de propagation moyennes estimées sur les essais de flexion (environ $0.375 \text{ }\mu\text{m.s}^{-1}$) sont proches de celles estimées à partir des essais de traction à rupture (entre

0.06 et $0.5 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$, selon la concentration à 10^{-5} s^{-1}). On peut supposer que la plasticité n'a que peu ou pas d'effet sur la propagation intergranulaire. Cela confirmerait le rôle principal de la contrainte sur cette étape de la rupture.

V.1.2.4 Influence de la vitesse de déformation

La vitesse de déformation est un paramètre majeur pour la CSC-I, pouvant avoir une importance intrinsèque ou associée. L'existence d'une vitesse minimale de déformation pour faire de la CSC-I est parfois expliquée par la compétition existante entre rupture et formation de la couche d'oxyde protectrice du milieu. Une limite supérieure en vitesse de déformation correspondrait à un changement de mode d'endommagement vers la rupture ductile. Syrett constate ainsi que la CSC-I du Zircaloy-2 en iode vapeur à 320°C se produit entre $2 \cdot 10^{-8} \text{ s}^{-1}$ et $5 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ (Syrett 1981). Peehs constate lui un pic de sensibilité à la CSC-I proche de 10^{-7} s^{-1} (Peehs 1979). La détermination des limites supérieures de sensibilité à la CSC-I est plus importante du point de vue des ruptures de gaines de crayons combustibles en rampe de puissance, avec des vitesses proches de 10^{-4} s^{-1} . Wood constate par exemple que les déformations totales à rupture deviennent inférieures ou égales à 2% quand la vitesse de sollicitation moyenne est inférieure à 10^{-5} s^{-1} , pour du Zircaloy-2 en iode vapeur (Wood 1975). D'autres exemples de sensibilités accrues quand la vitesse diminue ont été donnés dans le chapitre bibliographique (Figure I.23), et notamment celui de Hirao, seul exemple d'étude en méthanol iodé, qui montre une sensibilité à la CSC-I pour des vitesses inférieures à $2 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ (Hirao 1988).

L'ensemble des données de la littérature traite de valeurs à rupture, que ce soit pour l'élongation ou la réduction de section. Dans cette étude, on s'est principalement intéressé à l'amorçage des fissures et, pour des vitesses supérieures à 10^{-5} s^{-1} , à une exception près, on n'observe pas de rupture sur les éprouvettes de traction uniaxiales (jusqu'à 10% de déformation totale). Les données sont donc difficilement comparables. L'influence de la vitesse de déformation, définie à partir des domaines de fissuration (Figure IV.6), est résumée sur la Figure V.4. Les vitesses de déformation ne sont pas assez finement balayées pour mettre clairement en évidence une chute en dessous d'une vitesse limite. Néanmoins on constate une sensibilité accrue à 10^{-5} s^{-1} .

En ce qui concerne une limite supérieure de vitesse pour la CSC-I, les déformations à l'amorçage ou à rupture sont plus importantes à une vitesse de 10^{-3} s^{-1} , pour des concentrations inférieures à $10^{-3} \text{ g}\cdot\text{g}^{-1}$. Les essais à rupture sur éprouvettes entaillées montrent l'absence totale d'endommagement par CSC-I pour un essai mené à rupture à une vitesse de déformation macroscopique de 10^{-3} s^{-1} et une concentration de $10^{-5} \text{ g}\cdot\text{g}^{-1}$ (Figure IV.25).

L'aspect discontinu des courbes à l'amorçage est dû à l'existence d'une concentration de transition I_1 et au fait que I_1 diminue avec la vitesse de déformation. On a vu au chapitre précédent que I_1 passait d'environ $8.1 \cdot 10^{-4}$ à $4.8 \cdot 10^{-4}$ puis $1.5 \cdot 10^{-4} \text{ g}\cdot\text{g}^{-1}$ quand la vitesse diminuait de 10^{-3} à 10^{-4} puis 10^{-5} s^{-1} respectivement. Cela montre que la vitesse de déformation a une influence sur l'amorçage des fissures, principalement via la durée d'essai. Pour une vitesse plus importante et donc une durée d'essai plus courte, il est nécessaire d'avoir une concentration en iode plus grande pour activer le changement de mode d'amorçage.

Le niveau de déformation plastique sur les plateaux des domaines de fissuration est également une illustration de l'influence de la vitesse sur l'amorçage des fissures aux faibles et moyennes concentrations. Ce niveau est respectivement de 3.8%, 3% et 1.5% pour des vitesses de 10^{-3} , 10^{-4} et 10^{-5} s^{-1} . Les temps d'amorçage associés sont bien plus faibles que

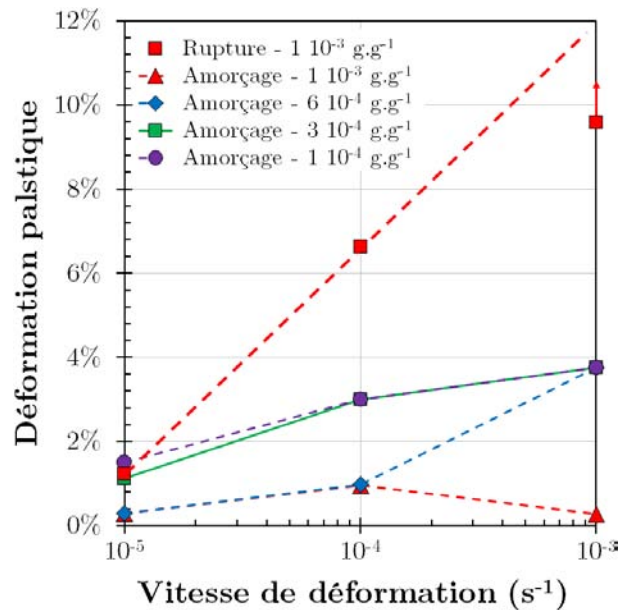


Figure V.4 : Déformation plastique à l'amorçage ou à rupture pour différentes concentrations en fonction de la vitesse de déformation imposée.

ceux en l'absence de plasticité et illustrent une accélération de l'amorçage avec la plasticité active. Néanmoins, les différences de niveaux montrent que le simple franchissement d'une déformation limite ne suffit pas à l'amorçage, tout comme celui d'un temps limite puisque les temps à l'amorçage varient alors de 50 à 2000 s. Le matériau étant viscoplastique, la contrainte varie avec la vitesse, mais de façon assez faible : on observe une augmentation de 20 MPa quand la vitesse est multipliée par 10. Cependant, les essais de flexion quatre points ont montré qu'à 10^{-4} g.g^{-1} , le passage de la contrainte appliquée de 100 à 140 MPa s'accompagnait d'une diminution du temps à rupture de 12 à 6 h (Figure IV.46). Une faible variation de contrainte peut donc avoir un effet important sur l'amorçage des fissures. Cet effet de contrainte est une piste pour expliquer les différences de niveaux de déformations d'amorçage. Les expériences décrites ici ne permettent pas de mettre en évidence un effet intrinsèque de la vitesse de déformation, mais plutôt un effet de la durée de l'essai, et donc de la durée d'exposition à l'iode. Celle-ci aurait une influence si les cinétiques d'adsorption et/ou de fragilisation sont relativement lentes par rapport au temps étudiés ici.

V.1.2.5 Influence de la texture

On a vu dans le chapitre I que la texture cristallographique était le paramètre le plus influent lors d'essais à rupture, le quasi-clivage se faisant sur les plans de base. La plupart des études se focalisant sur des essais à rupture, l'influence de la texture sur l'amorçage n'est que peu connue. On a mentionné les résultats de Peehs, sur tube à texture variable, qui montrent une densité de fissures plus importante pour des textures proches des textures circonférentielles, et une absence d'amorçage pour les textures radiales (Peehs 1979). On a rappelé que ces résultats avaient en partie été expliqués par Diard, par des calculs montrant une localisation de la déformation sur l'échantillon (Diard 2001). Ce ne serait donc pas un effet intrinsèque de la texture mais une conséquence de l'anisotropie de comportement qui découle de la texture.

Les essais réalisés ici le sont sur éprouvettes lisses et la direction de sollicitation est testée sans autre influence. Les statistiques de fissures, présentées sur la Figure IV.9 et la Figure IV.10, montrent que les tendances sont les mêmes pour les deux directions L et T. Le domaine de fissuration de la direction L à 10^{-4} s^{-1} présente une forme similaire à celui de la direction T (Figure IV.6), et le niveau du plateau de déformation plastique est le même, environ 3%. En revanche la concentration de transition I_1 apparaît bien plus faible dans la

direction L, environ $1.5 \cdot 10^{-4} \text{ g.g}^{-1}$ contre plus de $4 \cdot 10^{-4} \text{ g.g}^{-1}$ dans la direction T. La raison d'un tel écart n'est pas connue pour le moment. Le nombre d'essais réalisés ne laisse pas de doute sur ce décalage. Cette baisse est d'autant plus surprenante que, pour une déformation plastique inférieure à 3%, la contrainte d'écoulement de la direction L est plus faible que pour la direction T. Une étude plus approfondie est nécessaire sur ce point, pouvant porter notamment sur la distribution anisotrope de contraintes résiduelles dans les tôles utilisées.

Aucun essai de traction n'a été mené à rupture avec des éprouvettes de direction L. En revanche, quelques essais de flexion quatre points l'ont été. Ils ont montré que la proportion de rupture ductile sur le faciès de rupture était plus grande que pour les éprouvettes de direction T. La limite d'élasticité plus faible et donc l'activation plus facile de la plasticité pourrait expliquer ces résultats.

V.1.2.6 Influence de la biaxialité des contraintes

L'effet de la biaxialité des contraintes constituait l'un des principaux axes de l'étude et a nécessité notamment une modélisation du comportement mécanique.

Les essais sur éprouvettes entaillées à vitesse de déformation macroscopique imposée ont montré que cet effet avait un fort pouvoir protecteur de l'amorçage des fissures ; il est nécessaire d'accumuler plus de déformation pour constater l'apparition des fissures. Les paramètres étudiés pour arriver à cette conclusion étaient la contrainte principale, la déformation équivalente et la contrainte de Hill (Figure IV.23). Ces résultats sont assez étonnants et non-intuitifs.

Ces résultats sont de plus difficilement comparables à ceux de la bibliographie, pas vraiment unanime sur le sujet. Comme on l'a vu au chapitre I, des essais de traction-pression interne sur tubes de Zircaloy-2 en iode vapeur montrent clairement que la déformation à rupture est minimale quand l'état de contrainte est biaxé (Nakatsuka 1982). Une constate la même chose en se basant également sur un critère de ductilité, la réduction de section (Une 1979b). Mais pour Syrett, le temps à rupture est une mesure plus fiable de la sensibilité à la CSC-I et il observe, sur du Zircaloy-4 détendu en iode vapeur, que pour une même contrainte circonférentielle appliquée, le temps à rupture est bien plus grand en biaxé, malgré une déformation à rupture plus faible (Syrett 1981). Cela est en désaccord avec les résultats de Choo qui constate des ruptures par CSC-I d'éprouvettes de déformations planes de Zircaloy-4 recristallisé dans des conditions où des éprouvettes uniaxiales ne montrent pas de fragilité (Choo 1987).

Syrett a relié les différences de temps à rupture observées aux variations de vitesse de déformation moyenne avec le chargement appliqué. Ainsi, l'ensemble de ses essais peut se placer selon une seule courbe, la vitesse en fonction du temps à rupture (Figure I.22). Une même approche a été adoptée ici et les résultats sont visibles sur la Figure V.5. On constate qu'avec ce type de dépouillement, les résultats sont bien moins dispersés que sur la Figure IV.23 et se placent selon deux tendances linéaires. Les deux faisceaux de courbes (centre ou bord du ligament) de la Figure IV.22 ne font plus qu'un. Les différences de chargement mécanique, entre bord et centre du ligament, sont principalement liées à la vitesse de déformation locale. Cette vitesse est donc un paramètre de premier ordre pour l'amorçage des fissures. Mais il ne permet toujours pas d'expliquer l'effet de biaxialité. On observe en effet que les essais sur éprouvettes entaillées s'écartent de la tendance des essais uniaxiaux, et ce d'autant plus que le rayon d'entaille est petit et donc que la biaxialité est grande, avec un écart pouvant atteindre plusieurs pourcents de déformation plastique (Figure V.5). L'étude de l'effet de vitesse de déformation s'avère très utile ici.

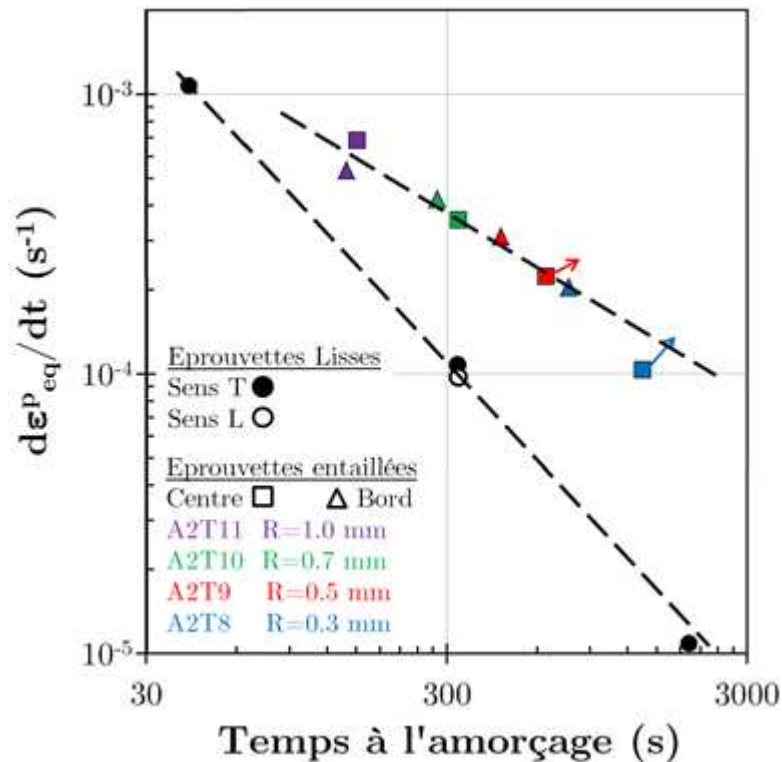


Figure V.5 : Vitesse de déformation équivalente en fonction du temps à l'amorçage des fissures, pour les essais de traction sur éprouvette lisse (ronds noirs ou blancs) et entaillées (symboles de couleur). Valeurs au centre (carrés) et au bord (triangle) du ligament. Mise en évidence de l'importance de la vitesse de déformation dans le dépouillement des essais.

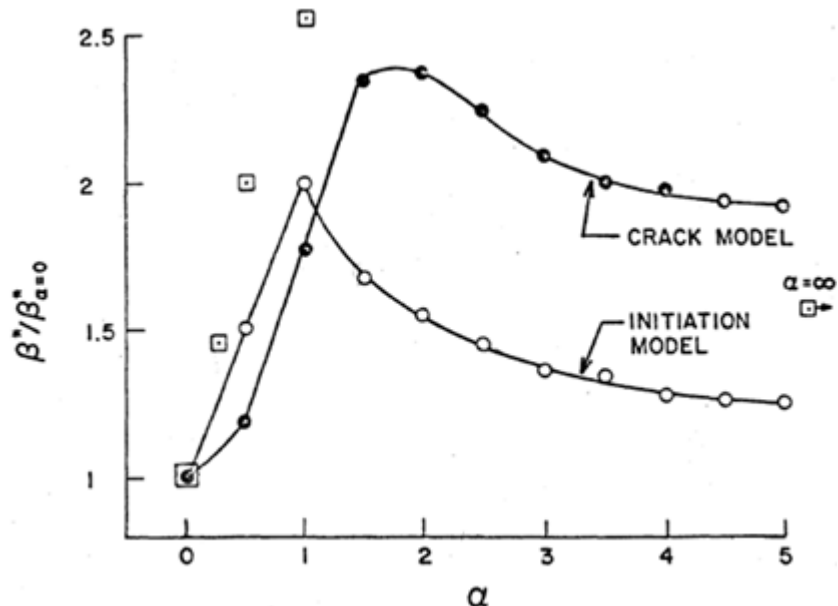


Figure V.6 : Effet du rapport de biaxialité α sur la valeur normalisée de la contrainte seuil β^* de fissuration de CSC-I. Données expérimentales de Cubicciotti et Syrett (carrés) et modèle de Murty à partir des contraintes calculées sans fissure présente (« initiation model », ronds vides) ou avec une distribution uniforme de fissures radiales (« crack model », ronds pleins) (Linga Murty 1987). Selon l'état de contrainte, le seuil peut être plus de deux fois supérieur à celui d'un essai uniaxial.

Murty a essayé d'expliquer des résultats de Syrett en calculant la sensibilité d'un alliage à la CSC-I via la contrainte appliquée normale aux plans de base (Linga Murty 1987). Pour cela, il prend en compte la texture du matériau et l'orientation de la contrainte appliquée. Il se focalise donc sur la phase de propagation transgranulaire par quasi-clivage. Les résultats de son modèle prédisent bien qu'un état biaxé mène à une contrainte seuil plus importante, plus de deux fois supérieure à celle de l'uniaxial (Figure V.6). Mais un écart subsiste avec les données de Syrett. Cet écart est en partie comblé quand il suppose une distribution uniforme de fissures radiales (perpendiculaires à la contrainte principale) plutôt qu'une surface lisse. L'influence de la biaxialité des contraintes ne porterait donc pas uniquement sur l'étape de propagation mais également sur l'amorçage.

L'activation des différents systèmes de déformation en fonction de la contrainte appliquée a été considérée pour expliquer ces résultats. Les résultats de Geyer sur les systèmes activés dans le Zircaloy-4 recristallisé à température ambiante, lors d'une sollicitation uniaxiale ou équi-biaxiale, ont été rappelés au Chapitre I (Figure I.6) (Geyer 1999). Pour 1% de déformation plastique équivalente, il trouve que 60% des grains n'ont pas de système de glissement activé lors d'une sollicitation biaxiale, contre 25% lors d'une traction circonférentielle et 45% lors d'une traction axiale. Du point de vue d'un amorçage par les incompatibilités de déformation grain à grain (modèle de Kubo), on peut imaginer que ces incompatibilités sont réduites quand moins de grains présentent de plasticité. Mais à 4% de déformation équivalente, Geyer constate que tous les grains présentent au moins un système de déformation activé. Dans nos essais, l'effet de la biaxialité se manifeste bien au-delà de 4% de déformation, laissant supposer que cet effet n'est pas lié au nombre de grains plastifiés. La multiplicité des systèmes de glissement activés pourrait être aussi avancée. A 4% de déformation, Geyer observe que, dans le cas d'une sollicitation biaxée, les différents systèmes de glissement sont activés dans une proportion plus importante que pour des sollicitations uniaxiales. Le fait d'activer plus de systèmes peut éventuellement contribuer à réduire les incompatibilités de déformation et donc les contraintes intergranulaires.

Ces suppositions sont difficilement vérifiables expérimentalement et il faudrait alors utiliser des outils numériques pour approfondir ce sujet. Diard a étudié les hétérogénéités intra et intergranulaires d'un amas de grain de Zircaloy-4 sollicités de façon uniaxiale, et notamment la contrainte normale aux joints de grains (Diard 2005). Il a observé que les sur-contraintes aux joints de grains sont difficilement attribuables à une différence d'orientation d'un grain à un autre, mais plutôt à l'activation du glissement pyramidal $\langle c+a \rangle$ dans un grain et pas dans son voisin. Il serait intéressant d'avoir des résultats comparables pour des contraintes macroscopiques appliquées biaxées.

Ces tentatives d'explication de l'effet de biaxialité concernent les essais réalisés à concentration moyenne dans le domaine plastique. Cependant, les essais de fluage à forte concentration et faible contrainte sur éprouvettes entaillées ont également montré un effet de la biaxialité. Cet effet est assez important pour que l'éprouvette rompe dans sa partie droite pour une contrainte deux fois plus faible qu'entre les entailles. Aux contraintes appliquées, il est peu probable que la plasticité soit active. Là encore, l'utilisation d'un modèle polycristallin adapté serait très enrichissante. La raison de cette « protection » par la biaxialité n'a pas été déterminée. L'ouverture des joints de grain pour faire « entrer » l'iode est peut être maximale en traction uniaxiale. Ajouter une composante à 90° pourrait diminuer cette ouverture.

V.1.2.7 Propagation des fissures de CSC-I

Cette étude portait essentiellement sur l'amorçage des fissures de CSC-I. L'utilisation des godets et les simulation numériques ont tout de même permis de mettre en évidence quelques aspects intéressants de la propagation des fissures en méthanol iodé, assez peu

étudiés. Les résultats obtenus ici sont principalement comparés à ceux de la thèse de A. Serres (Serres 2008). La mention de l'auteur dans ce paragraphe renvoie à cette référence. La plupart des auteurs donnant des vitesses de propagation les calculent en déterminant l'étendue de la fissuration fragile et en divisant par la durée d'essais. Ici, l'utilisation des godets présentant des fissures axiales permet de déterminer la vitesse instantanée par observation, comme Serres le faisait par suivi électrique. La méthode par laquelle on a calculé le facteur d'intensité des contraintes est originale et sujette à critique, comme cela a été précisé dans le Chapitre III.

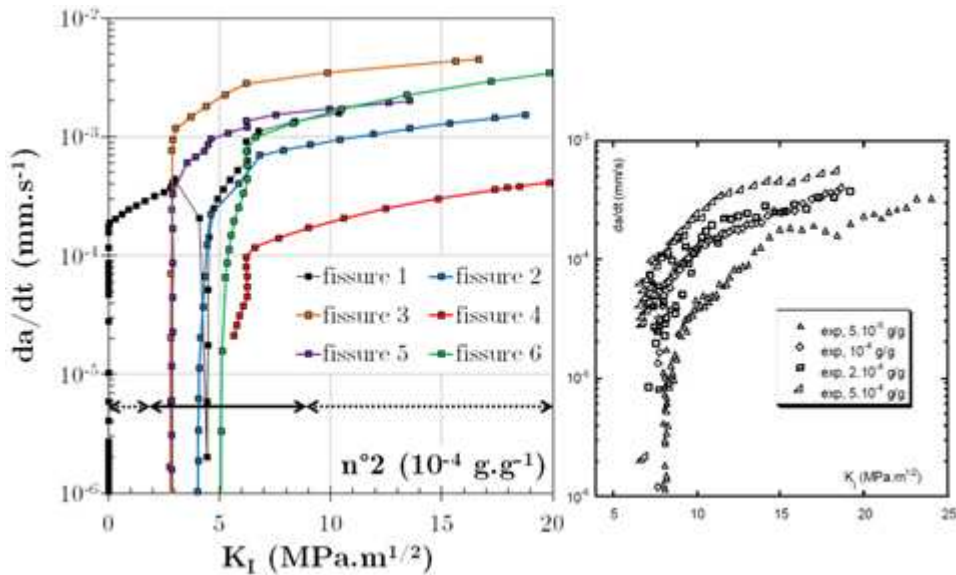


Figure V.7 : Comparaison des vitesses d'avancée en fonction du facteur d'intensité des contraintes, pour 6 fissures suivies sur le godet n°2 (10^{-4} g.g^{-1}) à gauche, et les essais de Serres réalisés sur éprouvettes avec entaille (entre $5 \cdot 10^{-5}$ et $5 \cdot 10^{-4} \text{ g.g}^{-1}$).

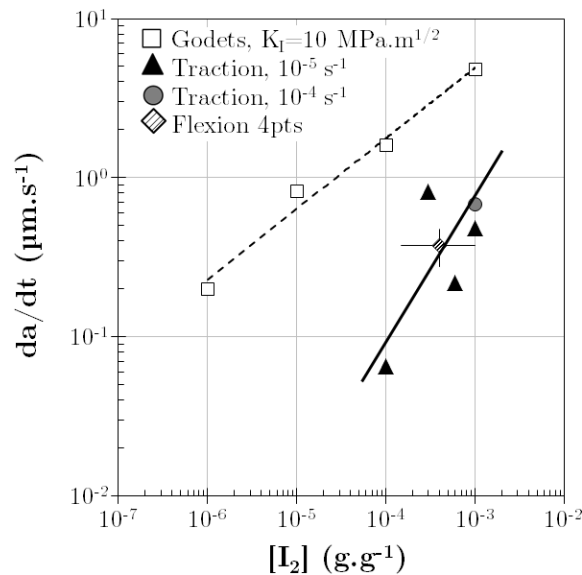


Figure V.8 : Comparaison des vitesses d'avancée de fissure déterminées sur les godets à avalement total (moyenne par godet pour un K_I de $10 \text{ MPa.m}^{1/2}$, carrés blancs) et des vitesses moyennes estimées sur les essais de traction à vitesse de déformation imposée de 10^{-5} s^{-1} (triangles noirs) et 10^{-4} s^{-1} (rond gris), ainsi que sur les essais de flexion (losange rayé).

L'influence de la concentration sur la propagation a déjà été mentionnée dans le chapitre précédent (Figure IV.62). Les immersions de godets à avalement total ont permis de déterminer la vitesse des fissures sur quatre ordres de grandeurs de concentration. La vitesse des fissures à l'amorçage (au K_I max) dépend très fortement de la concentration. La vitesse initiale moyenne passe de 40 à plus de 700 $\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ entre 10^{-6} et 10^{-3} $\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$. Pour un K_I de 10 $\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$, les vitesses d'avancée des fissures sont environ de 0,2, 1, 2 et 5 $\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$, respectivement pour des concentrations de 10^{-6} , 10^{-5} , 10^{-4} et 10^{-3} $\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$. Un tel K_I correspond à une profondeur de fissure de moins de 4 mm (Figure III.32), et donc à une fissuration exclusivement transgranulaire. Les temps d'amorçage minimaux sont alors divisés par presque 100, à moins d'une minute. Cela va notamment à l'encontre du temps minimal d'amorçage sans plasticité active mis en évidence lors des essais de flexion. Mais l'état mécanique et de surface du sommet des godets à avalement total n'est pas connu et peut être très dégradé ; il n'est donc pas considéré comme représentatif. Serres constate également une forte augmentation de la vitesse de propagation (x3) avec la concentration (x10) mais ses vitesses sont toutes inférieures à celles trouvées ici (Figure V.7). Il faut souligner qu'on ne teste pas exactement le même matériau et surtout pas dans le même état de déformation. Les godets sont fortement écrouis, la fissure propage donc dans un matériau qui possède plus de 30% de déformation plastique résiduelle (Figure III.38). Or, il a été montré que la pré-déformation favorisait la propagation transgranulaire (Fregonese 2008) et que les vitesses transgranulaires étaient bien supérieures aux vitesses intergranulaires. Pour un K_I inférieur à 20 $\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$, Serres observe une fissuration mixte. Dans notre cas, les fissures sont entièrement transgranulaires sur plus de 10 mm, soit pour un K_I en moyenne supérieur à 3 $\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$.

Serres observe aussi une diminution du K_I^{seuil} , de 8 à 6 $\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$, lorsque la concentration augmente. Une telle variation n'a pas été observée ici, sans doute car les K_I^{seuil} sont bien plus faibles (entre 3 et 5 $\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ selon les fissures suivies). Pour éviter la dispersion observée d'une fissure à une autre sur un même godet, on s'intéresse aux longueurs moyennes de fissures. Ainsi à 10^{-8} $\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$, la longueur moyenne est de 9 mm, correspondant à un K_I d'environ 3 $\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$, alors qu'à 10^{-3} $\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$, elle passe à 13 mm, mais le K_I correspondant n'est que peu changé, à 2,4 $\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ (Figure IV.56). La longueur moyenne des fissures prend en compte les longues fissures présentant une fin de propagation intergranulaire pouvant s'étendre sur plusieurs millimètres et pour lesquelles le K_I^{seuil} n'est pas défini. Les K_I^{seuil} déterminés ici (2,4 – 3 $\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$) sont plus proches de ceux déterminés sur Zircaloy-4 détendu ou recristallisé en iode vapeur, entre 3 et 5 $\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ (Brunisholz 1985; Schuster 1995; Park 2008a). La méthode présentée ici n'a bien sûr pas la prétention de remplacer des essais de propagation standards. Il était néanmoins intéressant de voir qu'avec une simulation numérique adaptée, on peut déterminer, à partir d'essais complexes, des propriétés de résistance cohérentes avec les données de la bibliographie.

On a vu au chapitre précédent que les résultats d'essais de traction ont permis d'estimer les vitesses moyennes d'avancées de fissure par la différence entre le temps à rupture et le temps à l'amorçage, principalement pour des vitesses de sollicitation de 10^{-5} s^{-1} , à des concentrations comprises entre 10^{-4} et 10^{-3} $\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ (Tableau IV.2). Le suivi par caméra des essais de flexion a donné un temps maximal de propagation proche de 20 ms et donc une borne inférieure de la vitesse de propagation. L'ensemble des estimations et mesures de vitesses de propagation est résumé sur la Figure V.8. Les différents points se regroupent selon deux tendances : les godets pour lesquels la propagation est purement transgranulaire (TG) et les autres essais, dont la flexion trois points, pour laquelle la propagation est presque entièrement intergranulaire (IG). Si la fissuration TG est beaucoup plus rapide que l'IG, la valeur moyenne de vitesse de propagation sur les essais de traction doit être proche de celle de la fissuration IG. On a ainsi pu mettre en évidence l'influence de la concentration sur les vitesses IG et TG (sur matériau écroui), dans une gamme couvrant plusieurs ordres

de grandeur. Les vitesses TG sont en moyenne dix fois supérieures aux IG. Les vitesses de fissuration IG sont proches de celles trouvées par Serres ($<0.5 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) et de celles rapportées par Nikulin dans sa revue (Nikulin 2005).

Il est à noter que les fissures observées sur godets ont une position angulaire au sommet aléatoire par rapport à la direction de laminage. La présence de plusieurs fissures interagissant entre-elles ne permet pas de déterminer un effet de texture. L'absence d'éprouvette de traction rompue dans la direction L ne permet pas non plus d'étudier un éventuel effet de texture. Seuls les essais de flexion permettent d'établir que les vitesses de propagation intergranulaire sont proches pour les deux directions.

On a vu dans le chapitre I que la transition entre les modes de fissuration était pilotée par le facteur d'intensité des contraintes en pointe de fissure K_I . Pour une valeur donnée $K_{IG/M}$, la fissuration passe d'IG à un mode mixte. Par l'observation des faciès de rupture au MEB, on a pu estimer les $K_{IG/M}$ à l'aide de formules analytiques de Newman et Raju (Newman 1984) dont l'utilisation est adaptée à nos besoins (plusieurs fissures décentrées par faciès). Les résultats présentés sur la figure (Figure IV.13) convergent vers un $K_{IG/M}$ d'environ $6.4 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$. Ce résultat s'écarte sensiblement de ceux de la littérature sur Zircaloy-4 en méthanol iodé. Serres rapporte un $K_{IG/M}$ compris entre 11.5 et $16 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ pour des concentrations comprises entre $5 \cdot 10^{-5}$ et $5 \cdot 10^{-4} \text{ g}\cdot\text{g}^{-1}$. Pour Farina, à la forte concentration de $10^{-2} \text{ g}\cdot\text{g}^{-1}$, il serait plutôt de $11 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ (Farina 2004). En iode vapeur, des valeurs de 7 et $8 \text{ MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ sont données pour des tubes de Zircaloy-2 recristallisé (Videm 1979; Norring 1982). Le $K_{IG/M}$ trouvé ici oscille autour de sa valeur moyenne en fonction de la concentration (de $6 \cdot 10^{-5}$ à $10^{-3} \text{ g}\cdot\text{g}^{-1}$) sans suivre une tendance. Serres observe une légère augmentation avec la concentration, peut-être le signe d'une accentuation de la dissolution intergranulaire au détriment de la propagation par quasi-clivage et flutting.

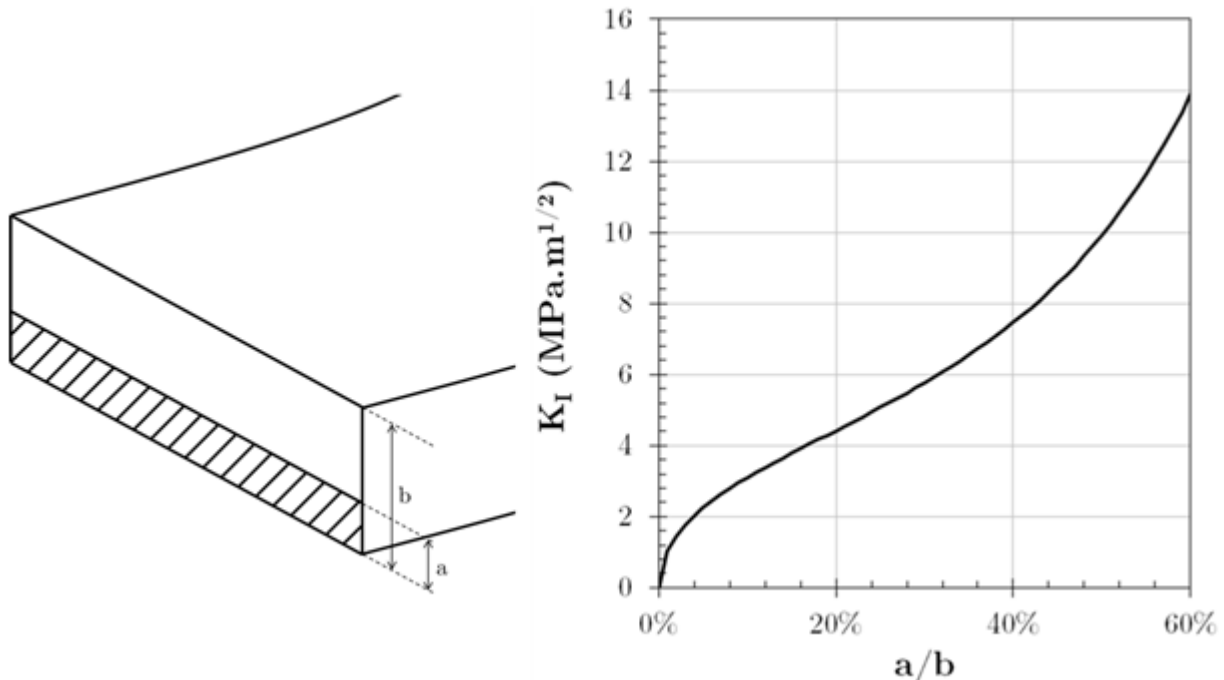


Figure V.9 : Evolution du facteur d'intensité des contraintes K_I sur le front d'une fissure droite perpendiculaire à la direction de propagation, traversant la largeur de la section, de longueur a , pour une éprouvette de flexion d'épaisseur b , soumise à une contrainte de flexion de 250 MPa . D'après les formules tirées de (Kocak 2008).

Pour les essais à vitesse de déformation imposée, on trouve que le $K_{IG/M}$ à 10^{-4} s^{-1} est plus faible qu'à 10^{-5} s^{-1} , respectivement de 5.5 et 7 $\text{MPa.m}^{1/2}$. Si ces valeurs sont fiables, une explication possible serait que le temps comme la concentration favorisent plus la dissolution intergranulaire des joints de grains, et donc augmentent l'étendue de l'IG, se traduisant par une baisse de $K_{IG/M}$. Les différentes études évaluant ce paramètre ne précisent pas toujours les contraintes utilisées pour la détermination et/ou ne font pas varier la vitesse de déformation. Les comparaisons d'une étude à une autre s'en trouvent compliquées.

Les faciès totalement intergranulaires observés sur les essais de flexion ne contredisent pas l'existence d'un $K_{IG/M}$ proche de 7 $\text{MPa.m}^{1/2}$ en poussant la formule de Newman et Raju au-delà sa limite de validité. Mais si on considère que le front de fissure n'est pas semi-elliptique mais droit (perpendiculaire à la direction de propagation, sur toute la largeur de la section) les résultats changent radicalement. La fissure progressant vers une zone en compression, il n'est pas absurde de penser qu'elle va rejoindre les bords de l'éprouvette avant de déboucher sur la face opposée. Une autre formule analytique tirée de (Kocak 2008) permet d'estimer le K_I dans ce cas-là, pour une profondeur de fissure ne dépassant pas 60% de l'épaisseur. Une telle estimation est présentée sur la Figure V.9. Les faciès intergranulaires des éprouvettes de flexion suggèrent alors que le $K_{IG/M}$ peut être supérieur à 15 $\text{MPa.m}^{1/2}$. Pour pouvoir conclure, il faudrait pouvoir observer une fissure arrêtée au milieu de sa propagation pour voir sa forme. Les mêmes remarques peuvent être faites pour les essais de traction à faible contrainte et forte concentration.

On peut alors s'interroger sur l'écart important avec les essais de traction à vitesse de déformation imposée. Les vitesses de propagation étant sensiblement les mêmes pour les différents essais, le temps n'est peut-être pas le paramètre pertinent. La déformation plastique expliquerait mieux ces écarts. Pour les essais de traction, les ruptures se produisent à des déformations plastiques comprises entre 1.2 et 7.5% de déformation. L'amorçage même des fissures se fait dans le matériau déformé. Puisque la déformation plastique favorise la fissuration transgranulaire, le $K_{IG/M}$ diminue dans un matériau écroui. Cela expliquerait donc la baisse de 7 à 5.5 $\text{MPa.m}^{1/2}$ quand la vitesse passe de 10^{-5} s^{-1} à 10^{-4} s^{-1} , pour une concentration de 10^{-3} g.g^{-1} , car la déformation plastique à rupture passe de 1.2 à 6.4%.

La déformation plastique aurait donc une influence du premier ordre sur la transition entre les modes de fissuration, de telle sorte qu'en son absence il est possible de rompre des éprouvettes de façon complètement intergranulaire. Sa présence à un niveau minimal pourrait être un prérequis pour la fissuration transgranulaire, comme mentionné au Chapitre I. Mais comme cela a été remarqué précédemment sur les godets, sa présence, même importante, ne constitue pas un gage de propagation TG. L'éventuelle dépendance du $K_{IG/M}$ à la déformation plastique rendrait plus difficile les comparaisons entre les différentes études.

V.1.2.8 Influence de l'irradiation

L'irradiation aux protons conduit à une sensibilité plus importante du matériau vis-à-vis de la CSC-I. Cet effet avait déjà été montré par A. Serres, sur le même matériau, pour des essais de traction lente (10^{-5} s^{-1}) à des faibles concentrations ($1-6 \cdot 10^{-6} \text{ g.g}^{-1}$), conditions pour lesquelles le matériau non irradié ne présentait aucune sensibilité (Serres 2008). On a choisi ici d'observer l'influence de l'irradiation dans les mêmes conditions d'essais que pour le matériau vierge afin de quantifier son impact. La géométrie des éprouvettes a été modifiée pour que la zone irradiée englobe toute la longueur utile et le début des têtes de traction afin d'avoir des champs mécaniques uniformes en surface. De plus, un modèle de

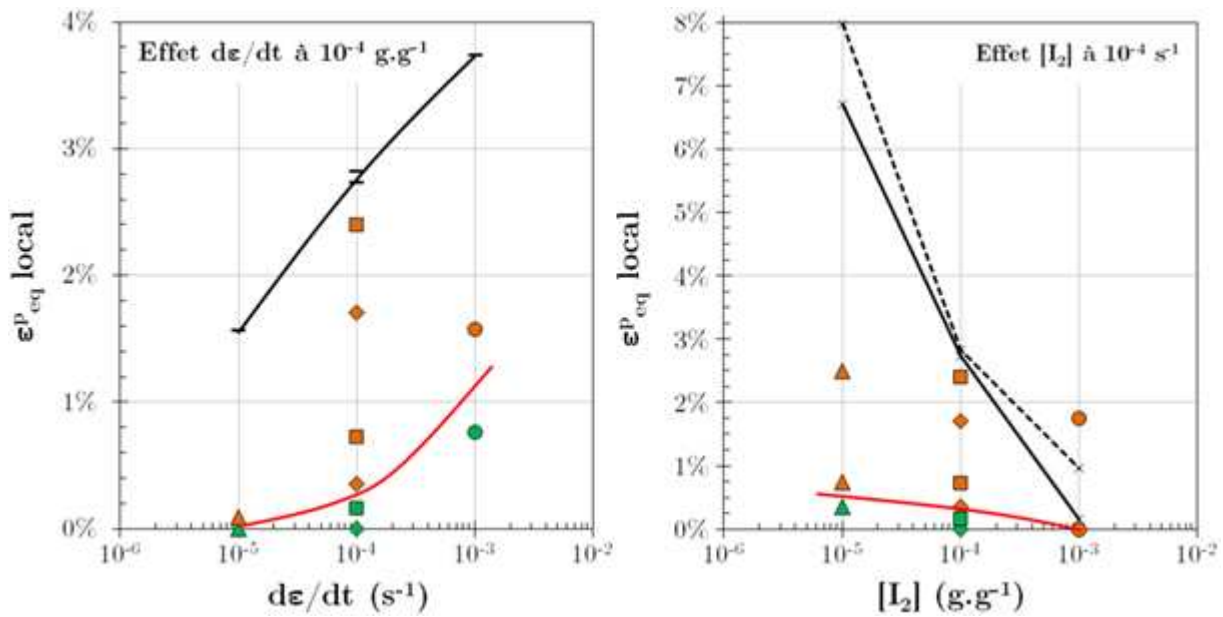


Figure V.10 : Effet de la vitesse de déformation à concentration fixée (gauche) et de la concentration à vitesse fixée (droite) sur la déformation plastique à l'amorçage dans la couche irradiée. Comparaison au matériau non irradié (traits noirs). Les points de couleur orange indiquent des essais présentant des fissures, contrairement aux points de couleur verte.

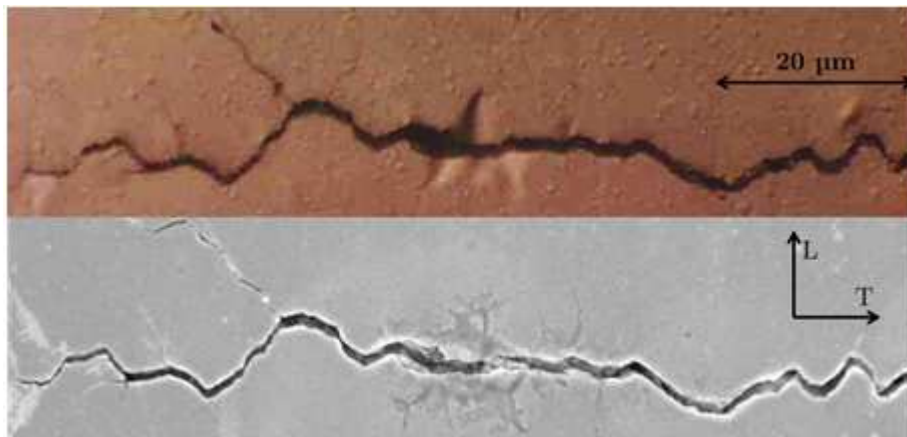


Figure V.11 : Observations d'une fissure de CSC-I sur l'éprouvette irradiée n°2 ($10^{-4} \text{ g}\cdot\text{g}^{-1}$, 10^{-4} s^{-1}), après l'essai 2 ($\varepsilon^p_{macro}=1.04\%$), au microscope optique (haut) et au MEB (électrons secondaires, bas).

comportement du matériau irradié a été proposé à partir de données bibliographiques pour prendre en compte le durcissement d'irradiation. Ce modèle a été en partie validé en comparant la réponse macroscopique des éprouvettes entre essais et simulation. On s'est ainsi placé dans des conditions favorables pour déterminer l'impact des paramètres mécaniques sur la sensibilité à la CSC-I du matériau irradié aux protons.

On a mis en évidence que le matériau irradié aux protons gardait une sensibilité à la concentration en iode et à la vitesse de déformation malgré une tendance à l'amorçage beaucoup plus importante. La sensibilité à la concentration, pour une vitesse de déformation de 10^{-4} s^{-1} , est moins marquée que pour le matériau non irradié. Les observations au microscope optique, dont la pertinence sera discutée dans le paragraphe suivant, permettent d'encadrer les déformations plastiques macroscopiques à l'amorçage et le modèle nous permet de les convertir en déformation plastique locale dans la couche irradiée. Ainsi les fissures s'amorcent pour une déformation plastique de 0.55% ($10^{-5} \text{ g}\cdot\text{g}^{-1}$), de 0.25%

(10^{-4} g.g⁻¹) et juste avant l'entrée en plasticité à 10^{-3} g.g⁻¹ (Figure V.10). On ne dispose pas de suffisamment d'essais pour confirmer la présence d'une transition comme pour le matériau non irradié. Serres avait également noté une déformation à l'amorçage réduite lorsque la concentration augmentait de 4 à 6 10^{-6} g.g⁻¹, respectivement comprise entre 1 et 2% de déformation plastique macroscopique à moins de 0.5%, mais les champs mécaniques n'étant pas uniformes, la transposition aux paramètres de la couche irradiée était compliquée. On pourrait tirer de ces résultats que l'activation de la plasticité dans la couche irradiée est presque synonyme d'amorçage. Mais les effets de vitesse montrent que ce n'est pas rigoureusement vrai.

En effet, pour une concentration donnée de 10^{-4} g.g⁻¹, la déformation plastique à l'amorçage dans la couche irradiée est d'environ 0.1% à 10^{-5} s⁻¹, 0.25% à 10^{-4} s⁻¹ et 1.2% à 10^{-3} s⁻¹ (Figure V.10). Comme pour le matériau non irradié, un effet du temps persiste. Hirao a également observé un effet de la vitesse pour des barreaux de Zircaloy-4 recristallisé et irradié, testés en méthanol iodé à 10^{-2} g.g⁻¹ (Hirao 1988). Il observe que la déformation à rupture diminue de 2.3% à 0.5% quand la vitesse de sollicitation est divisée par 10 à $5.4 \cdot 10^{-5}$ s⁻¹.

La persistance des effets de concentrations et de vitesse, comme pour le cas du matériau non irradié, montre que l'amorçage des fissures n'est pas simplement lié au dépassement d'une déformation, d'une contrainte ou d'un temps critique. L'irradiation modifie la microstructure des matériaux et cause différents effets pouvant expliquer une plus grande sensibilité à la CSC-I. Onchi l'attribue à la localisation de la déformation à partir d'une certaine fluence. Il observe un pic de résistance à la CSC-I (du point de vue de la contrainte seuil) de tubes de Zircaloy-2 en iode vapeur aux alentours de $3 \cdot 10^{19}$ n.cm⁻² (Onchi 1982), cohérent avec la synthèse de différentes études par Lunde (Lunde 1980). Pour une telle fluence, il a observé que la déformation plastique restait homogène, contrairement à $3 \cdot 10^{20}$ n.cm⁻², signe que cette localisation pourrait être responsable de la sensibilité accrue à l'amorçage des fissures (Onchi 1983). Il est intéressant de noter que cette augmentation puis diminution de la résistance à la CSC-I interviennent avant la saturation des effets d'irradiation sur la résistance mécanique, à partir de $2 \cdot 10^{20}$ n.cm⁻² (Higgy 1972). L'augmentation de la résistance mécanique ne serait alors pas la raison de la sensibilité accrue à la CSC-I. Mais dans sa revue des valeurs seuils, Une constate que le matériau irradié ne s'écarte pas de la tendance mise en évidence et rappelée sur la (Figure I.20) (Une 1984). Plus le matériau est dur, plus sa contrainte seuil (rapportée à la limite d'élasticité) est faible et donc moins il y a d'activation (macroscopique) de la déformation plastique. La présence de la localisation de la déformation, à l'échelle du grain ou supérieure, serait alors moins probable. Les données présentées par Une montrent une contrainte seuil peut être inférieure à la moitié de la limite d'élasticité. La sensibilité accrue du matériau irradié pourrait alors être reliée à sa seule résistance mécanique. Comme pour l'étude de l'effet la biaxialité des contraintes, une échelle d'étude trop importante par rapport aux mécanismes activés ne permet pas de conclure.

Serres n'a observé que de la canalisation basale dès 0.5% de déformation plastique macroscopique sur ses échantillons. Tous ses essais réalisés s'accompagnent alors de ce phénomène. Elle estime qu'à 0.5%, la couche irradiée est contrainte entre 70% et 100% de sa limite d'élasticité. Dans ces conditions, tous nos essais ont également été réalisés en présence de cette canalisation de la déformation à l'échelle du grain et on ne pourra donc pas dissocier son effet de celui de la résistance mécanique plus importante de la couche irradiée. Les différents niveaux de déformation à l'amorçage constatés sur nos essais tendent à dire que la présence de ces canaux n'implique pas nécessairement d'amorçage de fissures. En revanche, on peut s'interroger sur l'effet de la localisation dans des bandes macroscopiques.

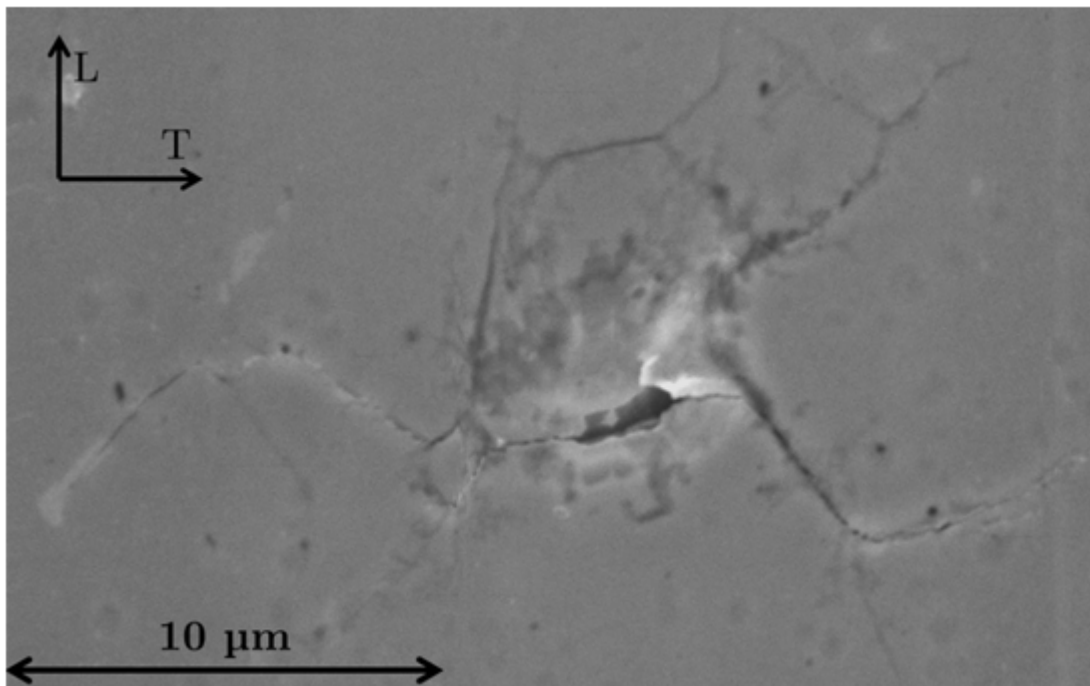


Figure V.12 : Attaque intergranulaire et développement d'une fissure de CSC-I sur l'éprouvette irradiée n°2 (10^{-4} g.g^{-1} , 10^{-4} s^{-1}), après l'essai 2 ($\varepsilon_{\text{macro}}^{\text{p}}=1.04\%$), observation au MEB (électrons secondaires).

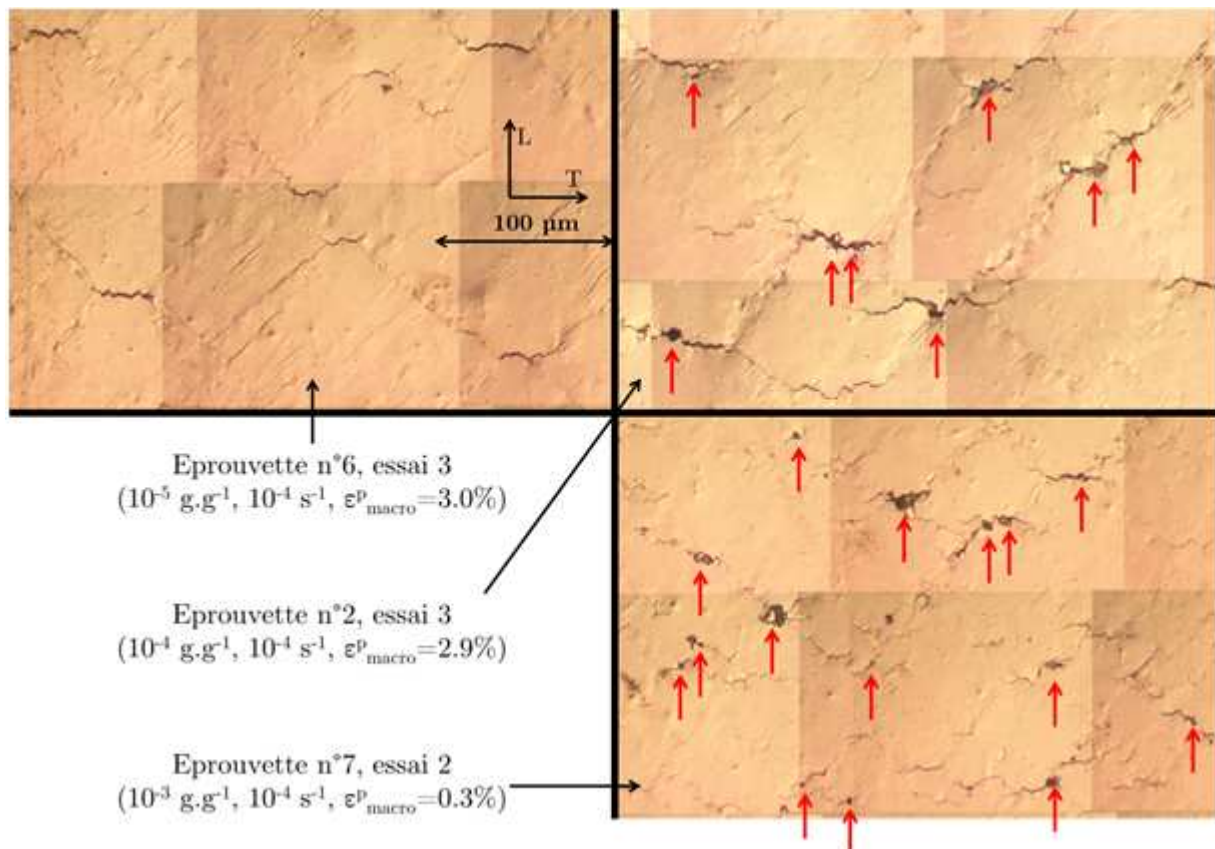


Figure V.13 : Différences de morphologie des fissures en fonction de la concentration en iode pour trois éprouvettes irradiées. A 10^{-5} g.g^{-1} , les fissures ne s'accompagnent pas nécessairement d'une attaque chimique localisée comme à plus forte concentration (flèches rouges).

Il a été clairement vu que ces bandes causent l'amorçage de nombreuses fissures de CSC-I au droit des joints de grains qu'elles croisent, eux-mêmes orientés à 90° de la contrainte macroscopique. Des amorces sont également observées le long de ces bandes.

Les résultats obtenus dans cette étude montrent qu'il y a deux types d'amorçages menant à des morphologies de fissures légèrement différentes. Les premières observations rapportées dans le chapitre précédent présentent les différences entre des fissures formées à une concentration de 10^{-4} g.g⁻¹, sur matériau irradié (Figure IV.32) et non irradié (Figure IV.7). Les fissures sur matériau irradié présentent en surface une zone sombre ou de relief au milieu, alors que l'on observe plutôt une simple décohésion intergranulaire sur matériau non irradié. Les observations d'amorces sur matériau non irradié se sont limitées à la microscopie optique tandis que quelques observations MEB ont été faites sur matériau irradié. Les zones sombres et/ou de relief en optique sont associées à une attaque chimique localisée, visible au MEB (Figure V.11). Ces attaques localisées sont toujours proches du milieu de la fissure, laissant penser qu'il s'agit de l'endommagement initial. On remarque également l'absence de bandes de déformation autour de ces attaques (Figure V.12).

Mais cette morphologie type des fissures n'est pas observée à toutes les concentrations. A la plus faible concentration (10^{-5} g.g⁻¹), il semblerait que le premier défaut intergranulaire soit lié à la présence d'une bande de déformation (Figure IV.36). Après accumulation d'un certain niveau de déformation, il apparaît que les fissures qui se sont développées à cette concentration ne présentent pas d'attaque localisée (Figure V.13). Comme pour le matériau non irradié, il existerait une transition entre deux modes d'amorçages de fissure, l'un principalement lié à la mécanique et l'autre à une attaque chimique localisée. Mais pour le matériau non irradié, le passage d'un mode à un autre se ferait entre 10^{-4} et 10^{-3} g.g⁻¹, alors que pour le matériau irradié, la transition se situerait plutôt entre 10^{-5} et 10^{-4} g.g⁻¹.

La sensibilité accrue à la CSC-I du matériau irradié proviendrait principalement d'une augmentation de la sensibilité à la corrosion localisée. La localisation de la déformation à l'échelle macroscopique ne serait le moteur de l'endommagement qu'aux faibles concentrations. Mais son effet est très important comparativement au matériau non irradié. D'après les expériences menées par Rozhnov et mentionnées précédemment, la piqûration est nécessairement associée à la présence d'une contrainte appliquée (Rozhnov 2010). L'absence d'essais réalisés à faible contrainte voire sans contrainte ne permet pas de préciser si ces attaques localisées sont la conséquence d'une réactivité chimique favorisée ou de la présence d'une contrainte plus importante (durcissement d'irradiation).

Il avait été dit au Chapitre II que l'on pouvait discerner à l'œil la zone irradiée du reste de la plaque. Elle est plus sombre, signe que malgré le vide pendant l'irradiation, de l'oxyde s'est formé. L'épaisseur de cet oxyde reste malgré tout très faible car l'effet miroir était toujours aussi visible après qu'avant irradiation. Cependant les propriétés des couches d'oxydes sont impactées lorsqu'elles sont formées sous irradiation (changement de phase, dissolution accélérée dans des solutions alcalines,...) (Cox 2005). Il serait intéressant d'étudier avec précision ces couches avant et après irradiation afin de déterminer si ces éventuels changements sont responsables de la sensibilité chimique observée.

Lors de la réception de la plaque irradiée, la présence d'une rayure importante sur la zone irradiée de l'éprouvette n°2 a été constatée. Cette rayure est orientée à 45° de la direction de sollicitation et est clairement visible à l'œil. Les premières fissures de CSC-I sur cette éprouvette ne se sont pas développées sur cette rayure ou à proximité immédiate. Même après accumulation de déformation plastique, on n'observe pas de densité de fissures plus importante à cet endroit. Une concentration locale de contrainte n'implique donc pas un amorçage préférentiel des fissures, renforçant ainsi l'idée d'une sensibilité chimique plus importante.

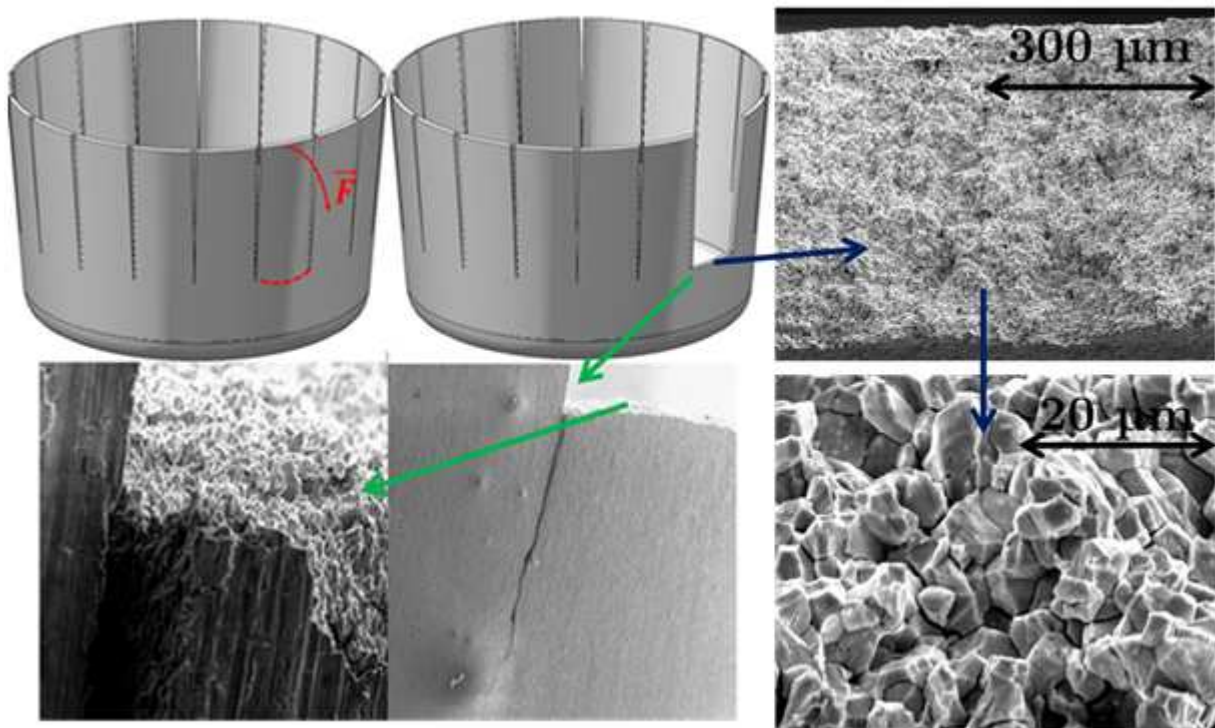


Figure V.14 : Illustration de la rupture manuelle de languettes, sur un godet 100% testé à $6.4 \cdot 10^{-4} \text{ g.g}^{-1}$, par application d'un effort de flexion. Faciès fragile totalement intergranulaire, aucun signe de ductilité. Observations au MEB-FEG.

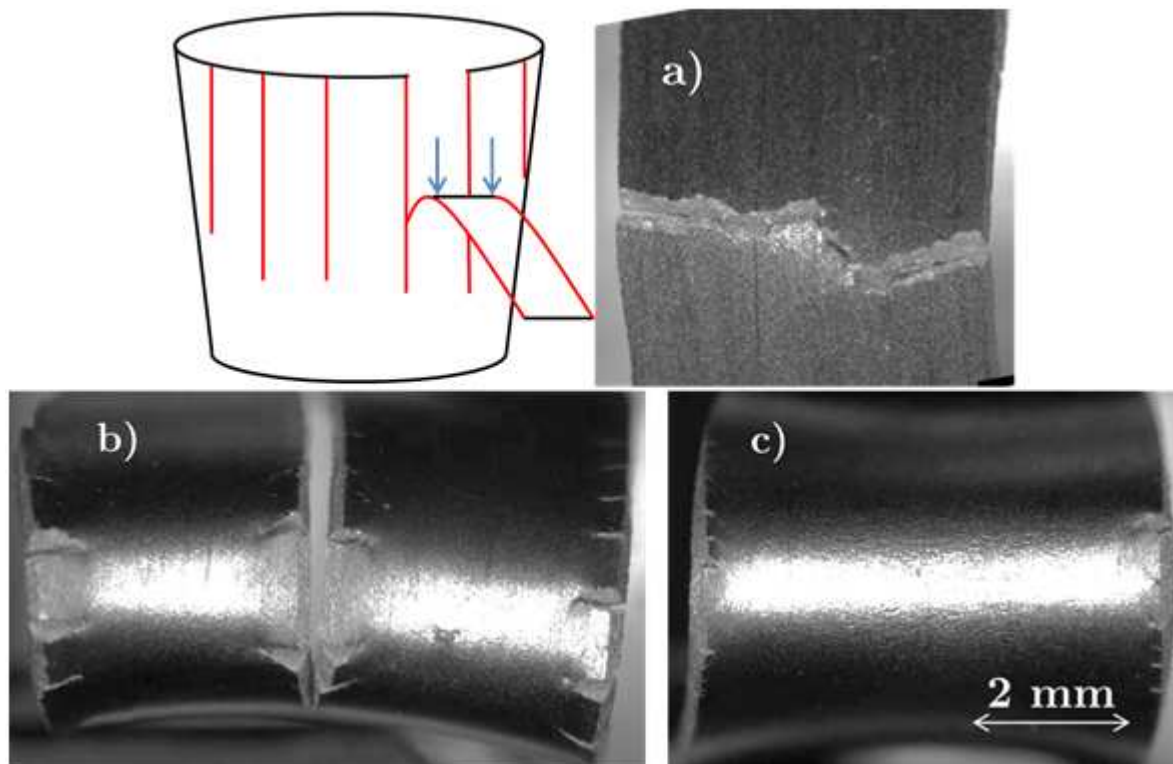


Figure V.15 : Observations optiques de languettes pliées en deux à la moitié de leur longueur environ, pour des godets à avalement total immergés pendant environ 72 h dans des solutions de concentrations différentes : 10^{-3} g.g^{-1} (a, rupture fragile), 10^{-4} g.g^{-1} (b, portions fragiles près des bords) et 10^{-5} g.g^{-1} (c, quasi absence de fragilité).

V.2 Expériences complémentaires

Cette étude s'est principalement attachée à déterminer les conditions mécaniques et chimiques menant à l'amorçage et la propagation des fissures de CSC-I. En variant les conditions expérimentales, il a été possible de mettre en évidence le rôle propre de différentes variables mécaniques et les différences d'amorçage avec la concentration du milieu. Dans cette partie, on traite d'observations et d'expériences plus orientées sur l'analyse des mécanismes mis en jeu. Dans un premier temps, les observations expérimentales, notamment sur les godets, mènent à s'interroger sur une distinction entre fissuration et fragilisation du matériau par l'iode. La réalisation d'immersions d'éprouvettes de flexion suivies d'essais mécaniques à rupture sera alors détaillée. Des études SIMS sur la présence d'iode dans le matériau non fissuré macroscopiquement seront présentées. La mobilité de l'iode implanté dans le matériau est également discutée.

V.2.1 Observations expérimentales et motivation

La phénoménologie de la fissuration des godets a été décrite dans le chapitre précédent. L'immersion dans des solutions de méthanol iodé produit un certain nombre de fissures axiales (dans le repère cylindrique du godet) propageant sur plus de dix millimètres. Dès les premières immersions, une fragilisation des languettes a été constatée, notamment autour de la zone d'arrêt des fissures : en essayant d'arracher ces languettes par flexion pour les observer au MEB, une rupture fragile s'est produite dès la première application de la force (Figure V.14). L'étude du faciès ainsi obtenu montre une rupture totalement intergranulaire, sans aucune ductilité. On précise bien que ces ruptures sont obtenues hors milieu agressif après nettoyage des godets. L'analyse des languettes voisines (non arrachées) au MEB ne permet pas de distinguer des fissures visibles à cette échelle et pourtant ces languettes cassent de la même façon. La corrosion (dissolution) intergranulaire des Zircalloys par des solutions de méthanol iodé est un phénomène connu observé en présence ou non de contrainte (Cox 1970; Elayaperumal 1972; Nicholson 1980; Duffo 2005). Mais il est surprenant de trouver des portions de matériau présentant un chemin complet de fissuration IG sur leur section (bien que plus vallonné qu'une rupture par CSC-I), sans pour autant avoir rompu par CSC-I. Ces godets ont été manipulés à la main hors milieu, nettoyés, placés sur des porte-échantillons pour observations optiques notamment, et jamais une rupture spontanée des languettes n'a été constatée. Ces languettes semblent donc garder une certaine résistance mécanique, ce qui va à l'encontre d'une dissolution totale des joints de grains. L'aspect totalement intergranulaire des ruptures, et donc l'absence de rupture ductile, montrerait qu'un mécanisme de fragilisation des joints de grains pourrait coexister avec la dissolution.

Il est intéressant aussi de noter l'hétérogénéité de cette fragilisation sur une même languette et les variations avec la concentration. Les languettes ne sont pas partout aussi fragiles qu'à leur base (près des zones d'arrêt des fissures axiales). Plus on se rapproche du sommet du godet, et plus on retrouve de la ductilité. Pour des concentrations inférieures à $5 \cdot 10^{-4} \text{ g.g}^{-1}$ et des temps d'exposition proches de 72 h, on ne peut pas casser les languettes en les pliant en deux. On observe la présence de portions fragiles, notamment près des bords de la languette (faciès de rupture des fissures axiales), mais la ductilité domine largement (Figure V.15). Proche du sommet du godet, aucune fragilisation n'est mise en évidence. La fragilité semble apparaître aux bords des languettes puis propager vers leur centre (Figure V.15). Elle part donc du métal mis à nu lors de la fissuration des godets et son étendue dépend de la concentration de la solution. Les zones fissurées au sommet du godet sont celles qui ont été mises à nu le plus rapidement et pourtant elles ne sont pas aussi fragiles. Ce sont également les zones dont les contraintes ont été le plus rapidement relaxées par la fissuration.

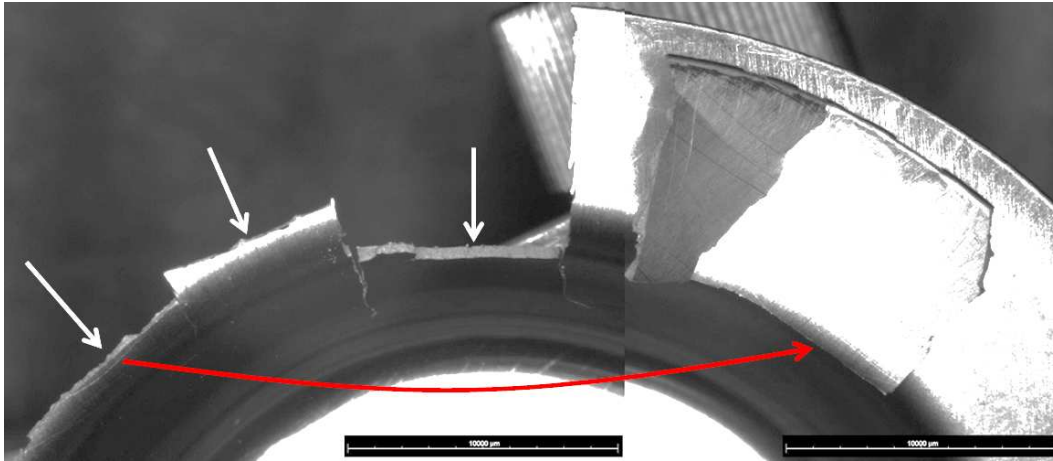


Figure V.16 : Partie du godet 60% n°1 (10^{-3} g.g^{-1}) vue de haut, après fissuration. Fragilisation prononcée du godet au niveau du coude et arrachage d'une portion de la collette.

Les godets à avalements partiels présentent également une telle fragilité, principalement près des zones d'arrêt des fissures axiales. Sur ces godets, on remarque aussi une fragilité particulièrement importante au bas du coude de la collette (Figure V.16). Les calculs par éléments finis avaient montré qu'il s'agissait des zones de contrainte maximale avant et après fissuration.

Cette fragilisation mise en évidence serait donc très dépendante de l'état de surface du matériau (présence ou non d'une couche d'oxyde) et de la contrainte appliquée. Elle montre également que la présence d'iode, supposé responsable de la fragilisation du matériau, n'est pas synonyme d'une fissuration complète des joints de grains. Pour étudier plus en détail ce point, des éprouvettes de flexion ont été immergées dans des solutions de méthanol iodé à différentes concentrations et pour des durées variables afin de suivre l'évolution de la fragilité. En utilisant des concentrations moyennes et importantes, on essaie également d'étudier les différences de comportement de part et d'autre de la concentration de transition mise en évidence lors des différents essais.

V.2.2 Immersion d'éprouvettes sans contrainte appliquée

V.2.2.1 Etude de la perte de ductilité après immersion

Dans un premier temps, des éprouvettes de flexion (2 mm x 40 mm x épaisseur) polies ont été immergées dans des solutions de méthanol iodé à 10^{-3} et 10^{-4} g.g^{-1} , soit de part et d'autre de la concentration de transition. Les tranches des éprouvettes sont protégées par de la pâte siliconée avant immersion. Après quelques dizaines d'heures d'immersion, la pâte a perdu de l'adhérence et la protection n'est peut-être plus effective. Comme les résultats le laissent penser, la non-protection des tranches n'apparaît pas primordiale en l'absence de sollicitation mécanique appliquée. Les éprouvettes sont déposées au fond d'un bocal, de telle sorte qu'une face est privilégiée pour l'exposition. A des temps donnés, une ou plusieurs éprouvettes sont prélevées, nettoyées et testées par flexion trois points sur la machine de traction à la vitesse de 1 mm.s^{-1} . La force maximale appliquée est alors extraite et comparée à celle de référence, définie pour une éprouvette non exposée au milieu et testée dans les mêmes conditions. Le critère de ductilité retenu est le rapport de la contrainte maximale à la contrainte de référence. Cette contrainte est calculée avec la formule de résistance des matériaux pour la flexion trois points. Au-delà du domaine élastique, cette contrainte n'a plus de sens physique mais on ne s'intéresse ici qu'à la variation de cette contrainte suite à une exposition.

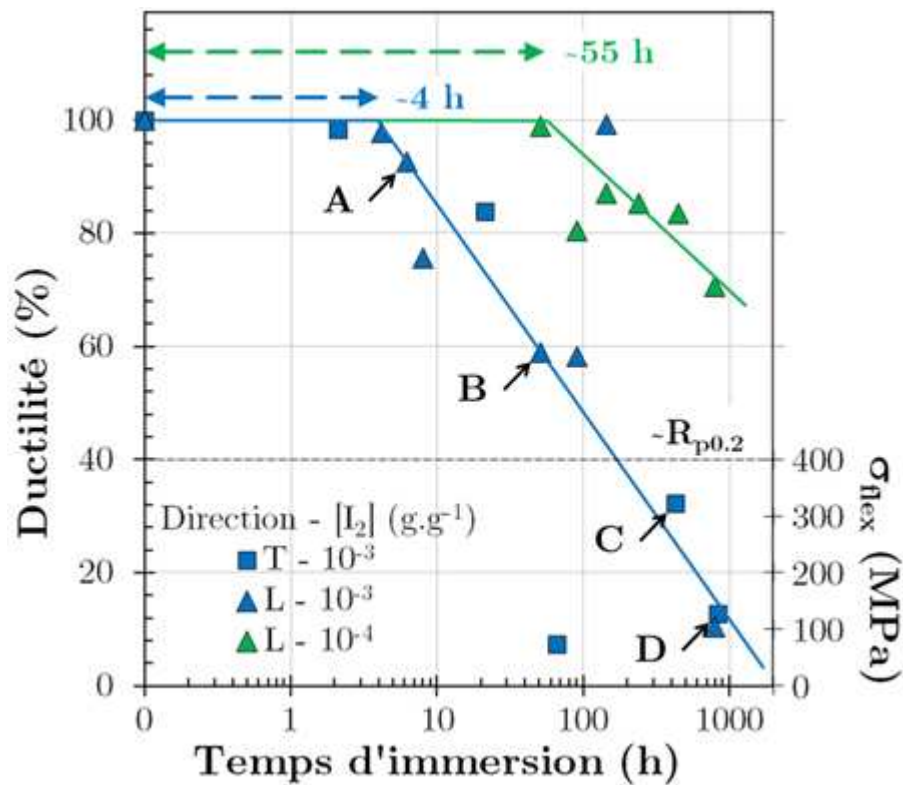


Figure V.17 : Evolution de la ductilité relative (prise comme la force maximale lors de l'essai de flexion trois points) avec le temps d'immersion d'éprouvettes de direction T (carrés) ou L (triangles) dans des solutions de méthanol iodé à 10^{-3} g.g $^{-1}$ (bleu) et 10^{-4} g.g $^{-1}$ (vert). Les lettres désignent les échantillons présentés sur la figure suivante.

Les résultats de ces essais sont donnés sur la Figure V.17. La ductilité est tracée en fonction du temps d'immersion. Il apparaît que la perte de ductilité est linéaire avec le logarithme du temps d'immersion, à partir d'un temps T_0 . T_0 est donc le temps minimal au-delà duquel la corrosion par l'iode a un impact sur le comportement macroscopique du matériau. Il se pourrait que ce soit le temps minimal pour que l'iode déstabilise/traverse la couche d'oxyde et commence à affecter le volume. Pour les concentrations de 10^{-4} et 10^{-3} g.g $^{-1}$, on trouve respectivement un T_0 de 55 h et de 4 h. Ce dernier est très proche du temps minimal à rupture mis en évidence à 10^{-3} g.g $^{-1}$ sur les essais de fluage en flexion quatre points, renforçant l'idée du temps minimal de déstabilisation de la couche d'oxyde. A 10^{-4} g.g $^{-1}$, on observe des temps à rupture en fluage en flexion beaucoup plus faibles que les 55 h trouvées ici. On mettrait ainsi en évidence le rôle de la contrainte dans le franchissement de la barrière initiale.

On constate la très grande différence de comportement entre les deux concentrations testées. Le temps minimal est divisé par près de 15 quand la concentration est multipliée par 10. Avec le temps imparti pour ces essais, il n'a pas été possible d'en réaliser pour des concentrations intermédiaires, pour déterminer si le passage de 10^{-3} à 10^{-4} g.g $^{-1}$ est progressif ou abrupt au passage de la concentration de transition. Le temps minimal n'est peut-être pas la seule manifestation d'une transition abrupte car le taux de perte de ductilité au-delà est très différent également. A 10^{-3} g.g $^{-1}$, il faut environ 15 h pour perdre 30% de ductilité, contre plus de 700 h à 10^{-4} g.g $^{-1}$. Par ailleurs, les données obtenues à forte concentration ne mettent pas en évidence de rupture de pente due à l'arrêt de protection des tranches par la pâte siliconée.

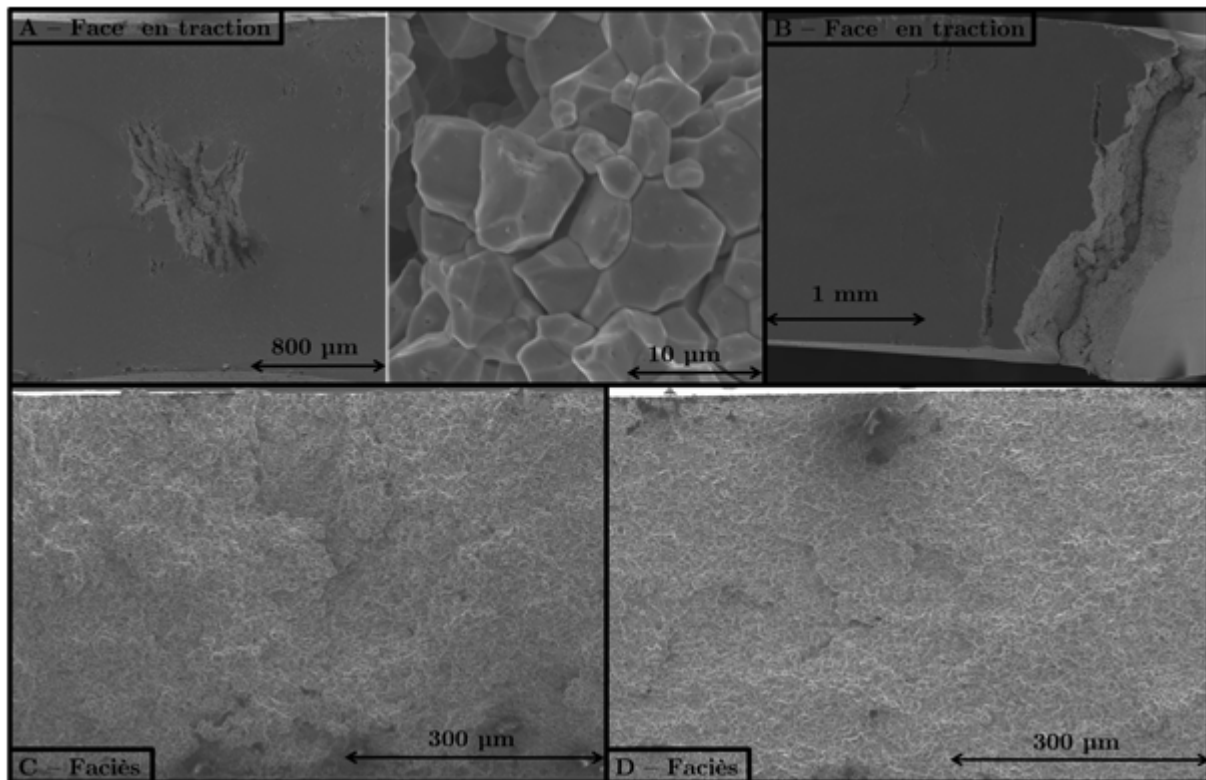


Figure V.18 : Endommagement intergranulaire sur les éprouvettes mentionnées par une lettre sur la figure précédente, obtenu après essais de flexion trois points suivant des durées variables d'immersion. ($A < B < C < D$). Observation au MEB de l'évolution du dommage jusqu'à l'obtention d'une rupture totalement fragile.

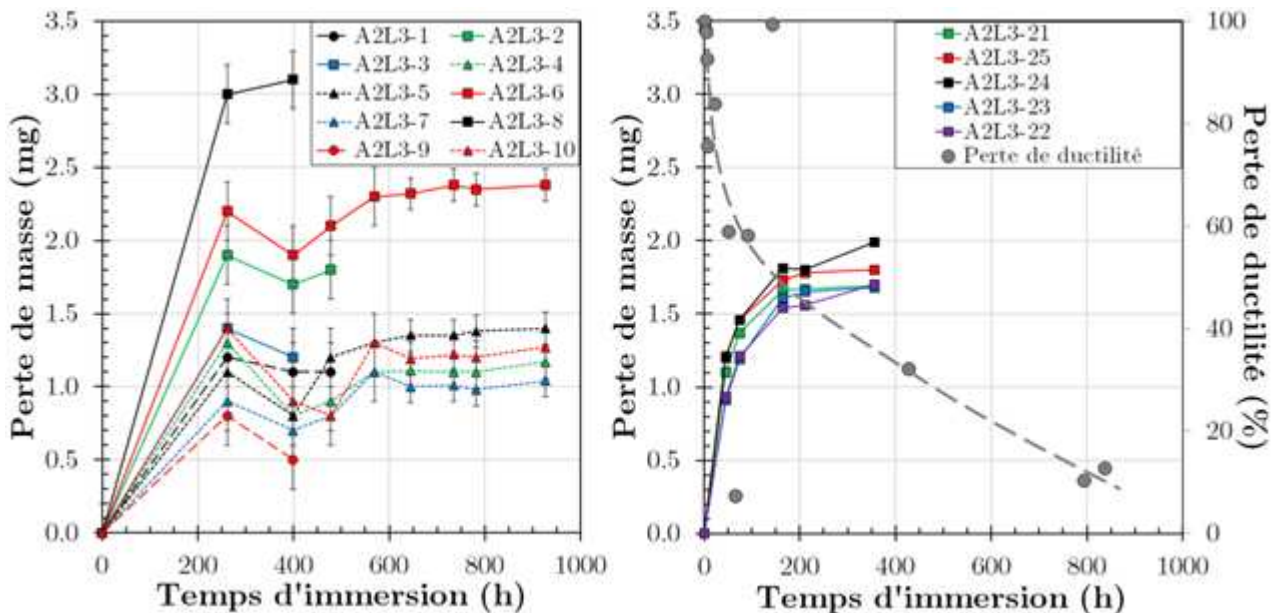


Figure V.19 : Evolution de la perte de masse d'éprouvettes de flexion immergées dans une solution de méthanol iodé à 10^{-3} g.g^{-1} en fonction du temps d'immersion. Avec des éprouvettes déposées au fond du bocal et pesées sur la balance à faible précision (gauche) ou maintenues droites et pesées avec la balance de précision (droite). Illustration de la meilleure reproductibilité des mesures dans le second cas. Comparaison avec la cinétique de perte de ductilité identifiée avec d'autres éprouvettes dans le paragraphe précédent (droite).

Les éprouvettes rompues, partiellement ou totalement, ont été observées au MEB, notamment à forte concentration (Figure V.18). Aucun endommagement fragile transgranulaire n'a été mis en évidence. On voit l'évolution du dommage au départ centré sur la face de l'éprouvette testée en traction, signe que la protection des tranches par la pâte fonctionne, au moins au début de l'immersion (échantillon A). Très vite, la zone endommagée intergranulaire rejoint les tranches de l'éprouvette et semble propager avec un front rectiligne vers la face opposée (échantillon B). Pour des immersions de plus de 300 h, une rupture complètement fragile est obtenue lors de l'essai de flexion qui a suivi l'immersion (échantillon C et D). Si le faciès de rupture est totalement intergranulaire pour ces deux derniers échantillons, les contraintes à rupture sont très différentes. Sur la Figure V.17 on a ajouté l'axe secondaire indiquant la contrainte de flexion appliquée, obtenue à partir de la formule de résistance des matériaux quand celle-ci est valable, à savoir dans le domaine élastique. Ainsi, pour des éprouvettes de direction T, on constate que la contrainte à rupture passe de 326 à 129 MPa quand la durée d'immersion augmente de 426 à 837 h, pour un même type de rupture. Cela confirmerait l'existence d'une fragilisation progressive par l'iode du matériau. L'iode a bien affecté toute la section de l'éprouvette à partir d'une durée d'immersion de moins de 400 h, mais le degré de fragilisation augmente encore au-delà de cette durée.

On observe également sur la Figure V.17 qu'il y a une certaine dispersion des résultats, notamment à forte concentration. Il arrive que la zone sollicitée par la flexion trois points présente une résistance importante et se plie de façon ductile alors que, de part et d'autre de la zone pliée, l'éprouvette se casse très facilement. L'attaque intergranulaire n'est donc sans doute pas parfaitement uniforme. Cependant, quelques observations au microscope optique n'ont pas permis de mettre en évidence une attaque localisée de type piqure en surface des échantillons. Il se pourrait aussi que dans certains cas la face exposée ne soit pas celle en traction lors de la flexion.

V.2.2.2 Etude de la perte de masse

Les résultats précédents semblent indiquer qu'un phénomène de fragilisation opère en parallèle de la dissolution intergranulaire. Pour étayer cette thèse, la perte de masse d'éprouvettes immergées a été suivie et sa cinétique comparée à celle de la perte de ductilité présentée au paragraphe précédent. Par manque de temps, seule la plus forte concentration en iode a été testée (10^{-3} g.g⁻¹). On s'attend à des pertes très faibles. Pour que les mesures ne soient pas faussées par un décollement progressif ou brutal de la pâte siliconée, ces essais d'immersions et de pesées sont réalisés sur éprouvettes polies sans protection des tranches. Dans chaque bocal contenant la solution, les éprouvettes sont soit déposées au fond, soit placées dans des petits demi-cylindres creux en plastique afin d'exposer les deux faces des échantillons et de les maintenir droites. Deux balances différentes ont été utilisées : les premières mesures ont une incertitude dix fois supérieure aux plus récentes (0.1 mg contre 0.01 mg). Les pertes de masses sont exprimées en mg. Si l'on suppose que la non-protection des tranches n'a pas d'effet sur la corrosion, les éprouvettes de flexion ont toutes la même surface exposée au milieu. Des éprouvettes de traction (surface plus importante) ont été utilisées, et seront comparées entre elles.

Les cinétiques de perte de masse des éprouvettes sont données sur la Figure V.19, avec deux lots d'éprouvettes pesées régulièrement avec des précisions différentes, et placées différemment dans les bocaux. Les courbes présentent une allure croissante avec saturation au bout de quelques centaines d'heures d'exposition. La disposition des éprouvettes dans les bocaux a un effet bien plus important que la précision des mesures. Quand elles sont correctement positionnées, on observe une dispersion de l'ordre de 0.2 mg. La perte de masse confirme l'existence d'un phénomène de dissolution. Il apparaît que la perte de masse

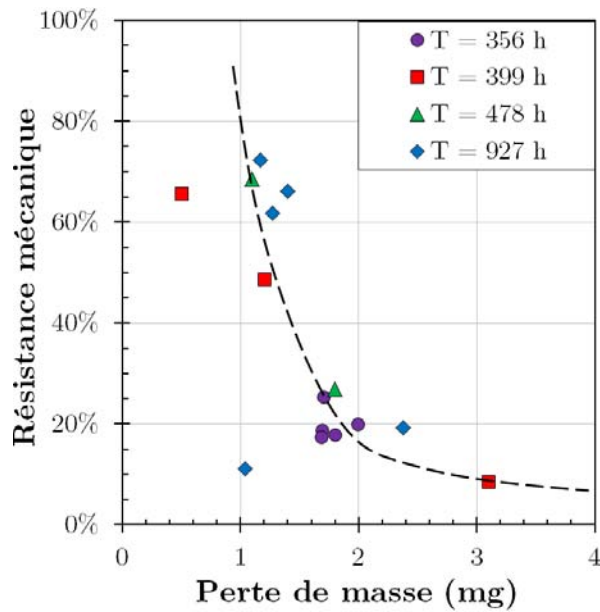


Figure V.20 : Lien entre perte de masse et perte de résistance mécanique, pour différents temps d'exposition dans une solution de méthanol iodé à 10^{-3} g.g^{-1} . Cas des éprouvettes ayant servi à la détermination de la cinétique de perte de masse uniquement. L'incertitude sur la perte de masse n'est pas représentée.

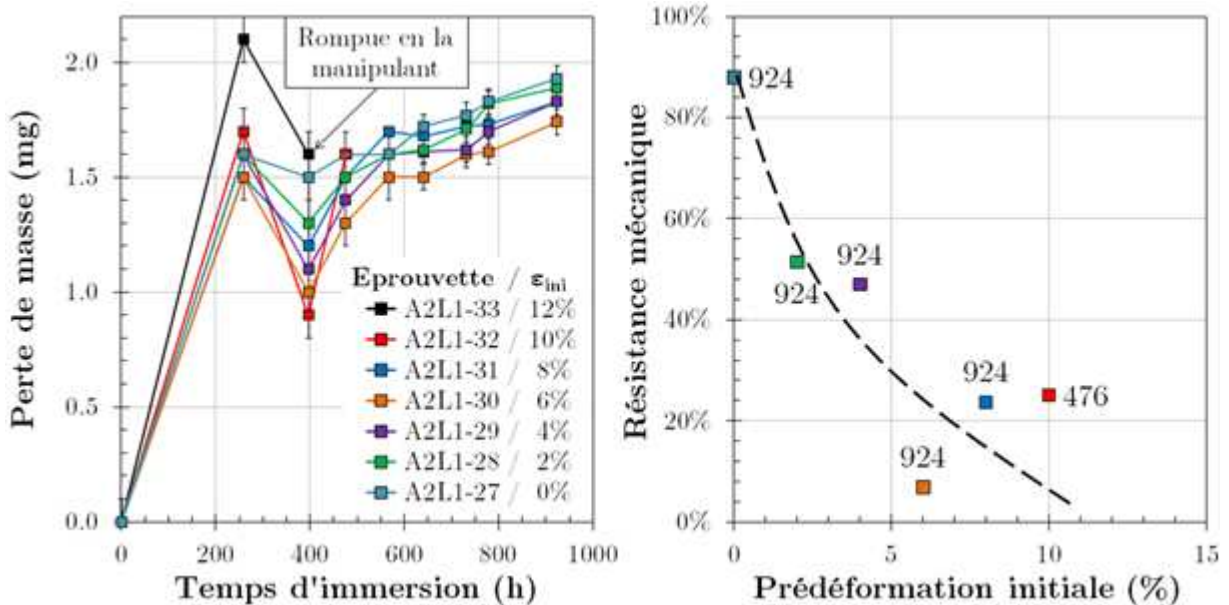


Figure V.21 : Evolution de la perte de masse des éprouvettes de traction pré-déformées (gauche) et résistance mécanique après la fin des immersions (droite). Les durées d'immersions pour chaque point sont précisées à droite. L'éprouvette pré-déformée à 12% a rompu lors de son séchage (400 h) n'a donc pu être testée mécaniquement. Celle à 10% présentait une fissure à la troisième pesée (476 h) et a alors été testée.

se stabilise dès 200 h d'immersion tandis que la perte de ductilité évolue progressivement jusqu'à 1000 h. Cette saturation vers 200 h est cohérente avec les résultats précédents montrant que le faciès de rupture est 100% IG pour des échantillons immergés pendant 400 h ou 800 h. L'iode atteindrait la demi-épaisseur des éprouvettes (210-230 μm) en 200 h, sans avoir totalement fragilisé le matériau : le faciès est certes totalement fragile, mais la résistance mécanique peut encore diminuer. Un temps d'exposition supérieur à 1000 h serait nécessaire pour faire perdre toute résistance mécanique aux éprouvettes immergées. Mais on compare ici différentes éprouvettes, dont certaines n'ont servi qu'au suivi de la perte de ductilité. Toutes les éprouvettes servant au suivi de la perte de masse ont été rompues par flexion trois points, certaines avant le temps final d'exposition. On peut alors tracer directement la perte de résistance en fonction de la perte de masse (Figure V.20). Une tendance est clairement mise en évidence et les différences de résistance pour un même temps d'exposition semblent uniquement liées aux différences de perte de masse. Il y aurait donc toujours un caractère aléatoire ou tout du moins une dispersion « naturelle », concernant l'attaque de l'iode. On remarque que la perte de masse de 1 à 2 mg entraîne une forte chute de la résistance, qui semble freiner et éventuellement se stabiliser au-delà. Là encore ces résultats ne sont pas incompatibles avec une fragilisation des joints de grains qui se poursuit après la pénétration totale de l'iode. Il semble également y avoir un seuil en perte de masse vers 1 mg, en deçà duquel la perte ne semble pas avoir d'effet sur la résistance mécanique. Ce point sera ré-abordé dans la suite.

V.2.2.3 Influence d'une pré-déformation

Des éprouvettes de traction polies ont été pré-déformées à différents niveaux (0, 2, 4, 6, 8, 10 et 12%) puis immergées dans une solution de méthanol iodé, toujours à la même concentration de 10^{-3} g.g^{-1} . Leur perte de masse a été périodiquement suivie. Après immersion, les éprouvettes ont été testées mécaniquement, par flexion trois points au milieu de leur partie utile. Les résultats sur ces éprouvettes sont donnés sur la Figure V.21. Comme pour le premier lot d'éprouvettes de flexion immergées et pesées, on observe une chute de la perte de masse à 400 h d'immersion. Les immersions ayant été menées en parallèle et démarrées au même moment, il est probable que cette chute ne soit due qu'à un mauvais réglage de la balance pour cette série de pesées.

Les résultats montrent que la fragilisation des éprouvettes est très différente selon le niveau de pré-déformation et que la perte de masse ne semble pas être le paramètre pertinent pour l'expliquer. Les deux éprouvettes avec les niveaux les plus élevés ont montré des signes d'endommagement bien avant la fin de l'immersion. La plus pré-déformée (12%) a ainsi rompue lors du séchage à l'air comprimé pour la deuxième série de pesées. Lors de la troisième série, la présence d'une fissure a été constatée sur l'éprouvette pré-déformée à 10% après séchage également ; elle a alors été testée plutôt que remise dans le bocal. Pour les autres éprouvettes, les évolutions de perte de masse sont parallèles et les valeurs respectives de perte de masse n'ont pas de lien avec le niveau de pré-déformation. La perte de masse finale pour ces éprouvettes montre peu de dispersion, entre 1.7 et 1.9 mg. Ces valeurs sont proches de celles trouvées sur éprouvettes rectangulaires présentées précédemment. Malgré ce faible écart de perte de masse finale, la résistance mécanique après immersion varie nettement avec le niveau de pré-déformation, pour atteindre entre 10 et 90% de la résistance avant exposition (sans pré-déformation) à 10%.

Une pré-déformation implique donc une fragilisation accrue du matériau par l'iode, et les suivis de perte de masse semblent indiquer que cela n'est pas lié à un phénomène de dissolution. Les calculs polycristallins de Diard sur un alliage de zirconium recristallisé montrent que plus on accumule de la déformation et plus les contraintes normales aux joints de grains peuvent être importantes (Diard 2005). Ces calculs sont réalisés à chargement monotone mais on peut supposer qu'une pré-déformation plastique va engendrer des

contraintes intergranulaires résiduelles de plus en plus importantes avec le niveau de pré-déformation. Si l'on suit cette piste, les contraintes intergranulaires résiduelles favoriseraient donc une perte de résistance mécanique après exposition à l'iode. On imagine alors que les joints sollicités ont rompu en la présence simultanée de contrainte et d'iode. Puisque l'effet du pré-chargement n'est pas visible sur la perte de masse, le mode de rupture de ces joints n'est peut-être pas de la dissolution. Cela confirmerait donc l'hypothèse de deux modes de fissuration intergranulaire en présence d'iode, l'un étant de la dissolution et ne nécessitant pas de contrainte, et l'autre activé par la pré-déformation et donc les contraintes intergranulaires résiduelles. Ce dernier pouvant éventuellement se rapprocher d'un mécanisme d'adsorption-fragilisation comme souvent avancé pour la rupture transgranulaire.

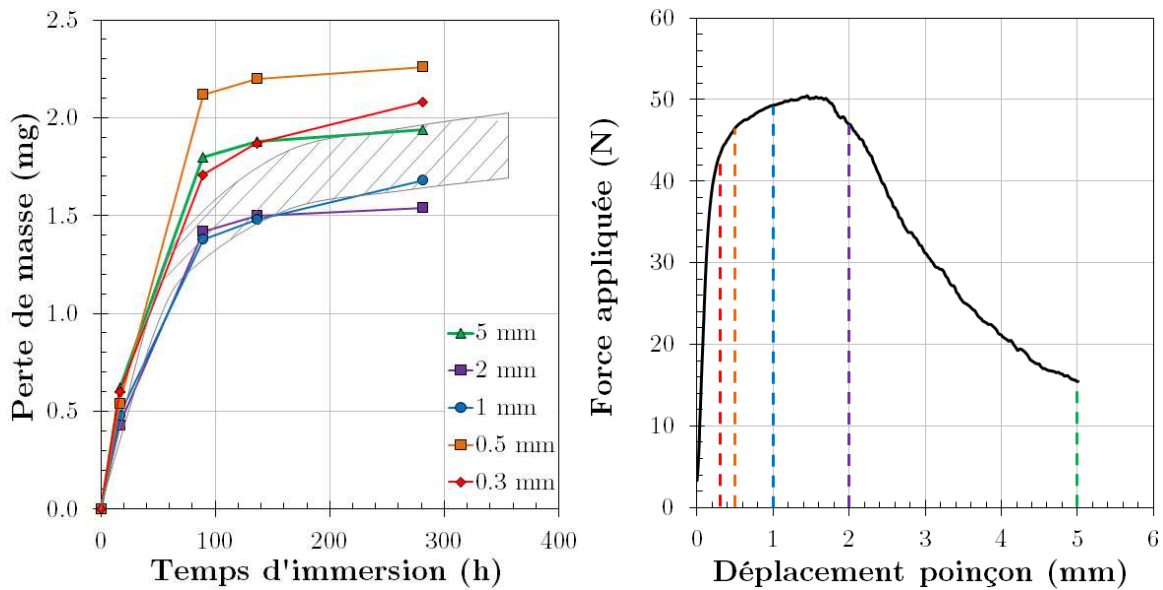


Figure V.22 : Perte de masse (gauche) d'éprouvettes de flexion trois points, pliées à différents niveaux (droite) avant exposition au méthanol iodé (10^{-3} g.g^{-1}). La zone hachurée correspond à la perte de masse d'éprouvettes non pliées, mentionnées précédemment.

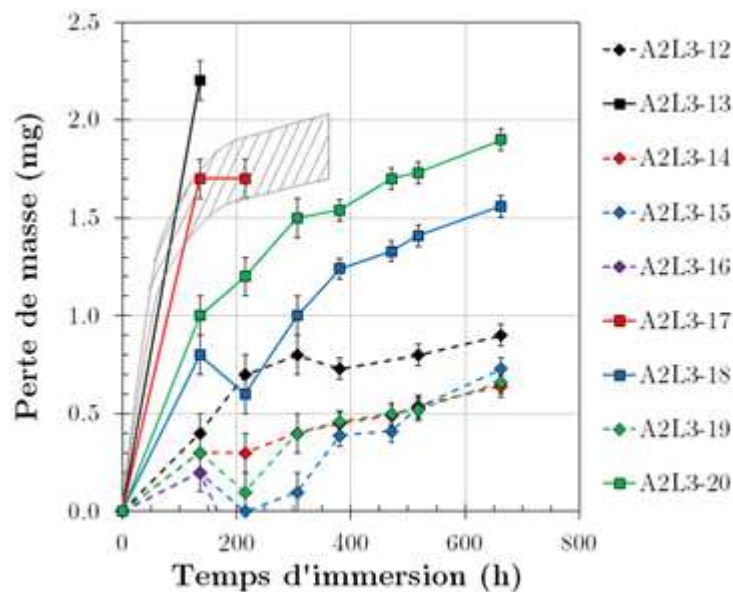


Figure V.23 : Perte de masse du premier lot d'éprouvettes pré-oxydées immergées dans une solution de méthanol iodé à 10^{-3} g.g^{-1} . La zone hachurée délimite les pertes de masse des éprouvettes non pré-oxydées.

V.2.2.4 Influence d'une contrainte résiduelle macroscopique

Certaines éprouvettes ont été pliées par flexion trois points avant immersion, afin d'observer un éventuel effet des contraintes résiduelles. Lors du pliage des éprouvettes, la plastification est hétérogène, de telle sorte qu'après déchargement, il subsiste des contraintes de traction sur la face déformée en compression. En pliant plus ou moins sévèrement les éprouvettes, on espère mettre en évidence un effet des contraintes résiduelles sur la perte de masse, puisque la pré-déformation ne semble pas jouer sur cette perte. Les résultats sont présentés sur la Figure V.22.

Les pertes de masses observées sont proches de celles des éprouvettes non pré-déformées vues précédemment. Les différences de perte ne suivent aucune tendance avec le niveau de déformation par flexion. Des calculs par éléments finis semblent être nécessaires pour analyser ces résultats. Il est possible que la zone en traction ne représente qu'une très faible proportion de la surface exposée et que son effet sur la perte de masse soit ainsi passé inaperçu. En ce qui concerne la fragilité de telles éprouvettes après près de 300 h d'immersion, on n'a pas pu la quantifier, ne disposant pas d'essai mécanique adapté. Les éprouvettes ont été « dépliées » manuellement et toutes ont cassé de façon fragile dès l'application de la force.

La fragilité des languettes de godets à avalement total montre que l'influence des contraintes présentes lors de l'exposition au milieu corrosif sur la fragilisation intergranulaire après exposition est très importante. En effet, cette fragilité est observée dès 72 h d'immersion alors que l'on a vu qu'en l'absence de contrainte, il fallait plus de 200 h pour obtenir un faciès de rupture totalement intergranulaire sur éprouvettes immergées. Cette différence de cinétique de fragilisation n'est pas imputable à la déformation plastique uniquement puisque les languettes sont bien plus déformées vers le sommet du godet que dans les zones proches des lieux d'arrêts des fissures axiales (Figure III.38). Dans les deux cas, du métal a été mis à nu à proximité. On imagine que les contraintes sur le front de fissure, présentes mais pas assez importantes pour propager cette fissure, agissent comme moteur de la pénétration de l'iode dans le matériau. Quelques pistes de réponse seront données dans le paragraphe traitant des analyses SIMS.

V.2.2.5 Influence d'une couche d'oxyde

Plusieurs séries d'éprouvettes de flexion ont été oxydées afin d'étudier l'influence d'une épaisse couche d'oxyde sur la corrosion intergranulaire. Les éprouvettes ont subi un traitement thermique à l'air, de 450°C pendant 5 jours. La prise de masse des éprouvettes a été mesurée et permet d'estimer l'épaisseur de la couche d'oxyde à environ 2.2 μm (§ II.3.1.2).

Le premier lot d'éprouvettes oxydées a été testé comme les premières éprouvettes, en les plaçant au fond d'un bocal et en suivant la perte de masse avec la balance peu précise. La concentration utilisée est toujours 10^{-3} g.g^{-1} . Les pertes de masses mesurées sont données sur Figure V.23. Une dispersion très importante des résultats est constatée, mais il apparaît clairement que la présence de la couche d'oxyde ralentit la perte de masse. Le premier intervalle de temps avant pesée est peut-être trop important pour conclure, mais il semble que la présence de la couche d'oxyde épaisse n'induit pas un seuil pour la perte de masse. On aurait pu penser que cette perte serait décalée dans le temps du fait de l'oxyde à déstabiliser/traverser, mais on observe plutôt ici un changement de pente, et un même temps de démarrage.

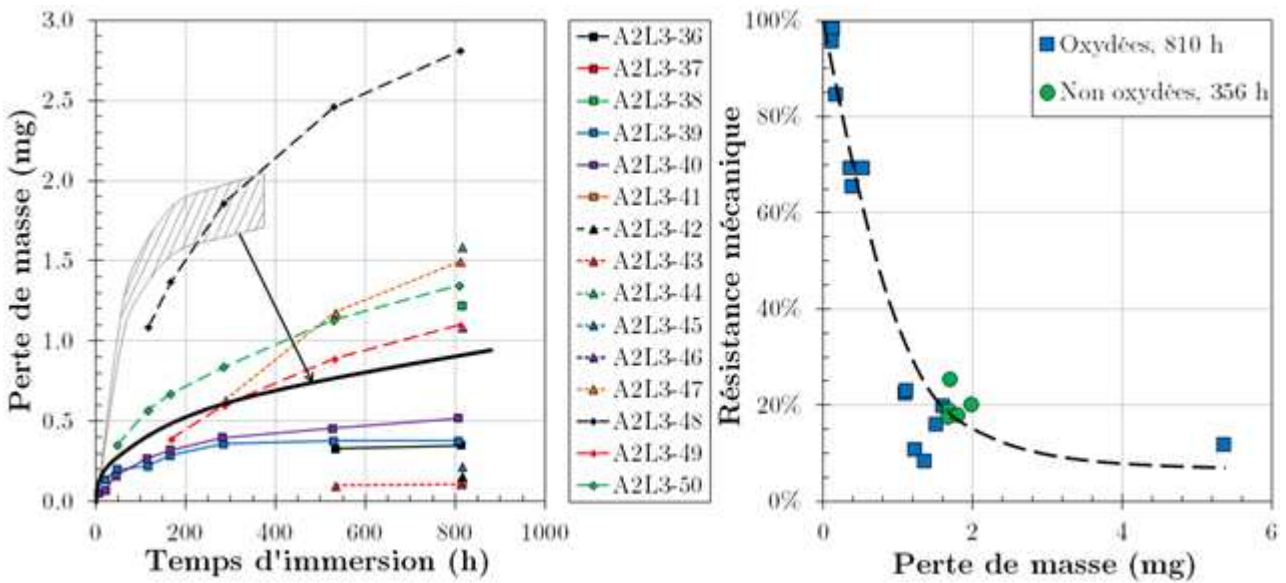


Figure V.24 : Perte de masse du second lot d'éprouvettes oxydées immergées dans une solution de méthanol iodé à 10^{-3} g.g^{-1} (gauche). La zone hachurée délimite les pertes de masse des éprouvettes non pré-oxydées. La ligne épaisse noire est une moyenne lissée des pertes de masse à la première sortie des éprouvettes. La flèche noire indique l'effet de la pré-oxydation. Evolution de la résistance mécanique en fonction de la perte de masse, pour des éprouvettes pré-oxydées ou non, testées dans des conditions favorables (droite).

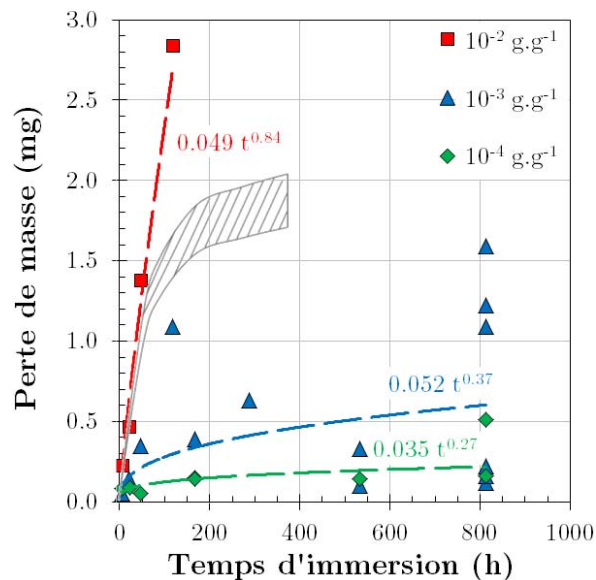


Figure V.25 : Pertes de masse d'éprouvettes pré-oxydées immergées dans des solutions de méthanol iodé à des concentrations de 10^{-4} g.g^{-1} (vert), 10^{-3} g.g^{-1} (bleu) et 10^{-2} g.g^{-1} (rouge), déterminées par la première pesée des différentes éprouvettes. La zone hachurée délimite les pertes de masse des éprouvettes non pré-oxydées pour une concentration de 10^{-3} g.g^{-1} . Ajout des fonctions puissances ajustant les données (traits discontinus).

On donne ici deux pistes pour expliquer ces résultats. La première serait que l'oxyde créé pendant le traitement thermique n'est pas continu et ne recouvre pas l'ensemble de la surface de l'éprouvette. La présence de cet oxyde non protecteur ralentirait la perte de masse en protégeant une partie des sites propices à la dissolution. La seconde explication consisterait à dire que la dissolution de l'oxyde, plus lente que celle du métal, fait partie du processus d'endommagement. Des mesures à intervalles plus rapprochés permettraient éventuellement d'observer une cassure de pente lorsque la dissolution passe de l'oxyde au métal. Si l'iode pénétrait dans l'oxyde aussi vite que dans le métal (environ 200 h pour 250 μm), l'effet des 2.2 μm d'oxyde serait visible seulement lors des deux premières heures. Si la traversée de l'oxyde était dix fois plus lente, un intervalle minimum de 20h serait nécessaire.

A plusieurs reprises lors des pesées il a été remarqué que les arêtes de quelques éprouvettes étaient abimées : la couche d'oxyde s'est localement fracturée et du métal est mis à nu. A chaque série de pesées, les éprouvettes sont manipulées à l'aide d'une pince en plastique. Il semblerait que l'oxyde soit très fragile. De telles ruptures locales peuvent fausser les mesures de perte de masse. Un autre lot d'éprouvettes oxydées a été testé, dans de meilleures conditions, et les éprouvettes ne sont pas toutes extraites à chaque série de pesées. Pour chaque série, et donc à un temps donné, une éprouvette est extraite et pesée pour la première fois. N'ayant pas été manipulée au préalable, on accorde plus de crédit à la mesure de sa masse. Elle est ensuite ré-immersée et sera repesée à chaque série ultérieure. On obtient alors les évolutions présentées sur la Figure V.24 à gauche. A l'exception d'une éprouvette, on confirme la réduction de perte de masse quand une couche d'oxyde est présente. La perte de masse moyennée pour les premières pesées des éprouvettes montre une division par trois en présence de la couche d'oxyde. Des éprouvettes ont été pesées après des faibles temps d'immersion (5 h), et on ne constate toujours pas l'existence d'un seuil en temps lié à la traversée de l'oxyde.

Ces éprouvettes ont été rompues par flexion après immersion et la perte de résistance mécanique est tracée en fonction de la perte de masse sur la Figure V.24 à droite. Il apparaît clairement que les deux pertes sont reliées, et qu'il n'y a pas de perte de masse minimale à atteindre pour affecter le comportement macroscopique, comme supposé précédemment. Il semblerait que la couche d'oxyde n'ait qu'un rôle de tampon dans la dissolution intergranulaire. Sa traversée ralentit l'accès de l'iode au métal et les pertes de masses sont plus lentes. A cette concentration en iode, il ne semble pas exister d'étape préliminaire consistant à déstabiliser ou rompre la couche d'oxyde avant d'attaquer le métal. La masse de la couche d'oxyde est du même ordre que la perte de masse à la fin des immersions et pourtant les éprouvettes sont alors totalement fragilisés. La dissolution globale de l'oxyde n'est donc pas envisageable.

Deux autres lots d'éprouvettes oxydées ont été testés à des concentrations de 10^{-4} g.g^{-1} et 10^{-2} g.g^{-1} pour observer l'effet de la concentration en iode en présence d'une couche d'oxyde. Les cinétiques de perte de masse sont obtenues en utilisant la première pesée des différentes éprouvettes. Les résultats sont présentés sur la Figure V.25. Même à la plus faible concentration, on ne constate pas de seuil pour le passage de l'oxyde. Les cinétiques ont une forme puissance dont l'exposant augmente avec la concentration en iode. A 10^{-2} g.g^{-1} , la perte de masse est presque linéaire avec le temps. La dissolution des joints ne semble donc pas limitée par un phénomène de diffusion des espèces dans le matériau, du moins à cette concentration. La dissolution est fortement accentuée entre 10^{-3} et 10^{-2} g.g^{-1} . Pour un temps d'immersion proche de 120h, la perte de masse est dix fois plus importante, 2.84 mg contre 0.30 mg. Entre 10^{-4} et 10^{-3} g.g^{-1} , l'augmentation n'était que d'un facteur 2 environ, de 0.13 à 0.30 mg.

Les mesures de perte de masse à 10^{-2} g.g^{-1} n'ont pas pu être faites pour plus de 200 h d'immersion car les éprouvettes ont alors rompu dans le bocal. Aucun essai de flexion n'a donc pu être mené pour évaluer la résistance mécanique, qui doit être quasi nulle. On constate visuellement que la couche d'oxyde semble boursouflée, décollée du métal à différents endroits. Cela donne une impression de bulle sous la couche, de diamètre de l'ordre d'un demi-millimètre, visible à l'œil nu. Il est donc possible, avec du temps et une concentration suffisante, de dissoudre complètement les joints de grains d'une éprouvette sur une section.

A 10^{-4} g.g^{-1} , pour des temps d'immersion allant jusqu'à 900 h, la fragilisation des éprouvettes pré-oxydées reste partielle ; celles-ci gardent en moyenne plus de 80% de leur ductilité. Sans pré-oxydation, la tendance mise en évidence sur la Figure V.17 montre que les éprouvettes gardent de 70% de leur ductilité après 1000 h d'exposition. On n'observe donc que peu d'influence de la couche d'oxyde à cette concentration. Cela pourrait être le signe qu'un changement de mécanisme de fragilisation est présent entre 10^{-4} et 10^{-3} g.g^{-1} .

V.2.2.6 Discussion des résultats d'immersion de languettes

Suite aux observations expérimentales d'échantillons présentant une fragilité, plusieurs séries d'immersions ont été réalisées. Les résultats suggèrent qu'en l'absence de contrainte ou de déformation macroscopiques appliquées, l'endommagement des joints de grains du polycristal serait causé par deux phénomènes agissant ensemble : une dissolution intergranulaire, causant notamment une perte de masse mesurable, et une fragilisation. Ce terme est employé car on constate après exposition au milieu une diminution progressive de la contrainte à rupture, associée à un faciès totalement intergranulaire fragile, alors que la perte de masse a saturé.

La dissolution intergranulaire des joints de grains des alliages de zirconium par l'iode est un phénomène constaté par plusieurs études dans différentes conditions expérimentales, en milieu méthanol iodé (Cox 1970; Elayaperumal 1972; Nicholson 1980; Duffo 2005) ou iode vapeur (Rosenbaum 1966). Dans ce dernier milieu, la réaction chimique de dissolution est souvent considérée comme étant celle de formation du tétra-iodure de zirconium ZrI_4 volatile, mais en méthanol iodé, la question n'est pas tranchée. Un phénomène de fragilisation par adsorption et diminution de l'énergie de surface est souvent avancé pour la fissuration transgranulaire. Un tel mécanisme pour la fissuration intergranulaire n'est pas absurde si l'on en croit le modèle de croissance de cavités proposé par Williford (Williford 1985).

Les pertes de masses observées ici ou dans d'autres études montrent que même en l'absence de contraintes extérieures appliquées, un endommagement intergranulaire peut se produire s'il y a suffisamment d'iode et de temps. La question que l'on se pose est de savoir si c'est le seul. Les observations au MEB ne mettent pas en évidence deux aspects différents de fissuration intergranulaire. Le modèle de Williford (pour lequel les actions de l'iode et de la contrainte sont simultanées et non successives) mène à la coalescence de cavités quand celles-ci ont encore une taille nanométrique ($< 7 \text{ nm}$) et les outils d'observations n'auraient pas la précision requise pour les distinguer. Ne disposant pas de paramètres discriminant issus de l'observation, on se fonde sur les résultats macroscopiques pour expliquer la présence des deux modes d'endommagement. Ces résultats sont brièvement récapitulés ici. Il s'agit notamment des grandes différences de résistance mécanique des éprouvettes pré-déformées malgré une perte de masse similaire. On mentionne également la baisse de contrainte à rupture avec le temps d'immersion, pour obtenir un même faciès fragile. La fragilisation permettrait ainsi de rompre sans trace de ductilité dès une contrainte appliquée de 300 MPa (430 h d'immersion à 10^{-3} g.g^{-1}), puis de 100 MPa, quand l'immersion est prolongée de 400 h. Il est également intéressant de voir que la perte de masse semble saturer

au bout de 300 h tandis que la perte de résistance s'étend jusqu'à 1000 h. Il se pourrait qu'on atteigne un équilibre entre perte et gain de masse, respectivement par dissolution des joints et adsorption d'iode. Mais il est plus probable que le composé issu de la dissolution du joint ne puisse pas diffuser à travers le joint dissous à partir d'une certaine distance, ralentissant ainsi la perte de masse.

Il est compliqué de comparer les résultats des autres études sur la dissolution car les conditions expérimentales ne sont jamais identiques (alliages, concentrations, temps considérés). Duffo a par exemple étudié la progression de la dissolution des joints de grain du Zircaloy-4 recristallisé par des observations métallographiques, pour une concentration de $1.3 \cdot 10^{-2} \text{ g.g}^{-1}$ (Duffo 2005). Cette progression est une loi puissance du temps avec un exposant proche de 0.5, de telle sorte qu'une pénétration de 225 μm est obtenue au bout de seulement 5 h d'immersion. A la concentration de 10^{-3} g.g^{-1} , il faudrait près de 200 h ici, et donc 20 h si on suppose une vitesse multipliée par 10 pour la concentration de 10^{-2} g.g^{-1} comme le suggèrent les résultats avec couche d'oxyde. Si les comparaisons directes sont compliquées, plusieurs effets observés ici sont néanmoins retrouvés ailleurs. Ainsi Nicholson a étudié la perte de masse et de propriétés mécaniques du Zircaloy-2 immergé dans des solutions de méthanol iodé bouillant ($>60 \text{ }^\circ\text{C}$) de $3.2 \cdot 10^{-4} \text{ g.g}^{-1}$, avec ou sans oxydation préalable et avec ou sans pré-déformation (Nicholson 1980). Il observe que la pré-déformation sur éprouvettes non oxydées n'a aucune influence sur la cinétique de perte de masse qui sature au bout de 40 h environ. Mais, pour une même perte de masse, la résistance mécanique des éprouvettes pré-déformées ($\epsilon=2\%$) est réduite, entre 33 et 44%, par rapport aux éprouvettes standards. On a trouvé ici une diminution de 41.5% pour une pré-déformation de 2%. Cox a également étudié la perte de masse de différents alliages dans des solutions de méthanol iodé, notamment des coupons de Zr-2.5%Nb-0.5%Cu immergés sans contrainte appliquée dans une solution de 10^{-2} g.g^{-1} (Cox 1970). Il constate une saturation rapide de la perte de masse, en moins de 20 h, et que la fragilisation totale de l'échantillon n'est atteinte qu'au bout de 410 h. Là encore, la fragilisation semble se démarquer de la dissolution. D'autres expériences plus précises (essais de traction plutôt que flexion notamment après immersion) et à des concentrations plus variées sont nécessaires pour améliorer la compréhension de ces mécanismes. L'utilisation de faibles concentrations permettrait également de mettre plus en avant le phénomène de fragilisation, par rapport à la dissolution.

L'un des buts guidant la réalisation de ces essais complémentaires était de savoir si la dissolution intergranulaire était responsable de la transition abrupte de résistance à l'amorçage observée sur les essais de traction et de flexion lorsque la concentration augmente. Les résultats de la Figure V.17 montrent que la concentration, dans l'intervalle utilisé dans cette étude, est un paramètre du premier ordre pour la corrosion intergranulaire, divisant par 10 le temps seuil et par 500 le taux d'endommagement après immersion quand la concentration passe de 10^{-4} à 10^{-3} g.g^{-1} . Les résultats d'Elayaperumal sur Zircaloy-2 en méthanol bouillant montrent que la contrainte (75% de $R_{p0.2}$) favorise la dissolution intergranulaire, de la même manière pour des concentrations de $2 \cdot 10^{-4}$ et $2 \cdot 10^{-3} \text{ g.g}^{-1}$, en multipliant par 10 la perte de masse (Elayaperumal 1972). Comme l'effet de la contrainte semble identique dans l'intervalle de concentrations étudié, il est probable que l'activation de la dissolution intergranulaire soit responsable de la transition observée lors des essais de traction à vitesse de déformation imposée et de flexion. La comparaison des cinétiques de fragilisation lors d'immersion et des temps à rupture lors des essais de flexion quatre points est hasardeuse car en plus de promouvoir la fragilisation, la contrainte peut fissurer l'échantillon. Néanmoins cette comparaison permet de montrer l'importance de la contrainte lors des immersions : à 10^{-3} g.g^{-1} , une éprouvette immergée pendant près de 1000 h présente encore une résistance mécanique proche de 100 MPa alors qu'une contrainte appliquée de 40 MPa mène à la rupture d'une éprouvette en moins de 100 h (Figure IV.46).

On remarque également que le temps minimal d'immersion pour observer une perte de ductilité (Figure V.17) est proche du temps minimal à rupture des essais de flexion quatre points. C'est peut-être le signe qu'en l'absence de plasticité, la contrainte n'a que peu d'influence sur la création du premier dommage de CSC-I.

Rosenbaum a mesuré la perte de masse de portions de tubes de Zircaloy-2 exposés à l'iode en milieu vapeur, entre 300 et 400°C (Rosenbaum 1966). Lorsque l'on rapporte les pertes de masse à la surface de métal exposée, il apparaît que les valeurs obtenues sont beaucoup plus importantes en iode vapeur qu'en méthanol iodé. La cinétique de perte de masse a une croissance exponentielle alors que l'on a observé une saturation en méthanol iodé. En présence d'oxyde natif, à 400°C et une pression partielle d'iode d'environ 20 Pa, Rosenbaum observe une perte de masse d'environ $0.1 \text{ mg}\cdot\text{mm}^{-2}$ au bout de 2h. En étant conservatif, pour une concentration de $10^{-3} \text{ g}\cdot\text{g}^{-1}$, on trouve ici une perte de masse dix fois inférieure, pour un temps bien plus grand, 50 h. Il a également testé des échantillons avec une couche d'oxyde épaisse (1-2 μm) et observé qu'en présence de cette couche, un seuil en temps d'environ 6 h apparaissait et qu'au-delà le taux de perte de masse était plus important que sans oxyde épais. Ici, On note l'absence d'un tel seuil ici. Les observations de Rosenbaum vont à l'encontre des résultats obtenus ici et montrent clairement les fortes différences qu'il peut exister entre les deux milieux d'étude de la CSC-I. Les hautes températures et la chimie en milieu vapeur favoriseraient la piqûration généralisée des échantillons.

V.2.3 Etude par SIMS de la présence d'iode dans des échantillons fragilisés.

Plusieurs échantillons prélevés parmi les godets et les éprouvettes immergées ont été analysés par SIMS pour essayer de répondre à plusieurs interrogations concernant les mécanismes mis en jeu lors de l'endommagement/fragilisation : présence de l'iode après corrosion, localisation (joints de grains ou matrice), quantité nécessaire à un dommage visible, ... La plupart des analyses sont réalisées sur les faces qui ont été exposées à l'iode (profils en profondeur ou cartographies). Certaines éprouvettes ont été découpées puis polies pour observer leur section.

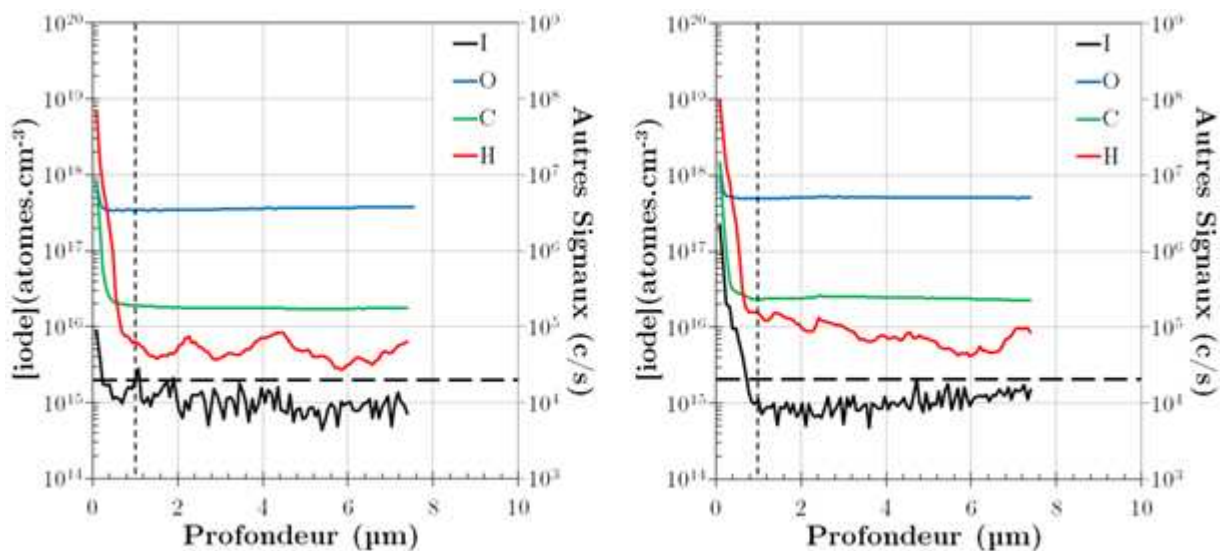


Figure V.26 : Profils SIMS des différents éléments suivis, sur une éprouvette de référence, polie et non exposée à l'iode. Deux mesures ont été réalisées à deux endroits différents. Mise en évidence d'un effet de surface et des niveaux de références pour les différents éléments.

V.2.3.1 Echantillon de référence

Une éprouvette non exposée à l'iode a été analysée afin de définir les niveaux de base des différents atomes suivis lors des analyses : I, O, C et H. Les résultats sont présentés sur la Figure V.26. Le signal en iode est converti en concentration grâce aux analyses faites sur matériau implanté en iode, qui seront discutées dans la prochaine partie du chapitre. On rappelle que, pour les profils en profondeur, une zone de diamètre 30 μm est analysée, correspondant à environ 50 grains. On observe tout d'abord une forte décroissance de l'ensemble des signaux en proche surface, sur environ 1 μm . Comme il n'y a pas d'iode dans cet échantillon, il ne s'agirait que d'un effet de surface non représentatif des concentrations réelles. Les données à une profondeur de moins de 1 μm ne semblent pas fiables et sont à exclure. Le bruit de fond du signal en iode peut atteindre $2 \cdot 10^{15}$ atomes. cm^{-3} . D'après le certificat du matériau, sa teneur en hydrogène est inférieure à 4 ppm, ce qui correspondrait donc à un signal d'environ 10^5 coups par seconde (c/s). La teneur en carbone est en moyenne de 134 ppm, pour un signal proche de $3 \cdot 10^5$ c/s. Celle en oxygène est de 1210 ppm, pour un signal d'environ $4 \cdot 10^6$ c/s. La stabilité des signaux pour O et C laisse supposer que ces éléments sont bien détectés par la méthode tandis que, pour l'hydrogène, on observerait plutôt un bruit de fond, bien que le signal n'oscille pas autant que celui de l'iode. Ces deux mesures sur un même échantillon illustrent également l'incertitude de la méthode d'analyse en l'absence de mouvement tournant des échantillons (Figure II.18).

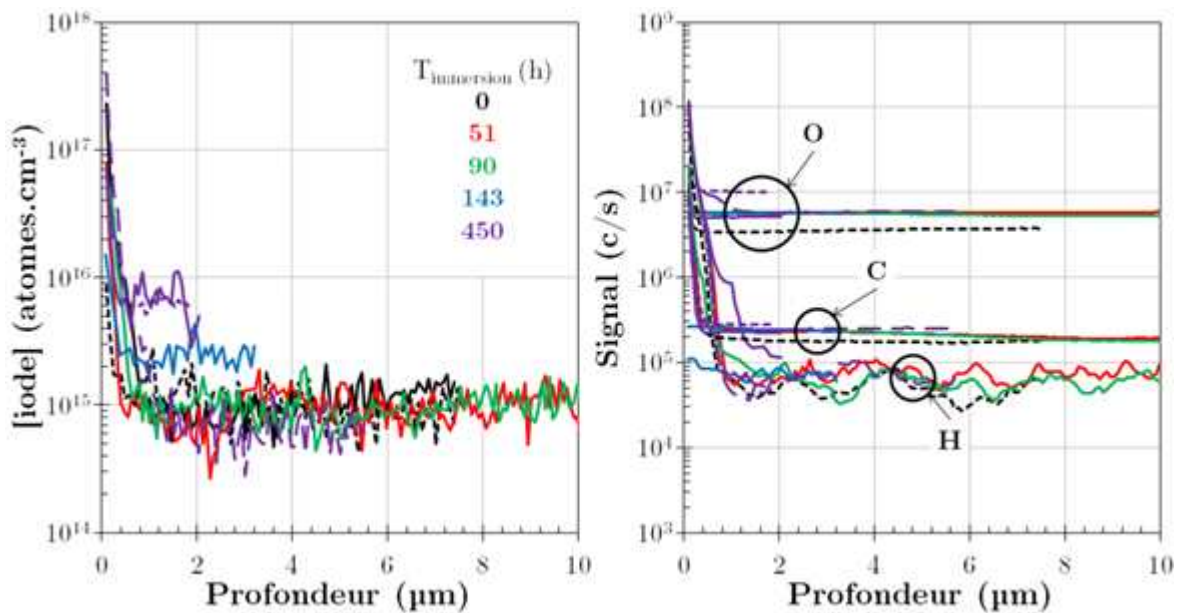


Figure V.27 : Profils SIMS des différentes espèces suivies pour des éprouvettes immergées entre 0 et 450 h dans une solution de méthanol iodé à 10^{-4} g.g $^{-1}$. Concentration en iode (gauche) et signaux des trois autres espèces (H, C et O, droite). Les couleurs et les types de traits sur les deux graphiques correspondent.

V.2.3.2 Eprouvettes immergées à moyenne concentration

Les premières analyses SIMS sur éprouvettes immergées concernent la concentration moyenne de 10^{-4} g.g $^{-1}$. Quatre éprouvettes ont été analysées et comparées à la référence, correspondant à des durées d'immersion de 51, 90, 143 et 450 h. Trois mesures ont été réalisées sur l'éprouvette immergée le plus longtemps du fait d'une forte dispersion. Les résultats sont présentés sur la Figure V.27. La présence de l'iode n'est pas mise en évidence pour les durées de 51 et 90 h alors que, pour cette dernière durée, l'endommagement a un impact macroscopique (Figure V.17). La question de la localisation de l'endommagement se

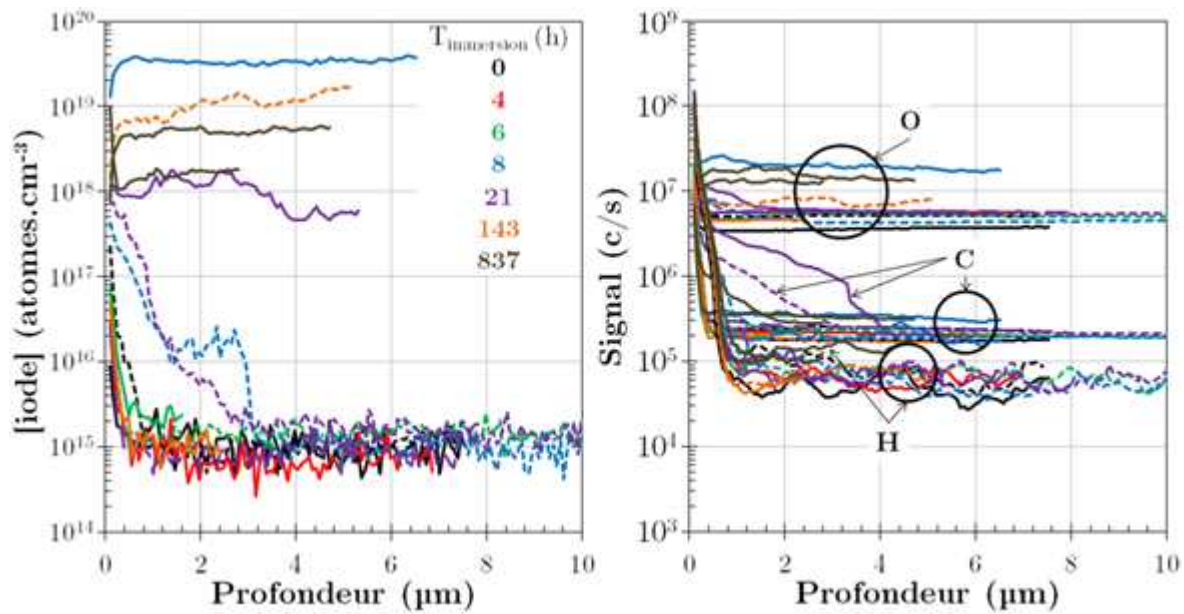


Figure V.28 : Profils SIMS des différentes espèces suivies pour des éprouvettes immergées entre 0 et 837 h dans une solution de méthanol iodé à 10^{-4} g.g⁻¹. Concentration en iode (gauche) et signaux des trois autres espèces (H, C et O, droite). Les couleurs et les types de traits sur les deux graphiques correspondent.

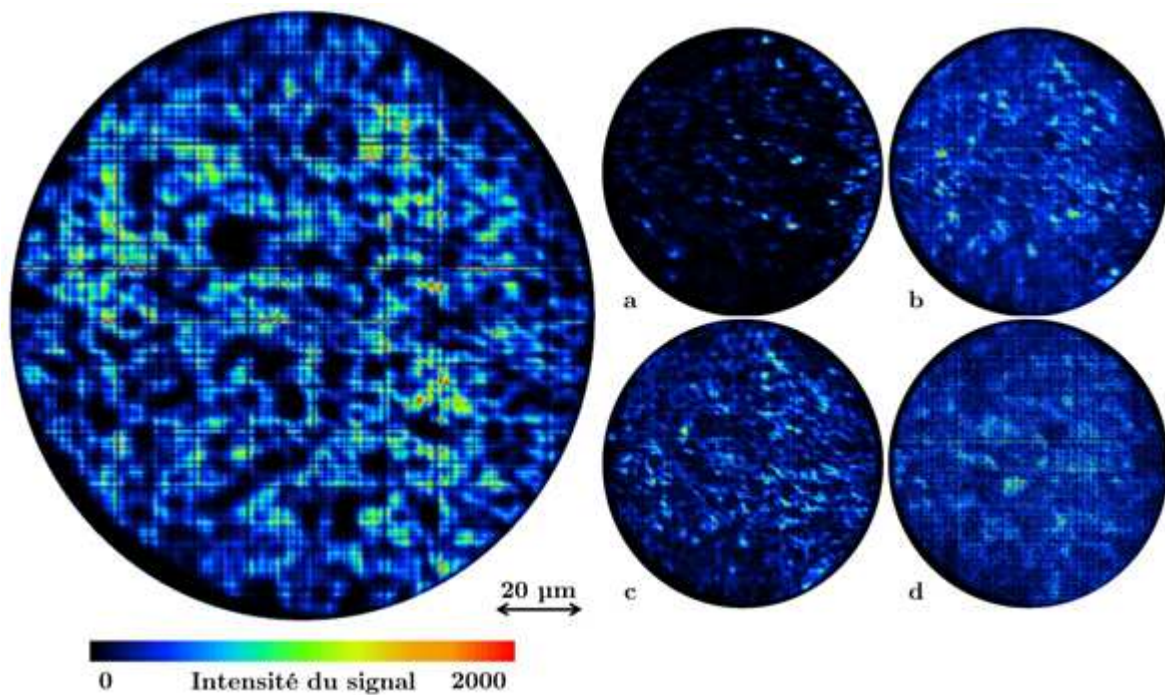


Figure V.29 : Cartographie SIMS de la présence d'iode sur un l'échantillon immergé pendant 837 h dans une solution de méthanol iodé à 10^{-3} g.g⁻¹ (gauche). Localisation de l'iode aux joints de grains. Cartographies SIMS des autres atomes suivis avec leur échelle linéaire de couleur propre (droite): H (a, 0-803), C (b, 0-335), O (c, 0-256) et Zr (d, 0-65). Analyse faite en proche surface et échelles linéaires. On rappelle que la taille moyenne des grains est de 4 μm.

pose. En n'analysant qu'une zone de 30 μm de diamètre, il est possible de ne pas trouver d'iode sur une mesure, alors qu'on en trouve sur une autre. Cela est confirmé par les trois mesures pour l'éprouvette immergée 450 h. L'une des trois mesures ne met pas en évidence la présence d'iode, alors que l'éprouvette a déjà perdu 20% de sa ductilité. A partir de 143 h d'immersion, on commence à observer une accumulation de l'iode dans les premiers microns de l'épaisseur à une concentration de $3 \cdot 10^{15}$ atomes. cm^{-3} . A 450 h, elle atteint $7 \cdot 10^{15}$ atomes. cm^{-3} , se détachant clairement du faisceau de courbes des autres durées. Pour l'une des deux mesures présentant une concentration plus élevée en iode, une augmentation de la teneur en oxygène est également visible, tandis que les signaux du carbone et de l'hydrogène ne varient quasiment pas. Les analyses étant assez longues, seuls les premiers microns sont considérés. Dans ces conditions, on ne met pas en évidence de profil décroissant de l'iode avec la profondeur.

V.2.3.3 Eprouvettes immergées à forte concentration

Les analyses ont également été menées sur des échantillons immergés dans des solutions plus concentrées, à 10^{-3} g.g^{-1} , pour des durées allant de 4 à 837 h. Les résultats sont présentés sur la Figure V.28. Comme pour la concentration plus faible, l'analyse SIMS ne met pas en évidence la présence d'iode à la première apparition de la fragilité (durée de 6h). Par contre, à partir de 8 h d'immersion, la présence d'iode est clairement mise en évidence, mais toujours avec une forte dispersion d'une mesure à l'autre. La concentration en iode peut gagner plus de quatre ordres de grandeur pour dépasser 10^{19} atomes. cm^{-3} . Des mesures sur échantillons immergés pendant 8 et 21 h permettent d'observer une décroissance progressive de la concentration en iode sur 3 μm . D'autres mesures sur ces mêmes échantillons montrent des profils constants sur les mêmes distances, à des niveaux plus importants ou au niveau du bruit de fond.

Les profils de concentration des autres atomes confirment les observations du paragraphe précédent. Deux mesures sur trois sur l'échantillon immergé pendant 21 h montrent une présence plus importante de carbone, avec une forme de profil inhabituel. Tous les autres échantillons présentent des niveaux comparables. Cet effet n'est pas expliqué et pourrait être causé par une contamination de surface de l'échantillon dans une zone particulière. Les données confirment que l'hydrogène reste à des niveaux très proches de celui de l'éprouvette non immergée. En revanche, elles montrent aussi que les fortes concentrations en iode s'accompagnent d'une présence plus importante en oxygène.

Une cartographie sur la surface exposée à l'iode a été réalisée pour regarder où se localisait l'iode dans le matériau et quels éléments avaient la même distribution. Cela a été fait pour l'éprouvette immergée le plus longtemps (837 h) à la concentration de 10^{-3} g.g^{-1} . Les résultats sont présentés sur la Figure V.29. Malgré la faiblesse de la résolution par rapport à la taille de grains moyenne, il apparaît que l'iode se trouve dans les joints de grains. Les répartitions d'hydrogène et de carbone ne semblent pas correspondre à celle de l'iode. En revanche, l'oxygène semble se trouver également aux joints de grains. La résolution de l'appareil ne permet pas de montrer que ses lieux de présence coïncident avec ceux de l'iode.

Cette figure illustre également les incertitudes liées aux effets de matrice : la cartographie du zirconium n'est pas uniforme et semble dessiner des grains. Selon l'orientation de ces grains, le rendement de pulvérisation est plus ou moins grand. On comprend bien que lors de l'acquisition des profils de concentration, pour lesquels une zone de diamètre 30 μm est analysée, une grande dispersion des résultats est possible.

Des éprouvettes ont été polies sur leur section pour observer la répartition de l'iode dans l'épaisseur des éprouvettes. Un seul échantillon s'est avéré exploitable, pour une durée

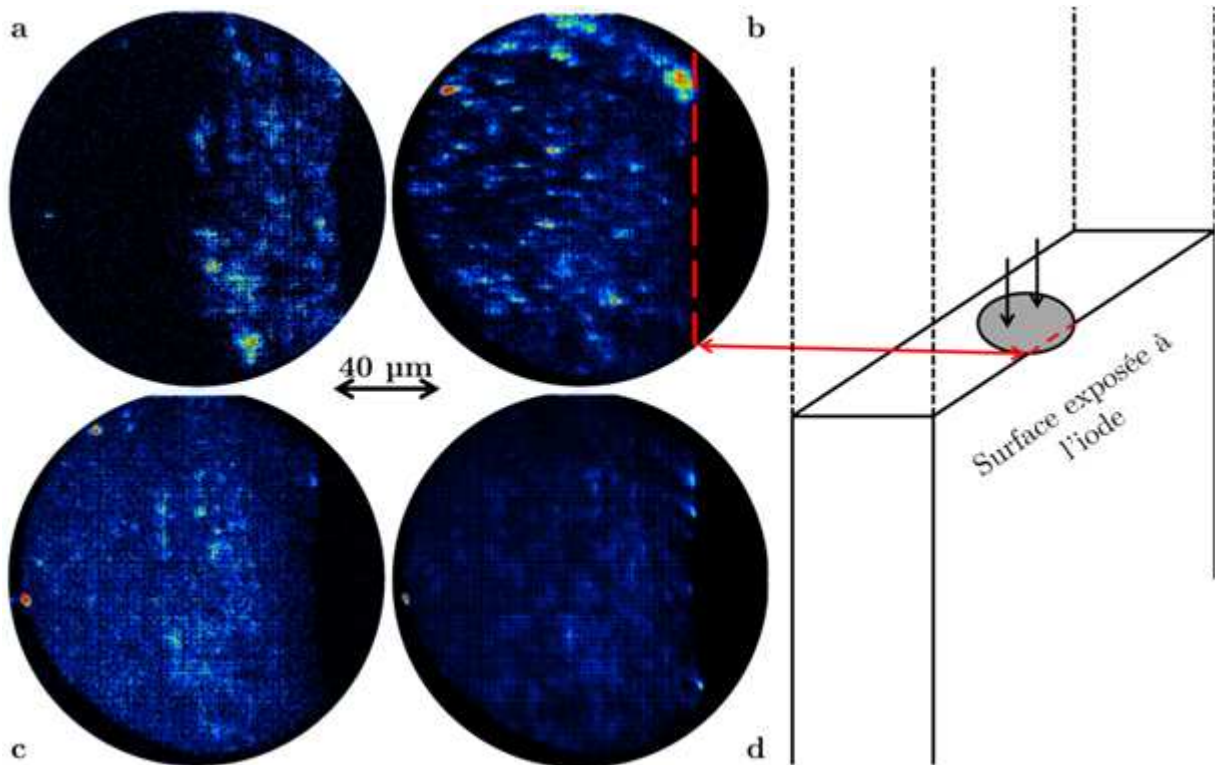


Figure V.30 : Cartographies SIMS des espèces sur la tranche d'une éprouvette immergée pendant 21 h dans une solution de méthanol iodé à 10^{-3} g.g^{-1} (gauche). Suivi de I (a, 0-20), H (b, 0-50), O (c, 0-30) et C (d, 0-300). Echelles linéaires. Schéma explicatif de la zone observée (droite), les pointillés rouges indiquent le bord de la section.

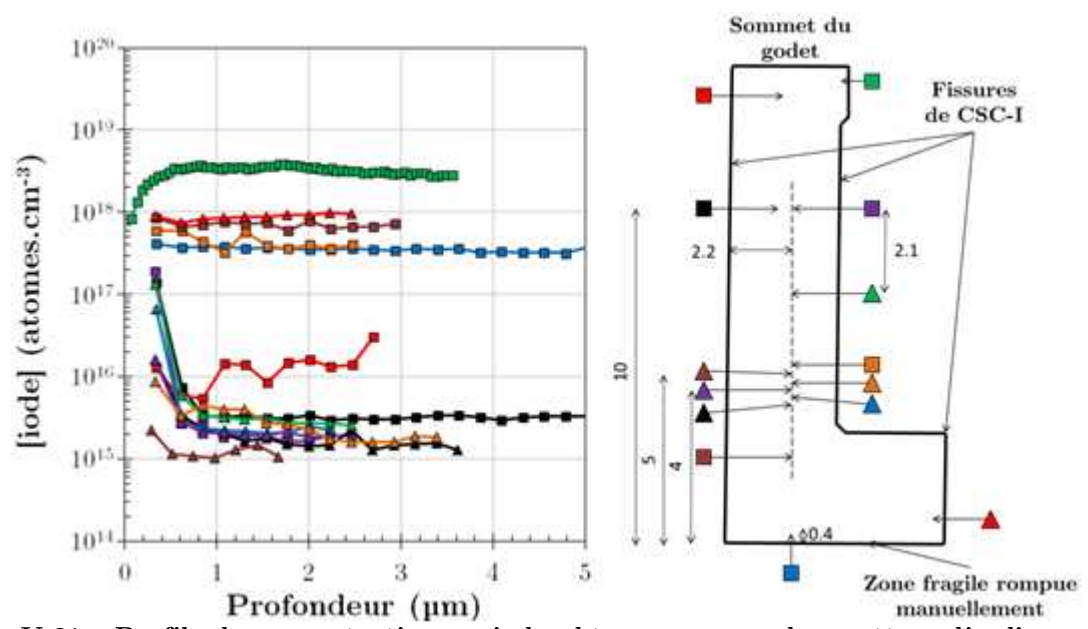


Figure V.31 : Profils de concentration en iode obtenus sur une languette polie d'un godet à avalement total immergé dans une solution de méthanol iodé de $6.4 \cdot 10^{-4} \text{ g.g}^{-1}$ pendant 87 h (gauche). La languette analysée et les lieux de pointés sont schématisés à droite. Les symboles du graphique correspondent à ceux du schéma. Les distances sont en millimètres. La forme en L de la languette est due à l'arrachage d'une partie le long d'une fissure de CSC-I ayant moins propagé.

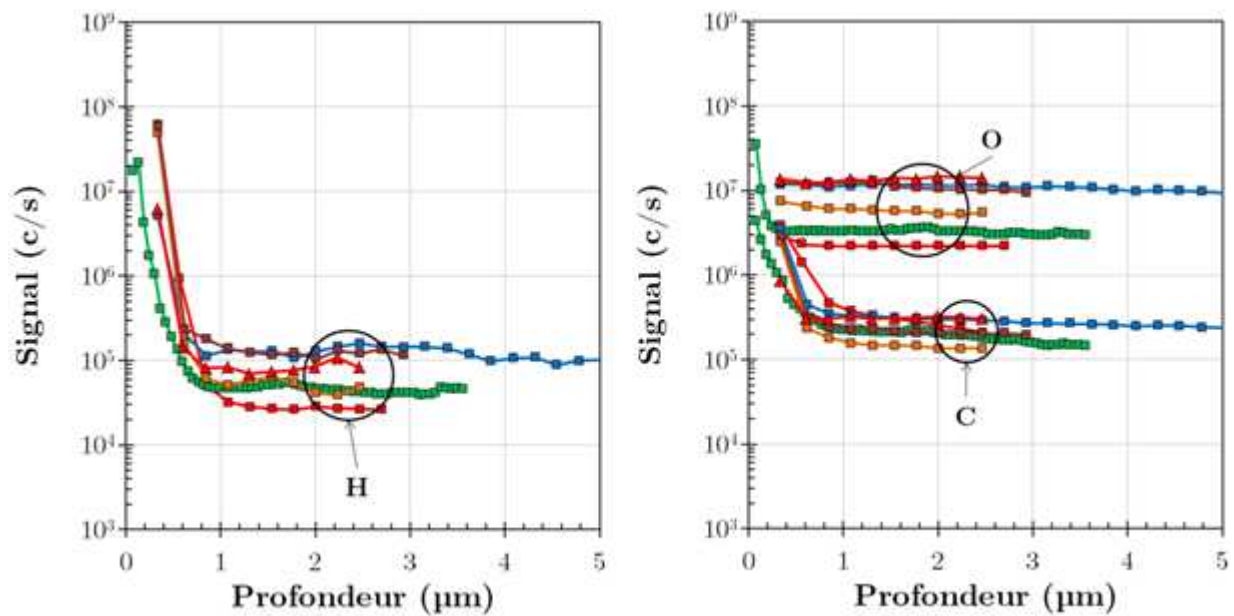


Figure V.32 : Profils en profondeur de l'hydrogène (gauche), du carbone et de l'oxygène (droite) sur la languette présentée sur la figure précédente (symboles identiques). Seuls les points où une présence significative d'iode a été détectée sont conservés (voir figure précédente pour la légende).

d'immersion de 21 h. Ces cartographies sont présentées sur la Figure V.30. On arrive à délimiter la présence de l'iode, à une profondeur d'environ 60 µm, soit 14% de l'épaisseur de l'éprouvette. Celle-ci avait subi un essai mécanique après immersion et montré une baisse de la force maximale de 17% par rapport à une éprouvette non immergée. Lors de la flexion de cette éprouvette, la courbe force-déplacement du poinçon ne présente pas de discontinuité qu'on pourrait attribuer à la rupture d'une couche fragile. Il semblerait donc que les zones présentant de l'iode, au niveau détecté sur cette éprouvette ($\sim 10^{18}$ atomes.cm⁻³), n'aient plus aucune résistance mécanique. On note également sur cette figure que la présence d'oxygène semble renforcée là où de l'iode a été trouvé.

V.2.3.4 Languette de godet à avalement total

Une languette de godet 100% immergé dans une solution de méthanol iodé ($6.4 \cdot 10^{-4}$ g.g⁻¹, 86.6 h) a également été analysée par SIMS. Pour éviter les problèmes de contamination de surface, elle a été polie avec la procédure décrite au Chapitre II. N'étant pas initialement plane, après polissage la languette ne regroupe pas des points ayant la même position dans l'épaisseur. La face polie et analysée est la face interne du godet. 14 profils de concentrations ont été réalisés pour tenter d'expliquer l'hétérogénéité de fragilité des languettes.

Les résultats pour l'iode ainsi que le schéma de la languette analysée sont donnés sur la Figure V.31. Il apparaît que les très fortes concentrations en iode se trouvent près des fissures de CSC-I et donc du métal mis à nu (carré vert et triangle rouge). Des concentrations élevées, mais légèrement plus faibles, sont observées au milieu de la languette, près des lieux d'arrêt des fissures (carrés bleu et marron). Au milieu de la languette, dans sa longueur et sa largeur, les teneurs en iode sont très faibles, proches du bruit de fond, à l'exception d'un point (carré orange) dont la forte teneur n'est pas expliquée. Cela confirmerait donc que la fragilisation, liée à la présence de l'iode, se produit à partir des lèvres de fissures de CSC-I et se concentre autour des lieux d'arrêts des fissures. La languette a été arrachée par flexion de façon totalement fragile. La concentration en iode à cet endroit est estimée via le profil du carré bleu, à environ $4 \cdot 10^{17}$ atomes.cm⁻³.

Les profils pour les autres atomes (C, H, et O) sont donnés sur la Figure V.32, en ne gardant que les endroits pour lesquels de l'iode a été détecté ($> 10^{16}$ atomes.cm⁻³). Les résultats sont dispersés ; on trouve des valeurs de part et d'autre des niveaux de références et les variations ne semblent pas liées à la concentration en iode.

V.2.3.5 Résumé et analyse

Les essais d'immersion et analyses SIMS ont permis de mettre en évidence que l'exposition d'échantillon au milieu agressif se traduit par une perte de ductilité/résistance mécanique, due à la dissolution intergranulaire et éventuellement à un mécanisme de fragilisation. La présence de l'iode aux premiers temps d'apparition du dommage n'a pu être observée, peut-être à cause d'un seuil de détection trop faible ou d'une localisation trop importante des premières attaques.

La présence de l'iode après immersion et nettoyage est un résultat intéressant. Tout d'abord, cette présence se limite aux joints de grains, malgré des temps d'exposition très longs et des concentrations importantes. La fissuration transgranulaire, qui suppose une entrée dans les grains, n'est possible qu'avec de la déformation plastique. La quasi-constance des signaux de carbone et d'hydrogène indiquerait que l'iode détecté n'est pas simplement dû à la présence de méthanol iodé restant dans les joints. Il pourrait s'agir d'iodures de zirconium solides, produits de la dissolution des joints de grains, et s'y déposant après leur formation. Ceci expliquerait aussi la présence renforcée d'oxygène. En effet, Hofmann a observé que les dépôts de ZrI₄ condensé, formés pendant le refroidissement sous vide de ses échantillons après essais de CSC-I en iode vapeur à plus de 500 °C, réagissaient spontanément en présence d'oxygène à température ambiante pour former de l'oxyde ZrO₂ et de l'iode gazeux (Hofmann 1983). Cette oxydation d'iodures déposés sur les joints de grain serait à l'origine d'une présence plus importante d'oxygène. Ce dépôt des produits de dissolution sur les joints n'est pas en accord avec les pertes de masse observées. Il se pourrait que ces produits soient mobiles mais avec un coefficient de diffusion très faible dans la solution présente dans les joints. Au fur et à mesure que la dissolution progresse dans l'épaisseur, les produits seraient de plus en plus incapables de diffuser hors de l'éprouvette.

Il est aussi intéressant de noter que, pour un même niveau de perte de ductilité, la concentration en iode dans le matériau peut être très différente. Ainsi, après 450 h d'immersion dans une solution de concentration de 10^{-4} g.g⁻¹, la concentration en iode à 2 µm de la surface est inférieure à 10^{16} atomes.cm⁻³ (Figure V.27). Dans une solution à 10^{-3} g.g⁻¹, après 21.3 h d'immersion, on peut trouver une concentration de 10^{18} atomes.cm⁻³ (Figure V.28). Ces deux échantillons présentent une même perte de résistance mécanique (Figure V.17). Cela appuierait l'existence de deux mécanismes d'endommagement des joints de grain, par dissolution ou fragilisation.

Duffo a montré que l'étape limitante de la corrosion intergranulaire du Zircaloy-4 et du zirconium recristallisés était la diffusion du complexe méthanol-diode dans la solution de méthanol (10 g.L⁻¹ soit $1.3 \cdot 10^{-2}$ g.g⁻¹) pour atteindre la pointe de fissure (Duffo 2005). Un coefficient de diffusion D proche de 10^{-9} m².s⁻¹ est déterminé par les étendues des zones corrodées et confirmé par des calculs théoriques de diffusion. Ici, on estime le coefficient de diffusion apparent à partir de la cartographie SIMS réalisée sur la section d'une éprouvette. Avec une présence d'iode sur environ 60 µm après une immersion de 21.3 h, on trouve une valeur de D proche de $5 \cdot 10^{-14}$ m².s⁻¹, très inférieure à celle donnée par Duffo. La dissolution est donc l'étape limitante à la concentration de 10^{-3} g.g⁻¹ et reste extrêmement sensible à la concentration. Cela illustre encore une fois les très fortes variations d'une étude à l'autre si la concentration n'est pas la même.

V.2.4 Etude de la mobilité de l'iode implanté par SIMS

La question de la présence de l'iode en amont de la pointe de fissure est de première importance. On a vu au Chapitre I que les différents modèles de CSC-I cités autorisent la présence de l'iode dans le matériau non fissuré, notamment par l'action de la déformation plastique (Miller 1981; Le Boulch 2008). Pour étudier la possibilité de diffusion de l'iode dans le zirconium, plusieurs études ont utilisé l'implantation d'ions d'iode par un accélérateur (Wood 1975; Fregonese 1997; Moncoffre 2000). Par implantation d'iode radioactif (^{131}I) dans du Zircaloy-2 et des mesures d'activités ultérieures, Wood n'observe pas de redistribution d'iode suite à des traitements thermiques de 4 h à 400 et 600 °C. Avec des analyses SIMS sur des échantillons implantés sur 3 μm environ, ce résultat est confirmé par Fregonese sur du Zircaloy-4 après 16 h passées à 350 °C sous vide. A une échelle inférieure de longueur implantée et d'analyse, Moncoffre a mis en évidence la diffusion de l'iode dans le zirconium pur suite à des traitements thermiques de 30 à 320 mn à des températures comprises entre 400 et 600 °C. Des coefficients de diffusion très faibles sont trouvés, au maximum $10^{-19} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ à 600 °C. Avec un tel coefficient, la longueur caractéristique de diffusion est inférieure à 0.1 μm pour une durée de 20 h. A 400 °C, un coefficient de diffusion proche de $10^{-21} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ est trouvé, et la longueur caractéristique pour la même durée est inférieure à 0.01 μm . Les résolutions en profondeur utilisée par Wood et Fregonese ne permettent pas d'observer la diffusion.

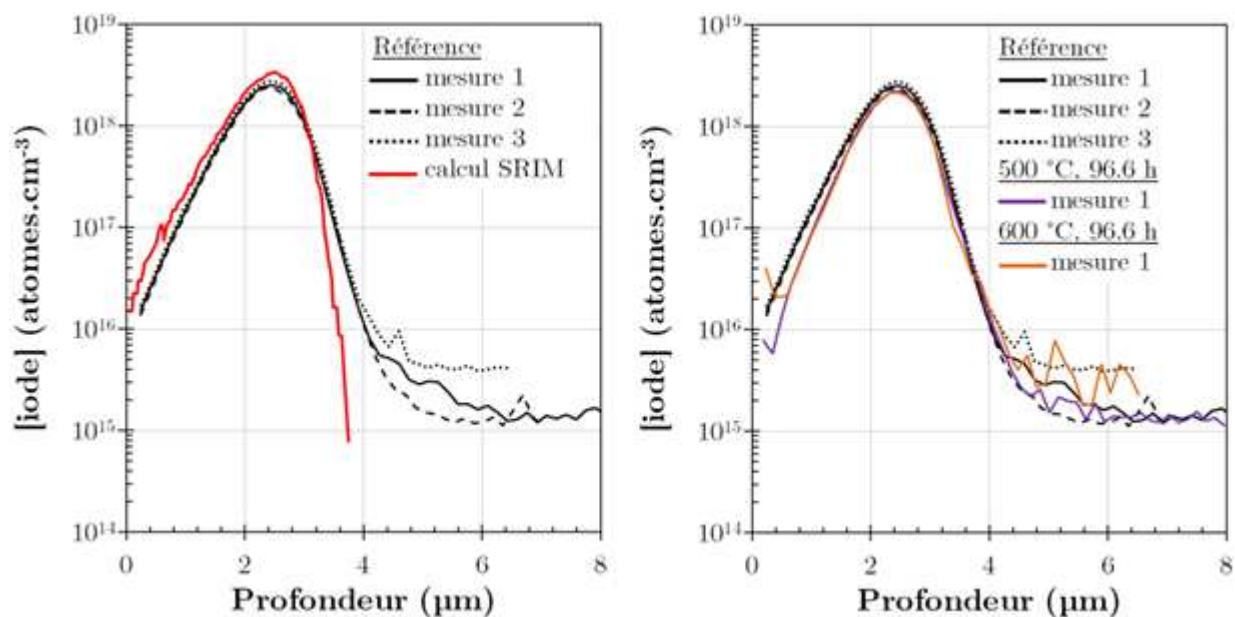


Figure V.33 : Comparaison du profil d'implantation en iode entre calculs SRIM et mesures SIMS sur l'échantillon de référence (dose de $3.59 \cdot 10^{14} \text{ ions} \cdot \text{cm}^{-2}$, gauche). Profils obtenus sur des échantillons ayant subi un traitement thermique pendant 96.6 h, comparaison avec la référence (droite).

Deux implantations ont été réalisées dans cette étude, dont les caractéristiques ont été détaillées dans le Chapitre II. Suite aux implantations et à différents traitements thermiques ou essais mécaniques, la distribution de l'iode dans le matériau est déterminée par SIMS. Seuls les profils obtenus avec une rotation des échantillons (diminution de l'effet de matrice) sont donnés ici. La comparaison entre les prédictions du logiciel SRIM et les mesures sur un échantillon de référence est donnée sur la Figure V.33 (gauche). L'implantation obtenue est conforme aux prédictions du logiciel.

Deux échantillons ont été encapsulés sous vide secondaire. Ils ont subi un traitement thermique pendant 96.6 h respectivement à 500 et 600 °C. Leurs profils en iode ne montrent aucun signe de diffusion : le maximum a la même valeur, et aucun étalement du pic n'est constaté (Figure V.33, droite). Avec un coefficient de $10^{-19} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$ à 600 °C et une telle durée, la longueur caractéristique de diffusion est de 0.2 μm . Malgré la bonne résolution du SIMS, aucun changement n'est observé.

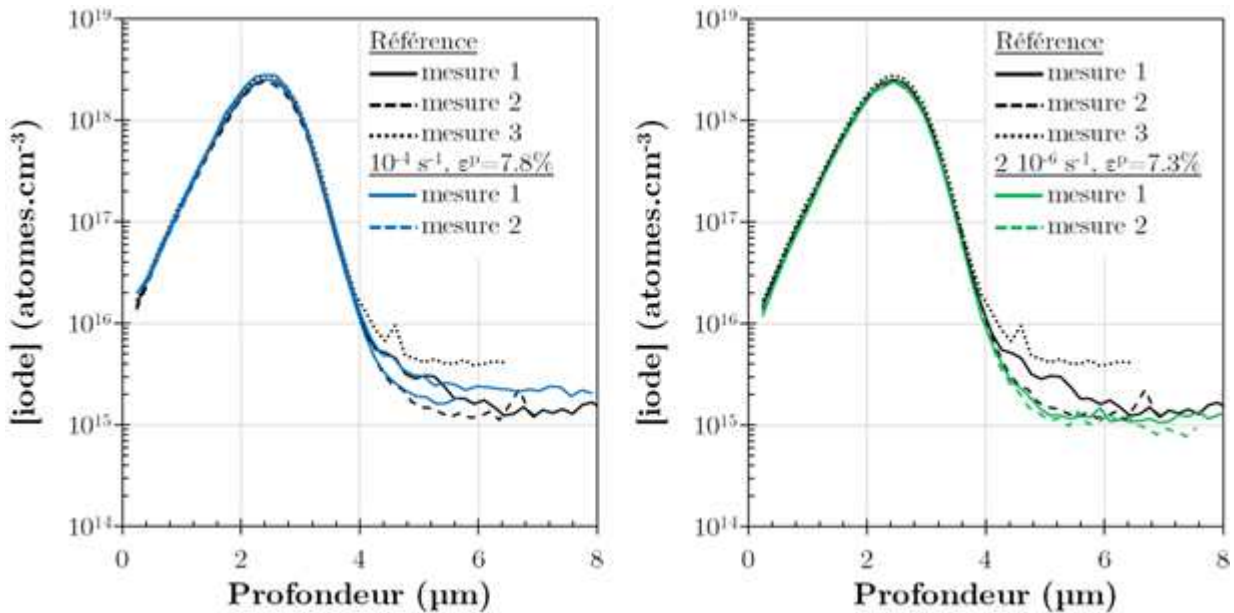


Figure V.34 : Profils de concentration en iode pour des échantillons soumis à un essai de traction après implantation, à 10^{-4} s^{-1} (gauche) et $2 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ (droite). Dose implantée de $3.59 \cdot 10^{14} \text{ ions.cm}^{-2}$.

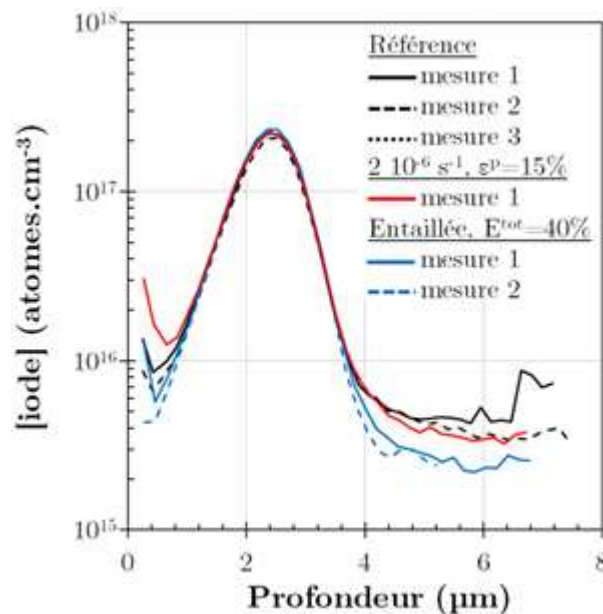


Figure V.35 : Profils de concentration en iode pour une éprouvette lisse implantée sollicitée à $2 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ jusqu'à 15% de déformation (rouge) et pour une éprouvette entaillée ($R=0.3 \text{ mm}$) implantée sollicitée à $6 \cdot 10^{-4} \text{ mm.s}^{-1}$ jusqu'à 40% de déformation macroscopique (bleu). Dose implantée de $1.78 \cdot 10^{13} \text{ ions.cm}^{-2}$.

Des essais de traction ont été réalisés sur éprouvettes implantées, à des vitesses de 10^{-4} s^{-1} et $2 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$. Les profils obtenus après essais se superposent parfaitement à ceux de l'échantillon de référence (Figure V.34). La contrainte et la déformation plastique, pour un temps comparable à ceux des essais sur éprouvette de traction, ne permettent donc pas à l'iode de diffuser dans le matériau. Avec une dose implantée plus faible, un essai de traction sur éprouvette entaillée ne mène pas non plus à une redistribution de l'iode (Figure V.35). Une contrainte biaxée ne permet pas plus un transport. La proposition de Choo d'une diffusion de l'iode dans le matériau sous l'effet d'une contrainte triaxiale, pouvant expliquer ses effets d'états de contrainte, ne trouve pas d'écho ici (Choo 1987). Les résultats trouvés confirment qu'une diffusion de l'iode dans la matrice de zirconium n'est pas envisageable pour nos essais.

Après les essais de traction sur matériau implanté, les éprouvettes ont été observées au microscope optique. Aucun endommagement, IG ou TG, n'a été constaté. Les doses implantées sont peut-être trop faibles pour observer un endommagement. La concentration globale de l'iode est comparable à celle des analyses SIMS sur éprouvettes immergées mais dans ce cas-là l'iode est localisé aux joints de grains. Le volume des joints étant très faible, les concentrations locales y sont sûrement beaucoup plus importantes. On peut simplement conclure qu'une concentration homogène comprise entre 10^{16} et $10^{18} \text{ atomes.cm}^{-3}$ ne semble pas mener à la rupture. Une éprouvette implantée à une dose de $3.59 \cdot 10^{14} \text{ ions.cm}^{-2}$ testée en flexion quatre points pendant plus de 4 mois à 100 MPa n'a pas montré d'endommagement.

V.2.5 Godets particuliers

Avec les moyens d'essais à disposition, il est compliqué de tester l'influence d'une contrainte de compression sur l'amorçage de fissures de CSC-I ou la fragilisation. Pour cela, des godets ont été utilisés, en ne les exposant qu'en face interne. Les calculs par éléments finis ont montré que l'état de contrainte était compressif à ces endroits (Figure III.24). Un godet à avalement total de grand diamètre (75 mm) issu des premiers tests d'emboutissage a été rempli à moitié d'une solution de méthanol iodé à 10^{-3} g.g^{-1} . Au bout de 4 h, des fissures de CSC-I s'amorcent et propagent à partir du sommet. Au bout de 24 h, le godet est totalement fissuré. Les vapeurs de méthanol iodé pourraient donc suffire à la fissuration des godets. Après nettoyage, ce godet ne présente pas de fragilité au bas des languettes, signe qu'elle est bien ultérieure à la fissuration.

Un godet 100% (n°10) a alors été placé à proximité d'un bocal ouvert contenant une solution de méthanol iodé à 10^{-3} g.g^{-1} pendant 71 h, dans l'enceinte fermée habituellement utilisée pour les immersions et flexions (Figure V.36). Après exposition, le godet présente 14 fissures de longueur moyenne égale à 13.1 mm, des caractéristiques proches d'un godet immergé dans une solution à 10^{-6} g.g^{-1} . Une fragilité des languettes est constatée mais bien moins importante que pour un godet immergé dans une solution à forte concentration. Il est compliqué d'estimer la quantité d'iode disponible sur ce godet par condensation des vapeurs de méthanol iodé, mais cela confirme que la quantité d'iode nécessaire à la propagation de fissures de CSC-I est très faible.

Pour étudier l'effet des contraintes de compression, un godet 80% a été rempli par une solution de 10^{-3} g.g^{-1} et un film plastique est maintenu par du scotch double-face sur la partie supérieure de la collerette afin d'éviter l'évaporation. Le coude du godet, lieu de contrainte de traction, est donc exposé en face interne. L'exposition a duré 120 h. Après nettoyage, aucune fissure n'a été détectée. Quand ce type de godet est complètement immergé dans une solution de même concentration, des fissures sont visibles en peau externe au bout de 4 h. On confirme donc ici que les fissures s'amorcent en peau externe. Afin d'évaluer rapidement la fragilisation d'un tel échantillon, il a été décidé de l'écraser dans un

étai pour observer les zones fragiles (Figure V.37). Il apparaît que le godet est fragilisé au niveau du coude (apparition de fissure) et surtout près du fond. Les contraintes circonférentielles en peau interne sont de traction au niveau du coude, et sont plutôt de compression sur le flanc du godet (Figure III.37). La Figure V.17 montre qu'à la concentration utilisée, au bout de 120 h, près de la moitié de la ductilité a été perdue pour des éprouvettes immergées sans contrainte. L'absence de fragilisation visible sur les flancs, non liée au coude du godet, est donc un signe de l'effet protecteur d'une contrainte de compression vis-à-vis de la fragilisation. Des essais analytiques et plus reproductibles sont néanmoins nécessaires pour confirmer ce point.

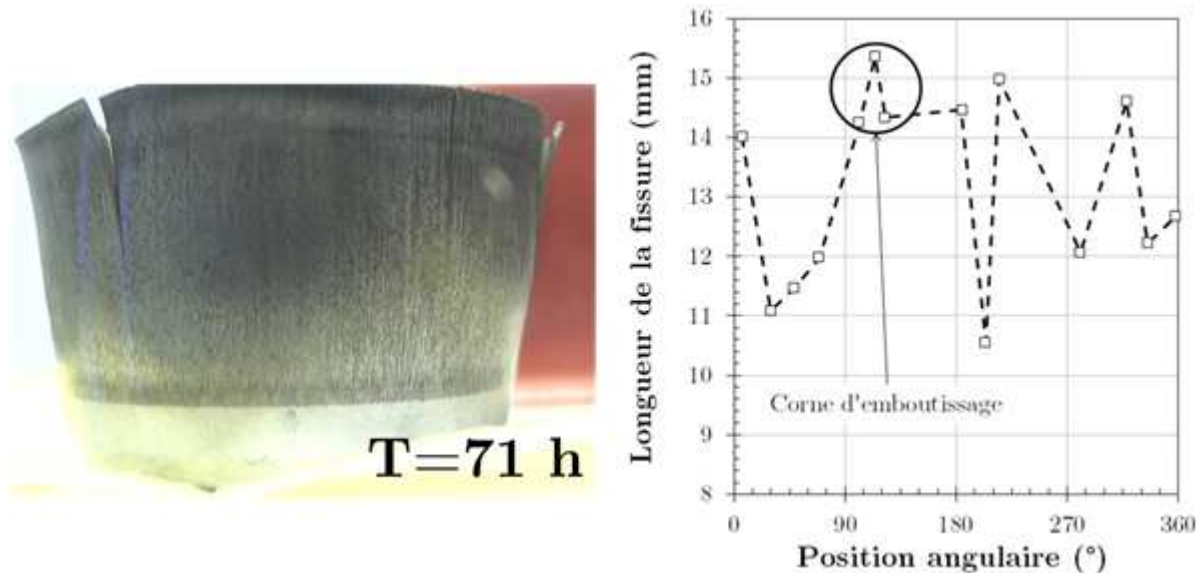


Figure V.36 : Exposition d'un godet 100% (n°10) aux vapeurs d'une solution de méthanol iodé à 10^{-3} g.g^{-1} , placée dans un bocal à proximité (visible en arrière-plan) (gauche). Position et longueur des fissures de CSC-I obtenues (droite).

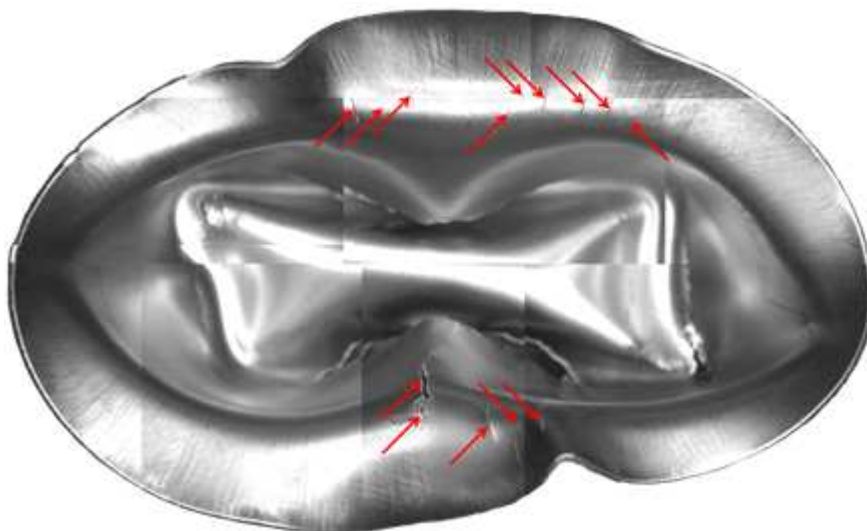


Figure V.37 : Godet 80% n°6 exposé en peau interne uniquement à une solution de méthanol iodé de 10^{-3} g.g^{-1} pendant 120 h et ne présentant alors aucune fissure. Ecrasement dans un étai pour mettre en évidence les parties fragilisées au-dessus du fond (flèches rouges). Vue de haut.

V.2.6 Bilan des essais complémentaires

Suite aux observations de fragilité sur des languettes de godets fissurés, ces essais complémentaires ont mis en lumière plusieurs caractéristiques de l'endommagement par l'iode. Tout d'abord, l'immersion dans le milieu agressif mène à une diminution de la résistance mécanique des éprouvettes, en l'absence de contrainte macroscopique, pour une durée et une concentration suffisantes. Cette diminution est très sensible à la concentration en iode de la solution. Le suivi de la perte de masse des éprouvettes montre qu'un phénomène de dissolution est principalement responsable de cet effet. Les résultats n'excluent pas non plus l'existence d'un phénomène de fragilisation intergranulaire sans perte de masse : la variation de la contrainte à rupture fragile avec le temps d'immersion et les différences observées sur les éprouvettes pré-déformées vont dans ce sens. Cette fragilisation se produirait principalement aux lieux où une contrainte de traction subsiste.

Les analyses SIMS montrent que de l'iode est encore présent dans le matériau après immersion à forte concentration de durée supérieure ou égale à 8 h. Cette présence est cantonnée aux joints de grains et peut-être due à la formation d'iodures de zirconium lors de la dissolution des joints de grains. L'oxydation de ces composés lors de la sortie du milieu agressif expliquerait la présence renforcée d'oxygène dans le matériau. Les mesures montrent également une très forte localisation de l'attaque intergranulaire au début de l'immersion menant à des résultats dispersés.

Le transport de l'atome d'iode dans la matrice de zirconium ne semble pas possible, que ce soit par diffusion thermique ou en présence de contrainte ou de déformation plastique. Les phénomènes de dissolution et fragilisation observés ici opèrent donc dans les joints de grain. Les cinétiques relativement lentes de dissolution et de fragilisation trouvées suggèrent que, pour un essai de CSC-I mené à rupture en quelques heures ou minutes, ces phénomènes sont fortement localisés en pointe de fissure. Ce point est particulièrement important pour la modélisation des ruptures par CSC-I.

Les dernières immersions de godets emboutis montrent qu'il est possible de fissurer significativement un godet avec la seule condensation des vapeurs de méthanol iodé. Ces résultats rejoignent ceux de l'étude des godets 100% immergés montrant que la propagation transgranulaire nécessite beaucoup moins de concentration que l'amorçage intergranulaire.

Malgré l'absence d'expériences analytiques dédiées pour le prouver, il semblerait qu'une contrainte de compression ralentisse, voire inhibe, l'endommagement intergranulaire.

Lors des essais d'immersion, la présence d'une couche d'oxyde épaisse (2 μm) n'offre pas une protection absolue contre l'attaque intergranulaire que subissent les échantillons. La couche d'oxyde semble jouer le rôle de filtre en ralentissant la perte de masse sans induire de temps seuil. A très forte concentration (10^{-2} g.g^{-1}), une desquamation de l'oxyde est observée, avec une cinétique de perte de masse beaucoup plus rapide.

L'exportation de ces résultats aux essais de CSC-I décrits dans le Chapitre IV n'est pas directe, car l'influence de la contrainte et de la déformation plastique sur la dissolution et la fragilisation n'est pas connue précisément. Si l'effet de la contrainte est identique à 10^{-3} et 10^{-4} g.g^{-1} , l'activation de la dissolution intergranulaire avec la concentration serait certainement responsable de la transition observée sur les essais de traction et de flexion.

Avec ces essais complémentaires très simples, nous avons néanmoins pu mettre en évidence des aspects nouveaux de l'interaction entre iode et zirconium en milieu méthanol à température ambiante (temps d'incubation, cinétiques de pertes de masse et de fragilisation). La mise en place d'essais dédiés pour étudier ces phénomènes semble nécessaire pour approfondir les connaissances.

V.3 Limites de l'approche à l'étude des mécanismes

Les différents essais de CSC-I et autres essais complémentaires ont permis de mettre en évidence le rôle de différents paramètres mécaniques macroscopiques mais aussi de montrer la coexistence à forte concentration entre dissolution et fragilisation intergranulaires. Mais ces travaux expérimentaux, à l'échelle adoptée dans l'étude, ne suffisent pas à déterminer les mécanismes en jeu dans la CSC-I en méthanol iodé. Ce point est illustré par deux exemples, qui servent également de perspectives à cette étude.

V.3.1 Observations du dommage de CSC-I

L'apparition du dommage est une notion subjective dépendant de l'échelle d'analyse. On pourrait aussi bien la définir comme la première rupture d'une liaison atomique Zr-Zr ou comme l'observation d'un écart net sur une courbe macroscopique force-déplacement entre un échantillon exposé et une référence. Pour des raisons déjà évoquées (nombre d'essais, facilité d'emploi et d'accès,...), dans cette étude, les fissures de CSC-I sont détectées via des observations au microscope optique au grossissement $\times 1000$. Cela vaut pour l'ensemble des amorces de CSC-I du matériau non irradié. Les défauts observés ont alors une taille minimale d'environ $5\ \mu\text{m}$ et une ouverture de $1\ \mu\text{m}$. Cette échelle de détection est cohérente avec l'approche macroscopique de simulation choisie. Les faciès de rupture ont presque tous été observés au MEB. Les amorces observées sont considérées comme intergranulaires à cause de leur forme en dents de scie en surface et parce que les faciès de rupture observés sont toujours intergranulaires près de la face d'amorçage. La zone intergranulaire a une forme semi-elliptique laissant supposer que la fissure s'est amorcée au milieu de cette zone. Alors que les amorces peuvent être transgranulaires en iode vapeur, elles seraient exclusivement intergranulaires en méthanol iodé (Jacques 1994). Malgré cela, l'échelle d'observation utilisée ne permet pas d'affirmer que des amorces transgranulaires ne sont pas possibles.

Pour le matériau irradié aux protons, plusieurs échantillons ont été observés au MEB. Ces observations ont permis de mettre en évidence de nouvelles caractéristiques de l'endommagement non visibles au microscope optique. La Figure IV.33, la Figure V.11 et la Figure V.12 montrent la présence d'une tâche sombre au niveau de l'amorce d'une fissure de CSC-I. Autour de cette tâche, l'ensemble des joints de grains sont révélés, signe d'une fissuration ou d'une attaque chimique. La comparaison entre cliché MEB et micrographie optique en lumière polarisée (Figure V.11) semble indiquer qu'un relief est associé à la présence de cette zone sombre. Jacques avait également constaté ces zones sombres au MEB (électrons secondaires) autour de fissures de CSC-I en méthanol iodé sur des éprouvettes de zirconium suite à des tractions lentes à faibles concentrations. Des analyses EDX avaient alors révélé une forte teneur en oxygène, mais pas d'iode (Jacques 1994). Il a également constaté que ces zones sombres étaient accompagnées de joints de grains « décorés », de couleur noire dans les conditions d'observation, mais apparemment non endommagés. Cependant, ils apparaissent fragilisés, et des craquelures perpendiculaires aux joints peuvent être observées quand ceux-ci sont alignés avec la contrainte. Pour Jacques, cela met en évidence la formation d'un film fragile non protecteur après déstabilisation de la couche d'oxyde initiale. Un tel mécanisme pourrait donc être à l'œuvre dans notre étude, pour les échantillons de Zircaloy-4 recristallisés irradiés aux protons à moyenne concentration ($10^{-4}\ \text{g.g}^{-1}$).

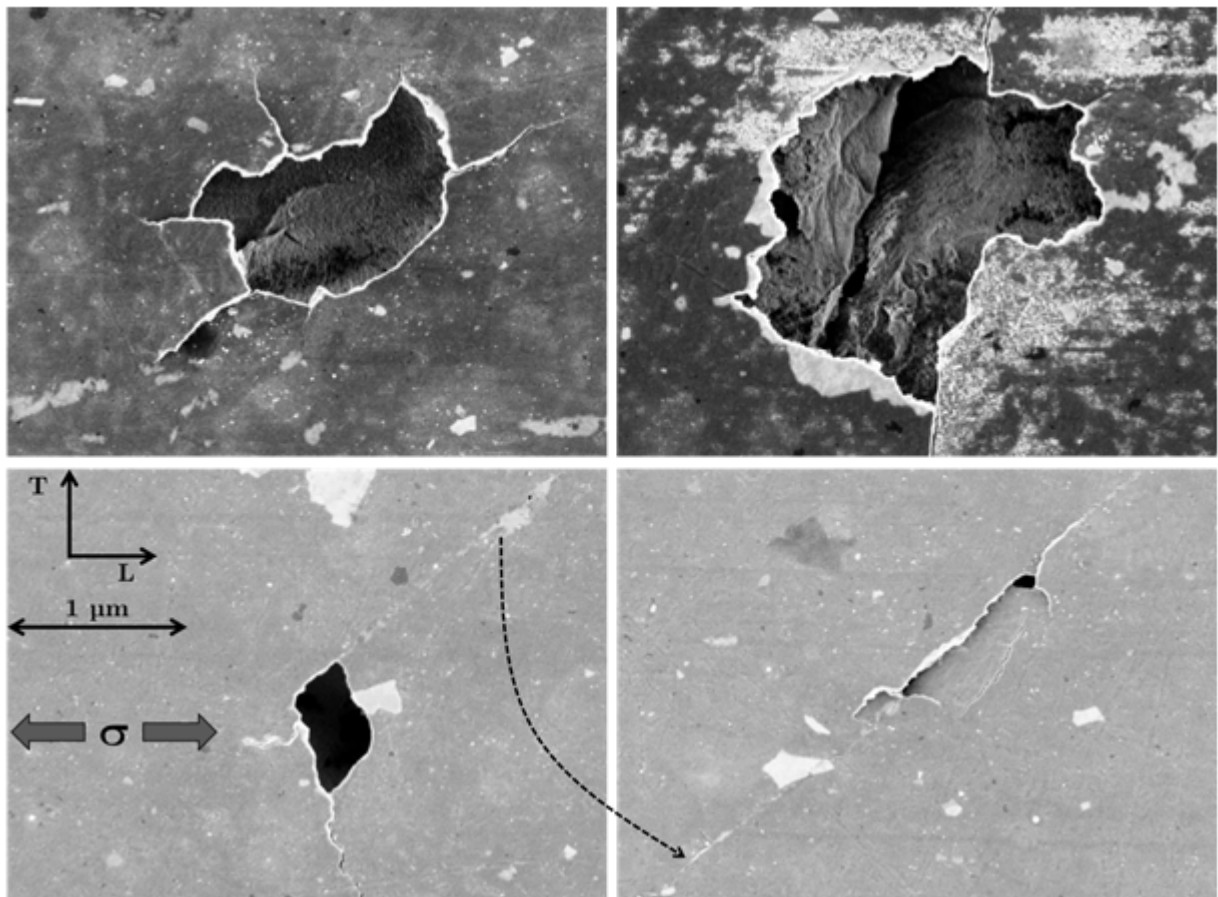


Figure V.38 : Observations au MEB-FEG d'endommagements de surface de l'éprouvette irradiée n°3 (10^{-4} s^{-1} , 10^{-4} g.g^{-1}) après l'essai 2 ($\epsilon_{\text{eq}}^{\text{p}}$ macroscopique de 0.65%). Electrons secondaires, distance de travail (WD) de 4 mm et tension (EHT) de 1 kV. La flèche pointillée désigne une même bande de déformation sur deux clichés.

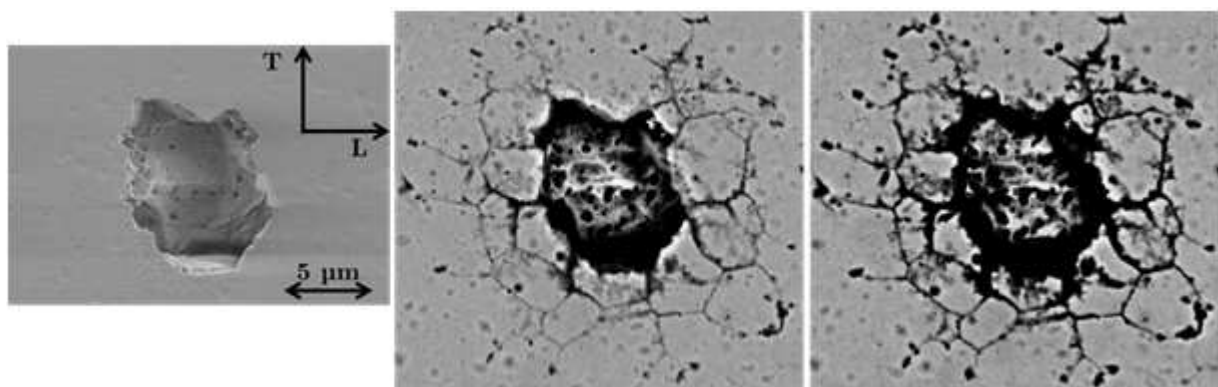


Figure V.39 : Observations au MEB-FEG d'un dommage de CSC-I sur l'éprouvette irradiée n°7 (10^{-4} s^{-1} , 10^{-3} g.g^{-1}) après son premier essai ($\epsilon_{\text{eq}}^{\text{p}}$ macroscopique de 0.21%) dans différentes conditions : électrons secondaires (WD=4 mm, EHT=2 kV, gauche) et électrons rétrodiffusés (EHT=15 kV) à deux distances de travail de 4 mm (milieu) et 8 mm (droit).

Le manque d'observations empêche de conclure pour le matériau non irradié. On a tout de même observé qu'à cette concentration, l'aspect des fissures était différent pour le matériau vierge, avec absence de ce relief. Mais à plus forte concentration (10^{-3} g.g^{-1}), on peut retrouver ce type d'amorce (Figure IV.7). L'existence d'une concentration de transition serait éventuellement liée à l'activation de ce mode d'endommagement.

Des observations au MEB-FEG ont été réalisées sur une éprouvette irradiée testée à concentration moyenne (10^{-4} g.g^{-1}) après une faible déformation plastique macroscopique (0.65%) correspondant à 0.4% dans la couche irradiée. La présence d'endommagements non repérés au microscope optique est constatée (Figure V.38). Ces défauts ne semblent pas particulièrement intergranulaires et ressemblent à des piqûres de corrosion. Ils ne sont visibles qu'en diminuant au maximum la tension d'accélération afin de se focaliser en proche surface. La couche d'oxyde apparaît très fragile. Une bande de déformation semble se former à partir d'un tel défaut, et provoque un amorçage de fissure sur leur longueur. Pour cette éprouvette, une fissure intergranulaire a été observée optiquement, de plus de 30 μm avec la présence d'un relief en son centre. Une piqûration des éprouvettes irradiées à moyenne concentration serait donc possible. Il s'agirait d'un mode supplémentaire d'amorçage des fissures de CSC-I venant s'ajouter à celui déjà opérant sur matériau non irradié, à savoir la fragilisation et la rupture des joints de grains.

A plus forte concentration (10^{-3} g.g^{-1}) et toujours pour les éprouvettes irradiées, des cratères avaient été observés après un essai de traction, pour lequel le modèle de comportement ne prédisait pas de plastification dans la couche irradiée (Figure IV.36). Ces cratères étaient initialement considérés comme des décohésions intergranulaires dues à un phénomène de dissolution des joints de grains. Les observations au MEB-FEG montrent qu'un phénomène de piqûration, éventuellement localisé aux joints de grains, est vraisemblablement à l'œuvre (aspect poreux des surfaces, Figure V.39). Au microscope optique, comme avec les électrons secondaires au MEB, seul le cratère est visible. En revanche, une observation en électrons rétrodiffusés, apporte bien plus d'informations et permet de montrer que les joints des grains alentours sont tous attaqués ou « décorés » selon l'appellation de Jacques.

Ces analyses illustrent l'importance de la méthode d'observation du dommage de CSC-I. Il apparaît qu'un balayage des surfaces d'amorçage par MEB en utilisant le contraste dû aux électrons rétrodiffusés est essentiel pour une meilleure détection du dommage et de sa nature. Cette approche systématique n'était pas compatible avec les objectifs de cette étude et les moyens à disposition. Son absence pour le matériau non irradié rend toute conclusion sur les mécanismes hasardeuse.

V.3.2 Déformation inhomogène des alliages de zirconium

Avec l'approche adoptée pour cette étude, on s'est appuyé sur un modèle de comportement et une simulation numérique macroscopiques pour déterminer l'influence de divers paramètres (déformation plastique, biaxialité des contraintes,...). Les résultats expérimentaux montrent que des paramètres macroscopiques peuvent être utilisés pour prévoir un endommagement visible optiquement (x1000). Cela est intéressant, notamment du point de vue d'une modélisation pour une application industrielle, mais cette échelle n'est pas adaptée à l'étude des mécanismes à l'origine de l'endommagement.

En effet, plusieurs études font état d'un mode de déformation inhomogène des alliages de zirconium. Ainsi Elbachiri a constaté que, dès l'entrée en plasticité, la déformation se localise dans des bandes orientées à $\pm 45^\circ$ de la contrainte appliquée, pour du M5 à température ambiante sollicité de façon uniaxiale (Figure V.40) (Elbachiri 2007). La déformation locale dans ces bandes peut être jusqu'à cinq fois supérieure à celle appliquée. L'auteur précise également que les résultats pour le Zircaloy-4 recristallisé sont similaires.

La distribution des déformations a été déterminée par dépôt puis observation d'une grille en surface des éprouvettes. D'après l'interprétation par l'auteur des observations MEB, les bandes se trouveraient entre des grains « durs », peu enclins à la déformation.

Cela illustre les limites d'une approche macroscopique supposant une homogénéité des champs mécaniques lors de sollicitations uniaxiales, et notamment sur le rôle de la déformation plastique. L'utilisation de modèles polycristallins sur des agrégats de grains représentatifs apparaît indispensable pour déterminer le rôle des paramètres mécaniques sur l'amorçage des fissures de CSC-I. Avec son modèle polycristallin identifié pour du Zircaloy-4 recristallisé testé à 350 °C, Diard retrouve une localisation de la déformation dans des bandes à $\pm 45^\circ$ avec des conditions limites homogènes et une texture isotrope (Diard 2005). Héripré a simulé la déformation d'un agrégat de Zr702 testé à 280°C dont la distribution de déformation a été déterminée par Dexet par une technique de micro-extensométrie par dépôt de grille (Dexet 2006; Héripré 2007). Ces travaux illustrent la difficulté de représenter la déformation d'un agrégat, même avec prise en compte de la texture, et notamment l'importance de considérer des conditions limites réelles plutôt qu'homogènes (Figure V.41).

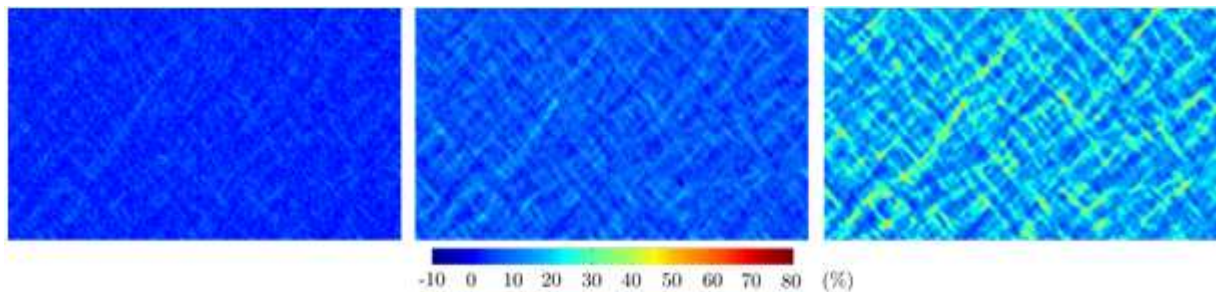


Figure V.40 : Distribution hétérogène de la déformation dans la direction de sollicitation (transverse=verticale) lors d'un essai de traction à vitesse de déformation imposée sur un feuillard de M5 à 20°C, a une déformation plastique macroscopique de 2% (gauche), 5% (milieu) et 10% (droite). Echelle non spécifiée, la largeur des bandes à droite est de l'ordre d'une taille de grains ($\sim 5\mu\text{m}$). D'après (Elbachiri 2007).

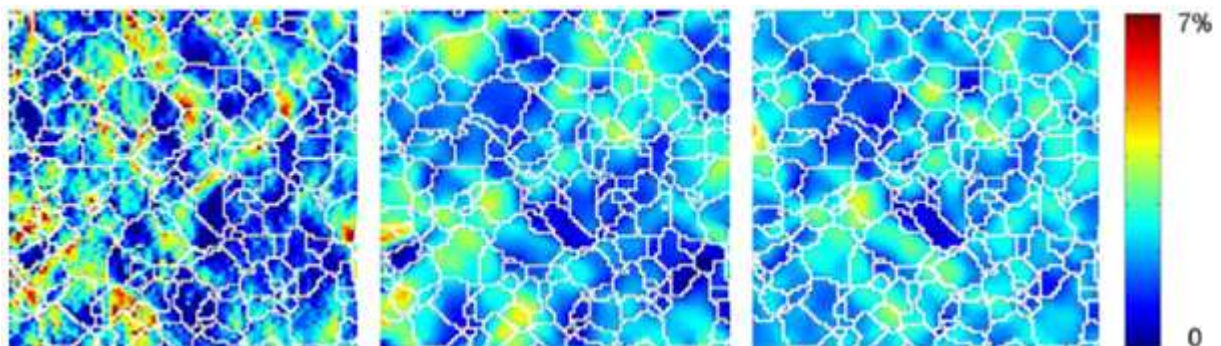


Figure V.41 : Champ de déformation dans la direction de sollicitation (laminage=horizontale) mesuré par micro-extensométrie (dépôt de grille) après un essai de traction sur Zr702 à 280°C jusqu'à une déformation plastique macroscopique de 2.26% (gauche, (Dexet 2006)). La taille de la zone analysée est d'environ 130 μm . Simulations numériques polycristallines de l'agrégat de grains observé, avec des conditions limites issues des observations (milieu) ou homogènes (droite), (Héripré 2007).

Il est nécessaire de prendre du recul sur les résultats de simulation obtenus dans cette étude et accepter de ne pouvoir en tirer de conclusions en ce qui concerne les mécanismes en jeu. Cela vaut particulièrement pour le matériau irradié aux protons. Les observations de Serres

et celles réalisées dans cette étude montrent une tendance à la localisation de la déformation bien plus importante que pour le matériau non irradié (visible à l'œil nu). Cela est également valable pour des sollicitations multiaxées sur matériau non irradié.

Si la distribution réelle de la déformation plastique n'est pas prédictible par un modèle macroscopique, ce serait malgré tout suffisant pour déterminer son activation. Les déformations plastiques à l'amorçage déterminées dans le chapitre précédent pourraient se traduire soit par une déformation critique dans les bandes ou par une accumulation d'incompatibilités de déformation grain à grain augmentant les contraintes intergranulaires. Sans modèle à l'échelle inférieure, on ne peut conclure.

V.3.3 Conclusions

Grâce aux expériences complémentaires réalisées, l'accélération de l'endommagement de CSC-I au passage de la transition a pu être imputée à l'activation de la dissolution intergranulaire, même si l'effet de la contrainte sur celle-ci reste à déterminer. En revanche, la nature de l'endommagement en dessous de cette transition reste indéterminée. Les observations au MEB en électrons rétrodiffusés sur matériau irradié n'écartent pas un amorçage des fissures par un mécanisme de création d'un film fragile, comme observé par Jacques (Jacques 1994). Ce film étant riche en oxygène, il s'agirait d'une transformation de la couche d'oxyde initiale. Un tel mécanisme peut-il expliquer la fissuration intergranulaire en profondeur alors qu'il n'y a presque pas d'oxygène disponible dans le méthanol iodé ? Cela paraît peu probable, d'autant plus que les zones sombres restent localisées en surface au milieu des fissures et que les faciès de rupture de ces éprouvettes ne sont pas spécialement oxydés. Un troisième mécanisme d'endommagement serait donc à l'œuvre, celui d'adsorption-fragilisation couramment considéré pour la fissuration transgranulaire, une fois le défaut initial créé. Les essais de propagation de Serres avec suivi électrique, en méthanol iodé ($5 \cdot 10^{-5} - 5 \cdot 10^{-4} \text{ g.g}^{-1}$) sur Zircaloy-4 recristallisé, montrent que la vitesse de propagation est proportionnelle au facteur d'intensité des contraintes, que ce soit en mode intergranulaire, mixte ou transgranulaire (Serres 2008). Le mécanisme de fissuration pourrait être similaire pour tous les modes, à savoir une adsorption-fragilisation. Avoir besoin de trois mécanismes pour expliquer l'amorçage et la propagation des fissures de CSC-I, en ne s'attardant même pas sur la transition IG/TG, est peut-être symptomatique d'un besoin de caractérisations et d'analyse important, déjà sur matériau non irradié, et à une échelle inférieure à celle adoptée dans cette étude.

Conclusions

Ce travail s'inscrit dans une démarche générale d'étude en laboratoire de la corrosion sous contrainte par l'iode (CSC-I) des alliages de zirconium, phénomène considéré comme responsable des ruptures lors de transitoires de puissance en situation d'Interaction Pastille-Gaine (IPG). La CSC-I est décrite comme la succession des trois étapes : amorçage, développement intergranulaire (IG) et propagation transgranulaire (TG) éventuellement suivie d'une rupture ductile.

Notre étude a porté sur la détermination des paramètres mécaniques critiques pour l'amorçage de fissures intergranulaires dans le Zircaloy-4 recristallisé, sous forme de feuillard, en méthanol iodé à température ambiante. L'originalité de la démarche tient aux différents types d'essais de CSC-I mis en place, à la quantité des essais effectués et à l'association des essais avec une simulation numérique adaptée, permettant de découpler les effets de différents paramètres mais aussi d'exploiter des essais complexes. Une approche principalement macroscopique a été adoptée, tant pour la simulation numérique que pour l'analyse des résultats expérimentaux. Les principaux résultats sont listés dans la suite.

Ces simulations numériques reposent sur l'utilisation d'un modèle de comportement mécanique viscoplastique anisotrope identifié à partir d'essais de traction lisse dans les deux directions principales du feuillard, à différentes vitesses de déformation ($10^{-2} - 10^{-6} \text{ s}^{-1}$). Partant d'un formalisme général de comportement, des simplifications, une optimisation numérique et des comparaisons avec des essais sur éprouvettes entaillées suivis par corrélation d'images ont permis l'obtention d'un modèle prédisant les champs mécaniques lors de sollicitations uniaxiales, mais également pour des essais complexes avec une erreur correcte (éprouvettes entaillées, emboutissage,...).

Les données de la bibliographie montrent la très grande sensibilité de la CSC-I aux conditions expérimentales, mais également la dispersion de ces dernières d'une étude à l'autre en méthanol iodé. Une caractérisation détaillée de l'amorçage par CSC-I a été entreprise ici, notamment vis-à-vis de la concentration en iode. Nos résultats montrent que le domaine de sensibilité à la CSC-I se décompose en trois parties, définies par l'existence d'une concentration dite de transition (notée I_1) proche de $2 \cdot 10^{-4} \text{ g.g}^{-1}$ et d'une concentration dite seuil (notée I_0) proche de 10^{-6} g.g^{-1} .

En dessous de la concentration I_1 , un plateau de sensibilité constante à la CSC-I a été mis en évidence, sur plus d'un ordre de grandeur de concentration, aussi bien lors d'essais de fluage en flexion que d'essais à vitesse de déformation imposée. La contrainte seuil pour un temps de 72 h y est proche de 100 MPa, soit quatre fois moins que la limite d'élasticité à 10^{-4} s^{-1} . Pour des contraintes comprises entre 100 et 300 MPa, les temps à rupture varient entre 5 et 30 h. Pour les essais à vitesse de déformation imposée, on observe une forte sensibilité à la vitesse sur ce plateau. Les déformations plastiques à l'amorçage de fissures, constantes sur le plateau, passent de 1% à près de 4% quand la vitesse augmente de 10^{-5} à 10^{-3} s^{-1} . Les temps à l'amorçage avec plasticité sont donc bien plus faibles que ceux en fluage sans plasticité.

Ce plateau se termine du côté des faibles concentrations par une augmentation de la résistance à la CSC-I. En dessous de la concentration seuil I_0 , aucun endommagement n'est constaté après un essai de traction mené à une des vitesses de déformation testées dans l'étude (jusqu'à 10% de déformation plastique) ou après un essai de flexion à 400 MPa pendant 72 h.

Pour des concentrations supérieures à I_1 , l'amorçage se produit dès l'entrée en plasticité pour les essais de traction à vitesse de déformation imposée, sans effet de vitesse apparent. Cette sensibilité accrue se traduit également par une diminution de la contrainte seuil à 72 h, à moins de 40 MPa. L'aspect du dommage en surface et la forme de la zone IG sur les faciès de rupture changent au passage de la transition. Cette transition serait liée à l'activation de la dissolution des joints de grains avec la concentration, mise en évidence par des essais d'immersion. Cette dissolution agirait en parallèle d'un phénomène de fragilisation des joints, se rapprochant des mécanismes proposés pour la fissuration transgranulaire.

A travers les différents essais réalisés dans cette étude, il apparaît clairement que la concentration en iode est un paramètre de première importance pour la CSC-I. Son effet ne se limite pas à l'apparition de la première fissure. Pour une déformation plastique donnée, la densité de fissures et leur longueur moyenne augmentent de façon exponentielle avec la concentration, entre 10^{-5} et 10^{-3} g.g⁻¹. C'est également le cas pour les vitesses de propagation TG et IG.

Avec les techniques employées, ces vitesses ont pu être estimées en fonction de la concentration en iode, aussi bien pour le matériau écroui après emboutissage et immersion que pour le non écroui après essais de traction ou flexion. Dans le premier cas, des vitesses de propagation transgranulaire comprises entre 0.2 et 5 $\mu\text{m.s}^{-1}$ ont été mesurées pour des concentrations comprises entre 10^{-6} et 10^{-3} g.g⁻¹. Dans le second cas, pour une propagation plutôt intergranulaire, des vitesses comprises entre 0.07 et 0.8 $\mu\text{m.s}^{-1}$ ont été évaluées sur l'intervalle 10^{-4} – 10^{-3} g.g⁻¹. La simulation numérique de l'emboutissage et de la fissuration des godets a permis d'exploiter les immersions de ces derniers et notamment d'estimer le K_I^{seuil} entre 3 et 5 MPa.m^{1/2} pour le matériau écroui, sans variation notable avec la concentration.

Cet effet important de la concentration contraste avec les données de la littérature qui rapportent souvent une saturation de l'endommagement avec la quantité d'iode en milieu iode vapeur. Les différences entre les deux milieux d'étude de la CSC-I en laboratoire ont été soulignées à plusieurs reprises.

Les essais de CSC-I réalisés sur des éprouvettes prélevées dans la direction de laminage ou transverse montrent que la texture cristallographique n'a qu'un rôle très limité sur l'amorçage des fissures intergranulaires. Les déformations à l'amorçage et les statistiques de fissures des deux directions se situent sur une même tendance.

Grâce aux simulations numériques fournissant une bonne prédiction des champs mécaniques sur éprouvettes entaillées, l'effet de la biaxialité des contraintes a pu être étudié par l'emploi de différentes géométries. A notre connaissance, les études sur ce paramètre étaient peu nombreuses, contradictoires et limitées à l'iode vapeur. Les résultats trouvés ici sont inattendus et très marqués puisque la déformation plastique locale à l'amorçage peut être

multipliée par plus de 3 quand le rapport de biaxialité passe de 0 et 0.5, à une concentration de 10^{-4} g.g⁻¹. L'effet de ce paramètre est également visible dans le domaine élastique macroscopique à forte concentration. L'échelle d'étude adoptée n'a pas permis de trouver la cause d'un tel effet. Ces résultats, s'ils se confirment sur d'autres géométries ou en iode vapeur notamment, seront très utiles à la modélisation de l'endommagement lors de l'IPG.

Avec les différents essais réalisés de part et d'autre de la transition et la simulation associée, nous avons montré que la déformation plastique macroscopique n'était pas indispensable à l'amorçage de fissure de CSC-I, contrairement à ce qui est généralement avancé. En son absence, un temps minimal, dit d'incubation et d'environ 4 h, est nécessaire à la contrainte et à la chimie pour déstabiliser ou rompre la couche d'oxyde et commencer l'endommagement intergranulaire. Cet endommagement serait une combinaison entre la dissolution des joints de grains et une fragilisation intergranulaire. L'absence de transport d'iode dans le matériau suggère que ces phénomènes se produisent uniquement aux joints de grains en l'absence de sollicitation mécanique pendant l'exposition au milieu agressif.

La plasticité dispense de ce temps d'incubation par la création de sites d'amorçage, via un mécanisme de rupture mécanique de la couche d'oxyde et d'accumulation de contraintes intergranulaires. Son effet sur le développement intergranulaire n'est pas flagrant, contrairement à celui sur la transition entre fissuration IG et TG. Lors d'essais de traction dans le domaine plastique, le facteur d'intensité des contraintes de transition $K_{IG/M}$ est estimé à $7 \text{ MPa.m}^{1/2}$. Il pourrait dépasser $15 \text{ MPa.m}^{1/2}$ pour des essais de flexion initialement dans le domaine élastique.

L'irradiation neutronique est une composante inévitable de l'environnement des gaines en réacteur, et son impact sur la CSC-I est majeur. Suite à une étude précédente montrant la représentativité de l'irradiation protonique et la sensibilité accrue à la CSC-I qu'elle implique, des éprouvettes uniaxiales irradiées aux protons à 350°C et 2 dpa ont été testées dans le même intervalle de concentrations et de vitesses que le matériau non irradié. Une sensibilité à la CSC-I beaucoup plus importante a été trouvée pour le matériau irradié, avec une déformation plastique à l'amorçage divisée par un facteur compris entre 3 et 15 pour des concentrations inférieures ou égales à 10^{-4} g.g⁻¹. A plus forte concentration, comme pour le matériau non irradié, la déformation plastique macroscopique n'est pas nécessaire à l'amorçage. Malgré le nombre restreint d'éprouvettes, nous avons pu montrer que la sensibilité à la CSC-I du matériau irradié aux protons dépendait de la concentration en iode mais aussi de la vitesse de sollicitation, comme celle des matériaux irradiés aux neutrons.

L'échelle d'analyse des résultats ne permet pas de déterminer avec certitude le paramètre responsable de l'amorçage anticipé sur matériau irradié, parmi la canalisation basale, le durcissement d'irradiation et la localisation macroscopique de la déformation. L'absence de déformation macroscopique à forte concentration et l'aspect des fissures observées suggèrent que le matériau irradié possède une forte réactivité de surface aux fortes et moyennes concentrations ($>10^{-4}$ g.g⁻¹), tandis qu'à faible concentration la localisation macroscopique de la déformation faciliterait l'amorçage des fissures de CSC-I.

Perspectives

Les perspectives à cette étude sont multiples, en lien avec l'absence de conclusion sur les mécanismes et la multiplicité des méthodes d'études. Nous les regroupons selon trois axes.

Le premier concerne une mise en évidence plus précise et plus fiable des effets macroscopiques des différents paramètres. Cela passe notamment par la réalisation d'un nombre plus important d'essais afin de mieux délimiter les zones d'influence et une meilleure précision des mesures. Par exemple, le montage de flexion quatre points modifié pourrait être davantage utilisé. Hormis l'étape de préparation de surface des échantillons, cet essai fournit un nombre important de résultats sans être consommateur de temps de manipulation. L'instrumentation du déplacement des masses ne paraît pas compliquée et permettrait de définir précisément les temps à l'amorçage et les vitesses de propagation intergranulaire à différentes concentrations et contraintes. Un tel dispositif permettrait de tester l'effet de la biaxialité des contraintes dans le domaine élastique à faibles et moyennes concentrations, afin de déterminer s'il est plutôt lié à la dissolution intergranulaire ou à la fragilisation des joints. On pourrait également tester des éprouvettes irradiées aux protons dans leur domaine élastique pour mieux cerner les paramètres responsables de leur sensibilité accrue à la CSC-I. De nouveaux types d'essais pourraient être réalisés pour vérifier que les effets observés ne sont pas uniquement liés à la géométrie particulière des éprouvettes de cette étude. Ainsi des éprouvettes en croix pourraient être testées pour vérifier les effets de biaxialité, et notamment sur un domaine de rapport de biaxialité plus grand. Les éprouvettes entaillées ne permettent pas de dépasser un rapport de 0.5 alors que pendant l'IPG la sollicitation mécanique de la gaine peut être équibiaxiale. Ce type d'éprouvette n'avait pas été retenu du fait d'une trop forte localisation de la déformation plastique en dehors de la zone d'intérêt. La manifestation d'un effet de biaxialité dans le domaine élastique ouvre de nouvelles perspectives.

Ce type d'essais, comme les emboutissages de godets ou la flexion, permettent de facilement isoler les effets de différents paramètres à condition de disposer d'une simulation numérique adaptée. Une telle association numérique-expérimentale est l'un des piliers de cette étude et s'est avérée très profitable. Le modèle de comportement utilisé est performant sur son domaine d'identification mais une amélioration de ce dernier, notamment aux fortes déformations, ainsi qu'une optimisation des outils numériques nous paraissent essentielles pour une meilleure exploitation des essais complexes. Une meilleure connaissance du comportement mécanique de la couche irradiée aux protons nous semble également indispensable. Un premier dispositif d'amincissement des éprouvettes jusqu'à quelques dizaines de microns a été réalisé mais les résultats n'étaient pas concluants. Un essai de micro-traction sur éprouvettes irradiées et amincies caractériserait ainsi le comportement du matériau irradié aux protons, permettant ainsi une meilleure prédiction des champs mécaniques lors des essais de CSC-I.

Le deuxième axe de perspectives concerne l'étude des mécanismes. Dans le processus de compréhension des phénomènes, la mise en évidence des effets d'un ou plusieurs paramètres à l'échelle macroscopique est une étape indispensable. Cela a été l'objet de cette étude. Mais

la détermination des mécanismes impliqués nécessite un changement d'échelle qui n'a été qu'illustré ici. Les observations des amorces de fissures au microscope optique ne suffisent pas et une généralisation des observations au MEB, et notamment aux électrons rétrodiffusés pour le contraste chimique, paraît inévitable. La présence d'attaques chimiques observées sur matériau irradié (zones sombres), riche en oxygène et pouvant être un film intermédiaire non protecteur d'après (Jacques 1994), doit être recherchée dans toutes les conditions et si possible analysée avec des méthodes adaptées. La forme selon laquelle l'iode s'adsorbe et fragilise le matériau n'est pas connue, bien que le mécanisme ait été proposé il y a plusieurs décennies. D'un point de vue plus mécanique, l'analyse des résultats trouvés dans cette étude, et notamment de l'effet de la biaxialité, doit être menée à l'aide d'un modèle de comportement polycristallin. Pour déterminer les paramètres mécaniques microscopiques critiques pour l'amorçage, la réponse mécanique d'un agrégat polycristallin réel (défini par EBSD avant essai de CSC-I) où s'amorce une fissure pourrait être décrite avec les outils maintenant disponibles. En observant la position des amorces, un critère d'amorçage pourrait être établi. Ce besoin de modélisation à l'échelle du grain est encore plus fort pour le matériau irradié, sujet à une localisation de la déformation intra- et intergranulaire.

Le troisième axe de perspectives concerne la réalisation d'expériences pour de nouvelles voies d'études ou pour améliorer la modélisation. Il nous semble important de s'intéresser encore plus aux interactions avec la couche passive. Nous avons montré que, même en l'absence de sollicitation mécanique, cette couche ne constituait pas une barrière infranchissable mais ralentissait malgré tout la corrosion intergranulaire. Dans les modèles de CSC-I, sa présence est souvent négligée dès que l'on considère une déformation plastique. Une valeur critique de déformation de 0.4% est souvent avancée. Il serait intéressant de caractériser précisément la rupture de l'oxyde en fonction de son épaisseur et du chargement appliquée (vitesse, direction(s), ...). Les conséquences mécaniques d'une couche d'oxyde fissurée et son impact sur l'amorçage et la propagation des fissures sont des points essentiels pour la modélisation et la prédiction de la CSC-I. Sur ce point de modélisation, un nouveau modèle d'amorçage intégrant les conclusions de l'ensemble des essais n'a pu être établi par manque de temps. En choisissant une formulation avec un dommage cumulé, la question du trajet de chargement, et notamment de l'historique mécanique, se pose. Pour y répondre, la réalisation d'essais de CSC-I à chargements complexes, et peut-être plus représentatifs des transitoires pendant l'IPG, nous semble nécessaire : essais de chargement-déchargement, écrouissage-relaxation...

On peut enfin s'interroger sur la portée des résultats obtenus en dehors du cadre de l'étude. On a pointé à plusieurs reprises les différences entre les deux milieux agressifs utilisés pour la CSC-I. L'iode vapeur, par la température des essais et l'état de l'iode, est considéré comme plus représentatif des conditions REP. Essayer de retrouver les effets mis en évidence ici dans ce milieu, sur éprouvettes de traction ou sur tubes, constitue la prochaine étape dans le processus d'amélioration de la prédiction des ruptures de gaines pendant l'IPG.

Références

- Adamson, R., B. Cox, et al. (2006). Information on Zirconium Alloys (IZNA) Annual Report.
- Adamson, R. B. and W. L. Bell (1985). Effects of Neutron Irradiation and Oxygen Content on the Microstructure and Mechanical Properties of Zircaloy. Dans: *Microstructure and Mechanical Behaviour of Materials*, Xi'an Jiaotong University, X'ian, China
- AFNOR (2009). NF EN 15305, Essais non-destructifs - Méthode d'essai pour l'analyse des contraintes résiduelles par diffraction des rayons X.
- Akhtar, A. (1971). Plastic deformation of zirconium single crystals. *Acta Metallurgica* 19, 655-663.
- Akhtar, A. (1973). Compression of zirconium single crystals parallel to the c-axis. *Journal of Nuclear Materials* 47(1), 79-86.
- Allais, L., V. Vaubert, et al. (1996). Anisotropie de Comportement d'une Tôle de Zirconium Alpha 702. Dans: *Journées d'études propriétés-microstructures*
- Amaya, M. and T. Fuketa (2004). Effect of absorbed hydrogen on the stress corrosion cracking (SCC) susceptibility of unirradiated zircaloy cladding. *Journal of Nuclear Science and Technology* 41(11), 1091-1099.
- Angeliu, T. M., B. Kallenburg, et al. (2009). Development of Fracture Mechanics Method to Evaluate Iodine Stress Corrosion Cracking of Zirconium Alloys. Dans: *Top Fuel 2009*, Paris, France
- ASTM (2003). E 521 – 96: Standard Practice for Neutron Radiation Damage Simulation by Charged-Particle Irradiation.
- Ballinger, R. G. and R. M. Pelloux (1981). The Effect of Anisotropy on the Mechanical Behavior of Zircaloy-2. *Journal of Nuclear Materials* 97(3), 231-253.
- Barö, G., G. Dannhauser, et al. (1986). Deformation and Fracture Properties of Stress Relieved Zircaloy-4 in Iodine, Caesium, Cadmium and a Mixture of Caesium/Cadmium. *Res Mechanica* 17, 99-124.
- Béchade, J. L. (2010). Dans: *Métallurgie des alliages de zirconium pour le nucléaire*, Gif-sur-Yvette
- Besson, J. and S. Bugat (2006). Modélisation Mécanique de la Corrosion Sous Contrainte : Modèle de Zone Cohésive Appliqué à la Corrosion par l'Iode des Alliages de Zirconium. Dans: *Aussois 2006, session "Problème multi-physiques"*
- Bibilashvili, Y. K., Y. N. Dolgov, et al. (1995). Propagation of stress corrosion cracks in Zr-1% Nb claddings. *Journal of Nuclear Materials* 224(3), 307-310.
- Bibilashvili, Y. K., Y. N. Dolgov, et al. (1995a). Investigation of the growth rate of cracks in shells made of the alloy Zr-1%Nb under conditions of iodine corrosion cracking under stress. *Atomic Energy* 80(2), 90-94.
- Bibilashvili, Y. K., Y. N. Dolgov, et al. (1996). The initiation of cracks in cladding tubes of Zr-1%Nb alloy under stress corrosion cracking conditions. *Atomic Energy* 80(4), 242-247.
- Bibilashvili, Y. K., A. V. Medvedev, et al. (2000). Influence of irradiation on KISCC of Zr-1%Nb claddings. *Journal of nuclear materials* 280(1), 106-110.
- Bobji, M. S. and S. K. Biswas (1998). Estimation of hardness by nanoindentation of rough surfaces. *Journal of Materials Research* 13(11), 3227-3233.
- Bornert, M. CorrelManuV. http://www.lms.polytechnique.fr/users/bornert/CMV_14.
- Brunisholz, L. (1985). Caractérisation de la Corrosion sous contrainte du Zircaloy en milieu iodé, Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble.
- Brunisholz, L. and C. Lemaignan (1987). Iodine-Induced Stress Corrosion of Zircaloy Fuel Cladding: Initiation and Growth. Dans: *Zirconium in the Nuclear Industry: Seventh International Symposium*, Philadelphia
- Busby, C. C., R. P. Tucker, et al. (1975). Halogen Stress Corrosion Cracking of Zircaloy-4 Tubing. *Journal of Nuclear Materials* 55, 64 - 82.
- Cahoon, J. R., W. H. Broughton, et al. (1971). The Determination of Yield Strength from Hardness Measurements. *Metallurgical Transactions* 2(7), 1979-1983.
- CEA. "Cast3M." <http://www-cast3m.cea.fr/>.

- CEA. (2007). "Cast3M." from <http://www-cast3m.cea.fr/>.
- Choo, K.-N., S.-I. Pyun, et al. (1987). A Study On The Mechanism Of Iodine-Induced Stress-Corrosion Cracking Of Zircaloy-4. *Journal of Nuclear Materials* 149, 289-295.
- Cockeram, B. V. and K. S. Chan (2012). In-situ Studies and Modeling of the Deformation and Fracture Mechanism for Wrought Zircaloy-4 and Zircaloy-2 as a Function of Stress-State. *Journal of Nuclear Materials* accepted manuscript.
- Cox, B. (1970). Environmentally Induced Cracking of Zirconium Alloys. I. The Topography of Stress Corrosion Cracking in Methanolic Solutions. AECL-3551.
- Cox, B. (1972). Environmentally Induced Cracking of Zirconium Alloys. *Corrosion* 28, 207-217.
- Cox, B. (1990). Pellet-Clad Interaction (PCI) Failures of Zirconium Alloy Fuel Cladding : a Review. *Journal of Nuclear Materials* 172(3), 249-292.
- Cox, B. (1990a). Environmentally-induced cracking of zirconium alloys — A review. *Journal of Nuclear Materials* 170(1), 1-23.
- Cox, B. (2005). Some thoughts on the mechanisms of in-reactor corrosion of zirconium alloys. *Journal of Nuclear Materials* 336(2-3), 331-368.
- Cugy, P., C. P. Scott, et al. (2011). The development of the K7' model for the prediction of the stress corrosion cracking in austenitic TWIP steels. Dans: *Steel-hydrogen colloquium*, Ghent, Belgium
- Dakin, J. S. (1994). Iodine Stress Corrosion Cracking Studies in Irradiated Zircaloy Cladding. Dans: *International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance*, West Palm Beach, Florida
- Davies, J. H., J. R. Thompson, et al. (1977). Irradiation Tests to Characterize the PCI Failure Mechanism. Dans: *Water Reactor Fuel Performance*, St Charles, IL
- Delobelle, P., P. Robinet, et al. (1996). A Model to Describe the Anisotropic Viscoplastic Behaviour of Zircaloy-4 Tubes. *Journal of nuclear materials* 238(2-3), 135-162.
- Derep, J. L., S. Ibrahim, et al. (1979). Deformation Behaviour of Zircaloy-4 between 77K and 900K. *Acta Metallurgica* 28, 607-619.
- Dexet, M. (2006). Méthode de couplage entre expérimentations et simulations numériques en vue de l'identification de lois de comportement intracristallin. Application aux alliages de zirconium, Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique.
- Diard, O. and G. Cailletaud (2001). Un exemple de couplage, comportement-endommagement-environnement, dans les polycristaux. Application à l'Interaction Pastille-Gaine Thèse de doctorat, Ecole nationale supérieure des mines de Paris, Paris, FRANCE.
- Diard, O., S. Leclercq, et al. (2002). Distribution of normal stress at grain boundaries in multicrystals: application to an intergranular damage modeling. *Computational materials science* 25(1-2), 73-84.
- Diard, O., S. Leclercq, et al. (2005). Evaluation of finite element based analysis of 3D multicrystalline aggregates plasticity Application to crystal plasticity model identification and the study of stress and strain fields near grain boundaries. *International Journal of Plasticity* 21, 691-722.
- Dickson, J. I., J. Boutin, et al. (1984). A comparison of two simple methods for measuring cyclic internal and effective stresses. *Materials Science and Engineering* 64(1), L7-L11.
- Dinu, A., M. Abrudeanu, et al. (2008). the stress corrosion cracking behavior of zircaloy-4 fuel claddings with different rates of oxydation. Dans: *WEC REGIONAL ENERGY FORUM – FOREN 2008*, Neptun
- Duffo, G. S. and S. B. Farina (2005). Diffusional control in the intergranular corrosion of some hcp metals in iodine alcoholic solutions. *Corrosion science* 47(6), 1459-1470.
- Dunlop, J. (2005). Approche par variable interne de fluage et recristallisation des alliages en zirconium, Thèse de doctorat, INPG.
- Elayaperumal, K., P. K. De, et al. (1972). Stress-Corrosion Cracking of Zircaloy-2 in Methanol-Iodine Solutions. *Journal of Nuclear Materials* 45, 323-330.
- Elbachiri, K., J. Crépin, et al. (2003). Influence de la Microstructure des Alliages de Zirconium sur leur Sensibilité à la Vitesse de Déformation et à la Température. Dans: *16eme Congrès Français de Mécanique*, Nice, France

- Elbachiri, K., P. Doumalin, et al. (2007). Characterization of local strain distribution in Zircaloy4 and M5 alloys. Dans: *Zirconium in the Nuclear Industry: 15th International Symposium*, Sunriver, OR, USA
- Fandeur, O. (2001). Etude Experimentale et modélisation mécanique de la corrosion sous contrainte des gaines en zircaloy-4, Thèse de doctorat, Ecole Centrale Paris.
- Farhat, Z. N. (2008). Mechanical anisotropy and construction of flow stress diagrams during the annealing of Zr-1% Sn alloy. *Materials Science and Engineering: A* 474(1-2), 96-103.
- Farina, S. B. and G. S. Duffo (2004). Intergranular to transgranular transition in the stress corrosion cracking of Zircaloy-4. *Corrosion science* 46(9), 2255-2264.
- Fournier, L., A. Serres, et al. (2009). Proton Irradiation Effect on Microstructure, Strain Localization and Iodine-induced Stress Corrosion Cracking in Zircaloy-4. *Journal of Nuclear Materials* 384(1), 38-47.
- Francillette, H., B. Bacroix, et al. (1997). Effect of initial textures on deformation mechanisms and texture evolutions of Zr α polycrystals deformed by channel-die compression tests. *Materials Science and Engineering: A* 234-236(0), 974-977.
- Françon, V., M. Fregonese, et al. (2008). Influence of surface conditions on iodine-induced stress corrosion cracking of Zircaloy. Dans: *Eurocorr 2008*
- Fregonese, M. (1997). Mécanismes de corrosion sous contrainte par l'iode dans le zirconium et le Zircaloy-4. Transposition aux conditions d'interaction pastille-gaine dans les réacteurs à eau pressurisée., Thèse de doctorat, Ecole Nationale des Mines de St Etienne et Institut National Polytechnique de Grenoble. Saint-Etienne.
- Fregonese, M., F. Lefebvre, et al. (1999). Influence of recoil-implanted and thermally released iodine on I-SCC of Zircaloy-4 in PCI-conditions: chemical aspects. *Journal of Nuclear Materials* 265, 245-254.
- Fregonese, M., C. Olagnon, et al. (2008). Strain-hardening influence on iodine induced stress corrosion cracking of Zircaloy-4. *Journal of nuclear materials* 373(1-3), 59-70.
- Galvele, J. R. (1987). A stress corrosion cracking mechanism based on surface mobility. *Corrosion Science* 27(1), 1-33.
- Garlick, A. (1973/74). Fracture of Zircaloy Cladding under Simulated Power Ramp Conditions. *Journal of Nuclear Materials* 49, 209 - 224.
- Geyer, P. (1999). Comportement Elasto-viscoplastique de Tubes en Zircaloy-4 : Approche Expérimentale et Modélisation Micromécanique, Thèse de doctorat, Ecole nationale supérieure des mines de Paris, Paris, France.
- Gittus, J. H. (1972). Theoretical Analysis of the Strains Produced in Nuclear Fuel Cladding Tubes by the Expansion of Cracked Cylindrical Fuel Pellets. *Nuclear Engineering and Design* 19, 69-82.
- Gomez-Sanchez, A. V., S. B. Farina, et al. (2007). Effect of temperature on the stress corrosion cracking of zircaloy-4 in iodine alcoholic solutions. *Corrosion Science* 49, 3112-3117.
- Goryachev, S. B., A. K. Gritsuk, et al. (2001). Texture effect on stress corrosion cracking of zirconium alloys in iodine environment. Dans: *13th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry*, Annecy, France
- Goryachev, S. B., A. R. Gritsuk, et al. (1992). Iodine Induced SCC of Zr Alloys at Constant Strain Rate. *Journal of Nuclear Materials* 199(1-2), 50-60.
- Graff, S. (2006). Viscoplastic behavior of zirconium alloys in the temperatures range 20°C-400°C: characterization and modeling of strain ageing phenomena, Thèse de doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris.
- Grange, M., J. Besson, et al. (2000). Anisotropic behavior and rupture of hydrided Zircaloy-4 sheets. *Metallurgical and Materials Transactions A* 31(3), 679-690.
- Griffiths, M., J. F. Mecke, et al. (1996). Evolution of Microstructure in Zirconium Alloys During Irradiation. Dans: *Zirconium in the Nuclear Industry: Eleventh International Symposium*
- Haddad, R. and B. Cox (1986). On the initiation of cracks in Zircaloy tubes by I₂ and Cs/Cd vapours. *Journal of Nuclear Materials* 138, 81-88.
- Héripéré, E., M. Dexet, et al. (2007). Coupling between experimental measurements and polycrystal finite element calculations for micromechanical study of metallic materials. *International Journal of Plasticity* 23, 1512-1539.
- Higgy, H. R. and F. H. Hammad (1972). Effect of Neutron Irradiation on the Tensile Properties of Zircaloy-2 and Zircaloy-4. *Journal of Nuclear Materials* 44, 215-227.

- Hill, R. (1950). The Mathematical Theory of Plasticity.
- Hirao, K., T. Yamane, et al. (1988). Stress Corrosion Cracking of Neutron Irradiated Zircaloy-4 in Iodine Alcohol Solution. *Journal of Materials Science Letters* 7(6), 623-624.
- Hofmann, P. and J. Spino (1981). Chemical Interactions Between Simulated Fission Products and Zircaloy-4 at Elevated Temperature, Including Influence on Ductility and Time-to-Failure. *Journal of Nuclear Materials* 102, 11 17- 134.
- Hofmann, P. and J. Spino (1982). Determination of the critical iodine concentration for stress corrosion cracking failure of Zircaloy-4 tubing between 500 and 900°C. *Journal of Nuclear Materials* 107(2-3), 297-310.
- Hofmann, P. and J. Spino (1983). Chemical aspects of iodine-induced stress corrosion cracking failure of zircaloy-4 tubing above 50°C. *Journal of Nuclear Materials* 114(1), 50-65.
- Honig, R. E. (1985). The development of secondary ion mass spectrometry (SIMS): A retrospective. *International Journal of Mass Spectrometry and Ion Processes* 66(1), 31-54.
- Hwang, S. K. and H. T. Han (1989). Anisotropic surface energy reduction of Zr by chemisorption. *Journal of Nuclear Materials* 161(2), 175-181.
- Hwang, S. K., H. S. Ryoo, et al. (1991). Effects of transformation on texture and iodine stress corrosion cracking resistance of zircaloy sheet. *Metallurgical and Materials Transactions A* 22(10), 2247-2256.
- INSA Toulouse. "<http://isiwww.insa-toulouse.fr/~sims/>."
- Jacques, P. (1994). Contribution à l'étude de l'amorçage des fissures de corrosion sous contrainte dans le zirconium et le Zircaloy-4, Thèse de doctorat.
- Jacques, P., F. Lefebvre, et al. (1999a). Deformation-Corrosion Interactions for Zr Alloys During I-SCC Crack Initiation. Part I : Chemical Contributions. *Journal of nuclear materials* 264(3), 239-248.
- Jacques, P., F. Lefebvre, et al. (1999b). Deformation-Corrosion Interactions for Zr Alloys During I-SCC Crack Initiation. Part II: Localised Stress and Strain Contributions. *Journal of Nuclear Materials* 264(3), 249-256.
- Jae-Kyung, Y., P. Heung-Bae, et al. (1992). Yielding and dynamic strain aging behavior of Zircaloy-4 tube. *Journal of Nuclear Materials* 189(3), 353-361.
- Jernkvist, L. O. (1995). A model for predicting pellet-cladding interaction-induced fuel rod failure. *Nuclear Engineering and Design* 156.
- Jones, R. L., D. Cubicciotti, et al. (1980). Effects of Test Temperature, Alloy Composition, and Heat Treatment on Iodine-Induced Stress Corrosion Cracking of Unirradiated Zircaloy Tubing. *Journal of Nuclear Materials* 91(2-3), 277-292.
- Jones, R. L., F. L. Yaggee, et al. (1979). Threshold conditions for iodine-induced stress corrosion cracking of unirradiated zircaloy-4 tubing under internal pressurization. *Journal of Nuclear Materials* 82(1), 26-38.
- Kachanov, L. (1986). Introduction to Continuum Damage Mechanics, Springer.
- Knorr, D. B. and R. M. Pelloux (1982). Effects of Texture and Microstructure on the Propagation of Iodine Stress Corrosion Cracks in Zircaloy. *Metallurgical and Materials Transactions A* 13A(1), 73-83.
- Kocak, M., I. Hadley, et al. (2008). FITNET Fitness-for-Service (FFS) Annex - Volume 2.
- Kruth, J.-P. and P. Bleys (2000). Measuring residual stress caused by Wire EDM of tool steel. *Int J Electr Mach* 5, 23-28.
- Kubo, T., Y. Wakashima, et al. (1985a). Effects of crystallographic orientation on plastic deformation and SCC initiation of zirconium alloys. *Journal of Nuclear Materials* 132(1), 1-9.
- Lahanier, C., P. Parnière, et al. (1983). Caractérisation de solides cristallisés par diffraction des rayons X www.techniques-ingenieur.fr.
- Le Boulch, D. (2008). Modélisation de la Corrosion Sous Contrainte par l'Iode. Présentation d'un modèle d'endommagement couplé au comportement des alliages de Zirconium dans MISTRAL
- Le Boulch, D., L. Fournier, et al. (2004). Testing and modelling iodine-induced stress corrosion cracking in stress relieved Zircaloy-4. Dans: *Pellet-clad Interaction in Water Reactor Fuels*, Aix-en-Provence, France

- Le Saux, M. (2008). Comportement et Rupture de Gainés en Zircaloy-4 Détendu Vierges, Hydrurées ou Irradiées en Situation Accidentelle de Type RIA, Thèse de doctorat, Ecole des Mines de Paris.
- Le Saux, M., J. Besson, et al. (2008). A Model to Describe the Anisotropic Viscoplastic Mechanical Behavior of Fresh and Irradiated Zircaloy-4 Fuel Claddings under RIA Loading Conditions. *Journal of Nuclear Materials* 378(1), 60-69.
- Leclercq, S., G. Rousselier, et al. (2007). A generic method for modeling the behavior of anisotropic metallic materials: Application to recrystallized zirconium alloys. *Mechanics of Materials* 39, 458-472.
- Lee, D. and R. Adamson (1977). Modeling of Localized Deformation in Neutron Irradiated Zircaloy-2. Dans: *Zirconium in the Nuclear Industry*, ASTM STP 633
- Lemaignan, C. (2004). Science des matériaux pour le nucléaire, Editions de Physique.
- Limon, R. (2010). Module MISTRAL version 2.3, Note technique CEA 2010-026A.
- Limon, R., S. Lehmann, et al. (1995). Mesure des coefficients d'élasticité et d'anisotropie plastique des tubes de gainage en Zircaloy-4X1 1ère phase.
- Linga Murty, K., D. L. Baty, et al. (1987). Texture-Based Computer Modelling of Environmentally Induced Cleavage in HCP Metals. Dans: *10th International Conference on Metallic Corrosion (ICMC-10)*, Madras, India
- Linga Murty, K. and I. Charit (2006). Texture development and anisotropic deformation of zircalloys. *Progress in Nuclear Energy* 48, 325-359.
- Linga Murty, K. and I. Charit (2006). Texture development and anisotropic deformation of zircalloys. *Progress in nuclear energy* 48(4), 325-359.
- Lucas, G. E. and A. L. Bement (1975). Temperature Dependence of the Zircaloy-4 Strength-differential. *Journal of Nuclear Materials* 58(2), 163-170.
- Lunde, L. and K. Videm (1980). The Influence of Testing Conditions and Irradiation on the Stress Corrosion Cracking Susceptibility of Zircaloy. *Journal of Nuclear Materials* 95(1-2).
- Mahmood, S. T. and K. L. Murty (1989). Localized Plastic Flow, Anisotropic Mechanical Properties and Crystallographic Texture in Zircaloy Sheet. *Journal of Materials Engineering* 11, 315-329.
- Maki, H. and M. Ooyama (1975). Plastic Deformation and Fracture Behavior of Zircaloy-2 Fuel Cladding Tubes under Biaxial Stress. *Journal of Nuclear Science and Technology* 12(7), 423-435.
- Miller, A. K., H. Ocken, et al. (1981). Iodine stress corrosion cracking of Zircaloy: laboratory data, a phenomenological model and predictions of in-reactor behavior. *Journal of nuclear materials* 99, 254-268.
- Moncoffre, N., G. Carlot, et al. (2000). Diffusion study of implanted iodine in zirconium using ion beams. *Surface and Coatings Technology* 128-129(0), 9-14.
- Morize, P., J. Baicry, et al. (1987). Effect of Irradiation at 588 K on Mechanical Properties and Deformation Behavior of Zirconium Alloy Strip. Dans: *Zirconium in the Nuclear Industry : Seventh International Symposium*, Philadelphia
- Mozzani, N., E. Andrieu, et al. (2011). Development of a method for studying the influence of stress state on the iodine-induced stress corrosion cracking of zirconium alloys. Dans: *15th International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems-Water Reactors*, Colorado Springs, USA
- Munch, E., L. Duisabeau, et al. (2004). Acoustic Emission Detection of Environmentally Assisted Cracking in Zircalloy-4 Alloy. Dans: *EUROCORR*, Nice, France
- Musienko, A. and G. Cailletaud (2009). Simulation of inter- and transgranular crack propagation in polycrystalline aggregates due to stress corrosion cracking. *Acta Materialia* 57(13), 3840-3855.
- Nakatsuka, M. and Y. Hayashi (1982). Effect of Biaxial Stresses on Iodine SCC Behavior of Zircaloy Fuel Cladding Tubes. *Journal of Nuclear Materials* 105(2-3), 159-171.
- Nakatsuka, M. and M. Nagai (1987). Reduction of Plastic Anisotropy of Zircaloy Cladding by Neutron Irradiation. *Journal of Nuclear science and Technology*. 24(11), 906-914.
- Nakatsuka, M. and M. Nagai (1987). Reduction of Plastic Anisotropy of Zircaloy Cladding by Neutron Irradiation, (I). *Journal of Nuclear science and Technology*. 24(10), 832-838.

- Newman, J. C. J. and I. S. Raju (1984). Stress-Intensity Factor Equations for Cracks in Three-Dimensional Finite Bodies Subjected to Tension and Bending Loads.
- Nicholson, R. D. (1980). The Mechanical Properties of Zircaloy-2 After Exposure to Iodine-Methanol Solutions. *Journal of Nuclear Materials* 91, 171-177.
- Nikulin, S. A. and A. B. Rozhnov (2005). Corrosion Cracking of Zirconium Cladding Tubes (A Review). I. Methods of Study and Mechanisms of Fracture. *Metal Science and Heat Treatment* 47(1-2), 71-79.
- Nikulina, A. V. (2003). Zirconium-Niobium Alloys for Core Elements of Pressurized Water Reactors. *Metal Science and Heat Treatment* 45(7-8), 287-292.
- Norrington, K., Y. Haag, et al. (1982). Propagation of stress-corrosion cracks in unirradiated Zircaloy. *Journal of Nuclear Materials* 105(2-3), 231-236.
- Northwood, D. O., R. W. Gilbert, et al. (1979). Characterization of Neutron Irradiation Damage in Zirconium Alloys - an International "Round-Robin" Experiment. *Journal of Nuclear Materials* 79, 379- 394.
- Northwood, D. O., I. M. London, et al. (1975). Elastic constants of zirconium alloys. *Journal of Nuclear Materials* 55(3), 299-310.
- Onchi, T., H. Kayano, et al. (1983). Inhomogeneous Plastic Deformation and its Relevance to Iodine Stress Corrosion Cracking Susceptibility in Irradiated Zircaloy-2. *Journal of Nuclear Materials* 116, 211-218.
- Onchi, T., H. Kayano, et al. (1982). Effect of Neutron Irradiation on Iodine Stress Corrosion Cracking Susceptibility of Zircaloy-2 Tubing. *Journal of Nuclear Science and Technology* 19(9), 740-748.
- Onimus, F. (2003). Approche expérimentale et modélisation micromécanique du comportement des alliages de zirconium irradiés, CEA Saclay, Direction des systèmes d'information.
- Onimus, F. and J. L. Béchade (2009). A polycrystalline modeling of the mechanical behavior of neutron irradiated zirconium alloys. *Journal of Nuclear Materials* 384(2), 163-174.
- Onimus, F. and J. L. Béchade (2012). 4.01 - Radiation Effects in Zirconium Alloys. Comprehensive Nuclear Materials. J. M. K. Editor-in-Chief: Rudy. Oxford, Elsevier: 1-31.
- Onimus, F., J. L. Bechade, et al. (2006). Investigation of neutron radiation effects on the mechanical behavior of recrystallized zirconium alloys. *Journal of nuclear materials* 358(2-3), 176-189.
- Pan, Z. L., N. Wang, et al. (2010). MEASUREMENTS OF ELASTIC MODULUS IN ZR ALLOYS FOR CANDU APPLICATIONS. Dans: *11th International Conference on CANDU Fuel*, Niagara Falls, Ontario, Canada
- Park, S. Y., J. H. Kim, et al. (2007). Crack initiation and propagation behavior of zirconium cladding under an environment of iodine-induced stress corrosion. *Metals and Materials International* 13(2), 155-163.
- Park, S. Y., J. H. Kim, et al. (2008a). Stress-corrosion crack initiation and propagation behavior of Zircaloy-4 cladding under an iodine environment. *Journal of Nuclear Materials* 372(2-3), 293-303.
- Peehs, M., H. Stehle, et al. (1979). Out-of-Pile Testing of Iodine Stress Corrosion Cracking in Zircaloy Tubing in Relation to the Pellet-Cladding Interaction Phenomenon. Dans: *Zirconium in the Nuclear Industry: Fourth Conference*
- Prat, F., M. Grange, et al. (1998). Behavior and Rupture of Hydrided Zircaloy-4 Tubes and Sheets. *Metallurgical and Materials Transactions A* 29A, 1643-1651.
- Priser, M. (2011). Analyses multi-échelles du comportement en fluage d'alliages de zirconium, Thèse de doctorat, Université de Bretagne Sud
- Regnard, C. and C. Lemaignan (1995). Systèmes de déformation activés dans le Zircaloy-4 lors d'une sollicitation de type interaction pastille-gaine. Dans: *Journées d'Etudes Propriétés - Microstructure, Le Zirconium*, Saclay, France
- Regnard, C., B. Verhaeghe, et al. (2002). Activated Slip Systems and Localized Straining of Irradiated Zr Alloys In Circumferential Loadings. Dans: *Zirconium in the Nuclear Industry: Thirteenth International Symposium*, West Conshohocken, PA
- Roberts, J. T. A., R. L. Jones, et al. (1979). A stress corrosion cracking model for pellet-cladding interaction failures in light-water reactor fuel rods. *ASTM special technical publication* 681, 285-305.
- Rosenbaum, H. S., J. H. Davies, et al. (1966). Interaction of Iodine with Zircaloy-2. GEAP--5100-5;

- Rozhnov, A. B., V. A. Belov, et al. (2010). Stress corrosion cracking of zirconium cladding tubes: II. Mechanisms and kinetics. *Russian Metallurgy (Metally)* 2010(10), 984-990.
- Ryu, W. S., Y. H. Kang, et al. (1988). Effects of iodine concentration on iodine-induced stress corrosion cracking of zircaloy-4 tube. *Journal of Nuclear Materials* 152(2-3), 194-203.
- Schäffler, I., P. Geyer, et al. (2000). Thermomechanical behavior and modeling between 350°C and 400°C of Zircaloy-4 cladding tubes from an unirradiated state to high fluence (0 to 85.1024 nm⁻², E>1 MeV). *Journal of Engineering Materials and Technology* 122, 168-176.
- Schuster, I. and C. Lemaignan (1989a). Characterisation of Zircaloy Corrosion Fatigue Phenomena in an Iodine Environment. Part 1: Crack Growth. *Journal of Nuclear Materials* 166(3), 348-356.
- Schuster, I. and C. Lemaignan (1989b). Characterisation of Zircaloy Corrosion Fatigue Phenomena in an Iodine Environment. Part 2: Fatigue Life. *Journal of Nuclear Materials* 166(3), 348-356.
- Schuster, I. and C. Lemaignan (1992). Influence of Texture on Iodine-Induced Stress Corrosion Cracking of Zircaloy-4 Cladding Tubes. *Journal of Nuclear Materials* 189, 157-166.
- Schuster, I., C. Lemaignan, et al. (1995). Testing and Modelling the Influence of Irradiation on Iodine-Induced Stress Corrosion Cracking of Zircaloy-4. *Nuclear engineering and design* 156(3), 343-349.
- Serres, A. (2008). Corrosion sous contrainte par l'iode du Zircaloy-4 : cinétiques de fissuration et influence de l'irradiation sur l'amorçage, Thèse de doctorat, Institut National des Sciences Appliquées de Lyon.
- Serres, A., L. Fournier, et al. (2010). The effect of iodine content and specimen orientation on stress corrosion crack growth rate in Zircaloy-4. *Corrosion Science* to be released.
- Shimada, S. and M. Nagai (1983). A fractographic study of iodine-induced stress corrosion cracking in irradiated Zircaloy-2 cladding. *Journal of Nuclear Materials* 114(2-3), 222-230.
- Shimada, S. and M. Nagai (1983b). Evaluation of the resistance of irradiated zirconium-liner cladding to iodine-induced stress corrosion cracking. *Journal of Nuclear Materials* 114(2-3), 305-311.
- Sokurskii, I. N. and L. N. Protsenko (1958). Deformation systems of α -zirconium. *The Soviet Journal of Atomic Energy* 4(5), 579-582.
- Srikant, G., N. Chollacoop, et al. (2006). Plastic strain distribution underneath a Vickers Indenter: Role of yield strength and work hardening exponent. *Acta Materialia* 54(19), 5171-5178.
- Syrett, B. C., R. L. Jones, et al. (1981). The Effect of Axial Stress to Hoop Stress Ratio on the Susceptibility of Unirradiated Zircaloy-4 to Iodine Stress Corrosion Cracking. *Journal of Nuclear Materials* 96(1-2), 160-168.
- Tenckhoff, E. (2005). Review of Deformation Mechanisms, Texture, and Mechanical Anisotropy in Zirconium and Zirconium Base Alloys. *Journal of ASTM International* 2(4), 25-49.
- Thorpe, W. R. and I. O. Smith (1978). Tensile properties of zr-1 wt.% Nb alloy. *Journal of Nuclear Materials* 78(1), 49-57.
- Timoshenko, S. and J. N. Goodier (1969). Theory of elasticity, McGraw-Hill.
- Tournadre, L., F. Onimus, et al. (2012). Experimental study of the nucleation and growth of c-component loops under charged particle irradiations of recrystallized Zircaloy-4. *Journal of Nuclear Materials* 425, 76-82.
- Turner, P. A., N. Christodoulou, et al. (1995). Modelling the Mechanical Response of Rolled Zircaloy-2. *International Journal of Plasticity* 11(3), 251-265.
- Une, K. (1978). Deformation and Fracture Behavior of Zircaloy-2 Deformed at Constant Strain Rate in Iodine Environment, (I) Uniaxial Tension Test. *Journal of Nuclear Science and Technology* 16(8), 577-587.
- Une, K. (1979b). Deformation and Fracture Behavior of Zircaloy-2 Deformed at Constant Strain Rate in Iodine Environment, (II). *Journal of Nuclear Science and Technology* 16(9), 660-670.
- Une, K. (1984). Threshold values characterizing iodine-induced SCC of Zircaloys. *Res mechanica* 12(3).
- Van Swam, L. F. P., D. B. Knorr, et al. (1979). Relationship between contractile strain ratio R and texture in zirconium alloy tubing. *Metallurgical and Materials Transactions A* 10A, 483-487.
- Vedoya, P., A. Pochettino, et al. (1988). Plastic Anisotropy of Titanium, Zirconium and Zircaloy 4 Thin Sheets. *Textures and Microstructures* 8&9, 601-610.

- Verhaeghe, B. (1997). Revue des micromécanismes généraux de corrosion sous contrainte; Application au Zircaloy.
- Videm, K. and L. Lunde (1979). Stress corrosion crack initiation and growth and formation of pellet-clad interaction defects. *ASTM special technical publication* 681, 229-243.
- Videm, K., L. Lunde, et al. (1979). Cracking of cladding tubes caused by power ramping and by laboratory stress corrosion experiments. *Journal of Nuclear Materials* 87(2-3), 259-267.
- Wheeler, R. G. and D. R. Ireland (1966). Multiaxial Plastic Flow of Zircaloy-2 Determined from Hardness Data. *Electrochemical Technology* 4, 313-317.
- Williford, R. E. (1985). Chemically Assisted Crack Nucleation in Zircaloy. *Journal of Nuclear Materials* 132, 52-61.
- Wood, J. C. (1972). Factors affecting stress corrosion cracking of zircaloy in iodine vapour. *Journal of Nuclear Materials* 45(2), 105-122.
- Wood, J. C., B. A. Surette, et al. (1975). Environmentally induced fracture of Zircaloy by iodine and cesium: the effects of strain rate, localized stresses and temperature. *Journal of Nuclear Materials* 57(2), 155-179.
- Yang, T.-T. and C.-H. Tsai (1989). On the susceptibility to stress corrosion cracking of Zircaloy in an iodine containing environment. *Journal of Nuclear Materials* 166(3), 252-264.
- Yasuda, T., M. Nakatsuka, et al. (1985). Deformation and Fracture Properties of Neutron-Irradiated Recrystallized Zircaloy-2 Cladding Under Uniaxial Tension. Dans: *Zirconium in the Nuclear Industry*, Strasbourg; France
- Ziegler, J. F., J. P. Biersack, et al. (2008). SRIM - The Stopping and Range of Ions in Matter, SRIM Company.
- Zu, X. T., K. Sun, et al. (2005). Effect of proton and Ne irradiation on the microstructure of Zircaloy-4. *Philosophical Magazine* 85, N° 4-7, 649-659.
- Zu, X. T., K. Sun, et al. (2005). Effect of proton and Ne irradiation on the microstructure of Zircaloy 4. *Philosophical Magazine* 85(4), 649 - 659.