



**HAL**  
open science

**Evaluation à l'aide de modèles des paramètres structuraux importants pour la prévision du comportement élastique, de dilatation thermique et de la croissance sous irradiation d'alliages de zirconium polycristallin**

Jésus Diz

► **To cite this version:**

Jésus Diz. Evaluation à l'aide de modèles des paramètres structuraux importants pour la prévision du comportement élastique, de dilatation thermique et de la croissance sous irradiation d'alliages de zirconium polycristallin. Sciences de l'ingénieur [physics]. Université Paul Verlaine - Metz, 1992. Français. NNT : 1992METZ027S . tel-01775988

**HAL Id: tel-01775988**

**<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01775988>**

Submitted on 24 Apr 2018

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

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



## AVERTISSEMENT

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

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

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

Contact : [ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr](mailto:ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr)

## LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

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

[http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg\\_droi.php](http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php)

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

VS 78462

---

**EVALUATION A L'AIDE DE MODELES DES PARAMETRES  
STRUCTURAUX IMPORTANTS POUR LA PREVISION DU  
COMPORTEMENT ELASTIQUE, DE DILATATION THERMIQUE ET  
DE CROISSANCE SOUS IRRADIATION D'ALLIAGES DE  
ZIRCONIUM POLYCRISTALLIN**

---

PAR  
**Jésus DIZ**

-----  
**THESE**

BIBLIOTHEQUE UNIVERSITAIRE - METZ	
N° inv.	19920685
Cote	S/M3 92/27
Loc	Magasin

soutenu le 07 septembre 1992 à l'U.F.R. MIM-Sciences de  
l'Université de Metz, en vue de l'obtention du grade de

**Docteur d'université - mention : sciences pour l'ingénieur**

**JURY**

M. CIZERON	Président du jury
MM. ARMINJON	Rapporteur
PENELLE	"
LEMAIGNAN	"
Mme PHILIPPE	Examineur
Mlle BARD	"
M. ESLING	"
M. HUMBERT	Directeur de thèse

Cette étude a été réalisée au sein du Laboratoire de Métallurgie des Matériaux Polycristallins (LM2P) dans le cadre d'un contrat avec FRAGEMA. Que tous ceux qui m'ont aidé à préparer cette thèse trouvent ici l'expression de ma profonde gratitude.

Mes remerciements s'adressent tout particulièrement à M. Esling, directeur du LM2P.

Je remercie tout particulièrement M. Humbert pour son accueil, son attention et les conseils qu'il m'a prodigués tout au long de cette thèse.

Je suis très reconnaissant à M<sup>lle</sup> Bard (FRAGEMA) dont la disponibilité n'a d'égale que la compétence et le dynamisme.

Que MM. Arminjon, Lemaignan et Penelle reçoivent l'expression de ma profonde reconnaissance pour avoir accepté d'être les rapporteurs de cette thèse.

Je remercie Mme Philippe, M. Cizeron et M. Esling pour l'intérêt qu'ils ont porté à ce travail en me faisant l'honneur de participer au jury.

Qu'il me soit également permis de remercier M. Leroux ainsi que le personnel de la section TFIDA et tout particulièrement M<sup>lle</sup> Rebeyrolle, MM. Cloué et Molin. Je remercie également toute l'équipe du LM2P, notamment MM. Beaujean, Caillet, Fundenberger, Thil et Wagner.

## RESUME

Les alliages de zirconium sont utilisés dans l'industrie nucléaire en raison de leur faible section de capture des neutrons, de leur bonne tenue à la corrosion en eau et de leurs propriétés mécaniques suffisantes. Cependant, les sociétés du secteur nucléaire qui cherchent à améliorer les alliages afin d'augmenter la durée de vie des assemblages combustibles, s'emploient à l'amélioration de la tenue à l'oxydation et à l'hydruration de l'assemblage mais aussi à la réduction du grandissement et de la croissance des alliages utilisés.

Il est indispensable au niveau des grilles de l'assemblage, de pouvoir contrôler la croissance latérale des tôles pour éviter tout problème de fonctionnement et de manutention. De plus, les grilles maintenant les crayons combustibles par l'intermédiaire de ressorts rapportés, il est utile de pouvoir estimer l'évolution des forces exercées par les ressorts sur les crayons. D'autre part, le problème de croissance devient majeur dans l'évaluation du grandissement sous irradiation des tubes guides qui peut fixer à lui seul, la durée de vie de l'assemblage.

La croissance sous irradiation peut être définie comme étant la déformation d'un matériau soumis à un flux de particules en l'absence d'une sollicitation thermique ou mécanique. Les particules sont dans le cas présent des neutrons rapides ( $E > 1 \text{ MeV}$ ) semblables à ceux produits dans les réacteurs nucléaires. Celles-ci, en percutant le matériau cèdent localement de l'énergie aux atomes qui sont déplacés de leur site. Ce déplacement n'est effectif que si l'énergie apportée par le neutron est supérieure à une certaine valeur dite énergie de seuil. L'atome déplacé peut se replacer dans un site interstitiel en laissant derrière lui une lacune: il y a création d'une paire de Frenkel. Le problème posé est alors de savoir comment va évoluer cette paire lacune-interstitiel.

La croissance sous irradiation des alliages de zirconium est un phénomène complexe, au vue des connaissances actuelles, influencé par de nombreux paramètres tels que la texture, la taille des grains, le type et la densité de dislocations, la composition chimique de l'alliage, la température d'irradiation, le flux et la fluence neutronique...L'étude des phénomènes impliqués en croissance sous irradiation peut se faire de différentes façons, la plus directe étant de poursuivre des campagnes d'essais dans les conditions réelles ou équivalentes d'endommagement. Cependant, il ne faut pas perdre de vue que la durée nécessaire pour entreprendre une campagne de mesures est rédhibitoire (plusieurs années) et que le coût de cette démarche est élevé (quelques millions de francs). C'est la raison pour laquelle, des techniques de simulation, moins onéreuses, sont utilisées pour étudier les mécanismes de croissance sous irradiation d'un matériau: bombardement ionique, électronique, protonique. Mais, là aussi, des problèmes d'interprétation et d'extrapolation se posent.

Aussi, il nous paraissait plus judicieux d'étudier d'autres propriétés physiques des tôles d'alliage de zirconium. Ceci pour deux raisons, d'une part cerner les paramètres nécessaires pour caractériser les propriétés du matériau et d'autre part établir une analogie entre la croissance sous irradiation et d'autres types de déformation. Ce raisonnement peut être a priori critiquable, dans le sens où les mécanismes physiques de chacune des propriétés étudiées ne sont pas les mêmes. Néanmoins une étude similaire a été menée sur le graphite où l'on comparait avec succès la modélisation des propriétés thermiques et de croissance sous irradiation du matériau [R.J. Price, 1965].

Un des objectifs de ce travail a donc été de recenser, à travers l'étude de l'élasticité et de la dilatation thermique en particulier, les paramètres indispensables permettant une modélisation satisfaisante des propriétés de déformation (des alliages de zirconium) qui présentent des analogies dans leur formulation mathématique actuelle. Sur cette base, nous avons élaboré et testé différents modèles prévisionnels de ces comportements pour les polycristaux de symétrie cristalline hexagonale.

La prise en compte de la texture uniquement conduit au modèle le plus simple qui consiste à effectuer une moyenne sur l'espace des orientations cristallographiques, pondérée par la fonction densité des orientations, du tenseur des constantes élastiques ou des coefficients de dilatation thermique. Pour tenir compte de l'interaction entre le grain et la matrice entourant ce dernier, il est nécessaire de construire un modèle plus complet, où la forme des grains et la texture jouent un rôle essentiel. Le calcul des propriétés utilise alors un schéma auto-cohérent qui permet de résoudre le problème de l'inclusion ellipsoïdale à propriétés anisotropes baignée dans une matrice anisotrope.

Cette étape préliminaire devait nous permettre de développer un modèle fiable pour la prévision de la croissance libre sous irradiation des alliages utilisés ou susceptibles d'être utilisés en réacteur.

Notre étude bibliographique de l'influence de certains paramètres métallurgiques sur les propriétés physiques des alliages de zirconium a permis de tirer de nombreux enseignements. Le premier d'entre eux a été de constater l'importance de paramètres communs sur des propriétés aussi différentes de par leur nature physique que l'élasticité, la dilatation thermique ou la croissance sous irradiation. Ainsi, nous avons pu constater que la texture cristallographique est indispensable pour effectuer de telles prévisions. Nous avons pu nous rendre compte en second lieu que certaines caractéristiques métallurgiques pouvaient avoir un rôle plus ou moins marqué selon la propriété étudiée:

- La taille des grains
- La composition chimique
- Les contraintes résiduelles

En ce qui concerne l'élasticité, nous avons démontré de manière claire que la prise en compte de la seule texture cristallographique permettait de prédire avec satisfaction les propriétés macroscopiques des alliages de zirconium. La prise en compte de la forme des grains permet d'améliorer significativement les prévisions.

L'étude de la dilatation thermique nous a permis de dégager un certain nombre de conclusions intéressantes. La première réside dans le fait que l'utilisation de la texture et de la forme des grains permet de prédire avec précision, dans la majorité des cas, les coefficients de dilatation thermique du polycristal dans le plan de la tôle. Ce point ne peut être généralisé dans le sens où il apparaît que les matériaux écrouis n'ayant pas subi de traitement de détentionnement après déformation, ont un comportement différent. En effet, il semble que la présence de contraintes résiduelles altère considérablement la déformation thermique du matériau. Les modèles que nous avons développés ne prenant pas en compte les effets de l'écrouissage, ne nous permettent pas de prédire, dans le cas des matériaux déformés, les propriétés de dilatation thermique.

Pour ces deux propriétés, l'addition d'éléments d'alliages dans la composition chimique ne modifie que très légèrement le comportement macroscopique. En effet, nous avons pu calculer avec précision les propriétés des tôles de zircaloy-4 en utilisant les données monocristallines du zirconium pur. De la même manière, nous avons prédit correctement les propriétés des tôles de Zr-2,5%Nb, contenant une seconde phase, à partir de données précitées.

Dans le cas de la croissance sous irradiation, il semble que l'on puisse répertorier raisonnablement les paramètres influençant la croissance comme indiqué ci-dessous:

- La texture et l'écrouissage
- Les contraintes résiduelles
- La taille des grains et les joints de grains
- La composition chimique.

Le paramètre le plus délicat à prendre en compte en vue d'une éventuelle modélisation, est la composition chimique. En effet, il semble très difficile de quantifier les effets de tel ou tel élément chimique sur le comportement en croissance sous irradiation. Ceux-ci sont apparemment dépendants de la teneur introduite, de la température, de la fluence et des propriétés mêmes des précipités que ces éléments sont susceptibles de former. Finalement, bien qu'un modèle général de croissance sous irradiation prenant en compte tous les paramètres influant la propriété ne soit pas construit à ce jour, il est néanmoins possible, suivant l'état métallurgique du matériau étudié et pour une composition chimique fixée, d'effectuer des prévisions qualitatives voire quantitatives de ce comportement.

# **SOMMAIRE**

## SOMMAIRE

<b><u>INTRODUCTION</u></b> .....	p.8
<b><u>I - ELASTICITE</u></b> .....	p.11
<b><u>NOTATIONS UTILISEES</u></b> .....	p.12
<b><u>I - 1 - INTRODUCTION</u></b> .....	p.14
I - 1 - 1 - Généralités .....	p.14
I - 1 - 2 - Position du problème .....	p.14
I - 1 - 3 - Définition des constantes effectives du polycristal.....	p.15
<b><u>I - 2 - MODELISATION</u></b> .....	p.15
I - 2 - 1 - Modèles dits de la moyenne .....	p.15
I - 2 - 1 - 1 - Voigt	
I - 2 - 1 - 2 - Reuss	
I - 2 - 1 - 3 - Hill	
I - 2 - 2 - Modèle auto-cohérent .....	p.16
I - 2 - 2 - 1 - Les fonctions de Green	
I - 2 - 2 - 2 - Modélisation auto-cohérente	
<b><u>I - 3 - ASPECTS PRATIQUES DU CALCUL DES CONSTANTES EFFECTIVES</u></b> .....	p.21
I - 3 - 1 - Facilités offertes par la symétrie hexagonale.....	p.21
I - 3 - 2 - Calcul des constantes de Reuss et Voigt.....	p.22
I - 3 - 2 - 1 - Calcul analytique	
I - 3 - 2 - 2 - Calcul à partir des facteurs de Keams	
I - 3 - 2 - 3 - Calcul numérique	
I - 3 - 3 - Problèmes liés à la modélisation auto-cohérente.....	p.27
I - 3 - 3 - 1 - Choix de la solution initiale	
I - 3 - 3 - 2 - Convergence de la série	
I - 3 - 3 - 3 - Nature mathématique de $u_{ijkl}^0$	
I - 3 - 4 - Illustration de l'effet de la forme des grains .....	p.29
<b><u>I - 4 - RESULTATS</u></b> .....	p.31
I - 4 - 1 - Technique expérimentale .....	p.31
I - 4 - 1 - 1 - Principe	
I - 4 - 1 - 2 - Erreurs de mesure	
I - 4 - 2 - Tôle de zinc .....	p.32
I - 4 - 2 - 1 - Alliages de Zinc-Cuivre	
I - 4 - 2 - 2 - Alliages de Zinc-Titane	
I - 4 - 2 - 3 - Conclusions	
I - 4 - 3 - Tôles de zirconium.....	p.33
I - 4 - 3 - 1 - Influence de l'état métallurgique	
I - 4 - 3 - 2 - Influence de la composition chimique	
I - 4 - 3 - 3 - Effets de la texture	
I - 4 - 3 - 3 - 1 - Zircaloy-4	
I - 4 - 3 - 3 - 2 - Zr2,5%Nb	
I - 4 - 3 - 3 - 3 - Zr1Nb1Sn0,5Fe	
I - 4 - 3 - 4 - Evolution du comportement élastique avec la température	
I - 4 - 3 - 4 - 1 - Résultats prédictifs	
I - 4 - 3 - 4 - 2 - Applications	
I - 4 - 3 - 4 - 3 - Conclusions	
<b><u>I - 5 - CONCLUSIONS</u></b> .....	p.38
<b><u>BIBLIOGRAPHIE</u></b> .....	p.65

<b><u>II - DILATATION THERMIQUE</u></b> .....	<b>p.67</b>
<b><u>NOTATIONS UTILISEES</u></b> .....	<b>p.68</b>
<b><u>II - 1 - INTRODUCTION</u></b> .....	<b>p.69</b>
II - 1 - 1 - Applications industrielles .....	<b>p.69</b>
II - 1 - 2 - Objectifs et moyens mis-en-oeuvre .....	<b>p.70</b>
II - 1 - 3 - Difficultés liées à la modélisation .....	<b>p.70</b>
<b><u>II - 2 - MODELISATION</u></b> .....	<b>p.70</b>
II - 2 - 1 - Modèles dits "de la moyenne" .....	<b>p.71</b>
II - 2 - 1 - 1 - Modèle de la "moyenne directe"	
II - 2 - 1 - 2 - Modèle de la "moyenne inversée"	
II - 2 - 2 - Modèle auto-cohérent .....	<b>p.71</b>
II - 2 - 2 - 1 - Image de l'inclusion appliquée à l'élasticité	
II - 2 - 2 - 2 - Image de l'inclusion appliquée à la dilatation thermique	
II - 2 - 3 - Calcul numérique .....	<b>p.75</b>
II - 2 - 3 - 1 - Calcul des constantes basé sur une moyenne	
II - 2 - 3 - 2 - Calcul à partir du modèle auto-cohérent	
II - 2 - 3 - 2 - 1 - Aspects numériques	
II - 2 - 3 - 2 - 2 - Effets de la forme moyenne des grains	
<b><u>II - 3 - RESULTATS</u></b> .....	<b>p.80</b>
II - 3 - 1 - Dispositif de mesure.....	<b>p.81</b>
II - 3 - 1 - 1 - Conditions expérimentales	
II - 3 - 1 - 2 - Influence de la vitesse de chauffe	
II - 3 - 1 - 3 - Choix de la température de mesure du coefficient de dilatation	
II - 3 - 1 - 4 - Incertitudes sur la mesure	
II - 3 - 2 - Tôles d'alliage de zinc.....	<b>p.82</b>
II - 3 - 2 - 1 - Alliages Zinc-Cuivre	
II - 3 - 2 - 2 - Alliages Zinc-Titane	
II - 3 - 2 - 3 - Conclusions	
II - 3 - 3 - Tôles d'alliage de zirconium .....	<b>p.83</b>
II - 3 - 3 - 1 - Zr <sub>2</sub> 5%Nb	
II - 3 - 3 - 2 - Zr <sub>1</sub> Nb <sub>1</sub> Sn <sub>0.5</sub> Fe	
II - 3 - 3 - 3 - Zircaloy-4	
II - 3 - 3 - 4 - Comportement des matériaux écrouis	
II - 3 - 3 - 4 - 1 - Matériaux brut de laminage	
II - 3 - 3 - 4 - 2 - Matériaux déformés par traction uniaxiale	
II - 3 - 3 - 4 - 3 - Conclusions	
<b><u>II - 4 - CONCLUSIONS</u></b> .....	<b>p.86</b>
<b><u>BIBLIOGRAPHIE</u></b> .....	<b>p.103</b>

<b><u>III - CROISSANCE SOUS IRRADIATION</u></b> .....	p.104
<b><u>NOTATIONS UTILISEES</u></b> .....	p.105
<b><u>III - 1 - INTRODUCTION</u></b> .....	p.106
III - 1 - 1 - Présentation du problème .....	p.106
III - 1 - 2 - Définition de certaines grandeurs .....	p.107
III - 1 - 3 - Intérêts industriels .....	p.107
III - 1 - 4 - Historique de la croissance sous irradiation neutronique.....	p.108
III - 1 - 4 - 1 - Croissance du Graphite	
III - 1 - 4 - 2 - Croissance de l'Uranium	
III - 1 - 4 - 3 - Résultats expérimentaux sur monocristaux de zirconium	
III - 1 - 4 - 4 - Premières mesures sur polycristaux de zirconium	
<b><u>III - 2- RESULTATS EXPERIMENTAUX</u></b> .....	p.110
III - 2- 1 - Démarche expérimentale .....	p.110
III - 2- 2 - Résultats et Analyse.....	p.111
III - 2- 2 - 1 - Résultats	
III - 2- 2 - 2 - Analyse	
III - 2- 3 - Conclusions .....	p.113
<b><u>III - 3- PARAMETRES INFLUENCANT LA CROISSANCE SOUS IRRADIATION</u></b> .....	p.113
<b><u>III - 4 - CONCLUSION</u></b> .....	p.115
II - 4 - 1 - Résultats C.E.A.....	p.115
III - 4 - 2 - Paramètres à retenir en vue d'une modélisation.....	p.116
II - 4 - 2 - 1 - Les contraintes résiduelles	
II - 4 - 2 - 2 - La texture et l'écroissage	
II - 4 - 2 - 3 - La taille des grains	
II - 4 - 2 - 4 - La composition chimique	
<b><u>BIBLIOGRAPHIE</u></b> .....	p.126
<b><u>CONCLUSION</u></b> .....	p.128
<b><u>ANNEXE 1</u></b> .....	p.131
<b><u>ANNEXE 2</u></b> .....	p.175

# **INTRODUCTION**

# **INTRODUCTION**

La croissance sous irradiation des alliages de zirconium est un phénomène très complexe, au vu des connaissances actuelles, influencé par de nombreux paramètres tels que la texture, la taille et la forme des grains, le type et la densité de dislocations, la composition chimique de l'alliage, la température d'irradiation, le flux et la fluence neutronique...

Ce phénomène fut d'abord étudié sur l'uranium  $\alpha$ . Des modèles théoriques expliquaient ce comportement en faisant intervenir toute une série de mécanismes: déformation plastique anisotrope, diffusion anisotrope des défauts ponctuels sur les boucles de dislocations... Plus tard, l'utilisation du microscope électronique à transmission (M.E.T.) permet de mettre en évidence la formation de boucles de dislocations sur les plans (110) et (023), sources de déformation anisotrope: croissance selon [010] et contraction selon [100], sans changement selon la direction [001].

C'est alors qu'on s'intéresse à la croissance des alliages de zirconium. On fait rapidement l'analogie entre uranium et zirconium. Dans ce dernier, il se formerait des boucles de dislocations interstitielles et lacunaires respectivement sur les plans (10.0) et (00.2), qui expliqueraient la croissance selon l'axe  $\langle a \rangle$  et la contraction selon l'axe  $\langle c \rangle$  observées sur les monocristaux de zirconium [S.N.Buckey, 1962], [G.J.C.Carpenter et al., 1981]. Tout paraissait clair jusqu'au moment où on a dû admettre que ces interprétations ne pouvaient expliquer que de façon médiocre les résultats obtenus en réacteur. C'est pourquoi, depuis quelques années, on a remis en question l'analogie qui avait été faite avec l'uranium, en revenant à l'étude des mécanismes fondamentaux pouvant expliquer la croissance des différents alliages de zirconium.

L'étude des phénomènes impliqués en croissance sous irradiation peut se faire de différentes façons, la plus directe étant de poursuivre des campagnes d'essais dans les conditions réelles ou équivalentes. Cependant, il ne faut pas perdre de vue que la durée nécessaire pour entreprendre une campagne de mesures est rédhibitoire (plusieurs années) et que le coût de cette démarche est très élevé (quelques millions de francs). C'est la raison pour laquelle, des techniques de simulation, moins onéreuses, sont utilisées pour étudier les mécanismes de croissance sous irradiation d'un matériau: bombardement ionique, électronique [K.Nutall et D.Faulkner, 1977], protonique [J.J.Kai et al., 1990], accompagné d'observations au M.E.T. Mais, là aussi, des problèmes d'interprétation et d'extrapolation se posent.

Il nous paraissait donc judicieux d'étudier d'autres propriétés physiques des tôles d'alliage de zirconium. Ceci pour deux raisons, d'une part cerner les paramètres nécessaires pour caractériser les propriétés du matériau et d'autre part établir une analogie entre croissance sous irradiation et d'autres types de déformation. Ce raisonnement peut être a priori critiquable, dans le sens où les mécanismes physiques de chacune des propriétés étudiées ne sont pas les mêmes. Néanmoins R.J. Price [1965] a mené une étude similaire sur le graphite, où il comparait avec succès la modélisation des propriétés thermiques et de croissance sous irradiation du matériau.

Nous avons donc étudié de manière indépendante l'élasticité, la dilatation thermique et la croissance sous irradiation. En ce qui concerne les deux premières propriétés, nous nous sommes efforcés de choisir une modélisation permettant de prédire avec satisfaction les résultats expérimentaux que nous avons obtenus. Cette démarche nous a permis en particulier de souligner le rôle fondamental de la texture cristallographique pour la prévision des propriétés élastiques et thermiques. D'autre part, l'étude de certains états métallurgiques montre qu'il est indispensable de tenir compte d'autres paramètres tels que la forme des grains ou les contraintes résiduelles.

Forts de ces enseignements et des modèles développés, nous nous sommes intéressés à la croissance sous irradiation en utilisant les résultats d'essais publiés dans la littérature et ceux obtenus par Framema. Il apparaît dans le cas de la croissance sous irradiation que le rôle de la texture, de la forme des grains et des contraintes résiduelles est également primordial.

Finalement, cette étude doit permettre de conclure sur les analogies entre les différentes propriétés physiques étudiées et de distinguer les états métallurgiques pour lesquels des modèles prévisionnels de croissance sous irradiation pertinents peuvent être construits avec un nombre de paramètres structuraux réduits.

**REFERENCES:**

**BUCKLEY S.N. (1962):**

**"Uranium and graphite" (Institute of Metals, London, 1962), p.445**

**CARPENTER G.J.C., MURGATROYD R.A., ROGERSON A., WATTERS J.F. (1981):**

**"Irradiation growth of zirconium single crystals", Journal of Nuclear Materials, vol. 101 (1981) p.28**

**KAI J.J., HUANG W.I., CHOU H.Y. (1990):**

**"The microstructural evolution of zircaloy-4 subjected to proton irradiation", Journal of Nuclear Materials, vol. 170 (1990) p.193**

**NUTALL K., FAULKNER D. (1977):**

**"The effect of irradiation on the stability of precipitates in Zr-2.5wt% Nb alloys", Journal of Nuclear Materials, vol. 67 (1977) p.131**

**PRICE R.J., BOKROS J.C. (1965):**

**"Relationship between preferred orientation, thermal expansion and radiation-induced length changes in graphite", Journal of Nuclear Materials, vol. 36 (1965) p.1897**

**RAPPORT DE CONCEPTION FRAGEMA (1990):**

**réf. TF.IDC/DC/029**

**Chapitre I:**  
**ELASTICITE**

**NOTATIONS UTILISEES** (dans leur ordre d'apparition dans le texte)

$\sigma_{ij}$  : tenseur des contraintes locales  
 $F_i$  : force volumique  
 $n_j^S$  : normale au plan sortant  
 $T_i^S$  : forces appliquées en surface  
 $\varepsilon_{ij}$  : tenseur des déformations locales  
 $c_{ijkl}$  : tenseur des constantes élastiques locales  
 $\Sigma_{ij}$  : tenseur des contraintes macroscopiques  
 $C_{ijkl}$  : tenseur des constantes élastiques effectives du polycristal  
 $E_{ij}$  : tenseur des déformations macroscopiques  
 $\langle \rangle$  : moyennage  
 $r$  : coordonnées cartésiennes d'un point de l'espace  
 $g$  : désigne une orientation de l'espace d'Euler  
 $C^V$  : constantes élastiques effectives calculées par le modèle de Voigt  
 $s_{ijkl}$  : compliances élastiques locales  
 $C^R$  : constantes élastiques effectives calculées par le modèle de Reuss  
 $S^R$  : compliances élastiques effectives calculées par le modèle de Reuss  
 $CH$  : constantes élastiques effectives calculées par le modèle de Hill  
 $g_{ij}$  : fonctions de Green du milieu homogène équivalent  
 $u_i$  : tenseur des déplacements  
 $U_i$  : tenseur des "déplacements moyens"  
 $c'_{ijkl}$  : écart local entre constantes élastiques du monocristal et du polycristal  
 $u'_i$  : écart entre le déplacement local et le déplacement moyen  
 $f_i$  : force volumique "fictive"  
 $G_{ijkl}$  : tenseur symétrisé des fonctions de Green dérivées deux fois  
 $H_g(r)$  : fonction d'Heaviside  
 $V_g$  : volume occupé par un grain d'orientation  $g$   
 $\Gamma_{ijkl}^{gg'}$  : fonction définie à partir des fonctions de Green  
 $l_{ijkl}$  : tenseur identité  
 $\delta_{ij}$  : symbole de Kronecker  
 $u_{ijkl}$  : grandeur quantifiant l'écart de comportement élastique local et macroscopique  
 $\lambda$  : paramètre ajustable contrôlant la convergence d'une série  
F.D.O. : fonction de densité des orientations  
F.D.P. : figure de pôles  
D.L. : direction de laminage  
D.T. : direction transverse  
D.N. : direction normale au plan de la tôle  
F.H.S.G. : fonctions harmoniques sphériques généralisées  
 $f(g)$  : FDO  
 $C_l^{mn}$  : coefficient du développement en FHSg de la FDO  
 $T_l^{mn}$  : FHSg  
 $\tilde{f}(g)$  : partie paire de la FDO  
 $\tilde{\tilde{f}}(g)$  : partie impaire de la FDO  
 $\phi_1, \Phi, \phi_2$  : angles d'Euler  
 $a_{ij}$  : cosinus directeurs  
 $A_l^{mn}$  : coefficients du développement en série d'un produit de quatre cosinus directeurs sur les FHSg  
 $A_l^{mn*}$  : conjuguée des  $A_l^{mn}$

$C_{ij}$  : constantes élastiques à deux indices selon les notations de Voigt  
 $S_{ij}$  : compliances élastiques à deux indices selon les notations de Voigt  
 $\Phi, \alpha$  : déclinaison et azimut sur la FDP  
 $F_i, F_{ij}, F_{ij}$  : facteurs de Kearns appliqués à l'élasticité  
 $\beta$  : angle de désorientation d'une direction du plan de la tôle par rapport à D.L.  
 $V_{ijkl}(g)$  : produit des fonctions  $f(g)$  et  $s_{ijkl}(g)$   
 $L_{max}$  : rang du développement de la FDO en FHSG  
 $P_{00.2}(\Phi, \alpha)$  : Intensité en un point de la FDP (00.2)  
 $\delta$  : constante renseignant sur la convergence d'une série  
 $\rho$  : masse volumique  
 $m, L, l, e$  : masse, longueur, largeur et épaisseur d'une éprouvette  
 $y(x,t)$  : fonction de propagation d'une onde  
 $f_i$  : fréquence de résonance  
 $E$  : module de Young  
 $I$  : moment d'inertie  
 $G$  : module de cisaillement  
 $\nu$  : coefficient de Poisson

# I - ELASTICITE

La première propriété physique modélisée est l'élasticité. Cette modélisation doit fournir un tenseur élastique, décrivant fidèlement cette propriété pour le polycristal.

La valeur des écarts entre la propriété réelle (mesurée par le biais de modules de Young par exemple) et la propriété modélisée, conduit à juger de la validité des hypothèses utilisées dans la modélisation. Cette manière d'opérer fait ressortir les paramètres responsables de l'anisotropie des propriétés des alliages.

## I - 1 - INTRODUCTION

### I - 1 - 1 - Généralités

Le comportement des matériaux à symétrie cristalline hexagonale (Zinc, Zirconium, Titane) est généralement anisotrope en raison des propriétés intrinsèques du monocristal et de certains paramètres structuraux qui caractérisent l'état métallurgique du polycristal. Parmi ces paramètres, la texture cristallographique et la forme des grains semblent être deux facteurs prépondérants sur le comportement anisotrope macroscopique du matériau. Pour satisfaire à ces observations expérimentales, nous nous sommes orientés vers des modèles prenant en compte soit le premier de ces deux facteurs, soit les deux.

La prise en compte de la texture uniquement conduit au modèle le plus simple. Celui-ci, dans lequel on fait abstraction de l'interaction entre grains, consiste à effectuer une moyenne sur l'espace des orientations cristallographiques, pondérée par la fonction densité des orientations (F.D.O.), du tenseur des constantes élastiques [Voigt, 1887] ou des compliances élastiques [Reuss, 1929].

Pour tenir compte de l'interaction entre les grains, il est nécessaire de construire un modèle plus complet, où la forme des grains et la texture jouent un rôle essentiel. Le calcul des propriétés utilise un schéma auto-cohérent qui permet de résoudre le problème de l'inclusion ellipsoïdale à propriétés élastiques anisotropes baignée dans une matrice anisotrope.

Avant de présenter les principes et les principales hypothèses des différents modèles que nous avons utilisés, nous allons situer le problème d'un point de vue mécanique des milieux continus, en insistant sur le concept de constantes effectives du polycristal.

### I - 1 - 2 - Position du problème

Les modèles qui suivent expriment des relations entre l'état de contrainte local dans un milieu microhétérogène et l'état de contrainte du milieu macroscopique supposé homogène. Le problème physique qu'il s'agit de résoudre peut être formulé par la question suivante: soit un volume donné de matériau hétérogène (un polycristal par exemple), soumis à un état de contraintes macroscopiques appliquées  $\Sigma_{ij}$  (ce qui signifie que, si le matériau était homogène, l'état de contraintes en tout point serait effectivement  $\Sigma_{ij}$ ), quel est l'état de contraintes local  $\sigma_{ij}$  qui en résulte ?

Si cette question était résolue, il serait possible de prévoir le comportement du polycristal. En effet, l'état de contraintes étant déterminé dans chaque grain et le comportement du monocristal étant supposé connu, il serait possible d'en déduire la déformation de chaque grain et, par conséquent, celle de l'ensemble du polycristal.

Il est bien connu que le cadre général de la mécanique rationnelle classique impose des restrictions sur les propriétés du champ de contraintes puisqu'il faut que les équations d'équilibre soient vérifiées. Mais ce ne sont pas là les seules restrictions nécessaires à la résolution d'un problème de mécanique des milieux continus. Il faut également que le champ des déformations vérifie les conditions de compatibilité, c'est-à-dire que le champ des déformations dérive effectivement d'un champ de déplacement. Cette condition est nécessaire pour maintenir la continuité du milieu (ni trous, ni chevauchements de matière). Ainsi, si le champ des déformations n'est pas compatible, des efforts intérieurs apparaissent dans le solide pour conserver la continuité du milieu. Si ces efforts sont trop importants vis-à-vis des capacités du matériau, ils ne peuvent s'instaurer: une autre solution géométriquement compatible se met alors en place avec ruptures localisées dans le solide (phénomène observé pour des matériaux fragiles).

Formellement ces conditions se traduisent ainsi:

- équations d'équilibre

$$\text{équilibre des forces} \quad \sigma_{ij,j} + F_i = 0 \quad \{1-1\}$$

$$\text{équilibre des moments} \quad \sigma_{ij} = \sigma_{ji} \quad \{1-2\}$$

$$\text{équilibre en surface} \quad \sigma_{ij} n_j^S = T_i^S \quad \{1-3\}$$

- conditions de compatibilité

$$\varepsilon_{kk,ij} + \varepsilon_{ij,kk} = \varepsilon_{kj,ik} + \varepsilon_{ik,jk} \quad \{1-4\}$$

I - 1 - 3 - Définition des constantes effectives du polycristal

Avant de définir ces constantes, il est nécessaire d'adopter une loi de comportement pour le monocristal. Cette loi est bien entendu la loi de Hooke généralisée, supposée respectée en chaque point du polycristal.

$$\sigma_{ij}(r) = c_{ijkl}(r) \varepsilon_{kl}(r) \iff \sigma = C \varepsilon \quad \{1-5\}$$

On suppose, par analogie avec le monocristal, que le polycristal suit une loi du même type et que par conséquent, le tenseur des contraintes et des déformations "macroscopiques" sont reliés par le tenseur des constantes élastiques effectives du polycristal C:

$$\Sigma_{ij} = C_{ijkl} E_{kl} \iff \Sigma = C E \quad \{1-6\}$$

Deux hypothèses supplémentaires sont faites sur les tenseurs de déformations et de contraintes macroscopiques. En effet, on admet que la moyenne des contraintes (resp. déformations) locales représente l'état des contraintes (resp. déformations) macroscopiques.

$$\Sigma_{ij} = \langle \sigma_{ij}(r) \rangle \quad \{1-7\}$$

$$E_{ij} = \langle \varepsilon_{ij}(r) \rangle \quad \{1-8\}$$

On verra, que l'hypothèse {1-8} n'est plus valable dans le cas d'une déformation thermique.

On peut à présent écrire:

$$\Sigma_{ij} = \langle \sigma_{ij}(r) \rangle = \langle c_{ijkl}(r) \varepsilon_{kl}(r) \rangle = C_{ijkl} \langle \varepsilon_{kl}(r) \rangle = C_{ijkl} E_{kl} \quad \{1-9\}$$

On sera amené à supposer, pour l'ensemble des modèles présentés, que la déformation et la contrainte au sein d'un grain, ne sont fonction que de l'orientation cristallographique de ce dernier. Ceci se traduit dans l'équation {1-9} par:

$$\Sigma_{ij} = \langle \sigma_{ij}(g) \rangle = \langle c_{ijkl}(g) \varepsilon_{kl}(g) \rangle = C_{ijkl} \langle \varepsilon_{kl}(g) \rangle = C_{ijkl} E_{kl} \quad \{1-10\}$$

$$\langle \sigma_{ij}(r) \rangle = \frac{1}{V} \int_V \sigma_{ij}(r) dr = \frac{1}{V} \int_V \sigma_{ij}(g) dg \quad \{1-11\}$$

I - 2 - MODELISATIONS

Le problème que l'on traite peut s'énoncer ainsi: connaissant les constantes élastiques du monocristal pour les différentes orientations du grain, comment déterminer les constantes effectives du polycristal ?

I - 2 - 1 - Modèles dits "de la moyenne"

L'intérêt de ces modèles réside dans le fait qu'ils constituent des bornes inférieure et supérieure des constantes élastiques "théoriques" dans le cas d'un matériau isotrope [Hill, 1951]. Par "théoriques", on sous-entend l'adoption d'un certain nombre d'hypothèses: validité de la loi de Hooke, rôle négligeable des joints de grains et des défauts structuraux, absence de contraintes résiduelles...

Signalons, que dans la totalité des cas traités, la texture cristallographique n'est pas isotrope et que par conséquent, le théorème de Hill n'est pas valides.

### 1-2-1-1 - Voigt

On suppose dans ce modèle que la déformation de chacun des grains est égale à la déformation macroscopique. On en déduit donc la relation suivante:

$$\Sigma_{ij} = \langle \sigma_{ij}(g) \rangle = \langle c_{ijkl}(g) \varepsilon_{kl}(g) \rangle = \langle c_{ijkl}(g) E_{kl} \rangle = \langle c_{ijkl}(g) \rangle E_{kl} \quad \{I-12\}$$

$$\Rightarrow C^V = \langle c(g) \rangle \quad \{I-13\}$$

Les constantes élastiques de Voigt sont donc égales à la moyenne des constantes élastiques du monocristal pondérée par la F.D.O. Ces constantes élastiques constitueraient une borne supérieure pour une texture isotrope.

Le modèle de Voigt est très séduisant par sa simplicité. Mais s'il respecte les conditions de compatibilité sur les déformations, les équations d'équilibre sur les contraintes sont totalement négligées.

### 1-2-1-2 - Reuss

On suppose dans ce cas que la contrainte dans chacun des grains est égale à la contrainte macroscopique. On en déduit donc la relation:

$$E_{ij} = \langle \varepsilon_{ij}(g) \rangle = \langle s_{ijkl}(g) \sigma_{kl}(g) \rangle = \langle s_{ijkl}(g) \Sigma_{kl} \rangle = \langle s_{ijkl}(g) \rangle \Sigma_{kl} \quad \{I-14\}$$

$$\Rightarrow C^R = (S^R)^{-1} = (\langle s(g) \rangle)^{-1} \quad \{I-15\}$$

Les constantes élastiques de Reuss sont donc égales à l'inverse de la moyenne des compliances élastiques du monocristal pondérée par la F.D.O. Ces constantes élastiques constitueraient une borne inférieure pour une texture isotrope.

Mais, si le modèle de Reuss respecte les équations d'équilibre sur les contraintes, les conditions de compatibilité ne sont pas prises en compte.

Les différentes méthodes de calcul des constantes de Voigt et de Reuss seront exposées ultérieurement.

### 1-2-1-3 - Hill

Les constantes élastiques de Hill sont la moyenne arithmétique des constantes élastiques de Voigt et de Reuss:

$$C^H = 1/2 ( (S^R)^{-1} + C^V ) \quad \{I-16\}$$

Les constantes élastiques de Hill constituent, en général, une excellente approximation des constantes élastiques réelles. Cependant l'absence de base physique rend ce modèle peu séduisant pour l'esprit.

## 1-2-2 - Modèle Auto-cohérent

Il serait abusif de parler du modèle auto-cohérent dans le sens où ces modèles sont très nombreux, caractérisés par les hypothèses choisies. Le modèle que nous allons exposer a été largement décrit par Kröner [Kröner, 1971] et exploité par d'autres auteurs [Kneer, 1963], [Morris, 1971]. Ce modèle utilise les fonctions de Green que nous allons dans un premier temps décrire, avant de présenter les différentes étapes et hypothèses de la modélisation.

### 1-2-2-1 - Les fonctions de Green

Ces fonctions dépendent de deux points: le point d'observation M où l'on mesure un champ (électrique, gravitationnel ou de déplacement), repéré par  $r(x,y,z)$  et le point source M' repéré par  $r'(x',y',z')$ .

Les fonctions de Green permettent de calculer un champ en un point M lorsqu'une source est placée en M'. Ces fonctions sont symétriques ( $g(r,r')=g(r',r)$ ) et sont solutions de l'équation différentielle de Helmholtz.

Pour illustrer ces propos, prenons un exemple unidimensionnel tiré des lois de l'électrostatique. Soit une charge  $q$  placée en un point  $M'(x')$ , le champ électrique  $E$  en un point  $M(x)$  est donné par:

$$E(x) = q(x') / (4\pi \epsilon_0 R^2) \quad \{I-17\}$$

où  $R=x-x'$

$$\Leftrightarrow E(x) = g(x,x') q(x') \quad \{I-18\}$$

$g(x,x') = (4\pi \epsilon_0 R^2)^{-1}$  est une fonction de Green.

Pour décrire le champ de déplacement au cours d'une sollicitation élastique, on a également recours à des fonctions de Green. Ainsi dans ce cas, on peut écrire lorsqu'une force unitaire  $P$  est appliquée en un point  $M(r')$ :

$$u_i(r) = g_{ij}(r,r') P_j(r') \quad \{I-19\}$$

La force  $P$  étant unitaire,  $g_{ij}$  peut être interprétée comme la  $i$ ème composante du champ de déplacement en un point  $M(r)$  causé par une force unité appliquée en un point  $M(r')$  dans la direction  $j$ .

### I - 2 - 2 - 2 - Modélisation auto-cohérente

Le grand intérêt de ce type de modélisation réside dans le fait que l'on tient compte à la fois des équations d'équilibre des contraintes et des conditions de compatibilité sur les déformations. Ceci permet par conséquent, de prendre en considération les interactions entre grains au cours de la déformation à travers les "fonctions d'influence".

Pour ce faire, il s'agit de proposer une relation pertinente entre les grandeurs locales et macroscopiques. Plus précisément, il s'agit de relier les constantes du monocristal connues aux constantes effectives du matériau polycristallin. Les différentes étapes de la modélisation sont calquées sur l'approche auto-cohérente viscoplastique décrite par A. Molinari [Molinari et Al, 1987], que nous avons adaptée au problème élastique dans le cas des matériaux à symétrie hexagonale.

Le point de départ est l'équation d'équilibre en volume qui doit être respectée en tout point. On néglige toute force volumique  $F_i$ , et on peut alors écrire:

$$\sigma_{ij,j} = 0 \quad \{I-20\}$$

En insérant dans l'équation {I-20}, la loi de Hooke, supposée valable dans tout le matériau, on obtient:

$$(C_{ijkl} u_{k,l})_{,j} = 0 \quad \{I-21\}$$

Remarquons que la loi de Hooke est utilisée sous une forme hypothétique, où l'on suppose que la déformation dérive effectivement d'un champ de déplacement:

$$\epsilon_{ij} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \quad \{I-22\}$$

On décompose à présent les constantes élastiques et le gradient des déplacements locaux sous la forme:

$$C_{ijkl}(r) = C_{ijkl} + c'_{ijkl}(r) \quad \{I-23\}$$

$$u_{k,l}(r) = U_{k,l}(r) + u'_{k,l}(r) \quad \{I-24\}$$

$C$  (resp.  $U$ ) représente le tenseur des constantes effectives (resp. déplacement) du polycristal.

L'introduction de {I-23} dans {I-21} nous conduit aux équations différentielles suivantes:

$$C_{ijkl} (u_{k,l})_{,j} + (c'_{ijkl} u_{k,l})_{,j} = 0 \quad \{I-25\}$$

On se rend compte à travers cette dernière expression, que l'on peut se placer dans un Milieu Homogène Equivalent (M.H.E.) ayant pour constantes élastiques  $C_{ijkl}$  et dans lequel s'exercent des forces volumiques, dites fictives,  $f_i$ . Ce passage nous évite de calculer les fonctions de Green du milieu réel qui sont très délicates à calculer en raison de la variation des constantes élastiques au sein du matériau.

$$C_{ijkl} (u_{k,l})_j + f_i = 0 \quad \{I-26\}$$

$$\text{où } f_i = (c'_{ijkl} u_{k,l})_j$$

La solution de {I-26} peut s'exprimer à l'aide des fonctions de Green du M.H.E.:

$$u_i(r) = U_i(r) + \int_V g_{ij}(r,r') f_j(r') dr' \\ \Leftrightarrow u_i(r) = U_i(r) + g_{ij}(r,r') * f_j(r') \quad \{I-27\}$$

où \* désigne la convolution et  $V$  le volume considéré

Par dérivation, puis intégration par partie, on obtient:

$$u_{i,j} = U_{i,j}(r) + g_{ik,jl} * (c'_{klmn} u_{m,n}) \quad \{I-28\}$$

Enfin, on symétrise cette relation pour aboutir à:

$$\varepsilon_{ij} = E_{ij} + G_{ijkl} * (c'_{klmn} \varepsilon_{mn}) \quad \{I-29\}$$

$$\text{où } G_{ijkl} = 1/4 (g_{ik,jl} + g_{jk,il} + g_{il,jk} + g_{jl,ik}) \quad \{I-30\}$$

L'exploitation de l'équation {I-29} nécessite un certain nombre d'hypothèses supplémentaires, conduisant à une solution approchée du problème.

#### Hypothèse n° 1:

Les dimensions du milieu étudié sont infinies. Les fonctions de Green dépendent alors de  $r$  et  $r'$  par l'intermédiaire de la différence  $r-r'$ . Cette hypothèse facilite le calcul de ces fonctions mais elle engendre une erreur sur les résultats, évaluée à la racine carrée du rapport des dimensions du grain sur les dimensions réelles du milieu. Cette hypothèse est tout à fait acceptable lorsque les grains ont des dimensions très faibles par rapport aux dimensions de l'échantillon.

#### Hypothèse n° 2:

La déformation à l'intérieur d'un grain d'orientation  $g$  est uniforme:

$$\varepsilon(r) = \sum_g \varepsilon(g) H_g(r) \quad \{I-31\}$$

où  $H_g(r)$  est la fonction Heaviside définie par:

$$H_g(r) = 1 \text{ si } r \in V_g \text{ (volume du grain)} \\ H_g(r) = 0 \text{ si } r \notin V_g \quad \{I-32\}$$

Admettant, bien entendu, que les constantes élastiques dépendent également de l'orientation du grain:

$$c(r) = \sum_g c(g) H_g(r) \quad \{I-33\}$$

on peut réécrire l'équation {I-29} sous la forme:

$$\varepsilon_{ij}(r) = E_{ij} + \sum_g (c'_{klmn}(g) \varepsilon_{nm}(g)) \int_V G_{ijkl}(r-r') dr' \quad \{I-34\}$$

Il apparaît que la déformation n'est uniforme dans le grain que dans certaines conditions bien particulières. Ainsi, pour satisfaire à l'hypothèse 2, nous considérerons d'une part que la valeur moyenne de  $\varepsilon(r)$  au sein du grain est celle qui convient et d'autre part, que le grain a une forme ellipsoïdale conformément aux résultats d'Eshelby [Eshelby, 1957]. D'où:

$$\varepsilon_{ij}(g) = E_{ij} + \sum_{g'} \Gamma_{ijkl}^{gg'} (c'_{klmn}(g') \varepsilon_{nm}(g')) \quad \{I-35\}$$

$$\text{où } \Gamma_{ijkl}^{gg'} = \frac{1}{Vg} \int \int_{Vg'} (G_{ijkl}(r-r') dr') dr \quad \{I-36\}$$

Notons que nous attribuerons à chaque grain la même forme ellipsoïdale et que les axes de cet ellipsoïde seront confondus avec les axes macroscopiques.

### Hypothèse n° 3:

L'expression {I-35}, pour être utilisable, nécessite la connaissance non seulement de la fonction densité des orientations, mais aussi de la répartition "géographique" des différents grains (caractérisés par leur orientation) dans le polycristal. Si ces données étaient déterminées, on pourrait utiliser un modèle à n-sites, en considérant les premiers voisins de chaque grain. Deux démarches expérimentales permettent d'accéder à ces données:

- l'utilisation des techniques de microscopie électronique qui, par mesure d'orientations individuelles à partir des lignes de Kikuchi [Hjelen et Al., 1986], permet d'obtenir une "topographie" représentant l'orientation d'un nombre fini de grains voisins.

- l'emploi des fonctions de corrélation d'orientations [Adams, 1988]. La fonction de corrélation d'ordre 1 est la F.D.O., la fonction de corrélation d'ordre 2 indique la probabilité d'avoir un grain d'orientation  $g'$  distant de  $r$  d'un grain d'orientation  $g$ , la fonction de corrélation d'ordre 3 nous informe sur la probabilité d'avoir deux grains d'orientation  $g'$  et  $g''$  à des distances respectives de  $r'$  et  $r''$  d'un grain d'orientation  $g$ ... Le problème réside dans l'obtention de ces fonctions pour un ordre supérieur à 3. Ces mesures peuvent être effectuées, par exemple, à l'Institut de Recherches de la Sidérurgie Française de Saint-Germain (I.R.S.I.D.).

La lourdeur expérimentale et calculatoire engendrée par ces deux méthodes, nous a conduit à faire une hypothèse supplémentaire. On ne va prendre en compte que l'interaction entre le grain considéré et le Milieu Homogène Equivalent. Cette hypothèse se justifie d'une part par le fait que lorsque la distance  $(r-r')$  augmente, la fonction  $G$  tend vers zéro. D'autre part, on considère que l'effet moyen des grains voisins est négligeable. Ce dernier argument ne se justifie que quand le matériau possède des grains répartis aléatoirement.

Il est clair que cette dernière restriction est la plus gênante et peut être parfois totalement inadaptée. On citera l'exemple du calcul de contraintes, à partir de ce type de modélisation, dans les matériaux biphasés. En effet il est irréaliste de calculer les efforts dans un grain sans savoir s'il est entouré ou non et dans quelle proportion, d'une seconde phase. Signalons, que dans notre étude, les matériaux utilisés sont "fortement monophasés", mais il ne faut pas perdre de vue que la présence d'une seconde phase peut altérer les résultats prédictifs. Cette inadaptation de la modélisation sera d'autant plus grande que les propriétés élastiques de la seconde phase seront différentes de celle de la phase principale.

L'équation {I-35} prend la forme finale:

$$\begin{aligned} \varepsilon_{ij}(g) &= E_{ij} + \Gamma_{ijkl}^{gg'} (c'_{klmn}(g') \varepsilon_{nm}(g)) \\ \varepsilon(g) &= E + \Gamma^{gg} (c'(g) \varepsilon(g)) \end{aligned} \quad \{I-37\}$$

⟷

Cette relation va nous permettre d'accéder à la formule d'interaction liant les grandeurs macroscopiques et locales, cristallisant ainsi la démarche auto-cohérente.

$$\varepsilon(g) - E = \Gamma^{gg} (c(g) \varepsilon(g) - CE - C(\varepsilon(g) - E)) \quad \{I-38\}$$

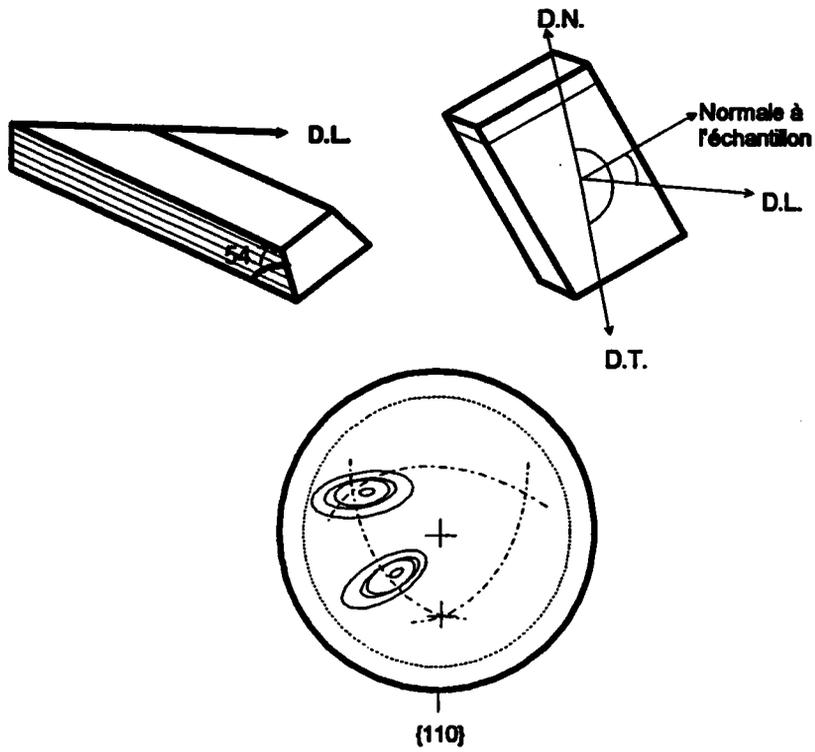
⟷

$$(\varepsilon(g) - E) + \Gamma^{gg} C(\varepsilon(g) - E) = \Gamma^{gg} (\sigma(g) - \Sigma) \quad \{I-39\}$$

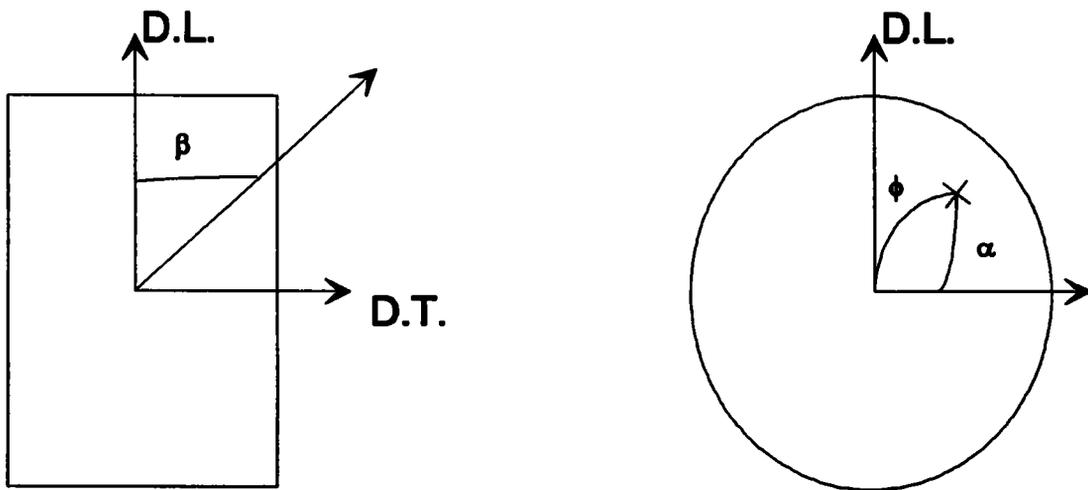
⟷

$$\sigma(g) - \Sigma = (\Gamma^{gg-1} + C) (\varepsilon(g) - E) \quad \{I-40\}$$

**Figure I-1: Echantillon composite**



**Figure I-2: Définition des angles utilisés**



A partir de la loi d'interaction {I-40}, nous allons utiliser la procédure décrite par P.R. Morris pour calculer les constantes effectives du polycristal. Un autre schéma consisterait en l'utilisation de la méthode de la "T-matrix" [Middya, 1985], [Zeller et Dederichs, 1973].

$$\begin{aligned} & \varepsilon(g) (\Gamma^{gg^{-1}} - C(g) + C) = \Gamma^{gg^{-1}} E & \{I-41\} \\ \Leftrightarrow & \varepsilon(g) = - (C(g) - C - \Gamma^{gg^{-1}})^{-1} \Gamma^{gg^{-1}} E & \{I-42\} \\ \Rightarrow & u(g) = (\varepsilon(g) - E) / E = - [ (C(g) - C - \Gamma^{gg^{-1}})^{-1} \Gamma^{gg^{-1}} + I ] & \{I-43\} \end{aligned}$$

I désigne le tenseur identité dont les composantes sont définies par  $I_{ijkl} = 1/2 (\delta_{ik}\delta_{jl} + \delta_{il}\delta_{jk})$ .

En considérant les "hypothèses de cohérence" {I-7}, {I-8} et en effectuant le moyennage, sur l'espace des orientations cristallographiques, de la relation {I-43}, on obtient:

$$\langle u(g) \rangle = 0 \quad \{I-44\}$$

La relation {I-44} permet par un processus itératif de déterminer les constantes effectives du polycristal C. Ce processus peut être formalisé de la manière suivante:

$$\begin{aligned} \langle u(g) \rangle^{(n+1)} &= - \langle [ (C(g) - C^{(n)} - \Gamma^{gg^{-1}(n)})^{-1} \Gamma^{gg^{-1}(n)} + I ] \rangle & \{I-45\} \\ C^{(n+1)} &= C^{(n)} - \lambda \langle u(g) \rangle^{(n+1)} & \{I-46\} \end{aligned}$$

Ces relations sont l'aboutissement de notre démarche car elles autorisent le calcul des constantes effectives du polycristal connaissant les constantes élastiques du monocristal. La solution initiale de cette série est en général la solution donnée par le modèle de Hill. La série est stoppée lorsque  $\langle u(g) \rangle$  est suffisamment faible. Nous reviendrons à ces notions dans les paragraphes suivants, car nous verrons que ce procédé itératif est très délicat à mettre en oeuvre.

### I - 3 - ASPECTS PRATIQUES DU CALCUL DES CONSTANTES EFFECTIVES DU POLYCRISTAL

Dans la partie suivante, nous exposons le mode de détermination des données cristallographiques nécessaires aux modélisations, en insistant sur les facilités offertes par une symétrie cristalline hexagonale. Nous évoquons ensuite, les méthodes de calcul des constantes effectives à partir des modèles "de la moyenne" et les problèmes liés à la numérisation des modèles auto-cohérents. Enfin, nous illustrons l'effet de la forme des grains sur le comportement élastique du polycristal.

#### I - 3 - 1 - Détermination des données cristallographiques

##### I - 3 - 1 - 1 - Calcul de texture

Pour le calcul de la Fonction Densité des Orientations (F.D.O.), nous avons utilisé la méthode des harmoniques sphériques généralisées décrite par H.J. Bunge. La F.D.O., désignée par  $f(g)$ , peut s'écrire sous la forme suivante:

$$f(g) = \sum_{l=0}^{L_{\max}} \sum_{m=-l}^{m=+l} \sum_{n=-l}^{n=+l} C_l^{mn} T_l^{mn}(g) = \tilde{f}(g) + \tilde{\tilde{f}}(g) \quad \{I-47\}$$

$\tilde{f}(g)$  (resp.  $\tilde{\tilde{f}}(g)$ ) désigne la partie paire (resp. impaire) de la F.D.O. et  $L_{\max}$  est le rang du développement. La partie paire est déterminable à partir de figures de pôles.

La détermination des coefficients  $C_l^{mn}$  se fait à partir de la mesure de figures de pôles complètes ou incomplètes. Pour obtenir les figures de pôles sur les tôles étudiées, trois techniques ont été utilisées:

- mesure de F.D.P. complètes aux neutrons, au laboratoire Léon Brillouin à Saclay.
  - mesure aux rayons X de figures de pôles "complétables", par la technique de l'échantillon composite [Welch, 1980], technique indiquée lorsque la symétrie d'échantillon est orthorhombique (tôles laminées). On obtient ainsi par symétrisation, des figures de pôles complètes (voir figure I-1).
  - mesure aux rayons X de figures de pôles incomplètes, sur un échantillon plan classique.
- Les mesures sont effectuées à mi-épaisseur de la tôle. Dans ce dernier cas de figure, l'analyse a un rôle double puisqu'elle permet non seulement de calculer la F.D.O., mais aussi de déterminer les figures complètes.

Rappelons que pour une meilleure analyse, deux étapes de positivité sont employées:

- La première a pour objet d'éliminer les valeurs négatives dans les figures pôles recalculées, valeurs négatives dues aux erreurs expérimentales lors de la mesure des figures de pôles.
- La seconde étape est rendue nécessaire en raison de la diffraction qui s'effectue avec le même facteur de structure sur les plans (hkl) et ( $\bar{h}\bar{k}\bar{l}$ ). C'est la raison pour laquelle les figures de pôles (F.D.P.) ne rendent compte que d'une partie de la F.D.O.: la partie paire.

Dans notre étude, les tôles ont une symétrie d'échantillon orthorhombique et une symétrie cristalline hexagonale, ce qui implique pour les coefficients  $C_l^{mn}$ :

- $l=0,2,4,6,7,8,9,10,11,12,13...$
- seuls les rangs m multiples de six sont non nuls
- seuls les rangs n pairs sont non nuls
- les  $C_l^{mn}$  sont réels

En ce qui concerne le domaine angulaire, défini par les angles d'Euler, on se limite, dans le cas de symétries précitées à:

- $0 \leq \phi_1 \leq \pi/2$
- $0 \leq \Phi \leq \pi/2$
- $0 \leq \phi_2 \leq \pi/3$

### 1-3-1-2 - Facilités offertes par la symétrie cristalline hexagonale

Les propriétés physiques telles que l'élasticité ou la dilatation thermique, sont isotropes dans le plan de base de la maille hexagonale. Ceci entraîne que la connaissance de la figure de pôles (00.2) suffit pour caractériser complètement les propriétés élastiques ou thermiques du polycristal [Nakatsuka, 1980], [Humbert, 1990]. Ceci se traduit donc, au niveau des angles d'Euler, par le fait que la connaissance de l'angle  $\phi_2$  est superflu.

### 1-3-2 - Calcul des constantes de Voigt et Reuss

Trois méthodes de calcul, donnant des résultats numériques comparables, sont présentées. Le calcul des constantes de Voigt et de Reuss étant tout à fait similaire, nous ne développerons les calculs que pour l'un des deux modèles, en l'occurrence celui de Reuss.

**NB:** Les angles utilisés sont définis sur la figure 1-2

### 1-3-2-1 - Calcul analytique [M.Humbert et J.Diz, 1990]

L'intérêt de ce calcul réside dans une utilisation optimale des propriétés des fonctions harmoniques sphériques généralisées (F.H.S.G.).

Les composantes d'un tenseur de rang 4 dans un repère défini par sa rotation g autour des axes de référence du monocristal, sont données, conformément aux règles de transformation tensorielle, par la relation:

$$s_{ijkl}(g) = a_{im}(g) a_{jn}(g) a_{ko}(g) a_{lp}(g) s_{mnop} \quad \{1-48\}$$

Les  $a_{ij}(g)$  sont les coefficients directeurs permettant de définir les axes du cristal par rapport à des axes de référence (les axes macroscopiques par exemple). Les  $s_{ijkl}$  désignent les compliances élastiques du monocristal, qui présentent les symétries suivantes:

$$s_{ijkl} = s_{ijlk} = s_{jilk} = s_{klij} \quad \{1-49\}$$

La valeur moyenne des composantes peut alors s'écrire:

$$s_{ijkl}^R = \langle s_{ijkl} \rangle = \int_g a_{io}(g) a_{jp}(g) a_{kq}(g) a_{lr}(g) s_{opqr} f(g) dg \quad \{1-50\}$$

Le produit de quatre cosinus directeurs peut se développer en une série de FHSG limitée au rang 4 et ne nécessitant que les rangs l pairs [M.Humbert et al., 1990]:

$$a_{10}(g) a_{jp}(g) a_{kq}(g) a_{lr}(g) = \sum_{l=0,2,4}^4 \sum_{m=-l}^{m=+l} \sum_{n=-l}^{n=+l} A_l^{mn}(i,j,k,l,o,p,q,r) T_l^{mn}(g) \quad \{I-51\}$$

où les  $A_l^{mn}$  sont les coefficients du développement.

En remplaçant, dans l'équation {I-50},  $f(g)$  et le produit des quatre cosinus directeurs par leur développement en série de FHSG et en tenant compte des propriétés d'orthogonalité de ces dernières, on obtient:

$$S^R_{ijkl} = \left[ \sum_{l=0,2,4}^4 \sum_{m=-l}^{m=+l} \sum_{n=-l}^{n=+l} A_l^{mn*}(i,j,k,l,o,p,q,r) \frac{C_l^{mn}}{2^{l+1}} \right] s_{opqr} \quad \{I-52\}$$

Cette dernière expression montre que seuls les coefficients pairs inférieurs ou égaux au rang 4 de la F.D.O. sont utiles aux calculs de la valeur moyenne. Les coefficients  $A_l^{mn}$  (valeur complexe dont le conjugué est désigné par  $A_l^{mn*}$ ), peuvent être calculés à l'aide des coefficients de Clebsch-Gordan [Bunge,1982].

### I - 3 - 2 - 2 - Calcul à partir des facteurs de Keams

Le point de départ est toujours le même, à savoir la loi de transformation tensorielle {I-48}. Nous avons développé cette expression en tenant compte des faits suivants:

a - La connaissance de l'angle  $\phi_2$  n'est pas nécessaire pour la détermination des propriétés élastiques du polycristal. Par conséquent, la matrice de rotation peut se mettre sous la forme:

$$\begin{array}{ccc} \cos\phi_1 & -\sin\phi_1 \cos\Phi & \sin\phi_1 \sin\Phi \\ \sin\phi_1 & \cos\phi_1 \cos\Phi & -\cos\phi_1 \sin\Phi \\ 0 & \sin\Phi & \cos\Phi \end{array}$$

b - les constantes élastiques indépendantes pour un cristal hexagonal sont au nombre de cinq  $s_{11}$ ,  $s_{33}$ ,  $s_{12}$ ,  $s_{13}$  et  $s_{44}$ . La notation matricielle permet de retranscrire le tenseur représentatif de la propriété sous la forme:

$$\begin{array}{cccccc} s_{11} & s_{12} & s_{13} & 0 & 0 & 0 \\ & s_{22} & s_{13} & 0 & 0 & 0 \\ & & s_{33} & 0 & 0 & 0 \\ & & & s_{44} & 0 & 0 \\ & & & & s_{44} & 0 \\ & & & & & 2(s_{11}-s_{12}) \end{array}$$

Tenant compte de ces deux remarques dans la relation {I-48}, et en intégrant sur la figure de pôle (00.2), on obtient, dans le cas d'une symétrie d'échantillon orthorhombique ayant neuf constantes indépendantes, les relations {I-53}. Remarquons que sur cette figure de pôles, il y a une relation directe entre l'angle d'azimut  $\alpha$  et de déclinaison  $\Phi$  et les angles d'Euler  $\phi_1$  et  $\Phi$ :  $\Phi = \Phi$  et  $\alpha = \pi/2 - \phi_1$ .

$$\begin{array}{l} S_{11}^R = s_{11} + F_1 A + F_{11} B \\ S_{ij}^R = s_{13} + F_{ij} B - 1/2 F_k (A+C) \quad i \neq j, i \neq k, k \neq j \\ S_{44}^R = s_{44} + 4 F_{23} B + F_1 C \\ S_{55}^R = s_{44} + 4 F_{13} B + F_2 C \\ S_{66}^R = s_{44} + 4 F_{12} B + F_3 C \end{array} \quad \{I-53\}$$

Avec:

$$\begin{array}{l} A = -2s_{11} + 2s_{13} + s_{44} \\ B = s_{11} - 2s_{13} - s_{44} + s_{33} \\ C = 2s_{11} - 2s_{12} - s_{44} \end{array}$$

$F_1$ ,  $F_2$  et  $F_3$  sont les facteurs de Kearns dans les directions longue, travers et normale

$$F_i = \frac{1}{2\pi} \int_{\phi_1=0}^{2\pi} \int_{\Phi=0}^{\pi/2} P_{00.2}(\Phi, \pi/2 - \phi_1) a_{i3}^2(\Phi, \phi_1) \sin\Phi \, d\phi_1 \, d\Phi$$

$$F_{ii} = \frac{1}{2\pi} \int_{\phi_1=0}^{2\pi} \int_{\Phi=0}^{\pi/2} P_{00.2}(\Phi, \pi/2 - \phi_1) a_{i3}^4(\Phi, \phi_1) \sin\Phi \, d\phi_1 \, d\Phi \quad \{I-54\}$$

$$F_{ij} = \frac{1}{2\pi} \int_{\phi_1=0}^{2\pi} \int_{\Phi=0}^{\pi/2} P_{00.2}(\Phi, \pi/2 - \phi_1) a_{i3}^2(\Phi, \phi_1) a_{j3}^2(\Phi, \phi_1) \sin\Phi \, d\phi_1 \, d\Phi$$

$P_{00.2}$  désigne dans ces relations, l'intensité de la F.D.P. (00.2) en un point correspondant aux angles  $\Phi, \alpha$ .

Ces relations peuvent être utilisées pour déterminer les constantes élastiques du polycristal à partir de celles du monocristal. L'intérêt de cette démarche est bien entendu de pouvoir prédire le comportement élastique du polycristal. Ces équations permettent également de déterminer les constantes monocristallines une fois connu le comportement du polycristal.

Ainsi, il nous a paru intéressant d'évaluer certaines constantes monocristallines à partir du module d'Young  $E(\beta)$  mesuré dans un certain nombre de directions du plan de la tôle. Cette grandeur, à laquelle on accède facilement expérimentalement, est modélisée dans les hypothèses de Reuss par la relation suivante:

$$E^{-1}(\beta) = S_{11}^R \cos^4\beta + \cos^2\beta \sin^2\beta (S_{66}^R + 2 S_{12}^R) + S_{22}^R \sin^4\beta \quad \{I-55\}$$

$$\Rightarrow E^{-1}(\beta) = s_{11} + K_1 (-s_{11} + s_{13} + s_{44}/2) + K_2 (-s_{11} + s_{33}) \quad \{I-56\}$$

$$\text{avec } K_1 = 2[(F_1 + F_{11})\cos^4\beta + (1 - 2F_{12} - 4F_{23} - F_3)\sin^2\beta\cos^2\beta + (F_2 - F_{22})\sin^4\beta]$$

$$K_2 = F_{11}\cos^4\beta + 2(2F_{23} + F_{12})\sin^2\beta\cos^2\beta + F_{22}\sin^4\beta$$

La connaissance de trois modules de Young dans trois directions distinctes du plan de la tôle permet, après inversion du système, de connaître les constantes  $s_{11}$ ,  $s_{33}$  du monocristal, ainsi que la somme  $(s_{13} + s_{44}/2)$ . Ceci est vrai excepté pour certains cas particuliers et notamment lorsqu'un des coefficients  $K$  est nul.

Cette méthode de détermination est illustrée pour une tôle de Zinc et une tôle de Zircaloy-4. On a mesuré le module de Young dans la direction longue, à  $45^\circ$  et dans la direction travers. On obtient les résultats suivants ( $s \times 10^{11} \text{ Pa}^{-1}$ ):

Zinc:  $F_1 = 0,515$   $F_2 = 0,166$   $F_3 = 0,319$

calculé: mesuré sur monocristal [Simmons et Wang, 1971]:

$$\begin{array}{ll} s_{11} = 0,790 & s_{11} = 0,839 \\ s_{33} = 1,83 & s_{33} = 2,64 \\ (s_{13} + s_{44}/2) = 0,68 & (s_{13} + s_{44}/2) = 0,59 \end{array}$$

Zircaloy:  $F_1 = 0,073$   $F_2 = 0,176$   $F_3 = 0,750$

calculé: mesuré sur monocristal [Simmons et Wang, 1971]:

$$\begin{array}{ll} s_{11} = 0,990 & s_{11} = 1,012 \\ s_{33} = 0,744 & s_{33} = 0,798 \\ (s_{13} + s_{44}/2) = 1,404 & (s_{13} + s_{44}/2) = 1,320 \end{array}$$

On constate que les valeurs calculées constituent une première approximation satisfaisante pour la détermination des constantes du monocristal. D'autres mesures expérimentales (modules de

Young dans un plan différent, modules de cisaillement ou coefficients de Poisson) pourraient nous permettre d'accéder à d'autres constantes du monocristal.

### I - 3 - 2 - 3 - Approche numérique [Diz et Humbert, 1991]

C'est la technique la plus directe, qui consiste à faire une intégration numérique de l'équation {I-50}:

$$\{I-50\} \iff S^R_{ijkl} = \langle s_{ijkl}(g) \rangle = \int_g s_{ijkl}(g) f(g) dg$$

On peut montrer que le produit de deux fonctions s'écrivant sous forme d'une série de FHSG développée respectivement jusqu'au rang L et L', se développe en une série de FHSG jusqu'au rang L+L'. Dans la relation {I-50}, on peut poser  $v_{ijkl}(g) = f(g) s_{ijkl}(g)$ , fonction qui se développe donc en série de FHSG jusqu'au rang  $L_{max}+4$ ,  $L_{max}$  désignant le rang de développement de la F.D.O.

$$V_{ijkl}(g) = \sum_{l=0}^{L_{max}+4} \sum_{m=-l}^{m=l} \sum_{n=-l}^{n=l} V_l^{mn}(i,j,k,l) T_l^{mn}(g) \quad \{I-57\}$$

Et on peut écrire:

$$S^R_{ijkl} = \int_g V_{ijkl}(g) dg = V_0^{00}(i,j,k,l) \quad \{I-58\}$$

$V_0^{00}(i,j,k,l)$ , terme désignant la valeur moyenne de  $V_{ijkl}(g)$  sur l'espace des orientations cristallographiques, peut être calculé numériquement. Il est par conséquent nécessaire de discrétiser cet espace sur les trois angles d'Euler:

$$\implies S^R_{ijkl} = \frac{1}{8\pi^2} \sum_{i_1=0}^{n_1} \sum_{i=0}^n \sum_{i_2=0}^{n_2} s_{ijkl}(\phi_1^{i_1}, \phi_2^{i_2}) f(\phi_1^{i_1}, \phi_2^{i_2}) [\cos(\phi_1^{i_1} - \Delta\phi/2) - \cos(\phi_1^{i_1} + \Delta\phi/2)] \Delta\phi_1 \Delta\phi_2 \quad \{I-59\}$$

$$\iff S^R_{ijkl} = \frac{1}{8\pi^2} \sum_{i_1=0}^{n_1} \sum_{i=0}^n \sum_{i_2=0}^{n_2} V_{ijkl}(\phi_1^{i_1}, \phi_2^{i_2}) [\cos(\phi_1^{i_1} - \Delta\phi/2) - \cos(\phi_1^{i_1} + \Delta\phi/2)] \Delta\phi_1 \Delta\phi_2 \quad \{I-60\}$$

Ces expressions permettent de calculer les constantes de Reuss (ou de Voigt). Cependant pour que ce calcul soit satisfaisant, il faut que le théorème d'échantillonnage de Shannon soit respecté. Ceci impose les conditions suivantes:

$$\begin{aligned} \Delta\phi_1 \\ \Delta\phi \leq \pi / (L_{max}+4) \\ \Delta\phi_2 \end{aligned} \quad \{I-61\}$$

De plus, sachant qu'un développement au rang 4 du développement en série de la FDO suffit pour calculer l'intégral {I-58}, on pourrait se contenter d'un écart angulaire de  $\pi/8$ .

Ces considérations sont illustrées dans le tableau I-1, où l'on a reporté les valeurs du module de Young calculées d'après Hill, dans deux directions, pour différents échantillonnages et rang de développement. La F.D.O. utilisée correspond à une orientation idéale définie par les angles d'Euler (40,80,20) avec une dispersion gaussienne de 6 degrés. Ces valeurs, déterminées à partir des constantes élastiques du Zinc, sont à comparer avec les valeurs calculées par la méthode analytique  $1.04 \times 10^{11}$  Pa dans la direction 1 et  $0.85 \times 10^{11}$  Pa dans la direction 2. Notons que la différence obtenue pour la direction 1 entre les deux méthodes, est imputable aux erreurs de calculs numériques de la F.D.O. et du module de Young.

D'autre part le calcul précédent ne dépendant pas de la valeur de l'angle  $\phi_2$ , on peut écrire la relation {I-59} sous la forme:

$$S^R_{ijkl} = \frac{1}{4\pi} \sum_{i_1=0}^{n_1} \sum_{i=0}^n s_{ijkl}(\phi_1^{i_1}) P_{00.2}(\phi_1^{i_1}, \pi/2 - \phi_1^{i_1}) [\cos(\phi_1^{i_1} - \Delta\phi/2) - \cos(\phi_1^{i_1} + \Delta\phi/2)] \Delta\phi_1 \quad \{I-62\}$$

**Tableau I-1: Influence de  $L_{max}$  et de l'échantillonnage sur les calculs de Module de Young**

$L_{max}$	$\Delta\phi$	$(L_{max}+4) \times \Delta\phi$	Module de Young $\times 10E11$ Pa (dir.1)	Module de Young $\times 10E11$ Pa (dir.2)
4	5	40	1,04	0,861
10	5	70	1,04	0,861
4	18	144	1,04	0,86
6	15	150	1,04	0,861
12	10	160	1,04	0,86
24	6	168	1,04	0,861
30	5	170	1,04	0,861
14	10	180	1,04	0,861
4	22,5	180	1,04	0,862
10	22,5	270	1,34	0,801
4	45	360	1,151	0,91
8	30	360	0,963	0,803
10	30	420	1,222	0,648

**Tableau I-2: Influence de la solution initiale**

	Solution de Reuss		Solution de Volgt		Solution de Hill		Solution Particulière	
	initiale	finale	initiale	finale	initiale	finale	initiale	finale
C11	1,165	1,286	1,356	1,287	1,261	1,288	1	1,287
C22	1,39	1,459	1,493	1,459	1,441	1,458	1	1,459
C33	0,81	0,962	1,071	0,96	0,944	0,963	1	0,964
C12	0,366	0,375	0,369	0,373	0,36	0,374	0,5	0,373
C13	0,311	0,374	0,411	0,374	0,361	0,373	0,5	0,374
C23	0,409	0,419	0,414	0,416	0,411	0,417	0,5	0,418
C44	0,386	0,426	0,455	0,427	0,421	0,427	0,5	0,428
C55	0,282	0,339	0,383	0,339	0,333	0,339	0,5	0,339
C66	0,444	0,496	0,526	0,497	0,485	0,495	0,5	0,496

### I - 3 - 3 - Problèmes liés à la modélisation auto-cohérente [Diz et Humbert, 1991]

Ces paragraphes décrivent les problèmes rencontrés lors de la mise en oeuvre du calcul auto-cohérent décrit précédemment. Les problèmes répertoriés sont au nombre de trois et concernent le choix d'une solution initiale de la procédure qui conduit finalement aux constantes effectives, la convergence de cette série et la nature mathématique de l'entité  $u_{ijkl}$  définie par l'équation {I-43}.

#### I - 3 - 3 - 1 - Choix de la solution initiale

Ce choix est très important car il conditionne la convergence de la série. En général, on opte pour la solution de Hill. Il est essentiel de vérifier que la solution finale est indépendante des données de départ. C'est pourquoi, nous avons testé la convergence de la série en utilisant comme solution initiale les approximations de Reuss, Voigt, Hill, une solution particulière et une solution aléatoire. Les résultats, reportés dans le tableau I-2, montrent que pour une même précision demandée  $\delta$  (scalaire proportionnel à la précision atteinte), 11 itérations sont nécessaires lorsqu'on débute avec la solution de Reuss, 9 avec Voigt, 6 pour Hill et 19 pour la solution particulière. Notons qu'en ce qui concerne la solution générée aléatoirement, la série diverge. Il apparaît clairement que la série converge identiquement dans les quatre premiers cas, mais qu'il est indispensable de choisir une solution initiale qui ne soit pas fantaisiste.

$$C^{(n+1)} - C^{(n)} < \delta \quad \text{\{I-63\}}$$

#### I - 3 - 3 - 2 - Convergence de la série

La convergence de la série est contrôlée par le paramètre  $\lambda$  dans la relation {I-46}, qui peut être soit fixé au départ du processus itératif, soit ajusté au fur et à mesure du calcul. La figure I-3 représente la convergence de la constante  $C_{11}$ , pour une tôle de Zinc, lorsque  $\lambda$  est constant et lorsqu'il évolue au cours des itérations. Il apparaît très nettement que la convergence est améliorée dans le second cas, sans que la précision des résultats soit altérée. Nous adopterons donc par la suite un processus permettant d'optimiser le choix de  $\lambda$  au cours des calculs.

De plus, il est clair que l'on ne peut assurer la convergence de la série en se contentant de vérifier que l'écart entre deux valeurs consécutives de  $C^{(n)}$  est faible. Il faut également contrôler la vitesse de convergence de la série. Ceci est illustré sur la figure I-4, où l'on a représenté l'évolution des  $C_{11}$ ,  $C_{12}$ ,  $C_{55}$  au cours des itérations.

Dans le cas (A), la convergence lente illustre parfaitement le fait qu'il est nécessaire de contrôler la vitesse de convergence de la série, car la constante  $C_{11}$ , dans l'exemple considéré, évoluant très peu, il serait abusif de considérer que la précision est atteinte lorsque la différence entre deux valeurs consécutives est négligeable. Par ailleurs, ces considérations montrent que le facteur  $\delta$  ne peut en aucun cas être vu comme étant directement fonction de la précision des calculs. En d'autres termes un facteur de 0,01 ne correspond pas à une précision de 1%.

Les cas (B) et (C) illustrent deux autres types de convergence. Dans le premier de ces deux cas, la convergence est rapide et uniforme alors que dans le second on constate une oscillation autour de la solution finale.

Le processus de contrôle de la vitesse peut se résumer de la manière suivante:

- On fixe un facteur  $\lambda$  au début des itérations.
- Si la série ne diverge pas, on accélère la vitesse de convergence des constantes en augmentant le facteur  $\lambda$  au cours des itérations. Dès lors, trois situations sont à considérer:

- \* Si ce changement entraîne la divergence de la série, on revient à l'étape précédente.
- \* Si une des constantes oscille autour d'une valeur, on réduit le facteur précité.
- \* Si la série évolue dans le même sens, on augmente à nouveau le facteur précité.

- Le critère d'arrêt des itérations est double:

- \* La relation {I-63}
- \* La vitesse de convergence de la constante évoluant le plus lentement (prise comme référence), doit être telle que l'augmentation du facteur  $\lambda$  n'altère plus le critère {I-63}.

Figure I-3 : Vitesse de convergence de la série

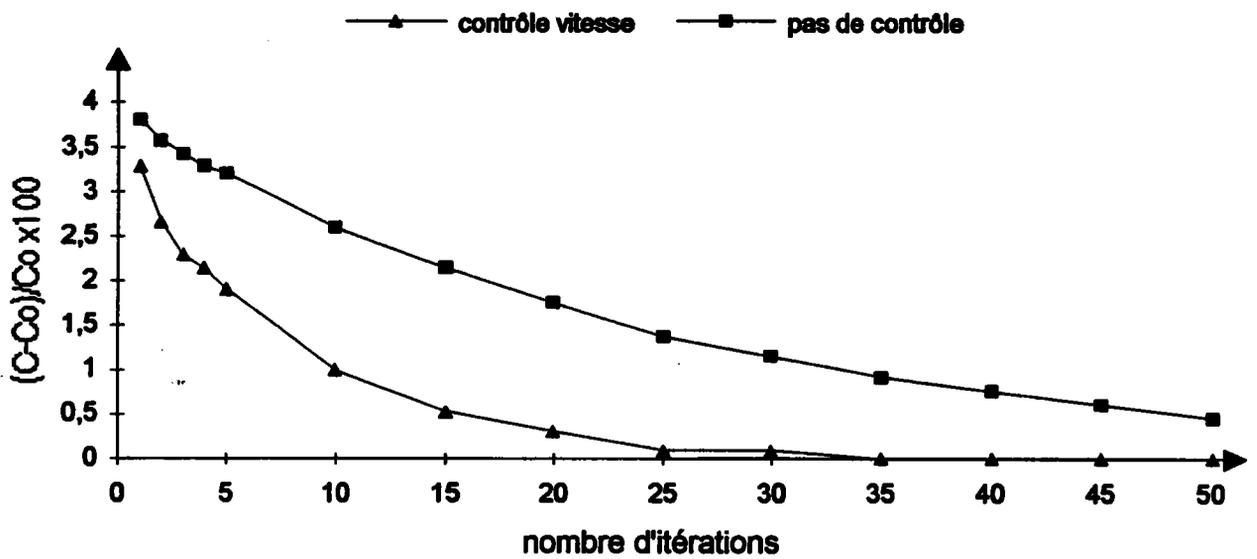
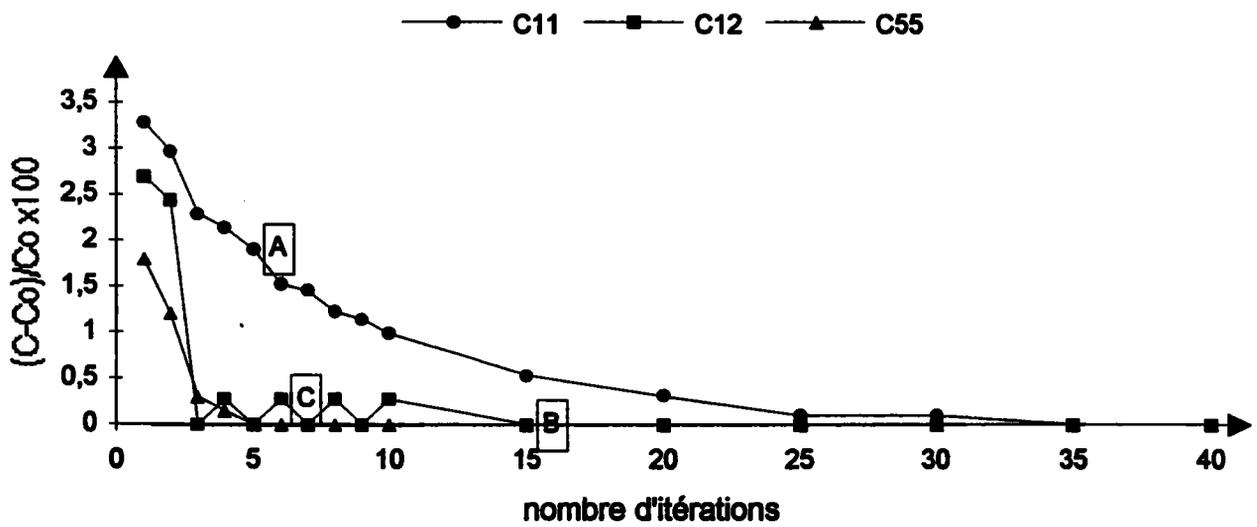


Figure I-4 : différents cas de convergence avec contrôle de la vitesse



### 1 - 3 - 3 - 3 - Nature mathématique et propriétés de l'entité $u_{ijkl}(\varrho)$

Afin de calculer la moyenne  $\langle u_{ijkl}(\varrho) \rangle$ , il est nécessaire d'avoir des renseignements supplémentaires à propos de cette fonction. On peut ainsi montrer que la fonction  $u_{ijkl}(\varrho)$  n'obéit pas aux lois de transformation tensorielle:

$$u_{ijkl}(\varrho'_{op}) \neq a_{io}(\varrho) a_{jp}(\varrho) a_{kq}(\varrho) a_{lr}(\varrho) u_{opqr}(\varrho) \quad \{1-64\}$$

Cependant, le calcul de cette fonction en série de FHSG montre que seuls les rangs pairs sont non nuls et que les rangs supérieurs à 4 peuvent être négligés sans porter préjudice à la précision des calculs. Notons qu'une démonstration rigoureuse serait la bienvenue pour asseoir ces résultats valables dans le cadre de notre étude.

Ces observations assurent la validité de la relation suivante:

$$\langle u_{ijkl}(\varrho) \rangle = \int_g u_{ijkl}(\varrho) f_4(\varrho) d\varrho \quad \{1-65\}$$

De plus la valeur de  $u_{ijkl}(\varrho)$  ne dépendant pas de l'angle d'Euler  $\phi_2$ , on peut écrire:

$$\langle u_{ijkl}(\phi_1, \Phi) \rangle = \frac{1}{4\pi} \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi/2} u_{ijkl}(\Phi, \phi_1) P_{00,2}(\Phi, \pi/2 - \phi_1) \sin\Phi d\Phi d\phi_1 \quad \{1-66\}$$

Ces constatations ont pour intérêt de réduire considérablement les temps de calcul, dans le cas d'une symétrie cristalline hexagonale.

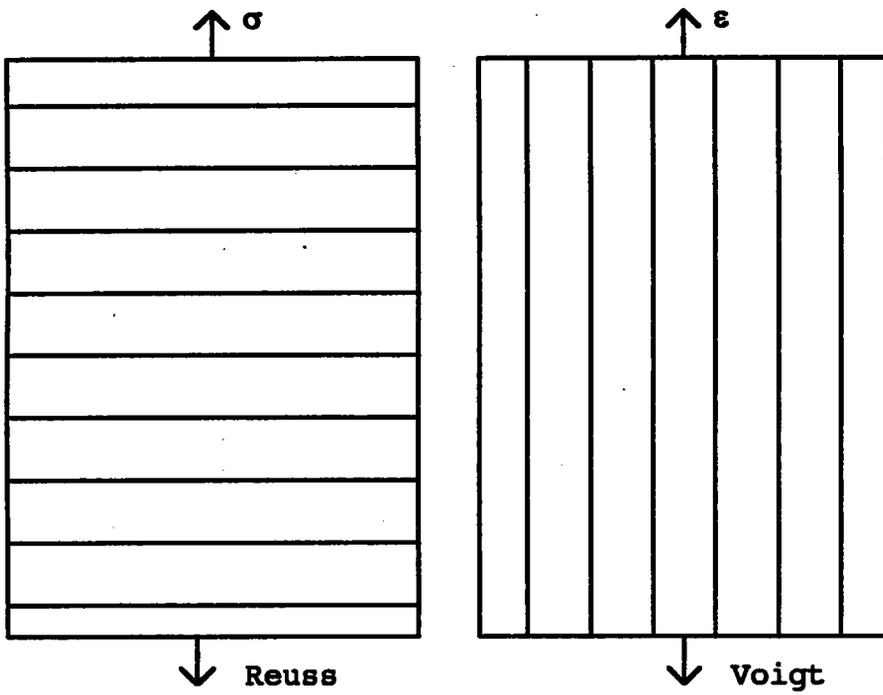
### 1 - 3 - 4 - Illustration de l'effet de la forme des grains

On peut donner une image simple, décrivant le domaine de validité des modèles de Voigt et Reuss. Si le tenseur des contraintes se résume à une traction uniaxiale et, si les joints de grain sont parallèles à la direction de traction, alors la déformation dans chaque grain, selon cette même direction, est égale à la déformation macroscopique. D'autre part, si les joints sont perpendiculaires à la direction de traction, c'est la contrainte selon la direction de sollicitation, qui est égale dans tous les grains et égale à la contrainte macroscopique (figure 1-5).

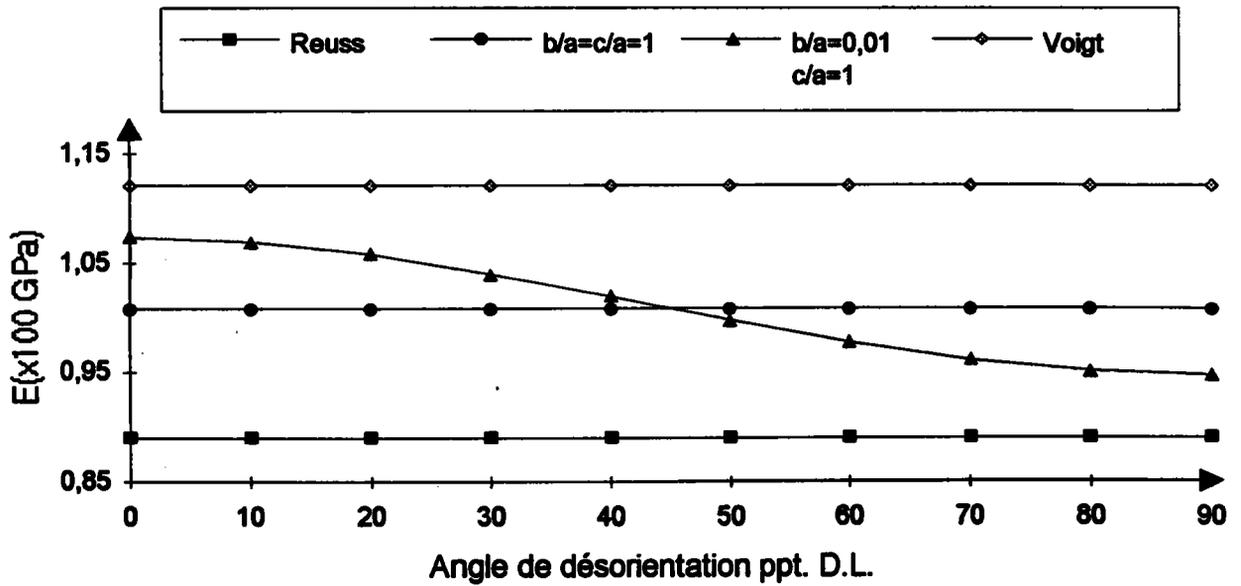
Cependant, notons les limitations de cette image puisque si la direction de traction est tournée de  $90^\circ$  par rapport à sa direction initiale, on passe progressivement de la situation décrite dans par le modèle de Voigt à celle présentée par Reuss et vice-versa.

Afin d'illustrer ces considérations, nous avons traité un exemple théorique à l'aide des différents modèles. On affecte au "matériau", ayant une texture isotrope, des grains très allongés dans la direction de laminage. Se référant aux résultats donnés par le calcul auto-cohérent, la figure 1-6 montre que le module de Young, selon la direction de laminage, est proche de celui prédit par Voigt et que, dans la direction travers il est voisin de celui donné par le modèle de Reuss. On peut également se rendre compte grâce à cet exemple que, malgré une texture isotrope, le "matériau" présente une anisotropie élastique due à une forme de grain non équiaxiale.

**Figure I-5: Illustration des modèles de Voigt et de Reuss**



**Figure I-6 : Effet de la forme des grains**



## I-4 - RESULTATS

**NB:** Pour une meilleure lisibilité du texte, les tableaux et les figures concernant cette partie, sont reportés en fin de chapitre. Les caractéristiques métallurgiques et chimiques des alliages de zirconium sont reportées en annexe II.

Comme nous l'avons signalé précédemment, la grandeur que nous allons étudier est le module de Young. Nous avons utilisé une méthode dynamique pour la détermination expérimentale de ce module. Notre principal objectif étant la caractérisation de l'anisotropie élastique des alliages de zirconium, nous avons systématiquement effectué une série de mesures dans le plan de la tôle à température ambiante. A partir des modèles développés, nous avons essayé de cerner les paramètres essentiels pour une bonne caractérisation de la différence de comportement élastique des alliages de zirconium.

Nous avons également testé un autre matériau à symétrie cristalline hexagonale: le Zinc. Ce dernier ayant des propriétés élastiques fortement anisotropes, il nous a servi de référence tout au long de notre étude.

Enfin, signalons que nous avons utilisé comme constantes élastiques monocristallines, celles du zinc et du zirconium, ne disposant pas de données concernant les alliages étudiés.

### I-4-1 - Technique expérimentale

#### I-4-1-1 - Principe

Un générateur de signaux sinusoïdaux à fréquence variable alimente un accéléromètre, faisant ainsi vibrer l'éprouvette. Un capteur piézoélectrique recueille le signal de sortie et le transmet à un analyseur de spectre après amplification. L'analyseur nous renseigne alors sur l'amplitude du signal de sortie. La fréquence de résonance correspond à la réponse la plus intense. Afin d'établir une relation entre le module de Young et les fréquences de résonance, on va assimiler l'éprouvette à une poutre aux extrémités libres, dans laquelle se déplacent, étant donné le mode de sollicitation, des ondes transversales [Timoshenko, 1928].

L'équation de propagation d'une onde transversale {I-67} est établie pour un milieu homogène, ayant évidemment, une infinité de degrés de liberté et par conséquent, une infinité de fréquences de résonance caractérisées par leur ordre.

$$\frac{\partial^2 y}{\partial t^2} + \alpha^2 \frac{\partial^4 y}{\partial x^4} = 0 \quad \text{\{I-67\}}$$

où  $\alpha^2 = EI/\rho b e$

E: Module d'Young du milieu (Pa)  
 ρ: masse volumique de l'éprouvette (kg/m<sup>3</sup>)  
 b: largeur de l'éprouvette (m)  
 e: épaisseur de l'éprouvette (m)  
 I: moment d'inertie (m<sup>4</sup>)

La solution générale de l'équation {I-67} est de la forme:

$$\begin{aligned} y(x,t) &= (A \cos pt + B \sin pt)(C_1 \cos kx + C_2 \sin kx + C_3 \cosh kx + C_4 \sinh kx) & \text{\{I-68\}} \\ \Leftrightarrow y(x,t) &= T(t) X(x) & \text{\{I-69\}} \end{aligned}$$

p: fréquences angulaires propres de la poutre  
 $k^2 = p/\alpha$   
 C<sub>1</sub>, C<sub>2</sub>, C<sub>3</sub>, C<sub>4</sub>: constantes données par les conditions aux limites  
 A, B: constantes dépendant des conditions initiales

Les conditions aux limites, qui vont nous permettre d'accéder aux fréquences de résonance, sont au nombre de quatre:

$$\begin{aligned} (d^2X/dx^2)_{x=0} &= 0 & (d^3X/dx^3)_{x=0} &= 0 \\ (d^2X/dx^2)_{x=L} &= 0 & (d^3X/dx^3)_{x=L} &= 0 \end{aligned}$$

On obtient un système à 4 équations, 4 inconnues dont les solutions satisfont à la relation:

$$\cos kL \cosh kL = 0 \quad \{I-70\}$$

$$\implies kL \cong (i + 0.5) \pi \quad \{I-71\}$$

où  $i$  désigne l'ordre de résonance auquel on s'intéresse

Le module de Young est donc relié à la fréquence de résonance par la relation:

$$E = K_i \rho L^4 e^{-2} f_i^2 \quad \{I-72\}$$

$K_i$ : constante caractéristique de l'ordre de résonance

$\rho$ : masse volumique de l'éprouvette ( $\text{kg/m}^3$ )

$L$ : longueur de l'éprouvette (m)

$e$ : épaisseur de l'éprouvette (m)

$f_i = \rho_i/2\pi$ : fréquence de résonance de l'ordre  $i$  (Hz)

La formule {I-72} n'est valable que si le rapport longueur/épaisseur est grand. Si ce n'est pas le cas, il faut procéder à une correction fonction des dimensions géométriques de l'éprouvette.

#### I - 4 - 1 - 2 - Incertitudes sur la mesure:

Le calcul du module de Young nécessite la connaissance des dimensions de l'éprouvette, de la masse volumique du matériau et de la fréquence de résonance. Nous nous trouvons face à deux principales sources d'erreurs:

- incertitudes sur la fréquence de résonance.
- incertitudes sur les dimensions de l'éprouvette

Pour réduire les effets de l'incertitudes sur la fréquence de résonance, il suffirait de s'intéresser à un ordre de résonance grand correspondant à une fréquence plus élevée. Cependant l'appareillage utilisé, ne nous permet pas, en raison d'une amplification insuffisante, d'étudier de tels ordres. C'est la raison pour laquelle nous ne négligerons pas ce facteur d'erreur. Mais, il est clair que le problème le plus important provient de la détermination de l'épaisseur de l'éprouvette, puisqu'une variation de  $50 \mu\text{m}$  entraîne un écart de 5% environ sur le module d'Young d'une tôle de zircaloy ayant une épaisseur moyenne de 0.5 mm. La mesure de cette dimension est effectuée de manière indirecte à partir de la masse volumique du matériau et de la masse de l'éprouvette que l'on peut estimer à 0,1 mg près.

$$e = \frac{m}{L\rho} \quad \{I-73\}$$

où  $l$  est la largeur de l'éprouvette

Finalement l'incertitude sur le module d'Young (inférieure à 4% pour l'ensemble des matériaux testés) peut s'écrire:

$$\Delta E/E = 3 \Delta\rho/\rho + 6 \Delta L/L + 2 \Delta l / l + 2 \Delta m/ m + 2 \Delta f_i / f_i \quad \{I-74\}$$

#### I - 4 - 2 - Tôles de Zinc

Différents alliages à base de zinc, fabriqués par la société belge Vieille Montagne, ont été testés. Le zinc, de par sa grande anisotropie, nous a servi d'étalon pour juger de la validité des modèles développés. Nous avons mesuré plus d'une dizaine de modules de Young dans le plan de la tôle. Les F.D.P. pour l'analyse sont au nombre de quatre et ont été mesurées sur un échantillon plan classique prélevé à mi-épaisseur de la tôle.

Les résultats présentés sont issues de quatre tôles différentes se distinguant soit par la composition chimique, soit par le traitement thermo-mécanique. Pour des raisons de propriété industrielle, nous ne nous attarderons pas sur la composition et l'état métallurgique de ces alliages. Cependant, ces restrictions ne perturbent en rien notre démarche qui vise à souligner l'importance de la texture et de la forme des grains vis-à-vis du comportement élastique des matériaux à symétrie cristalline hexagonale.

#### I - 4 - 2 - 1 - Alliages de Zinc-Cuivre

Les résultats sont reportés sur les tableaux I-3, I-4 et les figures I-7 et I-8. Nous comparons les modélisations de Voigt, Reuss, Hill, Kröner (modèle auto-cohérent) avec les résultats expérimentaux bruts (mesures) et "fittés" par un polynôme du quatrième degré en  $\cos \alpha$  ( $A \cos^4 \alpha + B \cos^2 \alpha \sin^2 \alpha + C \sin^4 \alpha$ ), où  $\alpha$  est l'angle de désorientation dans le plan de la tôle par rapport à l'axe de laminage.

La particularité de l'alliage ZnCu1 réside en une forme de grain très allongé (voir annexe II). En effet, les grains sont très allongés dans le sens long par rapport au sens normal et, dans une moindre mesure, par rapport au sens travers. ZnCu2 présente des grains qui sont eux, quasiment équiaxes dans le plan de la tôle et aplatis dans le plan défini par les directions normale et longue.

#### I - 4 - 2 - 2 - Alliages de Zinc-Titane

Nous avons effectué la même démarche que pour les alliages précédents. Les résultats sont reportés sur les tableaux I-5, I-6 et les figures I-9 et I-10. Comme pour l'exemple précédent, nous n'avons pas reporté, dans un souci de clarté, les résultats expérimentaux sur les figures.

L'alliage ZnTi1, resp. ZnTi2, possède des grains dont la forme est comparable à celle des grains de ZnCu1, resp. ZnCu2 (voir annexe II).

#### I - 4 - 2 - 3 - Conclusions

Les résultats obtenus nous amènent à faire plusieurs remarques:

- Les tôles de zinc se caractérisent par une grande anisotropie dans le plan de la tôle. En effet, le matériau référencé ZnCu1, qui est le moins anisotrope, présente une variation entre le sens long et le sens travers de 21% et ZnTi2, le plus anisotrope, une variation de 42%. Cette forte anisotropie est due à une texture fortement marquée, caractérisée par une concentration d'axe c dans la direction D.L. et à un comportement monocristallin très anisotrope.

- le module de Young sens long est systématiquement inférieur à celui sens travers. Ceci est bien entendu une conséquence de la répartition des axes c selon la direction de laminage.

- les modules calculés d'après les hypothèses de Voigt, resp. de Reuss, sont une limite supérieure, resp. inférieure, des modules expérimentaux.

- le modèle de Hill donne une excellente approximation des modules de Young réels. Dans tous les cas, il permet de prédire correctement les variations de la grandeur à laquelle on s'intéresse, dans le plan de la tôle. L'approche auto-cohérente fournit des valeurs sensiblement meilleures que celles de Hill, principalement en raison de la prise en compte de la forme moyenne des grains.

#### I - 4 - 3 - Tôles d'alliages de Zirconium

En ce qui concerne les alliages de zirconium, nous avons testé trois matériaux différents: du zircaloy-4, du Zirconium Niobium avec un taux pondéral nominal en Niobium de 2,5% et un alliage de Zirconium Niobium Etain Fer avec des taux pondéraux respectifs, pour les éléments d'addition, de 1%, 1% et 0,5%. Le zircaloy-4 est l'alliage actuellement utilisé dans les réacteurs de conception française pour constituer les grilles et les tubes guides. Les Canadiens ont opté pour le Zr-2,5Nb% dans leurs réacteurs CANDU. Le Zr1Nb1Sn0,5Fe, tout comme le Zr2,5Nb, a été l'objet de nombreuses recherches dans le domaine nucléaire et il nous sert ainsi de matériau de référence.

Les alliages de Zr1Nb1Sn0,5Fe et Zr2,5Nb nous ont été fournis dans cinq états métallurgiques différents se distinguant par leur dernier traitement thermique, exception faite pour les états référencés A15F et A25F dont nous ne tiendrons pas compte. Il nous est donc permis, pour une composition chimique donnée, d'étudier l'influence du dernier traitement thermique sur le module de Young. Ce type de comparaison n'est pas réaliste pour les tôles de zircaloy-4 dont nous disposons, puisque la gamme de fabrication avant dernier traitement thermique n'est pas la même pour tous les échantillons, plusieurs fabricants nous ont fournis et les épaisseurs des tôles varient d'une gamme à une autre.

Nous avons d'autre part essayé de corréler, pour un état métallurgique donné, l'influence de la composition chimique. Cette étude souffre des limitations soulignées ci-dessus à propos des tôles de zircaloy-4.

Bien entendu, nous avons souligné l'importance de la texture dans la caractérisation du comportement élastique des alliages de zirconium. Rappelons qu'en réalité seule la figure de pôles (00.2) est nécessaire pour les calculs.

Enfin, nous avons tenté de cerner, par le calcul, l'évolution du module de Young et de certaines compliances élastiques en fonction de la température. Ces résultats seront comparés à des données issues de la littérature, pour une texture semblable.

#### 1-4-3-1 - Influence de l'état métallurgique

Ce type de comparaison, effectuée bien entendu à partir des valeurs expérimentales, est rendue délicate en raison des incertitudes sur les mesures. En effet, les propriétés monocristallines du zirconium sont beaucoup moins anisotropes que celles du zinc. Par conséquent, l'erreur commise au cours des manipulations est critique, même si l'épaisseur, principale source d'incertitudes, est la même pour toutes ces tôles. Cependant, l'allure des courbes étant cohérente, il nous semblait intéressant de présenter ces résultats (figures I-11, I-12).

On remarque aussi bien pour le Zr<sub>2</sub>5Nb que pour le Zr<sub>1</sub>Nb<sub>1</sub>Sn<sub>0,5</sub>Fe, que le module de Young le plus élevé est celui de l'état recristallisé, l'état trempé présentant la valeur la plus faible. Le module sens long est en général plus élevé que le module travers. De plus la variation d'un état à un autre est quasiment la même sens long et sens travers pour une composition chimique donnée.

Il n'est pas raisonnable de généraliser ces remarques pour tous les alliages de zirconium. Il semble cependant, que le module de Young puisse être un bon indicateur de l'état métallurgique.

D'autre part, les textures de ces alliages n'ont pas été déterminées de manière suffisamment fines pour établir une corrélation entre le module de Young et l'état métallurgique, à partir des modèles développés. En effet, seules deux figures de pôles incomplètes ont été mesurées. Néanmoins, nous présenterons, à titre indicatif, les résultats prédictifs obtenus dans ce cas défavorable dans la partie I-4-3-3.

#### 1-4-3-2 - Influence de la composition chimique

Nous avons comparé l'influence de la composition chimique pour deux états métallurgiques: recristallisé et recuit (figures I-13, I-14). La différence microstructurale entre ces deux états n'est pas toujours tangible.

L'évolution du module de Young est similaire pour les deux états métallurgiques. Par ordre croissant de module de Young, on peut classer les matériaux comme suit:

- 1) Zr<sub>1</sub>Nb<sub>1</sub>Sn<sub>0,5</sub>Fe
- 2) Zr<sub>2</sub>5Nb
- 3) Zy-4

Il est clair qu'étant donnée la faible différence de module de Young d'un alliage à un autre (de l'ordre de 3 à 4%), on ne retient pas cette grandeur comme critère de choix de matériau. Ces alliages se distinguent en fait par d'autres grandeurs telles que la limite élastique, la contrainte de rupture, l'allongement à rupture... Néanmoins, il est intéressant de pouvoir connaître d'un point de vue fondamental, l'influence d'un élément d'alliage sur le comportement élastique des alliages de Zirconium. Une étude de ce type a été réalisée par A.I. Daskovski et Y.M. Savitsky [1962] pour connaître l'influence du taux de Niobium présent dans le zirconium. Ils ont montré que lorsque le taux de niobium augmente (0→10%), le module de Young du matériau diminue. D.L. Douglas [1971] attribue cette diminution de la grandeur élastique à la formation d'une seconde phase riche en Niobium.

Nous allons à présent constater qu'une des principales conséquences du dernier traitement thermique et de la composition chimique est un changement de texture, qui à lui seul permet d'expliquer tout ou partie des variations de module de Young dans le plan de la tôle.

#### 1-4-3-3 - Effets de la texture et de la forme des grains sur le comportement élastique

Pour illustrer l'effet de la texture et de la forme moyenne de grains, nous avons utilisé les différents modèles que nous avons développés. En effet, ceux-ci prenant en compte soit le

premier de ces paramètres, soit les deux, nous permettent de juger de leur influence sur le comportement élastique des polycristaux d'alliages de zirconium.

#### I - 4 - 3 - 3 - 1 - Le Zircaloy-4

Nous présentons les résultats obtenus pour quatre tôles de zircaloy dénommées Zril, Zr650 et Zrbe, Zrec (voir annexe II). Les deux premiers matériaux sont issus du même lot et se distinguent par leur dernier traitement thermique: Zril est détendu 24 heures à 460°C et Zr650 est recristallisé 3 heures à 650°C. Ces deux matériaux nous serviront de référence tout au long de ce rapport. Zrbe est un zircaloy-4 brut de laminage et Zrec est le même matériau recristallisé 3/4 heure à 620°C.

Nous avons mesuré pour chaque tôle dix modules de Young dans le plan de la tôle. Ceux-ci sont comparés avec les modules de Young calculés grâce aux modèles de Voigt, Reuss, Hill et Kröner. Nous avons reporté les résultats expérimentaux fittés par un polynôme du quatrième degré en  $\cos\alpha$  ainsi que les résultats prédictifs sur les tableaux I-7, I-8, I-9 et I-10 et sur les figures I-15, I-16, I-17 et I-18. Nous avons également reproduit les FDP (00.2) recalculées sur les figures I-19, I-20, I-21 et I-22.

Deux observations nous paraissent primordiales:

- la modélisation fournit des valeurs dont l'ordre de grandeur est parfaitement comparable aux mesures expérimentales. L'allure de la variation du module de Young dans le plan de la tôle est respectée par le polynôme de "fittage". Cependant, les mesures expérimentales ne sont pas toujours comprises entre les valeurs fournies par les modèles de Voigt et de Reuss. Ceci peut s'expliquer par une erreur expérimentale systématique dans la mesure du module de Young ou par l'inadaptation des constantes élastique du zirconium au zircaloy-4.

- la modélisation est tout à fait adaptée pour l'ensemble des états métallurgiques traités et en particulier pour l'état brut de laminage. On aurait pu s'attendre à ce que la présence de contraintes résiduelles modifie notablement la mesure de fréquence de résonance effectuée pour déterminer le module de Young expérimental. En réalité, ce phénomène a des conséquences plus fines, que notre appareillage ne permet pas de détecter. Nous pensons en particulier à la largeur du pic de résonance proportionnelle à la densité de défauts structuraux présents dans le matériau.

#### I - 4 - 3 - 3 - 2 - Le Zr<sub>2</sub>Nb

La démarche menée est la même que pour le zircaloy-4. Trois états métallurgiques ont été étudiés: A22F, A24F et A25F (voir annexe II).

Rappelons que pour cet alliage, seules deux figures de pôles incomplètes ont été utilisées pour l'analyse de texture (00.2) et (10.1). Ceci peut paraître critiquable dans le sens où une analyse soignée est nécessaire pour effectuer des calculs fiables. Cependant comme seuls les quatre premiers rangs du développement en série de FHSO sont utiles et que l'étape de positivité sur les F.D.P. améliore significativement les calculs de F.D.O., il semblait intéressant d'appliquer les modèles développés à ce cas, rendu défavorable par le manque de données cristallographiques.

Les figures de pôles (00.2) et (10.1) expérimentales, recalculées sans et avec utilisation de la positivité sont reportées sur les figures I-23, I-24, I-25, I-26, I-27 et I-28 pour l'alliage A22F. Il est clair que l'analyse sans algorithme de positivité n'est pas complètement irréaliste et que cette analyse semble tout à fait cohérente lorsque l'on utilise la positivité. Toutefois, nous avons réalisé les calculs de module de Young pour une tôle de Zircaloy-4 ayant une texture comparable à celle des alliages de la série A2 en utilisant pour l'analyse de texture une, deux, trois ou quatre F.D.P. Il s'avère que les courbes représentant le module de Young dans le plan de la tôle (figure I-29, tableau I-11) ont certes un air de ressemblance, mais ne sont malheureusement pas confondues. C'est pourquoi les résultats prédictifs pour les séries A1 et A2 ne sont donnés qu'à titre indicatif car il est indispensable pour obtenir des résultats fiables, de faire l'analyse de F.D.O. avec au moins trois F.D.P.

Nous avons effectué les simulations pour les trois matériaux précités. Les résultats, reportés sur les figures I-30, I-31, I-32, nous amènent à faire plusieurs remarques:

- les résultats obtenus sont tout à fait satisfaisants dans le sens où ils permettent de prédire avec une bonne précision les résultats expérimentaux. Comme pour le zircaloy-4, les modèles de Reuss et de Voigt ne semblent pas fournir des bornes inférieures et supérieures des modules réels. On se reportera aux explications avancées pour le zircaloy-4 tout en ayant à l'esprit que dans le cas présent, la médiocrité de l'analyse nous empêche d'avancer des hypothèses fermes.

- la présence d'éléments d'addition ne semble pas modifier fondamentalement la conception de nos modèles. Aussi, il semble que les données monocristallines du matériau pur puissent être utilisées avec satisfaction dans les cas des alliages de zirconium [Northwood, 1975].

- d'autre part les alliages de Zr2,5%Nb sont biphasés puisque la phase  $\beta$  représente entre 5 et 10% du volume total, occupé bien entendu en majorité par la phase  $\alpha$ . Il semblerait là aussi, que la présence d'une telle seconde phase, en faible proportion, n'influe que faiblement sur les valeurs de modules de Young malgré les différences importantes de comportement élastique entre les deux phases (le module moyen de la phase  $\beta$  est supérieur de 30% environ à celui de la phase  $\alpha$  [L.R. Bunnell, 1977])

- enfin, comme pour les alliages de zircaloy-4, l'état métallurgique n'est responsable de la valeur du module de Young qu'à travers la texture et la forme du grain.

#### I - 4 - 3 - 3 - 3 - Le Zr1Nb1Sn0.5Fe

Les matériaux testés sont référencés A12F, A14F et A15F (voir annexe II). Les remarques faites dans le paragraphe précédent concernant l'analyse de texture, restent valables pour l'alliage Zr1Nb1Sn0.5Fe. Les figures I-33, I-34, I-35 reproduisent les résultats obtenus à propos desquels on peut dire:

- la modélisation permet, dans ce cas également, de prédire les modules de Young mesurés, avec satisfaction. Il est clair, d'après nos résultats, que les variations dans le plan de la tôle de la grandeur précitée sont respectées par les modèles. D'autre part, comme pour le Zr2,5Nb, les bornes définies par Voigt et Reuss ne sont pas systématiquement valides.

- les alliages de la série A1 sont de manière général faiblement anisotropes (1,3% maximum). Ceci s'explique bien entendu par la F.D.P. (00.2) qui présente une symétrie quasiment isotrope dans le plan de la tôle.

- quel que soit l'état métallurgique étudié, la connaissance de la texture et accessoirement de la forme des grains, permet de caractériser le matériau traité. Signalons que la forme des grains n'a ici qu'une faible incidence sur les résultats prédictifs.

#### I - 4 - 3 - 4 - Evolution du comportement élastique avec la température

Il est intéressant dans le cadre des applications nucléaires d'être en mesure de prédire le comportement élastique macroscopique des alliages utilisés en réacteur à des températures de l'ordre de 300 degrés Celsius. C'est la raison pour laquelle nous avons tenté de cerner par le calcul, l'évolution en fonction de la température des constantes élastiques du polycristal.

Cette étude, effectuée sur des tubes, nous a permis de souligner le rôle de la texture en comparant, dans les mêmes conditions de calcul, plusieurs zircaloy-4 différenciés uniquement par leur figure de pôles (00.2). Dans un second temps, nous comparerons nos résultats prédictifs avec des mesures de modules de Young et de modules de cisaillement effectuées par G.B. Mellinger et J.L. Bates [L.R. Bunnell, 1977].

#### I - 4 - 3 - 4 - 1 - Résultats Prédictifs

Nous avons utilisé dans cette partie le modèle auto-cohérent. Les seules modifications sont faites au niveau des données d'entrée. En effet, on introduit pour chaque température les constantes monocristallines correspondantes [Simmons et Wang, 1971]. Il est clair qu'en agissant ainsi, un certain nombre d'hypothèses supplémentaires sont faites dont les plus importantes nous semblent être:

- la négligence d'un éventuel changement de texture
- la non prise en compte de la création ou de la relaxation de contraintes internes induite par une montée en température.

Il est clair que la précipitation et la mise en solution sont des phénomènes absents dans le domaine de température étudié (0 à 600 degrés Celcius).

Les courbes reportées sur les figures I-36 à I-44, représentent la variation des différentes constantes élastiques prédictives en fonction de la température pour un monocristal de zirconium, pour un polycristal idéalisé à texture isotrope et pour un zircaloy-4 recristallisé fourni sous forme de tube.

Il apparaît clairement que les différentes constantes varient de manière quasiment linéaire dans le domaine de température considéré. Pour des écarts de température plus élevés, ces variations peuvent être modélisées par un polynôme de second, voire troisième degré.

D'autre part, les variations des constantes monocristallines nous servent ici de référence. Elles permettent de souligner l'importance considérable de la texture car, bien que ne constituant pas des bornes supérieure et inférieure des constantes polycristallines, elles donnent un aperçu du domaine minimum des valeurs que peuvent revêtir les constantes effectives d'un polycristal selon sa FDO.

La valeur des constantes  $C_{ij}$  ( $i=1,2,3$ ) est compatible bien entendu avec l'allure de la FDP (00.2) qui présente des axes  $c$  proches de la direction normale. Il est par conséquent encourageant de constater que les valeurs de  $C_{11}$  et  $C_{22}$  sont très voisines de celle de l'axe  $a$  et que  $C_{33}$  tend vers la valeur de l'axe  $c$ . Enfin, on notera une augmentation systématique des constantes élastiques du type  $C_{ij}$  ( $i \neq j$ ) à l'inverse des constantes  $C_{ij}$  ( $i=1,2,3,4,5,6$ ) qui elles diminuent avec la température (fig. I-36 à I-44).

#### I - 4 - 3 - 4 - 2 - Applications

Nous avons comparé nos résultats prédictifs avec les mesures expérimentales obtenues par "the Pacific Northwest Laboratories" au cours d'une étude réalisée pour "the Electric Power Research Institute".

Nos calculs ont été effectués à partir d'une texture mesurée sur un tube de zircaloy-4 recristallisé dit standart. Les mesures expérimentales ont également été effectuées sur des tubes. Cependant, la provenance des tubes n'étant pas la même, il est possible que la texture des deux matériaux soit différente même si l'expérience montre que les composantes principales de la texture ne changent pas fondamentalement d'un tube à un autre. Il faut toutefois tenir compte de cette remarque dans l'analyse des figures I-45, I-46, I-47 et I-48 où l'on a reproduit les variations du module de Young et du module de cisaillement dans la direction axiale et sur la circonférence du tube.

Les résultats publiés par the Pacific Northwest Laboratories [L.R. Bunnell, 1977] sont en réalité un "fittage" par un polynôme de second degré des mesures effectuées par une technique dynamique. Par ailleurs, il nous est impossible d'évaluer l'erreur expérimentale de ces mesures.

Les courbes obtenues par calcul sont tout à fait satisfaisantes puisque l'écart maximum entre une valeur calculée et une valeur mesurée ne dépasse pas 2%, ce qui est probablement l'ordre de grandeur de l'incertitude expérimentale. Le module de cisaillement calculé ne peut mathématiquement pas différer entre la direction axiale et la circonférence du tube même dans le cas d'une symétrie d'échantillon triclinique. Ceci n'est pas le cas pour les mesures. Si l'on a la foi en la modélisation, cette remarque peut nous renseigner sur les erreurs commises lors de la détermination expérimentale du module de cisaillement. Il serait plus raisonnable de considérer qu'en plus d'une probable erreur lors de la mesure, le matériau est sensible à d'autres paramètres métallurgiques non pris en compte dans notre modélisation. On peut ainsi évoquer l'éventuelle présence de contraintes résiduelles, bien que nous ayons vu au paragraphe I-4-3-3-1 que celles-ci n'intervenaient que faiblement dans la détermination du module de Young. Cependant, il est dangereux d'avancer une interprétation cohérente sans avoir davantage de renseignements sur le zircaloy-4 étudié par "the Pacific Northwest Laboratories" dont on sait uniquement qu'il a subi un traitement d'homogénéisation.

En ce qui concerne le module de Young, on peut se rendre compte que les calculs et les mesures permettent de distinguer les deux directions étudiées: le module dans la direction axiale est supérieur au module sur la circonférence et cette tendance s'amenuise lorsque la température augmente.

### 1 - 4 - 3 - 4 - 3 - Conclusions

L'application du modèle auto-cohérent à la prédiction de l'évolution des données élastiques en fonction de la température est tout à fait appréciable. D'un point de vue pratique, ces résultats peuvent être utilisés dans des programmes de calcul de structure nécessitant des données relativement précises. Cependant il ne faut pas perdre de vue les limitations de ce type de calcul, engendrées par une éventuelle modification de l'état du matériau au cours de la montée en température, limitations qui s'ajoutent aux hypothèses adoptées dans la modélisation.

L'utilisation de modèles fiables prend toute sa signification lors, par exemple, de la prévision du coefficient de Poisson qui d'un point de vue expérimental est incroyablement difficile à mesurer. Nous avons reporté à titre indicatif, l'évolution de ce coefficient pour le tube étudié précédemment sur la figure I-49. Ces valeurs prédictives ne peuvent malheureusement pas être comparées à des valeurs expérimentales de par la carence de données dans la "littérature scientifique".

### 1 - 5 - CONCLUSIONS

Il est clair que l'objectif principal des modélisations développées est de connaître les paramètres qui influencent significativement la propriété étudiée. La modélisation des propriétés élastiques nous a donc servi d'outil d'investigation dans l'optique d'établir un modèle fiable de croissance sous irradiation, intégrant des paramètres prépondérants.

La question qui se posait alors était de savoir si oui ou non, nous étions capable de caractériser avec fiabilité le comportement élastique macroscopique des tôles d'alliages de zirconium. Pour cela, il était indispensable, en particulier, de pouvoir prédire de manière fidèle l'anisotropie du matériau.

Nous avons par conséquent, développé différents modèles adaptés à la symétrie cristalline hexagonale prenant en compte un paramètre qui nous semblait a priori essentiel: la texture cristallographique. Le modèle auto-cohérent, auquel nous nous sommes attaché, tient compte également de la forme moyenne des grains, atout considérable dans l'étude des matériaux présentant une forte anisotropie élastique monocristalline (Zinc).

Les résultats exposés ont démontré de manière claire, que la prise en considération de la texture permettait de satisfaire à nos exigences initiales dans le cadre de l'élasticité. En effet, ce paramètre définit le comportement macroscopique des tôles d'alliages de zirconium étudiées. Notre moyen de validation des modèles a été principalement la mesure du module de Young dans le plan de la tôle. Or, il s'est avéré que celui-ci pouvait être prédit avec une grande précision grâce au modèle de Hill et au modèle auto-cohérent.

De la même manière, la prise en compte des données de texture, limitées à la figure de pôles complète (00.2), nous a permis de prédire avec succès l'évolution de certaines grandeurs, largement utilisées dans les logiciels de calcul de structure, telles que le module de cisaillement et le module de Young.

D'autre part, on peut également dresser une liste non exhaustive des paramètres qui semblent n'avoir qu'un rôle secondaire dans le comportement élastique macroscopique des tôles d'alliages de zirconium testés:

- la composition chimique de l'alliage base zirconium
- la présence d'une seconde phase dans des proportions raisonnables (<10%) et dont les propriétés élastiques ne sont pas fondamentalement différentes de celles de la phase mère (exemple des phases  $\alpha$  et  $\beta$  du  $Zr_{2,5}Nb$  phase voir I - 4 - 3 - 3 - 2)
- la présence de joints de grains et de joints de macle
- la présence de contraintes résiduelles et par voie de conséquence la densité de dislocations et de boucles de dislocations

Cependant, il faut avoir à l'esprit que si ces paramètres n'influencent que dans une moindre mesure le comportement élastique, ils jouent un rôle indirect important dans le sens où ils modifient la texture. On est ici confronté au problème d'interdépendance des paramètres, qui empêche une étude séparée de chacun de ces facteurs.

Toutefois, l'étude menée nous a permis de montrer que la prise en compte de la texture suffit pour caractériser de manière fiable et satisfaisante, le comportement élastique des alliages de zirconium. Forts de cette constatation, nous allons à présent nous intéresser à une autre propriété physique plus proche, dans sa formalisation mathématique, de la croissance sous irradiation: la dilatation thermique.

Figure I-7 : Module de Young du ZnCu1 dans le plan de la tôle

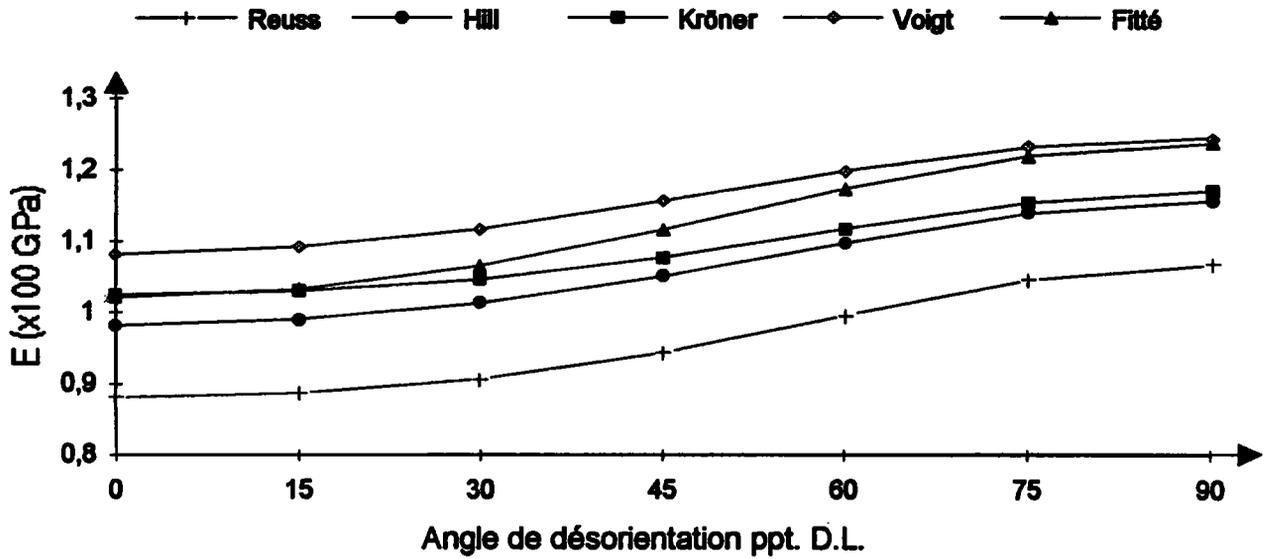


Figure I-8 : Module de Young de ZnCu2 dans le plan de la tôle

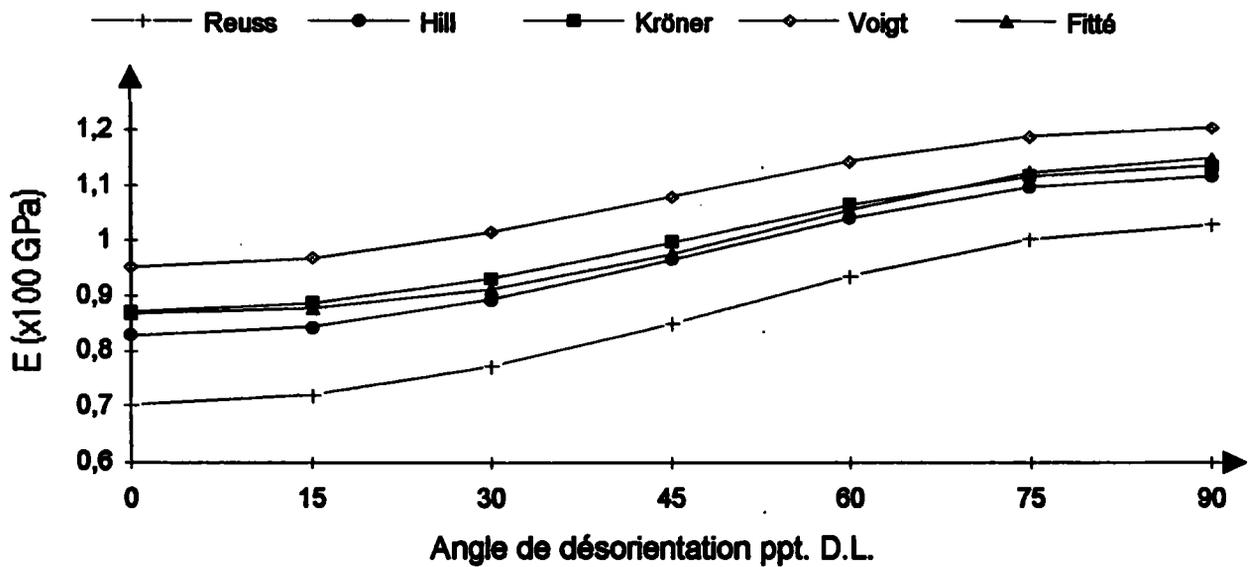


Figure I-9 : Module de Young de ZnTi1 dans le plan de la tôle

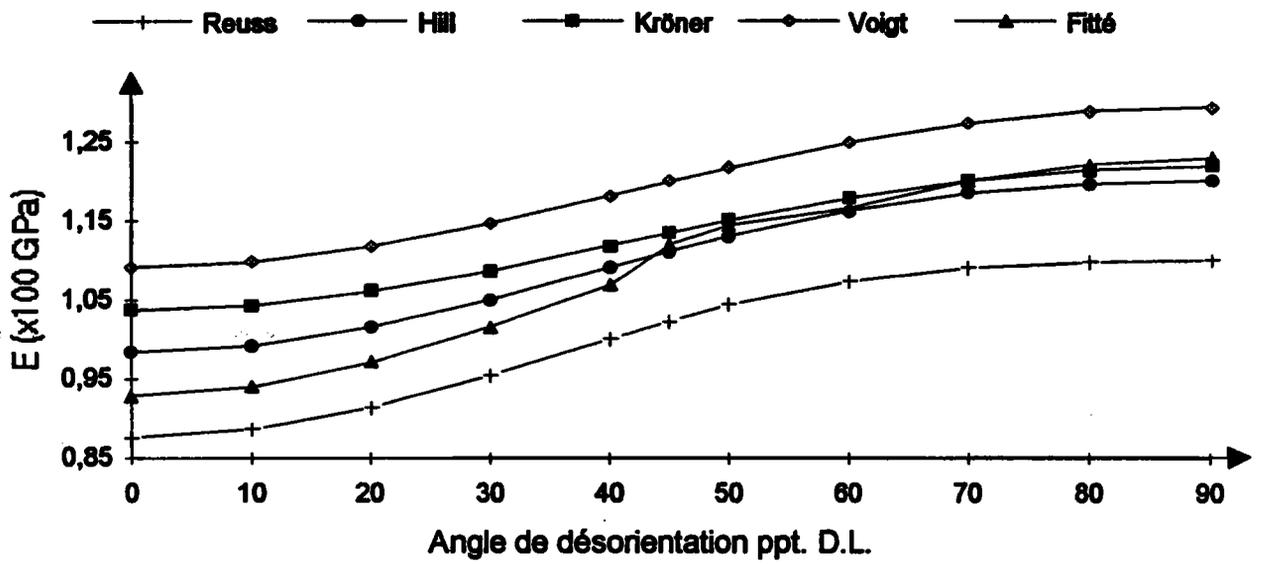
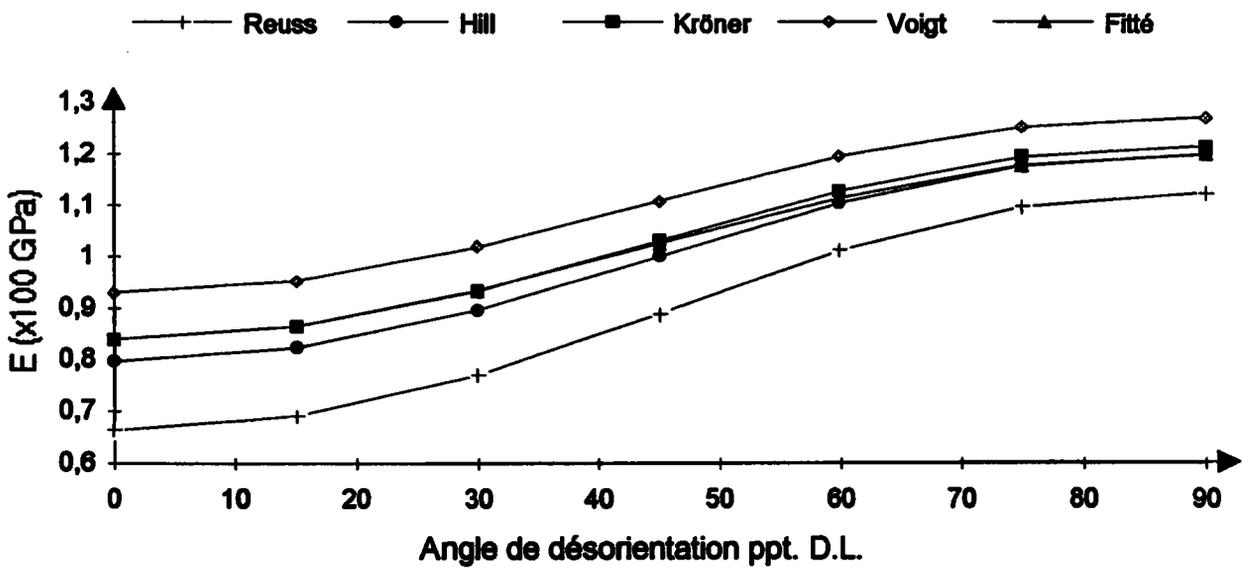


Figure I-10 : Module de Young de ZnTi2 dans le plan de la tôle



**Tableau I-3: Module de Young pour la tôle référencée ZnCu1**

Angle	Reuss	Hill	Kröner	Voigt	Mesuré	Fitté
0	0,881	0,982	1,025	1,082	1,028	1,021
15	0,887	0,99	1,03	1,092	1,022	1,033
30	0,907	1,013	1,047	1,118	1,067	1,066
45	0,944	1,051	1,077	1,157	1,13	1,117
60	0,996	1,098	1,118	1,199	1,161	1,174
75	1,046	1,14	1,155	1,232	1,211	1,22
90	1,067	1,157	1,171	1,245	1,249	1,237

**Tableau I-4: Module de Young pour la tôle référencée ZnCu2**

Angle	Reuss	Hill	Kröner	Voigt	Mesuré	Fitté
0	0,704	0,828	0,872	0,952	0,881	0,868
15	0,722	0,845	0,888	0,968	0,874	0,878
30	0,773	0,894	0,932	1,015	0,934	0,913
45	0,85	0,965	0,996	1,079	0,97	0,975
60	0,935	1,039	1,064	1,143	1,044	1,054
75	1,002	1,096	1,116	1,189	1,139	1,123
90	1,028	1,117	1,136	1,206	1,147	1,15

**Tableau I-5: Module de Young pour la tôle référencée ZnTi1**

Angle	Reuss	Hill	Kröner	Voigt	Mesuré	Fitté
0	0,876	0,984	1,037	1,092	0,939	0,929
10	0,886	0,992	1,043	1,098	0,932	0,94
20	0,914	1,016	1,061	1,118	0,975	0,971
30	0,955	1,051	1,087	1,147	1,006	1,017
40	1,001	1,092	1,119	1,182	1,052	1,069
45	1,024	1,112	1,135	1,2	1,126	1,121
50	1,044	1,131	1,151	1,217	1,117	1,145
60	1,074	1,163	1,179	1,249	1,161	1,166
70	1,091	1,185	1,201	1,274	1,21	1,201
80	1,098	1,197	1,214	1,289	1,213	1,221
90	1,1	1,201	1,219	1,294	1,229	1,229

**Tableau I-6: Module de Young pour la tôle référencée ZnTi2**

Angle	Reuss	Hill	Kröner	Voigt	Mesuré	Fitté
0	0,664	0,797	0,84	0,93	0,849	0,839
15	0,692	0,823	0,865	0,954	0,855	0,865
30	0,771	0,897	0,934	1,019	0,919	0,935
45	0,89	1,001	1,031	1,109	1,067	1,026
60	1,012	1,104	1,127	1,195	1,081	1,114
75	1,095	1,175	1,193	1,252	1,172	1,176
90	1,123	1,199	1,215	1,271	1,212	1,198

Figure I-11 : Influence de l'état métallurgique sur le module de Young du Zr<sub>2,5</sub>Nb

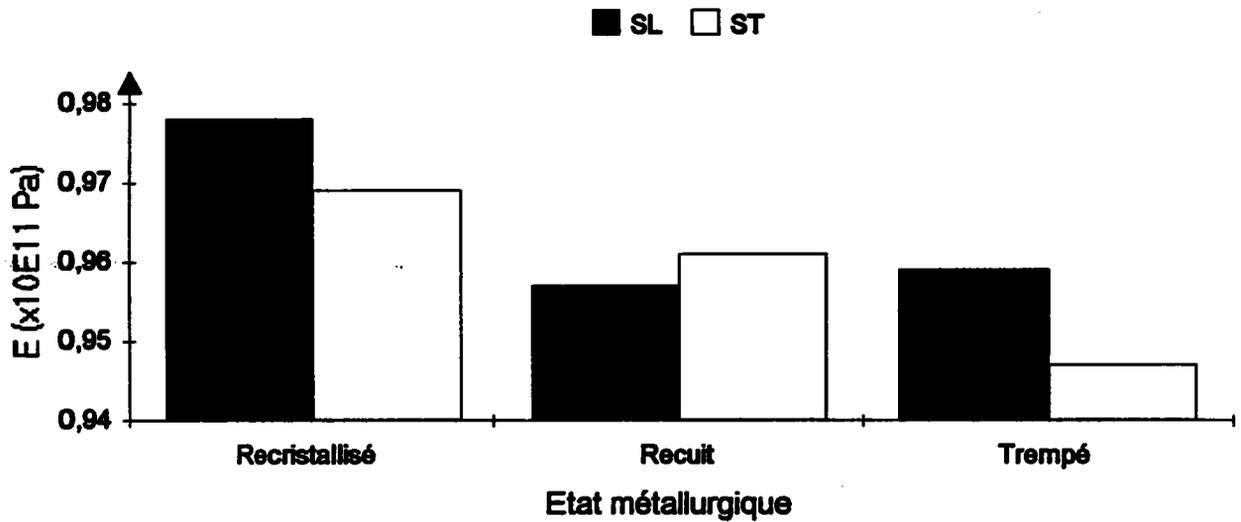


Figure I-12 : Influence de l'état métallurgique sur le module de Young du Zr<sub>1</sub>Nb<sub>1</sub>Sn<sub>0,5</sub>Fe

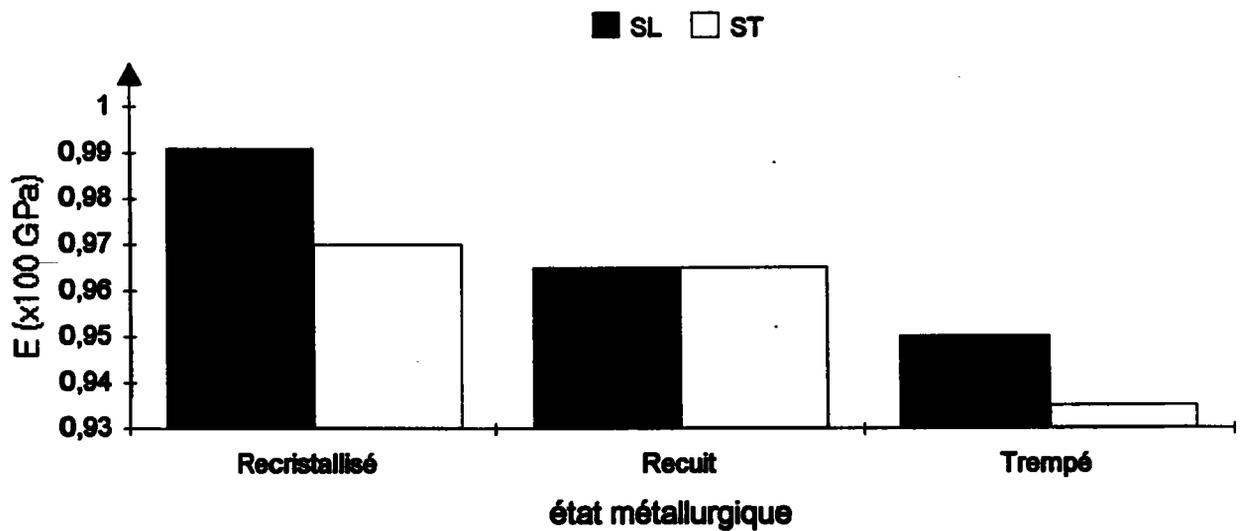


Figure I-13 : Influence de la composition chimique sur le module de Young d'un matériau recristallisé

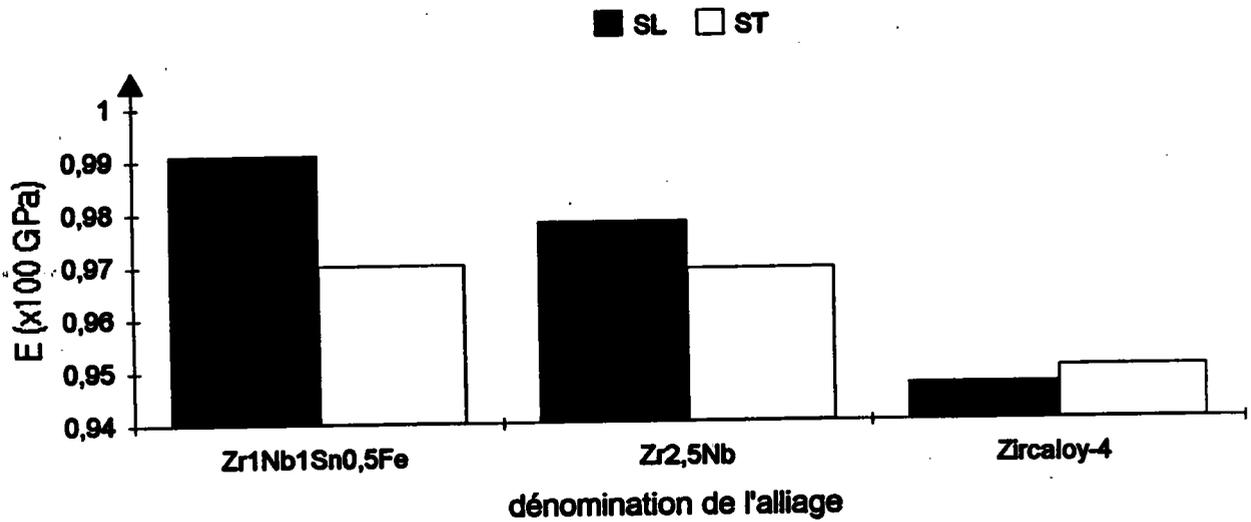


Figure I-14 : Influence de la composition chimique sur le module de Young pour un matériau recuit

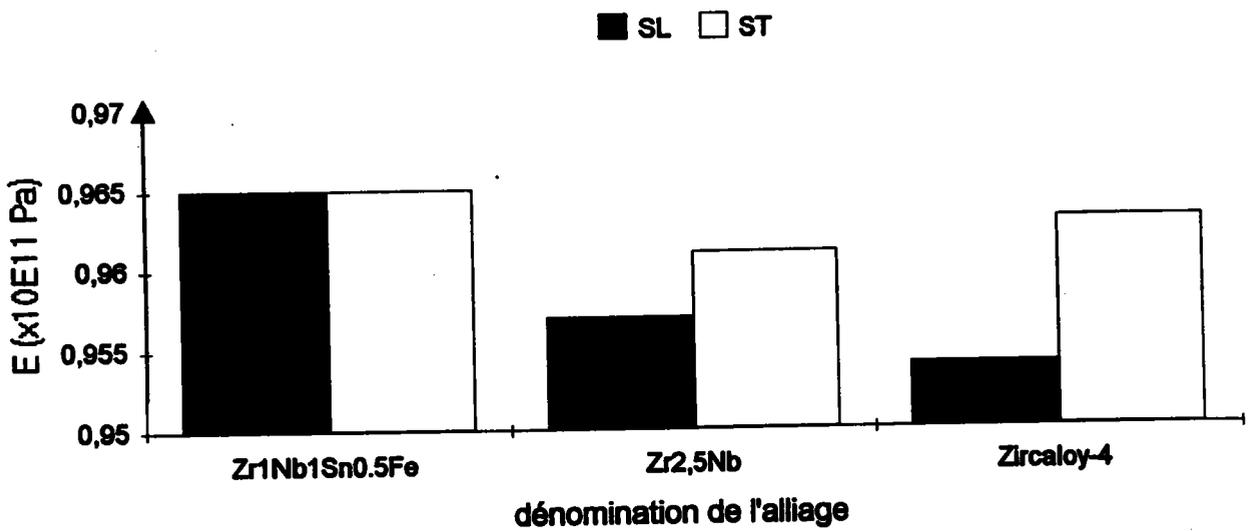


Figure I-15 : Module de Young de Zr11 dans le plan de la tôle

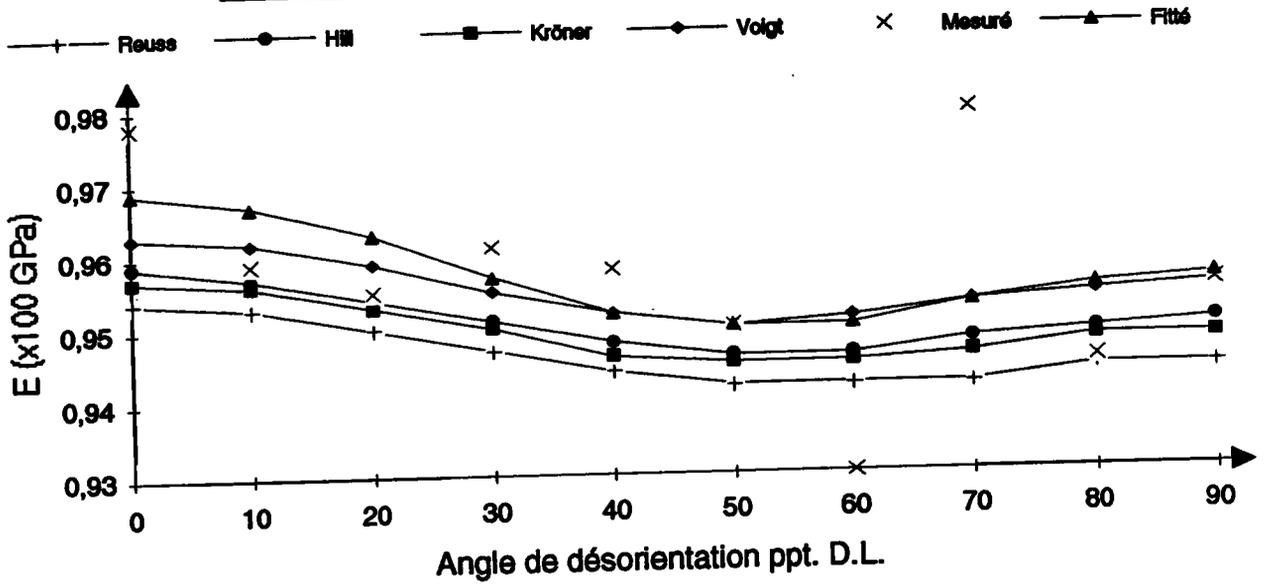


Figure I-16 : Module de Young de Zr650 dans le plan de la tôle

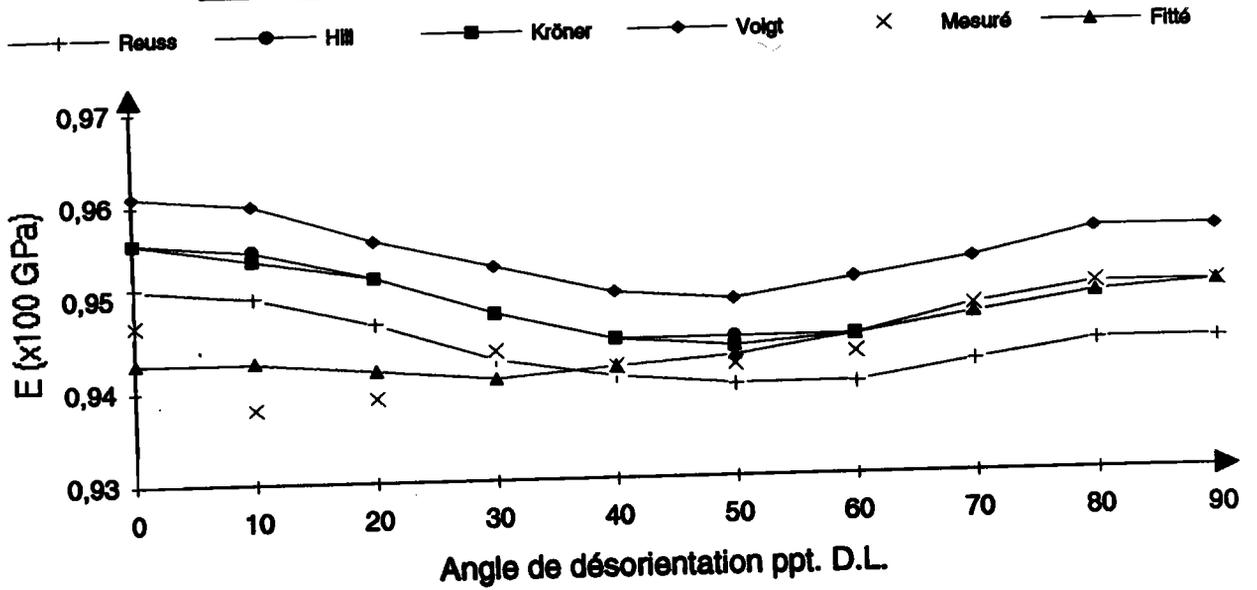


Figure I-17 : Module de Young de Zrbe dans le plan de la tôle

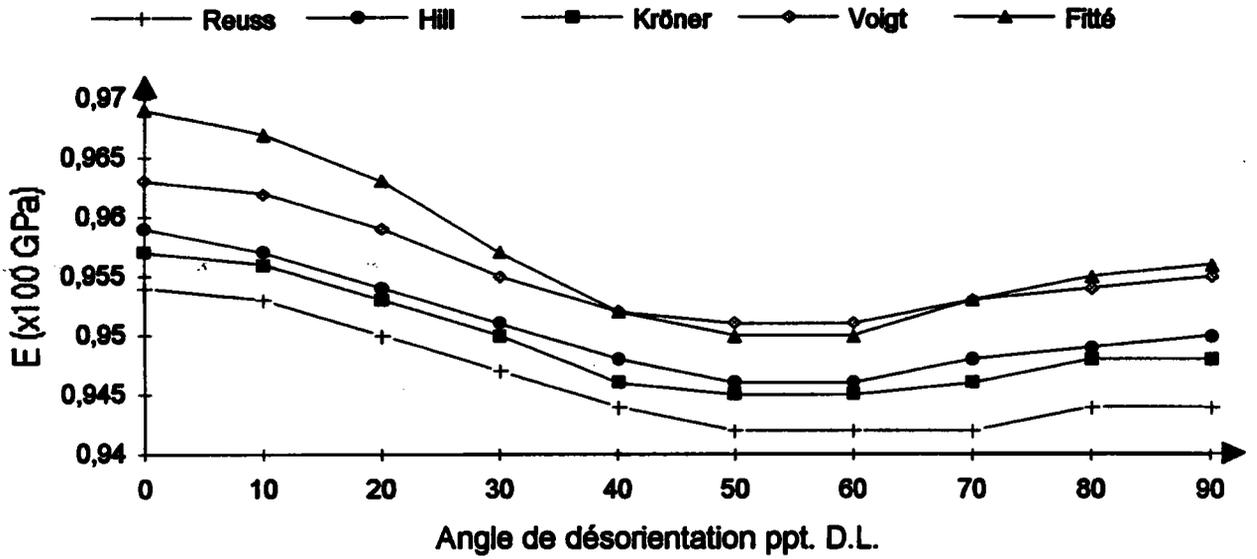
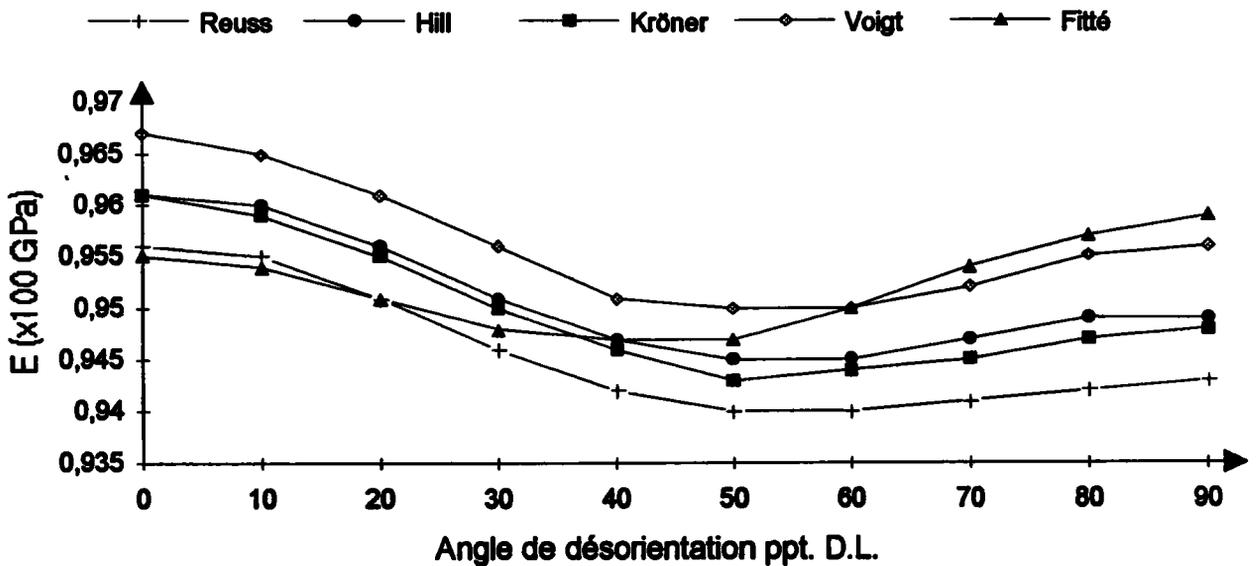


Figure I-18 : Module de Young de Zrrec dans le plan de la tôle



**Tableau I-7: Module de Young pour la tôle référencée Zrll**

Angle	Reuss	Hill	Kröner	Voigt	Mesuré	Fitté
0 (sens long)	0,954	0,959	0,957	0,963	0,978	0,969
10	0,953	0,957	0,956	0,962	0,959	0,967
20	0,95	0,954	0,953	0,959	0,955	0,963
30	0,947	0,951	0,95	0,955	0,961	0,957
40	0,944	0,948	0,946	0,952	0,958	0,952
50	0,942	0,946	0,945	0,95	0,95	0,95
60	0,942	0,946	0,945	0,951	0,93	0,95
70	0,942	0,948	0,946	0,953	0,979	0,953
80	0,944	0,949	0,948	0,954	0,945	0,955
90 (sens travers)	0,944	0,95	0,948	0,955	0,955	0,956

**Tableau I-8: Module de Young pour la tôle référencée Zr650**

Angle	Reuss	Hill	Kröner	Voigt	Mesuré	Fitté
0 (sens long)	0,951	0,956	0,956	0,961	0,947	0,943
10	0,95	0,955	0,954	0,96	0,938	0,943
20	0,947	0,952	0,952	0,956	0,939	0,942
30	0,943	0,948	0,948	0,953	0,944	0,941
40	0,941	0,945	0,945	0,95	0,942	0,942
50	0,94	0,945	0,944	0,949	0,942	0,943
60	0,94	0,945	0,945	0,951	0,943	0,945
70	0,942	0,948	0,947	0,953	0,948	0,947
80	0,944	0,95	0,949	0,956	0,95	0,949
90 (sens travers)	0,944	0,95	0,95	0,956	0,95	0,95

**Tableau I-9: Module de Young pour la tôle référencée Zrbe**

Angle	Reuss	Hill	Kröner	Voigt	Mesuré	Fitté
0 (sens long)	0,954	0,959	0,957	0,963	0,978	0,969
10	0,953	0,957	0,956	0,962	0,959	0,967
20	0,95	0,954	0,953	0,959	0,955	0,963
30	0,947	0,951	0,95	0,955	0,961	0,957
40	0,944	0,948	0,946	0,952	0,958	0,952
50	0,942	0,946	0,945	0,951	0,95	0,95
60	0,942	0,946	0,945	0,951	0,93	0,95
70	0,942	0,948	0,946	0,953	0,979	0,953
80	0,944	0,949	0,948	0,954	0,945	0,955
90 (sens travers)	0,944	0,95	0,948	0,955	0,955	0,956

**Tableau I-10: Module de Young pour la tôle référencée Zrrec**

Angle	Reuss	Hill	Kröner	Voigt	Mesuré	Fitté
0 (sens long)	0,956	0,961	0,961	0,967	0,954	0,955
10	0,955	0,96	0,959	0,965	0,957	0,954
20	0,951	0,956	0,955	0,961	0,956	0,951
30	0,946	0,951	0,95	0,956	0,937	0,948
40	0,942	0,947	0,946	0,951	0,94	0,947
50	0,94	0,945	0,943	0,95	0,952	0,947
60	0,94	0,945	0,944	0,95	0,963	0,95
70	0,941	0,947	0,945	0,952	0,955	0,954
80	0,942	0,949	0,947	0,955	0,943	0,957
90 (sens travers)	0,943	0,949	0,948	0,956	0,965	0,959

Figure I-19: Figure de pôle (00.2) du Zr11

Figure I-20: Figure de pôle (00.2) du Zr650

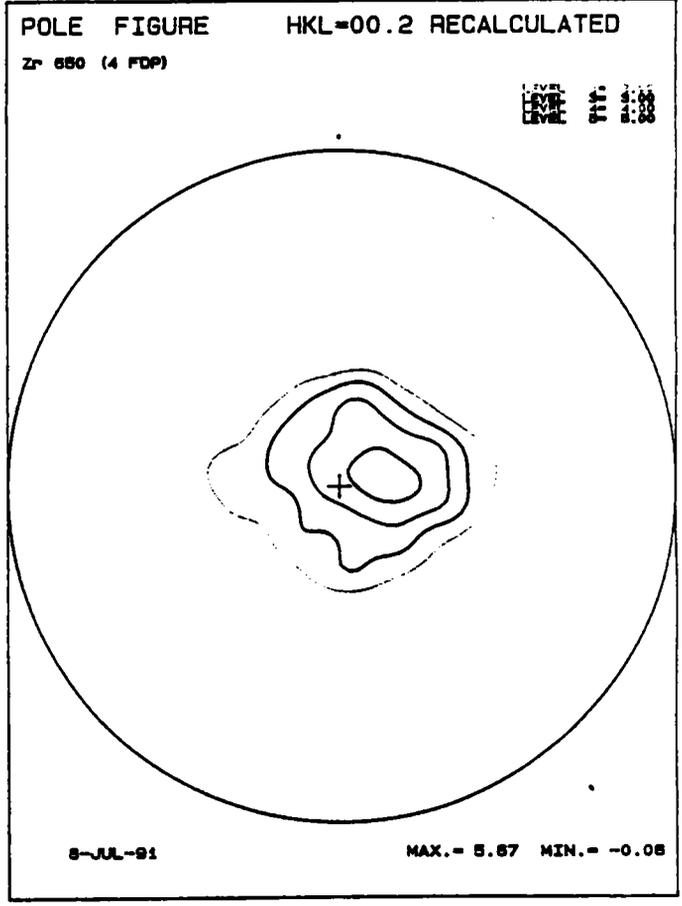
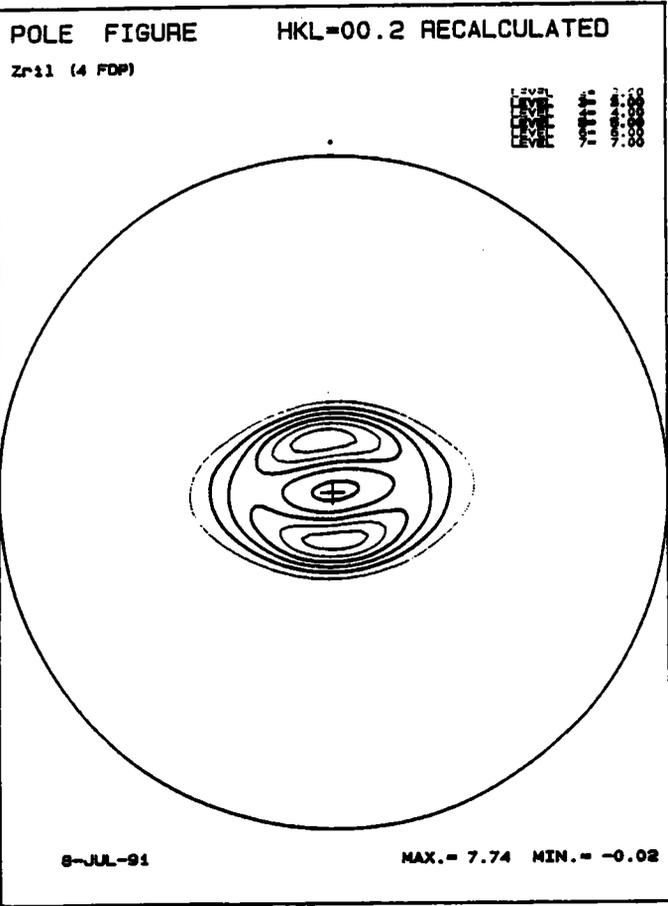
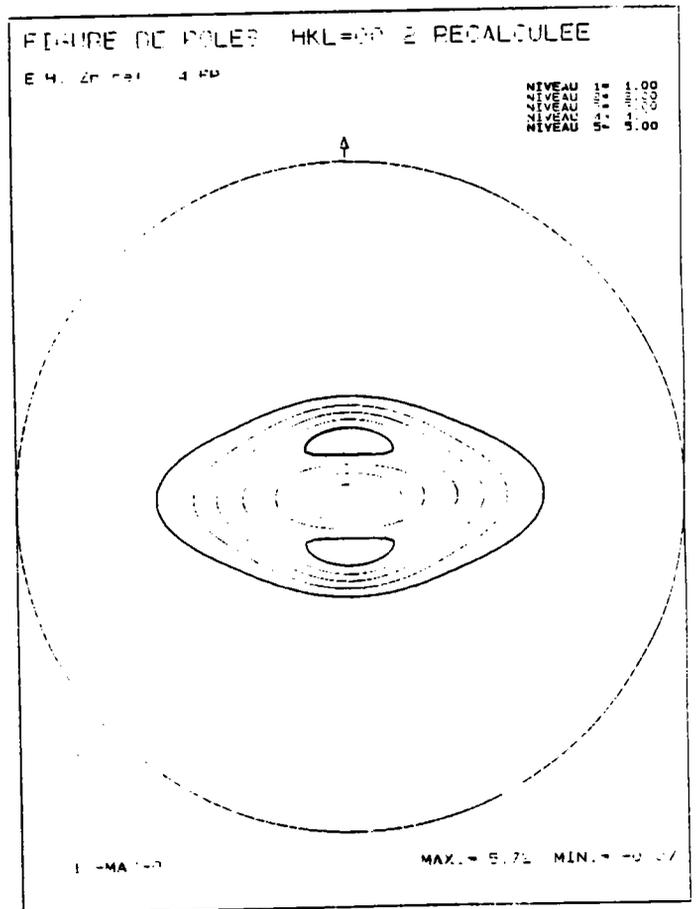
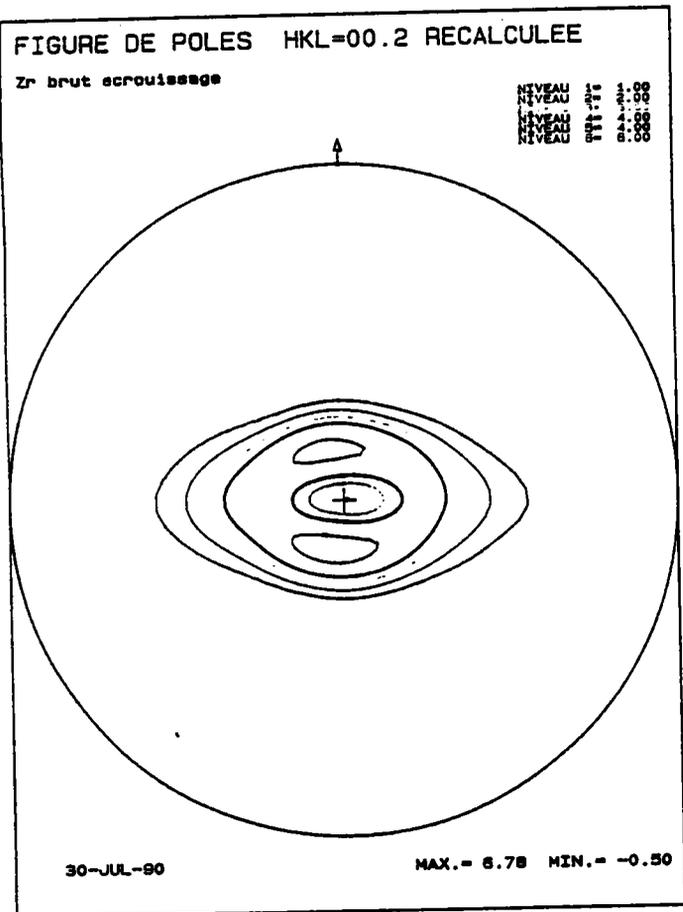


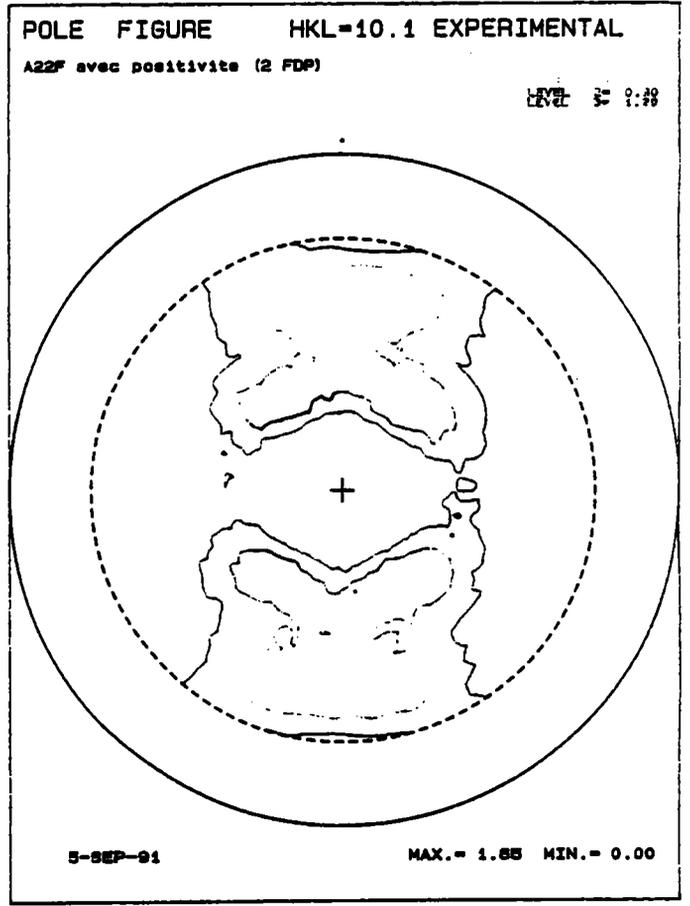
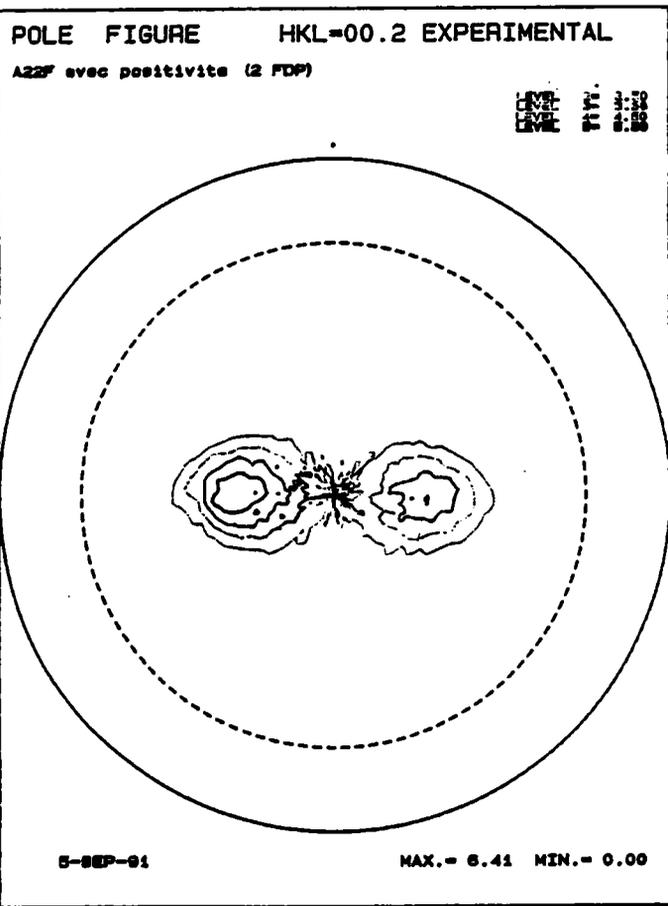
Figure I-21: Figure de pôle (00.2) du Zrbe

Figure I-22: Figure de pôle (00.2) du Zrrec



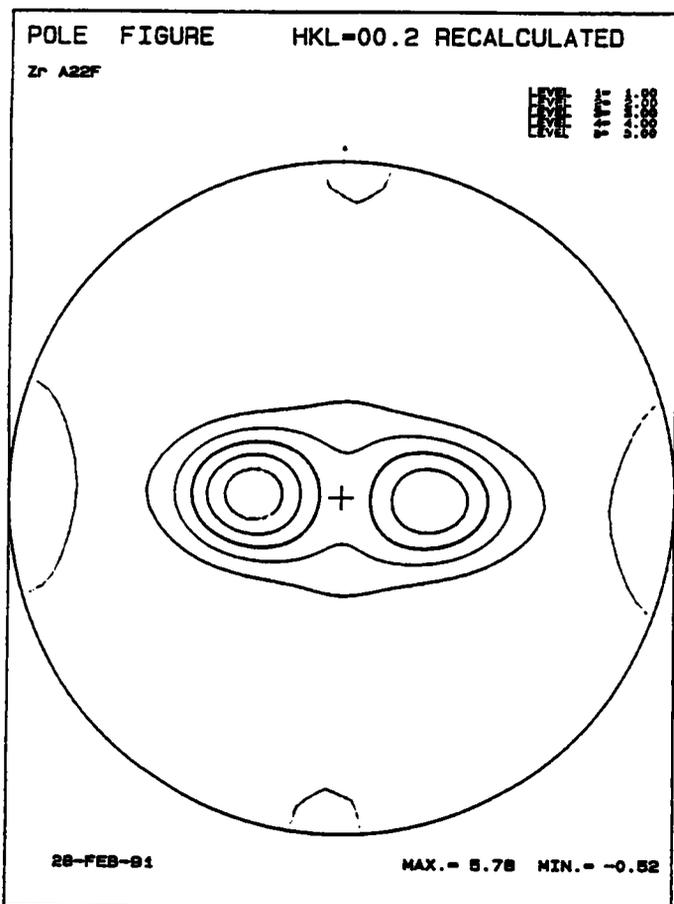
**Figure I-23:** Figure de pôle (00.2) expérimentale de A22F

**Figure I-24:** Figure de pôle (10.1) expérimentale de A22F

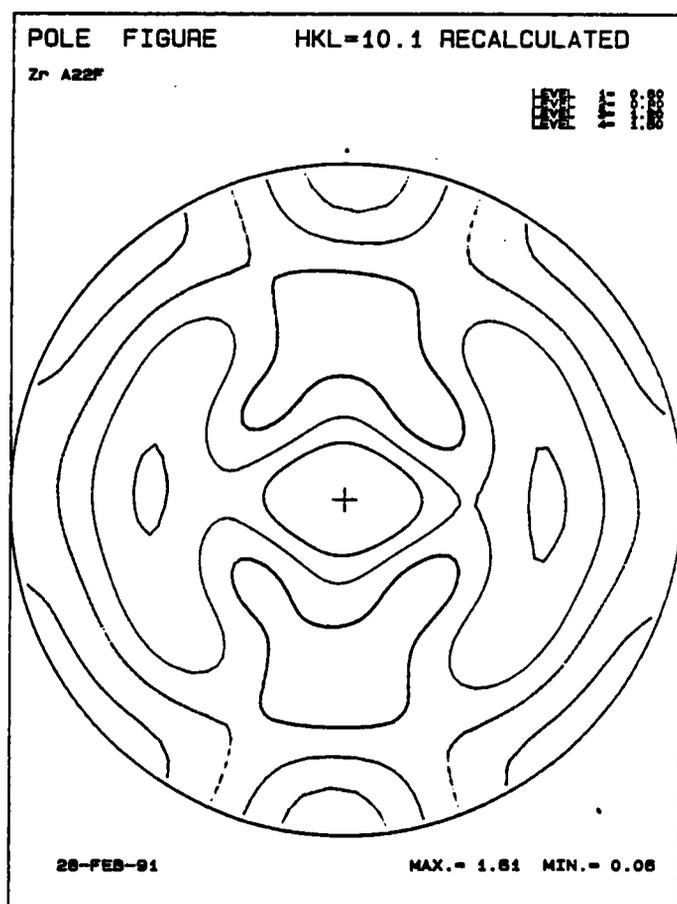


**Figure I-25:** Figure de pôle (00.2) recalculée sans positivité de A22F

**Figure I-26:** Figure de pôle (10.1) recalculée sans positivité de A22F



Dis de Swalcy 57045 METZ 87.30.88.40



Dis de Swalcy 57045 METZ 87.30.88.40

**Figure I-27:** Figure de pôle (00.2) recalculée avec positivité de A22F

**Figure I-28:** Figure de pôle (10.1) recalculée avec positivité de A22F

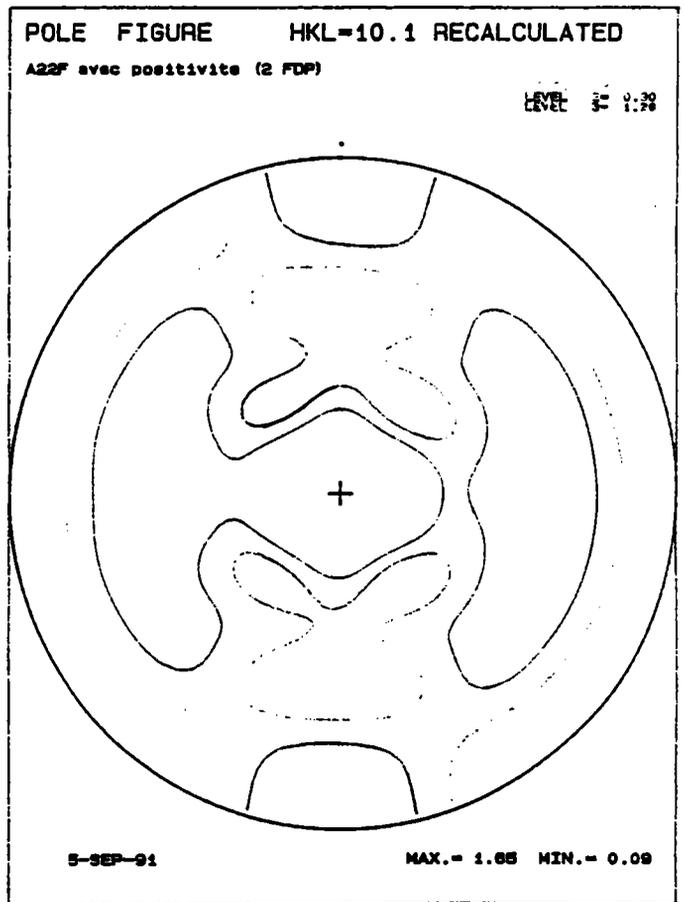
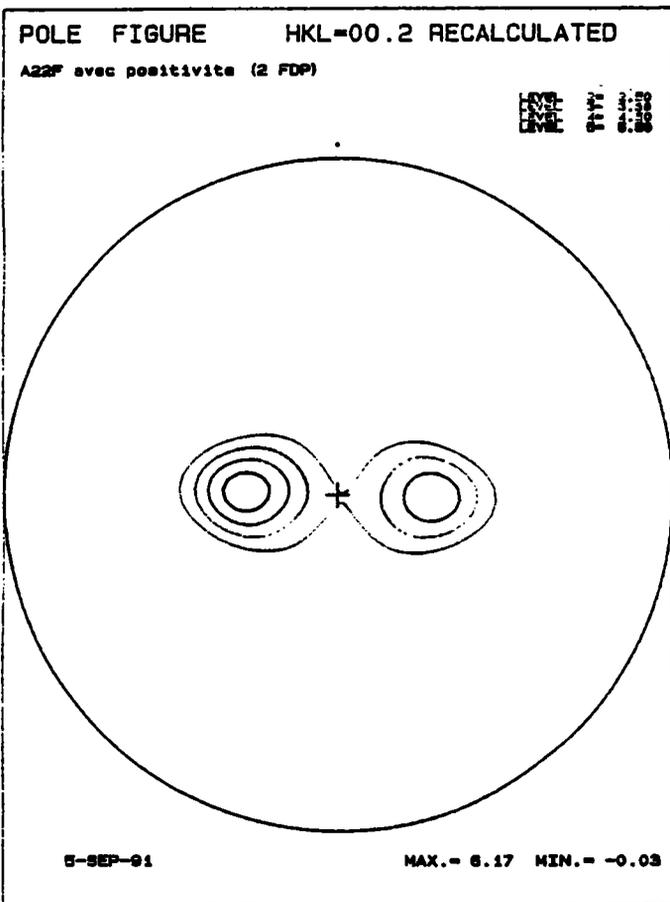


Figure I-29 : Influence des données cristallographiques

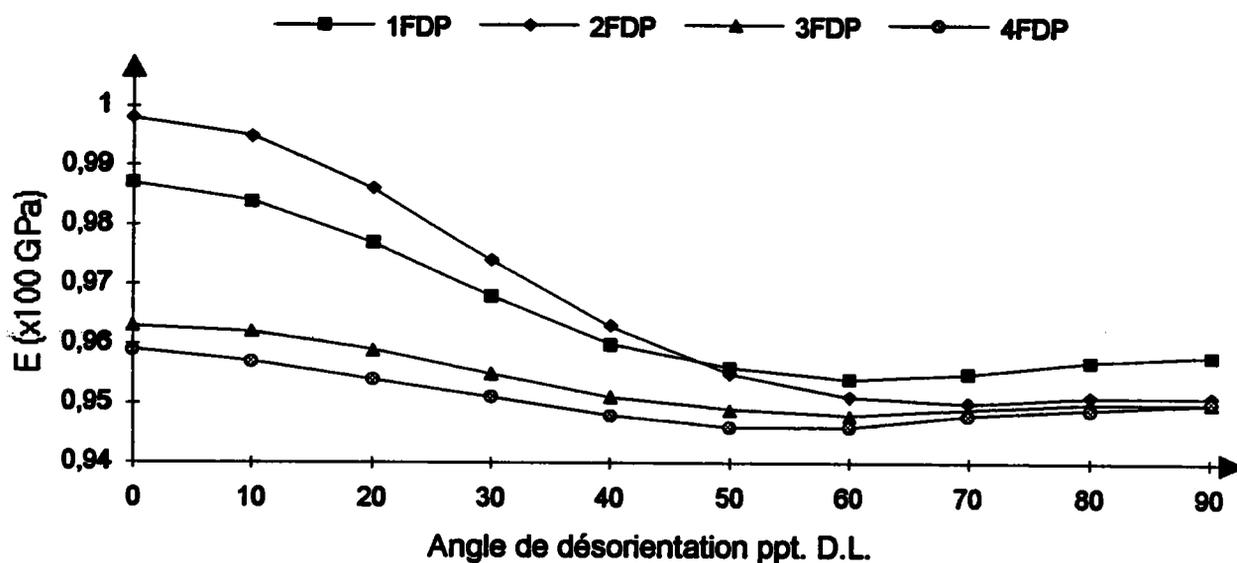


Tableau I-11: Influence des données cristallographiques

Angle	1FDP	2FDP	3FDP	4FDP
0 (sens long)	0,987	0,998	0,963	0,959
10	0,984	0,995	0,962	0,957
20	0,977	0,986	0,959	0,954
30	0,968	0,974	0,955	0,951
40	0,96	0,963	0,951	0,948
50	0,956	0,955	0,949	0,946
60	0,954	0,951	0,948	0,946
70	0,955	0,95	0,949	0,948
80	0,957	0,951	0,95	0,949
90 (sens travers)	0,958	0,951	0,95	0,95

Figure I-30 : Module de Young de A22F dans le plan de la tôle

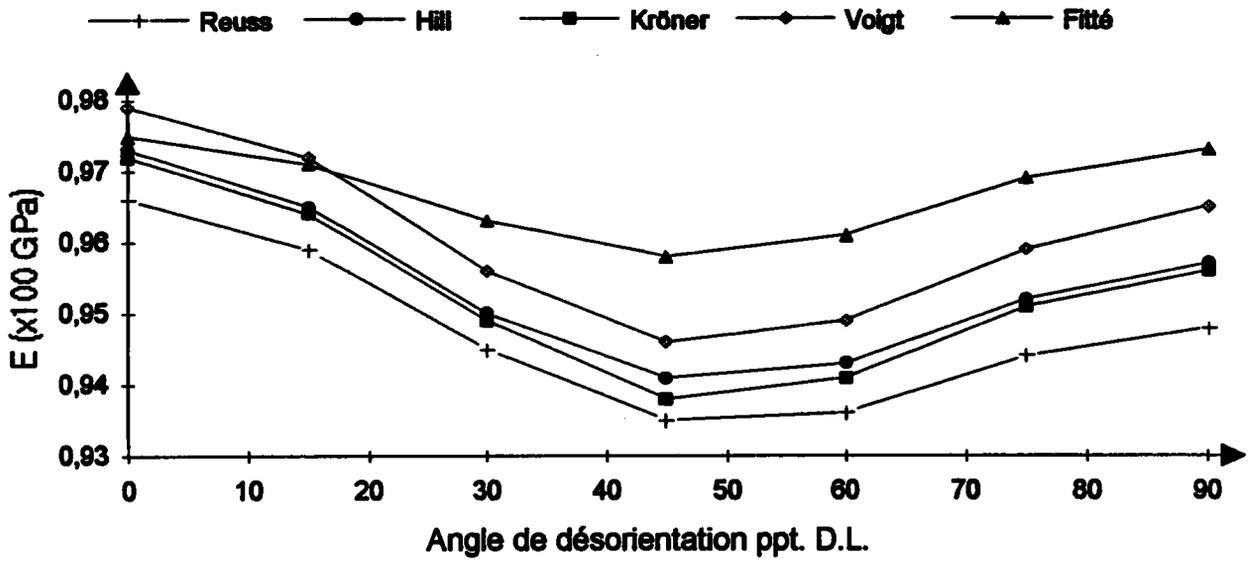


Figure I-31 : Module de Young de A24F dans le plan de la tôle

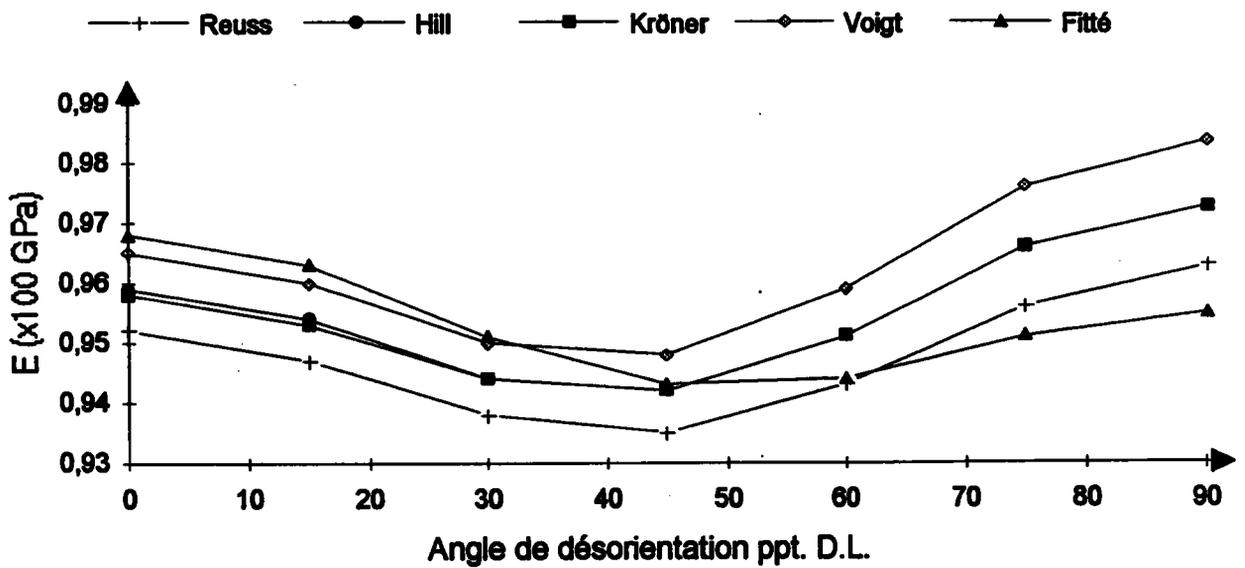


Figure I-32 : Module de Young de A25F dans le plan de la tôle

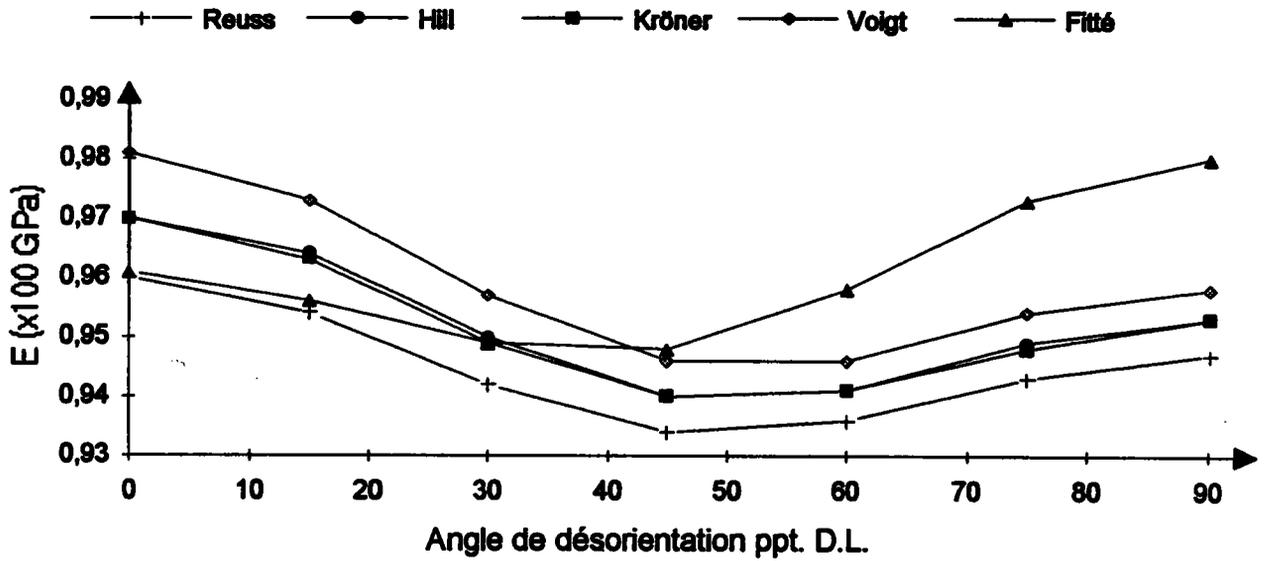


Figure I-33 : Module de Young de A12F dans le plan de la tôle

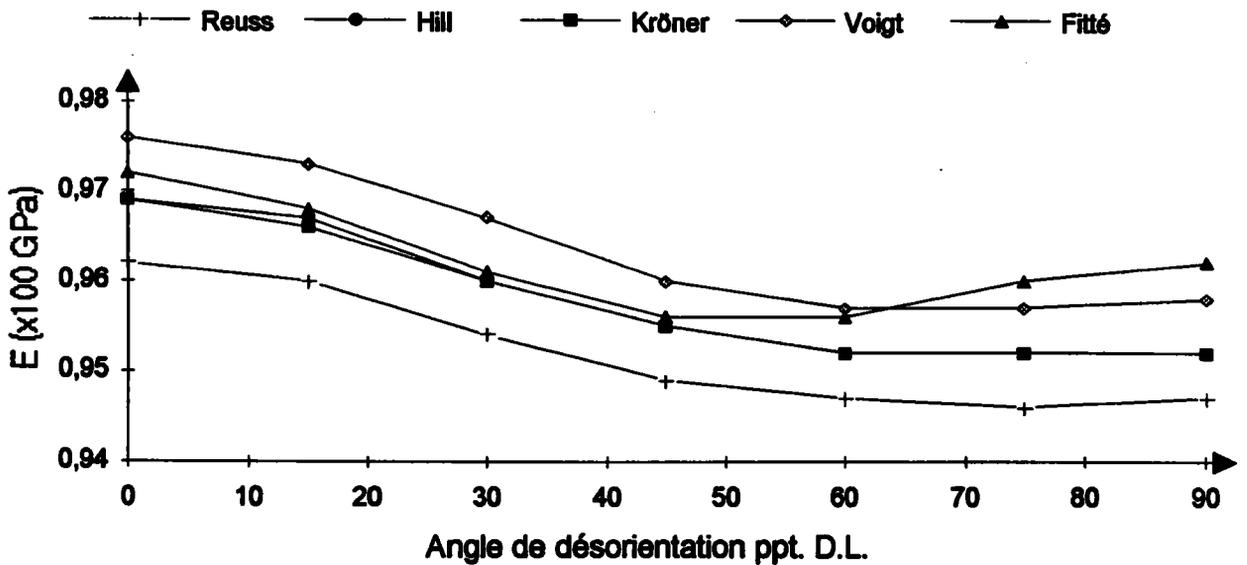


Figure I-34 : Module de Young de A14F dans le plan de la tôle

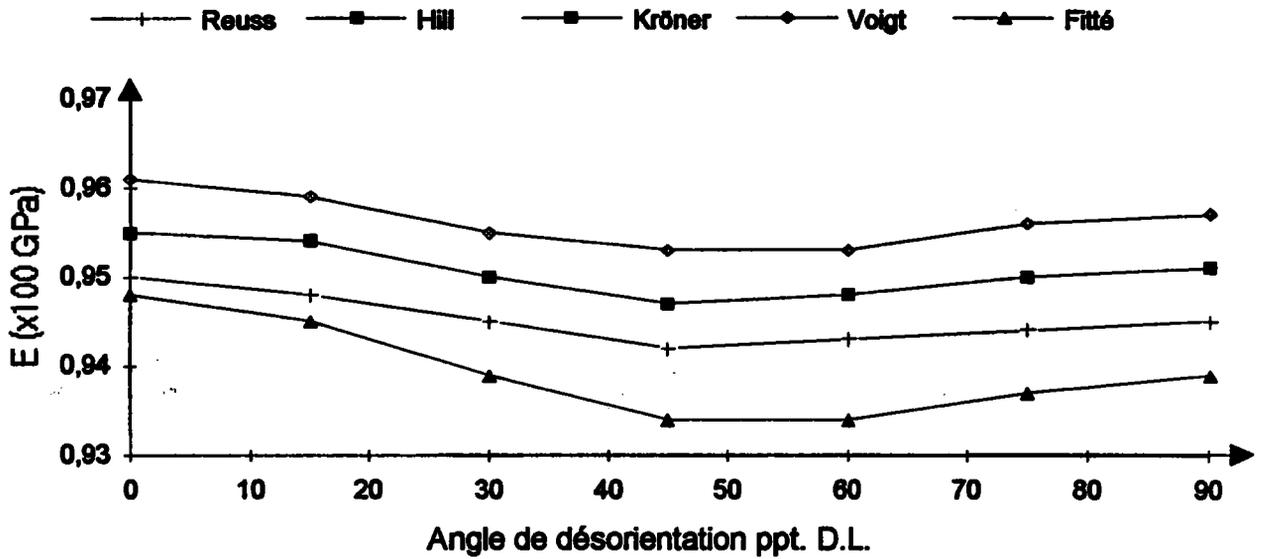


Figure I-35 : Module de Young de A15F dans le plan de la tôle

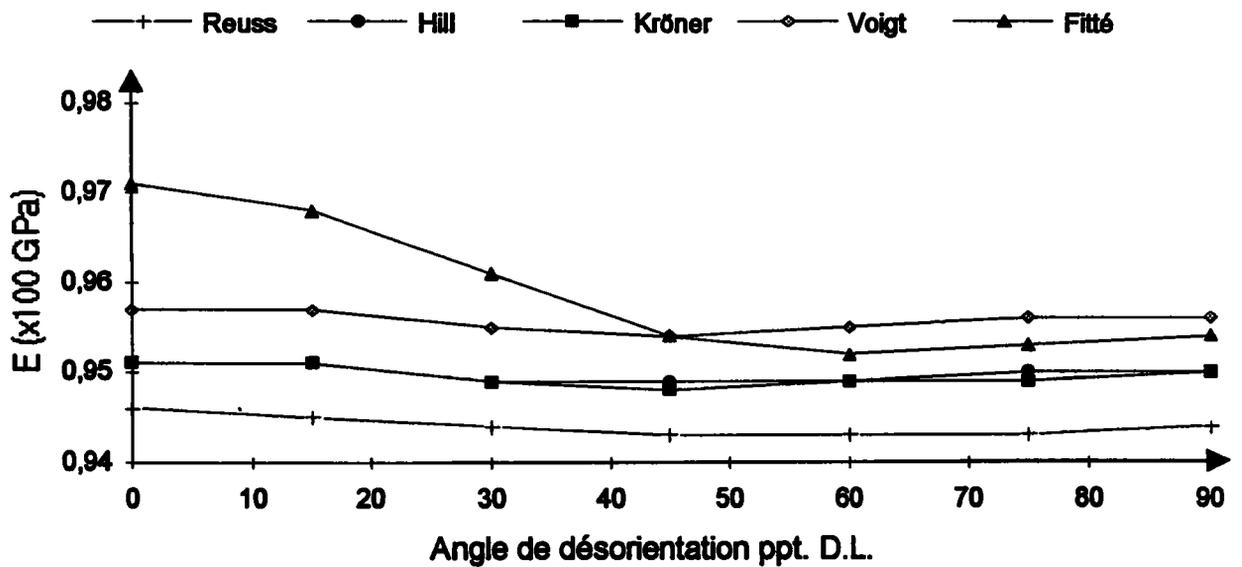


Figure I-36 : C11 en fonction de la température

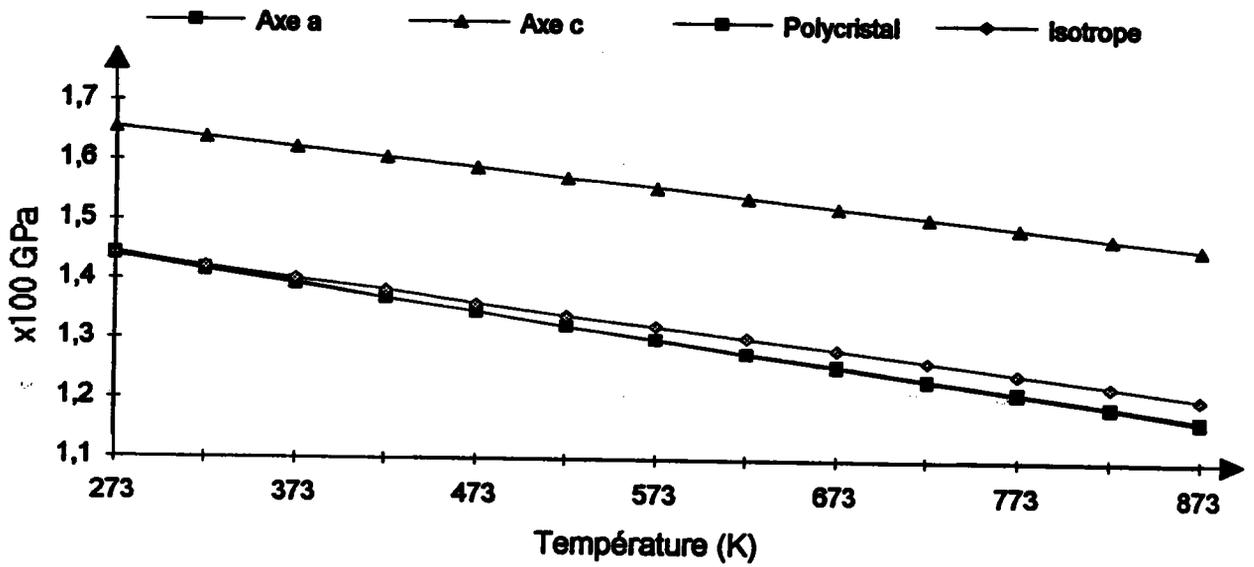


Figure I-37 : C22 en fonction de la température

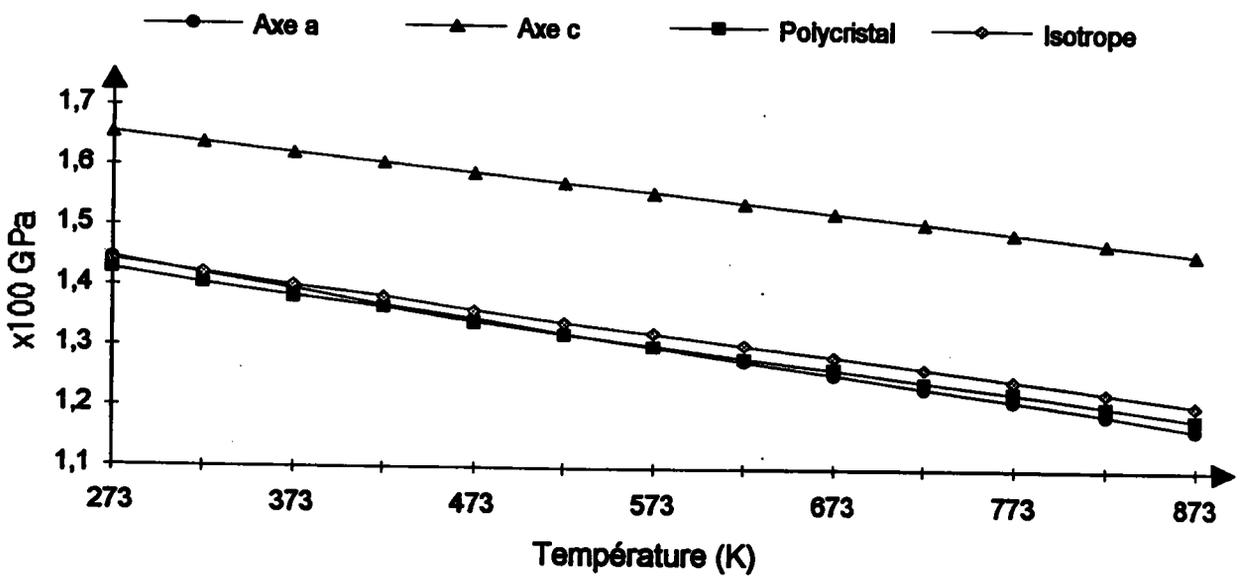


Figure I-38 : C33 en fonction de la température

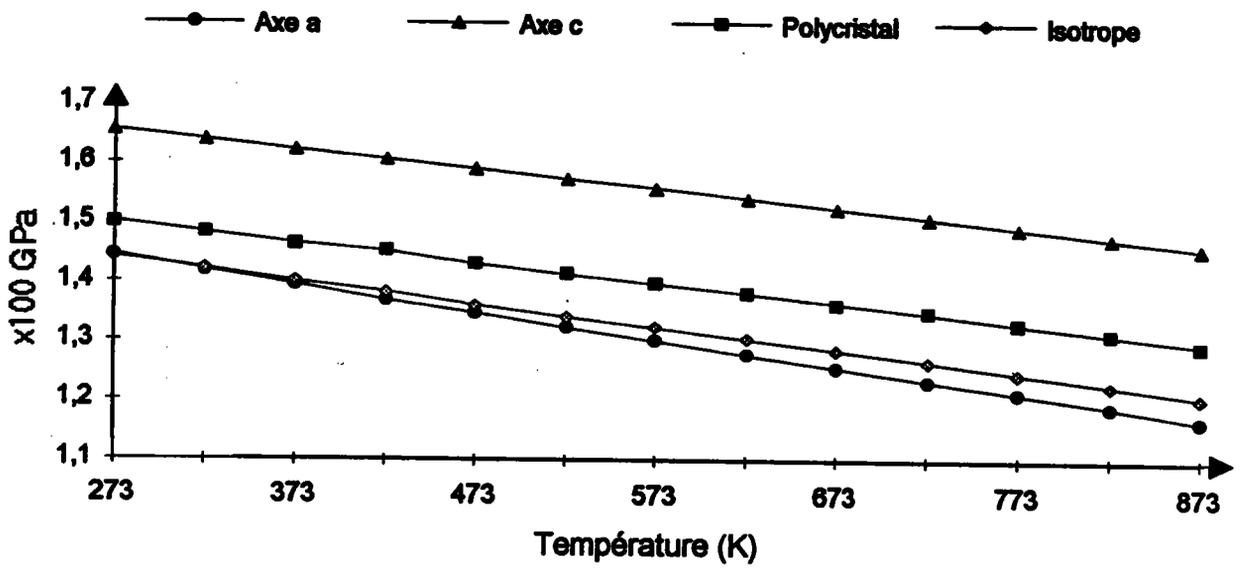


Figure I-39 : C12 en fonction de la température

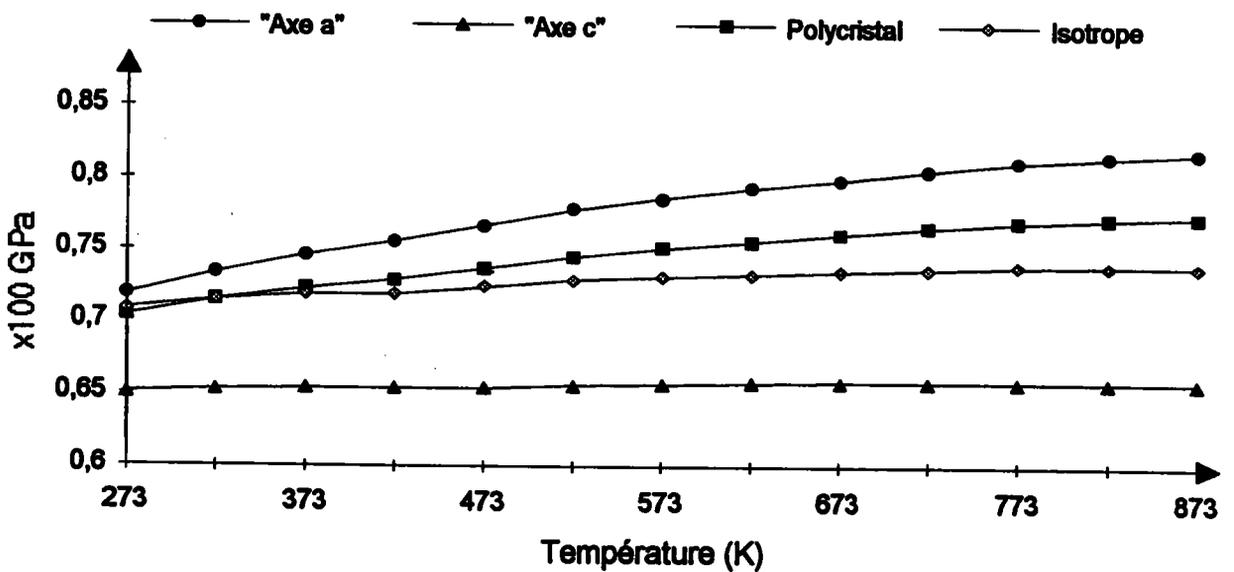


Figure I-40 : C13 en fonction de la température

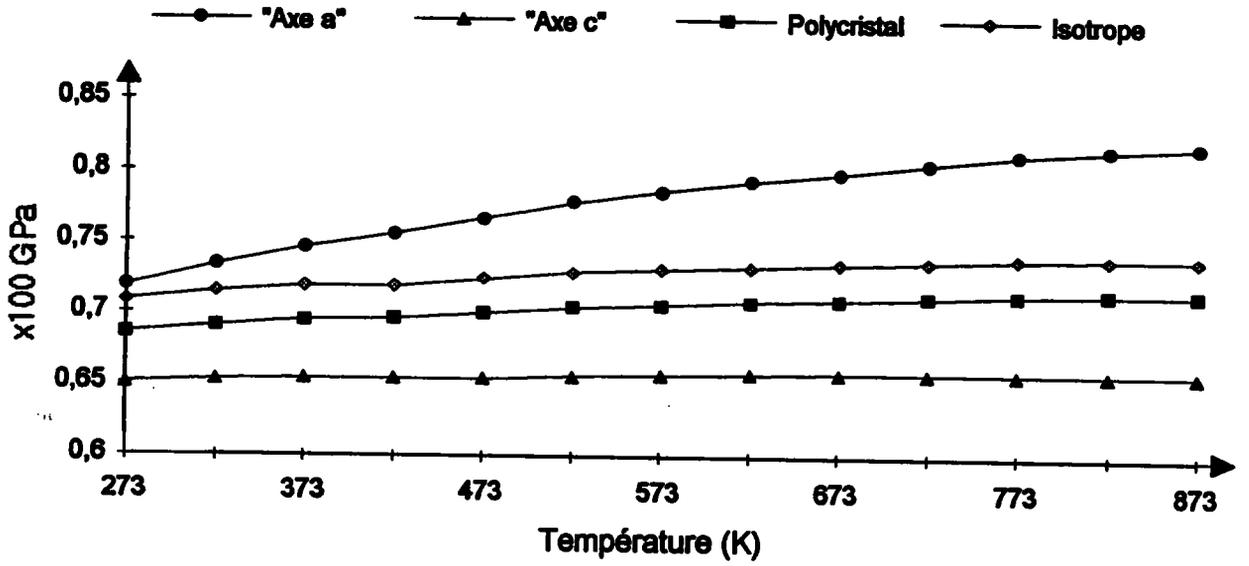


Figure I-41 : C23 en fonction de la température

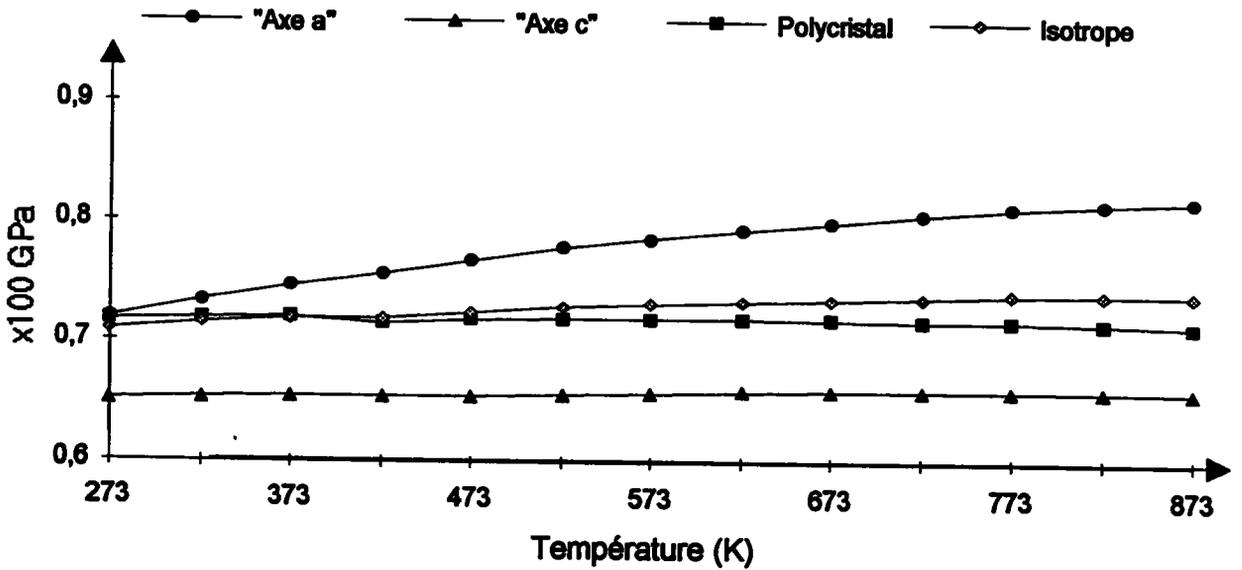


Figure I-42 : C44 en fonction de la température

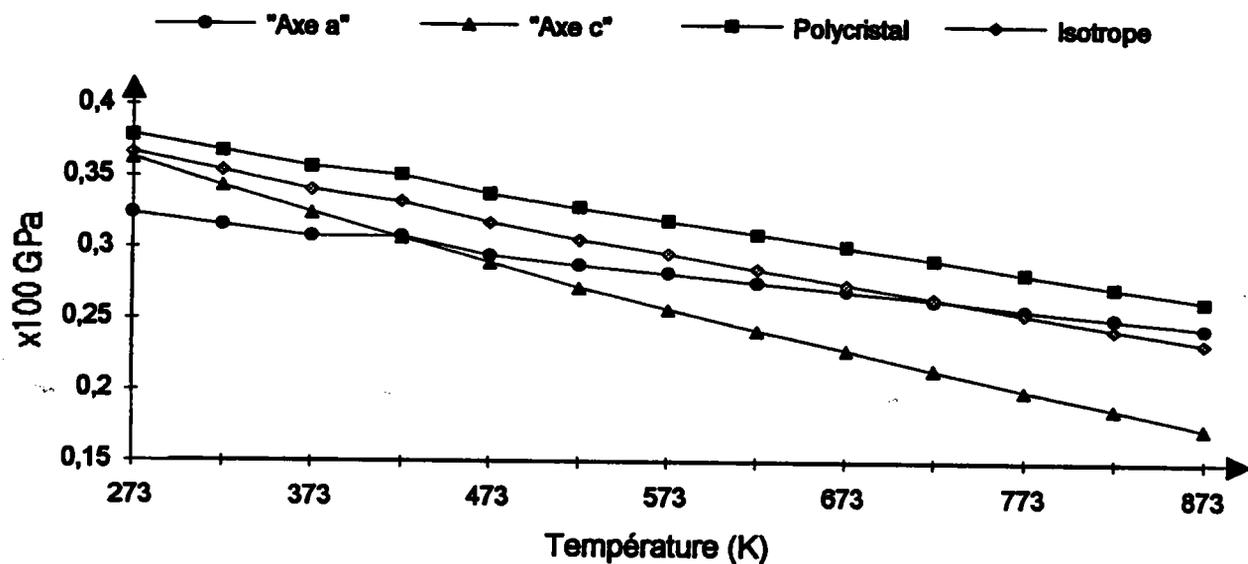


Figure I-43 : C55 en fonction de la température

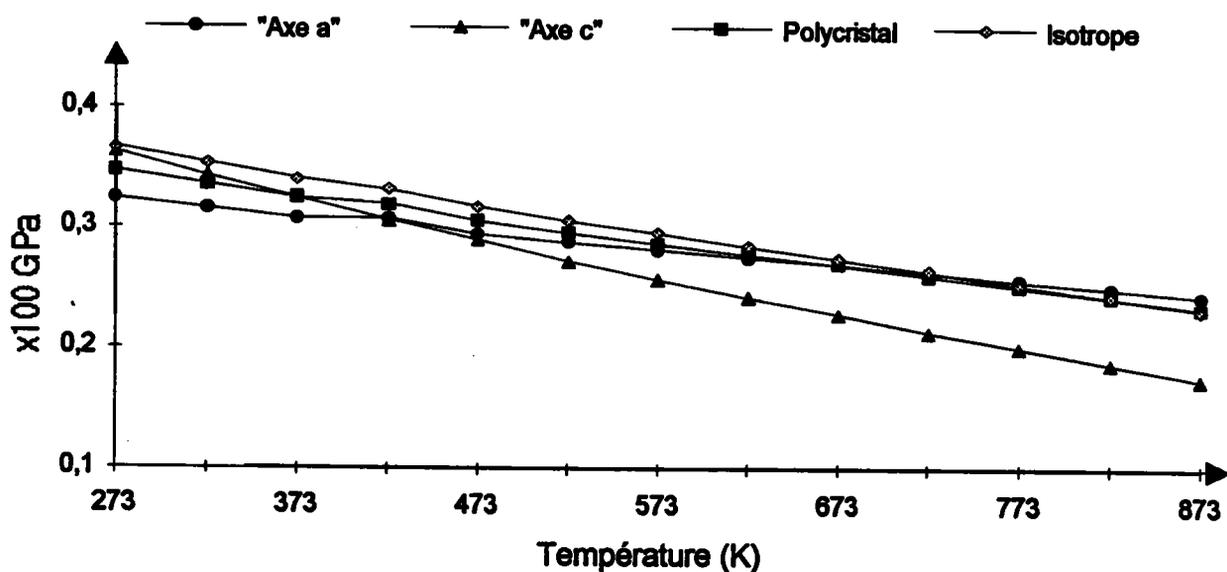


Figure I-44 : C66 en fonction de la température

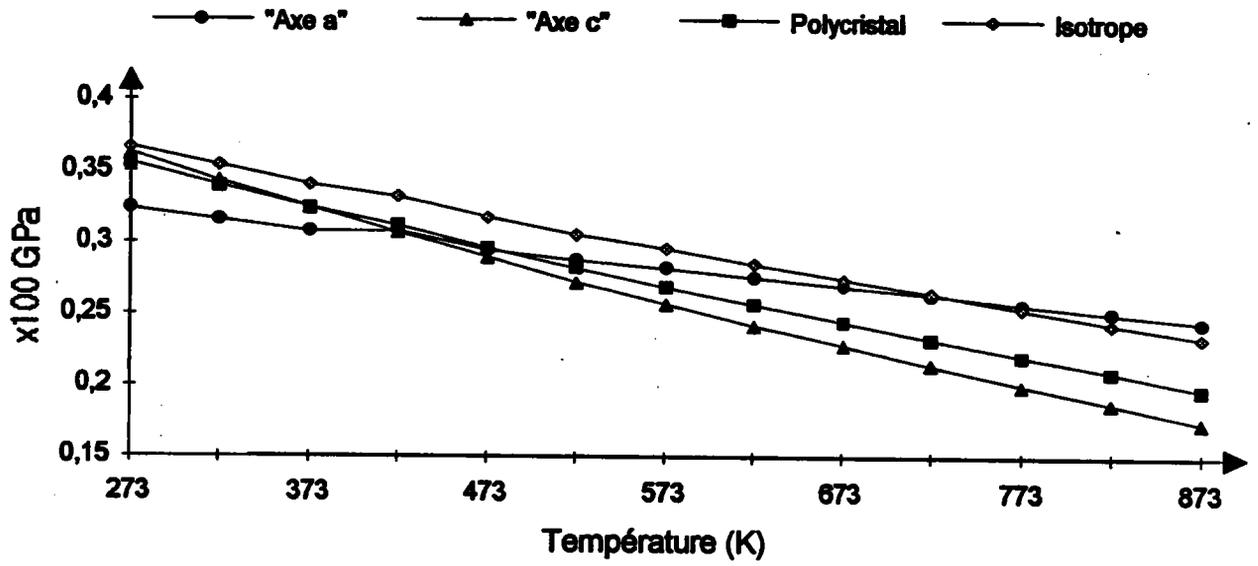


Figure I-45 : Module de Young axial en fonction de la température

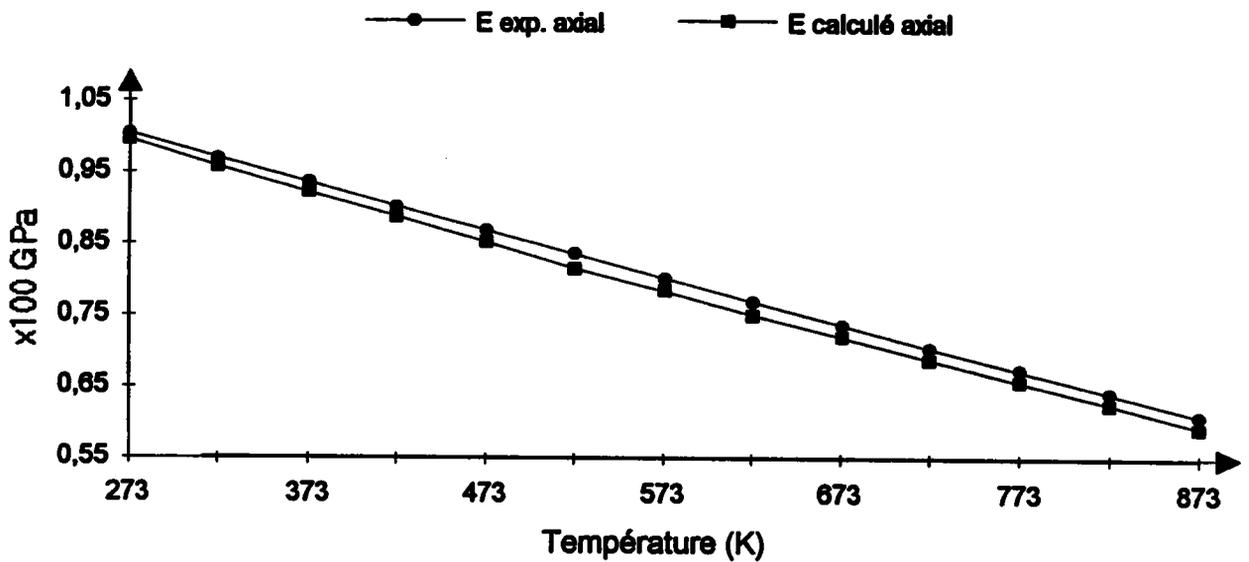


Figure I-46 : Module de Young circonférentiel en fonction de la température

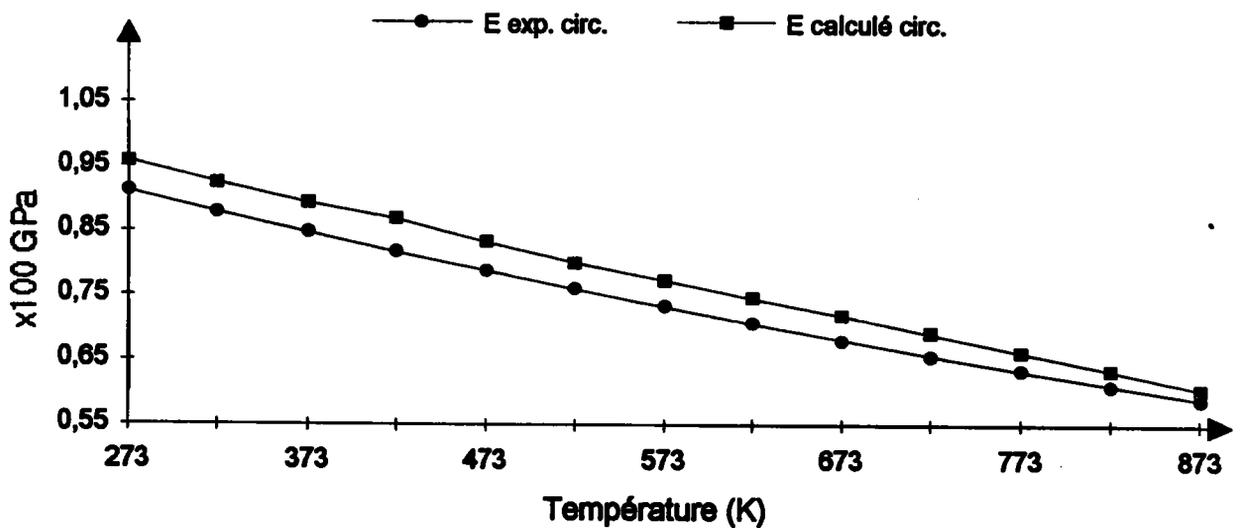


Figure I-47 : Module de Cisaillement axial en fonction de la température

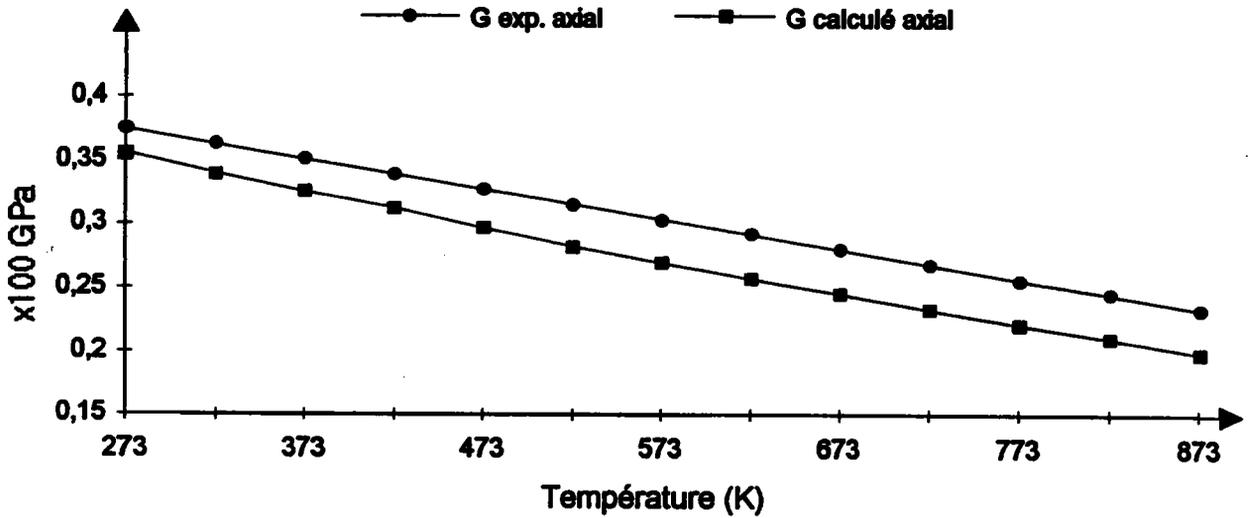


Figure I-48 : Module de Cisaillement circonférentiel en fonction de la température

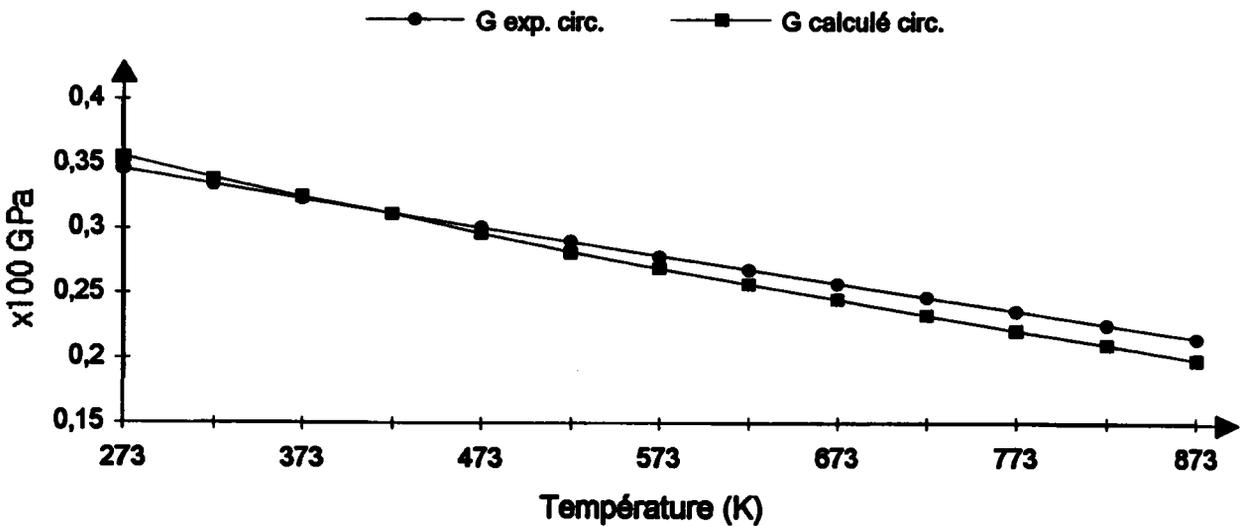
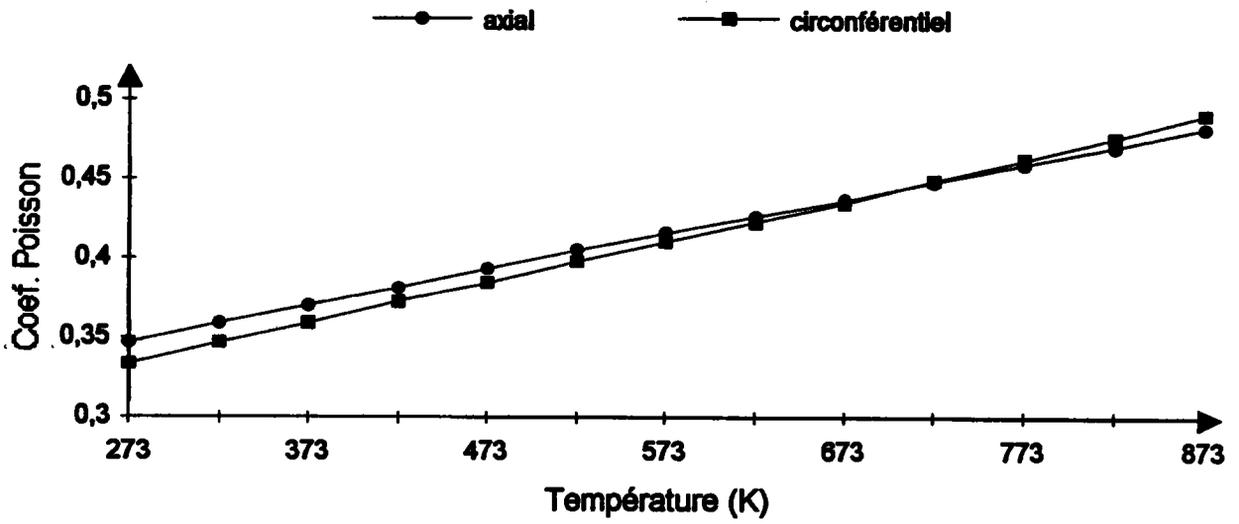


Figure I-49 : Evolution théorique du coefficient de poisson avec la température pour un tube de zircaloy-4



## **BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE I :**

**ADAMS B.L. (1988) :**

"Description of polycrystalline structure using stationary two-point orientation density functions" *Metall. Soc.*, pp. 135-146 (1988)

**BUNGE H.J. (1982):**

"Texture Analysis in Materials Science"  
London: Butterworths

**BUNNELL L.R. (1977) :**

"High temperature properties of zircaloy-oxygen alloys"  
EPRI NP-524 (research project 251-1), Final report March 1977

**DASHKOVSKY A.I., SAVITSKY Y.M. [1962]:**

"Temperature function of internal friction, Young's modulus and shear modulus of Zr, Nb and Zr-Nb alloys", *Metallurgy and Metallography of Pure Metals*, Gordon and Breach Science Publishers, New York (1962) 218; translated from *Metallurgiya i Metallovedenie chistykh Metallov*, Atomizdat, Moscow (1960)

**DIZ J., HUMBERT M. (1991) :**

"Practical aspects for calculating the elastic properties of polycrystals according to different models", (to be published)

**DOUGLAS D.L. (1971):**

"The Metallurgy of Zirconium", *Atomic Energy Review* (supplement 1971), International Atomic Energy Agency (Vienna 1971)

**ESHELBY J.D. (1957) :**

"The determination of the elastic field of an ellipsoidal inclusion, and related problems"  
*Proc. R. Soc. A*241, pp. 376-396 (1957)

**HJELEN J., NES C. (1986) :**

*Proc. of the 7th RISO Int. Symp. on metallurgy and material science*, p.367

**HUMBERT M., DIZ J. (1990) :**

"Some practical features for calculating the polycrystalline elastic properties from texture", *Journal of Applied Crystallography* (in press)

**KNEER G. (1965) :**

"Über die Berechnung der Elastizitätsmoduln vielkristalliner Aggregate mit Textur"  
*Phys. Stat. Sol.*, Vol.9, pp. 825-838 (1965)

**KRÖNER E. (1953) :**

"Das Fundamentalintegral der anisotropen elastischen Differentialgleichungen"  
*Zeitschrift für Physik*, Vol. 136, pp.402-410 (1953)

**MIDDDYA T.R.,MALA PAUL, BASU A.N. (1985) :**

**"Static and computer-simulated dynamic model approaches to effective elastic properties of non-cubic polycrystals" J.Appl. Phys., Vol.58 (11), pp. 4095-4101 (1985)**

**MOLINARI A., CANOVA G.R., AHZI S. (1987) :**

**"A self consistent approach of the large deformation polycrystal viscoplasticity" Acta Met., Vol.35, n°12, pp.2983-2994 (1987)**

**MORRIS P.R. (1971) :**

**"Elastic constants of polycrystals"**

**Int. J. Engng. Sci., Vol.8, pp. 49-61 (1970)**

**NAKATSUKA M. (1981) :**

**"Elastic anisotropy of zirconium alloy fuel cladding"**

**Nuclear Engng. and Design, Vol.65, pp.103-112 (1981)**

**NORTHWOOD D.O., LONDON I.M., BAHEN L.E. (1975) :**

**J.Nucl. Mater., Vol.55, pp.299 (1975)**

**REUSS A. (1929) :**

**"Berechnung der Fließgrenze von Mischkristallen auf Grund der**

**Plastizitätsbedingungen für Einkristalle" Z. Ang. Math. Mech., Vol.9, pp.49**

**SIMMONS G., WANG H. (1971) :**

**"Single crystal constants and calculated aggregate properties"**

**Handbook second edition, The M.I.T. Press (1971)**

**TIMOSHENKO S., YOUNG D.H., WEAVER W. (1928) :**

**"Vibration problems in engineering"**

**Fourth edition, edited by John Wiley and Sons**

**VOIGT W. (1887) :**

**"Theoretische Studien über die Elastizitätsverhältnisse der Krystalle"**

**Abh. Kgl. Ges. Wiss. Göttingen, Math. Kl., Vol.34, in part I, pp.47ff**

**WELCH P.I. (1980) :**

**"Techniques for the determination of complete pole figures using composite specimens"**

**Texture of Crystalline Solids, Vol. 4, pp.99-110 (1980)**

**ZELLER R., P.H. DEDERICHS (1973) :**

**"Elastic Constants of polycrystals"**

**Phys. Stat. Sol. (b), Vol. 55, pp. 831-842 (1973)**

# **Chapitre II: DILATATION THERMIQUE**

**NOTATIONS UTILISEES** (dans leur ordre d'apparition dans le texte)

$\sigma_{ij}$  : tenseur des contraintes locales  
 $\varepsilon_{ij}$  : tenseur des déformations locales  
 $C_{ijkl}$  : tenseur des constantes élastiques locales  
 $\alpha_{ij}$  : tenseur des coefficients de dilatation du monocristal  
 $\Delta T$  : élévation de température  
 $\langle \rangle$  : moyennage  
 $g$  : désigne une orientation de l'espace d'Euler  
 $A_{ij}$  : tenseur des coefficients de dilatation du polycristal  
 $\sigma^I$  : tenseur des contraintes relatives à l'inclusion  
 $\varepsilon^a$  : tenseur des déformations compatibles  
 $\sigma^b$  : tenseur des "contraintes internes"  
 $E_{ij}$  : tenseur des déformations macroscopiques  
 $C_{ijkl}$  : tenseur des constantes élastiques effectives du polycristal  
 $f_i$  : force volumique "fictive"  
 $G_{ijkl}$  : tenseur symétrisé des fonctions de Green dérivées deux fois  
 $V_g$  : volume occupé par un grain d'orientation  $g$   
 $\Gamma_{gg}$  : fonction définie à partir des fonctions de Green  
 $A_{lmn}$  : coefficients du développement en série d'un produit de quatre cosinus directeurs sur les FHSG  
 $A_{lmn}^*$  : conjuguée des  $A_{lmn}$   
 $F_i, F_{ij}, F_{ij}$  : facteurs de Kearns appliqués à l'élasticité  
 $\phi_1, \Phi, \phi_2$  : angles d'Euler  
 $P_{00.2}(\Phi, \alpha)$  : Intensité en un point de la FDP (00.2)  
 $I_{ijkl}$  : tenseur identité  
O.I. : orientation idéale  
F.D.O. : fonction de densité des orientations  
F.D.P. : figure de pôles  
D.L. : direction de laminage  
D.T. : direction transverse  
F.H.S.G. : fonctions harmoniques sphériques généralisées  
 $f(g)$  : fonction décrivant la FDO  
 $C_{lmn}$  : coefficient du développement en FHSG de la FDO  
 $T_{lmn}$  : FHSG  
 $\beta$  : angle de désorientation d'une direction du plan de la tôle par rapport à D.L.  
 $L_{max}$  : rang du développement de la FDO en FHSG  
 $L_0$  : longueur initiale d'une éprouvette  
 $\sigma^{fij}$  : tenseur des contraintes relaxées  
 $\varepsilon^{fij}$  : tenseur des déformations induites par la relaxation de contraintes

## **II - DILATATION THERMIQUE**

L'étude de cette propriété a été retenue en raison des similitudes formelles qu'elle présente avec les modifications dimensionnelles observées lors de la croissance sous irradiation. En effet, le comportement macroscopique de ces deux phénomènes peut se décrire à l'aide d'un tenseur d'ordre deux.

Nous avons adopté dans ce chapitre un plan similaire à celui de la partie précédente dans le but de souligner les analogies et les distinctions qui peuvent être faites entre l'élasticité et la dilatation thermique, aussi bien au niveau de la modélisation qu'à celui des conclusions auxquelles nous ont mené les résultats obtenus.

### **II - 1 - INTRODUCTION**

L'étude de la dilatation thermique que nous avons menée sur différents produits qui nous ont été confiés, n'a pas eu pour seul but de fournir des données techniques nécessaires au dimensionnement des structures métalliques utilisées dans les réacteurs nucléaires. Nous avons eu également pour objectif de distinguer les paramètres métallurgiques qui influencent le comportement macroscopique, paramètres dont il faut tenir compte pour établir des modèles prévisionnels.

Dans un premier temps, nous montrons brièvement l'intérêt de la connaissance des coefficients de dilatation thermique des alliages de zirconium dans l'industrie nucléaire. D'autre part, nous décrivons les objectifs et les moyens requis pour cette étude. Par ailleurs, nous insistons sur les hypothèses choisies pour la construction des modèles de dilatation thermique des matériaux polycristallins.

#### **II - 1 - 1 - Application industrielle**

L'un des principaux enjeux dans l'étude de la dilatation est de connaître la croissance thermique de l'assemblage combustible au moment de la montée (resp. de descente) en température au début (resp. à la fin) de chaque cycle de fonctionnement du réacteur. Ceci suppose que la modélisation développée pour les tôles peut être adaptée à la prédiction de la dilatation thermique de l'ensemble de l'assemblage. Deux applications peuvent être citées:

- la prise en compte de la dilatation thermique pour le dimensionnement de l'assemblage. Cet aspect peut paraître négligeable étant donnée la faible valeur moyenne du coefficient de dilatation thermique du zirconium dans le domaine de température qui nous intéresse: 20 à 320°C. En effet, cette valeur, qui n'excède pas les  $6.10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ , représente la moitié voire le tiers du coefficient de dilatation thermique de certains aciers et le cinquième du coefficient de certains alliages de zinc. Cependant, il faut garder à l'esprit que l'élévation de température dans un réacteur P.W.R. (de l'ordre de 300°C) engendre une croissance de l'ordre du centimètre sur un assemblage combustible d'une hauteur de trois mètres. Ce centimètre ne peut en aucun cas être négligé dans l'établissement des dimensions de l'assemblage.

- l'estimation des efforts axiaux engendrés au cours des étapes d'utilisation de l'assemblage combustible [H. Salaün et C. Callens, 1991]. Ces étapes, décrivant un cycle de fonctionnement, se succèdent schématiquement de la manière suivante:

- a - mise en eau de l'assemblage
- b - fermeture de la cuve
- c - mise en route des pompes
- d - passage à chaud
- e - irradiation
- f - retour à froid
- g - arrêt des pompes
- h - ouverture de la cuve

Les deux étapes qui nous intéressent sont bien entendu les étapes d et f pour lesquelles il est indispensable de tenir compte de la dilatation thermique pour évaluer avec plus de précision, les efforts exercés sur la structure. Cette connaissance des efforts est nécessaire pour estimer par exemple le grandissement dû au fluage des matériaux composant l'assemblage combustible.

### II - 1 - 2 - Moyens mis en oeuvre pour l'étude de la dilatation thermique

Comme pour l'élasticité, nous avons développé un certain nombre de modèles ayant pour intérêt de prendre en compte la texture cristallographique du matériau étudié. Nous avons également développé un modèle auto-cohérent, basé sur les travaux de Kröner [Kröner, 1980] et Kneer [Kneer, 1984], sensible à la forme moyenne des grains constituant le polycristal.

Nous avons ensuite confronté les résultats prédictifs de coefficient de dilatation thermique, issus de différentes modélisations, avec nos mesures expérimentales sur des alliages de zinc et de zirconium. Comme pour la partie précédente, le zinc, de par sa forte anisotropie en dilatation thermique, nous a servi de référence pour juger la validité des modèles.

Les alliages de zirconium testés sont les mêmes que pour l'élasticité à savoir le zircaloy-4, le Zr<sub>2</sub>Nb et le Zr<sub>1</sub>Nb<sub>1</sub>Sn<sub>0.5</sub>Fe, dans différents états métallurgiques (voir annexe II).

### II - 1 - 3 - Problèmes de modélisation en dilatation thermique

On peut penser a priori, que la modélisation de l'élasticité et celle de la dilatation thermique sont tout à fait semblables. Ceci est vrai dans le cadre des modèles dits "de la moyenne". Cependant, l'exposé de la démarche auto-cohérente souligne d'importantes différences dans l'élaboration du modèle liées à la nature même de la "solicitation" imposée au matériau et à celle de la loi de comportement choisie.

En effet, au cours de la montée en température, supposée homogène dans tout le matériau, naît un champ de contraintes internes dû à la non accommodation de la déformation intrinsèque des grains dans le polycristal. La prise en considération de l'incompatibilité du champ de déformation des monocristaux avec celui du polycristal peut se faire de différentes manières équivalentes. La première, celle que nous avons utilisée, est caractérisée par l'évaluation directe des contraintes internes créées. La seconde consiste en la détermination de l'incompatibilité du champ de déformation adopté a priori, permettant alors d'estimer les contraintes internes nécessaires pour rendre le champ de déformation choisi compatible [Karema, 1990].

Rappelons que dans le cadre de l'élasticité, ces considérations n'interviennent pas dans la modélisation car nous supposons que le champ de déformation dans le milieu réel, calculé à partir de la loi de Hooke, connaissant bien entendu l'état des contraintes, est compatible. Ce qui signifie précisément que si un grain se déforme élastiquement de  $\epsilon$ , la contrainte qui est appliquée à ce monocristal est de  $\sigma = C\epsilon$ .

En dilatation thermique, nous sommes confrontés à des déformations libres ne nécessitant pas l'application de contraintes. C'est la nature même de ces déformations qui engendre les complications de modélisation précitées. Nous reviendrons à cette différence de conception des modèles élastique et thermique dans la partie II-2 -2.

## II - 2 - MODELISATION

Le problème posé est le même que pour les constantes élastiques: il s'agit, connaissant les coefficients de dilatation thermique du monocristal, de déterminer les coefficients de dilatation thermique du polycristal.

Les différents modèles sont adaptés à une symétrie cristalline hexagonale et à une symétrie d'échantillon orthorhombique. Il est clair que cette adaptation n'apparaît pas directement dans l'exposé général des modèles mais qu'elle est effective dans les calculs numériques présentés.

La loi de comportement adoptée pour le monocristal isolé a la forme suivante:

$$\epsilon_{ij} = \alpha_{ij} \Delta T \quad \text{(II-1)}$$

On adopte une loi identique pour le polycristal:

$$E_{ij} = A_{ij} \Delta T \quad \text{(II-2)}$$

On conçoit que les difficultés citées au paragraphe I-1-3 sont dues au fait que l'on raisonne sur les déformations et non pas sur les déplacements.

Rappelons que la figure de pôles (00.2) suffit pour caractériser complètement les propriétés de dilatation thermique des matériaux hexagonaux et que l'on suppose que la température est uniforme à l'intérieur d'un grain.

### II - 2 - 1 - Modèles dits "de la moyenne"

Deux modèles sont présentés, nous les dénommerons modèle de la moyenne directe et modèle de la moyenne inversée. Ces modèles ne constituent pas, sauf cas particuliers, des bornes du coefficient de dilatation thermique réel. Ils présentent cependant l'intérêt d'être extrêmement simples, tout en assurant des prévisions satisfaisantes.

#### II - 2 - 1 - 1 - Modèle de la moyenne directe

Ce type de modélisation est à rapprocher du modèle de Reuss.

On considère en fait que chaque grain se déforme au sein du polycristal conformément à la loi {II-1} donnée pour un monocristal isolé. De plus on fait l'hypothèse que la moyenne des déformations locales sur l'espace des orientations cristallographiques est égale à la déformation macroscopique (du polycristal).

$$\langle \varepsilon_{ij}^0 \rangle = \langle \alpha_{ij}^0 \Delta T \rangle = \langle \alpha_{ij}^0 \rangle \Delta T = A_{ij} \Delta T \quad \text{{II-3}}$$

On définit donc les coefficients de dilatation thermique du polycristal comme étant la moyenne de ceux du monocristal pondérée par la F.D.O.

Il est clair que le principal reproche que l'on peut faire à ce type de modélisation est qu'il ne tient pas compte des éventuelles contraintes thermiques créées au cours de la déformation.

#### II - 2 - 1 - 2 - Modèle de la moyenne inversée

Par analogie avec le modèle de Reuss, on calcule les coefficients de dilatation thermique du polycristal en supposant que leur inverse est égal à la moyenne de l'inverse des coefficients du monocristal pondérée par la FDO.

$$A_{ij} = \langle (\alpha^0)^{-1} \rangle_{ij} \quad \text{{II-4}}$$

Ce modèle semble fournir une borne inférieure au coefficient de dilatation thermique réel dans le cadre de notre étude expérimentale.

### II - 2 - 2 - Modèle auto-cohérent

Afin de comprendre le raisonnement tenu dans le cadre de la dilatation thermique, il nous semble nécessaire de revenir au problème élastique en présentant l'image de l'inclusion.

#### II - 2 - 2 - 2 - Image de l'inclusion appliquée à l'élasticité

Dans le cas de l'élasticité, nous avons supposé qu'il n'y avait pas création, au cours de la sollicitation, de contraintes internes dans le polycristal, liées à une incompatibilité de déformation. Cette hypothèse est adoptée dans l'image de l'inclusion donnée par Eshelby [Eshelby, 1957] et décrite ci-dessous:

A) On considère d'une part, une matrice homogène (le M.H.E.) dans laquelle on remplace un trou de matière par une inclusion, n'ayant pas les mêmes dimensions que ce vide mais possédant les mêmes constantes élastiques que la matrice. On applique sur cet élément de matière des contraintes de surface adéquates  $\sigma_{ij} = C_{ijkl} \varepsilon_{kl}$  afin d'introduire l'élément de matière dans le trou puis on relâche les contraintes précitées dès que l'inclusion se trouve dans le M.H.E. (notons que ces contraintes de surface peuvent être reliées aux forces fictives utilisées dans la partie I - 2 - 2). La déformation résultante dans l'inclusion est alors de  $\varepsilon^a$ .

On superpose à cette déformation une déformation macroscopique  $E$ . L'état de contraintes dans l'inclusion est alors le suivant:

$$\sigma_{ij}^I = C_{ijkl} (\varepsilon_{kl}^a - \varepsilon_{kl} + E_{kl}) \quad \{11-5\}$$

B) On remplace à présent cette inclusion par une inclusion ayant des constantes élastiques différentes de celles de la matrice et l'on suppose que la contrainte appliquée sur le monocristal est la même que dans le cas précédent et que la déformation vaut  $(\varepsilon^a + E)$ .

$$\sigma_{ij}^I = c_{ijkl} (\varepsilon_{kl}^a + E_{kl}) \quad \{11-6\}$$

C) On accède à la relation d'interaction {1-40}, on égalisant {11-5} et {11-6}.

C'est au niveau de l'étape B), que l'on adopte de manière tacite l'hypothèse selon laquelle il n'y a pas incompatibilité du champ de déformation calculé à partir de la loi de Hooke. Si on voulait traiter le problème de manière plus générale, il faudrait écrire:

$$\sigma_{ij}^I(\varrho) = c_{ijkl}(\varrho) (\varepsilon_{kl}^a(\varrho) + E_{kl}) + \sigma_{ij}^b(\varrho) \quad \{11-7\}$$

Relation dans laquelle  $\sigma_{ij}^b(\varrho)$  désignent les contraintes internes créées dans le monocristal, liées à une incompatibilité de déformation.

### II - 2 - 2 - 2 - Image de l'inclusion appliquée à la dilatation thermique

Il est clair que la prise en compte de ces contraintes internes, qui complique considérablement le problème, est inutile dans le cadre d'une déformation totalement élastique, en l'absence de contraintes résiduelles dans le matériau, conformément aux remarques faites dans l'introduction. Ceci n'est pas le cas pour la dilatation thermique, déformation quasi-plastique, où l'on ne peut pas négliger la création de contraintes internes au cours de la déformation. Celles-ci sont engendrées par la différence de comportement entre le monocristal isolé et le monocristal baigné dans le matériau.

Introduisons le problème à travers l'image de l'inclusion à propriétés élastiques et thermiques anisotropes baignée dans une matrice à propriétés anisotropes [Eshelby, 1961], [Kneer, 1964], (figure II-1). La démarche est tout à fait similaire à celle entreprise dans le cas de l'élasticité, si ce n'est que l'on va s'efforcer de prendre en compte les contraintes internes créées dans le milieu réel. Décomposons le raisonnement en trois étapes.

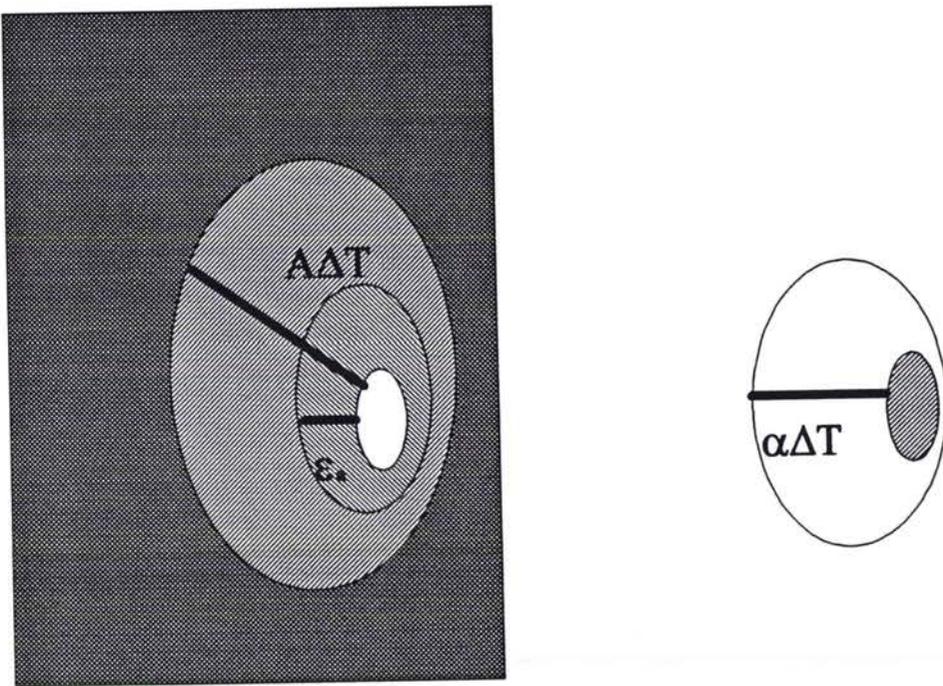
A) On considère une matrice homogène ayant été soumise à une élévation de température. On remplace une partie de ce matériau par une inclusion ayant les mêmes propriétés que la matrice, mais dont les dimensions sont différentes de celles de la partie retirée. Il est alors nécessaire d'appliquer une contrainte de surface adéquate sur l'inclusion afin de l'introduire dans la matrice:  $\sigma = C\varepsilon$ . Une fois l'inclusion introduite, on relâche les contraintes précitées: un nouvel équilibre s'établit défini par un champ de déformation compatible  $\varepsilon^a$  et un champ de contraintes internes  $\sigma^b$ .

$$\sigma^b = C\varepsilon - C\varepsilon^a \quad \{11-8\}$$

Cette première étape peut paraître artificielle car on ne sent pas la nécessité d'introduire une inclusion ayant une forme ou une taille différente dans la matrice. Cependant, il est indispensable d'avoir à l'esprit le but de notre démarche qui est de remplacer une inclusion ayant des propriétés différentes de celles de la matrice (le grain) par une inclusion ayant les mêmes caractéristiques que le M.H.E. Dans l'image d'Eshelby, et l'incompréhension du raisonnement peut venir de là, on présente les étapes dans un ordre inversée.

En fait, le remplacement d'un grain du milieu réel par une inclusion ayant les propriétés de la matrice, dans les mêmes conditions de déformations et de contraintes ne se fait pas naturellement ( $\sigma = C\varepsilon \neq \sigma = C\varepsilon$ ). En effet, il est nécessaire d'appliquer ce que l'on a appelé des forces volumiques fictives sur l'inclusion ( $f_i = ((c_{ijkl} - C_{ijkl})\varepsilon_{kl})_i$ ) pour satisfaire les équations d'équilibre sur les contraintes. Ces forces volumiques fictives traduisent l'incompatibilité du champ de déformation calculé dans le polycristal et adapté au M.H.E.

**Figure II-1:** Image de l'inclusion appliquée à la dilatation thermique



Remarquons que l'étape A) pour la dilatation thermique est tout à fait similaire à celle de l'élasticité. On peut écrire en utilisant les fonctions de Green du M.H.E.:

$$\varepsilon^a_{ij}(r) = \int_V G_{ijkl}(r,r') C_{klmn} \varepsilon_{mn} dV \quad \{II-9\}$$

$$\Rightarrow \varepsilon^a_{ij}(r) = \int_V G_{ijkl}(r,r') dV C_{klmn} \varepsilon_{mn} \quad \{II-10\}$$

Ce dernier passage sous-entend que l'on ne prend en compte que la contribution de l'inclusion considérée, avec la matrice. D'autre part, on attribue à l'inclusion une forme ellipsoïdale, et on suppose que la déformation est homogène dans l'inclusion.

$$\Rightarrow \varepsilon^a_{ij} = \Gamma^{00}_{ijkl} C_{klmn} \varepsilon_{mn} \quad \{II-11\}$$

La notation  $\Gamma^{00}$  est mal choisie dans ce cas, mais elle est maintenue dans un souci de cohérence avec le premier chapitre. Notons que pour rendre le calcul de  $\Gamma^{00}$  possible, on est amené, comme dans le chapitre I, à supposer que le milieu a des dimensions infinies.

En introduisant  $\{II-11\}$  dans  $\{II-8\}$ , on obtient une nouvelle expression des contraintes:

$$\sigma^b = C [(\Gamma^{00}C)^{-1} - I] \varepsilon^a \quad \{II-12\}$$

B) Dans cette étape, il s'agit d'introduire dans la matrice, en lieu et place de l'inclusion, un grain. Comme nous l'avons signalé à plusieurs reprises, il est nécessaire de tenir compte de l'incompatibilité de déformation entre le grain isolé et le grain entouré par la matrice. Le problème est donc d'introduire un grain déformé de  $\alpha \Delta T$ , dans une matrice homogène dont les constantes thermiques sont égales à celles du polycristal. On applique par conséquent sur le grain des contraintes adéquates  $\sigma^* = c \varepsilon^*$ , on introduit le grain dans la matrice et on relâche les contraintes précitées. Le même équilibre que dans l'étape A) se met en place et la contrainte dans le grain s'écrit:

$$\sigma^b(g) = c(g) \varepsilon^*(g) - c(g) \varepsilon^a(g) \quad \{II-13\}$$

C) On égalise les expressions sur les contraintes obtenues aux étapes A) et B):

$$\sigma^b(g) = c(g) \varepsilon^*(g) - c(g) \varepsilon^a(g) = [\Gamma^{00} - I - C] \varepsilon^a(g) \quad \{II-14\}$$

$$\Rightarrow \varepsilon^a(g) = [\Gamma^{00} - I - C + c(g)]^{-1} c(g) \varepsilon^*(g) \quad \{II-15\}$$

En introduisant cette expression de la déformation compatible dans  $\{II-14\}$  et en exprimant  $\varepsilon^*(g) = (\alpha(g) - A) \Delta T$ , on obtient:

$$\sigma^b(g) = c(g) (I - [\Gamma^{00} - I - C + c(g)]^{-1} c(g)) (\alpha(g) - A) \Delta T \quad \{II-16\}$$

Cette relation constitue la loi d'interaction reliant grandeurs locales et macroscopiques dans le cas de la dilatation thermique. Il s'agit à présent de trouver une relation de cohérence nous permettant de cristalliser la démarche. On va ainsi exprimer l'absence de contraintes appliquées sur le polycristal:

$$\langle \sigma^b(g) \rangle = \langle c(g) (I - [\Gamma^{00} - I - C + c(g)]^{-1} c(g)) (\alpha(g) - A) \rangle \Delta T = 0 \quad \{II-17\}$$

Relation à partir de laquelle on trouve une expression pour les constantes thermiques du polycristal:

$$A = \langle c(g) (I - [\Gamma^{00} - I - C + c(g)]^{-1} c(g)) \rangle^{-1} \langle c(g) (I - [\Gamma^{00} - I - C + c(g)]^{-1} c(g)) \alpha(g) \rangle \quad \{II-18\}$$

Notons que pour utiliser cette relation, il est indispensable de connaître les constantes effectives élastiques du polycristal.

### II - 2 - 3 - Calcul numérique

Nous ne présentons que de manière succincte les techniques de calcul des coefficients de dilatation thermique. Les raisonnements étant tout-à-fait semblables à ceux décrits pour les constantes élastiques, on se reportera à la partie I-3 pour avoir plus de détails.

Rappelons que les tenseurs décrivant les propriétés de dilatation thermique du monocristal hexagonal et du polycristal à symétrie orthorhombique ont respectivement la forme suivante dans les axes principaux:

$$\begin{array}{ccc} \alpha_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \alpha_{11} & 0 \\ 0 & 0 & \alpha_{33} \end{array} \qquad \begin{array}{ccc} A_{11} & 0 & 0 \\ 0 & A_{22} & 0 \\ 0 & 0 & A_{33} \end{array}$$

#### II - 2 - 3 - 1 - Calcul des constantes basé sur une "moyenne directe ou inverse"

Les expressions sont données à titre d'exemple dans le cas de la moyenne directe. Les relations ci-dessous permettent de caractériser le comportement en dilatation thermique du matériau étudié connaissant un certain nombre de données cristallographiques et les coefficients de dilatation thermique de la tôle.

La quantité de données nécessaires est fonction du type de calcul effectué. Dans la première méthode, il est nécessaire de connaître les coefficients du développement en série de la F.D.O. jusqu'au rang 2. Dans les deux autres méthodes présentées, la figure de pôles complète (00.2) suffit pour effectuer les calculs. Pour obtenir directement une figure de pôles complète, plusieurs possibilités sont offertes: diffraction de RX par réflexion+transmission, diffraction de neutrons, échantillon composite... Cependant dans la plupart des cas, nous avons procédé de manière indirecte, en mesurant des figures de pôles incomplètes à mi-épaisseur de la tôle, en effectuant une analyse de texture puis en recalculant, à partir des coefficients du développement en série de la F.D.O., les figures de pôles complètes. En pratique, on réalise cette analyse à partir d'un nombre de figures de pôles plus important que le nombre strictement nécessaire de manière à réduire les effets des erreurs statistiques. Ceci a pour conséquence de rendre a priori équivalentes les trois méthodes de calcul dans le cadre de notre étude.

##### \* calcul analytique [Humbert, 1990]

$$A_{ij} = \left[ \sum_{l=0,2}^{n=+1} \sum_{m=-1}^{n=+1} \sum_{n=-1}^{n=+1} A_l^{mn*} (i,j) \frac{C_l^{mn}}{2l+1} \right] \alpha_{ij} \quad \text{(II-19)}$$

##### \* calcul à partir des facteurs de Keams

Le calcul à partir des facteurs de Keams de la F.D.P. (00.2), est très séduisant de par la simplicité des expressions:

$$A_{ij} = F_i \alpha_{33} + (1-F_i) \alpha_{11} \quad \text{(II-20)}$$

D'autre part, Humbert et Esling [1988] ont montré que l'on pouvait calculer directement les constantes monocristallines, connaissant la valeur du coefficient de dilatation thermique du polycristal dans deux directions distinctes du matériau. Si ces deux valeurs sont données dans les directions de laminage et travers, on obtient:

$$\alpha_{11} = \frac{F_1 A_{22} - F_2 A_{11}}{F_1 - F_2}$$

$$\alpha_{33} = \frac{A_{11} - A_{22}}{F_1 - F_2} + \alpha_{11} \quad \text{(II-21)}$$

Il est clair que le calcul des constantes monocristallines repose sur l'adoption d'un certain nombre d'hypothèses, puisque l'on détermine en réalité ce que l'on pourrait appelé le comportement effectif du monocristal au sein du polycristal. De plus, on néglige d'une part la création de contraintes internes dans le polycristal et la contribution de tous les paramètres métallurgiques à

l'exception de la texture cristallographique. Cependant, l'utilisation des relations {II-21} fournit des résultats tout-à-fait satisfaisants qui confirment l'importance de ce dernier paramètre.

#### \* calcul numérique direct

Ce type de procédé peut s'appliquer directement dans tous les cas de symétrie lorsque l'on utilise la F.D.O. pour effectuer le calcul.

$$A_{ij} = \frac{1}{8\pi^2} \int \int \int \alpha_{ij}(\phi_1, \Phi, \phi_2) f(\phi_1, \Phi, \phi_2) \sin\Phi \, d\phi_1 d\Phi d\phi_2 \quad \text{\{II-22\}}$$

$$\Rightarrow A_{ij} = \frac{1}{8\pi^2} \sum_{i_1=0}^{n_1} \sum_{i_0=0}^n \sum_{i_2=0}^{n_2} \alpha_{ij}(\phi_1^{i_1}, \Phi^{i_0}, \phi_2^{i_2}) f(\phi_1^{i_1}, \Phi^{i_0}, \phi_2^{i_2}) [\cos(\Phi^{i_0} - \Delta\Phi/2) - \cos(\Phi^{i_0} + \Delta\Phi/2)] \Delta\phi_1 \Delta\phi_2 \quad \text{\{II-23\}}$$

Cette expression permet de calculer les coefficients de dilatation du polycristal à condition que le théorème d'échantillonnage de Shannon soit vérifié:

$$\begin{aligned} \Delta\phi_1 \\ \Delta\Phi \leq \pi / (L_{\max} + 2) \\ \Delta\phi_2 \end{aligned} \quad \text{\{II-24\}}$$

Sachant qu'un développement au rang 2 de la F.D.O. suffit en principe pour calculer l'intégrale {II-22}, on pourrait se contenter d'un écart angulaire de  $\pi/4$ . Cette remarque est illustrée sur le tableau II-1 pour une orientation idéale (O.I.) située à  $(\phi_1, \Phi, \phi_2) = (10, 70, 20)$  et ayant une largeur angulaire de  $15^\circ$ . Nous avons utilisé dans cet exemple les constantes monocristallines du zinc.

Remarquons que de manière générale, pour calculer la moyenne d'un tenseur de rang N sur l'espace d'Euler, il faut respecter les conditions suivantes:

$$\begin{aligned} \Delta\phi_1 \\ \Delta\Phi \leq \pi / L_{\max} + N \\ \Delta\phi_2 \end{aligned} \quad \text{\{II-25\}}$$

De plus, un développement de la F.D.O. au rang N suffit, {II-25} s'écrit alors:

$$\begin{aligned} \Delta\phi_1 \\ \Delta\Phi \leq \pi / 2N \\ \Delta\phi_2 \end{aligned} \quad \text{\{II-26\}}$$

Dans le cas d'une symétrie cristalline hexagonale où l'on peut se contenter de la figure de pôles (00.2), l'expression {II-23} peut s'écrire sous la forme:

$$A_{ij} = \frac{1}{4\pi} \sum_{i_1=0}^{n_1} \sum_{i_0=0}^n \alpha_{ij}(\phi_1^{i_1}, \Phi^{i_0}) P_{00.2}(\pi/2 - \phi_1^{i_1}, \Phi^{i_0}) [\cos(\Phi^{i_0} - \Delta\Phi/2) - \cos(\Phi^{i_0} + \Delta\Phi/2)] \Delta\phi_1 \quad \text{\{II-27\}}$$

### II - 2 - 3 - 2 - Calcul des constantes à partir du modèle auto-cohérent

#### II - 2 - 3 - 2 - 1 - Aspects numériques

L'utilisation de l'expression {II-18} nécessite des précautions particulières. Elle permet de calculer directement les coefficients de dilatation thermique du polycristal à partir de la texture, des constantes élastiques du monocristal et du polycristal et bien sûr, des coefficients de dilatation thermique du monocristal.

Posons dans l'expression précitée:

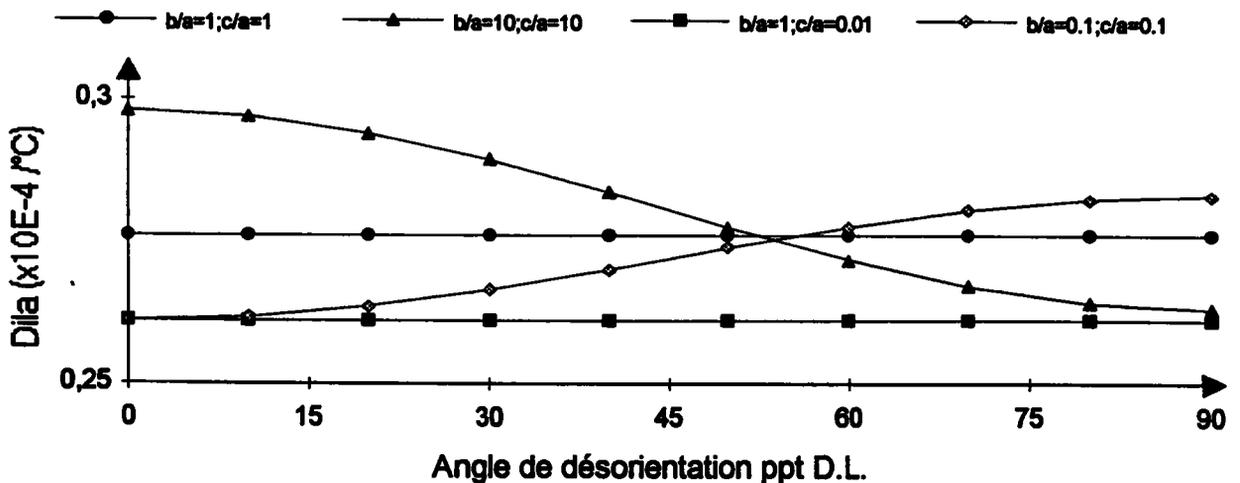
$$m^*_{ijkl}(g) = c_{ijmn}(g) \{I - [\Gamma^{gg-1} + c(g) - C]^{-1} c(g)\}_{mnlk} \quad \text{\{II-28\}}$$

$$m^*_{ij}(g) = m_{ijkl}(g) \alpha_{kl}(g) \quad \text{\{II-29\}}$$

Tableau II-1: Influence de  $L_{max}$  et de l'échantillonnage sur le calcul "moyen" de A

$\Delta\phi$	(Lmax+2) * $\Delta\phi$	Moyenne directe			Moyenne inverse		
		A11	A22	A33	A11	A22	A33
5	20	0,159	0,534	0,2	0,137	0,362	0,147
5	30	0,159	0,534	0,2	0,137	0,362	0,147
5	50	0,159	0,534	0,2	0,137	0,362	0,147
15	60	0,159	0,534	0,2	0,137	0,363	0,147
5	70	0,159	0,534	0,2	0,137	0,362	0,147
5	90	0,159	0,534	0,2	0,137	0,362	0,147
15	90	0,159	0,534	0,199	0,137	0,363	0,147
30	120	0,159	0,535	0,199	0,137	0,364	0,147
15	150	0,159	0,534	0,2	0,137	0,363	0,147
30	180	0,159	0,535	0,199	0,137	0,364	0,147
45	180	0,159	0,533	0,201	0,137	0,361	0,147
30	300	0,157	0,514	0,223	0,137	0,333	0,153
30	420	0,153	0,508	0,235	0,136	0,322	0,157
45	450	0,0898	0,708	0,097	0,123	1,48	0,124
30	540	0,156	0,507	0,229	0,136	0,325	0,155
45	630	0,136	0,573	0,185	0,132	0,437	0,143
45	810	0,13	0,571	0,192	0,131	0,433	0,145

Figure II-2 : Influence théorique de la forme moyenne des grains sur le comportement en dilatation thermique d'un matériau fictif à texture isotrope



Pour la symétrie hexagonale, les  $c_{ijkl}(\theta)$  ne dépendent pas de l'angle d'Euler  $\phi_2$ , de ce fait les grandeurs  $m^*$  et  $m^{**}$  n'en dépendent pas non plus. C'est là une des seules propriétés que nous offrent ces fonctions qui ne respectent pas les règles de transformation tensorielle. Il est dès lors délicat de connaître de manière rigoureuse la limite du rang du développement en série de FHSG nécessaire pour reproduire de manière précise ces fonctions.

Cependant, différents tests sur le développement de  $m^*$  (resp.  $m^{**}$ ) montrent que les coefficients des rangs impairs et des rangs supérieurs à quatre (resp. deux) peuvent être négligés. Les valeurs des coefficients du développement supérieures à  $10^{-7}$  sont reportées dans les tableaux II-2 et II-3. Remarquons que ces valeurs constituent un cas particulier. En effet, elles sont données pour un matériau particulier (le zinc en l'occurrence) et pour une seule composante du tenseur ( $m^*_{1111}$  et  $m^{**}_{11}$ ).

Ces considérations nous amènent à faire plusieurs remarques très importantes au niveau des calculs numériques effectués dans le cadre du modèle autocohérent:

- La FDP (00.2) suffit pratiquement pour effectuer les calculs
- Si on utilise la F.D.O., un développement au rang quatre est nécessaire pour calculer la valeur moyenne de  $m^*$ . Le rang de la série pourrait être réduit à deux pour le calcul de  $m^{**}$ . Sur le tableau II-4, nous avons reporté les valeurs des coefficients de dilatation dans les axes principaux d'une tôle fictive de Zinc, pour l'O.I. précitée, à savoir  $(\phi_1, \Phi, \phi_2) = (10, 70, 20)$ , en utilisant le même rang de développement pour calculer  $m^*$  et  $m^{**}$ . Il apparaît très nettement que contrairement à ce que l'on a pu faire dans les cas du calcul de coefficients à l'aide d'un modèle de la moyenne, on ne peut pas se contenter d'un développement de la F.D.O. au rang 2 mais qu'il faut aller jusqu'au rang quatre. D'autre part, il est indispensable de respecter les conditions {II-26} avec une valeur de  $N=4$ .

#### II - 2 - 3 - 2 - 2 - Effets de la forme moyenne des grains sur la prévision

Nous avons calculé les coefficients de dilatation thermique d'un matériau fictif, présentant une texture isotrope, pour différents rapports  $b/a$  et  $c/a$  de l'ellipsoïde matérialisant le grain. Les différents résultats obtenus à partir des constantes monocristallines du zinc, sont reportés sur la figure II-2.

Comme dans le cas de l'élasticité, il apparaît que la forme moyenne des grains est un facteur d'anisotropie non négligeable. L'allure des courbes obtenues peut être reliées intuitivement aux "frottements" internes entre grains: plus le grain est allongé, plus sa déformation est perturbée par les grains voisins. Ce phénomène se traduit par une diminution de la valeur du coefficient de dilatation thermique.

**Tableau II-2: Coefficients des rangs non nuls lors du calcul de  $m^*$  en FHSG**

C <sub>lmn</sub>	l	m	n
0,1434196	2	0	0
-0,2481389	2	0	2
-0,0280844	4	0	0
0,0387547	4	0	2
-0,051181	4	0	4
0,0002924	6	0	0
-0,0004222	6	0	2
0,0004608	6	0	4
-0,0006204	6	0	6
-0,0000086	8	0	0
0,0000111	8	0	2
-0,0000109	8	0	4
0,0000104	8	0	6
-0,0000101	8	0	8

**Tableau II-3: Coefficients des rangs non nuls lors du calcul de  $m^{**}$  en FHSG**

C <sub>lmn</sub>	l	m	n
-0,0661588	2	0	0
0,1486429	2	0	2
0,0029719	4	0	0
-0,0014785	4	0	2
0,0081742	4	0	4
-0,000047	6	0	0
0,0000678	6	0	2
-0,0000704	6	0	4
0,0000824	6	0	6
0,0000017	8	0	0
-0,0000015	8	0	2
0,0000014	8	0	4
-0,0000014	8	0	6
0,0000013	8	0	8

**Tableau II-4: Influence de  $L_{\max}$  et de l'échantillonnage sur le calcul de A**

$L_{\max}$	$\Delta\phi$	$(L_{\max}+2)x$	Modèle auto-cohérent		
			A11	A22	A33
		$\Delta\phi$			
2	5	30	0,178	0,508	0,199
4	5	40	0,167	0,504	0,202
8	5	60	0,165	0,508	0,201
2	15	90	0,178	0,504	0,199
12	5	80	0,165	0,507	0,201
16	5	100	0,165	0,507	0,201
4	15	120	0,167	0,505	0,202
2	30	180	0,181	0,49	0,2
8	15	180	0,166	0,503	0,201
4	30	240	0,17	0,484	0,203
2	45	270	0,181	0,49	0,2
8	30	360	0,165	0,474	0,226
12	30	480	0,163	0,468	0,233
8	45	540	0,0854	0,763	0,102
16	30	600	0,165	0,468	0,229
12	45	720	0,156	0,524	0,179
16	45	900	0,152	0,525	0,183

## **II - 3 - RESULTATS**

**NB:** Les figures concernant cette partie sont reportées en fin de chapitre.

Notre objectif est à présent de tester la validité des modèles en effectuant toute une série de mesures de coefficient de dilatation thermique sur différents alliages de zinc et de zirconium et en les confrontant aux résultats fournis par les différents modèles. Nous avons ainsi déterminé les variations de coefficient dans le plan de la tôle.

Les résultats concernant les matériaux écrouis sont présentés séparément pour des raisons que nous évoquons par la suite.

### **II - 3 - 1 - Dispositif de mesure**

Les mesures expérimentales ont été effectuées à l'aide d'un dilatomètre DT1000, appareil conçu et commercialisé par la société Adamel Lhomargy. Ce dilatomètre d'une grande précision ( $<1\mu\text{m}$ ) offre une large gamme de conditions de travail aussi bien au niveau de l'atmosphère de la chambre d'essai (vide, hélium, air) qu'à celui de la vitesse de chauffe ( $10^\circ\text{C/h} \rightarrow 200^\circ\text{C/s}$ ) et de refroidissement de l'échantillon ( $10^\circ\text{C/h} \rightarrow 500^\circ\text{C/s}$ ).

Signalons qu'une des principales qualités du DT1000 est liée au principe de mesure de la température de l'échantillon. En effet, celle-ci s'effectue à l'aide d'un thermocouple chromel-alumel directement soudé sur l'échantillon. D'autre part la faible taille de l'échantillon ( $\approx 12\text{mm} \times 2\text{mm} \times \text{épaisseur de la tôle}$ ) évite les problèmes d'inertie thermique. Cependant la longueur limitée de l'échantillon (18 mm) est un obstacle pour la précision de la mesure de coefficients de dilatation thermique.

#### **II - 3 - 1 - 1 - Conditions expérimentales**

Nous avons travaillé dans les mêmes conditions de mesures pour tous les échantillons traités. Le cycle thermique utilisé (figure II-3) peut se décomposer en six segments:

a) Mise sous vide de l'enceinte. Cette opération qui peut paraître superflue, a pour seul but de garantir l'atmosphère choisie par la suite.

b) Balayage Hélium. Pour éviter une quelconque corrosion des échantillons, nous avons décidé de travailler sous gaz. D'autre part, la vitesse de montée et de descente en température est mieux contrôlée lorsqu'il y a apport d'une source froide.

c) Montée à  $350^\circ\text{C}$  pour les échantillons de zirconium et à  $100^\circ\text{C}$  pour ceux de zinc. La vitesse de chauffe choisie est de  $1^\circ\text{C/s}$  (voir paragraphe suivant). Cette vitesse extrêmement élevée serait totalement inadaptée dans le cadre d'une étude des transformations de phase ou des domaines de précipitation à l'équilibre.

d) Palier d'une minute à  $350^\circ\text{C}$  pour les échantillons d'alliage de zirconium (à  $200^\circ\text{C}$  pour le zinc). Ce segment a pour intérêt de stabiliser la température et de nous permettre de détecter d'éventuels problèmes dus à l'inertie thermique ou liés à une vitesse de chauffe trop importante.

e) Descente à température ambiante à  $1^\circ\text{C/s}$ . Les logiciels actuels de correction de mesures (voir paragraphe II - 3 - 1 - 4) ne permettent pas de déterminer directement les coefficients de dilatation thermique durant la descente en température.

f) Palier d'une minute à température ambiante. Ce palier est nécessaire si l'on veut descendre réellement jusqu'à température ambiante car dans le domaine de température  $20\text{-}100^\circ\text{C}$ , les critères d'arrêt de l'essai dans les conditions expérimentales choisies, perdent de leur efficacité.

#### **II - 3 - 1 - 2 - Influence de la vitesse de chauffe**

Le paramètre essentiel dans la détermination du coefficient de dilatation thermique à l'équilibre semble être a priori la vitesse de montée en température. Nous avons essayé de cerner l'influence de cette vitesse sur la détermination du coefficient étudié en espérant pouvoir augmenter de manière raisonnable ce paramètre.

Nous avons pour ce faire, mesuré le coefficient de dilatation thermique d'une tôle de zircaloy-4 recuite (Zrec) pour différentes vitesses de chauffe: 0.02, 0.2, 1, 5, 10, 20, 50 et  $100^\circ\text{C/s}$ . Les résultats sont représentés sur la figure II-4 où l'on a reporté le coefficient de dilatation thermique pris à  $320^\circ\text{C}$  en fonction du paramètre étudié. Il apparaît très nettement que la vitesse de chauffe n'a

qu'une faible incidence sur le coefficient de dilatation. Cependant, pour des vitesses élevées (>20°C/s), ce dernier a tendance à diminuer de manière tout-à-fait significative. Notons d'autre part, que toute une série d'indices nous fait dire que la vitesse de chauffe n'est pas un paramètre primordial: la comparaison de mesures effectuées en parallèle à 0.1 et 1°C/s pour des échantillons issus de tôles d'alliages de zirconium et de zinc, la constance de la longueur de l'échantillon durant le palier en température. Il nous a donc paru judicieux de choisir une vitesse de chauffe de 1°C/s qui n'affecte pas la précision des mesures mais qui nous fait gagner un temps considérable.

### II - 3 - 1 - 3 - Choix de la température de mesure

Ce paramètre influence énormément les valeurs de coefficients de dilatation thermique. L'importance de ce choix est illustrée sur la figure II-5 où nous avons reporté l'évolution du coefficient de dilatation thermique de l'éprouvette en fonction de la température, pour un échantillon de zinc (ZnCu1). Cette courbe présente une partie linéaire depuis la température ambiante jusqu'à une température de l'ordre de 60°C pour le zinc et de 320°C pour les alliages de zirconium. Nous avons choisi de faire les déterminations de coefficient dans le domaine de comportement linéaire.

Les valeurs expérimentales présentées par la suite sont en fait des valeurs moyennes du coefficient de dilatation thermique dans un domaine de température compris entre 20 et 60°C pour le zinc et entre 20 et 320°C pour les alliages de zirconium.

### II - 3 - 1 - 4 - Incertitudes sur la mesure

Il est délicat d'estimer les incertitudes de détermination des valeurs de coefficient de dilatation thermique dans le sens où les principales sources d'erreurs n'interviennent qu'indirectement dans le calcul de la grandeur qui nous intéresse. Ainsi, il est nécessaire de procéder à une correction des mesures en raison de la dilatation propre du bâti supportant l'échantillon (supports en silice).

Pour effectuer la correction, on réalise deux mesures:

- la mesure de la dilatation de l'ensemble échantillon+support. Le fichier enregistré contient les données brutes.
- la mesure de la dilatation d'un échantillon de pyros+support dans les mêmes conditions expérimentales qu'au cours de l'étape précédente.

Il est alors possible de déterminer la dilatation du support connaissant la dilatation propre du pyros. On obtient ainsi un fichier de correction qui est utilisé pour corriger le fichier de données brutes. L'allongement corrigé s'exprime alors par:

$$\Rightarrow \alpha(T)L(T-T_0) = \Delta L = [\Delta L^{e+s} - (\Delta L^{p+s} - \Delta L^p)] \quad \text{II-30}$$

où  $\Delta L$  désigne l'allongement corrigé

$\Delta L^{e+s}$	"	de l'échantillon+support
$\Delta L^{p+s}$	"	de l'ensemble pyros+support
$\Delta L^p$	"	du pyros

Les deux principales sources d'erreur sont les erreurs de mesure de la dilatation de l'échantillon+support et de mesure de la dilatation du pyros+support.

Deux autres facteurs dictant les limites de précision de l'appareillage peuvent être cités bien que négligeables dans la plupart des cas:

- Erreur de lecture de la longueur de l'échantillon.
- Incertitude sur la température.

$$\frac{\Delta\alpha}{\alpha} \approx \frac{\Delta(\Delta L)}{\Delta L} + \frac{\Delta L_0}{L_0} + \frac{\Delta T}{T-T_0} \quad \text{II-31}$$

où  $L_0$  est la longueur initiale et  $T_0$  la température de référence

L'erreur commise est fonction du matériau étudié: de l'ordre de 3 à 4% pour les alliages de zirconium et moins de 5% pour les alliages de zinc. Plus le coefficient de dilatation du matériau est élevé, plus les corrections sont négligeables. Dans cette estimation pessimiste, nous ne tenons pas compte du fait que certaines erreurs tendent à se compenser.

### II - 3 - 2 - Tôles d'alliages de zinc

Nous avons caractérisé l'évolution du coefficient de dilatation thermique dans le plan de la tôle pour les deux alliages de zinc: zinc-cuivre et zinc-titane (voir annexe II). Nous avons utilisé pour effectuer les simulations, les coefficients du zinc pur mesurés à température ambiante [International Critical Tables, 1929].

Il est nécessaire de souligner que la FDP (00.2) mesurée n'est qu'imparfaitement orthorhombique et que par conséquent, on perd de l'information en lui donnant artificiellement cette symétrie au cours des calculs. C'est un des points très restrictifs de la modélisation qui pourrait être évité dans le cadre des modèles de la moyenne mais qui est techniquement plus difficile à corriger pour le modèle auto-cohérent. C'est pourquoi dans un souci de cohérence, nous présentons les résultats en supposant que la texture est orthorhombique. Notons que pour les modèles développés en élasticité, cette correction apporterait des modifications minimales.

#### II - 3 - 2 - 1 - Alliages de zinc-cuivre

Les résultats sont représentés sur les figures II-6 et II-7 où nous avons également reporté les mesures expérimentales fittées par un polynôme de second degré en  $\cos\beta$  ( $A\cos^2\beta + B\sin^2\beta$ ). L'examen de ces figures montre la très forte anisotropie en dilatation thermique des alliages de zinc-cuivre due à la répartition des axes c et à la différence de comportement très marquée entre l'axe c et l'axe a ( $\alpha_{33}/\alpha_{11} > 4$ ).

Les modèles de la moyenne semblent fournir des bornes inférieures et supérieures comparées aux résultats expérimentaux. D'autre part le modèle auto-cohérent fournit des résultats très satisfaisants qui sont sensiblement plus proches de la réalité que ceux obtenus avec les modèles de la moyenne. Cependant, le décalage direction travers entre la modélisation et les mesures expérimentales ne peut être expliqué par les erreurs de mesures. Mais, il est difficile de savoir si cet écart est dû à la nature même de l'alliage, à la symétrie orthorhombique imposée artificiellement à la FDP (00.2) ou à une autre cause.

#### II - 3 - 2 - 2 - Alliages de zinc-titane

Les résultats (figures II-8 et II-9) nous amènent aux mêmes conclusions que précédemment. On notera toutefois l'excellent accord entre les mesures expérimentales et les résultats du calcul auto-cohérent. La prise en compte de la forme moyenne des grains permet d'améliorer considérablement les valeurs prédictives. Cependant, il est indispensable de noter la non homogénéité de forme et d'orientation géométrique des grains dans les alliages de zinc étudiés. Ainsi l'ellipsoïde introduit dans les modèles, représentant la forme et caractérisant l'orientation spatiale du grain, n'est pas aussi significative que nous le souhaitons.

D'autre part, les modèles de la moyenne fournissent des valeurs tout-à-fait appréciables et reproduisent de manière satisfaisante les variations de la courbe expérimentale. Il est clair que le calcul de la moyenne directe est plus satisfaisant que celui effectué grâce au modèle de la moyenne inverse. Toutefois, il est fort utile pour certaines applications de pouvoir disposer d'un modèle qui semble donner une borne inférieure.

#### II - 3 - 2 - 3 - Conclusions

On peut faire plusieurs commentaires concernant le matériau testé. En premier lieu, on note une anisotropie entre la direction longue et la direction travers qui avoisine les 100%, le coefficient dans la direction travers étant systématiquement plus faible que dans la direction de laminage.

Le modèle auto-cohérent permet de prédire de manière satisfaisante le comportement macroscopique des alliages de zinc. Ceci confirme l'importance de la texture cristallographique et de la forme des grains pour une bonne caractérisation des propriétés physiques du matériau à symétrie cristalline hexagonale testé.

Les écarts observés entre les mesures expérimentales et les valeurs calculées, soulignent la nécessité d'une démarche expérimentale propre et adaptée afin de pouvoir conclure de manière indiscutable quant à la validité des hypothèses adoptées dans le modèle auto-cohérent.

Aussi, est-il indispensable d'effectuer les calculs à partir de figures de pôles tricliniques et décrivant la texture moyenne de la tôle (mesures aux neutrons). De plus, il est nécessaire de travailler avec les constantes monocristallines adéquates pour lever les doutes que nous avons lorsque nous utilisons celles du zinc pur.

D'autre part, les modèles dits "de la moyenne" sont très utiles dans le sens où ils semblent fournir des bornes supérieure et inférieure. La simplicité des expressions utilisées est séduisante. Ces expressions, comme nous l'avons vu dans le paragraphe II-2-3-1, permettent également de calculer les coefficients de dilatation thermique du monocristal. Ces considérations sont illustrées sur les figures II-10 et II-11 où nous avons représenté respectivement le coefficient de dilatation du polycristal et son inverse dans la direction longue et travers en fonction du facteur de Keams pour les quatre tôles étudiées. On déduit alors de ces figures, obtenues à partir de différents alliages de zinc, les coefficients de dilatation du monocristal:

$\alpha_{11}=1,6 \times 10^{-5} / ^\circ\text{C}$	$\alpha_{33}=4,5 \times 10^{-5} / ^\circ\text{C}$	moyenne directe
$\alpha_{11}=1,8 \times 10^{-5} / ^\circ\text{C}$	$\alpha_{33}=13,9 \times 10^{-5} / ^\circ\text{C}$	moyenne inverse
$\alpha_{11}=1,3 \times 10^{-5} / ^\circ\text{C}$	$\alpha_{33}=6,4 \times 10^{-5} / ^\circ\text{C}$	mesure expérimentale sur monocristal

Ceux-ci pourraient être calculés séparément pour chaque alliage. Cependant, les calculs reposant sur un certain nombre d'hypothèses très éloignées de la réalité, on ne peut pas se contenter de ces données dans le modèle auto-cohérent. Ainsi la mesure expérimentale des coefficients du monocristal demeure indispensable.

### II - 3 - 3 - Tôles d'alliages de zirconium

Comme dans le cadre des études sur l'élasticité, nous nous sommes intéressés à trois alliages de zirconium: le Zr<sub>2</sub>5Nb, le Zr1Nb1Sn0.5Fe et le zircaloy-4 (voir annexe II). Nous avons mesuré pour chacune des tôles testées, un certain nombre de coefficients de dilatation thermique dans le plan de la tôle. Ces coefficients représentent, comme nous l'avons déjà signalé, un coefficient moyen dans le domaine de température 20-320°C, domaine pour lequel le coefficient peut être considéré comme constant.

Les mesures expérimentales sont comparées aux valeurs fournies par les différents modèles. Nous avons utilisé pour l'ensemble des calculs les coefficients de dilatation thermique d'un monocristal de zirconium pur. Comme pour le zinc, nous avons supposé que les tôles présentaient une symétrie orthorhombique. Cette hypothèse est vérifiée dans le cas des alliages de zirconium.

#### II - 3 - 3 - 1 - Alliage de Zirconium-2,5Niobium

Les résultats expérimentaux et calculés sont présentés pour les alliages référencés A22F, A24F et A25F (figures II-12, II-13, II-14).

Rappelons que pour ces alliages, seules deux figures de pôles ont été utilisées pour l'analyse de texture. Par conséquent, les valeurs fournies par la modélisation ne sont données qu'à titre indicatif. Malgré le nombre limité de données cristallographiques, les modèles reproduisent très convenablement la réalité. Les valeurs fournies par le modèle de la moyenne et le modèle auto-cohérent sont très proches.

On note une différence de comportement relativement importante entre la direction longue et la direction travers (entre 10 et 20%) avec un coefficient de dilatation thermique plus faible dans la direction de laminage. Les calculs montrent que la différence est encore plus marquée par rapport à la direction normale au plan de la tôle et peut atteindre les 40 voire les 50% dans les cas extrêmes.

#### II - 3 - 3 - 2 - Alliage de Zirconium-1Niobium-1Etain-0,5Fe

Comme pour l'élasticité et dans un souci de cohérence, nous avons traité les alliages dénommés A12F, A14F et A15F (figures II-15, II-16 et II-17).

Les résultats fournis par la modélisation à partir de deux figures de pôles souffrent des mêmes limitations que pour l'alliage précédent. Nous avons tenté de quantifier les effets dus à l'utilisation d'un nombre limité de figures de pôles en faisant les calculs pour un alliage de zircaloy-4 à partir d'une, deux, trois ou quatre figures de pôles incomplètes (figure II-18). Il apparaît très nettement que les calculs ne sont pas satisfaisants lorsque l'on se contente de deux figures de pôles même si l'allure de la courbe est conservée. Les valeurs calculées ne deviennent satisfaisantes que quand l'analyse de texture est effectuée avec trois figures et plus. Cependant, comme dans le cas précédent, les simulations donnent un ordre de grandeur tout-à-fait intéressant. De plus, les résultats fournis par le modèle auto-cohérent et le modèle de la moyenne directe, sont très semblables. Ceci est la conséquence de deux facteurs: la faible anisotropie thermique du zirconium (comparée à celle du zinc) et la quasi équiaxialité des grains composant le polycristal.

Les tôles de l'alliage traitées se caractérisent par une faible anisotropie en dilatation thermique qui s'explique par une répartition des axes  $c$  quasiment isotrope dans le plan de la tôle. Notons que la tôle A12F présente un coefficient de dilatation thermique plus élevé dans la direction longue que dans la direction travers.

### II - 3 - 3 - 3 - Alliages de zircaloy-4

Dans le cadre de l'étude des alliages de zirconium, nous nous sommes tout particulièrement intéressé à l'étude du zircaloy-4, actuellement utilisé dans les réacteurs à eau pressurisée de conception française. Nous disposons pour cet alliage de toute une série de tôles d'états métallurgiques différents.

Les résultats présentés concernent les matériaux référencés Zr650, Zr11, Zr6c et Zr6e (figure II-19, II-20, II-21, II-22). Les trois premiers matériaux cités ont un comportement tout-à-fait reproductible par la modélisation. Celle-ci permet, aussi bien à travers le modèle auto-cohérent qu'à travers le modèle de la moyenne directe, de prédire les variations du coefficient de dilatation thermique du polycristal dans le plan de la tôle.

La validité du modèle de la moyenne pour la prédiction des valeurs macroscopiques, donne de la crédibilité aux expressions (II-21). Nous avons par conséquent reporté sur la figure II-23, les coefficients de dilatation thermique du polycristal dans les directions longue et travers en fonction du facteur de Keams de la direction considérée, pour toutes les tôles de zircaloy-4 dont nous disposons. A titre de comparaison, nous avons également tracé la droite définie par la relation (II-20) en considérant les constantes monocristallines du zirconium pur.

Il apparaît très nettement d'une part que les matériaux "bruts de laminage" ont un comportement distinct de celui observé pour les matériaux ayant subi un traitement thermique après laminage et d'autre part que ces derniers se répartissent de façon homogène le long de la droite calculée. Dans le paragraphe qui suit, nous allons donc nous attarder sur le comportement en dilatation thermique des matériaux écrouis. Toutefois, on peut d'ores et déjà se rendre compte que pour les matériaux bruts de laminage, on ne peut pas se contenter des deux paramètres utilisés jusqu'à présent dans les modèles à savoir la texture cristallographique et la forme moyenne des grains, dans l'optique d'une caractérisation fiable du comportement en dilatation thermique des alliages de zircaloy-4.

### II - 3 - 3 - 4 - Zircaloy-4 écroui

L'état brut de laminage présentant un comportement différent des autres états, il nous a semblé intéressant de faire également des essais de dilatation sur des éprouvettes de traction déformées dans le domaine plastique. En effet, il semble a priori légitime d'attribuer le comportement des tôles non traitées thermiquement à l'écrouissage induit par le traitement mécanique.

#### II - 3 - 3 - 4 - 1 - Matériau brut de laminage

Pour interpréter les résultats des matériaux bruts de laminage, il est nécessaire de revenir aux essais de dilatation thermique.

Nous avons testé deux zircaloy-4 bruts de laminage se distinguant par leur fournisseur (une tôle nous a été fournie par la société Cezus et l'autre par la société Wah Chang). Les deux tôles présentant exactement les mêmes particularités en dilatation thermique, nous ne présentons les courbes de dilatation que pour le premier de ces deux matériaux à savoir le Zr6e.

Sur les figures II-24 et II-25, nous avons reporté l'évolution de la déformation en fonction de la température pour les directions longue et travers. On observe une zone où la déformation n'est pas linéaire, débutant à 120 °C. La linéarité n'est vérifiée que jusqu'aux alentours de 60°C. A partir de 120°C, la pente de la courbe chute puis elle augmente lorsque l'on atteint des températures de l'ordre de 200°C.

Il est intéressant de constater que l'inflexion dans la direction longue est plus marquée que dans la direction travers. Les essais effectués dans des directions intermédiaires montrent que l'on passe de manière continue de la première situation citée à la seconde. Cette remarque est illustrée sur la figure II-26 où nous avons reporté la valeur du coefficient de dilatation thermique instantané à 180°C pour les différentes directions étudiées.

D'autre part, nous avons effectué un deuxième cycle de montée en température pour les différentes éprouvettes. Lors de ce second cycle, similaire au premier, le phénomène d'inflexion disparaît presque totalement aussi bien pour la direction longue que pour la direction travers. Nous avons également pu nous rendre compte que pour faire disparaître complètement le phénomène, il fallait chauffer aux environs de 500°C.

Plusieurs raisons peuvent a priori expliquer le phénomène d'inflexion observé sur les courbes de dilatation thermique. Cependant, la plus vraisemblable semble être la présence de contraintes résiduelles dans le matériau. En acceptant cette hypothèse, on pourrait affirmer que ces contraintes se relaxent de manière importante dans un domaine de température relativement bas. Lors de la seconde montée en température, elles ont pratiquement disparu. De plus, étant donné le mode de sollicitation imposé au matériau au cours du laminage, il est intuitivement légitime de penser que les contraintes résiduelles sont plus importantes selon la direction longue (où la contrainte de traction est importante) que selon la direction travers (où la contrainte de traction est relativement faible).

On peut essayer de quantifier ce phénomène de relaxation de contraintes, en supposant que la courbe mesurée est la somme d'une droite dont la pente correspond au coefficient de dilatation thermique obtenus grâce au modèle auto-cohérent et d'une "courbe de relaxation" ayant la forme suivante:

$$\epsilon_{ij}^r(T_f) = A_{ij} \int_{T_i}^{T_f} \exp(-a(\frac{T-T_0}{T_0})^2) dT \quad \{II-32\}$$

$T_i$  désigne la température de début d'essai et  $T_0$  une température de référence qui permet de reproduire les effets de la relaxation. Dans le cas présent, le matériau ayant été comprimé dans le plan de la tôle, les constantes  $A_{ij}$  sont négatives pour la direction de laminage et la direction travers.

En considérant que les constantes élastiques restent inchangées dans le domaine de température balayé, la déformation  $\epsilon_{ij}^r$  peut être reliée de manière approximative à la "quantité de contraintes résiduelles relaxées"  $\sigma_{ij}^r$  pour une température donnée  $T_f$ , de la manière suivante:

$$\sigma_{ij}^r(T_f) = C_{ij} \epsilon_{ij}^r(T_f) \quad \{II-33\}$$

Dans le cas du zrbz, l'expression {II-33} nous donne respectivement pour la direction longue et la direction travers une quantité approximative de contraintes résiduelles de compression relaxées à 300°C de 70 et 30 MPa.

### II - 3 - 3 - 4 - 2 - Matériau ayant subi une traction

Nous avons effectué des essais de dilatation thermique sur le matériau zrb50 après une traction de 10% dans la direction longue. Les courbes obtenues sont reportées sur les figures II-27 et II-28 où l'on peut observer des phénomènes tout-à-fait similaires à ceux cités précédemment.

Comme on pouvait s'y attendre intuitivement, la direction longue (respectivement travers) présente une déformation inférieure (resp. supérieure) à celle mesurée avant traction. Ceci peut être relié à la sollicitation imposée au matériau pendant l'essai de traction dans le sens où le matériau s'allonge dans la direction de sollicitation et se contracte dans les directions

perpendiculaires au cours de la déformation. Ceci donnerait respectivement naissance à des contraintes de compression et à des contraintes de traction après décharge de l'éprouvette.

En effectuant les mêmes opérations que pour le zrbe, nous avons tenté de quantifier la quantité de contraintes résiduelles relaxées dans le matériau tracté à 300°C. Nous obtenons dans la direction longue une contrainte de compression de 80 MPa et dans la direction travers une contrainte de traction de 45 MPa.

### II - 3 - 3 - 4 - 3 - Conclusions

Les essais de dilatation thermique effectués sur des éprouvettes déformées plastiquement montrent que l'écroutissage influence considérablement le comportement des matériaux. On peut raisonnablement penser qu'un phénomène de restauration, traduit par une relaxation de contraintes résiduelles, intervient.

Notre tentative de quantification de contraintes résiduelles est une première approche et pourrait être améliorée en raisonnant en termes d'énergie. Toutefois, les résultats obtenus semblent plausibles même si l'estimation des contraintes peut paraître sous évaluée. En réalité, notons que cette évaluation est faite à 300°C, température à laquelle toutes les contraintes n'ont pas été relaxées. Il est plus délicat de mesurer les contraintes résiduelles à plus haute température en tenant le raisonnement que nous avons adopté dans le sens où d'autres phénomènes interviennent: non linéarité du coefficient de dilatation thermique, changement de texture, déformation plastique causée par les contraintes thermiques...

Il serait souhaitable de pouvoir quantifier par une autre technique expérimentale, la quantité de contraintes résiduelles relaxées (les rayons X par exemple). Cependant, il n'est pas aisé d'effectuer ce genre de mesures dans le cas des matériaux à structure hexagonale et fortement texturés.

## II - 4 - CONCLUSIONS

Rappelons que l'objectif principal que nous nous sommes fixés est la détermination des paramètres qui influencent les propriétés physiques des alliages de zirconium telles que l'élasticité ou la dilatation thermique dans l'espoir de pouvoir utiliser ces mêmes paramètres dans la prévision du comportement en croissance sous irradiation neutronique de ces matériaux.

Nous avons étudié deux matériaux à structure cristalline hexagonale: le zinc et le zirconium. Le premier nous a servi de référence pour tester les modèles de dilatation thermique développés. Son étude a montré que la prise en compte de la texture cristallographique et de la forme moyenne des grains dans la modélisation, permettait de prédire avec précision les coefficients de dilatation thermique du polycristal dans le plan de la tôle.

L'étude de différents alliages de zirconium nous a permis d'arriver à un certain nombre de conclusions très intéressantes.

En premier lieu, nous nous sommes rendu compte que l'addition d'éléments dans la composition chimique des alliages de zirconium ne modifiait que légèrement le comportement de ces derniers. En effet, nous avons pu calculer avec satisfaction les coefficients de dilatation thermiques de l'alliage zircaloy-4 (composé entre autres d'étain, de fer et de chrome) en utilisant les constantes du zirconium pur. De plus, et ce malgré le manque de données cristallographiques (voir paragraphe II-3-3-1), nous avons été en mesure de caractériser le comportement du Zr-2,5Nb qui contient une seconde phase  $\beta$  en proportion non négligeable (entre 5 et 10%).

D'autre part, les calculs montrent que le modèle autocohérent n'apporte qu'une faible amélioration dans la prédiction des propriétés thermiques macroscopiques du polycristal. Cette remarque est intéressante dans le sens où l'on peut se contenter d'utiliser les expressions très simples tirées du "modèle de la moyenne directe" pour caractériser les alliages de zirconium.

Les matériaux écrouis n'ayant pas subi de traitement thermique de recuit après déformation, présentent un comportement tout-à-fait original. En effet, il semble que la présence de contraintes résiduelles altère considérablement la déformation thermique du matériau. Il semble que celles-ci se relaxent en partie dans un domaine de températures relativement bas dont les limites ne

sont pas faciles à définir. Les modèles développés ne tenant pas compte de cette présence, ne nous permettent pas dans ce cas, de prédire avec précision le coefficient de dilatation du matériau.

Il semble donc, que la caractérisation des propriétés thermiques des polycristaux d'alliage de zirconium passe par la connaissance de la texture du matériau et dans une moindre mesure, de la forme des grains. Cependant, il s'avère nécessaire de prendre en compte un autre paramètre métallurgique pour être en mesure de prédire avec satisfaction le comportement du zircaloy-4: les contraintes résiduelles.

Nous allons à présent nous intéresser au phénomène de croissance sous irradiation des alliages de zirconium en ayant à l'esprit qu'un certain nombre de paramètres métallurgiques sont nécessaires pour évaluer le comportement de l'alliage. Toute la difficulté réside dans la connaissance des caractéristiques à prendre en compte pour modéliser la propriété étudiée car nous avons vu par exemple, que les contraintes résiduelles ne semblaient pas modifier fondamentalement le comportement en élasticité du zircaloy-4 alors qu'elles jouent un rôle très important pour la dilatation thermique.

Figure II-3 : Cycle thermique utilisé pour les essais de dilatation

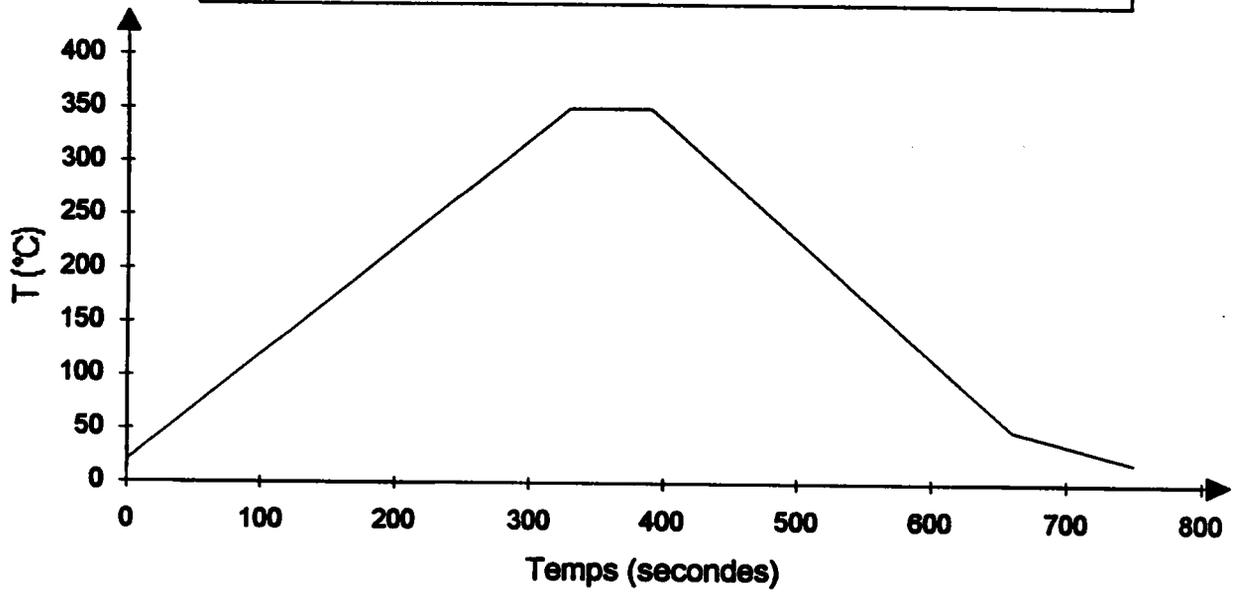


Figure II-4 : Influence de la vitesse de montée en température sur le coefficient de dilatation thermique du matériau Zrrec

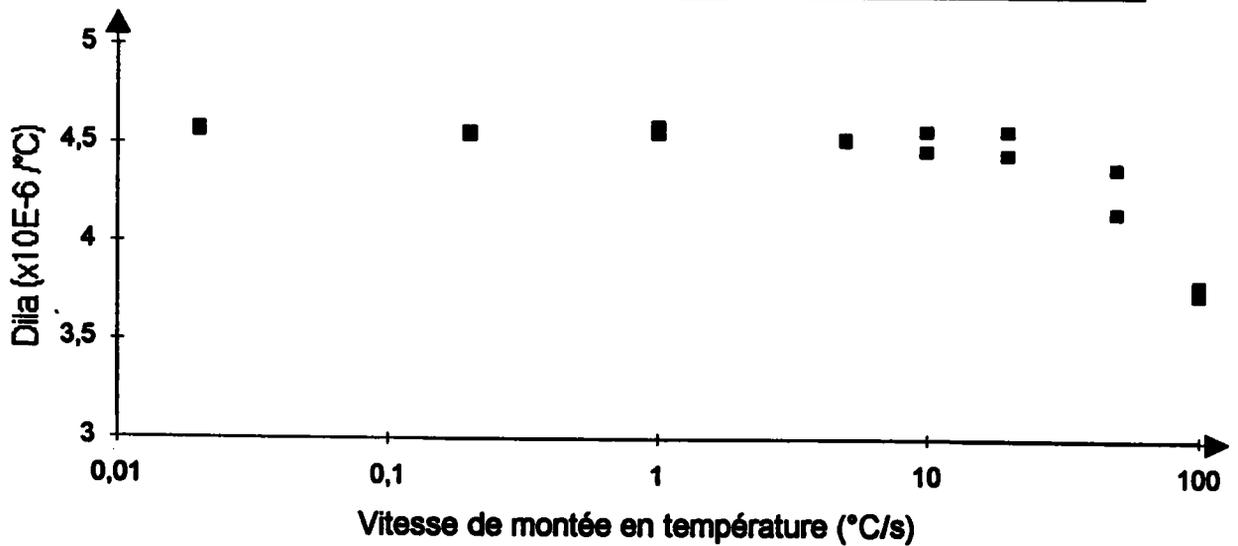


Figure II-5 : Evolution du coefficient de dilatation thermique en fonction de la température pour le ZnTi1

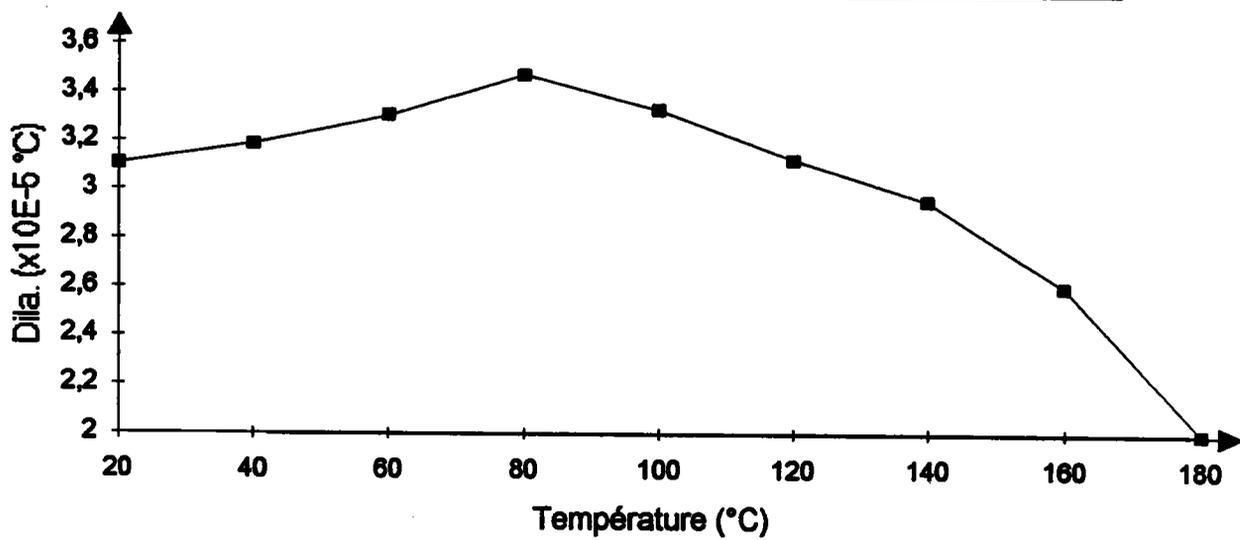


Figure II-6 : Evolution du coefficient de dilatation thermique en fonction de l'angle de désorientation par rapport à l'axe de laminage pour ZnCu1

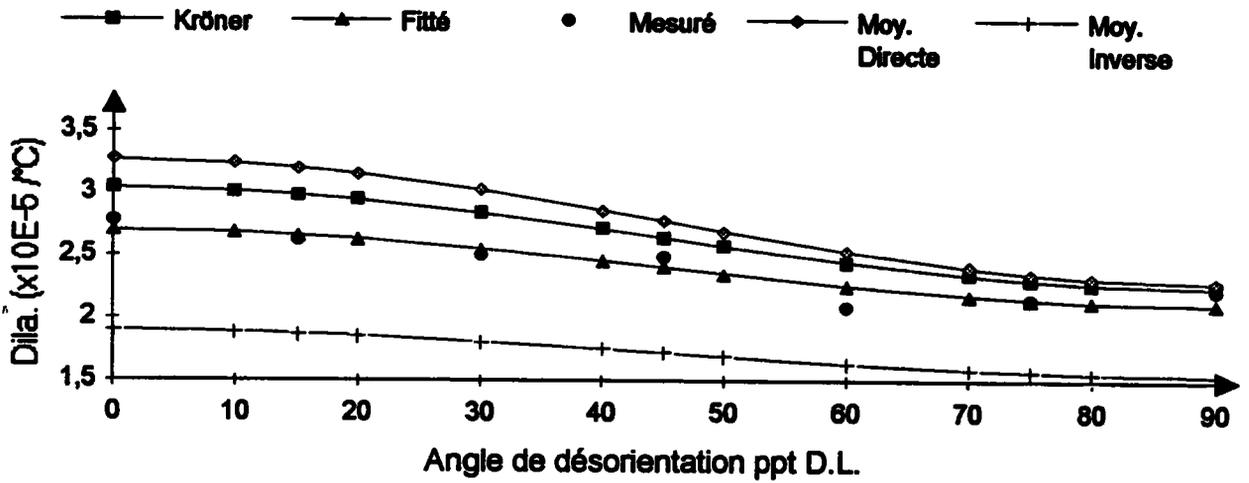


Figure II-7 : Evolution du coefficient de dilatation thermique en fonction de l'angle de désorientation par rapport à l'axe de laminage pour ZnCu2

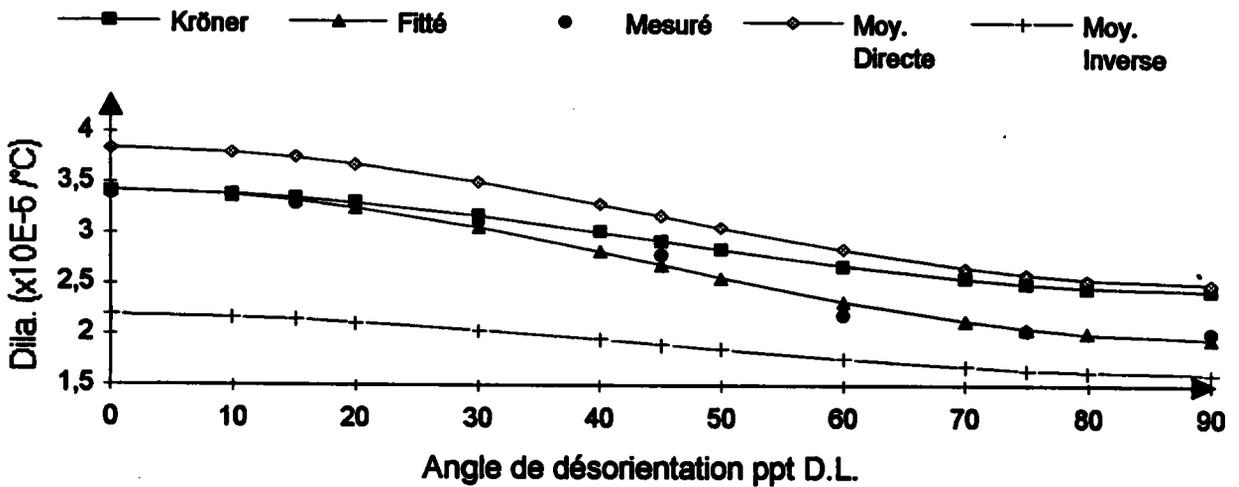


Figure II-8 : Evolution du coefficient de dilatation thermique en fonction de l'angle de désorientation par rapport à l'axe de laminage pour ZnTi1

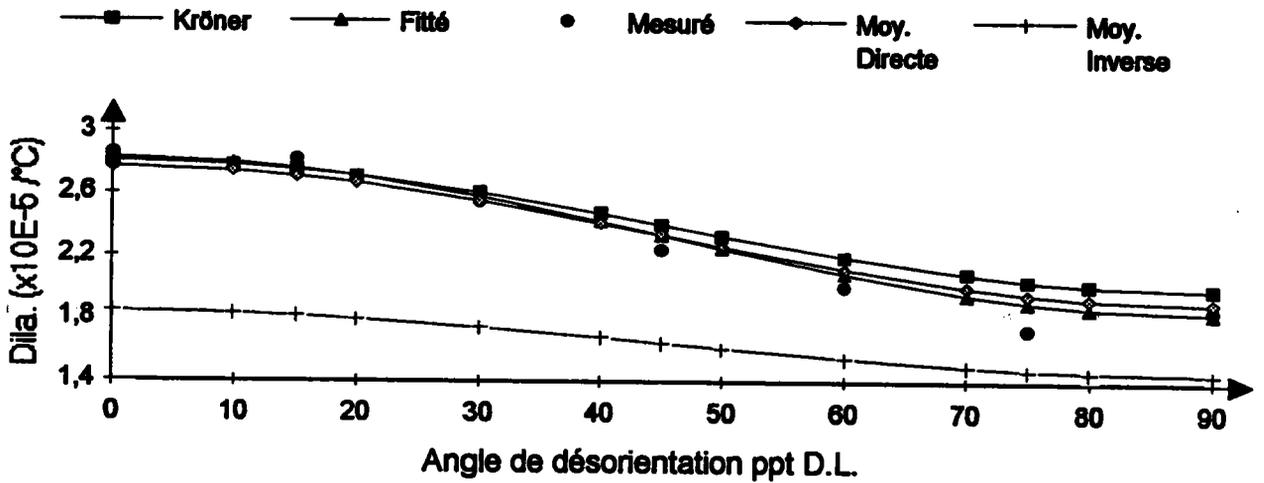


Figure II-9 : Evolution du coefficient de dilatation thermique en fonction de l'angle de désorientation par rapport à l'axe de laminage pour ZnTi2

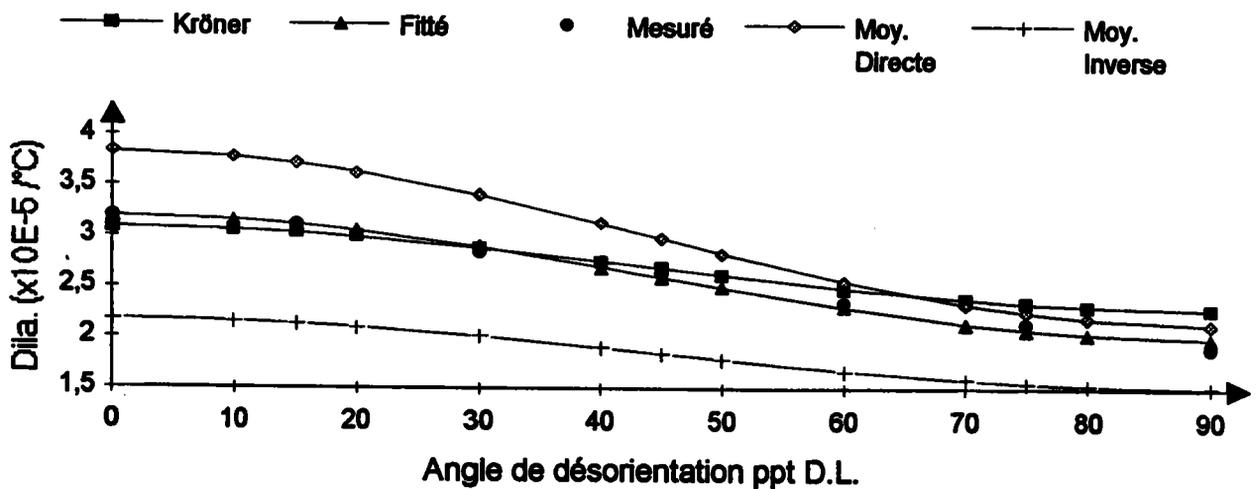


Figure II-10 : Evolution du coefficient de dilatation thermique expérimental en fonction du facteur de Keams pour les tôles de zinc

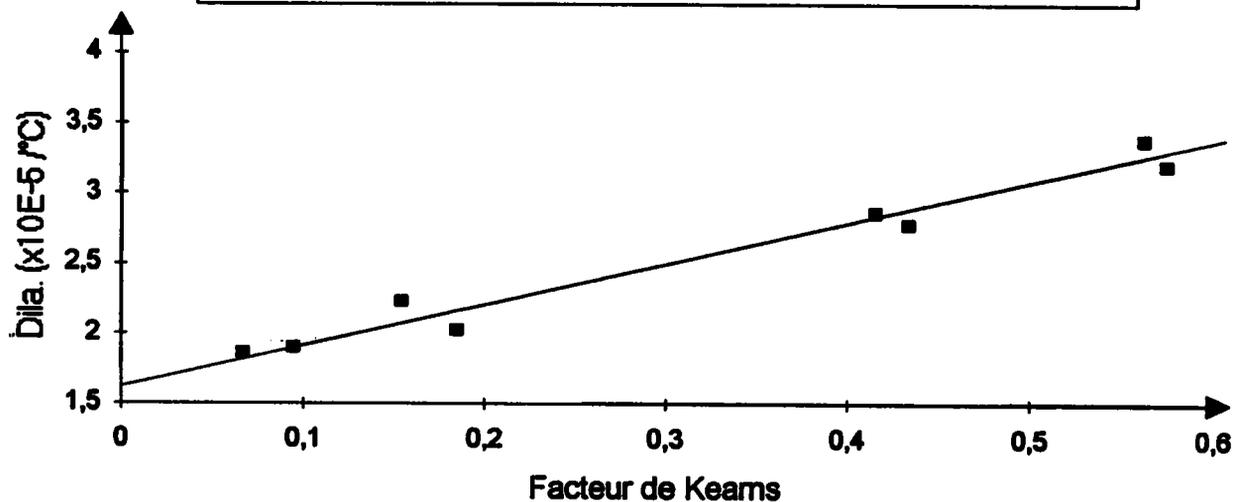


Figure II-11 : Evolution de l'inverse du coefficient de dilatation thermique expérimental en fonction du facteur de Keams pour les tôles de zinc

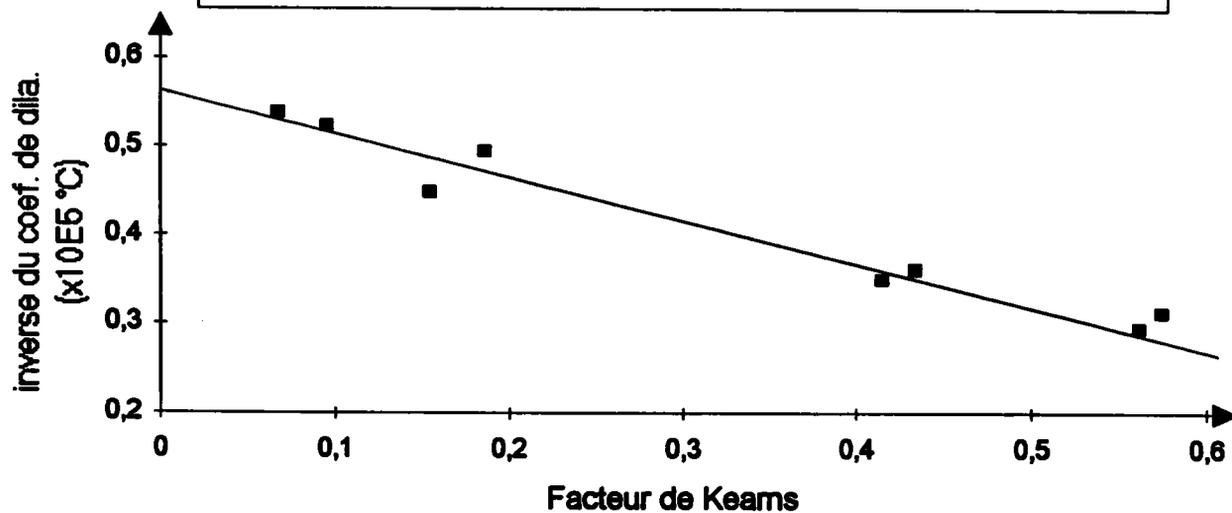


Figure II-12 : Evolution du coefficient de dilatation thermique en fonction de l'angle de désorientation par rapport à l'axe de laminage pour A22F

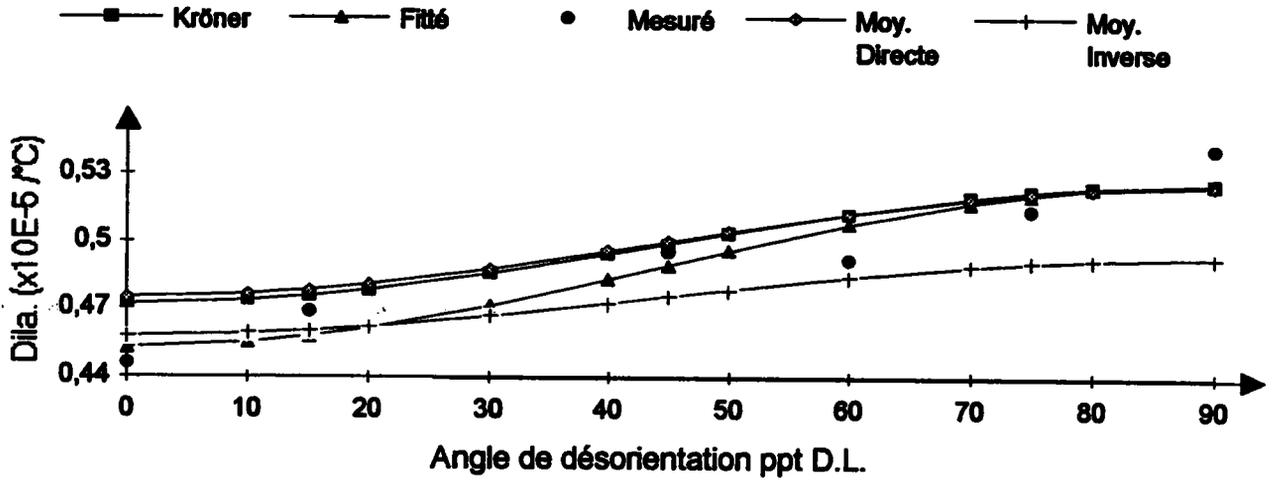


Figure II-13 : Evolution du coefficient de dilatation thermique en fonction de l'angle de désorientation par rapport à l'axe de laminage pour A24F

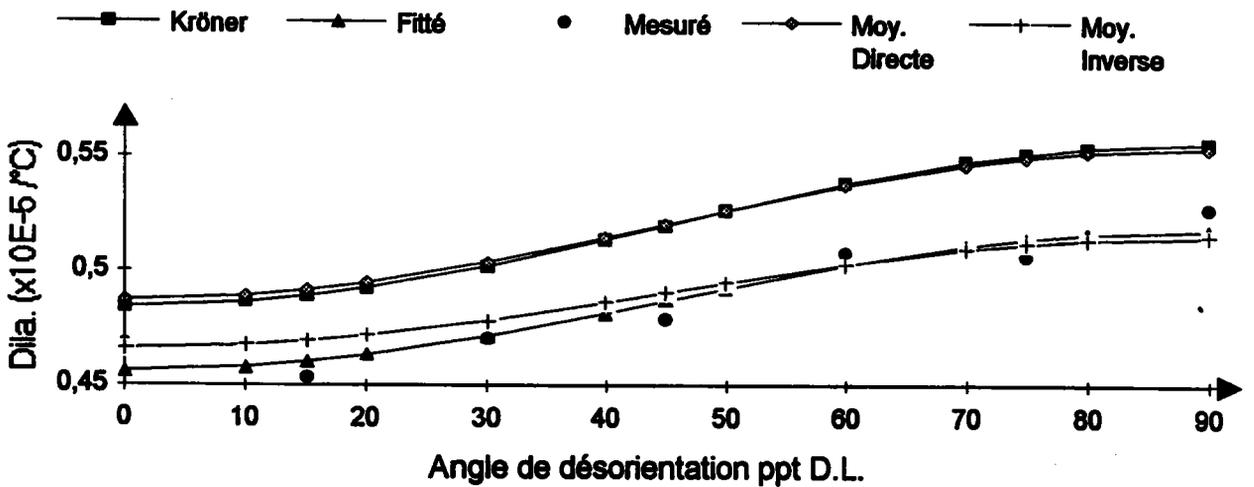


Figure II-14 : Evolution du coefficient de dilatation thermique en fonction de l'angle de désorientation par rapport à l'axe de laminage pour A25F

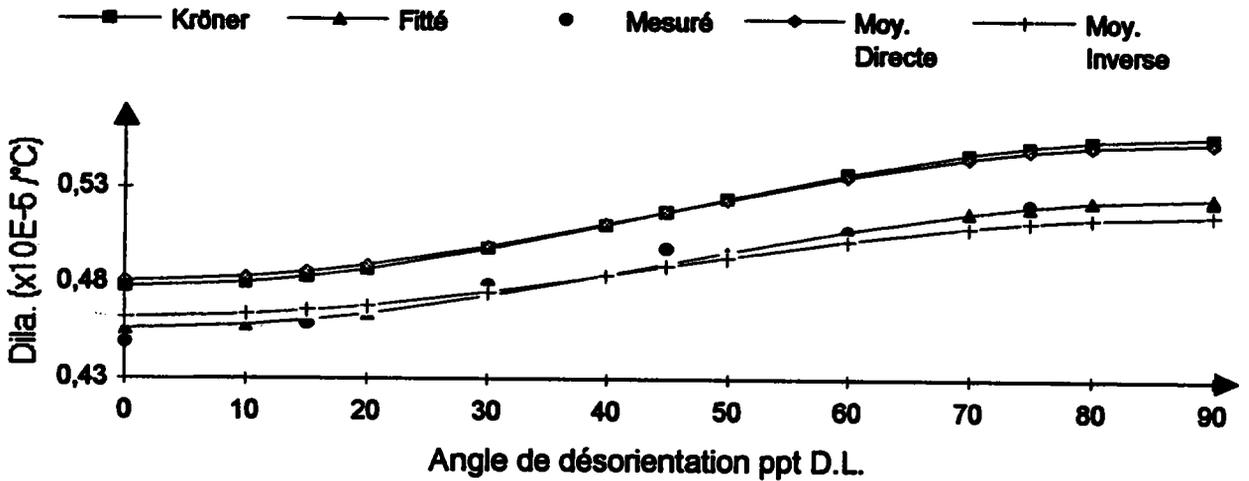


Figure II-15 : Evolution du coefficient de dilatation thermique en fonction de l'angle de désorientation par rapport à l'axe de laminage pour A12F

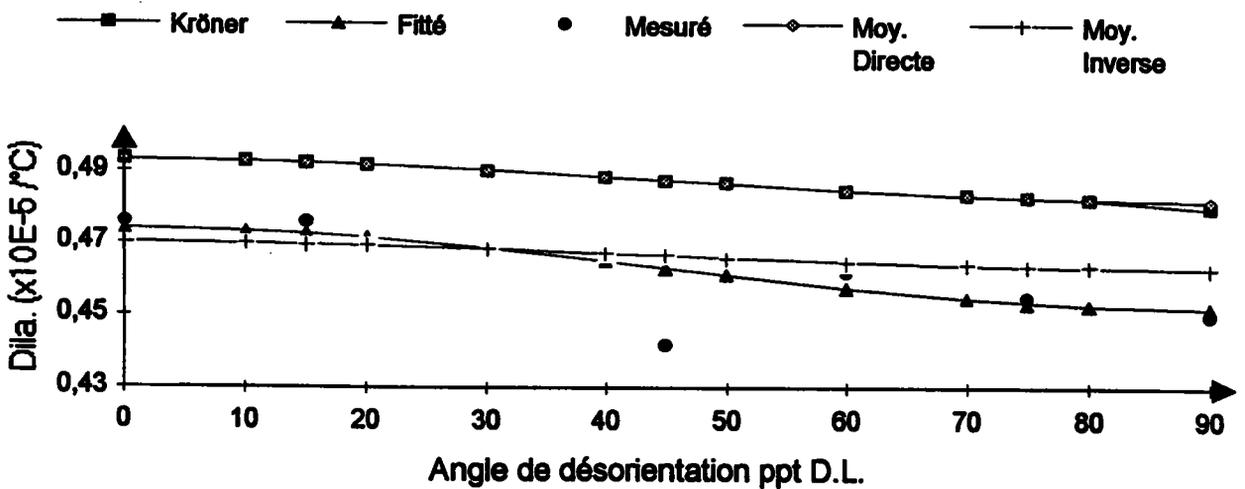


Figure II-16 : Evolution du coefficient de dilatation thermique en fonction de l'angle de désorientation par rapport à l'axe de laminage pour A14F

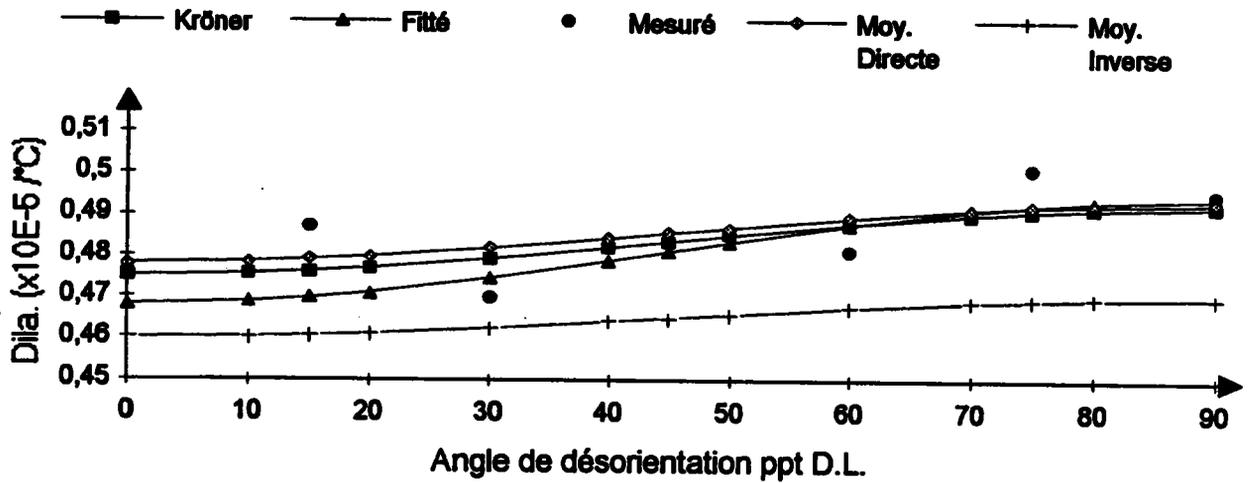


Figure II-17 : Evolution du coefficient de dilatation thermique en fonction de l'angle de désorientation par rapport à l'axe de laminage pour A25F

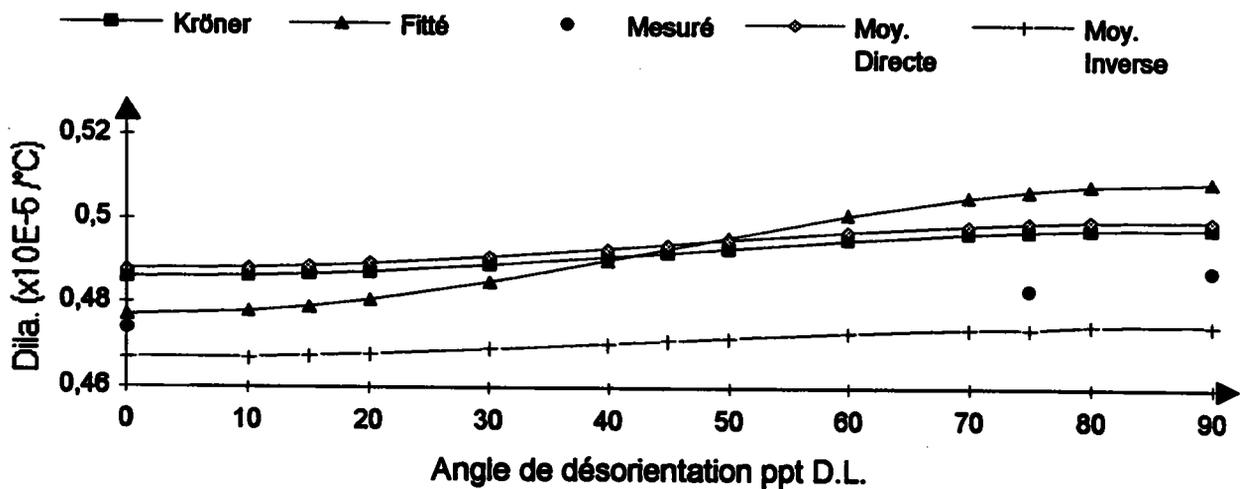


Figure II-18 : Effets du nombre de figures de pôles utilisées pour l'analyse de texture sur la qualité des calculs

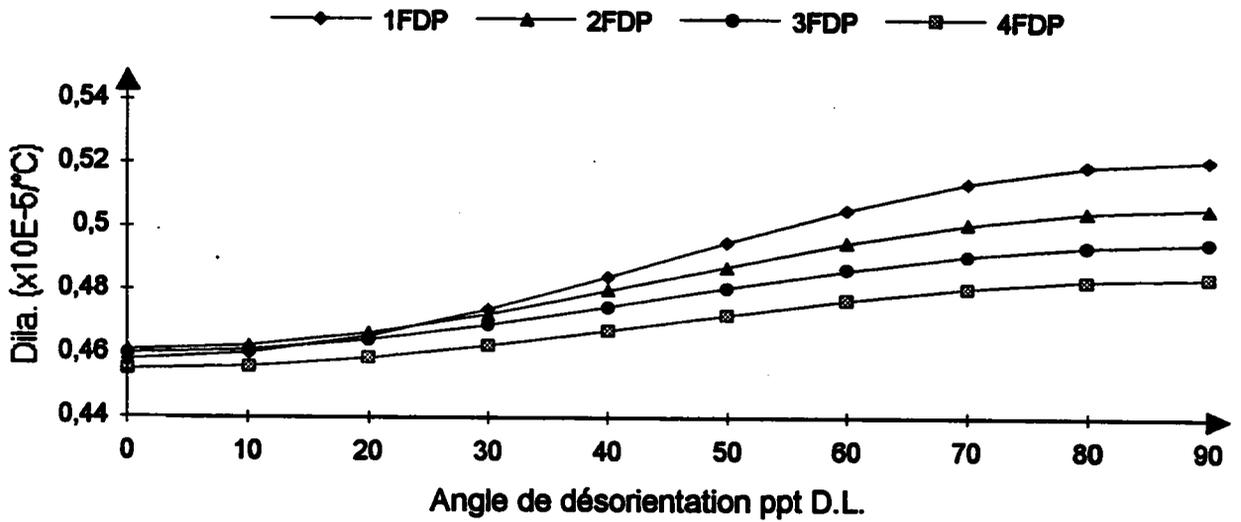


Figure II-19 : Evolution du coefficient de dilatation thermique en fonction de l'angle de désorientation par rapport à l'axe de laminage pour Zr650

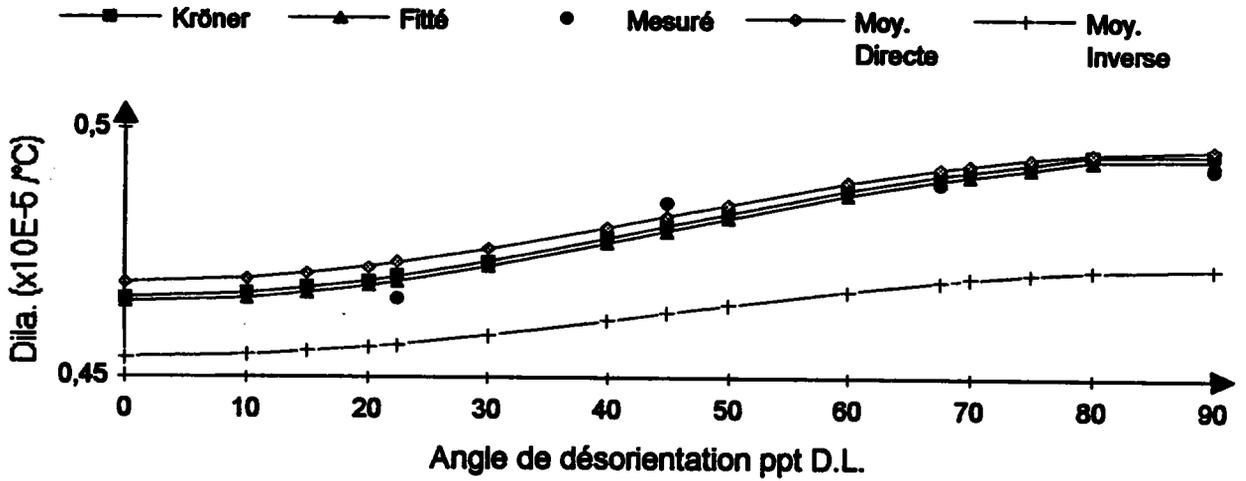


Figure II-20 : Evolution du coefficient de dilatation thermique en fonction de l'angle de désorientation par rapport à l'axe de laminage pour Zr11

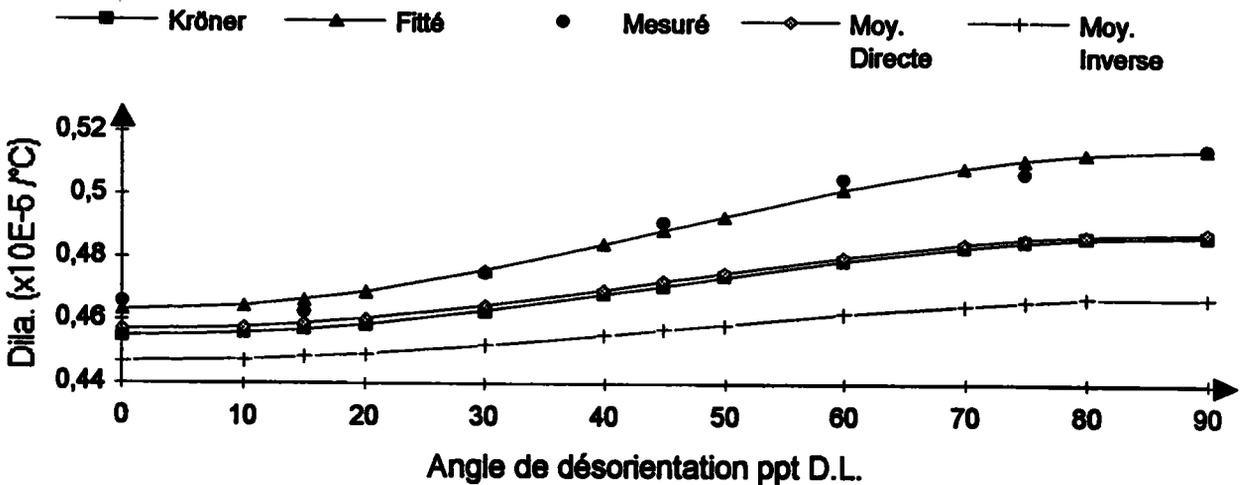


Figure II-21 : Evolution du coefficient de dilatation thermique en fonction de l'angle de désorientation par rapport à l'axe de laminage pour Zrrec

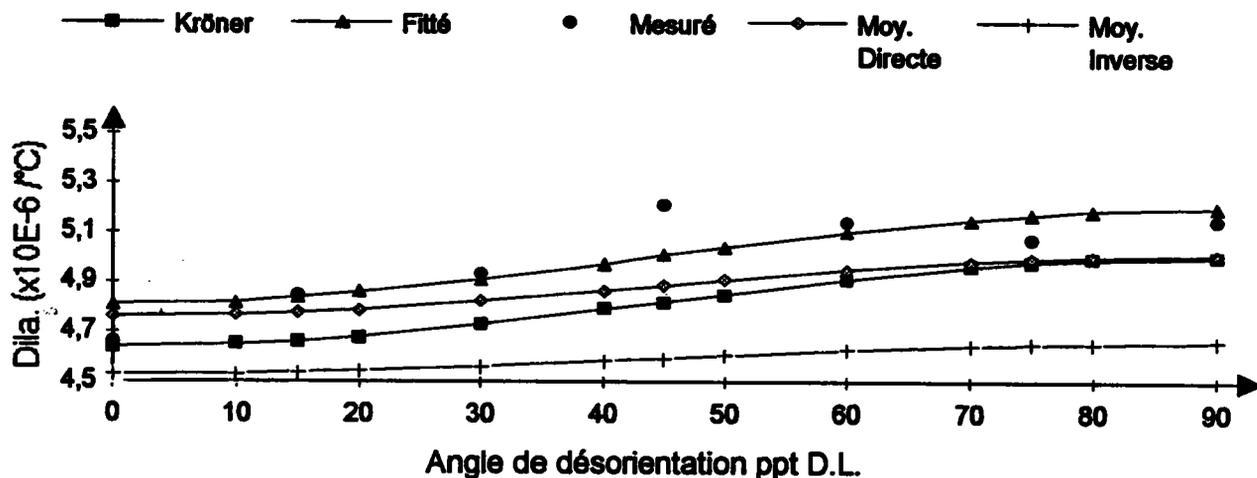


Figure II-22 : Evolution du coefficient de dilatation thermique en fonction de l'angle de désorientation par rapport à l'axe de laminage pour Zrbe

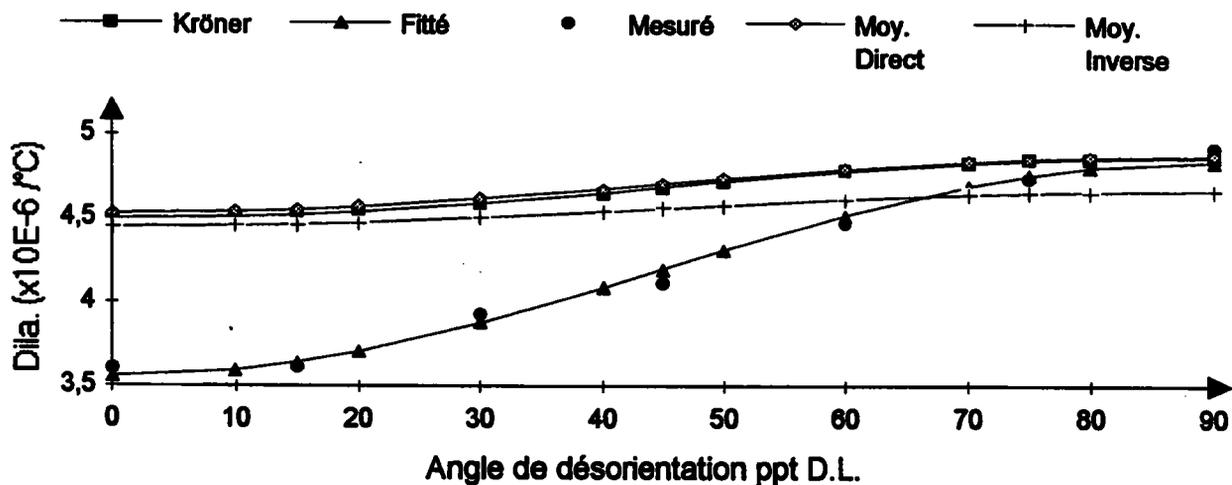


Figure II-23: Evolution du coefficient de dilatation thermique du polycristal avec le facteur de Keams pour les tôles de zircaloy-4

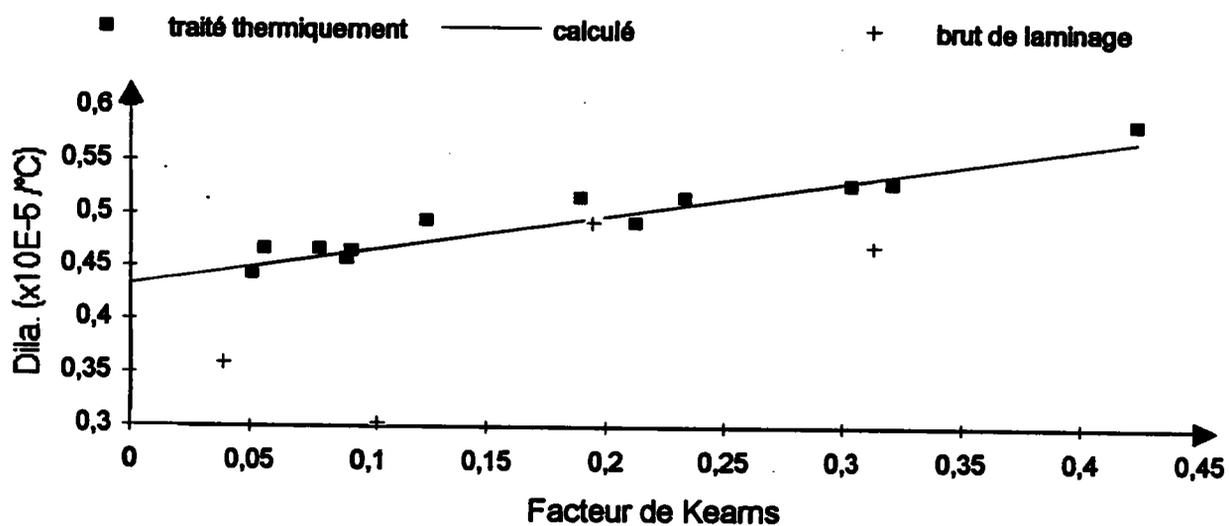


Figure II-24 : Dilatation thermique d'une éprouvette de Zrbe prélevée dans la direction de laminage ( $T_0=20^\circ\text{C}$ )

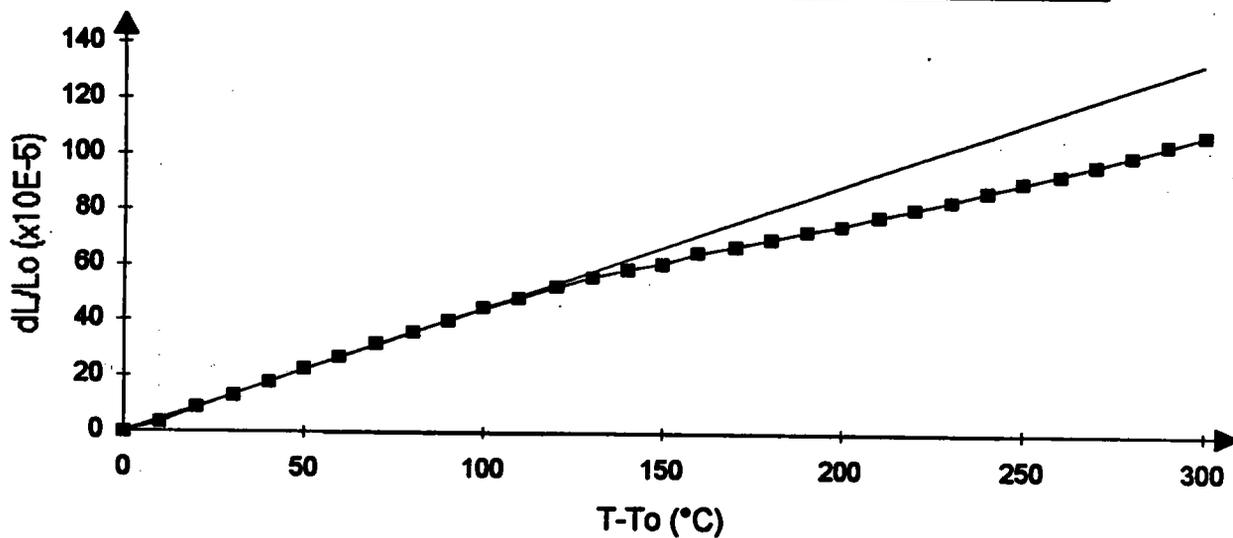


Figure II-25 : Dilatation thermique d'une éprouvette de Zrbe prélevée dans la direction "travers" ( $T_0=20^\circ\text{C}$ )

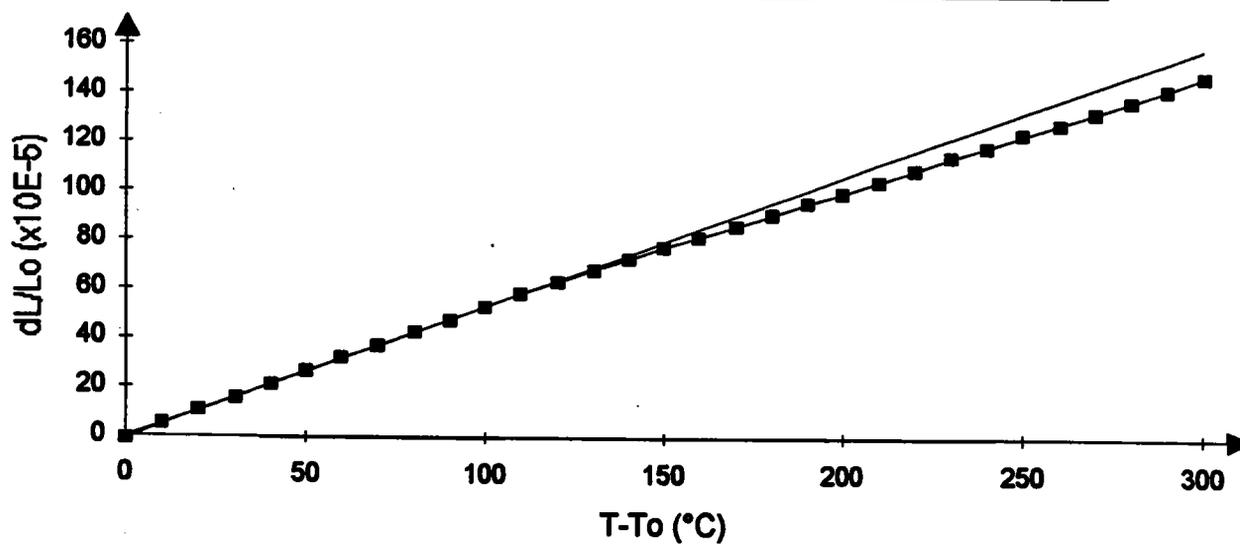


Figure II-26 : Evolution du coefficient de dilatation thermique mesuré à 180°C avec l'angle de désorientation par rapport à l'axe de laminage pour Zrbe

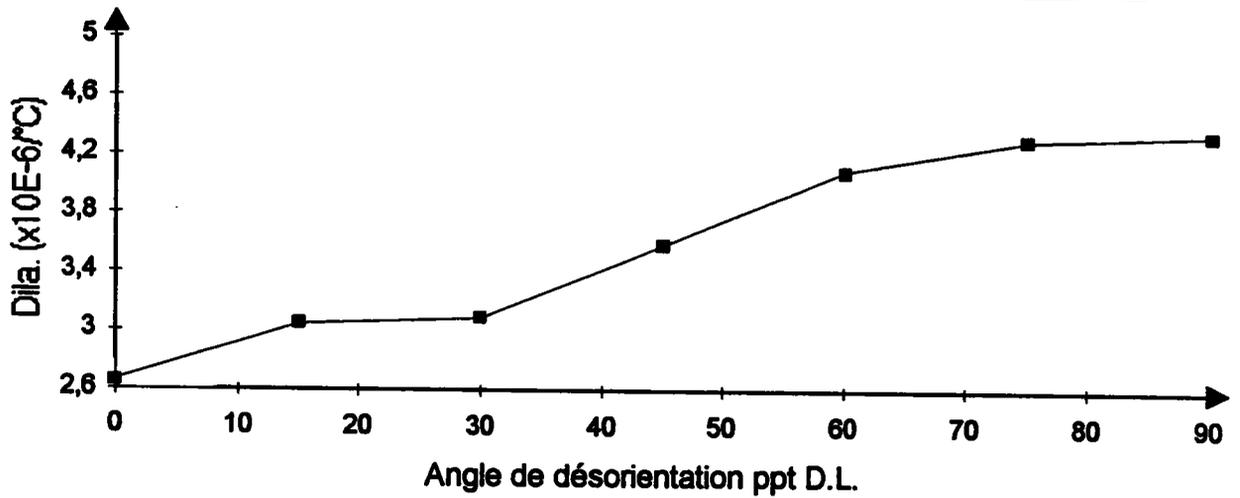


Figure II-27 : Dilatation thermique d'une éprouvette de Zr650 déformée de 10% par traction, prélevée dans la direction de sollicitation (D.L.) ( $T_0=20^\circ\text{C}$ )

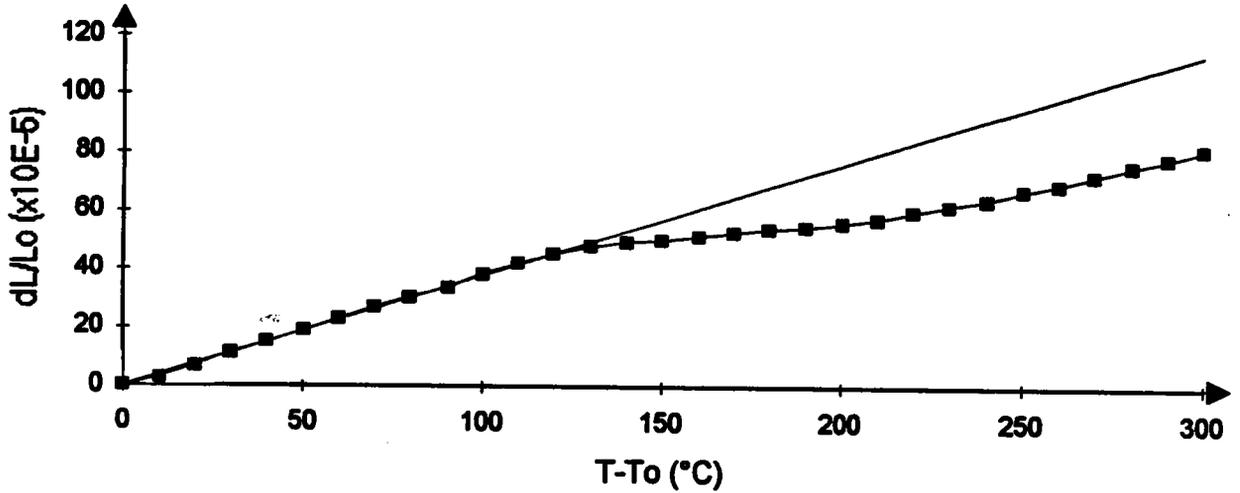
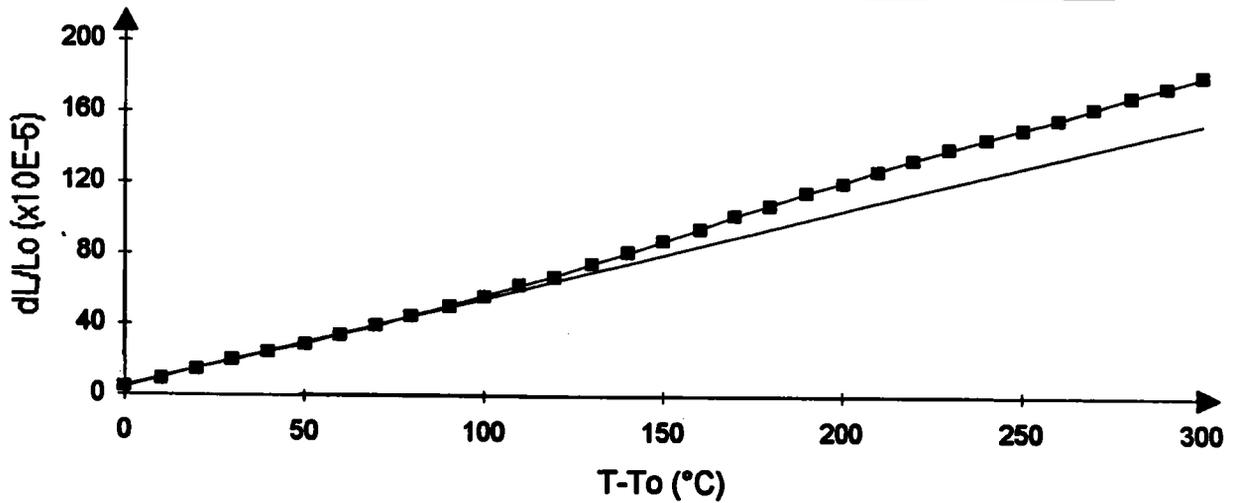


Figure II-28 : Dilatation thermique d'une éprouvette de Zr650 déformée de 10% par traction, prélevée dans une direction perpendiculaire à la sollicitation (D.T.) ( $T_0=20^\circ\text{C}$ )



## **BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE II :**

**ESHELBY J.D. (1957):**

"The determination of the elastic field of an ellipsoidal inclusion, and related problems"

Proc. R. Soc. A241, pp. 376-396 (1957)

**ESHELBY J.D. (1961):**

J.D. Progr. Sol. Mech. II, Amsterdam North Holland (1961)

**HUMBERT M. (1990):**

ICOTOM 9, Avignon Septembre 1990

**HUMBERT M., ESLING C. (1987):**

"Modélisation de la croissance sous irradiation de tubes de zircaloy-4"

Rapport de fin de contrat LM2P-FRAGEMA

**INTERNATIONAL CRITICAL TABLES (1929)**

**KAREMA G. (1989):**

Thèse de doctorat nouveau régime, Université de Metz (1989) X

**KNEER G. (1964):**

"Zur Elastizität vielkristalliner Aggregate mit und ohne Textur"

Dissertation, Technische Hochschule Clausthal (1964)

**KRÖNER E. (1980):**

"Statistical Modelling"

tiré de Modelling Small Deformations of Polycrystals

édité par J. Gittus et J. Zarka, Elsevier Applied Science Publishers (1980)

**SALAUN H., CALLENS (1991):**

Présentation du logiciel CASI (Comportement de l'Assemblage Sous Irradiation)

Document Interne FRAGEMA n° TF.IDC/91/196 (1991)

**Chapitre III:**  
**CROISSANCE SOUS**  
**IRRADIATION**

**NOTATIONS UTILISEES** (dans leur ordre d'apparition dans le texte)**E** : énergie d'un neutron **$\phi t$**  : fluence **$\epsilon_{ij}$**  : tenseur des déformations locales **$E_{ij}$**  : tenseur des déformations locales**R.E.P.** : réacteur à eau pressurisée**T.G.** : tube guide**M.E.T.** : microscope électronique à transmission**F.D.O.** : fonction de densité des orientations**D.L.** : direction de laminage**D.T.** : direction travers **$\beta_{ij}$**  : tenseur des déformations locales à une fluence donnée **$B_{ij}$**  : déformations macroscopiques selon les axes principaux à une fluence donnée**d** : diamètre moyen des grains constituant un polycristal**B.D.** : boucle de dislocations**L.N.C.R.** : laboratoire nucléaire de Chalk River **$F_i$**  : facteurs de Kearns **$F_l, F_t, F_n$**  : facteurs de Kearns pour les directions longue, travers et normale**F.D.P.** : figure de pôles**V** : volume **$\Delta V$**  : variation de volume **$\rho$**  : densité de dislocations**C.E.A.** : commissariat à l'énergie atomique

## **III - CROISSANCE SOUS IRRADIATION**

La troisième propriété étudiée est la croissance sous irradiation. Notre objectif principal, est d'interpréter certains résultats d'essais, réalisés par le C.E.A. en réacteur expérimental, sur deux tôles de zircaloy-4 qui nous ont servies de référence tout au long de notre étude: le zr650 et le zril.

Nous avons constaté dans les deux premières parties, que les propriétés élastiques et de dilatation thermique de ces tôles pouvaient être prédites à partir de modèles prenant en compte principalement, la texture cristallographique et le comportement monocristallin du zirconium. En ce qui concerne les propriétés de croissance sous irradiation, nous allons voir que des modèles du même type ne donnent pas entière satisfaction. Ceci est dû à plusieurs raisons dont les deux principales sont les suivantes:

- La loi de comportement du monocristal isolé n'est pas directement transposable aux grains constituant le polycristal.
- Les paramètres à prendre en compte sont plus nombreux.

Il nous a paru alors indispensable, de procéder à une étude bibliographique permettant de cerner les paramètres influençant les propriétés de croissance sous irradiation. A partir des observations et des conclusions auxquelles nous ont mené cette étude bibliographique, nous avons d'une part, expliqué le comportement des tôles de zr650 et de zril et nous avons tenté d'autre part, de mettre en avant les principaux impératifs à respecter pour établir une bonne modélisation.

**NB:** Toutes les figures concernant cette troisième partie se trouvent en fin de chapitre

### **III - 1 - INTRODUCTION**

Il est nécessaire avant de se pencher sur l'étude des paramètres régissant la croissance sous irradiation, de présenter de manière un peu plus précise le problème qui nous occupe. Nous en profitons pour définir un certain nombre de grandeurs couramment utilisées dans le domaine de l'irradiation. Nous nous arrêtons ensuite sur les intérêts industriels d'une telle étude avant de faire un bref historique sur la croissance sous irradiation.

#### **III - 1 - 1 - Présentation du problème**

L'irradiation d'un alliage de zirconium se concrétise par une modification complète du matériau, aussi bien au niveau de la microstructure (création de défauts ponctuels et de boucles de dislocations, modification de la structure et de la nature des précipités) qu'à celui des dimensions (croissance). Ces changements, qui engendrent une variation des propriétés mécaniques du matériau pendant l'irradiation, peuvent constituer un critère de choix de la nuance utilisée en réacteur.

La croissance sous irradiation peut être définie comme étant la déformation d'un matériau soumis à un flux de particules en l'absence d'une sollicitation thermique ou mécanique. Les particules sont, dans le cas présent, des neutrons rapides ( $E > 1\text{MeV}$ ) semblables à ceux qui sont produits dans les réacteurs nucléaires. Celles-ci, en percutant le matériau, cèdent localement de l'énergie aux atomes qui sont déplacés de leur site. Ce déplacement n'est effectif que si l'énergie apportée par le neutron est supérieure à une certaine valeur dite énergie de seuil. L'atome déplacé peut se replacer dans un site interstitiel en laissant derrière lui une lacune: il y a création d'une paire de Frenkel. Le problème posé est alors de savoir comment va évoluer cette paire lacune-interstitiel:

- Recombinaison et annihilation de la paire.
- Migration préférentielle des particules vers certains puits tels que les dislocations, les boucles de dislocations, les précipités, les joints de grains, de sous-grains ou de mâcles...
- Accumulation de lacunes ou d'interstitiels pour former des amas (liée au phénomène de cascades).

Pour fixer les ordres de grandeurs, notons que pour une même "dose de neutrons" et à la même température, un polycristal d'uranium se déforme de quelques dizaines de %, un graphite de quelques % et un zircaloy de quelques dixièmes de %. Ces derniers ne peuvent être négligés pour les mêmes raisons que celles citées au paragraphe II-1-1.

Les faibles déformations absolues des alliages de zirconium rendent la tâche de l'expérimentateur, à la recherche de la meilleure précision, très difficile. D'autant plus difficile, que le milieu dans lequel se font les tests l'oblige à prendre un grand nombre de précautions au niveau du contrôle et de la surveillance de l'essai. D'autre part, les essais de croissance sous irradiation nécessitent des moyens très spécifiques et des temps très longs (voir paragraphe III-2-1) qui multiplient le coût des manipulations.

La conjugaison de ces différents facteurs explique pourquoi les résultats d'essais de croissance sous irradiation sont une denrée rare. Ainsi, on ne peut pas se permettre d'étudier ce phénomène sans réunir les résultats présentés dans la littérature. Cette source rend l'étude quelque peu dissymétrique dans le sens où nous ne disposons pas systématiquement de tous les paramètres nécessaires à une bonne caractérisation du matériau. De plus, la majorité des essais ont été effectués sur des tubes et non pas sur des tôles. Toutefois, il semble que les mesures soient indépendantes de la forme de l'éprouvette utilisée lors des essais de croissance sous irradiation. C'est pourquoi, nous avons tenu compte de tous les résultats d'essais disponibles quelle que soit la géométrie de l'échantillon.

### III - 1 - 2 - Définition de certaines grandeurs et unités

**Grandissement sous irradiation:** Le grandissement sous irradiation est la somme de la croissance sous irradiation et de la déformation en fluage sous irradiation lorsqu'une contrainte est appliquée sur l'éprouvette. On ne confondra donc pas le grandissement et la croissance.

**Flux:** C'est la quantité de neutrons traversant une surface donnée par unité de temps. Il est en général donné en neutrons/m<sup>2</sup>.s (n/m<sup>2</sup>.s).

**Fluence:** La fluence désigne la quantité ou la dose de neutrons ayant traversé une unité de surface du matériau (n/m<sup>2</sup>). De manière générale la déformation d'un matériau sous irradiation est donnée en fonction de la fluence souvent notée  $\phi t$ .

**Neutrons rapides:** Les neutrons rapides ont une énergie supérieure au Mégaélectronvolt.

**d.p.a.:** dpa est l'abréviation de déplacement par atome ou "displacement per atom". La valeur du dpa, qui indique le nombre moyen de changements de site pour un atome donné, est fonction du spectre énergétique du flux de neutrons utilisés, du temps et de l'énergie seuil de déplacement d'un atome (estimé à 25 eV pour les atomes de zirconium). On estime qu'un dpa correspond à une fluence de  $5 \times 10^{24}$  n/m<sup>2</sup>.

### III - 1 - 3 - Intérêts industriels

Les alliages de zirconium sont utilisés dans l'industrie nucléaire en raison de leur faible section de capture des neutrons (0.18 barn), de leur bonne tenue à la corrosion en eau et de leurs propriétés mécaniques suffisantes.

Cependant, les sociétés du secteur nucléaire cherchent à améliorer les alliages afin d'augmenter la durée de vie des assemblages combustibles. Ceci nécessite l'amélioration de la tenue à l'oxydation et à l'hydruration de l'assemblage mais aussi la réduction de la croissance et du grandissement des alliages utilisés. En effet, il est indispensable au niveau des grilles de l'assemblage, de pouvoir estimer la croissance latérale des tôles pour éviter tout problème de fonctionnement et de manutention. De plus, les grilles maintenant les "crayons combustibles" par l'intermédiaire de ressorts rapportés, il est utile de pouvoir estimer l'évolution des forces exercées par les ressorts sur les crayons. Le problème de croissance devient majeur dans l'évaluation du grandissement sous irradiation des tubes guides (T.G.). Or, le grandissement du T.G. peut fixer à lui seul, la durée de vie de l'assemblage.

Il est par conséquent clair que l'un des pôles de recherche principaux de l'industrie du combustible nucléaire est la caractérisation de la croissance sous irradiation. Toutefois, un essai de caractérisation est si coûteux et si long en temps, que le désir de réaliser des prévisions à l'aide de modèles adaptés se fait de plus en plus sentir. C'est pourquoi, nous avons tenté premièrement d'interpréter les essais du C.E.A., et en second lieu, de cerner les paramètres influençant la croissance sous irradiation dans l'optique d'élaborer un modèle fiable pouvant donner un ordre de grandeur et le sens (contraction ou allongement) de la croissance des matériaux utilisés ou étant susceptibles d'être utilisés en réacteur.

### III - 1 - 4 - "Historique" de la croissance sous irradiation neutronique

Notre but n'est pas de faire un historique exhaustif de la croissance sous irradiation neutronique, mais plutôt de citer un certain nombre de travaux qui nous permettent de cerner les préoccupations des recherches concernant l'étude des alliages de zirconium.

#### III - 1 - 4 - 1 - Croissance du Graphite

L'observation au microscope électronique à transmission (M.E.T.) de monocristaux de graphite (symétrie cristalline hexagonale) irradiés par des neutrons rapides, montre que les atomes de carbone sont déplacés de leur site et ont tendance à se replacer dans le réseau pour former de nouveaux plans atomiques parallèles aux plans de base [G.K.Williamson, 1962]. Ce phénomène se traduit par un allongement selon l'axe c et une contraction selon la direction a du monocristal sans qu'il y ait forcément un changement homogène de paramètres de maille (voir figure III-1). La vitesse de croissance est fonction du flux, de la fluence et de la température.

Connaissant les variations de dimensions du monocristal et la texture cristallographique du polycristal de graphite, on suppose que la croissance du matériau peut être connue en effectuant une moyenne sur l'espace des orientations pondérée par la FDO du tenseur de déformation monocristalline. R.J.Price et J.C.Bokros [1964] ont appliqué ce type de raisonnement à différents graphites afin de prédire la croissance sous irradiation des polycristaux de graphite. La comparaison des résultats expérimentaux et des valeurs qu'ils ont calculées est reportée sur les figures III-2 et III-3. Les mesures ont été effectuées dans les directions longue et travers à 425, 475 et 625°C alors que les calculs ont été faits à 450°C et 650°C en raison du manque de données monocristallines. Les matériaux testés sont fabriqués par la National Carbon Company par extrusion.

La bonne corrélation entre les courbes expérimentales et les courbes calculées à partir des données de croissance monocristalline, semble confirmer les hypothèses présentées ci-dessus soulignant l'importance du comportement monocristallin et de la texture cristallographique dans le phénomène de croissance sous irradiation des polycristaux de graphite.

#### III - 1 - 4 - 2 - Croissance de l'Uranium

La croissance de polycristaux d'uranium  $\alpha$  (matériau à symétrie cristalline orthorhombique) s'accompagne de déformations très importantes qui se font sans changement de volume pour des températures inférieures à 400°C [Kittel et al., 1956]. On a tenté d'expliquer ce phénomène de croissance à partir de modèles théoriques faisant intervenir toute une série de mécanismes physiques: déformation plastique anisotrope, diffusion anisotrope des défauts ponctuels vers les joints de grain, condensation anisotrope des défauts ponctuels sur les boucles de dislocations...

Finalement, l'utilisation du M.E.T. a permis de mettre en évidence la formation de boucles de dislocations sur les plans (110) et (023), sources de déformation anisotrope: allongement selon la direction [010] et contraction dans la direction [100], sans changement de dimension dans la direction [001]. La plupart des essais ont été effectués sur des matériaux polycristallins pour lesquels il semble également que la croissance puisse être vue comme la moyenne sur l'espace des orientations pondérée par la F.D.O. de la déformation locale des grains.

Ainsi, l'étude de la croissance sous irradiation de l'uranium  $\alpha$ , a permis de mettre en évidence, tout comme pour le graphite, l'importance de la texture cristallographique. Celle-ci permet, connaissant le comportement sous irradiation du monocristal, de prédire avec satisfaction les propriétés de croissance des polycristaux d'uranium  $\alpha$ .

#### III - 1 - 4 - 3 - Résultats expérimentaux sur monocristaux de zirconium

La première étape dans l'étude du comportement du zirconium se résume bien entendu à la caractérisation de la croissance sous irradiation des monocristaux. Connaissant la loi de comportement du monocristal, on pourrait mettre en oeuvre des modèles de calcul prévisionnel identiques à ceux utilisés pour l'uranium  $\alpha$  et le graphite.

Les premières mesures dont on dispose dans la littérature scientifique ont été publiées par S.N.Buckley en 1962 sur des monocristaux de zirconium irradiés à 363K par des neutrons rapides (figure III-4). Buckley a testé le comportement du monocristal dans deux directions: selon l'axe a et selon l'axe c.

Sur les courbes représentant l'allongement en fonction de la fluence, on note deux stades de croissance, le premier est baptisé "transitoire" car la vitesse de déformation varie et le second dit stationnaire où la vitesse est quasiment constante. L'allure des graphes est à l'origine de la forme de la loi de comportement habituellement adoptée:

$$\varepsilon = A(\phi t)^n \quad \text{\{III-1\}}$$

Buckley, à travers son étude, a mis en évidence la croissance positive selon l'axe a et la contraction selon l'axe c sans changement de volume. Il est arrivé aux conclusions, largement reprises par la suite, que les interstitiels se condensaient sur les boucles de dislocations (B.D.) reposant sur les plans prismatiques (10.0) alors que les lacunes disparaissaient sur des B.D. parallèles aux plans de base de la maille hexagonale. Ceci étant équivalent à un transfert d'atomes des plans de base vers les plans prismatiques.

D'autres études suivirent et notamment celle entreprise au Laboratoire Nucléaire de Chalk River (L.N.C.R.) [G.J.C. Carpenter et al., 1981]. On fabriqua des monocristaux de zirconium d'une grande pureté à partir de la technique développée par Akhtar et Teghtsoonian [1971] et on apporta un très grand soin à la procédure expérimentale d'irradiation. On opta pour des températures de 353 et 553K, la fluence atteinte avoisina les  $5 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$ .

Les conclusions furent les mêmes que celles de Buckley à savoir qu'on observa une contraction selon l'axe c et un allongement selon l'axe a mais avec un changement de volume dont l'amplitude  $\frac{\Delta V}{V}$  était du même ordre de grandeur que la déformation. De plus, on constata que pour des fluences supérieures à  $2.5 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$  et pour une température de 553 K, un troisième stade de croissance apparaissait où la vitesse de déformation augmentait très rapidement (figure III-5). Ce troisième stade est appelé "growth breakaway". On retiendra que le phénomène de growth breakaway peut avoir lieu en l'absence de joints de grain et de contraintes résiduelles.

Les études de Buckley et du L.N.C.R. montrent donc que l'irradiation d'un monocristal de zirconium engendre une contraction selon l'axe c et un allongement selon l'axe a. Il est délicat de vérifier si le phénomène s'accompagne ou non d'un changement de volume, d'autant plus qu'il est expérimentalement difficile de suivre l'évolution du volume. De plus, S.N.Buckley explique physiquement le phénomène de croissance sous irradiation des monocristaux de zirconium en invoquant un transfert d'atomes des plans de base vers les plans prismatiques illustré par la création de B.D. interstitielles et lacunaires respectivement sur les plans (10.0) et (00.2) (figure III-6).

#### III - 1 - 4 - 4 - Premières mesures sur polycristaux de zirconium

Les conclusions de Buckley furent très rapidement étendues au polycristal et on supposa que les observations faites sur le monocristal étaient valables pour les grains composant le matériau. On aboutit alors à la relation bien connue où l'on suppose qu'il y a conservation du volume:

$$E_i \propto 1 - 3F_i \quad \text{\{III-2\}}$$

$E_i$  désigne la déformation macroscopique dans la direction i et  $F_i$  le facteur de Kearns, relatif à l'axe c, dans la même direction. Le facteur de Kearns est représentatif de la proportion de grains ayant leur axe c proche de la direction macroscopique i et peut être défini d'un point de vue statistique comme étant le moment d'ordre deux de la fonction de densité de pôles (0001) par rapport à un axe défini.

#### III - 1 - 4 - 5 - Conclusions

Les observations effectuées sur le graphite et l'uranium assoient notre démarche qui consiste à modéliser la croissance sous irradiation des alliages de zirconium à partir des paramètres texture cristallographique et comportement du monocristal.

Le comportement du monocristal de zirconium est connu grâce aux essais dont les résultats ont été publiés par Buckley [1962] ou Carpenter [1981]. D'autre part, l'importance fondamentale de la texture cristallographique a été confirmée par les premières mesures réalisées sur polycristal de zirconium.

Il semble donc légitime, d'appliquer des modèles semblables à ceux décrits dans les chapitres I et II pour prédire les propriétés de croissance sous irradiation des alliages de zirconium.

C'est ce que nous allons faire à présent dans le cas d'un alliage de zircaloy-4 se trouvant dans deux états métallurgiques différents: le Zr650 et le Zr1.

### III - 2 - RESULTATS EXPERIMENTAUX

La campagne d'essais que nous allons décrire, s'est déroulée dans un réacteur expérimental dénommé SILOE. Elle a débuté en juin 1980 pour se finir au cours de l'année 1982 et concerne notamment des tôles de zircaloy-4 dans différents états métallurgiques. Les états qui nous intéressent, ont été caractérisés en élasticité et dilatation thermique:

- Le Zr650, recristallisé 3 heures à 650°C.
- Le Zr1, détendu 24 heures à 460°C.

Il nous semble indispensable dans un premier temps d'exposer les principales caractéristiques du processus expérimental afin de souligner les qualités, les défauts et les difficultés d'une telle démarche [M.Bellaïche, 1984], [A.Baffert et al., 1983], [P.Morize, 1982].

#### III - 2 - 1 - Démarche expérimentale

La forme des éprouvettes utilisées est représentée sur la figure III-7. Sur chaque éprouvette, six repères gravés par microbillage déterminent trois longueurs  $L_1$ ,  $L_2$  et  $L_3$  mesurées cinq fois à chaque étape de l'irradiation. Les éprouvettes sont placées dans des porte-échantillons, solidaires d'une même tige de maintien, situés les uns au-dessus des autres.

Le flux de neutrons à l'intérieur du réacteur SILOE ( $E > 1\text{MeV}$ ) n'est pas uniforme. La dose de neutrons reçue par chaque éprouvette dépend fortement de sa position verticale dans le dispositif d'irradiation. Cette remarque est illustrée sur le tableau III-1, où nous avons reporté la fluence en fonction de l'étage où sont positionnées les éprouvettes. L'inconvénient de ce procédé est qu'il est nécessaire d'estimer de façon très précise le flux de neutrons à chaque étage, l'avantage en est que l'on mesure simultanément des déformations correspondant à différentes fluences.

cycle	1	2	3	4	5	6
temps (heures)	874	1443	2317	4913	6356	7230
étage 1	3.82	7.90	11.70	27.30	35.20	39.20
étage 2	4.62	9.62	14.24	32.80	42.42	47.04
étage 3	5.61	10.34	15.95	35.20	45.54	51.15
étage 4	5.50	10.28	15.78	35.10	45.38	50.88
étage 5	5.27	9.59	14.86	32.70	42.30	47.56
étage 6	4.69	8.16	12.85	26.50	34.66	39.35

Tableau III-1: Fluence exprimée en  $10^{24}$  n.m<sup>-2</sup> en fonction de la position dans la pile, pour différents temps d'irradiation.

L'irradiation des échantillons de Zr650 et Zr1 est effectuée en milieu "neutre" pour éviter les problèmes de corrosion et d'hydruration qui peuvent contribuer à la déformation du matériau. Ce milieu est constitué d'un mélange liquide de sodium et de potassium (le NaK). La température moyenne est d'environ 588 K mais en pratique, elle oscille selon la position de l'éprouvette entre 564 et 591 K. Signalons que malgré les précautions qui ont été prises au niveau du choix du milieu d'irradiation, les éprouvettes présentent une surface oxydée par le NaK, après irradiation.

Les mesures de déformation sont effectuées à la fin de chaque cycle. Le réacteur est dès lors arrêté, on retire les éprouvettes devant être caractérisées et l'on redémarre l'essai. Il est difficile de savoir exactement quelles sont les conséquences d'une descente et d'une montée en température, ainsi que celles d'une suspension temporaire d'irradiation sur le comportement du matériau au cours des cycles suivants. Toutefois, on estime jusqu'à preuve du contraire, que ces effets sont négligeables pour une irradiation effectuée à 588 K. Notons, cependant, qu'il faut se méfier des fausses évidences car P.M. Kelly [1973] avait émis l'hypothèse que la croissance sous irradiation était le fruit de la relaxation des contraintes créées au cours de la montée en température. Une telle hypothèse, si elle était vérifiée, rendrait inadéquate la procédure expérimentale utilisée. En fait, les arguments de P.M. Kelly furent réfutés car les monocristaux, où théoriquement il ne se développe pas de contraintes internes, croissent également sous irradiation. Mais, il est indéniable que pour un essai effectué à plus haute température ( $T > 700\text{K}$ ), des problèmes liés à la création de contraintes thermiques sont à envisager [S.R. MacEwen et C. Tomé, 1987], [S.R. Mac Ewen et al., 1989].

### III - 2 - 2 - Résultats et Analyse

#### III - 2 - 2 - 1 - Résultats

Les mesures ont été effectuées dans les directions longue et travers pour le Zr650 et le Zr1. La variation de densité a elle aussi été suivie tout au long de l'essai. Cependant, l'oxydation des échantillons par le NaK a rendu nécessaire la correction des valeurs de densité obtenues [P. Morize et al., 1985]. Rappelons que ces deux états métallurgiques sont issus de la même tôle et que seul leur dernier traitement thermique les différencie. Cette différence de traitement thermique se traduit clairement du point de vue textural et microstructural (tableau III-2, mesures effectuées au LM2P).

état métallurgique	Zr1	Zr650
	détendu	recristallisé
$F_l$	0.070	0.093
$F_t$	0.161	0.213
$F_n$	0.769	0.694
$D_l$	14 $\mu\text{m}$	11 $\mu\text{m}$
$D_t$	9 $\mu\text{m}$	10 $\mu\text{m}$
$D_n$	8 $\mu\text{m}$	10 $\mu\text{m}$

Tableau III-2: Facteurs de Kearns, taille moyenne des grains selon les axes de la tôle.

Les fluences maximales atteintes sont de l'ordre de  $5 \times 10^{25}$  n.m<sup>-2</sup> pour le Zr650 et de  $11 \times 10^{25}$  n.m<sup>-2</sup> pour le Zr1. Les résultats de croissance dans les directions longue et travers sont reportés sur les figures III-8 et III-9 pour le matériau recristallisé et sur les figures III-10 et III-11 pour l'état détendu. On constate sur ces figures, la dispersion énorme caractérisant les valeurs obtenues. L'écart absolu entre deux valeurs de déformation mesurées pour une même fluence peut atteindre 0.06% et est estimée en moyenne à 0.04%.

Il apparaît, malgré les incertitudes sur les mesures, que la croissance dans la direction longue  $E_l$  est plus importante que dans la direction travers  $E_t$  pour les deux états métallurgiques testés. D'autre part, le matériau détendu croît nettement plus que le matériau recristallisé. On note également l'absence de troisième stade (le "growth breakaway").

#### III - 2 - 2 - 2 - Analyse des résultats à partir des modèles développés dans le chapitre II

Nous avons adapté les modèles développés dans le chapitre II à la croissance sous irradiation. Cette adaptation s'illustre par la prise en compte des données monocristallines mesurées en croissance pour le zirconium et par l'hypothèse selon laquelle les propriétés de croissance du monocristal et du polycristal peuvent être décrites par un tenseur d'ordre 2 comme pour la dilatation thermique.

$$\text{pour le monocristal:} \quad \begin{matrix} \beta_{11}(\phi t_0) & 0 & 0 \\ 0 & \beta_{11}(\phi t_0) & 0 \\ 0 & 0 & \beta_{33}(\phi t_0) \end{matrix}$$

$$\text{pour le polycristal:} \quad \begin{matrix} B_{11}(\phi t_0) & 0 & 0 \\ 0 & B_{22}(\phi t_0) & 0 \\ 0 & 0 & B_{33}(\phi t_0) \end{matrix}$$

Nous supposons également que la déformation du polycristal, à une fluence donnée  $\phi t_0$ , ne dépend que de la texture cristallographique et de la déformation du monocristal isolé dans les directions a et c, à la même fluence.

Nous avons utilisé le modèle dit de la moyenne directe, ainsi que le modèle auto-cohérent pour prédire le comportement du Zr650 et du Zr1. Rappelons que le modèle auto-cohérent présente l'avantage de prendre en compte, d'un point de vue de la mécanique des milieux continus, la forme des grains. Les constantes du monocristal utilisées sont celles publiées par G.J.C. Carpenter [1981] pour une fluence de  $5 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$  à savoir  $\beta_{11}(5 \times 10^{25} \text{ n/m}^2) = 2.4 \times 10^{-4}$  et  $\beta_{33}(5 \times 10^{25} \text{ n/m}^2) = 1.8 \times 10^{-4}$ .

Pour calculer les constantes élastiques effectives du polycristal, nécessaires pour le calcul auto-cohérent, nous avons utilisé les constantes élastiques monocristallines du zirconium mesurées à 573 K (300 °C). Les résultats sont reportés sur les tableaux III-3 et III-4 respectivement pour le Zr650 et le Zr1.

	B <sub>11</sub> (%)	B <sub>22</sub> (%)	B <sub>33</sub> (%)	$\Delta V/V$ (%)	B <sub>11</sub> /B <sub>22</sub>
Moyenne	0.019	0.016	-0.005	0.03	1.2
Auto-cohérent	0.020	0.016	-0.006	0.03	1.25
Expérimental	$0.086 \pm 0.04$	$0.008 \pm 0.04$	?	$\approx 0$	$6 \pm 5$

Tableau III-3: Résultats des modèles relatifs à la tôle Zr650

	B <sub>11</sub> (%)	B <sub>22</sub> (%)	B <sub>33</sub> (%)	$\Delta V/V$ (%)	B <sub>11</sub> /B <sub>22</sub>
Moyenne	0.021	0.017	-0.08	-0.039	1.25
Auto-cohérent	0.021	0.017	-0.08	-0.046	1.25
Expérimental	$0.26 \pm 0.04$	$0.17 \pm 0.04$	?	$\approx 0$	$1.5 \pm 0.4$

Tableau III-4: Résultats des modèles relatifs à la tôle Zr1

Attardons-nous tout d'abord sur les résultats obtenus pour le Zr650. Deux points méritent d'être soulignés: la différence d'amplitude de croissance entre les résultats prédictifs et les mesures expérimentales d'une part, et l'apparente non adaptation des modèles pour la prévision du rapport d'anisotropie.

Les modèles que nous avons développés, très proches au niveau des résultats, ne permettent pas de prédire l'amplitude de croissance puisqu'il y a un facteur cinq environ, entre la déformation expérimentale et la déformation calculée dans la direction longue. Cet écart peut être imputable au fait que les mesures effectuées sur monocristal ne sont pas transposables aux grains constituant le polycristal. Nous reviendrons sur ce point lors de notre étude bibliographique.

Nous constatons également dans le tableau III-3, que le rapport d'anisotropie n'est pas respecté par les modèles. On a souvent admis que la déformation dans la direction travers était trop faible pour que les mesures expérimentales soient significatives et prises en compte [A.Baffert, 1983]. En effet, il faut être conscient que la dispersion des mesures expérimentales (de l'ordre de 0.4%), très significative dans la direction travers, ne nous permet pas de tirer de conclusions définitives quant à la validité des modèles pour la prévision de l'anisotropie.

Les remarques faites pour le Zr650 à propos de l'amplitude de croissance, restent valables pour le Zr1. Les prévisions effectuées à partir des modèles sont d'un ordre de grandeur inférieur aux mesures expérimentales. D'autre part, la croissance dans la direction longue est plus importante que dans la direction travers conformément à la loi en  $1-3F$  qui est relativement bien vérifiée tout au long de l'essai (tableau III-5). L'écart entre les rapports  $B_{11}/B_{22}$  et  $1-3F_l/1-3F_t$  est dû au fait que dans le premier cas, on prend compte des variations de volume alors que dans le second cas, on suppose que celles-ci sont égales à zéro.

Fluence $\phi t$ (en $10^{24}$ n.m <sup>-2</sup> )	Déformation D.L. $B_{11}(\phi t)$ (en %)	Déformation D.T. $B_{22}(\phi t)$ (en %)	$\frac{B_{11}}{B_{22}}$ exp	$\frac{B_{11}}{B_{22}}$ calc	$\frac{1-3F_1}{1-3F_t}$
10.3	0.067	0.063	1.1		1.5
15.8	0.106	0.082	1.3		
32.9	0.141	0.143	1.0		
47.1	0.260	0.174	1.5	1.25	
110.0	0.355	0.278	1.3		

**Tableau III-5:** Caractérisation de l'anisotropie de croissance du zril

### III - 2 - 3 - Conclusions

Les essais de croissance sous irradiation effectués au C.E.A. sur demande de Framatome, sont intéressants à plus d'un titre. Ils permettent tout d'abord de constater les difficultés éprouvées pour obtenir des mesures précises et soulignent la prudence qu'il faut avoir dans l'analyse détaillée des courbes présentées dans la littérature.

En ce qui concerne le zircaloy-4 recristallisé, on observe un rapide transitoire suivi d'un stade de croissance stationnaire où la vitesse de croissance est non nulle dans la direction longue. Dans la direction travers, nous avons vu qu'il était beaucoup plus délicat, étant donnée la dispersion des mesures, d'interpréter les résultats expérimentaux. Cependant, il faut retenir de ces mesures que la déformation est faible et inférieure au seuil de détection du dispositif expérimental. Il aurait été intéressant de continuer l'essai afin de connaître avec plus de sûreté le comportement du zr650 dans la direction travers en dépassant le seuil de détection de déformation estimé à 0.04%. Le zircaloy-4 détendu croît nettement plus que le Zr650. Il est extrêmement intéressant de constater dans le cas du Zril, que la loi en 1-3F permet de prédire avec satisfaction l'anisotropie de croissance sous irradiation.

Nous avons constaté d'autre part que les modèles développés, prenant en compte le comportement du monocristal et la texture du matériau, ne permettent pas de prédire la croissance sous irradiation du Zr650 ou du Zril. Nous allons donc à présent, à partir des résultats de la littérature scientifique, tenter de cerner les paramètres indispensables pour une bonne prédiction de la croissance du Zril et du Zr650. Nous reviendrons ensuite aux essais réalisés par le C.E.A.

### III - 3 - PARAMETRES INFLUENCANT LA CROISSANCE SOUS IRRADIATION

(voir partie bibliographique en annexe 1)

La synthèse qui suit n'a d'autre prétention que de résumer, de forme non exhaustive, l'influence de certains paramètres essentiels pour les propriétés de croissance sous irradiation tels que la température, la texture cristallographique, l'écroissance, la taille des grains et la composition chimique.

La liste des paramètres influençant la croissance sous irradiation du zirconium et des alliages de zirconium est délicate à établir dans le sens où l'on ne connaît pas toujours les mécanismes de déformation dictant le comportement du matériau. On est tenté de considérer au cas par cas chacun des essais effectués tant la synthèse des résultats est difficile. En effet, l'étude de la croissance des polycristaux de zirconium soulève toute une série de questions auxquelles on a tenté de répondre en multipliant les essais. Les explications simples avancées afin d'expliquer le phénomène pour le graphite, l'uranium ou les monocristaux de zirconium ne donnent pas entière satisfaction dans le cas des polycristaux de zirconium et moins encore pour les alliages de zirconium. P.M.Kelly [1973] avait exprimé son désaccord à propos du mécanisme de croissance évoqué par Buckley et étendu au polycristal car, ce mécanisme ne permet pas d'expliquer pourquoi la croissance des polycristaux est beaucoup plus rapide et plus importante que celle des monocristaux. De plus des études au M.E.T. ont montré qu'il n'y avait pas de création de B.D. ayant un vecteur de Burgers parallèle à l'axe c pour des fluences inférieures à  $10^{25}$  n/m<sup>2</sup>, contrairement aux hypothèses de Buckley. En fait, le phénomène de croissance sous irradiation du zirconium ne se distingue pas de celui des autres matériaux, mais la variété des états métallurgiques et des alliages testés dans le cas de ce matériau a montré qu'il était nécessaire de tenir compte d'autres grandeurs que la texture cristallographique et le comportement du monocristal pour interpréter les résultats obtenus. Nous allons par conséquent, tenter de cerner les différents paramètres intervenant dans la croissance sous irradiation des alliages de zirconium.

La température influence les trois stades de croissance (transitoire, stationnaire et "growth breakaway"). Cette dépendance est peu marquée pour des températures inférieures à 600 K (resp. 680 K) pour les polycristaux de zircaloy (resp. zirconium) durant les deux premiers stades de la croissance. Le phénomène de "growth breakaway" apparaît d'autant plus tôt que la température est élevée. Il est probablement lié à des variations locales de volume rendues possible par des modifications importantes de la microstructure initiale.

Les études menées pour cerner le rôle de la texture montre qu'il y a une relation linéaire, pour les matériaux recuits ou recristallisés, entre la croissance sous irradiation et le facteur de Kearns de la FDP (00.2) dans une direction donnée. Nous avons utilisé les expressions {11-21} adaptées à la croissance sous irradiation pour estimer la valeur des constantes de croissance monocristalline correspondant à une fluence de  $5 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$  pour les deux matériaux testés et différentes températures. Rappelons que les formules utilisées pour l'évaluation des constantes monocristallines, fournissent dans le cas de la dilatation thermique une approximation de bonne qualité. On obtient les résultats suivants:

- à partir du comportement de polycristaux de zirconium à 353 K  
 $\beta_{11} = 1.23 \times 10^{-3}$      $\beta_{33} = -2.9 \times 10^{-3}$      $\frac{\Delta V}{V} = -0.44 \times 10^{-3}$
- à partir du comportement de polycristaux de zirconium à 553 K  
 $\beta_{11} = 1.31 \times 10^{-3}$      $\beta_{33} = -2.64 \times 10^{-3}$      $\frac{\Delta V}{V} = -0.02 \times 10^{-3}$
- à partir du comportement de polycristaux de zircaloy à 330 K  
 $\beta_{11} = 1.24 \times 10^{-3}$      $\beta_{33} = -3.05 \times 10^{-3}$      $\frac{\Delta V}{V} = -0.57 \times 10^{-3}$

Ces résultats, jugés réalistes, nous amènent à faire un certain nombre de remarques concernant les matériaux recuits et recristallisés. D'une part, la croissance des polycristaux de zirconium et de zircaloy peut être vu, au niveau de chaque grain, comme la conséquence d'un allongement selon l'axe a et d'une contraction selon l'axe c, conformément aux mesures effectuées sur les monocristaux de zirconium. D'autre part, la croissance sous irradiation pour des fluences inférieures à  $5 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$  s'effectue avec conservation du volume. Ceci a pour conséquence de valider la relation en 1-3F pour les zirconium et les zircaloy recuits ou recristallisés. Enfin, la déformation du monocristal isolé ( $\beta_{11} = 2.4 \times 10^{-4}$ ,  $\beta_{33} = -1.8 \times 10^{-4}$ ) est, pour la même fluence et la même température, de l'ordre de dix fois plus faible que celle d'un grain constituant le polycristal. Ce dernier point peut s'expliquer par la densité de dislocations et la taille de grains différentes pour le grain et le monocristal isolé.

Ainsi, les essais effectués sur les matériaux écrouis montrent toute l'importance d'une prédéformation sur le comportement des éprouvettes de zirconium et de zircaloy. La déformation du matériau a deux conséquences non indépendantes, mais que nous distinguons dans un souci de clarté: la création de contraintes résiduelles et la multiplication des dislocations principalement de type <a>. La relaxation des contraintes résiduelles va induire une déformation dont l'amplitude et le sens sont fonction du type de sollicitation. D'autre part, la multiplication des dislocations a pour effet d'augmenter de manière considérable la croissance du matériau. V. Fidleris [1987] explique ce comportement en supposant que les nombreuses dislocations de type <a> créées au cours de la déformation sont des pièges pour les particules (interstitiels probablement) produites pendant l'irradiation. Il suppose alors que lorsque l'écroissage est relativement important (taux de dislocations élevé), la part de déformation induite par la relaxation des contraintes résiduelles devient négligeable. Fidleris sous-entend dans cette hypothèse que les contraintes résiduelles ne peuvent excéder une certaine valeur limite et que par conséquent, la déformation qu'elles induisent par relaxation est elle aussi limitée.

D'autre part, A. Rogerson [1984] a réuni différents résultats d'essais de croissance dans l'optique de corréler la déformation sous irradiation et la taille des grains pour des polycristaux de zirconium. Il a constaté que l'amplitude et la durée du stade primaire sont d'autant plus grandes que le grain est petit. Les conclusions de A. Rogerson sont en accord avec les résultats de C.D. Cann [1986] obtenus à des températures plus élevées (647 à 686 K). Celui-ci a montré qu'il y avait une forte dépendance entre la croissance durant le transitoire et la taille des grains. De plus, il a constaté que pour des fluences plus grandes, la vitesse de croissance sous irradiation était identique quelle que soit la taille des grains. C.D. Cann a également insisté sur le fait qu'à partir d'un certain diamètre (supérieur à 50  $\mu\text{m}$ ), le matériau devenait insensible à la taille du grain. Lorsque l'on atteint la

dimension critique précitée, l'amplitude de la déformation devient comparable à celle mesurée dans le cas des monocristaux de zirconium non déformés.

Enfin, l'influence des différents éléments chimiques composant les alliages de zirconium peut être considérable soit en raison des propriétés intrinsèques des éléments introduits vis-à-vis des particules créées, soit en raison du comportement des précipités que ces éléments sont susceptibles de former. En ce qui concerne le premier point, l'étain et le niobium, par exemple, peuvent constituer des pièges à particules, dictant l'amplitude et le sens de la croissance sous irradiation. Ces effets sont nets et évidents pour l'étain, ils sont moins marqués dans le cas du niobium. Quant au second point, M. Griffiths [1988] a souligné l'importance de l'évolution des précipités pour la croissance sous irradiation des zircaloy-2 et -4. A basse température, la transformation cristalline→amorphe des précipités peut engendrer un changement de volume local si le volume occupé par la phase amorphe est différent de celui occupé par la phase cristalline. A haute température, la dissolution des précipités du type  $Zr(CrFe)_2$ ,  $Zr_2(Ni,Fe)$  et la création d'autres secondes phases peut induire un changement de volume au sein du matériau. De plus la diffusion de certains éléments atomiques dans la matrice peut altérer le comportement du matériau soit, en empêchant les mouvements de montée des dislocations, soit, en modifiant le coefficient de diffusion des auto-interstitiels ou des lacunes. On peut ajouter que l'amorphisation et la dissolution de certains précipités s'associent au phénomène de "growth breakaway".

### III - 4 - CONCLUSION

#### III - 4 - 1 - Résultats C.E.A.

Notre étude bibliographique permet de souligner les lacunes des modèles que nous avons essayés d'adapter à la croissance sous irradiation. Nous avons signalé que l'un des principaux problèmes auxquels nous nous heurtons dans nos calculs était la prédiction de l'amplitude de croissance.

Un élément de réponse est apporté par l'utilisation des relations {II-21} qui permettent de calculer le comportement effectif du grain constituant le polycristal. Nous avons appliqué ces relations, pour une fluence de  $5 \times 10^{25}$  n/m<sup>2</sup>, à trois alliages différents, pour différentes températures d'irradiation (Tableau III-6).

Alliage	Etat Métallurgique	T <sub>irr</sub> (K)	$\beta_{11}$ ( $\times 10^{-3}$ )	$\beta_{33}$ ( $\times 10^{-3}$ )	$\Delta V/V$ ( $\times 10^{-3}$ )	d ( $\mu$ m)
Zirconium <sup>(1)</sup>	recristallisé	353	1.2	-2.9	-0.4	<20
Zirconium <sup>(1)</sup>	"	553	1.3	-2.6	0.0	<20
Zircaloy <sup>(2)</sup>	"	330	1.2	-3.0	-0.6	<20
Zr-2.5Nb <sup>(3)</sup>	"	353	1.7	-2.9	-0.6	<20
Zr-2.5Nb <sup>(4)</sup>	"	553	1.3	-2.5	0.1	<20
Monocristal de zirconium		553	0.2	-0.2	0.2	

Tableau III-6: Constantes de croissance effectives d'alliages de zirconium

Pour les données métallurgiques: (1) voir § A1-1-3-1  
 (2) voir § A1-1-3-2  
 (3) voir § A1-3-2-2-1  
 (4) voir § A1-3-2-2-2

Il apparaît clairement que le comportement du monocristal isolé est nettement différent de celui du grain constituant le polycristal et ce, quelle que soit la température d'irradiation et la nuance étudiée. Cette différence peut être attribuée à la présence de joints de grains, dont on suppose qu'il constitue des pièges à lacunes et à la densité de dislocations plus élevée dans le grain que dans le monocristal isolé, fabriqué avec soin pour l'expérience de croissance sous irradiation. D'autre part, on constate que l'estimation des constantes de croissance est équivalente pour l'ensemble des matériaux recristallisés testés.

Nous avons utilisé la valeur moyenne dans les directions a et c de ces constantes effectives ( $\beta_{11}(5 \times 10^{25}$  n/m<sup>2</sup>) =  $1.3 \times 10^{-3}$  et  $\beta_{33}(5 \times 10^{25}$  n/m<sup>2</sup>) =  $-2.8 \times 10^{-3}$ ) et nous avons tenté de prédire la croissance du Zr650 et du Zr11 avec ces nouvelles données (Tableaux III-7 et III-8).

	B <sub>11</sub> (%)	B <sub>22</sub> (%)	B <sub>33</sub> (%)	ΔV/V (%)	B <sub>11</sub> /B <sub>22</sub>
Moyenne	0.088	0.054	-0.152	0.01	1.6
Auto-cohérent	0.094	0.054	-0.160	0.01	1.7
Expérimental	0.086±0.04	0.008±0.04	?	≈ 0	6±5

**Tableau III-7: Résultats des modèles relatifs à la tôle Zr650**

	B <sub>11</sub> (%)	B <sub>22</sub> (%)	B <sub>33</sub> (%)	ΔV/V (%)	B <sub>11</sub> /B <sub>22</sub>
Moyenne	0.10	0.064	-0.177	-0.01	1.6
Auto-cohérent	0.11	0.064	-0.183	-0.01	1.7
Expérimental	0.26±0.04	0.17±0.04	?	≈ 0	1.5±0.4

**Tableau III-8: Résultats des modèles relatifs à la tôle Zr1**

L'utilisation des données effectives de croissance du monocristal permettent d'améliorer significativement les prévisions dans le cas de la tôle recristallisée puisque les valeurs calculées, à partir du modèle de la moyenne directe ou le modèle auto-cohérent, entrent dans les barres d'erreurs.

En ce qui concerne le matériau détendu, le coefficient d'anisotropie  $B_{11}/B_{22}$  est meilleur que celui calculé précédemment (tableau III-5). Quant à l'amplitude de croissance, les prévisions restent inférieures aux valeurs réelles. Ceci montre qu'il est nécessaire, pour un état métallurgique donné et pour une composition chimique fixée, de connaître le comportement effectif du grain constituant le polycristal pour appliquer avec succès les modèles que nous avons développés. La texture cristallographique et le comportement du monocristal seuls ne permettent pas de distinguer les propriétés de croissance de l'état détendu et de l'état recristallisé. Il est nécessaire dans un premier temps d'accéder à une meilleure connaissance du phénomène de croissance sous irradiation avant de pouvoir élaborer un modèle plus sophistiqué. La difficulté de cette modélisation résidera essentiellement dans l'établissement de la loi de comportement du grain intégrant les paramètres contrôlant la croissance.

On peut cependant, tenter de classer les paramètres dont on sait qu'ils influencent la croissance du matériau, tout en sachant que la liste de paramètres dressée n'est pas exhaustive.

### III - 4 - 2 - Paramètres à retenir en vue d'une modélisation

Les difficultés liées à la modélisation sont nombreuses et peuvent être cataloguées dans deux catégories.

La première catégorie regroupe les obstacles liés à la méconnaissance des mécanismes physiques permettant la déformation. Les questions à ce sujet restent nombreuses:

- Quels sont les mécanismes physiques qui interviennent et qui différencient le stade transitoire observé au début de l'irradiation et le stade stationnaire ?

- Comment expliquer d'un point de vue fondamental la contraction selon l'axe c mesurée sur monocristal ? L'hypothèse selon laquelle il se forme des B.D. lacunaires avec un vecteurs de Burgers à composante  $\langle c \rangle$  semble être réfutée par les observations au M.E.T. La migration des lacunes vers les surfaces libres de l'éprouvette est difficile à adopter devant la taille imposante des éprouvettes utilisées (le L.N.C.R. a utilisé des éprouvettes cylindriques de 6 mm de diamètre et de 127 mm de longueur pour son étude de la croissance sous irradiation des monocristaux). Celle qui consiste à dire qu'il se crée des amas de lacunes ayant pour conséquence une contraction constitue une explication cohérente mais elle n'est pas toujours admise.

- Le phénomène de montée de dislocations joue-t-il un rôle dans la déformation ? Si oui, dans quelle proportion et à quelle température ?

- Quel est le rôle des éléments d'addition dans les alliages de zirconium ? L'importance de l'étain et du fer est reconnue, mais on n'a que très peu d'informations sur le rôle du chrome, du nickel et de toutes les impuretés introduites dans le zirconium.

- De quelle manière interviennent les joints de grain ? Les réponses à ce sujet sont nombreuses et parfois contradictoires. On supposait volontiers que les limites intergranulaires constituaient des pièges à lacunes jusqu'à l'étude de M. Griffiths [1988] (paragraphe III-2-3-1) qui soutient que les joints de grain sont avides d'interstitiels.

- Quand et pourquoi apparaît le phénomène de "growth breakaway" ? L'explication selon laquelle il apparaît suite à la dissolution des précipités est très séduisante mais elle s'applique très mal aux monocristaux de zirconium pur ne contenant que très peu d'impuretés.

- ...

D'autre part, l'impossibilité actuelle de quantifier de manière satisfaisante l'influence des paramètres dont on sait qu'ils imposent le régime de croissance, empêche une modélisation non empirique. En effet, comment faire intervenir dans une modélisation fiable la densité de dislocations ? De la même manière, il est difficile de tenir compte des contraintes résiduelles en ignorant l'évolution de la déformation due à la relaxation de ces contraintes en fonction de la fluence, pour une température donnée. D'autre part, on sait que l'étain freine la croissance sous irradiation pour des températures de l'ordre de 353 K et qu'il semble moins efficace à plus haute température. Mais, il est risqué d'extrapoler ce type de connaissance à d'autres taux d'étain que ceux étudiés et à d'autres températures.

Cependant, même en présence de ces difficultés, on peut tenter de faire un inventaire des paramètres à prendre en compte pour caractériser la croissance sous irradiation des matériaux utilisés ou susceptibles d'être utilisés dans les réacteurs à eau pressurisée de conception française, fonctionnant à environ 590 K.

Si l'on omet le phénomène de "growth breakaway" dont on connaît mal l'origine et les conditions dans lesquelles il apparaît, les paramètres qui nous semblent essentiels au cours des deux premiers stades de croissance sont au nombre de quatre:

- 1) Les contraintes résiduelles
- 2) La texture et l'écroissage
- 3) La taille des grains et les joints de grain
- 4) La composition chimique

#### III - 4 - 2 - 1 - Les contraintes résiduelles

La littérature scientifique souligne qu'en dessous d'un certain seuil de déformation, estimé à 5% par V. Fidleris, la relaxation des contraintes résiduelles intervenait de manière prédominante sur la déformation sous irradiation des alliages de zirconium. Le sens et l'amplitude de croissance sont directement fonction du type de traitement thermo-mécanique imposé au matériau avant irradiation. La part de la déformation due à la relaxation augmente avec la température d'irradiation et devient considérable pour des températures supérieures à 550 K.

Le contrôle de ce paramètre est d'un très grand intérêt. En effet, on peut imaginer qu'en faisant subir un traitement de déformation adéquat au matériau, on puisse annihiler ou en tout cas fortement atténuer le phénomène de croissance sous irradiation. Toutefois, deux problèmes se posent:

- Comment connaître l'évolution de la déformation due à la relaxation de contraintes résiduelles en fonction de la fluence ?

- Comment assurer qu'une prédéformation, aussi faible soit-elle, ne va pas altérer significativement les autres propriétés sous irradiation du matériau (fluage, corrosion, hydruration) ?

#### III - 4 - 2 - 2 - La texture et l'écroissage

Il peut paraître surprenant de regrouper ces deux paramètres. Cependant, ils paraissent indissociables dans le sens où les effets de l'écroissage sont directement fonction de la texture cristallographique [R.J. Asaro et A. Needleman, 1985], [R. Fortunier et al., 1987], [P. Franciosi, 1987].

Le taux de dislocations  $\langle a \rangle$  a une influence directe sur l'amplitude de croissance, d'après la littérature scientifique. Plus celui-ci est faible (cas des monocristaux non déformés) plus la croissance est faible. Lorsque la densité de dislocations augmente (matériaux écrouis, détendu ou non, de plus de 12 %), la croissance augmente. Pour des états métallurgiques intermédiaires, la déformation due à la relaxation des contraintes résiduelles vient s'ajouter à celle due à la présence de dislocations. Notons que si l'on accepte l'hypothèse que les interstitiels créés vont avoir tendance à se reloger entre les plans atomiques (10.0), on fait intervenir directement les notions de texture cristallographique.

Deux cas de figure peuvent se présenter quant au repositionnement des auto-interstitiels de zirconium. Si le matériau possède peu ou pas de dislocations  $\langle a \rangle$ , la migration des interstitiels vers leur site privilégié va s'accompagner de la création de B.D. de type  $\langle a \rangle$ . Par contre, s'il existe des dislocations  $\langle a \rangle$  ou des B.D. de type  $\langle a \rangle$ , la migration des atomes de zirconium vers ces défauts n'engendre pas la création de nouveaux défauts. Il semble raisonnable d'affirmer que le second effort cité nécessite des énergies plus faibles que le premier et que par conséquent sa probabilité de réalisation est supérieure. Ceci pourrait expliquer pourquoi après un rapide transitoire, on observe un stade de croissance stationnaire où la vitesse a tendance à saturer. En effet, lors de la première étape ce sont les défauts présents avant irradiation qui permettent la déformation alors que durant le second stade, la croissance requiert la création de nouveaux défauts.

La texture doit également être prise en compte lors du processus de déformation plastique imposée au matériau, processus qui a pour conséquence de multiplier le nombre de dislocations, notamment de dislocations avec un vecteur de Burgers  $\langle a \rangle$ . La multiplication et la répartition des défauts cristallographiques plans ne se font pas aléatoirement, mais sont au contraire, dépendants de l'orientation des grains constituant le matériau. Il est indispensable de connaître la répartition et la densité de dislocations après déformation plastique pour établir une corrélation propre entre d'une part, l'amplitude et l'anisotropie de croissance et d'autre part, l'écrouissage.

Cependant, si l'on peut attribuer la croissance positive aux dislocations et B.D., de type  $\langle a \rangle$  en particulier, le mécanisme de contraction pourrait être lui, intimement lié à la présence d'autres défauts tels que les joints de grain.

### III - 4 - 2 - 3 - La taille des grains et les joints de grain

La taille des grains est un élément important car il est directement associé à la "densité de joints de grain". On reconnaît aisément le rôle des joints de grain que l'on rend responsable de la capture des lacunes. Le mécanisme physique par lequel s'effectue cette capture est relativement mal connu. On ne sait pas si les lacunes migrent vers les joints pour s'y établir ou si les abords des joints constituent des sites privilégiés pour la formation d'amas de lacunes. Cette seconde possibilité semble cependant la plus probable et en tout cas, elle a le mérite d'avoir été observée par M.E.T. [M. Griffiths, 1988]. Quoiqu'il en soit, il semble que les effets de cette migration se manifeste par une contraction locale du matériau que l'on peut considérer dans un premier temps comme isotrope. L'isolement des lacunes a pour conséquence de réduire les recombinaisons lacunes-interstitiels et favorise ainsi la croissance.

Dans le cas des monocristaux, les joints de grain sont inexistant mais la contraction selon l'axe  $\langle c \rangle$  est elle, bien réelle. On peut imaginer que la formation d'amas de lacunes est possible mais plus difficile en raison de l'absence des limites intergranulaires. G.J.C. Carpenter et al. [1988] avaient déjà évoqué la possible formation d'amas de lacunes auprès d'atomes étrangers ou de précipités lors de leur étude des monocristaux de zirconium. Ce dernier point souligne l'importance de la composition chimique car l'on sait que certains éléments atomiques ont des propriétés très importantes dans la matrice de zirconium.

### III - 4 - 2 - 4 - Composition chimique

La composition chimique (notion générale dans laquelle on intègre la présence d'impuretés) est probablement le paramètre le plus délicat à prendre en compte. L'influence de certains éléments atomiques sur le comportement en croissance sous irradiation des alliages de zirconium reste un point d'interrogations. Outre les conséquences qu'ont ces éléments sur les propriétés de déformation plastique et sur la présence de secondes phases, il est fort probable que leur interaction directe avec les interstitiels et les lacunes soit non négligeable. C'est ce dernier aspect qui complique considérablement l'approche que l'on peut avoir du phénomène de croissance.

On sait par exemple que l'étain a pour effet de diminuer l'amplitude de la croissance sous irradiation à 353 K et que sa présence modifie l'allure de la déformation durant le stade transitoire. On suppose également que le fer, lorsqu'il se dissout dans la matrice, augmente très significativement le coefficient de diffusion des auto-interstitiels de zirconium. Il semble d'autre part, que le niobium n'a lui qu'une faible influence sur les propriétés du zirconium. Mais qu'en est-il pour l'hydrogène, l'azote, l'oxygène ou le chrome ?

La méconnaissance des propriétés des lacunes et des interstitiels vis-à-vis de ces éléments chimiques et des précipités interdit toute transposition d'une éventuelle modélisation vers de nouveaux alliages.

**Figure III-1: Schématisation des effets de l'irradiation**

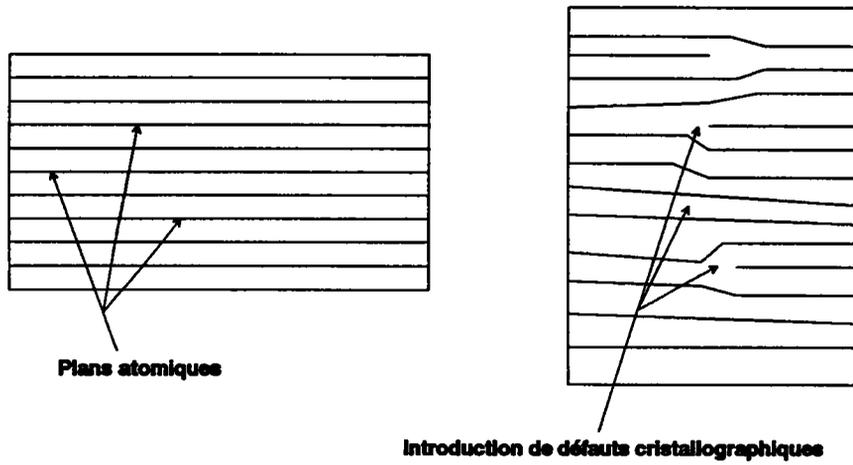


Figure III-2 : Croissance sous irradiation d'un polycristal de graphite dans la direction d'extrusion [R.J.Price, 1965]

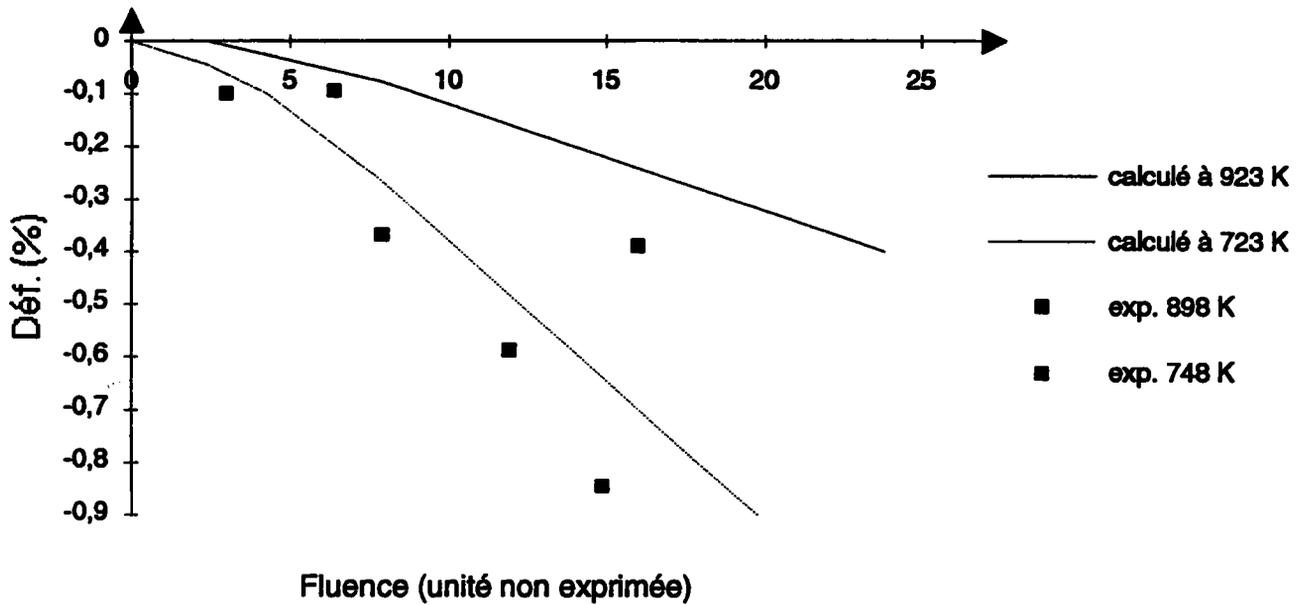


Figure III-3 : Croissance sous irradiation d'un polycristal de graphite dans une direction perpendiculaire à l'extrusion [R.J.Price, 1965]

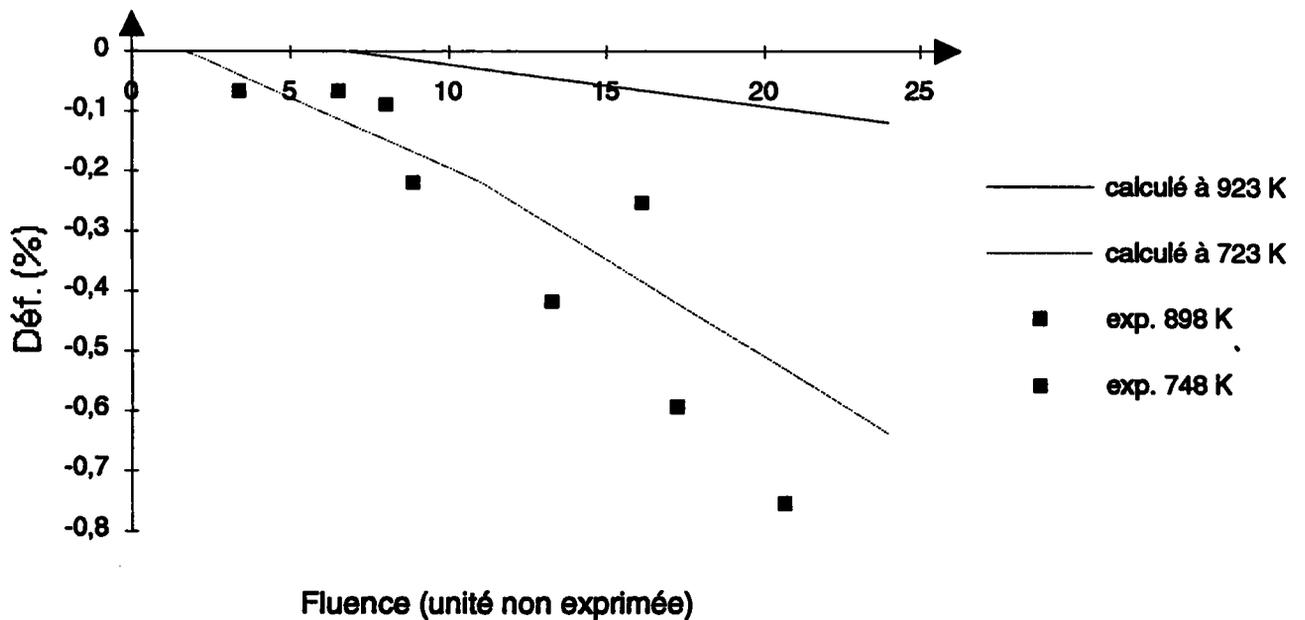


Figure III-4 : Croissance d'un monocristal de zirconium ( $T_{irr}=353K$ )  
[S.N.Buckley,1962]

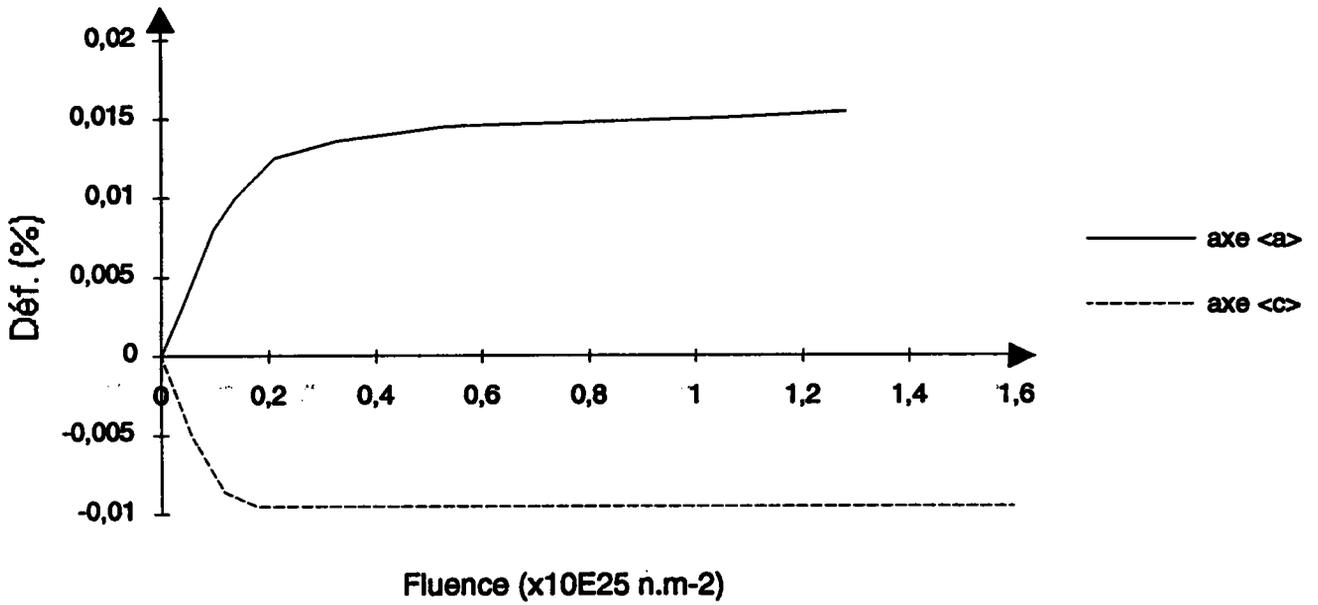
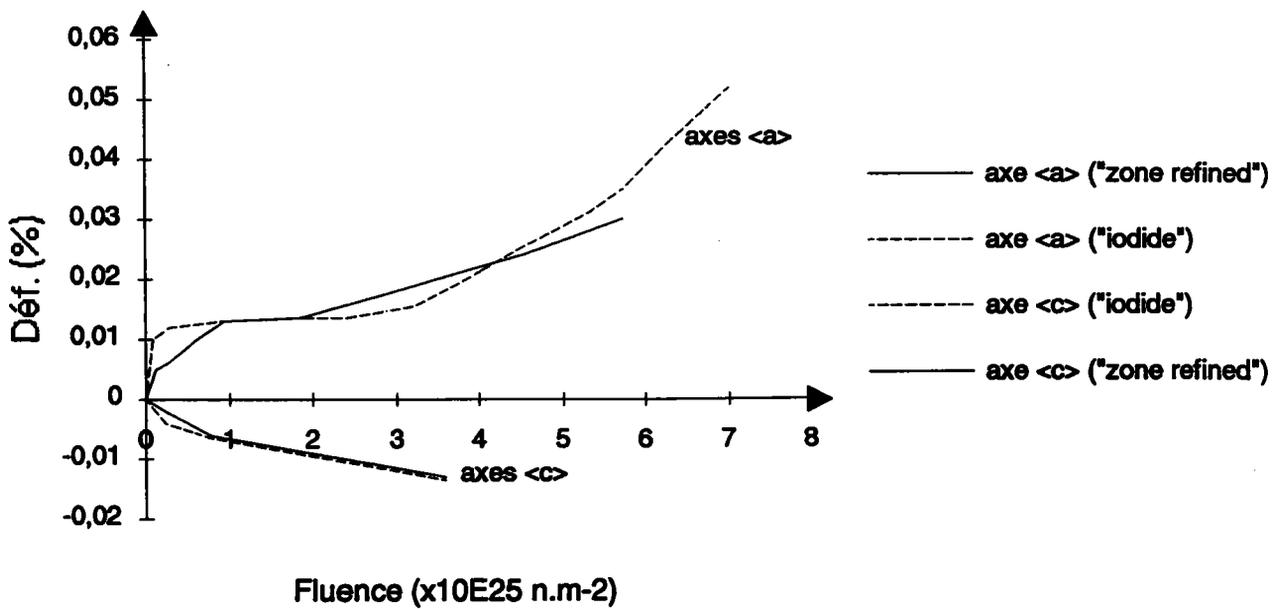
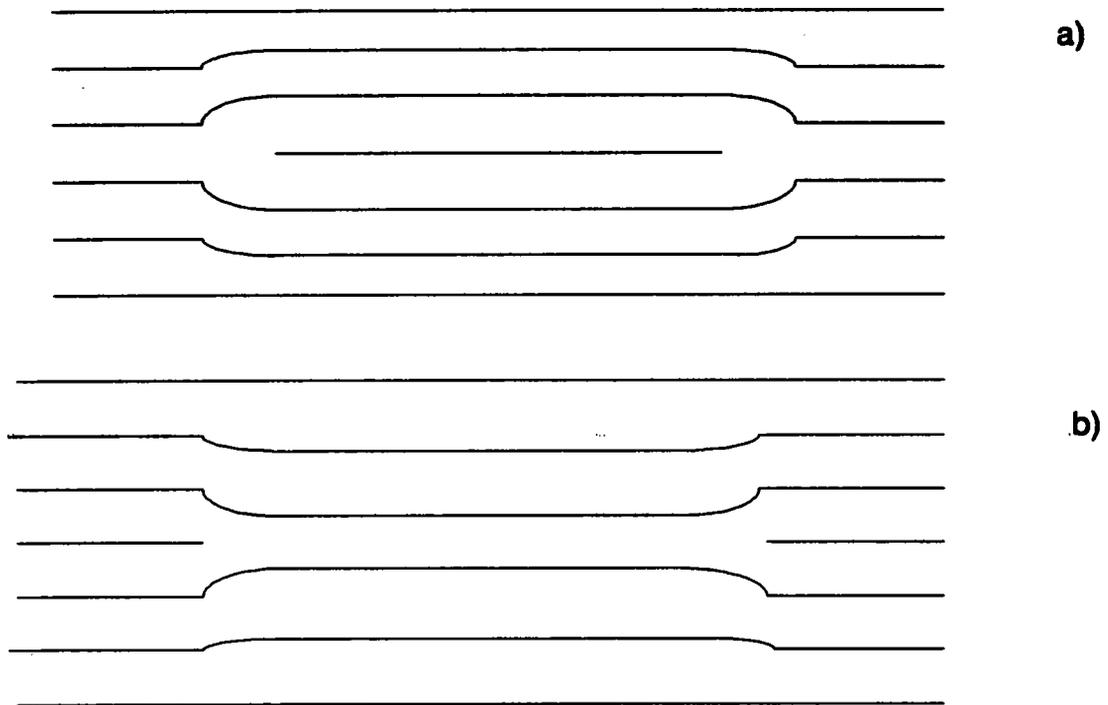


Figure III-5 : Croissance des monocristaux de zirconium ( $T_{irr}=553K$ )  
[G.J.C.Carpenter, 1981]



**Figure III-6: Boucles de dislocations interstitielle (a), lacunaires (b)**



**Figure III-7: Forme des éprouvettes utilisées par le C.E.A.**

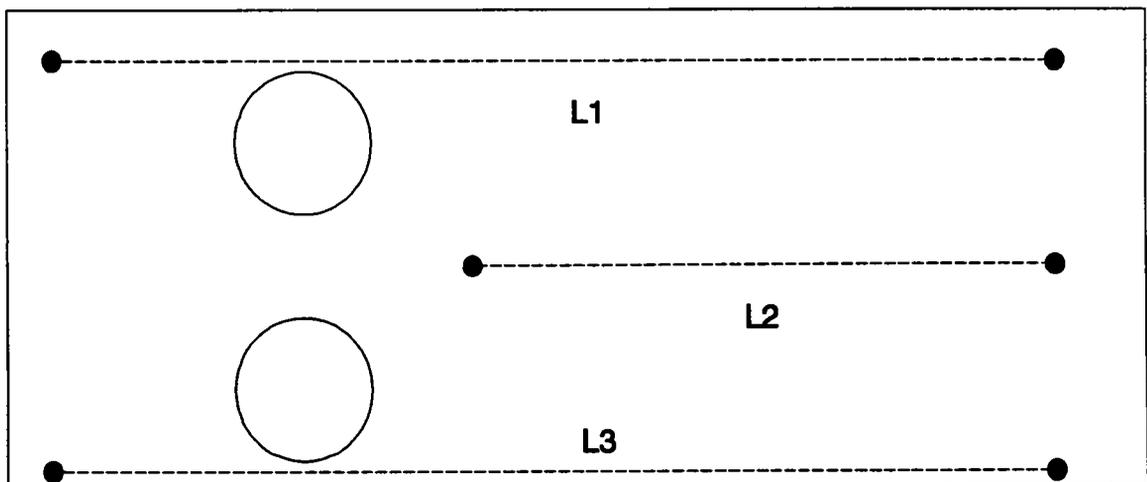


Figure III-8 : Croissance sous irradiation du zr650 dans la direction longue ( $T_{irr}=588K$ )

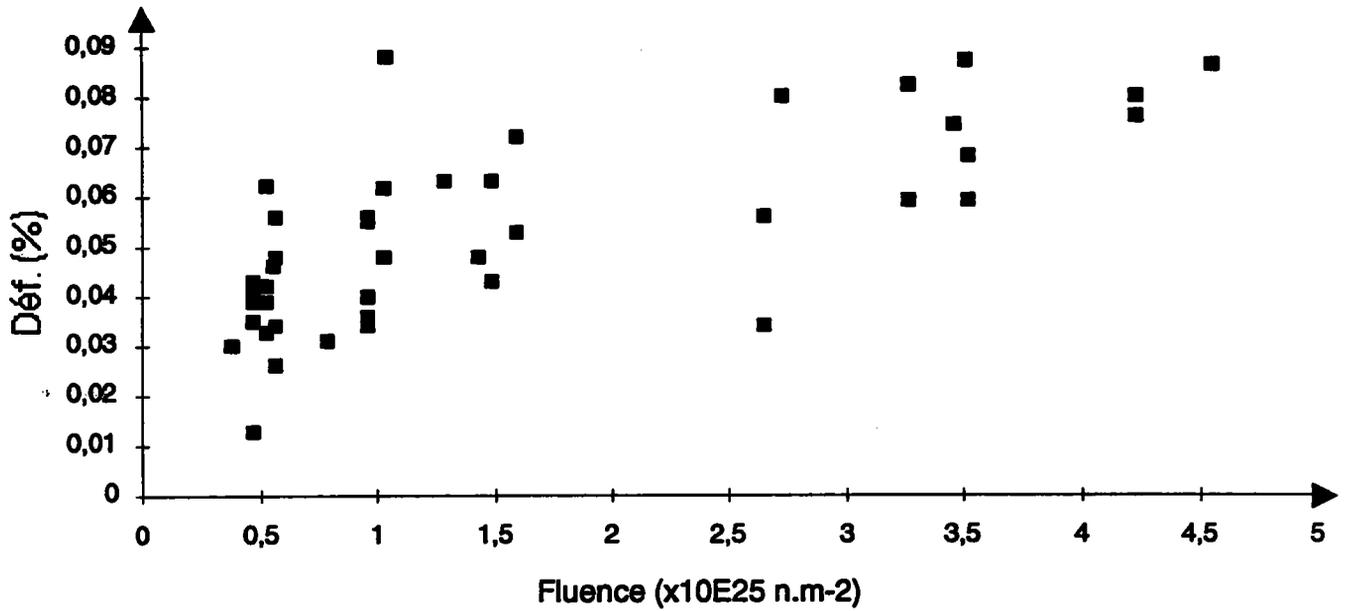


Figure III-9 : Croissance sous irradiation du zr650 dans la direction travers ( $T_{irr}=588K$ )

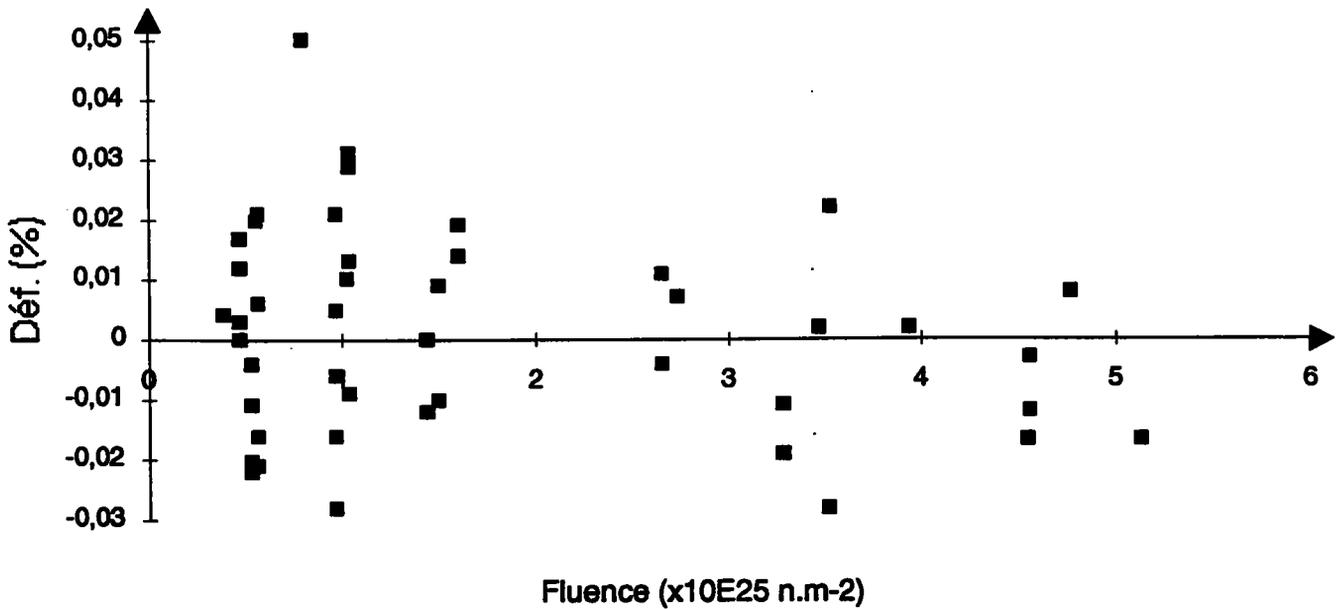


Figure III-10 : Croissance sous irradiation du zril dans la direction longue ( $T_{irr}=588K$ )

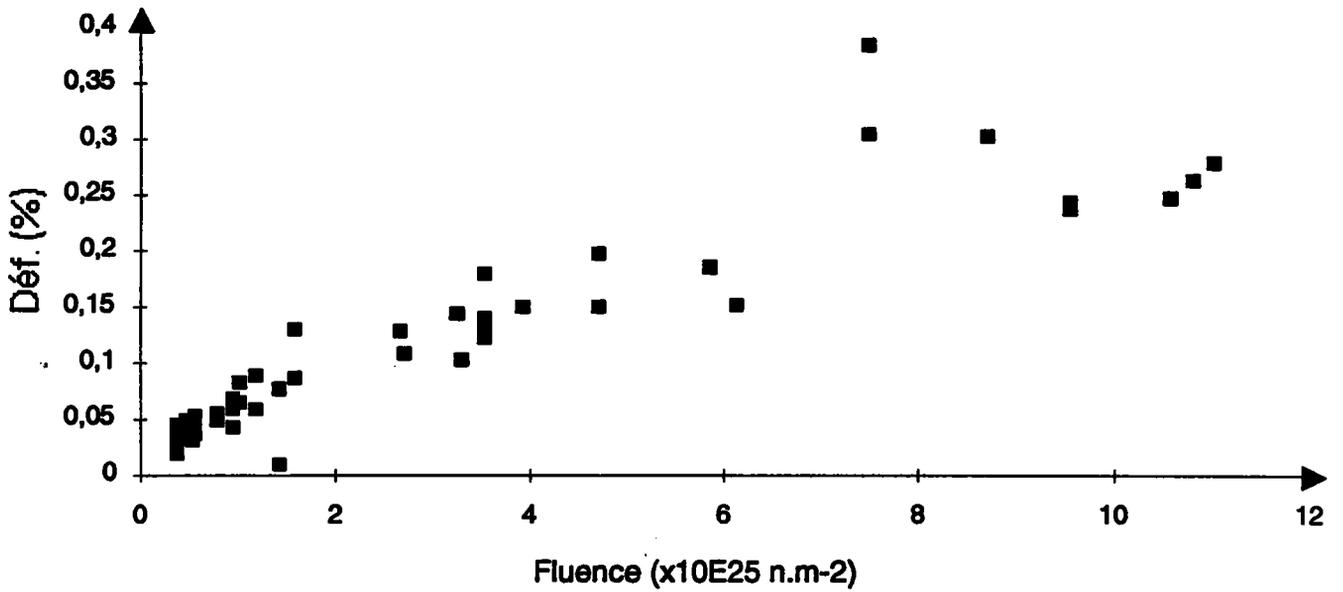
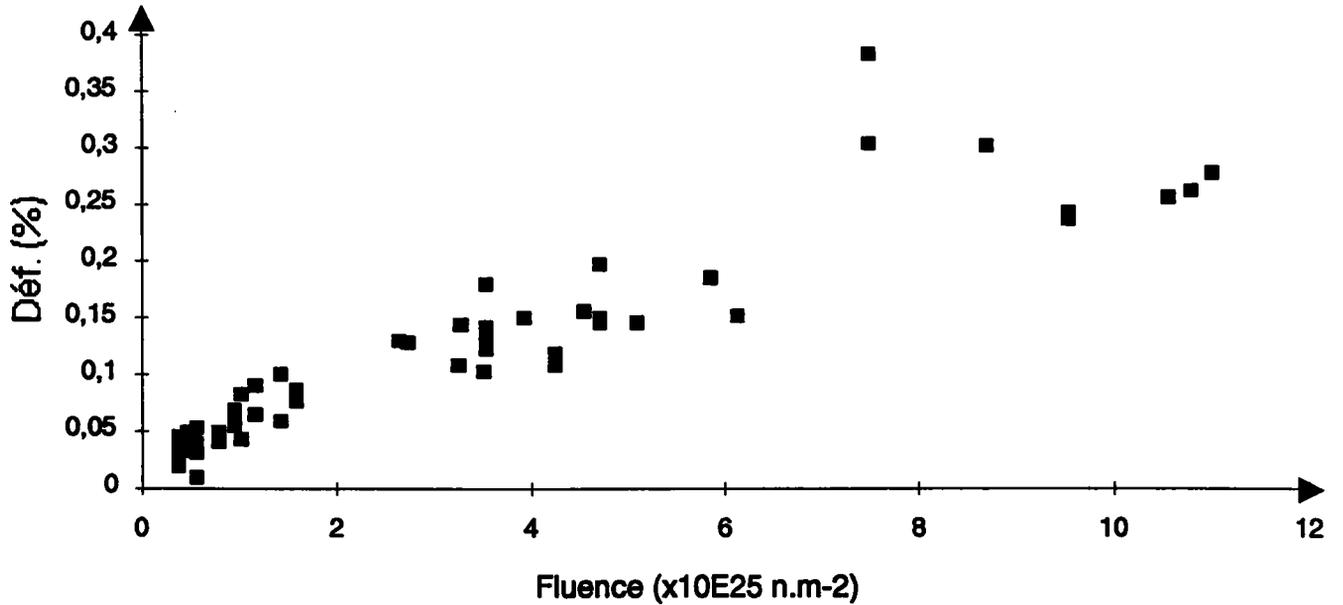


Figure III-11 : Croissance sous irradiation du zril dans la direction travers ( $T_{irr}=588K$ )



**BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE III :**

**AKHTAR A., TEGHTSOONIAN E. (1971):**  
**Acta Metallurgica, vol. 101 (1981), p. 28**

**ASARO R.J., NEEDLEMAN A. (1985):**  
**"Texture developpment and strain hardening in rate dependent polycrystals", Acta metallurgica, Vol. 33 (1985), p. 923**

**BAFFERT A., BAICRY J., MORIZE P., PREVE J., SCIERS P., SCHAUFF R. (1983):**  
**"Croissance sous irradiation de tôles en zircaloy-4", note technique SRMA (83) 1223**

**BELLAICHE M. (1984):**  
**"Croissance sous irradiation de feuillard en zircaloy-4 à l'état détendu et à l'état recristallisé", note technique ITM (84) 1827**

**BORODIN V.A., RYAZANOV A.I. (1989):**  
**"Dislocation climb suppression due to voids in a material at high irradiation doses", Journal of Nuclear Materials, vol. 165 (1989) p. 164**

**BUCKLEY S.N. (1962):**  
**"Uranium and graphite" (Institute of Metals, London, 1962), p. 445**

**CANN C.D., FAULKNER D., NUTALL K., STYLES R.C., SHILINGLAW A.J., CHOW C.K., ROGOWSKI A.J. (1986):**  
**"Irradiation growth in zirconium and zirconium alloys irradiation in the Dounreay Fast Reactor", AECL 8406 (1986)**

**CARPENTER G.J.C., MURGATROYD R.A., ROGERSON A., WATTERS J.F. (1981):**  
**"Journal of Nuclear Materials", vol. 101 (1981) p. 28**

**DE DIEGO N., BACON D.J. (1989):**  
**"Recombination of Frenkel pairs in HCP metals modelled by computer", Journal of Nuclear Materials, vol. 161 (1989) p. 117**

**DUBINKO V.I., TUR A.V., TURKIN A.A., YANOVSKIJ V.V. (1989):**  
**"A mechanism of formation and properties of the void lattice in metals under irradiation", Journal of Nuclear Materials, vol. 161 (1989) p. 57**

**FIDLERIS V., TUCKER R.P., ADAMSON R.B. (1987):**  
**"An overview of microstructural and experimental factors that affect the irradiation growth behaviour of zirconium alloys", ASTM special technical publication, ASTM STP 939 (1987) p. 49**

**FORTUNIER R., ORLANS-JOLIET B., MONTHEILLET F., DRIVER J.H. (1987):**  
**"Large strain multiple slip work hardening behaviour of FCC and BCC single crystals", in Proceedings 8<sup>th</sup> RISO (1987), p.409**

**FRANCIOSI P. (1987):**  
**"On work hardening relations for constitutive models", in Proceedings 8<sup>th</sup> RISO (1987), p.83**

**HOLT R.A. (1979):**

"Effect of microstructure on irradiation creep and growth of zircaloy pressure tubes in power reactor", *Journal of Nuclear Materials*, vol. 82 (1979) p. 419

**KELLY P.M. (1973):**

in proceedings international conference on physical metallurgy of reactor fuel elements, Berkeley nuclear laboratories, UK (Metals Society, London 1973), p. 123

**KITTEL J.H. (1956):**

Proceedings of the first international conference on the peaceful uses of atomic energy, Geneva, P/745, vol.7, p.445

**LUBBEHUSEN M., VIEREGGE K., HOOD G.M., MEHRER H., HERZIG Chr. (1991):**

"Self-diffusion in  $\alpha$ -Zr single crystals", *Journal of Nuclear Materials*, vol. 182 (1991) p. 164

**MAC EWEN S.R., TOME C. (1987):**

"Residual stresses in textured zirconium alloys", in *Proc. Zirconium in the nuclear industry*, 7th international symposium, ASTM STP 939 (1987), p. 631

**MAC EWEN, TOME C., FABER J. Jr. (1989):**

"Residual stresses in annealed zircaloy", *Acta Metallurgica*, vol. 3 (1989), p. 979

**MORIZE P., BAICRY J., SCIERS P., PREVE J., SCHAUFF R., BUCHOU D. (1982):**

"Croissance sous irradiation des tôles en Zy4 destinées à la fabrication de grilles de maintien d'éléments combustibles de réacteur de type PWR", note technique SRMA (82) 739

**MORIZE P., BAICRY J., SCIERS P., VERNE M. (1985):**

"Croissance sous irradiation des tôles en Zircaloy des grilles des assemblages du type AFA", F.A. 5133-05 Février 1985, CEA-FRA 127 NT (85) 1376

**PRICE R.J., BOKROS J.C. (1965):**

"Relationship between preferred orientation, thermal expansion and radiation-induced length changes in graphite", *Journal of Nuclear Materials*, vol. 36 (1965) p. 1897

**VIEREGGE K., HERZIG Chr. (1990):**

"Grain boundary diffusion in  $\alpha$ -zirconium", *Journal of Nuclear Materials*, vol. 173 (1990) p. 118

**WILLIAMSON G.K. (1962):**

dans "Properties of reactor materials and the effect of radiation damage" (butterworths scientific publications Ltd, London, 1962), p.114

# CONCLUSION

## **CONCLUSION**

L'étude que nous avons menée pour cerner l'influence de certains paramètres métallurgiques sur les propriétés physiques des alliages de zirconium nous a permis de tirer de nombreux enseignements. Le premier d'entre eux a été de constater l'importance commune de certains facteurs sur des propriétés aussi différentes de par leur nature physique que l'élasticité, la dilatation thermique et la croissance sous irradiation. Ainsi, la texture cristallographique semble être une donnée précieuse et indispensable pour la caractérisation des matériaux à symétrie cristalline hexagonale. Nous avons pu nous rendre compte en second lieu que certaines caractéristiques métallurgiques telles que l'écroissage, la composition chimique ou la taille des grains, pouvaient avoir un rôle prépondérant selon la propriété étudiée.

Notre objectif principal était de cerner, à travers l'étude de l'élasticité et de la dilatation thermique en particulier, les paramètres indispensables à une modélisation satisfaisante des propriétés de déformation (des alliages de zirconium) qui présentent des analogies dans leur formulation mathématique actuelle. Ceci avait pour but de développer un modèle fiable pour la prévision de la croissance libre sous irradiation des alliages utilisés ou susceptibles d'être utilisés en réacteur nucléaire. Aussi, il était indispensable pour cette étude de n'avoir initialement aucun a priori quant aux paramètres qui pouvaient influencer les propriétés précitées.

En ce qui concerne l'élasticité, nous avons utilisé comme grandeur de référence pour la validation des prévisions obtenues par le calcul, le module de Young mesuré à température ambiante dans différentes directions du plan de la tôle. Nous avons démontré de manière claire que la prise en compte de la seule texture cristallographique permettait de prédire avec satisfaction les propriétés macroscopiques des alliages de zirconium. La prise en compte de la forme des grains permet d'améliorer significativement les prévisions.

Nous avons également constaté le rôle secondaire d'un certain nombre de paramètres qui pouvaient a priori sembler primordiaux. Citons à titre d'exemple la faible influence de la composition chimique des alliages de zirconium étudiés. De la même manière, les contraintes résiduelles et le taux de dislocations n'ont qu'une importance relativement faible et non quantifiable dans la caractérisation des propriétés élastiques des tôles.

D'autre part, l'étude de la dilatation thermique de différents alliages de zirconium nous a permis de dégager un certain nombre de conclusions intéressantes. La première réside dans le fait que la prise en compte de la texture cristallographique et de la forme moyenne des grains dans la modélisation permet de prédire avec précision, dans la majorité des cas, les coefficients de dilatation thermique du polycristal dans le plan de la tôle. Ce point ne peut être généralisé dans le sens où il apparaît que les matériaux écrouis n'ayant pas subi de traitement de détentionnement après déformation, ont un comportement différent. En effet, il semble que la présence de contraintes résiduelles altère considérablement la déformation thermique du matériau. Les modèles que nous avons développés ne prenant pas en compte les effets de l'écroissage, ne nous permettent pas dans le cas des matériaux déformés de prédire avec satisfaction les propriétés de dilatation thermique.

Nous avons également évoqué le fait que l'addition d'éléments dans la composition chimique des alliages de zirconium ne modifiait que légèrement le comportement de ces derniers. En effet, nous avons pu calculer avec précision les coefficients de dilatation thermique des tôles de zircaloy-4 en utilisant les données monocristallines du zirconium pur. De la même manière, nous avons prédit correctement les propriétés des tôles de Zr-2,5%Nb, contenant une seconde phase, à partir des données précitées.

Dans le cas de la croissance sous irradiation, les conclusions que l'on peut tirer des résultats publiés dans la littérature et de ceux obtenus par Fragma ne peuvent être considérées comme définitives. En effet, nous avons pu constater tout au long de l'étude de la croissance libre des alliages de zirconium, que les questions auxquelles ont répondu certaines campagnes expérimentales, faisaient place à d'autres interrogations qui restent sans réponse. C'est pourquoi, on se trouve souvent dans l'impossibilité de généraliser les observations effectuées.

Cependant, il semble que l'on puisse répertorier raisonnablement les paramètres influençant la croissance sous irradiation comme indiqué ci-dessous. Rappelons que nous avons associés dans cette liste les notions de texture et d'écroissage en considérant que les effets de l'écroissage sont directement fonction de la texture cristallographique.

- les contraintes résiduelles
- la texture et l'écroissage
- la taille des grains et les joints de grain
- la composition chimique

Nous avons signalé que le paramètre le plus délicat à prendre en compte pour une éventuelle modélisation est la composition chimique. En effet, il semble très difficile de quantifier les effets de tel ou tel élément chimique sur le comportement en croissance sous irradiation. Ceux-ci sont apparemment dépendants de la teneur introduite, de la température, de la fluence et des propriétés mêmes des précipités que ces éléments sont susceptibles de former. A l'heure actuelle, ces limitations peuvent sembler insurmontables en raison du manque de références et de données. De plus, l'influence de certains éléments chimiques n'est encore qu'hypothétique même si tout semble montrer qu'elle est primordiale.

Les limitations imposées par le manque de données concernant l'influence de la composition chimique, interdisent une formulation concrète et générale de la propriété étudiée pour les alliages de zirconium. Ce sont ces mêmes restrictions qui empêchent l'utilisation de modèles prédictifs en tant qu'outil d'investigation tel que nous les avons utilisés dans le cadre de l'élasticité et de la dilatation thermique.

Quoi qu'il en soit, il semble plus sage d'établir une modélisation pour un alliage donné à composition chimique fixée. Il est alors possible en tenant compte de l'état métallurgique du matériau étudié, de prédire de manière qualitative voire quantitative, la réponse de ce dernier.

**Annexe I:**  
**BIBLIOGRAPHIE DE LA**  
**CROISSANCE SOUS**  
**IRRADIATION**

**NOTATIONS UTILISEES** (dans leur ordre d'apparition dans le texte)

**E** : énergie d'un neutron

$\phi t$  : fluence

**R.E.P.** : réacteur à eau pressurisée

**T.G.** : tube guide

**M.E.T.** : microscope électronique à transmission

**F.D.O.** : fonction de densité des orientations

**D.L.** : direction de laminage

**D.T.** : direction travers

$\epsilon_{ij}$  : tenseur des déformations locales

$A, n$  : constantes

**B.D.** : boucle de dislocations

**L.N.C.R.** : laboratoire nucléaire de Chalk River

$F_i$  : facteurs de Keams

$F_l, F_t, F_n$  : facteurs de Keams pour les directions longue, travers et normale

$E_i$  : déformations macroscopiques selon les axes principaux

**N.R.L.** : northern research laboratories

$T, T_0$  : températures

**F.D.P.** : figure de pôles

**V** : volume

$\Delta V$  : variation de volume

$A_i$  : facteur de forme

$d_i$  : longueur d'un grain selon une direction donnée

$d_{11}, d_{22}, d_{33}$  : dimension d'un grain selon les directions macroscopiques

**M.O.S.A.** : monocristal orienté selon l'axe a

**M.O.S.C.** : monocristal orienté selon l'axe c

$G_0$  : croissance d'un matériau recristallisé

**M** : constante

**C** : taux de déformation imposée par traitement mécanique

$\rho$  : densité de dislocations

**C.E.A.** : commissariat à l'énergie atomique

## PARAMETRES INFLUENCANT LA CROISSANCE SOUS IRRADIATION

La liste des paramètres influençant la croissance sous irradiation du zirconium et des alliages de zirconium est délicate à établir dans le sens où l'on ne connaît pas toujours les mécanismes de déformation dictant le comportement du matériau. On est tenté de considérer au cas par cas chacun des essais effectués tant la synthèse des résultats est difficile. Cependant, nous présentons un certain nombre de travaux menant à des conclusions plus ou moins cohérentes. Nous ne manquerons pas par ailleurs, de soulever quelques questions qui restent actuellement sans réponse.

De plus, la plupart des travaux bibliographiques concernent le zirconium, le zircaloy-2 et le zircaloy-4. Les conclusions tirées de ces études ne pouvant pas être généralisées, nous consacrerons une partie de cet exposé aux effets de la composition chimique. Signalons d'autre part, qu'il semblerait que rien ne permette de distinguer le zircaloy-2 du zircaloy-4. C'est pourquoi, nous confondrons parfois ces deux alliages sous le nom générique de zircaloy.

### A1 - 1 - Paramètres extrinsèques

On définit les paramètres extrinsèques comme étant les paramètres dépendant des conditions expérimentales et non pas du matériau testé.

#### A1 - 1 - 1 - Le flux de neutrons

Les effets du flux de neutrons et de son spectre sur la croissance n'ont jamais été étudiés et sont relativement mal connus. Cependant, les expériences faites dans des réacteurs différents n'ayant ni la même intensité, ni le même spectre de flux, pour des matériaux identiques, nous permettent d'avoir une idée sur l'influence du flux.

Ainsi, V.Fidleris [1975] a réalisé une campagne d'essai avec des flux de neutrons rapides balayant un domaine allant de  $1 \times 10^{17}$  à  $20 \times 10^{17}$  n/m<sup>2</sup>.s. Il a montré que le comportement du matériau était indépendant du temps nécessaire pour atteindre telle ou telle fluence. Ceci nous autorise donc à comparer en termes de fluence des résultats issus de réacteurs différents.

#### A1 - 1 - 2 - La fluence

Il est clair que la fluence intervient directement sur le comportement sous irradiation du matériau. De manière quasiment générale, on distingue trois stades de croissance fonctions de la fluence (figure A1-1).

Le premier stade est un stade de croissance transitoire où la vitesse varie et tend à décroître en valeur absolue. On l'associe souvent à la microstructure initiale du matériau.

Le second stade se manifeste par une vitesse de croissance constante. Il s'établit apparemment un équilibre interne pendant lequel la déformation varie linéairement avec la fluence.

Durant ces deux premiers stades, il se forme des boucles de dislocations (B.D.) prismatiques reposant sur les plans prismatiques et avec un vecteur de Burgers  $\langle 11,0 \rangle$ . Par la suite, nous dénommerons ces boucles de dislocations B.D. de type  $\langle a \rangle$ .

Le troisième stade, appelé "growth breakaway", n'apparaît pas systématiquement. Durant ce stade, la déformation du matériau va en s'accroissant et atteint des vitesses beaucoup plus élevées que durant le premier transitoire. Il est difficile de savoir exactement quand commence le troisième stade. Toutefois, on suppose que le début du growth breakaway correspond à l'apparition de B.D. prismatiques avec un vecteur de Burgers à composante  $\langle c \rangle$  [V.Fidleris et al., 1987].

Il est difficile d'expliquer et de synthétiser pour l'ensemble des états métallurgiques, les trois stades de la croissance sous irradiation. Aussi, on se rend compte qu'une des grandes difficultés dans l'étude de la croissance sous irradiation réside encore dans l'interprétation des différents

phénomènes observés macroscopiquement pendant l'irradiation. Ceci est principalement dû à des obstacles matériels car l'observation au niveau microscopique de l'évolution du matériau nécessite des moyens d'analyse très lourds et des techniques de quantification complexes... Nous sommes donc réduit dans la majorité des cas, à avoir une vision extérieure de l'évolution du matériau au cours des essais de croissance sous irradiation dans le sens où les seules données dont nous disposons sont les données du comportement macroscopique du matériau et de la microstructure de départ connue avec plus ou moins de précision.

### A1 - 1 - 3 - La température

La température de fonctionnement des Réacteurs à Eau Pressurisée (R.E.P) est d'environ 590 K. Cependant, il est intéressant de connaître l'effet de la température sur la propriété qui nous intéresse afin de mieux cerner d'un point de vue fondamental les caractéristiques de la croissance sous irradiation.

#### A1 - 1 - 3 - 1 - Polycristaux de zirconium

Les seules données dont on dispose dans la littérature pour caractériser l'influence de la température sur le comportement sous irradiation du zirconium concernant les états métallurgiques recristallisé et laminé à froid [A.Rogerson, 1984], [R.A.Murgatroyd et al., 1984], [R.P.Tucker et al., 1984] et [D.Can et al., 1986].

La déformation sous irradiation, mesurée à des fluences de l'ordre de  $3 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$ , a tendance à diminuer légèrement quand la température augmente. Toutefois, la croissance semble peu sensible à ce paramètre dans le domaine de température 330-680 K, domaine pour lequel on n'observe pas de phénomène de "growth breakaway" pour les doses de neutrons atteintes. A partir de cette dernière température, l'allongement devient plus conséquent pour les deux états métallurgiques testés. Cette augmentation subite de la croissance, liée au "growth breakaway", est expliquée par les variations de volume qui deviennent non négligeables dans le domaine de température 680-750 K (figure A1-2). Notons que des essais effectués à une température de 750 K montrent que la croissance et les variations de volume ont tendance à diminuer à nouveau lorsque la température de l'essai augmente. Ce dernier point est à mettre en relation avec la probabilité de recombinaison de la paire lacune-interstitiel qui croît avec la température et qui, par conséquent, freine la croissance.

D'autre part, des essais très intéressants ont été effectués par le Risley Northern Power Development Laboratories (Grande Bretagne) rebaptisé Northern Research Laboratories (N.R.L.). Les résultats de ces essais, au cours desquels on a changé la température d'irradiation (figure A1-3), ont été publiés par A.Rogerson [1984]. Le matériau testé est un polycristal de zirconium sous forme de tôle, contenant comme impuretés principales de l'oxygène (200 ppm), du fer (170 ppm) et du carbone (260 ppm) ; les grains ont une forme équiaxiale et le facteur de Kearns dans la direction de mesure est de 0.16.

Pour l'échantillon référencé ZL6, la température d'irradiation est passée de 553 à 353 K au début du stade stationnaire, alors que pour l'échantillon ZL7 on a fait varier la température de 353 à 553 K au cours du transitoire. Plusieurs commentaires peuvent illustrer les courbes obtenues. Ainsi, le changement de température a des effets directs et spectaculaires sur le comportement en croissance sous irradiation du zirconium. Lorsque l'on abaisse la température, l'allongement de l'éprouvette augmente très rapidement jusqu'à atteindre des déformations du même ordre que celles mesurées quand l'essai est effectué de façon isotherme à 353 K. De la même manière, si l'on augmente la température de l'essai, le matériau se contracte et son comportement se rapproche de celui de l'échantillon testé à 553 K.

Cependant, le matériau n'est pas insensible à son "passé sous irradiation" dans le sens où les courbes obtenues après le changement de température sont relativement différentes de celles mesurées pendant un essai isotherme correspondant à la seconde température d'irradiation. A.Rogerson explique cette différence de comportement par un changement sensible de microstructure durant la première température d'irradiation qui empêche la comparaison directe des courbes.

Toutefois, certains points observés après le changement de température ne sont pas totalement éclaircis et ne peuvent être imputés à la modification de la microstructure précitée qu'avec beaucoup d'imagination. En effet, comment expliquer par exemple que la vitesse de

croissance durant le stade stationnaire et après le changement de température, soit plus élevée pour l'échantillon ZL6 (553 K → 353 K) que pour l'échantillon testé à 353 K ?

### A1 - 1 - 3 - 2 - Polycristaux de zircaloy

Les effets de la température ont été principalement étudiés pour des zircaloy recristallisé et laminé à froid ayant des coefficients de Kearns et un traitement thermo-mécanique équivalents [R.B.Adamson, 1977 et 1982], [R.A. Murgatroyd et A.Rogerson, 1984], [J.Williams et al., 1984], [R.P.Tucker et al., 1984], [V.Fidleris et al., 1986]. V.Fidleris distingue les trois stades de croissance pour la caractérisation de l'influence de la température.

Au cours du stade transitoire, et pour des températures inférieures à 600 K, on constate que la croissance est d'autant plus élevée que la température est grande pour les deux états métallurgiques testés. Cependant, on note que les variations avec la température sont relativement faibles. Après 600 K, les deux états se distinguent: le matériau recristallisé voit sa "croissance transitoire" diminuer alors que l'amplitude de la déformation du zircaloy laminé à froid continue à croître.

Lorsque l'on analyse la réponse du matériau après l'étape transitoire et durant le stade stationnaire, les variations de vitesse de croissance en fonction de la température pour les matériaux recristallisés et laminés à froid sont équivalentes. La vitesse de déformation du matériau augmente légèrement et de manière linéaire jusqu'à environ 620 K puis s'accélère à partir de cette température.

D'autre part, le phénomène de "growth breakaway" apparaît d'autant plus tôt et avec une vitesse de déformation d'autant plus grande que la température est élevée, [A.Rogerson, 1988]. Cette dernière remarque est valable pour les matériaux recuits ou recristallisés qui sont les seuls pour lesquels on dispose de suffisamment de données pour établir une telle corrélation.

Le N.R.L. a effectué des essais avec changement de température au cours de l'irradiation sur des alliages laminé à froid et recuit de zircaloy-2 (1.53% d'étain, 0.14% de fer, 0.10% de chrome et 0.05% de nickel) [A.Rogerson et R.A.Murgatroyd, 1979], [R.A.Murgatroyd et A.Rogerson, 1983]. Les résultats qu'ils ont obtenus sont reportés sur les figures A1-4, A1-5, A1-6 et A1-7 pour le matériau écroui et sur la figure A1-8 pour le matériau recuit. Les courbes obtenues confirment certains faits notés pour les polycristaux de zirconium à savoir qu'un changement de température de 553 à 353 K s'accompagne d'un transitoire rapide au cours duquel on passe à une déformation de l'ordre de celle observée pour un échantillon irradié à une température constante de 353 K. Le phénomène inverse s'établit quand on passe de 353 à 553 K. On constate, comme pour le zirconium, un décalage entre les courbes obtenues pour des essais standards isothermes et les portions de courbes correspondant aux différents segments du cycle de température. Mais, contrairement à ce qui est observé pour le zirconium "pur", la vitesse de croissance après le changement de température est cohérente avec celle mesurée à température fixe.

### A1 - 1 - 3 - 3 - Conclusions

Nous retiendrons des essais effectués pour juger de l'influence de la température, les faits suivants:

- Les trois stades de croissance (transitoire, stationnaire et "growth breakaway") dépendent de la température. Cette dépendance est peu marquée pour des températures inférieures à 600 K (resp. 680 K) pour les polycristaux de zircaloy (resp. zirconium) durant les deux premiers stades de la croissance. Le phénomène de "growth breakaway" apparaît d'autant plus tôt que la température est élevée. Il est probablement lié à des variations locales de volume rendues possible par des modifications importantes de la microstructure initiale (paragraphe A1-2-3-1 et A1-2-3-3).

- La différence de comportement entre le zirconium "pur" et le zircaloy souligne, bien que tous les paramètres métallurgiques ne soient pas parfaitement équivalents, l'importance de la composition chimique de l'alliage de zirconium.

- Un changement de température  $T \rightarrow T_0$  au cours d'un essai de croissance sous irradiation est suivi par un transitoire au cours duquel la déformation tend vers une valeur correspondant à la déformation mesurée durant un essai effectué à une température  $T_0$ .

## A1 - 2 - Paramètres mis en évidence dans les chapitres I et II

Nous présentons dans cette partie l'influence des trois paramètres qui nous ont semblé nécessaires pour une bonne caractérisation des propriétés élastiques et thermiques des alliages de zirconium à savoir la texture cristallographique, la forme moyenne des grains constituant le polycristal et l'écroissage. En fait, il est bien connu que ces paramètres influent directement sur le comportement anisotrope sous irradiation des alliages de zirconium. Aussi, nombre d'études ont été menées pour quantifier l'importance de ces trois facteurs pour les monocristaux et les polycristaux de zirconium et les polycristaux de zircaloy.

### A1 - 2 - 1 - La texture cristallographique

L'influence de la texture cristallographique est présentée pour des matériaux recristallisés ou recuits. Nous verrons dans le paragraphe A1-2-2-3 que l'écroissage introduisant des effets particuliers, on ne peut comparer directement les matériaux recuits ou recristallisés avec ceux qui sont écroisés ou détendus. Notons que nous désignons par recuit des matériaux ayant subi un dernier traitement thermique à une température inférieure à 600°C et pour lesquels, la recristallisation n'est pas totale. Nous distinguerons par la suite, les matériaux recristallisés, recuits (annealed) et les matériaux détendus (stress relieved) dont la restauration n'est que partielle. D'un point de vue physique, ces différents états se distinguent principalement par la forme des grains et par la densité de dislocations.

#### A1 - 2 - 1 - 1 - Polycristaux de zirconium

L'influence de la texture a été étudiée pour différentes températures d'irradiation [R.H.Zee et al., 1987], [A.Rogerson, 1984]. En réalité, on évoque la texture en termes de facteurs de Keams de la figure de pôles (00.2) reproduisant la répartition des axes c. L'idée étant que, connaissant le comportement du monocristal (contraction selon l'axe c et allongement selon la direction a), il suffit de déterminer l'orientation de l'axe c de chacun des grains pour calculer, à l'aide des expressions {II-20} par exemple, le comportement moyen du polycristal.

Les résultats obtenus pour des températures de 353 et 553 K sont reportés sur les figures A1-9 et A1-10 où nous avons représenté, à partir des résultats publiés dans la littérature par Zee et Rogerson, la déformation mesurée pour une fluence de  $5 \times 10^{25}$  n/m<sup>2</sup> en fonction des facteurs de Keams dans la direction considérée. Les courbes montrent que l'on peut approximer de manière satisfaisante les courbes tracées par une caractéristique linéaire. Cette observation est également valable pour des températures plus élevées et pour d'autres fluences.

#### A1 - 2 - 1 - 2 - Polycristaux de zircaloy

Les effets de la répartition de l'axe c sur le comportement macroscopique en croissance sous irradiation des alliages de zircaloy peuvent être estimés à partir des travaux effectués par différents auteurs sur des alliages recuits ou recristallisés [R.H.Zee et al., 1987], [A.Rogerson, 1988], [A.Rogerson et R.A. Murgatroyd, 1983], [R.A.Murgatroyd et A.Rogerson, 1983].

Nous avons reporté les résultats issus de la littérature (cf. auteurs précités) sur la figure A1-11 pour une température de 330 K et une fluence de  $5 \times 10^{25}$  n/m<sup>2</sup>. Dans le cas du zircaloy, il apparaît également que la courbe représentant la déformation macroscopique en fonction du facteur de Keams peut être représentée de manière satisfaisante par une droite.

#### A1 - 2 - 1 - 3 - Conclusions

Les études menées pour cerner le rôle de la texture montre qu'il y a une relation linéaire entre la croissance sous irradiation et le facteur de Keams de la FDP (00.2) dans une direction donnée. D'autre part, si nous utilisons les expressions {II-21} adaptées à la croissance sous irradiation, nous pouvons calculer les constantes de croissance monocristalline correspondant à une fluence de  $5 \times 10^{25}$  n/m<sup>2</sup> pour les deux matériaux testés et les différentes températures évoquées.

Rappelons que les formules utilisées pour le calcul des constantes monocristallines, fournissent dans le cas de la dilatation thermique une approximation de bonne qualité. On obtient les résultats suivants:

- à partir du comportement de polycristaux de zirconium à 353 K  
 $\epsilon_{11}=1.23 \times 10^{-3}$   $\epsilon_{33}=-2.9 \times 10^{-3}$   $\frac{\Delta V}{V}=-0.44 \times 10^{-3}$
- à partir du comportement de polycristaux de zirconium à 553 K  
 $\epsilon_{11}=1.31 \times 10^{-3}$   $\epsilon_{33}=-2.64 \times 10^{-3}$   $\frac{\Delta V}{V}=-0.02 \times 10^{-3}$
- à partir du comportement de polycristaux de zircaloy à 330 K  
 $\epsilon_{11}=1.24 \times 10^{-3}$   $\epsilon_{33}=-3.05 \times 10^{-3}$   $\frac{\Delta V}{V}=-0.57 \times 10^{-3}$

Ces résultats, jugés réalistes, nous amènent à faire un certain nombre de remarques concernant les matériaux recuits et recristallisés:

- La croissance des polycristaux de zirconium et de zircaloy peut être vu, au niveau de chaque grain, comme la conséquence d'un allongement selon l'axe a et d'une contraction selon l'axe c, conformément aux mesures effectuées sur les monocristaux de zirconium.

- Comme nous l'avions signalé précédemment, la température n'a qu'une faible incidence sur la croissance sous irradiation du zirconium (et du zircaloy) dans un domaine de températures inférieures à 600 K.

- La croissance sous irradiation pour des fluences inférieures à  $5 \times 10^{25}$  n/m<sup>2</sup> s'effectue avec conservation du volume. Ceci a pour conséquence de valider la relation en 1-3F pour les zirconium et les zircaloy recuits ou recristallisés.

- L'amplitude de la croissance à 353 K est équivalente pour les polycristaux de zirconium et ceux de zircaloy.

- La déformation du monocristal isolé ( $\epsilon_a = \epsilon_{11} = 2.4 \times 10^{-4}$ ,  $\epsilon_c = \epsilon_{33} = -1.8 \times 10^{-4}$ ) est, pour la même fluence et la même température, de l'ordre de dix fois plus faible que celle d'un grain constituant le polycristal.

#### A1 - 2 - 2 - La forme moyenne des grains

Un des problèmes principaux dans l'explication des phénomènes de croissance sous irradiation, est de comprendre la contraction de l'axe c. On admet généralement que les interstitiels ont tendance à se reloger dans le réseau en formant des "plans supplémentaires" parallèles aux plans (10.0). Ce phénomène est ressenti comme un allongement selon l'axe a.

En ce qui concerne les lacunes, Buckley supposait qu'elles avaient tendance à se replacer sur les plans de base engendrant une contraction selon l'axe c. Cependant, les études au M.E.T. d'échantillons irradiés à moins de 600 K ont démontré clairement que dans les matériaux recuits ou recristallisés et pour des fluences inférieures à  $5 \times 10^{25}$  n/m<sup>2</sup>, il n'y avait pas de dislocations ou de B.D. de type <c>.

On a alors supposé que les lacunes avaient tendance à migrer vers les joints de grains [R.A.Holt et E.F.Ibrahim, 1979], [E.F.Ibrahim et R.A.Holt, 1980], [B.L.Adams et G.S.Clevinger, 1980]. Cette interprétation permettrait d'expliquer la forte amplitude de croissance observée dans les polycristaux comparée à celle mesurée pour les monocristaux. Forts de ces hypothèses, Ibrahim et Holt ont proposé la relation suivante pour quantifier les effets de la forme des grains, en supposant par ailleurs qu'il n'y avait pas de changement de volume:

$$E_i \propto 1 - f_i - 2A_i \quad \{A1-1\}$$

$E_i$  est la déformation macroscopique,  $f_i$  le facteur de Kearns dans la direction considérée et  $A_i$  un facteur de forme défini de la manière suivante en considérant des grains rectangulaires:

$$A_i = \frac{1}{d_i} / \left( \frac{1}{d_{11}} + \frac{1}{d_{22}} + \frac{1}{d_{33}} \right) \quad \{A1-2\}$$

$d_{11}$ ,  $d_{22}$ ,  $d_{33}$  représentent les dimensions du grain selon les directions macroscopiques du matériau et  $d_i$  la longueur du grain dans la direction considérée.

La base physique de la théorie développée par Ibrahim et Holt est très séduisante même si elle n'explique pas vraiment la contraction selon l'axe c des monocristaux de zirconium. Cependant, aucune campagne expérimentale n'a été menée pour vérifier cette théorie. Cette carence de données s'explique par le fait qu'il est difficile voire impossible d'obtenir des grains ayant une forme non équiaxiale pour des matériaux recuits ou recristallisés et que seuls les matériaux fortement écrouis pourraient faire l'objet d'une telle étude. Or, nous allons voir que l'écrouissage a des effets tout à fait particuliers sur la croissance sous irradiation, effets qui empêchent une étude séparée du paramètre "forme".

### A1 - 2 - 3 - L'écrouissage

L'écrouissage et la texture sont les deux paramètres qui ont probablement été le plus étudiés dans le domaine de la croissance sous irradiation des alliages de zirconium. En fait, nous désignons par écrouissage le fruit de toute déformation mécanique voire thermique ayant pour conséquence d'augmenter la densité de défauts microstructuraux ou d'engendrer la création de contraintes résiduelles.

#### A1 - 2 - 3 - 1 - Monocristaux de zirconium

Une étude très judicieuse a été menée pour cerner le comportement de monocristaux de zirconium déformés de 18% par laminage et de 5% par traction [R.H.Zee, 1987].

##### A1 - 2 - 3 - 1 - 1 - Monocristaux déformés par traction

Attardons nous en premier lieu sur le cas des monocristaux déformés de 5% par traction. Un Monocristal Orienté Selon l'axe <a> et référencé X (M.O.S.A. X) a été tractionné à température ambiante (300 K) alors qu'un cristal orienté selon l'axe <c> et référencé XV (M.O.S.C. XV) a été déformé à 973 K. L'étude de la microstructure avant déformation révèle la présence de dislocations de type <a> pour le MOSA et de dislocations de type <c> pour le MOSC. Après déformation et ayant irradiation, le MOSA et le MOSC contiennent des dislocations de type <a> (de l'ordre de  $10^{12} \text{ m}^{-2}$  pour le MOSA) et de type <c>. Signalons qu'en réalité, les différents MOSA et MOSC utilisés dans l'étude de Zee, n'ont qu'une orientation imparfaite, proche des axes <a> et <c> (voir figure A1-14).

L'allure des courbes reportées sur la figure A1-12, nous permet de faire les remarques importantes. La déformation par traction du MOSA à température ambiante se traduit par une atténuation en valeur absolue de la croissance sous irradiation du cristal. En fait, le cristal a tendance à se contracter légèrement.

Ce comportement original témoigne sans doute de la présence de contraintes résiduelles dans le matériau. Si l'on se réfère au comportement observé en dilatation thermique pour les matériaux tractionnés, on peut penser que les contraintes résiduelles sont des contraintes de compression qui au moment où elles se relâchent, engendrent une déformation négative. De plus, la somme de la déformation propre due à la croissance sous irradiation et de la déformation due à la relaxation est négative pour les fluences étudiées. Il aurait été intéressant de poursuivre l'essai au-delà de  $3 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$  afin de savoir si pour des doses neutroniques plus élevées et après relaxation complète des contraintes, la déformation redevenait positive.

D'autre part, la déformation préalable du MOSC n'a qu'une faible incidence sur la croissance sous irradiation à 353 K. Ceci s'explique par la température à laquelle s'est effectué l'essai de traction: 973 K. A cette température, il est probable que l'accommodation des déformations ne nécessite pas la création de contraintes internes.

##### A1 - 2 - 3 - 1 - 2 - Monocristaux déformés par laminage

En ce qui concerne les matériaux déformés par laminage, plusieurs échantillons ont été irradiés à 353 K se distinguant par leur traitement thermique après déformation et avant irradiation. Les éprouvettes référencées XI (MOSA) et XIV (MOSC) ont été déformées de 18%, les éprouvettes XII et XIII (taillées toutes deux dans un MOSA) ont été déformées puis soumises respectivement à un traitement thermique d'une heure à 823 K et d'une heure à 673 K. Les microstructures avant irradiation ont été caractérisées par M.E.T. (voir tableau A1-1). Notons que dans ce tableau, Zee a reporté la valeur du facteur de Kearns selon la direction de mesure. On peut

s'étonner de la faible valeur de ce coefficient pour le monocristal orienté avant la déformation selon l'axe c. Cependant, il faut être conscient de la forte déformation imposée au matériau, illustrée d'une part par la formation de macles et de dislocations dont le nombre est augmenté de deux ordres de grandeur et d'autre part, par une modification complète de l'orientation du "monocristal" notamment dans le cas du MOSC.

Echantillon	Nature du monocristal	Mode de déformation	Microstructure avant irradiation
X	<a>	tractionné de 5% à 300K	disloc. <a> ( $2 \times 10^{12} \text{m}^{-2}$ ) monocristal
XI	<a>	laminé de 18% à 300K	disloc. <a> et <c+a> ( $1.1 \times 10^{14} \text{m}^{-2}$ ) $F_I=0.173$
XII	<a>	laminé de 18% détendu 1h à 823K	disloc. <a> et <c+a> ( $2 \times 10^{13} \text{m}^{-2}$ ) présence de macles et joints de grains $F_I=0.171$
XIII	<a>	laminé de 18% détendu 1h à 673K	disloc. <a> et <c+a> ( $2 \times 10^{13} \text{m}^{-2}$ ) présence de macles (10.2)
XIV	<c>	laminé 18% à 300K	idem XI $F_I=0.159$
XV	<c>	tracté 5% à 973K	disloc. <a> monocristal

**Tableau A1-1: Microstructure avant irradiation des "monocristaux"**

Plusieurs commentaires s'imposent à la vue de ces essais (figure A1-13):

- On note pour l'ensemble des échantillons l'absence de transitoire. La croissance se fait de manière quasiment linéaire.

- La croissance sous irradiation mesurée dans le cas des monocristaux déformés de 18% par laminage est la plus forte croissance jamais observée dans le cas des zirconium. Ainsi, la vitesse de croissance de l'éprouvette XI est de deux ordres de grandeur supérieure à celle observée pour un zircaloy-2 laminé de 25%... G.J.C. Carpenter [1988] attribuait cette croissance hors norme à la présence de joints de macles orientés qui constitueraient un site privilégié pour les lacunes et à la présence de dislocations de type <a> et <c> en relativement forte concentration.

- Le traitement thermique après déformation a pour conséquence de réduire considérablement l'amplitude et la vitesse de croissance. Le recuit, qui élimine plus de 80% des dislocations existantes sans modifier la densité de macles, réduit l'amplitude de la déformation de 85%. Ceci semble montrer qu'en réalité les joints de macle n'ont qu'une faible influence sur la vitesse de croissance sous irradiation. De plus, on remarque, contrairement à ce que l'on pouvait attendre de manière intuitive, que la croissance est plus élevée quand le recuit est effectué à 823 K au lieu de 673 K. En fait, l'étude de la microstructure révèle la présence de grains recristallisés, d'un micron de diamètre, au sein de l'éprouvette XII, grains qui sont inexistantes pour l'éprouvette XIII. La création de joints de grain pourrait expliquer la croissance plus grande de l'éprouvette recuite à 823 K.

#### A1 - 2 - 3 - 1 - 3 - Conclusions

Les essais réalisés sur des monocristaux sont un outil précieux pour la compréhension des phénomènes liés à la croissance sous irradiation. Cependant, s'ils donnent des éléments de réponse concernant le rôle de certains défauts cristallographiques au cours de la déformation, ils soulèvent également quelques questions.

Zee a mis en valeur des faits importants concernant les mécanismes de déformation:

- La croissance sous irradiation des monocristaux, dont on sait qu'elle est nettement inférieure à celle des polycristaux de zirconium, peut être très largement augmentée par introduction de dislocations.

- Il peut y avoir relaxation de contraintes résiduelles au cours de l'irradiation. Ceci est mis en évidence par l'étude d'un monocristal de zirconium tractionné de 5% dans la direction de mesure. Lorsque le taux de déformation précédant l'essai d'irradiation est important, il semblerait que la relaxation des contraintes intervienne dans des proportions moindres.

- Les dislocations ou B.D. de type <a> contrôlent largement la vitesse et l'amplitude de déformation du matériau.

Il apparaît donc que l'écroissage des monocristaux de zirconium introduise des mécanismes de croissance qui peuvent être coopératifs ou antagonistes. D'une part, la relaxation des contraintes résiduelles participe à la croissance selon un processus fonction du type de déformation imposée au matériau avant irradiation. D'autre part, l'introduction de dislocations ou de B.D. de type <a> a pour conséquence d'augmenter la vitesse et l'amplitude de la déformation.

### A1 - 2 - 3 - 2 - Polycristaux de zircaloy-2

L'influence d'une prédéformation mécanique sur le comportement en croissance sous irradiation des polycristaux, a été principalement étudiée pour le zircaloy-2. On distingue le comportement des matériaux faiblement écrouis (déformation inférieure à 5%) et le comportement des zircaloy-2 ayant subi une déformation importante.

#### A1 - 2 - 3 - 2 - 1 - Zircaloy-2 faiblement écrouis

Il est couramment admis que pour les matériaux faiblement écrouis (modification minime de la texture), la croissance sous irradiation est en partie contrôlée par la relaxation des contraintes résiduelles [R.A.Holt, A.R.Causey, 1987], [A.Rogerson, 1988], [V.Fidleris et al., 1987], [G.J.C.Carpenter et al., 1988]. Deux campagnes d'essais ont été menées sur des polycristaux déformés de zircaloy-2 dont les résultats ont été présentés par V.Fidleris [1987] et A.Rogerson [1988].

V. Fidleris a étudié des matériaux déformés de 1.5% par traction uniaxiale et par laminage (voir figure A1-15). Cet auteur a comparé le comportement en croissance sous irradiation à 330 K des matériaux déformés avec celui du matériau recristallisé (référéncé 199-K). Il s'avère que la prédéformation imposée par laminage au matériau inverse le sens de croissance. En ce qui concerne l'éprouvette déformée par traction, on arrive aux mêmes conclusions à savoir que l'on passe d'une déformation positive dans la direction de laminage pour le matériau recristallisé à une contraction pour le matériau déformé.

Si l'on attribue la spécificité de l'allure des courbes à la relaxation de contraintes résiduelles pendant l'essai d'irradiation, on explique aisément et intuitivement (nous ne disposons pas des valeurs de contraintes résiduelles mesurées) le sens de croissance excepté pour la direction transverse du matériau déformé par laminage. En effet, si l'on se réfère aux essais de dilatation thermique sur les matériaux bruts de laminage (paragraphe II-3-3-4-1), on pouvait s'attendre à ce que les contraintes résiduelles dans la direction transverse engendrassent une contraction du matériau. Toutefois, il est hasardeux et dangereux de se risquer à interpréter ce genre de comportement sans avoir la moindre idée de la valeur des contraintes résiduelles existant dans le matériau après déformation. D'autre part, on constate pour l'échantillon prélevé dans la direction longue et déformé par laminage, que la croissance redevient positive à partir d'une fluence de l'ordre de  $7 \times 10^{25}$  n/m<sup>2</sup>. Ceci montre qu'à partir d'une certaine quantité de contraintes relaxées, une croissance normale prend place dont la part est supérieure à celle induite par la relaxation.

Le Laboratoire Nucléaire de Chalk River (L.N.C.R.) a également étudié l'influence d'un traitement de détentionnement (50 heures à 500°C) postérieur à la déformation et antérieur à l'irradiation. Ce traitement thermique a pour conséquence de réduire les contraintes résiduelles dans le matériau. Ceci se traduit tout naturellement au niveau du comportement sous irradiation du matériau, par une réduction de la déformation induite par la relaxation des contraintes résiduelles et un retour à la normale (état recristallisé). Ce retour à la normale n'est que partiel, ce qui nous laisse présager que le traitement de détentionnement adopté n'est pas suffisant pour éliminer

les contraintes existant dans le matériau après déformation. Cette remarque se confirme par les mesures de taux de dislocations effectuées par V.Fidleris et al. (1987) reportées sur la figure A1-16 où l'on constate que le comportement de l'état baptisé détendu est plus proche de celui de l'état écroui que de celui de l'état recristallisé.

A.Rogerson [1988] s'est penché sur le comportement du zircaloy-2 déformé par laminage (0.75 et 2%) pour deux températures distinctes: 353 K (figure A1-17) et 553 K (figure A1-18). Il ne s'est intéressé qu'à la direction de laminage et les essais ont été poursuivis jusqu'à des fluences relativement faibles ( $<1$  à  $2 \times 10^{25}$  n/m<sup>2</sup>). Conformément à ce qu'a observé V.Fidleris, la croissance sous irradiation du zircaloy-2 est fortement influencée par la prédéformation imposée au matériau.

On remarque à 353K, après un léger transitoire où la dimension longue de l'éprouvette va en croissant, une contraction du matériau pour des fluences supérieures à  $2 \times 10^{24}$  n/m<sup>2</sup>. Cette contraction, systématiquement précédée d'un "transitoire positif", semble logiquement augmenter avec l'amplitude de la prédéformation. Si l'on effectue un traitement de détentionnement (traitement de détentionnement II + 2 heures à 510°C, seules informations dont on dispose) avant d'introduire l'éprouvette en pile, le comportement du matériau tend vers celui observé pour le matériau recristallisé. Notons qu'une comparaison directe avec les résultats présentés par V.Fidleris est périlleuse non seulement parce que la température d'irradiation n'est pas la même mais aussi et surtout parce que la texture des deux matériaux testés est différente.

A 553 K, l'importance de la prédéformation est encore plus marquée. Les éprouvettes déformées de 0.75 et 2% ont une croissance négative durant tout l'essai. De plus, on constate que la déformation mesurée tend vers celle enregistrée au cours des traitements thermiques de relaxation. D'autre part, il semblerait là encore que le traitement thermique de détentionnement ne permette d'éliminer qu'une partie des contraintes résiduelles présentes après la déformation.

Il est indéniable qu'une déformation plastique précédant l'essai de croissance d'un zircaloy-2, a une influence directe sur le comportement sous irradiation du matériau. Ce comportement spécifique est fonction du type de sollicitation imposée au matériau, du taux d'écrouissage et de la température d'irradiation.

Tous les auteurs attribuent ce comportement à la présence de contraintes résiduelles qui se relâchent pendant l'essai. R.A Holt et A.R. Causey [1987] ont tenté de modéliser l'influence des contraintes résiduelles sur la croissance sous irradiation dans le cas d'une prédéformation par traction uniaxiale. Les résultats qu'ils ont obtenus grâce à leur modèle semi-empirique sont en accord avec les valeurs expérimentales.

#### A1 - 2 - 3 - 2 - 2 - Fort écrouissage

Le L.N.C.R. a étudié le comportement de zircaloy ayant subi des déformations par laminage comprises entre 0.25 et 25.7% (figure A1-19 et tableau A1-2). Les mesures effectuées jusqu'à des fluences importantes ( $1.4 \times 10^{26}$  n/m<sup>2</sup>) et pour une température de 330 K, ont amené V. Fidleris et al. [1987] à faire plusieurs remarques dont les interprétations sont plus ou moins convaincantes.

	taille des grains ( $\mu\text{m}$ )	Facteurs de Keams			densité de dislocations ( $\times 10^{14} \text{m}^{-2}$ )
		$F_1$	$F_t$	$F_n$	
recristallisé	31	0.07	0.40	0.53	0.24
C.W. 0.25%	25	0.06	0.39	0.56	0.76
C.W. 0.25% détendu	27	0.05	0.40	0.55	0.17
C.W. 1.5%	28	0.06	0.39	0.56	1.70
C.W. 1.5% détendu	28	0.06	0.37	0.57	0.44
C.W. 3.3%	36	0.05	0.38	0.57	2.08
C.W. 3.3% détendu	32	0.05	0.38	0.57	1.21
C.W. 12.3%	36	0.05	0.33	0.62	5.44
C.W. 12.3% détendu	39	0.05	0.30	0.65	1.39
C.W. 25.7%	29	0.06	0.30	0.64	6.08
C.W. 25.7% détendu	29	0.05	0.30	0.65	3.34

**Tableau A1-2:** Quelques caractéristiques métallurgiques des matériaux déformés

A partir d'une certaine valeur de la prédéformation, la part de la déformation engendrée par la relaxation des contraintes résiduelles devient négligeable par rapport à la déformation totale. Celle-ci semble être alors contrôlée par la densité croissante de dislocations. Fidleris suppose que la valeur des contraintes résiduelles ne peut dépasser un certain seuil et qu'elle est donc constante pour des prédéformations supérieures à une certaine limite qui reste à définir. Cette limite serait, dans le cas présent, comprise entre 3.3% et 12.3% (Fidleris l'évalue à 5%).

A partir de cette prédéformation limite, la croissance sous irradiation de l'éprouvette déformée est une fonction linéaire de la fluence (il n'y a pas de saturation de la croissance). L'amplitude et la vitesse de la croissance sont d'autant plus élevées que la prédéformation est importante. Ceci est bien entendu à mettre en relation avec la densité croissante de dislocations, de type <a> principalement. Adamson [1977] a effectué une corrélation entre d'une part l'amplitude de la déformation à 555 K et 616 K, pour des fluences de l'ordre de  $1.5 \times 10^{25}$  n/m<sup>2</sup> et d'autre part, le taux de prédéformation. Il a formalisé les résultats de cette corrélation sous la forme suivante:

$$E \propto G_0 + MC \quad \text{(A1-3)}$$

E correspond à la valeur de la déformation,  $G_0$  désigne la croissance du matériau recristallisé, C est le taux de déformation imprimé au matériau et M une constante ( $M=1.5 \times 10^{-3}$  à 616 K,  $M=2 \times 10^{-3}$  à 553 K). Notons que dans cette relation, on ne tient pas compte d'une éventuelle anisotropie de comportement due à l'écroissage.

D'autre part, le traitement de détentionnement (1 heure à 500°C) a pour conséquence de réduire légèrement les effets de l'écroissage. Nous avons vu que pour une faible déformation, la relaxation des contraintes résiduelles intervenait dans une moindre mesure sur la croissance après traitement thermique. Dans le cas d'un écroissage plus important, le traitement de recuit, qui réduit la densité de dislocations, se traduit par une diminution faible mais significative de la vitesse de croissance sous irradiation. Holt [1979] a établi une corrélation entre l'amplitude de la croissance sous irradiation pendant le stade stationnaire et la densité de dislocations  $\rho$ . Il a estimé que ces deux grandeurs étaient fonction l'une de l'autre:

$$E \propto \rho^{0.82} \quad \text{(A1-4)}$$

### A1 - 2 - 3 - 3 - Conclusions

Les essais effectués sur les matériaux écrouis montrent toute l'importance d'une prédéformation sur le comportement des éprouvettes de zirconium et de zircaloy. Ainsi, la déformation du matériau a deux conséquences non indépendantes, mais que nous distinguons dans un souci de clarté:

- La création de contraintes résiduelles.
- La multiplication des dislocations principalement de type <a>. Rappelons qu'il est généralement admis que le système de glissement le plus actif dans les alliages de zirconium est le "système prismatique" {10.0} <-12.0> [H. Demars, 1963], [D. Charquet, 1987].

La relaxation des contraintes résiduelles va induire une déformation dont l'amplitude et le sens sont fonction du type de sollicitation. Cette relaxation est rendue possible par l'irradiation qui favorise les phénomènes de microfluage. Cette composante de la croissance sous irradiation peut être positive ou négative [R.A. Holt, 1988]. Il est nécessaire, pour confirmer l'influence de cette relaxation, d'être en mesure d'évaluer de manière suffisamment fine le tenseur des contraintes résiduelles moyennes présentes avant irradiation.

La multiplication des dislocations a pour effet d'augmenter de manière considérable la croissance du matériau. Ceci est vérifié aussi bien pour les monocristaux de zirconium que pour les polycristaux de zircaloy-2. V. Fidleris [1987] explique ce comportement en supposant que les nombreuses dislocations de type <a> créées au cours de la déformation sont des pièges pour les particules (interstitiels probablement) produites pendant l'irradiation. Il suppose alors que lorsque l'écroissage est relativement important (taux de dislocations élevé), la part de déformation induite par la relaxation des contraintes résiduelles devient négligeable. Fidleris sous-entend dans cette hypothèse que les contraintes résiduelles ne peuvent excéder une certaine valeur limite et que par conséquent, la déformation qu'elles induisent par relaxation est elle aussi limitée. Notons qu'à notre

connaissance, aucune étude visant à connaître les effets d'un "fort" écrouissage sur l'anisotropie de croissance sous irradiation, n'a été menée.

Les hypothèses avancées ci-dessus sont cohérentes avec les essais effectués sur des échantillons déformés puis soumis à un "traitement de détentionnement". Celui-ci a pour effet de réduire, sans les annihiler, les effets de la prédéformation. Aussi, le comportement du matériau après traitement thermique se rapproche de celui du matériau recristallisé.

Il est difficile de savoir, d'un point de vue microstructural, ce qui se passe dans les matériaux écrouis, au cours de l'irradiation. En effet, il est délicat de faire la différence, lors des observations microscopiques, entre la microstructure de départ et les modifications de cette dernière au cours de l'irradiation. Aussi, on ignore par exemple si les fortes croissances mesurées pour les matériaux fortement écrouis sont dues à la présence ou à la création de B.D. à composante <c>. Il est également délicat de déterminer, pour les matériaux écrouis, la nature interstitielle ou lacunaire et la densité des B.D. de type <a> créées au cours de l'irradiation.

D'autre part, nous avons également signalé la croissance record du monocristal de zirconium déformé de 18% par laminage, croissance largement supérieure à celle d'un polycristal de zircaloy-2 déformé de 25.7%. Nous verrons qu'une explication possible de ce phénomène est la présence d'étain dans le zircaloy-2 (paragraphe A1-2-3-2). En effet, il semblerait que l'étain soit un piège à défauts (probablement des lacunes) qui, en facilitant la recombinaison des paires de Frenkel, réduit la vitesse de croissance du matériau.

Enfin, des essais ont été effectués à 330 K sur deux échantillons de zircaloy-2 se différenciant par leur dernier traitement thermique [V. Fidleris et al., 1985]. Le premier, référencé 199-K, a été recristallisé à 800°C puis refroidi lentement alors que le second, référencé 199-V, a été traité en phase  $\beta$  à 1020°C et refroidi rapidement (probablement quelques centaines de degrés par seconde), ce dernier traitement ayant pour objet d'introduire dans le matériau des contraintes d'origine thermique. Les deux échantillons se distinguent par leur texture ( $F_{\parallel}=0.062$ ,  $F_{\perp}=0.398$  et  $F_{\eta}=0.540$  pour 199-K,  $F_{\parallel}=0.259$ ,  $F_{\perp}=0.461$  et  $F_{\eta}=0.287$  pour 199-V) mais aussi et principalement par la présence ou non de contraintes résiduelles. Celles-ci semblent se relaxer pendant l'irradiation (voir figure A1-20) à partir de  $10^{25}$  n/m<sup>2</sup> en imposant une vitesse de déformation négative à l'éprouvette 199-V jusqu'à la fin de l'essai.

### A1 - 3 - Autres paramètres

Nous ne désignons pas par "autres paramètres" des paramètres qui ont une importance secondaire. Au contraire, nous allons voir que la taille du grain et la composition chimique peuvent avoir une influence prépondérante sur le comportement en croissance sous irradiation. Cependant, il est difficile de cerner avec précision ou de quantifier les effets de ces paramètres dont on sait que leurs effets ne sont pas systématiques.

#### A1 - 3 - 1 - La taille des grains

Là encore, peu d'études ciblées ont été menées pour caractériser l'influence de la taille des grains. Pourtant, nombre de théories adopte l'hypothèse que les joints de grains constituent des pièges à lacunes [R.A.Holt et E.F.Ibrahim, 1979], [E.F.Ibrahim et R.A.Holt, 1980], [B.L.Adams et G.S.Clevinger, 1980], [D.Fainstein-Pedraza et al., 1978], [A.J.Pedraza et D.Fainstein-Pedraza, 1980] et que par conséquent la densité de joints, liée à la taille des grains, intervient de manière essentielle sur les propriétés sous irradiation des alliages de zirconium.

A.Rogerson [1984] a réuni différents résultats d'essais de croissance dans l'optique de corréler la déformation sous irradiation et la taille des grains pour des polycristaux de zirconium. L'auteur précité a essayé de cerner l'influence de ce paramètre à 353 et 553 K, en maintenant d'autres grandeurs constantes (tableau A1-3).

Matériau	Facteur de Kearns	Taille des grains	Forme des grains	Densité de dislocations
Al	0.16	40 $\mu\text{m}$	équiaxe	$<10^{13} \text{ m}^{-2}$
Bl	0.16	5 $\mu\text{m}$	"	$<10^{13} \text{ m}^{-2}$
Cl	0.30	75 $\mu\text{m}$	"	$10^{13} \text{ m}^{-2}$
At	0.40	40 $\mu\text{m}$	"	$<10^{13} \text{ m}^{-2}$
Bt	0.40	5 $\mu\text{m}$	"	$<10^{13} \text{ m}^{-2}$

**Tableau A1-3: Polycristaux de zirconium utilisés dans l'étude de Rogerson [1984]**

Les courbes correspondant aux deux températures étudiées sont reportées sur les figures A1-21 et A1-22. Il apparaît nettement qu'à 353 K, l'influence de la taille des grains est faible pendant le transitoire et quasiment inexistante au cours du stade stationnaire. Notons, que la différence de comportement entre Al et Bl d'une part et Cl d'autre part, est à mettre en relation avec la différence de texture entre ces matériaux (le facteur de Kearns étant de 0.16 pour Al et Bl contre 0.30 pour Cl). A 553 K, les conclusions sont les mêmes en ce qui concerne le stade stationnaire. Par contre, il semblerait que la phase transitoire dépende largement de la taille moyenne des grains. En effet, l'amplitude et la durée du stade primaire sont d'autant plus grandes que le grain est petit.

Les conclusions de A. Rogerson sont en accord avec les résultats de C.D. Cann [1986] obtenus à des températures plus élevées (647 à 686 K). Celui-ci a montré qu'il y avait une forte dépendance entre la croissance durant le transitoire et la taille des grains. De plus, il a constaté que pour des fluences plus grandes, la vitesse de croissance sous irradiation était identique quelle que soit la taille des grains. C.D.Cann a également insisté sur le fait qu'à partir d'un certain diamètre (supérieur à 50  $\mu\text{m}$ ), le matériau devenait insensible à la taille du grain. Lorsque l'on atteint la dimension critique précitée, l'amplitude de la déformation devient comparable à celle mesurée dans le cas des monocristaux de zirconium non déformés.

M. Griffiths [1988], conscient de l'importance que l'on attribuait aux joints de grains, a entrepris une étude au M.E.T. sur des matériaux irradiés (zirconium et zircaloy-2) dans le réacteur EBR-II à des températures de l'ordre de 700 K. L'analyse de la distribution et de la nature lacunaire ou interstitielle des B.D. a montré que les zones voisines des joints de grains se caractérisaient par la présence exclusive de B.D. lacunaires. Il apparaît également des B.D. à composante  $\langle c \rangle$  à l'intérieur des joints de grains, indiquant d'après M.Griffiths, que les joints de grains ne constituent pas forcément des pièges à lacunes.

D'autre part, il semble se former des amas de lacunes près de certains joints de grains. Griffiths suppose, d'après les mesures qui ont été effectuées, que la formation préférentielle d'amas de lacunes (cavités ou "void clusters") est fonction de la désorientation entre grains. Ces cavités se trouvent également à l'intérieur du grain, près des précipités, voire liés à ceux-ci (voir paragraphe A1-2-3-3). La densité d'amas de lacunes est plus élevée dans le zirconium que dans le zircaloy-2. Ceci est attribué au fait que le zircaloy-2 irradié contient des B.D. lacunaires à composante  $\langle c \rangle$  qui en se formant ou en grossissant absorbent également des lacunes, phénomène entrant en compétition avec la formation de cavités.

D'un point de vue expérimental, l'observation des B.D. au niveau des joints de grains et a fortiori la détermination de leur vecteur de Burgers est longue, délicate et difficile. Si l'on passe outre les difficultés expérimentales auxquelles a été confronté M. Griffiths, ses observations sur les mécanismes de croissance sous irradiation sont fort importantes. D'une part, l'absence de B.D. interstitielles aux abords des joints de grains montre que ceux-ci pourraient constituer des pièges à interstitiels, contrairement à ce que l'on pensait. Cependant, la cohérence des théories développées jusqu'à présent s'explique par la formation préférentielle de cavités près des joints et des sous-joints de grains ; la formation d'amas de lacunes au voisinage des joints ayant les mêmes conséquences que la migration de lacunes vers les limites intergranulaires. D'autre part, l'auteur précité a mis en valeur le fait que la largeur de la zone désertée par les B.D. interstitielles pouvait être fonction de la désorientation entre grains, paramètre supplémentaire à prendre en compte pour la caractérisation des phénomènes de croissance. Enfin, il est à noter que la présence et la répartition des précipités peuvent avoir une influence non négligeable dans le sens où leur présence faciliterait la formation d'amas de lacunes.

### A1 - 3 - 2 - Composition chimique

Nous allons à présent nous pencher sur l'influence de deux éléments chimiques (l'étain et le niobium) sur le comportement en croissance sous irradiation du zirconium. Nous avons choisi ces deux éléments non pas parce qu'ils nous paraissent primordiaux, mais parce que ce sont quasiment les seuls qui ont été étudiés individuellement.

#### A1 - 3 - 2 - 1 - Etain

A. Rogerson et R.H. Zee [1988] ont mené une étude sur deux alliages de zirconium recuits ayant différents taux d'étain (0.13% et 1.50%). Les mesures ont été effectuées dans la direction longue (facteur de Keams  $F_1=0.05$ ) pour deux températures: 353 et 553 K.

Les résultats, reportés sur les figures A1-23 et A1-24, sont comparés à ceux obtenus dans les mêmes conditions pour des polycristaux de zirconium (présence d'étain à l'état de traces) et pour des polycristaux de zircaloy-2 (ayant une teneur en étain de l'ordre de 1.5%).

On constate en premier lieu sur les figures, que la déformation du Zr-0.1% Sn est plus importante que celle du Zr-1.5% Sn à 353 K. Cette tendance s'inverse à 553 K puisque le Zr-1.5% Sn croît plus que le Zr-0.1% Sn. A. Rogerson et R.H Zee expliquent en partie ce comportement en supposant que l'étain a pour effet de capturer des lacunes à 353 K. Sa présence augmente, en bloquant des lacunes à l'intérieur du grain, la probabilité de recombinaison des paires de Frenkel et neutralise les effets de l'irradiation pendant le stade stationnaire. Cette interprétation est également invoquée pour expliquer la forte amplitude de croissance du zircaloy-2 et du Zr-1.5% Sn durant le transitoire. En effet, on adopte l'hypothèse que les amas de lacunes croissent très rapidement autour des atomes d'étain, entraînant un changement de volume, jusqu'à atteindre une taille critique à partir de laquelle les recombinaisons prédominent. D'autre part, on suppose que l'augmentation de la température a pour effet de diminuer la section de capture des lacunes de l'étain et la recombinaison est alors moins forte. Ces différentes hypothèses n'expliquent cependant pas la croissance moins forte du Zr-0.1% Sn comparée à celle du Zr-1.5% Sn à 553 K...

Les déformations enregistrées pour le zircaloy-2 et le Zr-1.5% Sn à 353 K d'une part, et pour le zirconium et le Zr-0.1% Sn à 353 et 553 K d'autre part, sont proches. Ceci pourrait nous laisser sous-entendre qu'à taux d'étain équivalent, la croissance des alliages de zirconium est comparable. Cependant, les courbes représentant la croissance sous irradiation du Zr-1.5% Sn et celle du zircaloy-2 à 553 K sont totalement distinctes. Les deux auteurs précédemment cités, attribuent cet écart à la présence de certains éléments d'alliage dans le zircaloy-2 (Cr, Fe, Ni...) absents dans le Zr-1.5% Sn. L'un (ou plusieurs) de ces éléments pourrait jouer, à 553 K, un rôle similaire à celui de l'étain à 353 K, à savoir qu'il constituerait des pièges à lacunes. Ceci expliquerait alors la croissance plus faible du zircaloy-2 à 553 K par rapport à celle du Zr-1.5% Sn.

D'autre part, on constate que la vitesse de croissance du Zr-0.1% Sn est nettement plus élevée que celle du zirconium aussi bien à 353 qu'à 553 K. Ceci montre qu'un faible taux d'étain peut changer considérablement le comportement sous irradiation des alliages de zirconium.

De la même manière, on peut se rendre compte pour le Zr-1.5% Sn, que la valeur de la fluence ( $5 \times 10^{25} \text{ n.m}^{-2}$ ) à partir de laquelle apparaît le troisième stade ("growth breakaway") est indépendante de la température d'irradiation, contrairement à ce que l'on observe pour le zircaloy-2. A. Rogerson suppose donc que l'étain favorise le phénomène de growth breakaway alors que des éléments tels que le fer, le nickel ou le chrome retardent voire empêchent l'apparition de ce stade.

L'étude des alliages de zirconium-étain est fort intéressante car elle permet de mieux cerner le rôle en croissance sous irradiation de l'étain. Cependant, les résultats obtenus pour le Zr-1.5% Sn et Zr-0.1% Sn, s'ils permettent de répondre à certaines questions, soulèvent quelques problèmes. A. Rogerson et R.H. Zee ont tenté de résoudre un certain nombre de ces problèmes en avançant des arguments plus ou moins convaincants. En fait, cette étude souligne une fois de plus les difficultés liées à l'interprétation des mécanismes souvent complexes de croissance sous irradiation.

#### A1 - 3 - 2 - 2 - Niobium

Les études sur le niobium concernent l'alliage Zr-2.5% Nb utilisé dans les réacteurs de conception canadienne (CANDU). Les essais sont réalisés sur des tubes. Nous exposons à titre

d'exemple les travaux de A. Rogerson et de R.A. Murgatroyd [1979] traitant de l'irradiation à 353 K d'un alliage recuit et ceux de R.G. Fleck et al. [1988] menés dans le réacteur Dido à AERE Harwell sur un alliage transformé à froid (détendu ou non) irradié à 553, 583 et 623 K.

#### A1 - 3 - 2 - 2 - 1 - Irradiation à 353 K

A 353 K, l'irradiation du Zr-2.5% Nb recuit, constitué de grains cylindriques de 1  $\mu\text{m}$  de diamètre et de 6  $\mu\text{m}$  de longueur, est caractérisée par un court transitoire suivi d'un long stade stationnaire. La croissance est positive dans la direction axiale du tube ( $F_l=0.03$ ) et négative dans la direction transverse ( $F_t=0.59$ ). L'anisotropie constatée est en assez bon accord avec la loi en 1-3F (voir figure A1-25) puisque si l'on utilise les expressions  $\{l-2l\}$  pour calculer les constantes de croissance monocristallines correspondant à une fluence de  $4 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$ , on obtient des résultats supérieurs mais comparables à ceux obtenus pour le zirconium et le zircaloy, montrant que la variation de volume est relativement faible.

$$\varepsilon_{11}=1.74 \times 10^{-3} \quad \varepsilon_{33}=-2.91 \times 10^{-3} \quad \frac{\Delta V}{V}=0.57 \times 10^{-3}$$

Notons toutefois que la croissance de cet alliage ne sature pas aussi rapidement que celle du zircaloy, la vitesse de croissance après  $4 \times 10^{24} \text{ n/m}^2$  reste importante. Cependant, A. Rogerson évoque les mêmes mécanismes de déformation pour le Zr-2.5% Nb que pour le zircaloy-2 à savoir création de B.D. interstitielles ou d'amas d'interstitiels accompagnée d'une migration des lacunes aux joints de grains.

Signalons que le modèle proposé par R.A. Holt et E.F. Ibrahim [1979], tenant compte de la forme des grains, permet d'interpréter les courbes A1-31. En effet, la croissance négative sens travers, qui est plus importante que ce à quoi on pouvait s'attendre avec la loi en 1-3F, peut être expliquée par une dimension du grain plus faible dans cette direction entraînant une migration des lacunes plus aisée vers les joints de grain. Mais le modèle précité ne permet pas de quantifier l'anisotropie de la déformation mesurée.

#### A1 - 3 - 2 - 2 - 2 - Irradiation à 553, 583 et 623 K

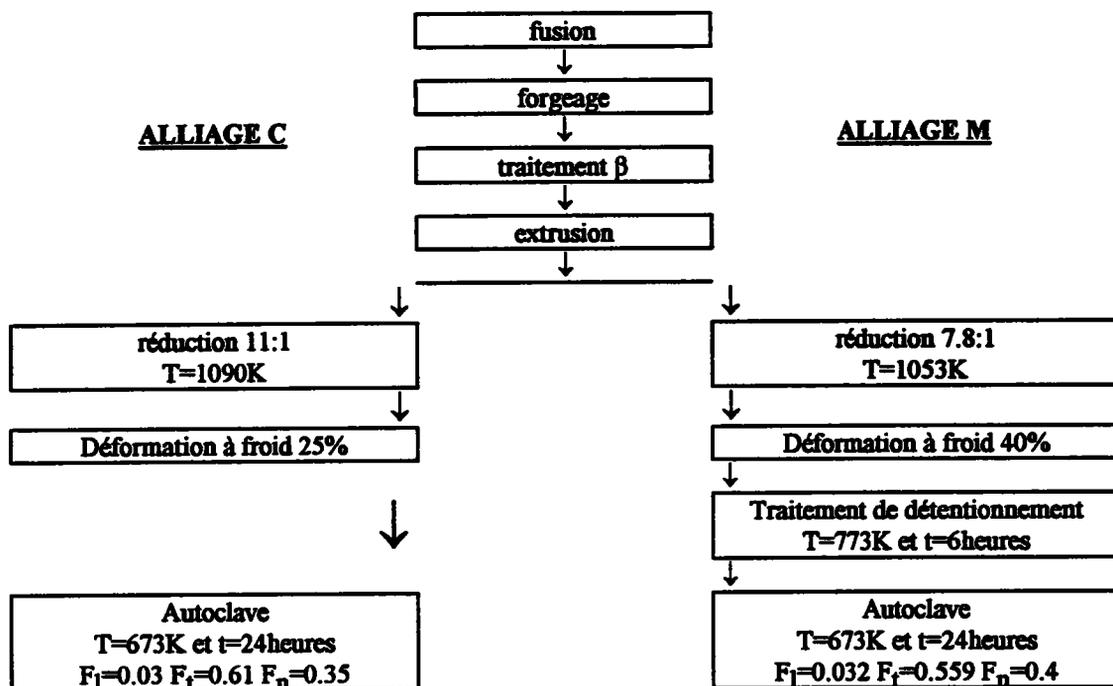
L'étude de R.G. Fleck et al. met en évidence un certain nombre de faits intéressants. L'auteur a étudié deux états métallurgiques (C et M) dont la composition chimique, la taille et la forme des grains, les facteurs de Keams et la gamme de fabrication diffèrent (voir tableau A1-4, A1-5 et A1-6).

élément chimique	spécification	alliage C	alliage M
niobium	2.4-2.8%	2.5-2.7%	2.71%
oxygène (ppm)	900-1300	1100-1300	1330
azote (ppm)	65 max	<55	30
hydrogène (ppm)	20 max	<16	9

Tableau A1-4: Composition chimique des alliages de Zr-2.5% Nb étudiés par R.G. Fleck

	taille des grains			facteurs de Keams		
	$d_l$	$d_t$	$d_n$	$F_l$	$F_t$	$F_n$
alliage M	5.0 $\mu\text{m}$	1.0 $\mu\text{m}$	0.25 $\mu\text{m}$	0.032	0.559	0.4
alliage C	6.0 $\mu\text{m}$	1.2 $\mu\text{m}$	0.31 $\mu\text{m}$	0.041	0.616	0.347

Tableau A1-5: Taille des grains et facteurs de Keams pour les alliages C et M



**Tableau A1-6:** Gamme de fabrication des alliages Zr-2.5%Nb C et M

Les déformations ont été mesurées à 553 K selon la direction longue et selon la direction transverse pour les deux alliages de Zr-2.5% Nb: M et C (figures A1-26, A1-27, A1-28 et A1-29). D'autre part, la température a été modifiée au cours de certains essais afin de nous renseigner davantage sur les mécanismes de déformation.

L'alliage référencé C, se comporte conformément à la loi en 1-3F, montrant une croissance positive selon la direction longue et une contraction selon la direction transverse conformément aux facteurs de Kearns mesurés. Si l'on calcule les constantes de croissance monocristalline à 553 K pour une fluence de  $5 \times 10^{25} \text{ n.m}^{-2}$ , à l'aide des relations {II-21}, on obtient là aussi des valeurs comparables à celles obtenues pour les polycristaux de zirconium et de zircaloy:

$$\varepsilon_{11} = 1.32 \times 10^{-3} \quad \varepsilon_{22} = -2.52 \times 10^{-3} \quad \frac{\Delta V}{V} = 0.12 \times 10^{-3}$$

L'alliage M présente, lui, un comportement plus original dans le sens où l'on mesure une contraction selon les deux directions longue et transverse. Aussi, la loi en 1-3F ne permet absolument pas de prédire la croissance de cet alliage.

Pour interpréter les résultats présentés par R.G. Fleck et al., deux raisonnements sont possibles. Le premier consiste à dire que l'érouissage et les contraintes résiduelles sont en partie responsables de la déformation sous irradiation des alliages M et C. En effet, après un court transitoire où la loi en 1-3F est vérifiée, il s'établit un second régime de croissance qui peut en partie s'expliquer par la présence de contraintes résiduelles et de dislocations de type <a>.

Le matériau C a subi une déformation à froid de 25% (laminage, compression...?) avant d'être soumis à un traitement de détentionnement de 24 heures à 673 K (400°C). La densité de dislocations, mesurée par rayons X, est de l'ordre de  $4.5 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$ . Cette valeur correspond à peu près à la densité de dislocations mesurée pour un zircaloy-2 déformé de 12.3% par laminage (voir paragraphe A1-2-2-3-2-2, tableau A1-2).

Si on fait l'analogie avec le comportement du zircaloy pour la direction longue, on peut supposer que le phénomène de migration des interstitiels vers certains sites, dicte le processus de croissance. Cependant, les contraintes résiduelles ont également une influence puisque l'on remarque une croissance négative dans la direction longue pour des fluences comprises entre  $2 \times 10^{24}$  et  $10 \times 10^{24} \text{ n/m}^2$ . Cette contraction du matériau peut être attribuée à la relaxation des contraintes induites par la déformation plastique. Pour des fluences supérieures, la relaxation des contraintes résiduelles, dont l'amplitude a diminué au cours des premières heures d'irradiation, intervient dans une moindre mesure. Il s'instaure alors un régime de croissance à vitesse de

déformation constante sans saturation de l'amplitude de déformation, proportionnelle à la densité de dislocations. D'autre part, il semble légitime de supposer que la relaxation des contraintes résiduelles est d'autant plus complète et aisée que la température est élevée conformément à ce que l'on observe sur la figure A1-26.

En ce qui concerne la direction transverse de l'alliage référencé C, la vitesse de croissance est négative tout au long de l'essai. On constate, comme pour la direction longue, que la vitesse de croissance est constante pour des fluences supérieures à  $10^{25}$  n.m<sup>-2</sup>. L'influence d'une éventuelle relaxation de contraintes n'étant pas très nette, on peut imaginer que les contraintes résiduelles soient fortement anisotropes et que leurs effets ne sont que mineurs dans la direction transverse. Une fois encore, il serait nécessaire de pouvoir quantifier avec de précision l'état de contraintes dans le matériau avant irradiation.

L'alliage M se caractérise par une densité de dislocations de l'ordre de  $2.4 \times 10^{14}$  m<sup>-2</sup>, correspondant à la valeur mesurée pour un zircaloy déformé de 3.3% par laminage (voir paragraphe A1-2-2-3-2-2, tableau A1-2). Si l'on poursuit l'analogie avec les alliages de zircaloy, on peut imaginer que pour l'alliage M, la relaxation de contraintes résiduelles domine le phénomène de croissance jusqu'à des fluences de l'ordre de  $5 \times 10^{25}$  n.m<sup>-2</sup>, fluence correspondant dans le cas présent à la fin de l'essai. On peut ainsi interpréter la contraction observée dans la direction longue même si l'amplitude de la déformation négative engendrée par le phénomène invoqué peut sembler importante. Pour les mêmes raisons que celles évoquées précédemment, la contraction est d'autant plus grande que la température est importante. Il est clair que pour lever certains doutes, il aurait été souhaitable de poursuivre l'essai jusqu'à des fluences de l'ordre de  $10^{26}$  n.m<sup>-2</sup> afin de vérifier que la croissance redevient positive pour des doses neutroniques importantes.

Dans la direction transverse, on peut adopter les mêmes interprétations que pour l'alliage C. D'autre part, R.G. Fleck a établi que lorsque l'on augmente la température d'irradiation, l'amplitude (en valeur absolue) de la croissance selon cette direction s'en trouvait diminuée. Ceci peut être dû soit à une diminution de la croissance avec la température pour le Zr-2.5% Nb, soit à une relaxation de contraintes résiduelles engendrant une croissance positive.

R.G. Fleck ne croit pas que les contraintes résiduelles suffisent à expliquer le comportement des alliages C et M. D'une part, il suppose que les contraintes dans le matériau M, ayant subi un double traitement de détentionnement (6h à 500°C+24h à 400°C), ne sont pas très importantes et d'autre part, que les déformations enregistrées (de l'ordre de 0.1%) après un changement de température de 70 degrés ne peuvent être interprétées en termes de relaxation de contraintes résiduelles.

L'explication avancée par R.G. Fleck pour expliquer le comportement des alliages de Zr-2.5% Nb, repose sur des critères chimiques tels que la précipitation au sein des grains des atomes de niobium présents dans la phase  $\alpha$ , le rôle important des secondes phases... Ces précipités, ainsi qu'un certain nombre d'autres pièges, répartis de manière non aléatoire, pourraient avoir un rôle prépondérant sur la croissance sous irradiation. Cependant, l'absence d'étude microstructurale fine et quantifiée permettant de connaître l'évolution de la microstructure, empêche de confirmer ces hypothèses.

### A1 - 3 - 2 - 3 - Conclusions

L'influence des différents éléments chimiques composant les alliages de zirconium peut être considérable. Nous avons vu que l'étain et le niobium, selon R.G. Fleck, peuvent constituer des pièges à particules, dictant l'amplitude et le sens de la croissance sous irradiation. Ces effets sont nets et évidents pour l'étain, ils sont moins marqués dans le cas du niobium.

Il est probable que la présence d'un élément atomique dans un polycristal de zirconium pur n'ait pas les mêmes conséquences dans un alliage de zircaloy-2 ou de zircaloy-4. Cependant, les études réalisées pour cerner l'influence de la composition chimique permettent de mieux comprendre certaines observations faites précédemment même si dans le cas du niobium par exemple, il est difficile de faire la distinction entre les effets de l'érouissage et ceux dus à la composition chimique.

Ainsi, nous avons vu que des monocristaux de zirconium déformés de 18% par laminage et irradiés à 353 K présentaient une croissance anormalement élevée, supérieure à celle de polycristaux de zircaloy-2 déformés de 25.7%, irradiés à 330 K. Une explication possible de ce

comportement est bien entendu la présence d'étain dans les polycristaux de zircaloy-2, qui a pour conséquence de réduire l'amplitude de la croissance à 353 K.

D'autre part, nous avons également constaté que la croissance des alliages de zircaloy augmentaient avec la température. Cette tendance peut aussi être mise en relation avec l'évolution de l'interaction étain-lacunes ou étain-interstitiels dont l'amplitude est inversement proportionnelle à la température.

Nous allons voir à présent que les effets de la composition chimique se manifestent également à travers la présence et le comportement des précipités.

### A1 - 3 - 3 - Rôle des précipités

L'étude de l'évolution de la microstructure en général et des précipités en particulier des alliages de zirconium au cours de l'irradiation a fait l'objet de nombreuses études ces dernières années [R.W. Gilbert et al., 1979], [S.N. Buckley et al., 1980], [M. Griffiths, 1988], [F. Lefebvre, 1989], [F. Lefebvre et C. Lemaignan, 1990]...

La structure et la morphologie des secondes phases présentes dans le zircaloy-2 (Zr-1.5Sn-0.15Fe-0.1Cr-0.05Ni) et le zircaloy-4 (Zr-1.5Sn-0.2Fe-0.1Cr) ont été principalement recensées par D. Charquet et al. [1985], [1988]. Dans le zircaloy-4, le principal précipité que l'on rencontre est du type  $Zr(Cr,Fe)_2$  à structure hexagonale compacte. Ce dernier est également présent dans le zircaloy-2 où l'on trouve une autre seconde phase: le  $Zr_2(Ni,Fe)$ , tétragonal centré. La taille de ces précipités, comprise généralement entre 100 et 200 nm, est fonction du traitement thermo-mécanique subi par le matériau. D'autres types de précipités, moins nombreux, ont également été répertoriés tels que le  $Zr_4Fe$ , le  $Zr_3Fe$ , le  $ZrSn$  ou le  $Zr_5Sn_3$ .

De nombreux auteurs ont observé un changement de structure cristallographique et de composition chimique, au cours de l'irradiation, des précipités. Cette évolution, qui tend vers l'amorphisation des précipités, dépend de la fluence et bien entendu de la température. M. Griffiths distingue trois domaines de température:

- A des températures inférieures à 353 K, les précipités de  $Zr_2(Ni,Fe)$  et de  $Zr(Cr,Fe)_2$  deviennent amorphes à des fluences relativement faibles ( $\sim 10^{25}$  n/m<sup>2</sup>). Pour ces températures, la recombinaison des défauts ponctuels créés ou la recristallisation de la zone amorphe est trop lente pour compenser les dégâts du bombardement neutronique. Différents traitements de recuit ont montré que les précipités à base de nickel recristallisaient à partir de 575 K alors que ceux à base de chrome retrouvaient un ordre cristallin à partir de 775 K.

- Pour des températures comprises entre 520 et 600 K, les précipités de  $Zr(Cr,Fe)_2$  deviennent amorphes alors que les  $Zr_2(Ni,Fe)$  gardent leur structure cristalline. M. Griffiths relie l'aptitude à l'amorphisation à la température de recristallisation des différentes particules. En effet, le domaine de température de recristallisation du  $Zr(Cr,Fe)_2$  est évaluée à 775-875 K alors que celui du  $Zr_2(Ni,Fe)$  est comprise entre 575 et 675 K. Ces observations ont été confirmées par W.J.S. Yang [1988] qui a étudié un alliage de zircaloy-4 dans deux états métallurgiques: recristallisé en phase  $\alpha$  et traité en phase  $\beta$ . Au delà de  $12 \times 10^{25}$  n.m<sup>-2</sup> et à 560 K, tous les précipités de  $Zr(Cr,Fe)_2$  se trouvent sous forme amorphe. De plus, il a observé que les zones amorphes s'appauvrissaient en fer au fur et à mesure de l'irradiation (voir tableau A1-7) sans qu'il y ait pour autant formation de nouvelles secondes phases. Notons que la dissolution du fer dans la matrice peut altérer considérablement le coefficient de diffusion des auto-interstitiels de zirconium. Ainsi, G.M. Hood [1985] a montré que la présence de "diffuseurs" rapides tels que le fer ou le nickel, dans des proportions très faibles (0.0005%), pouvaient augmenter de trois ordres de grandeur le coefficient de diffusion des interstitiels de zirconium. Ceci est cohérent avec les observations de W.J.S. Yang qui a noté, conformément à certaines hypothèses adoptées dans des travaux antérieurs, que l'amorphisation des précipités, l'appauvrissement en fer des zones amorphes, la multiplication des B.D. à composante <c> et le phénomène de "growth breakaway" étaient simultanés.

- A plus haute température (620 à 710 K), les différentes particules précipitées restent cristallines. On observe par contre une dissolution des précipités, qui s'appauvrissent en fer, chrome et nickel, associée à la création de précipités secondaires, riches en fer et chrome ou en nickel, ayant une forme allongée. Ces nouveaux précipités sont relativement proches des joints de grains et leur dimension longue est parallèle aux limites intergranulaires. A 675 K, il se forme également des précipités du type  $Zr_4Sn$  et  $Zr_5Sn_3$  à partir de fluences voisines de  $5 \times 10^{25}$  n.m<sup>-2</sup>. Ces constatations

ont été confirmées récemment par J.J. Kai et al. [1990] qui ont étudié un zircaloy-4 soumis à une irradiation de protons à 625 K. Ils ont fait des observations très fines montrant d'une part que les précipités de  $ZrFe_2$ , proches des joints de grain, avaient également tendance à se dissoudre. D'autre part, les précipités de  $Zr(CrFe)_2$  présents dans la matrice connaissent un changement de structure cristallographique passant d'une structure hexagonale compacte (C14) à une structure cubique à faces centrées (C15), phase plus stable à basse température.

Fluence ( $n.m^{-2}$ )	Zr (% en poids)	Fe (% en poids)	Cr (% en poids)
0	55.5	29.5	14.9
$5 \times 10^{25}$	72.7	8.8	18.5
$12 \times 10^{25}$	74.7	5.4	19.9
$14.7 \times 10^{25}$	75.5	5.5	19.0

**Tableau A1-7:** Evolution de la composition chimique des précipités de  $Zr(CrFe)_2$  présents dans le zircaloy-4 au cours de l'irradiation neutronique à 560 K [W.J.S. Yang, 1988]

M. Griffiths a souligné l'importance de ses observations expérimentales pour la croissance sous irradiation:

- A basse température, la transformation cristalline→amorphe peut engendrer un changement de volume local si le volume occupé par la phase amorphe est différent de celui occupé par la phase cristalline.

- A haute température, la dissolution des précipités du type  $Zr(CrFe)_2$ ,  $Zr_2(Ni,Fe)$  et la création d'autres secondes phases peut induire un changement de volume au sein du matériau. De plus la diffusion de certains éléments atomiques dans la matrice peut altérer le comportement du matériau soit, en empêchant les mouvements de montée des dislocations, soit, en modifiant le coefficient de diffusion des auto-interstitiels ou des lacunes. Enfin, la création de précipités riches en étain a une importance considérable. Nous avons vu (paragraphe A1-2-3-2-1) que l'étain en solution solide avait une influence considérable sur la croissance sous irradiation à 353 K en réduisant l'amplitude de la déformation. La perte d'efficacité de cet élément à 553 K pourrait être due à la précipitation de l'étain et non pas, comme le supposaient A. Rogerson et R.H. Zee [1988], à la diminution de l'interaction étain-paire de Frenkel.

On peut ajouter que l'amorphisation et la dissolution de certains précipités s'associent au phénomène de "growth breakaway".

K. Nuttall et D. Faulkner [1977] ont étudié les effets d'une irradiation électronique sur des alliages de Zr-2.5% Nb. Ils ont montré que les secondes phases présentes dans cet alliage avaient également tendance à évoluer. Ainsi, ils ont observé des changements pour la phase métastable  $\omega$  qui tend à s'affiner au fur et à mesure de l'irradiation. Toutefois, l'expérience montre que les analogies entre un bombardement électronique, protonique, ionique et neutronique sont parfois trompeuses [F. Lefebvre et C. Lemaignan, 1990]. K. Nuttall a également montré, en accord avec les études neutroniques de R.W. Gilbert et al. [1979] et R.G. Fleck et al. [1988], que l'irradiation favorisait la création de précipités constitués de la phase  $\beta$  du niobium au sein de la phase  $\alpha$  du zirconium-niobium.

Il est indéniable que l'évolution de la structure et de la composition chimique des précipités et a posteriori de la matrice peuvent avoir une influence énorme sur le comportement non seulement en croissance mais aussi en corrosion et en tenue mécanique des alliages de zirconium.

#### A1 - 4 - Conclusions

L'étude de la croissance sous irradiation des alliages de zirconium a connu ces dernières années un grand intérêt. Ainsi, l'influence d'un certain nombre de paramètres a pu être mise en évidence.

Cependant, des progrès restent à faire notamment dans l'explication physique des différents phénomènes observés à l'échelle macroscopique et microscopique. De la même manière, les relations de cause à effet ne sont pas toujours bien cernées.

Il semble donc nécessaire de compléter les travaux effectués par des études plus fondamentales sur les propriétés des lacunes et des auto-interstitiels de zirconium hors et sous irradiation, pour vérifier certaines hypothèses adoptées. Un certain nombre de travaux ont déjà débuté concernant par exemple, les mécanismes de formation des amas de lacunes au cours de l'irradiation [V.I. Dubinko et al., 1989], l'élimination du phénomène de montée de dislocations par la formation d'amas de lacunes [V.A. Borodin et al., 1989], les processus de recombinaison des paires de Frenkel [N. de Diego et D.J. Bacon, 1989], la vitesse de diffusion des joints de grain lors des traitements de recuit [K. Vieregge et Chr. Herzig, 1990], le coefficient de diffusion des auto-interstitiels dans des monocristaux de zirconium [M. Lubbehusen et al., 1991]... De telles études pourraient améliorer l'approche que l'on a actuellement du problème, en apportant des éclaircissements physiques utiles à la compréhension des phénomènes de croissance sous irradiation des alliages de zirconium.

Figure A1-1 : Les trois stades de croissance sous irradiation

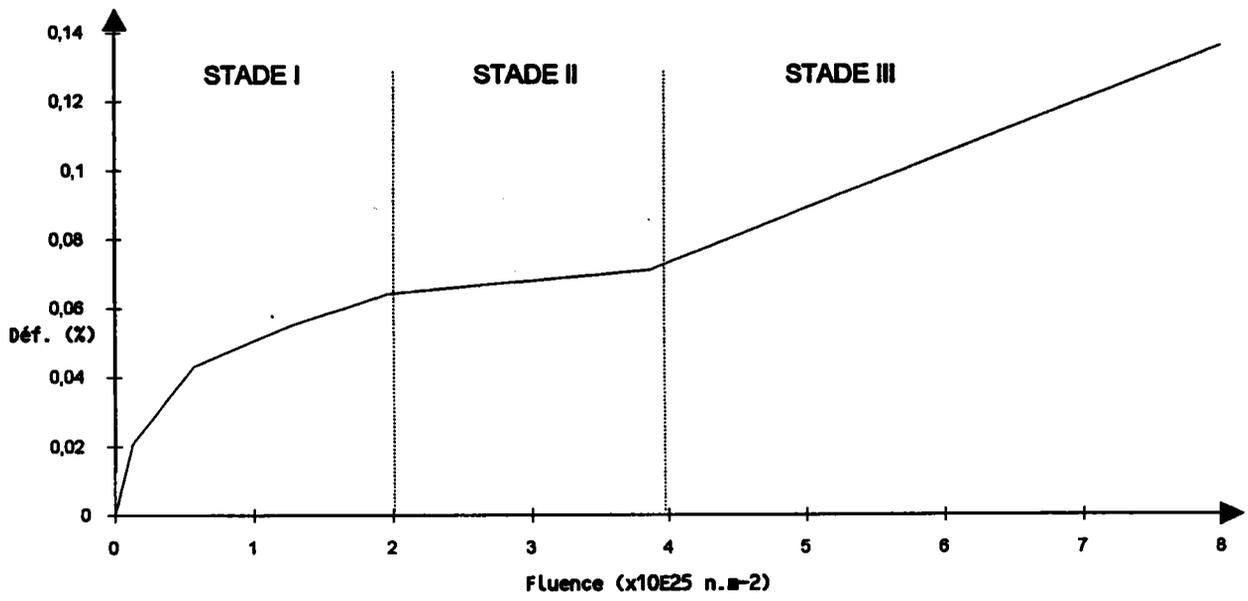


Figure A1-2 : Variations de volume de polycristaux de zirconium (rec1 et laminé: 500 microns, rec2: 100 microns) [D.Cann, 1986]

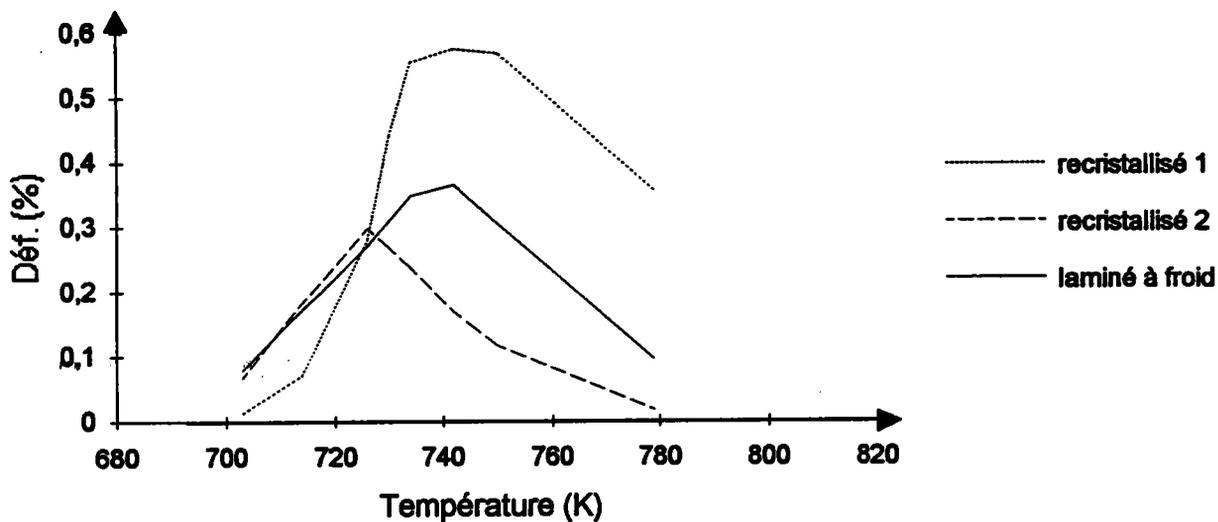


Figure A1-3 : Changement de température au cours des essais d'irradiation sur polycristaux de zirconium [A. Rogerson, 1984]

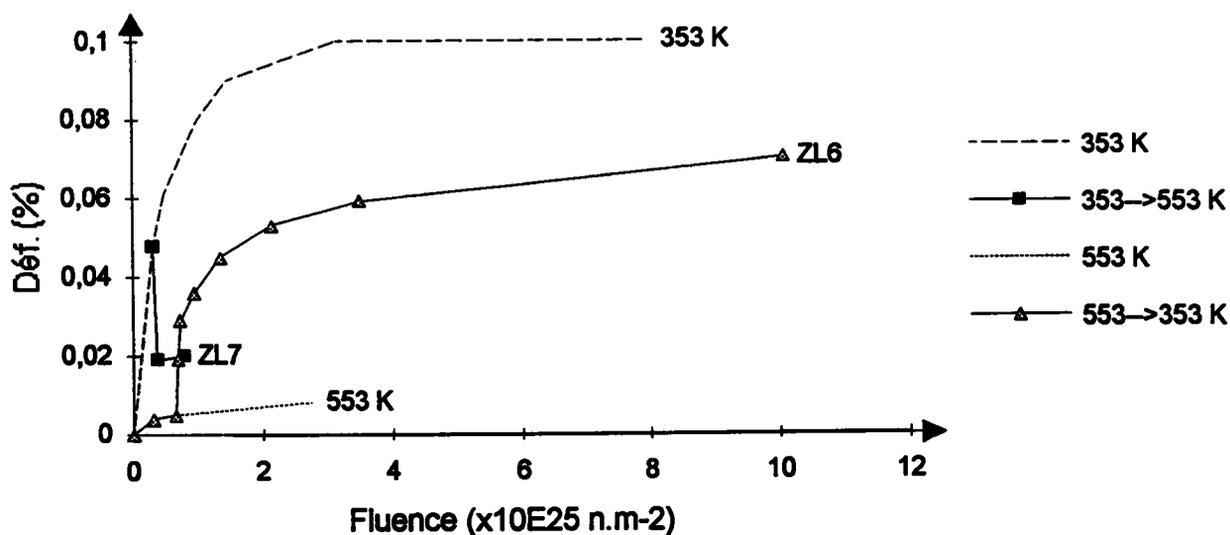


Figure A1-4 : Changement de température au cours de l'irradiation d'un zircaloy-2 laminé à froid [A.Rogerson, 1979]

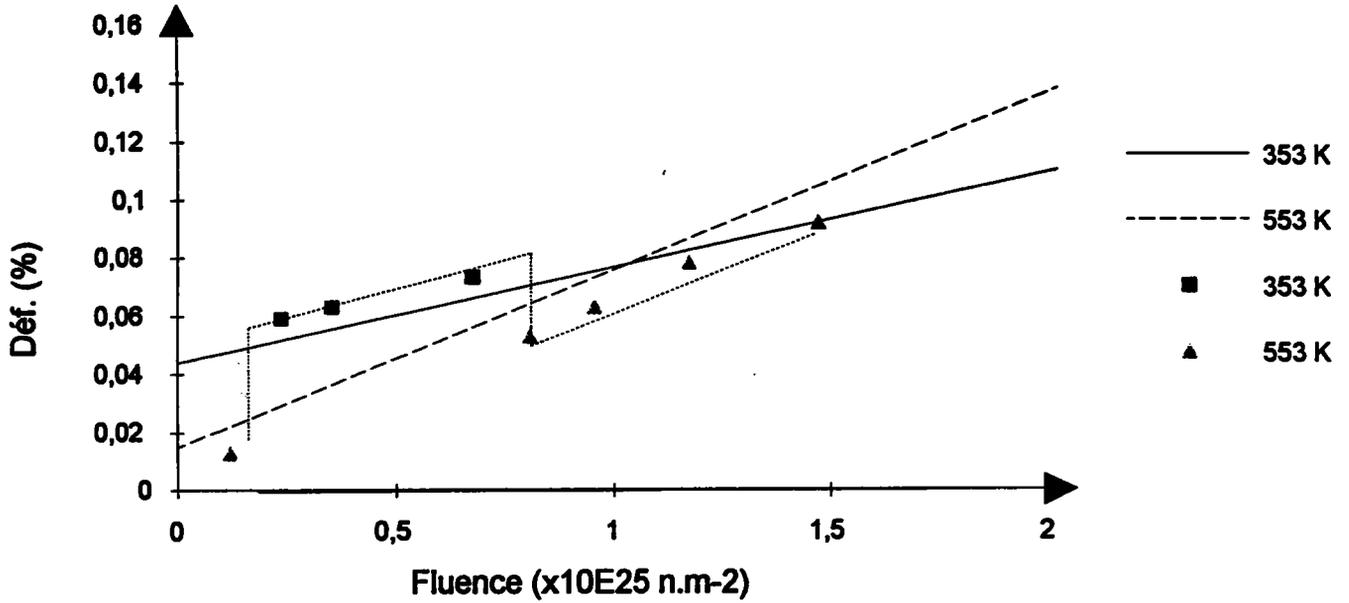


Figure A1-5 : Changement de température au cours de l'irradiation d'un zircaloy-2 laminé à froid [A.Rogerson, 1979]

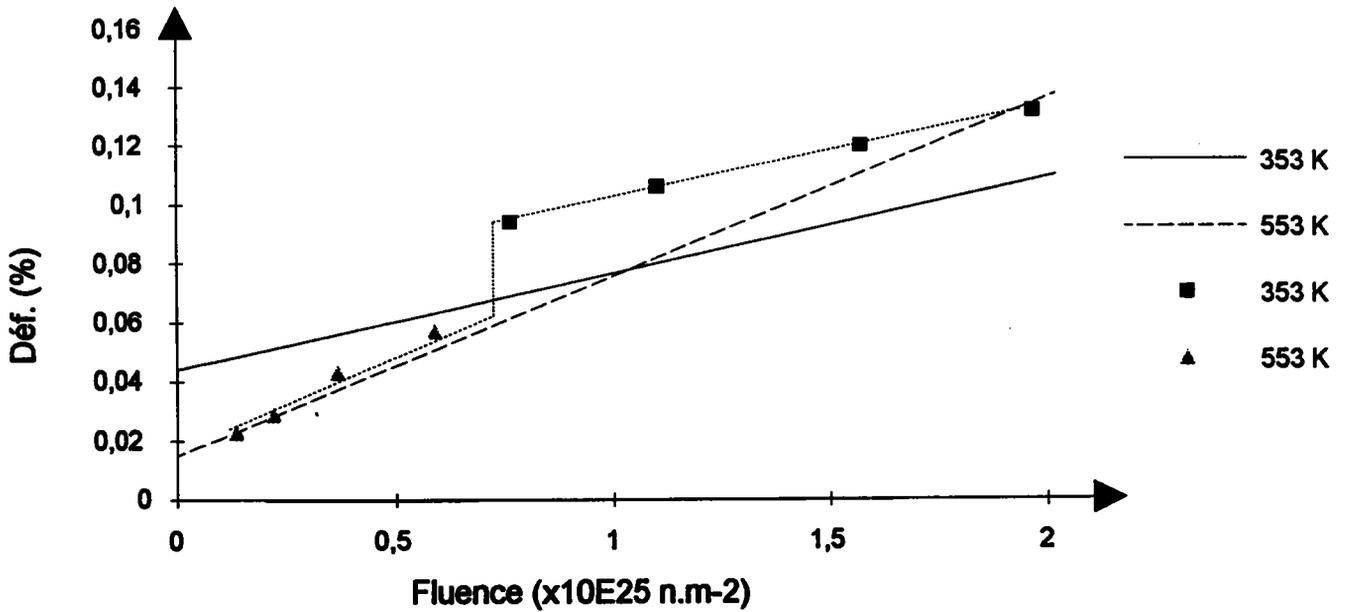


Figure A1-6 : Changement de température au cours de l'irradiation d'un zircaloy-2 laminé à froid [A.Rogerson, 1979]

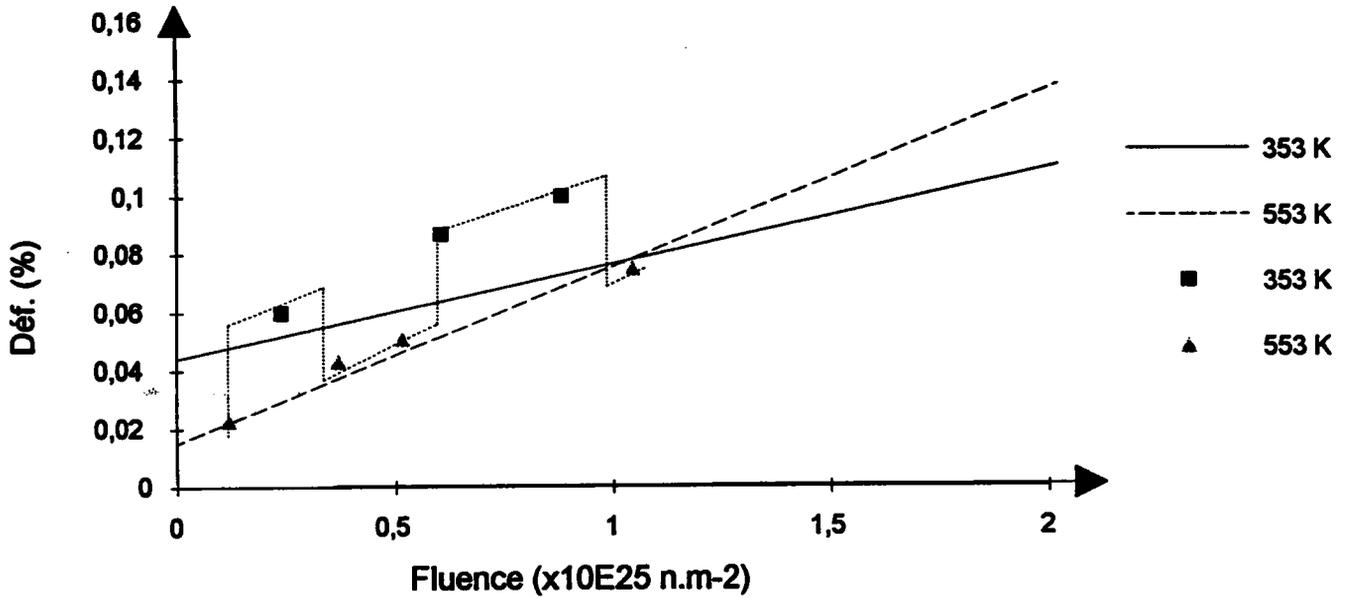


Figure A1-7 : Changement de température au cours de l'irradiation d'un zircaloy-2 laminé à froid [A.Rogerson, 1979]

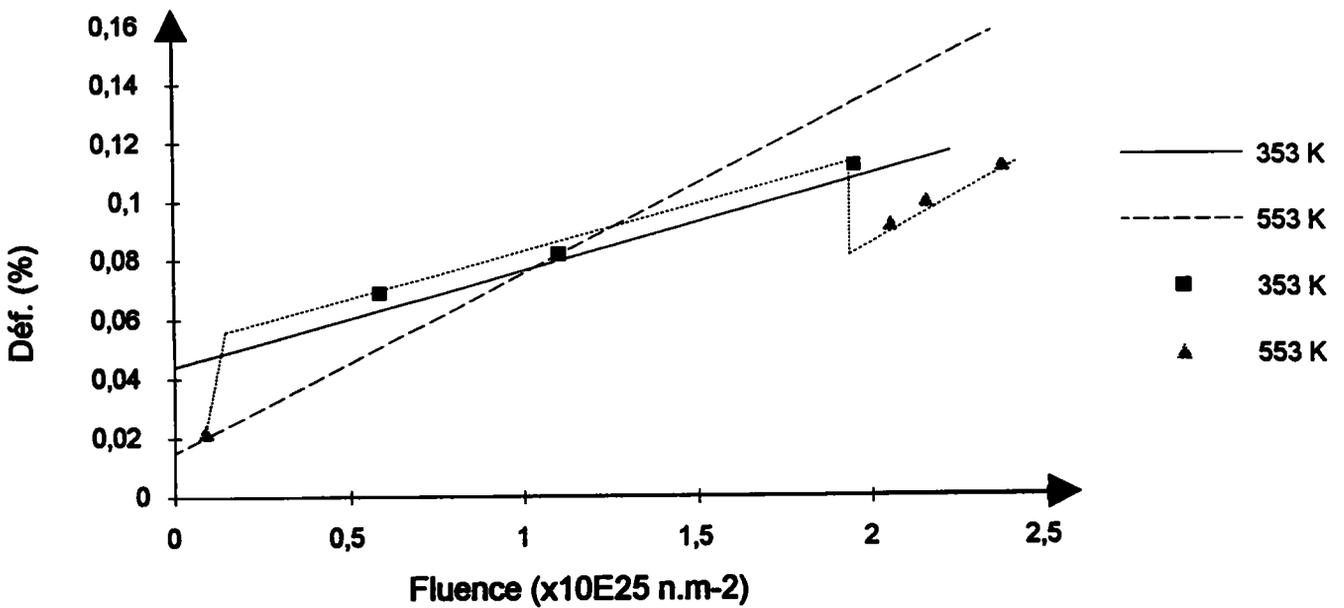


Figure A1-8 : Changement de température au cours des essais d'irradiation sur zircaloy-2 recuit [A.Murgatroyd, 1983]

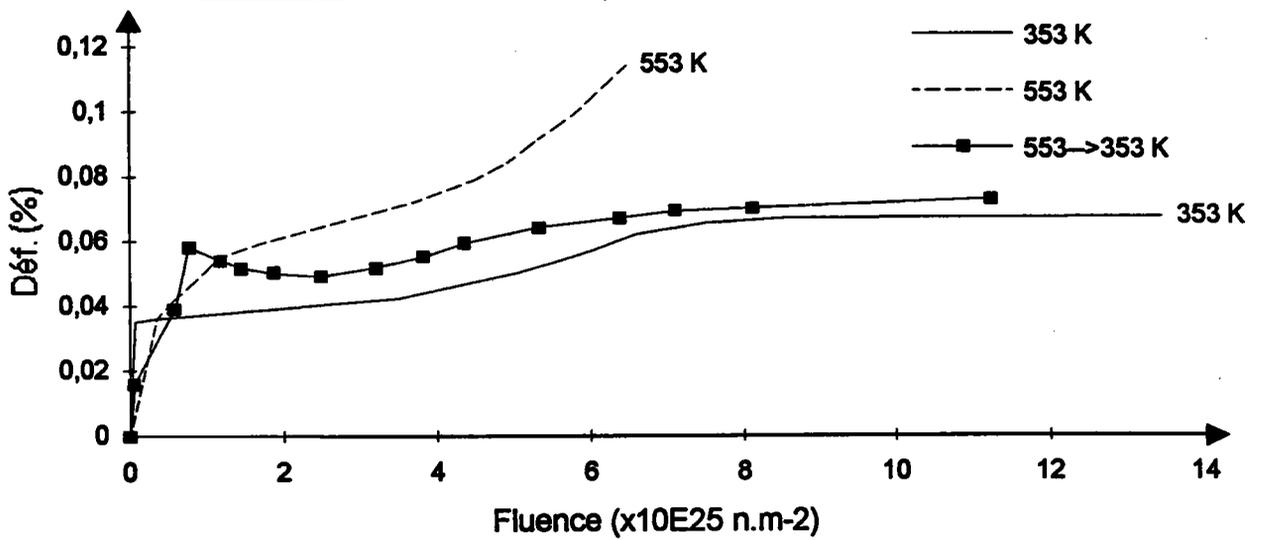


Figure A1-9 : Déformation de polycristaux de zirconium recuits à  $5 \times 10^{25} \text{ n.m}^{-2}$  en fonction de leur facteur de Kearns ( $T_{irr}=353\text{K}$ )

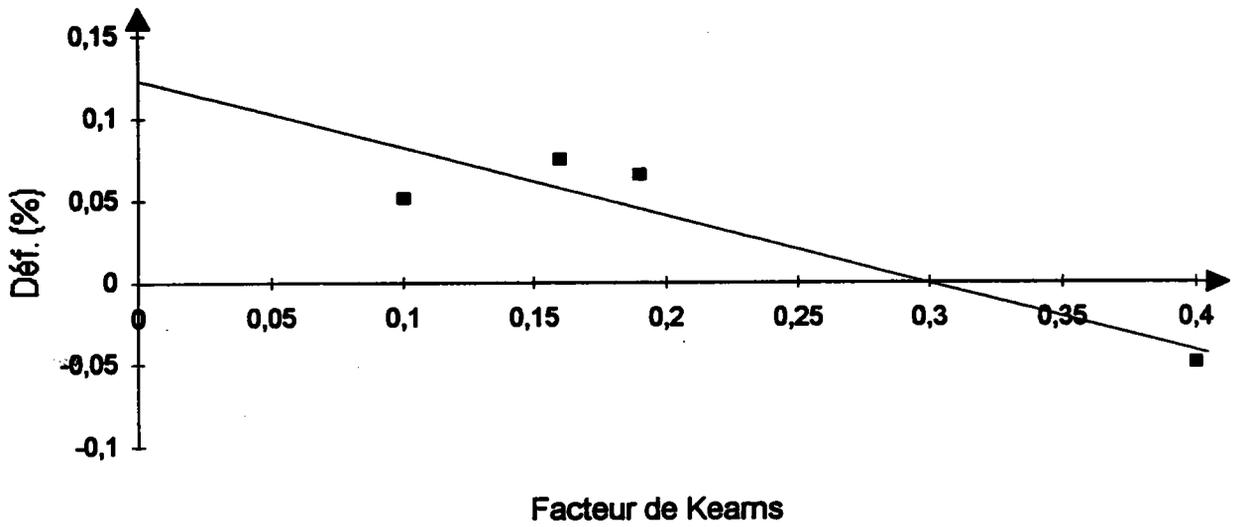


Figure A1-10 : Déformation de polycristaux de zirconium recuits à  $5 \times 10^{25} \text{ n.m}^{-2}$  en fonction de leur facteur de Kearns ( $T_{irr}=553\text{K}$ )

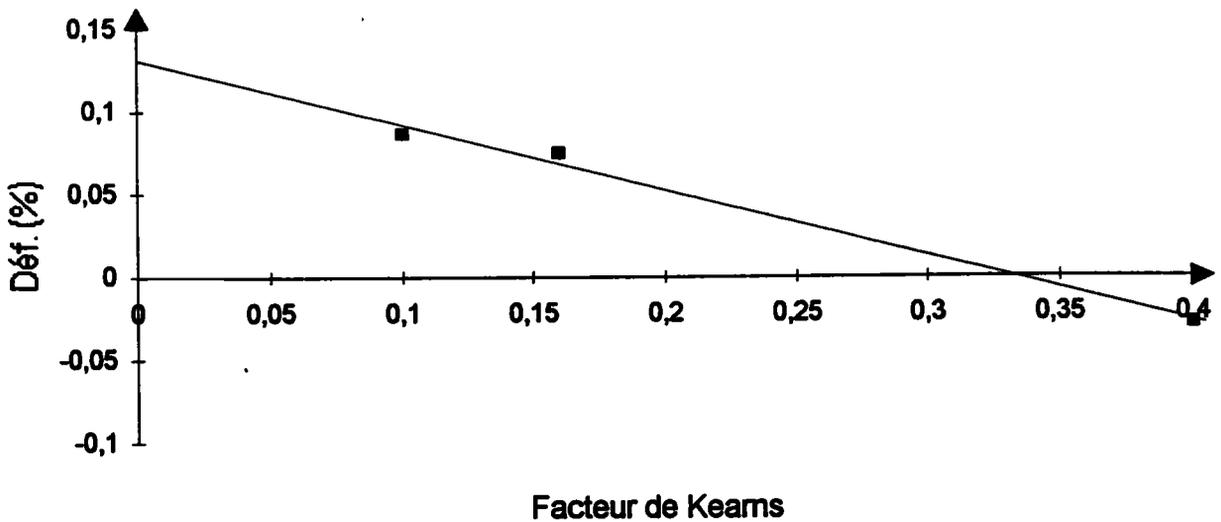


Figure A1-11 : Déformation de polycristaux de zircaloy-2 recuits à  $5 \times 10^{25}$  n.m<sup>-2</sup> en fonction de leur facteur de Keams (T<sub>irr</sub>=330K)

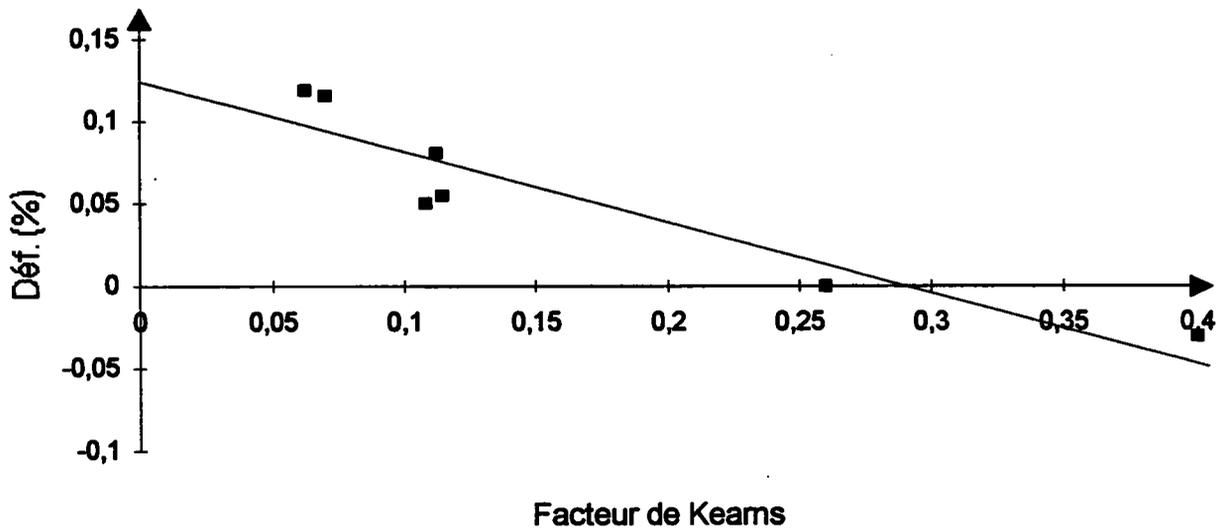


Figure A1-12 : Croissance de monocristaux laminés de 18% recuits ou non ( $T_{irr}=353K$ ) [R.H.Zee, 1987]

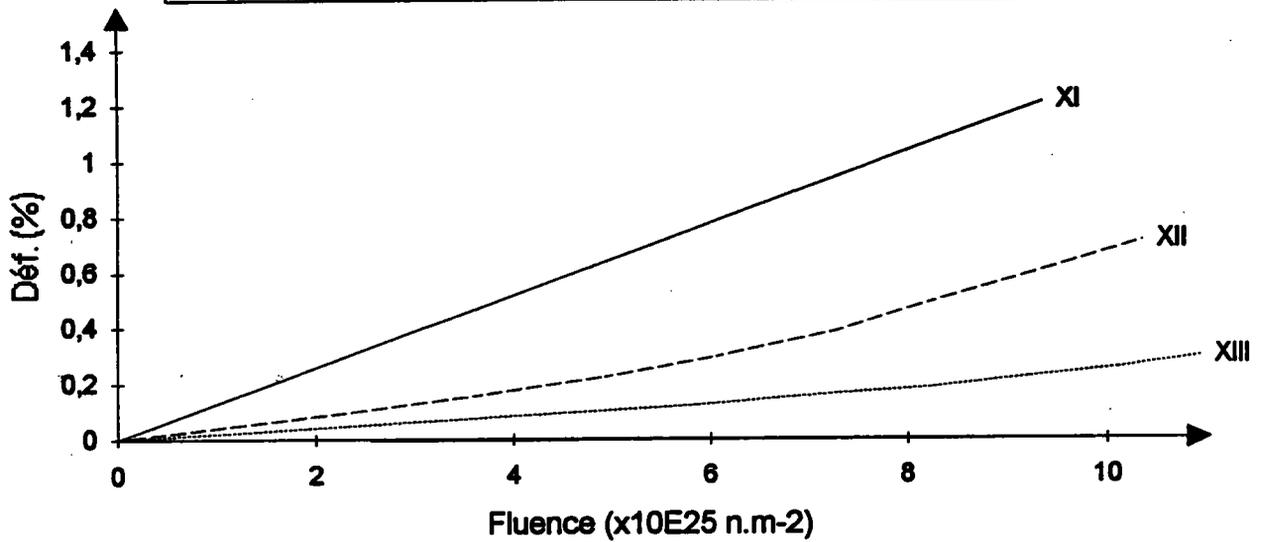
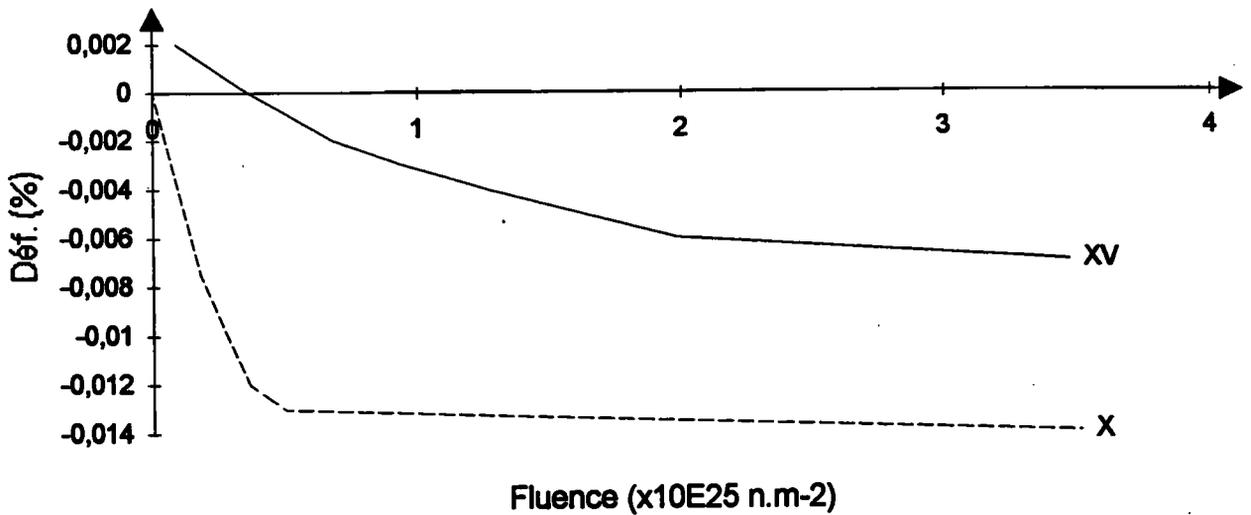


Figure A1-13 : Croissance de monocristaux tractionnés de 5% ( $T_{irr}=353K$ ) [R.H.Zee, 1987]



**Figure A1-14: Figure de pôles inverse représentant l'orientation des éprouvettes utilisées dans l'étude de Zee [1987]**

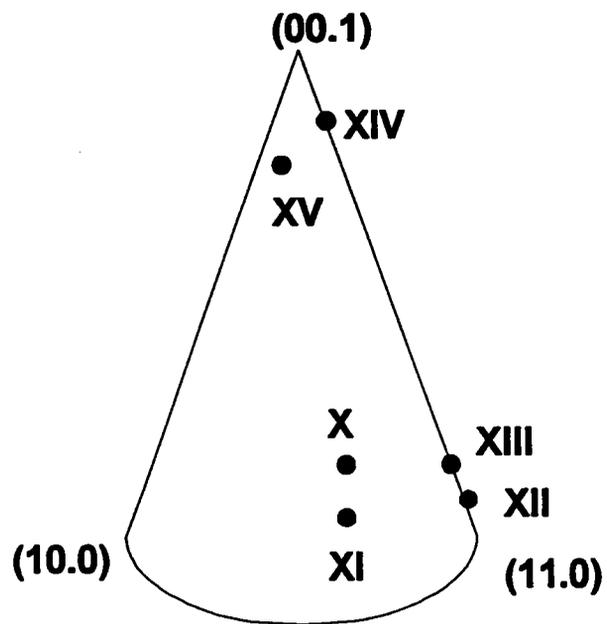


Figure A1-15 : Comportement d'un zircaloy-2 déformé par laminage ou traction de 1.5% ( $T_{irr}=330K$ ) [V.Fidleris, 1987]

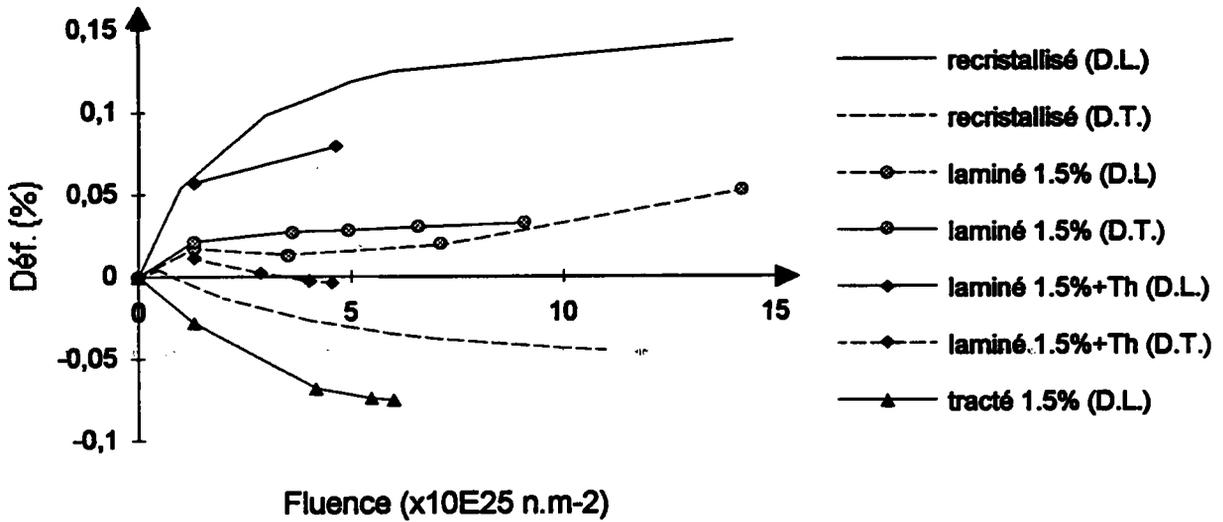


Figure A1-16 : Vitesse de croissance du zircaloy-2 durant le stade stationnaire à 330 K en fonction de la densité de dislocations et de l'état métallurgique [V. Fidleris, 1987]

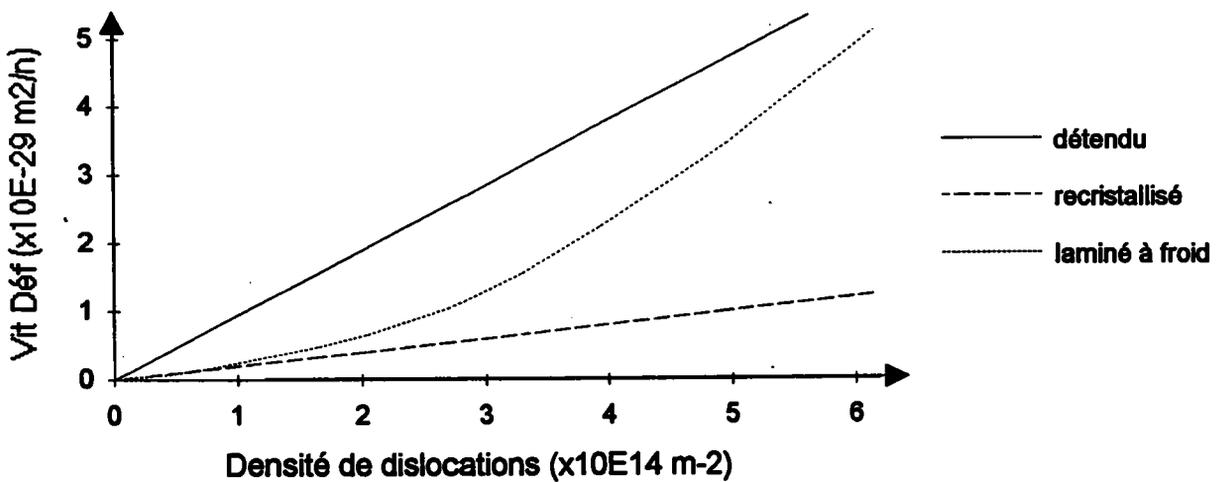


Figure A1-17 : Influence d'une faible prédéformation sur le comportement du zircaloy-2 ( $T_{irr}=353\text{ K}$ ) [A.Rogerson, 1988]

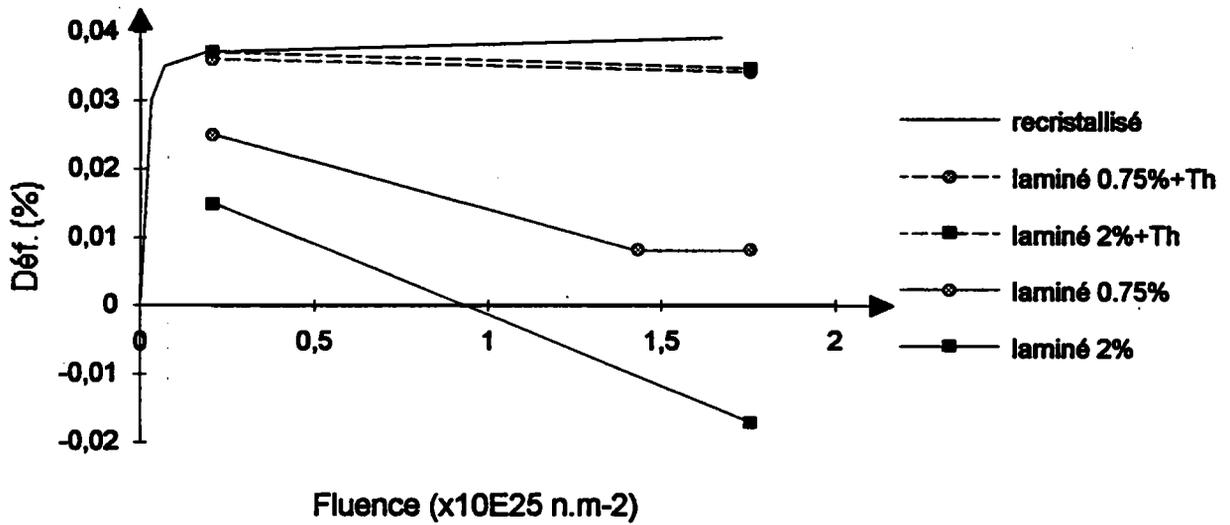


Figure A1-18 : Influence d'une faible prédéformation sur le comportement du zircaloy-2 ( $T_{irr}=553\text{ K}$ ) [A.Rogerson, 1988]

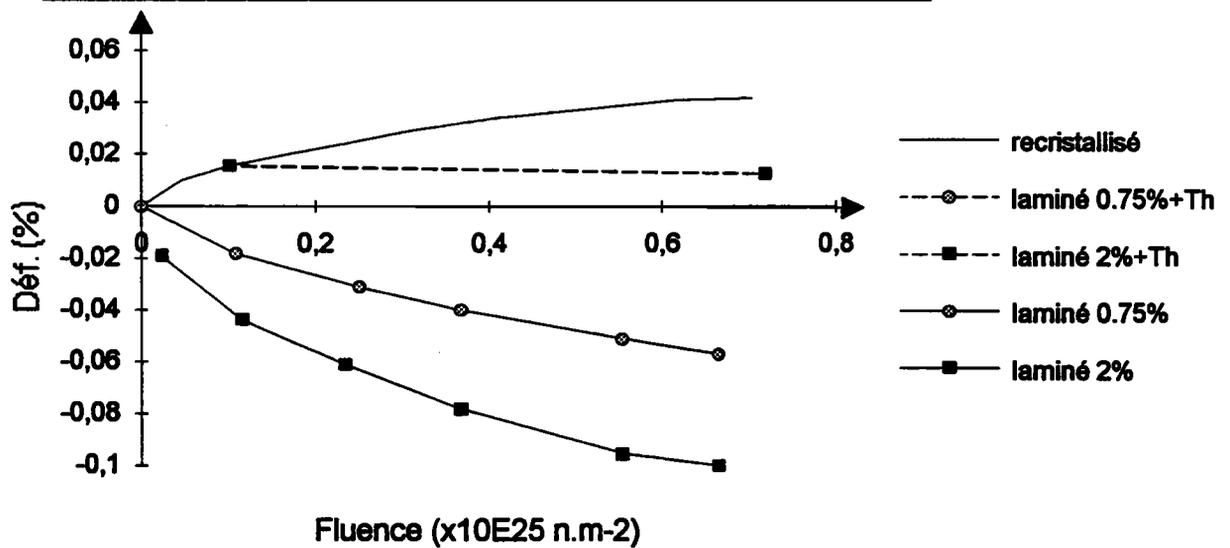


Figure A1-19 : Influence du taux de déformation par laminage sur la croissance ( $T_{irr}=330\text{ K}$ ) [V.Fidleris, 1987]

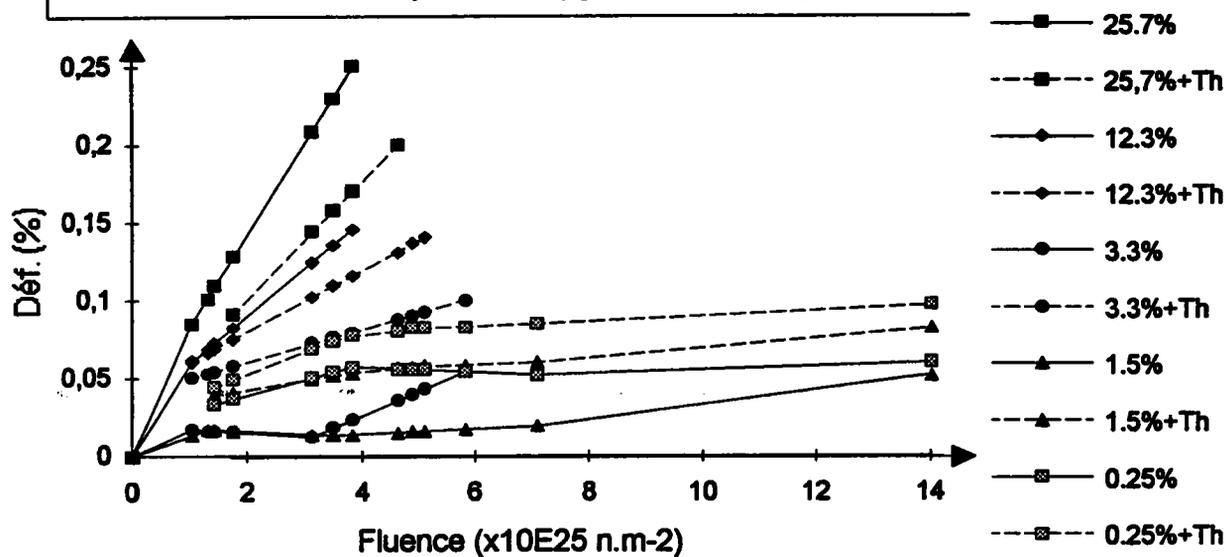


Figure A1-20 : Croissance sous irradiation du zircaloy-2 à 330 K, refroidi lentement (199 K) ou rapidement (199 V) [V.Fidleris, 1987].

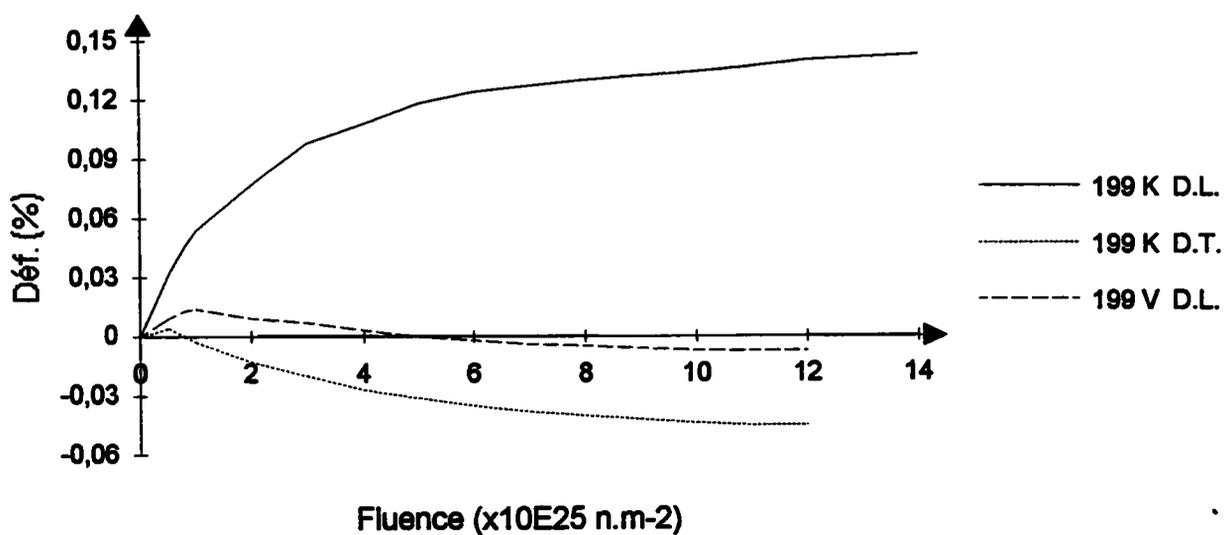


Figure A1-21 : Influence de la taille des grains sur le comportement du zircaloy-2 ( $T_{irr}=353K$ ) [A.Rogerson, 1988]

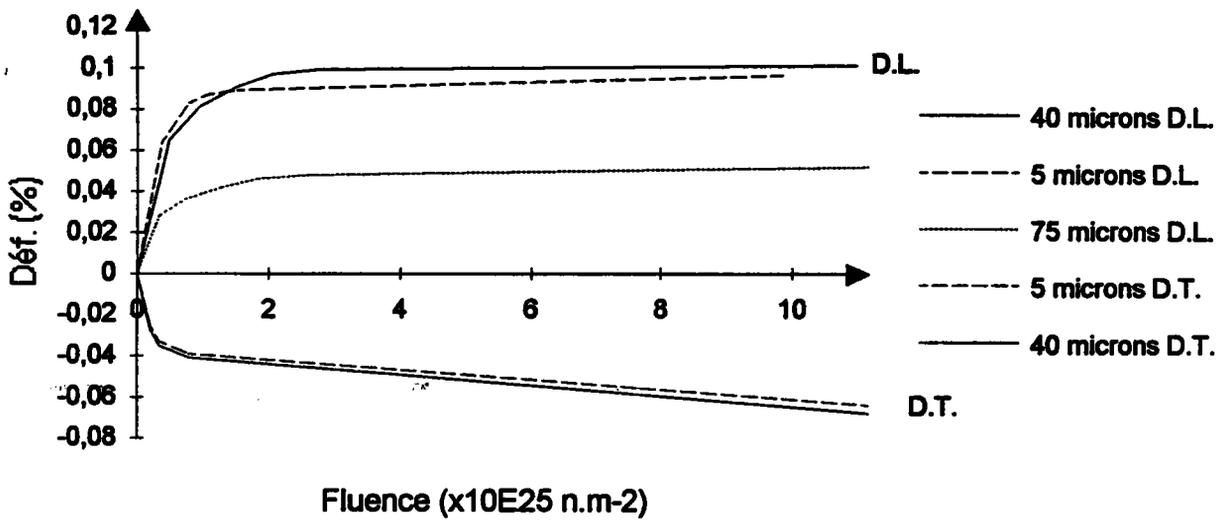


Figure A1-22 : Influence de la taille des grains sur le comportement du zircaloy-2 ( $T_{irr}=553K$ ) [A.Rogerson, 1988]

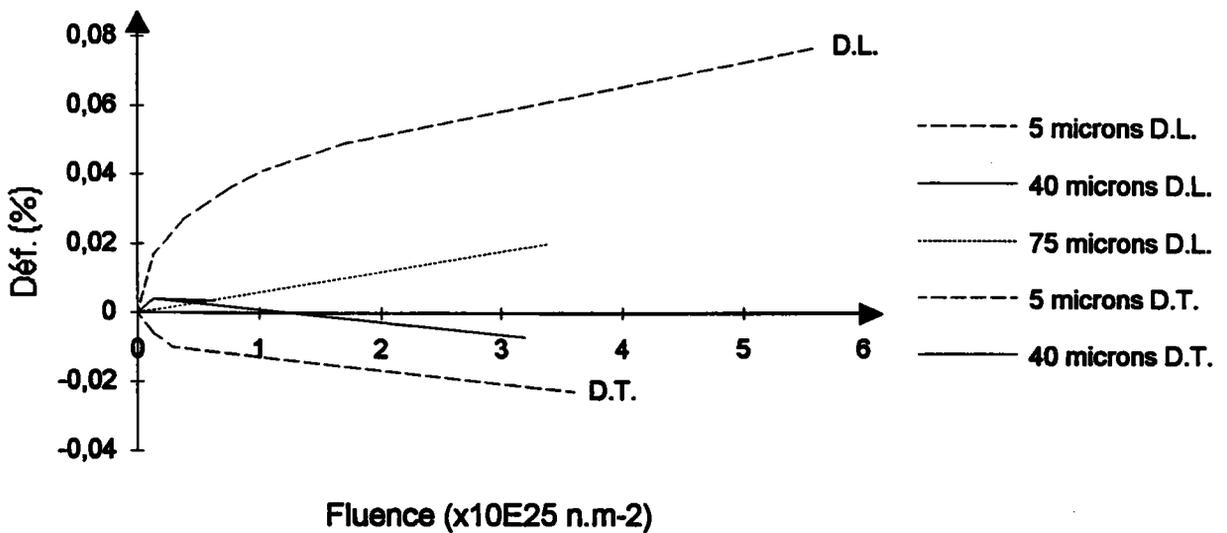


Figure A1-23 : Croissance d'alliages de zirconium-étain ( $T_{irr}=353K$ )  
[A.Rogerson, 1988]

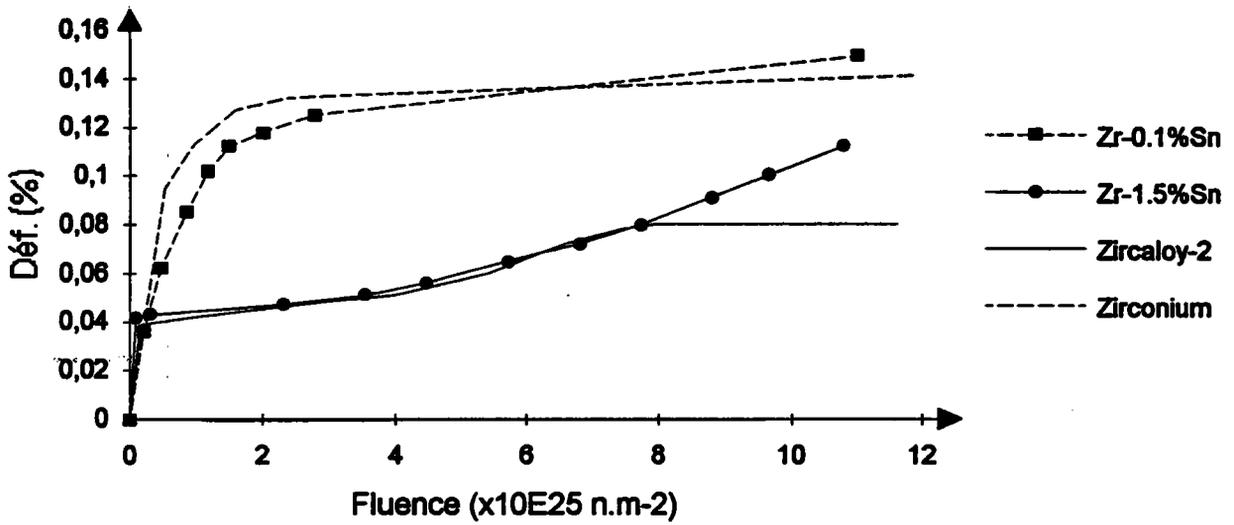


Figure A1-24 : Croissance d'alliages de zirconium-étain ( $T_{irr}=553K$ )  
[A.Rogerson, 1988]

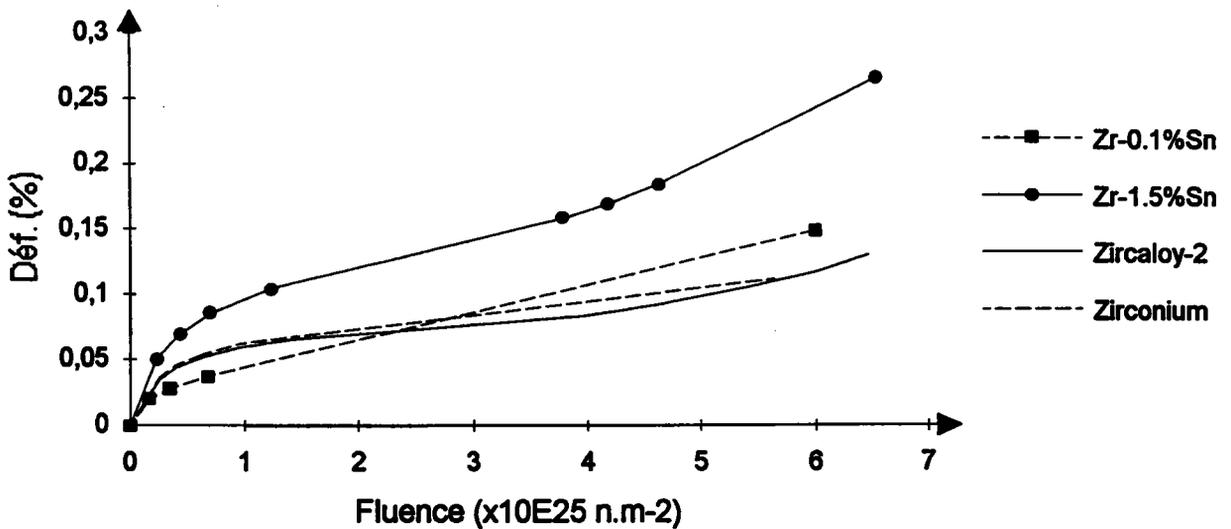


Figure A1-25 : Croissance d'un Zr-2.5% Nb recuit ( $T_{irr}=353K$ )  
[A.Rogerson, 1979]

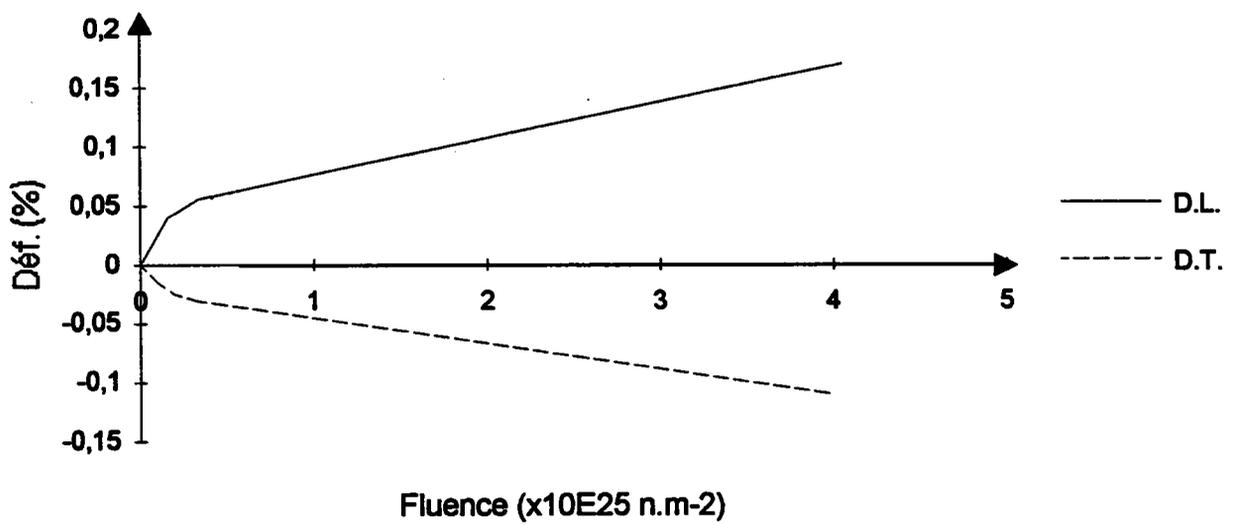


Figure A1-26 : Croissance de l'alliage Zr-2.5% Nb référencé C, direction longue [R.G.Fleck, 1988]

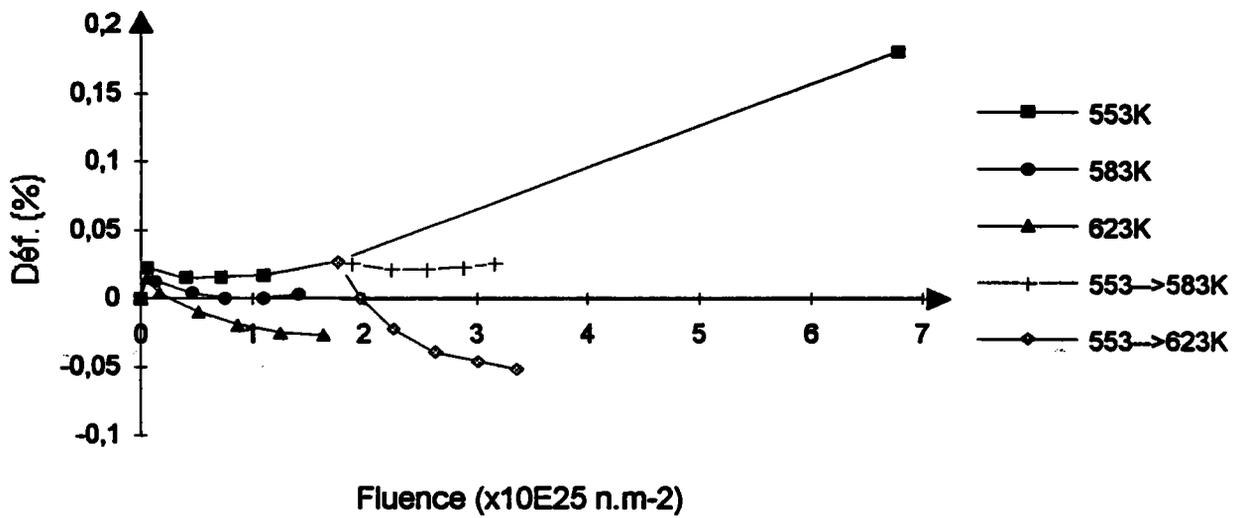


Figure A1-27 : Croissance de l'alliage Zr-2.5% Nb référencé C, direction travers [R.G.Fleck, 1988]

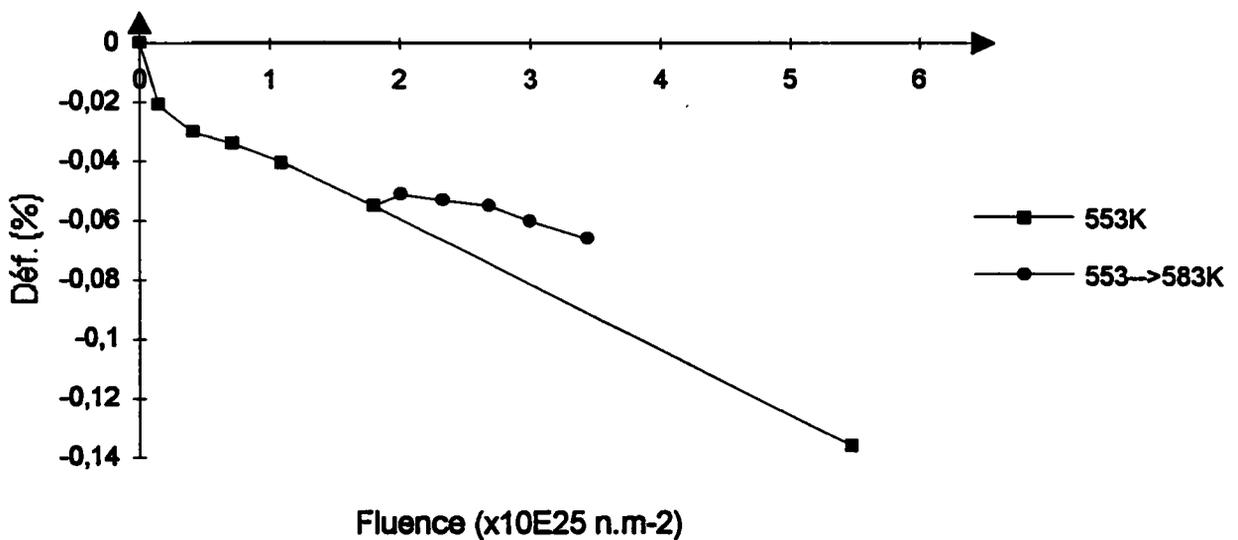


Figure A1-28 : Croissance de l'alliage Zr-2.5% Nb référencé M, direction longue [R.G.Fleck, 1988]

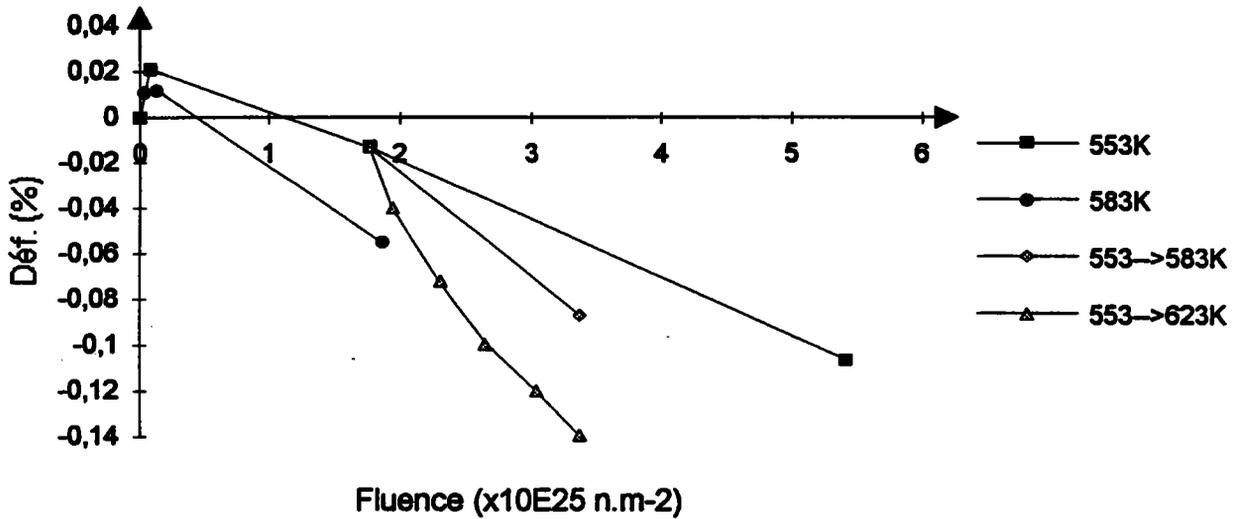
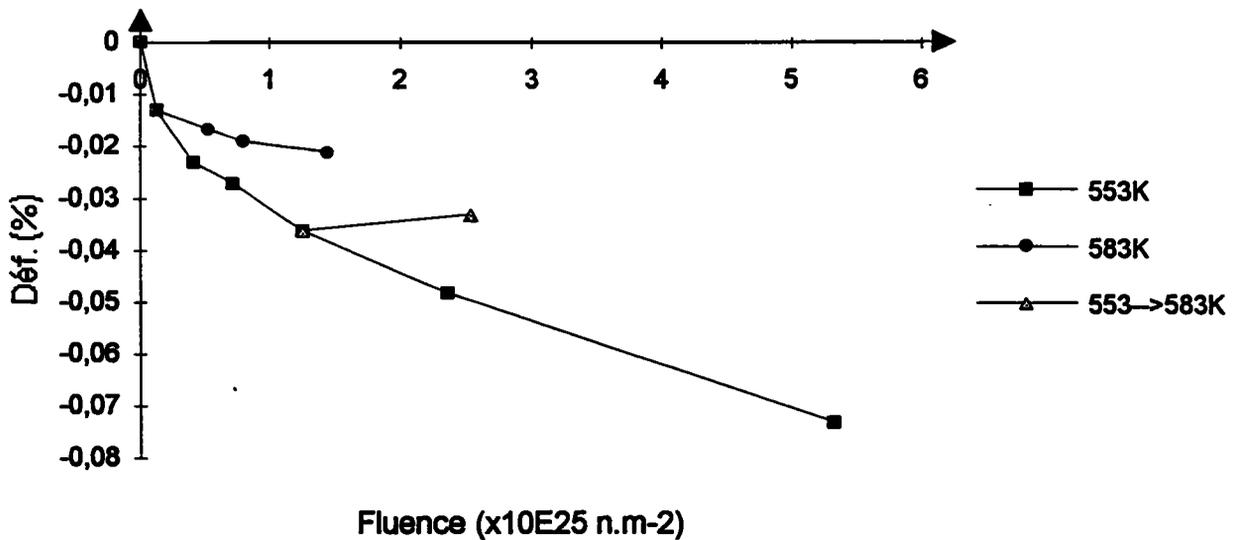


Figure A1-29 : Croissance de l'alliage Zr-2.5% Nb référencé M, direction travers [R.G.Fleck, 1988]



**BIBLIOGRAPHIE DE L'ANNEXE 1:**

**ADAMS B.L., CLEVINGER G.S. (1980):**

"An upper-bound evaluation of interactive creep and growth in textured zircaloy",  
Journal of Nuclear Materials, vol. 90 (1980) p. 75

**ADAMSON R.B. (1977):**

"Irradiation growth of zircaloy", American Society for Testing Materials, Special technical publication, ASTM STP n°633 (1977), p.326

**ADAMSON R.B. (1982):**

American Society for Testing Materials, Special technical publication, ASTM STP n°754 (1982), p.208

**AKHTAR A., TEGHTSOONIAN E. (1971):**

Acta Metallurgica, vol. 101 (1981), p. 28

**ASARO R.J., NEEDLEMAN A. (1985):**

"Texture development and strain hardening in rate dependent polycrystals", Acta metallurgica, Vol. 33 (1985), p. 923

**BORODIN V.A., RYAZANOV A.I. (1989):**

"Dislocation climb suppression due to voids in a material at high irradiation doses",  
Journal of Nuclear Materials, vol. 165 (1989) p. 164

**BUCKLEY S.N. (1962):**

"Uranium and graphite" (Institute of Metals, London, 1962), p. 445

**BUCKLEY S.N., BULLOUGH R., HAYNS M.R. (1980):**

"The direct observation of irradiation damage in zirconium and its alloys", Journal of Nuclear Materials, vol. 89 (1980) p. 283

**CANN C.D., FAULKNER D., NUTALL K., STYLES R.C., SHILINGLAW A.J., CHOW C.K., ROGOWSKI A.J. (1986):**

"Irradiation growth in zirconium and zirconium alloys irradiation in the Dounreay Fast Reactor", AECL 8406 (1986)

**CARPENTER G.J.C., MURGATROYD R.A., ROGERSON A., WATTERS J.F. (1981):**

Journal of Nuclear Materials, vol. 101 (1981) p. 28

**CHARQUET D., ALHERITIERE E. (1985):**

"Types of precipitates in metal and oxides", Proceedings workshop on second phase particles in zircalloys, Erlangen (juillet 1985)

**CHARQUET D., ALHERITIERE E., BLANC G. (1987):**

"Cold-rolled and annealed textures of zircaloy-4 thin strips", ASTM STP 939 (1987), p.663

CHARQUET D., HANN R., ORTLIEB E., GROS J.P., WADIER J.F. (1988):  
"Solubility limits and formation of intermetallic precipitates in ZrSnFeCr alloys", 8th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, San Diego (juin 1988)

DOLLINS C.C. (1979):  
"Post-irradiation recovery of growth in zircaloy", Journal of Nuclear Materials, vol. 80 (1979) p. 323

DE DIEGO N., BACON D.J. (1989):  
"Recombination of Frenkel pairs in HCP metals modelled by computer", Journal of Nuclear Materials, vol. 161 (1989) p. 117

DEMARS H. (1963):  
Thèse, faculté des sciences de Paris (1963)

DUBINKO V.I., TUR A.V., TURKIN A.A., YANOVSKIJ V.V. (1989):  
"A mechanism of formation and properties of the void lattice in metals under irradiation", Journal of Nuclear Materials, vol. 161 (1989) p. 57

DUTTON R. (1988):  
"A general discussion of creep and growth mechanisms: their theoretical and practical implications", Journal of Nuclear Materials, vol. 159 (1988) p. 339

EVANS J.H. et al. (1989):  
"Anisotropic diffusion of self-interstitials in zirconium", Journal of Nuclear Materials, vol. 168 (1989) p. 340

FAINSTEIN-PEDRAZA D., SAVINO E.J., PEDRAZA A.J. (1977):  
"Irradiation-growth of zirconium-base alloys", Journal of Nuclear Materials, vol. 73 (1978) p. 151

FIDLERIS V. (1975):  
"Summary of experimental results on in-reactors creep and growth of zircaloy pressure tubes in power reactors", Atomic energy review, vol. 13 (1975) p. 51

FIDLERIS V. (1980):  
"Irradiation growth in zirconium alloys: a review", Atomic energy of Canada limited report n° AECL-7053 (1980)

FIDLERIS V., CAUSEY A.R., HOLT R.A. (1985):  
"Optimizing materials for nuclear application", édité par F.A.Gardner, D.S.Gelles et F.W.Wiffen, Metallurgical Society of AIME, Warrendale (1985)

FIDLERIS V., TUCKER R.P., ADAMSON R.B. (1987):  
"An overview of microstructural and experimental factors that affect the irradiation growth behaviour of zirconium alloys", ASTM special technical publication, ASTM STP 939 (1987) p. 49

**FLECK R.G., HOLT R.A., PEROVIC V., TADROS J. (1988):**

"Effects of temperature and neutron fluence on irradiation growth of Zr-2.5% Nb", *Journal of Nuclear Materials*, vol. 159 (1988) p. 75

**FORTUNIER R., ORLANS-JOLIET B., MONTHEILLET F., DRIVER J.H. (1987):**

"Large strain multiple slip work hardening behaviour of fcc and bcc single crystals", in *Proceedings 8<sup>th</sup> RISO (1987)*, p.409

**FRANCIOSI P. (1987):**

"On work hardening relations for constitutive models", in *Proceedings 8<sup>th</sup> RISO (1987)*, p.83

**GILBERT R.W., FARRELL K., COLEMAN C.E. (1979):**

"Damage structure in zirconium alloys neutron irradiated at 573 to 923 K", *Journal of Nuclear Materials*, vol. 84 (1979) p. 137

**GRIFFITHS M. (1988):**

"A review of microstructure evolution in zirconium alloys during irradiation", *Journal of Nuclear Materials*, vol. 159 (1988) p. 190

**GRIFFITHS M., GILBERT R.W., COLEMAN C.E. (1988):**

"Grain boundary sinks in neutron-irradiated Zr and Zr-alloys", *Journal of Nuclear Materials*, vol. 159 (1988) p. 405

**GRIFFITHS M., GILBERT R.W., CARPENTER G.J.C. (1987):**

"Phase instability, decomposition and redistribution of intermetallic precipitates in zircaloy-2 and -4 during neutron irradiation", *Journal of Nuclear Materials*, vol. 150 (1987) p. 53

**HOLT R.A. (1979):**

"Effect of microstructure on irradiation creep and growth of zircaloy pressure tubes in power reactors", *Journal of Nuclear Materials*, vol. 82 (1979) p. 419

**HOLT R.A. (1980):**

"Microstructure dependence of irradiation creep and growth of zirconium alloys", *Journal of Nuclear Materials*, vol. 90 (1980) p. 193

**HOLT R.A. (1988):**

"Mechanisms of irradiation growth of alpha-zirconium alloys", *Journal of Nuclear Materials*, vol. 159 (1988) p. 405

**HOLT R.A., CAUSEY A.F. (1987):**

"The effects of intergranular constraints on irradiation growth of zircaloy-2 at 320 K", *Journal of Nuclear Materials*, vol. 150 (1987) p. 306

**HOLT R.A., IBRAHIM E.F. (1979):**

"Factors affecting the anisotropy of irradiation creep and growth of zirconium alloys", *Acta Metallurgica*, Vol. 27 (1979) p. 1319

HOOD G.M. (1985):

"The anomalous self-diffusion in  $\alpha$ -Zr", Journal of Nuclear Materials, vol. 135 (1985) p. 292

HORAK J.A., RHUDE H.V. (1961):

Journal of Nuclear Materials, vol. 3 (1961) p. 111

HUMBERT M., ESLING C. (1987):

"Modélisation de la croissance sous irradiation de tubes de zircaloy-4", Rapport de fin de contrat LM2P-FRAGEMA

IBRAHIM E.F., HOLT R.A. (1980):

"Anisotropy of irradiation creep and growth of zirconium alloy pressure tubes", Journal of Nuclear Materials, vol. 91 (1980) p. 311

KAI J.J., HUANG W.I., CHOU H.Y. (1990):

"The microstructural evolution of zircaloy-4 subjected to proton irradiation", Journal of Nuclear Materials, vol. 170 (1990) p. 193

KELLY P.M. (1973):

in Proceedings International Conference on Physical Metallurgy of Reactor Fuel Elements, Berkeley Nuclear Laboratories, UK (Metals Society, London 1973), p. 123

KITTEL J.H. (1956):

Proceedings of the First International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, P/745, vol.7, p.445

LEFEBVRE F. (1989):

"Etude des effets d'irradiation sur la microstructure du zircaloy-4", Thèse de l'Institut National des Sciences Appliquées de Lyon (janvier 1989)

LEFEBVRE F., LEMAIGNAN C. (1990):

"Analysis with heavy ions of the amorphisation under irradiation of  $Zr(Fe,Cr)_2$  precipitates in zircaloy-4", Journal of Nuclear Materials, vol. 171 (1990) p. 223

LUBBEHUSEN M., VIEREGGE K., HOOD G.M., MEHRER H., HERZIG Chr. (1991):

"Self-diffusion in  $\alpha$ -Zr single crystals", Journal of Nuclear Materials, vol. 182 (1991) p. 164

MAC EWEN S.R., CARPENTER G.J.C. (1980):

"Calculations of irradiation growth in zirconium", Journal of Nuclear Materials, vol. 90 (1980) p. 108

MAC EWEN S.R., TOME C. (1987):

"Residual stresses in textured zirconium alloys", in Proc. Zirconium in the Nuclear Industry, 7th International Symposium, ASTM STP 939 (1987), p. 631

MAC EWEN, TOME C., FABER J. Jr. (1989):

"Residual stresses in annealed zircaloy", Acta Metallurgica, vol. 3 (1989), p. 979

MORIZE P., BAICRY J., MARDON J.P. (1985):

"Effect of irradiation at 588 K on mechanical properties and deformation behaviour of zirconium alloys strip"

MURGATROYD R.A., ROGERSON A. (1979):

"Irradiation growth in annealed zircaloy-2", Journal of Nuclear Materials, vol. 79 (1979) p. 302

MURGATROYD R.A., ROGERSON A. (1979):

"Effects of texture and temperature cycling on irradiation growth in cold-worked zircaloy-2 at 353 and 553 K", Journal of Nuclear Materials, vol. 80 (1979) p. 253

MURGATROYD R.A., ROGERSON A. (1983):

in BNES Conf. on Dimensional Stability and Mechanical Behaviour of Irradiated Metals and Alloys, Brighton, UK, April 1983, Paper 36

MURGATROYD R.A., ROGERSON A. (1984):

in BNES Conf. on Dimensional Stability and Mechanical Behaviour of Irradiated Metals and Alloys, London, Vol. 2 (1984) p. 93

NUTALL K., FAULKNER D. (1977):

"The effect of irradiation on the stability of precipitates in Zr-2.5WT% Nb alloys", Journal of Nuclear Materials, vol. 67 (1977) p. 131

PEDRAZA A.J., FAINSTEIN-PEDRAZA (1980):

"Irradiation growth of zirconium-base alloys (part II. Annealed material)", Journal of Nuclear Materials, vol. 88 (1980) p. 236

PEROVIC V., WEATHERLY G.C., FLECK R.G. (1990):

"c-component dislocations in sub-boundaries in a Zr-2.5% Nb alloy", Journal of Nuclear Materials, vol. 171 (1980) p. 327

PRICE R.J., BOKROS J.C. (1965):

"Relationship between preferred orientation, thermal expansion and radiation-induced length changes in graphite", Journal of Nuclear Materials, vol. 36 (1965) p. 1897

ROGERSON A. (1984):

"Irradiation-induced dimensional changes in polycrystalline iodide zirconium and zircaloy-2", ASTM STP 824 (1984) p. 395

ROGERSON A. (1988):

"Irradiation growth in annealed and 25% cold-worked zircaloy-2 between 353-673 K", Journal of Nuclear Materials, vol. 154 (1988) p. 276

ROGERSON A. (1988):

"Irradiation growth in zirconium and its alloys", Journal of Nuclear Materials, vol. 159 (1988) p. 43

**ROGERSON A., MURGATROYD R.A. (1979):**

"Effects of texture and temperature cycling on irradiation growth in cold-worked zircaloy-2 at 353 and 553 K", *Journal of Nuclear Materials*, vol. 80 (1979) p. 253

**ROGERSON A., MURGATROYD R.A. (1979):**

"Irradiation-growth in annealed Zr-2.5wt% Nb at 353 K", *Journal of Nuclear Materials*, vol. 80 (1988) p. 260

**ROGERSON A., MURGATROYD R.A. (1983):**

"Breakaway growth in annealed zircaloy-2 at 353 and 553 K", *Journal of Nuclear Materials*, vol. 113 (1983) p. 256

**ROGERSON A., ZEE R.H. (1988):**

"Irradiation growth in zirconium-tin alloys at 353 and 553 K", *Journal of Nuclear Materials*, vol. 152 (1988) p. 220

**SAVINO E.J., LACIANA C.A. (1980):**

"Radiation induced creep and growth of zirconium alloys", *Journal of Nuclear Materials*, vol. 90 (1980) p. 89

**TUCKER R.P., FIDLERIS V., ADAMSON R.B. (1984):**

"High fluence irradiation growth of zirconium alloys at 644 to 725 K", *American Society for Testing Materials, Special Technical Publication, ASTM STP 824 (1984)*, p. 427

**VIEREGGE K., HERZIG Chr. (1990):**

"Grain boundary diffusion in  $\alpha$ -zirconium", *Journal of Nuclear Materials*, vol. 173 (1990) p. 118

**WILLIAMS J., DARBY E.C., MINTY D.C.C. (1984):**

*American Society for Testing Materials, Special Technical Publication, ASTM STP n°824 (1984)*, p.376

**WILLIAMSON G.K. (1962):**

dans "Properties of reactor materials and the effect of radiation damage" (*Butterworths Scientific Publications Ltd, London, 1962*), p.114

**WOO C.H. (1985):**

"Polycrystalline effects on irradiation creep and growth in textured zirconium", *Journal of Nuclear Materials*, vol. 131 (1985) p. 105

**YANG W.J.S. (1988):**

"Precipitate stability in zircaloy-4", *General electric company-Electric Power Research Institute, Final Report, Research Project NP-5591/1250-16 (janvier 1988)*

**ZEE R.H., CARPENTER G.J.C., ROGERSON A., WATTERS J.F. (1987):**

"Irradiation growth in deformed zirconium", *Journal of Nuclear Materials*, vol. 150 (1987) p. 319

**Annexe 2:**  
**DONNEES**  
**METALLURGIQUES DES**  
**MATERIAUX ETUDIES**

**Données pour le ZINC**

Rapport de l'ellipsoïde matérialisant le grain:

Alliage	Rapport B/A de l'ellipsoïde	Rapport C/A de l'ellipsoïde
ZnCu1	0.5	0.1
ZnCu2	0.9	0.3
ZnTi1	0.5	0.2
ZnTi2	1.0	0.3

**NB:** Composition chimique et traitement thermo-mécanique non communiqués.**Données pour le ZIRCALOY-4**

Rapport de l'ellipsoïde matérialisant le grain:

Référence	Rapport B/A de l'ellipsoïde	Rapport C/A de l'ellipsoïde
Zr1	0.65	0.55
Zr650	0.9	0.9
Zrbe	0.7	0.2
Zrrec	0.9	0.8

Etat métallurgique:

Référence	Dernier Traitement Thermique	Etat Métallurgique
Zr1	24 heures à 460°C	détendu
Zr650	3 heures à 650°C	recristallisé
Zrbe		brut de laminage
Zrrec	3/4 heures à 650°C	recuit

**Données pour le Zr1Nb1Sn0.5Fe**

Rapport de l'ellipsoïde matérialisant le grain:

Référence	Rapport B/A de l'ellipsoïde	Rapport C/A de l'ellipsoïde
A12F	1.0	1.1
A14F	1.0	1.0
A15F	1.0	1.0

Etat métallurgique:

Référence	Dernier Traitement Thermique	Etat Métallurgique
A12F	3-4 heures à 750°C+10 heures à 550°C	recristallisé
A14F	1m/min à 880°C, FRD*+10 heures à 550°C	trempe revenu
A15F	0.5m/min à 880°C, FRD*+10 heures à 550°C	trempe revenu

\* Four de Refroidissement au Défilé

**Données pour le Zr2.5Nb**

Rapport de l'ellipsoïde matérialisant le grain:

Référence	Rapport B/A de l'ellipsoïde	Rapport C/A de l'ellipsoïde
A22F	1.0	0.6
A24F	1.0	0.7
A25F	1.0	0.6

Etat métallurgique:

Référence	Dernier Traitement Thermique	Etat Métallurgique
A22F	3-4 heures à 750°C+10 heures à 550°C	recristallisé
A24F	1m/min à 880°C, FRD*+10 heures à 550°C	trempe revenu
A25F	1.0m/min à 880°C, FRD*+10 heures à 550°C	trempe revenu