



**HAL**  
open science

## Etude expérimentale des micro-mécanismes d'endommagement et de rupture des zircaloyés hydrurés

A. Racine, Michel Bornert, C. Sainte-Catherine, D. Caldemaison

### ► To cite this version:

A. Racine, Michel Bornert, C. Sainte-Catherine, D. Caldemaison. Etude expérimentale des micro-mécanismes d'endommagement et de rupture des zircaloyés hydrurés. *Journal de Physique IV Proceedings*, 2003, 106, pp.109-118. 10.1051/jp4:20030221 . hal-00111379

**HAL Id: hal-00111379**

**<https://hal.science/hal-00111379v1>**

Submitted on 23 Mar 2021

**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.



Distributed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License

# Étude expérimentale des micro-mécanismes d'endommagement et de rupture des zircaloy hydrurés

A. Racine<sup>1,2</sup>, M. Bornert<sup>1</sup>, C. Sainte Catherine<sup>2</sup> et D. Caldemaison<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Laboratoire de Mécanique des Solides, École Polytechnique, 91128 Palaiseau, France

<sup>2</sup> DMN/Service d'Étude des Matériaux Irradiés, CEA-Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette cedex, France

**Résumé :** Afin de mieux comprendre les mécanismes d'endommagement et de rupture des Zircaloy, des essais de traction sur anneaux ont été réalisés in-situ sous MEB sur des éprouvettes de tube de gainage de combustible, contenant environ 150 ppm d'hydrogène et avec différentes orientations d'hydrures : de circonférentielle à radiale. Ces essais ont mis en évidence deux modes de rupture selon l'orientation des hydrures. Les éprouvettes avec hydrures radiaux (perpendiculaires à la sollicitation) rompent brutalement par propagation d'une fissure suivant un chemin d'hydrures radiaux alignés. Les niveaux de déformation au voisinage de la fissure, estimés par des techniques de micro-électrolithographie associées à celle d'analyse par corrélation d'images, sont très faibles, de l'ordre du %. En revanche, dans celles avec hydrures circonférentiels (suivant l'axe de sollicitation), les effets de structure prédominent : des bandes de cisaillement macroscopique apparaissent, dans lesquelles la déformation se localise. En dehors de ces zones de localisation intense, la déformation reste inférieure à 10% et très peu d'endommagement par germination de cavités ou fissuration d'hydrures a été observé. Les hétérogénéités du champ local de déformation, corrélées à la présence des hydrures, semblent établir l'influence de ceux-ci sur le mode de déformation local, mais ces observations nécessitent d'être confirmées.

## 1. INTRODUCTION

Les assemblages de combustible des réacteurs à eau pressurisée sont constitués en grande partie de composants en alliages de zirconium. Ces composants de structure sont soumis en fonctionnement à une réaction d'oxydation par l'eau du circuit primaire. L'hydrogène dégagé par cette réaction diffuse dans le matériau de gainage. Sous certaines conditions, l'hydrogène précipite sous forme d'hydrures de zirconium. D'après la littérature, ces précipités d'hydrures de zirconium fragilisent le matériau. Mais les modifications de comportement mécanique du Zircaloy-4 induites par les hydrures dépendent de nombreux paramètres : teneur en hydrogène, type d'hydrure, morphologie, répartition, site de précipitation, orientation de ceux-ci [1,2,3].

Le travail décrit ici a été réalisé dans le cadre d'un stage de DEA et est prolongé par une thèse au CEA (DEN/SEMI/LCMI) en collaboration avec le LMS de l'École Polytechnique. Il vise une compréhension des micro-mécanismes d'endommagement et de rupture du Zircaloy-4 détendu hydruré, en liaison avec l'orientation des hydrures pour une teneur moyenne constante en hydrogène (126 à 185 ppm). L'originalité fut de réaliser des essais de traction in-situ sous MEB (à température ambiante) sur des éprouvettes anneaux de dimensions identiques à celles des tubes de gainage pour observer les micro-mécanismes

d'endommagement et de rupture, et de comparer les comportements pour diverses orientations.

Il existe trois phases d'hydrures de zirconium. Celle observée dans les matériaux de gainage est la phase  $\delta$ , phase stable, car les conditions de précipitation y sont quasi-isothermes [3]. Leur composition est  $ZrH_x$  ( $x = 1,5$  à  $1,66$ ). Ils précipitent préférentiellement dans la direction circonférentielle du tube de gainage (plan axial-circonférentiel), direction qui correspond à la fois à l'orientation des micro-plaquettes (dictée par des relations d'orientation cristallographique entre précipité et matrice) et à celle de l'hydrure macroscopique (déterminée par l'orientation des contraintes résiduelles et des joints de grains) [2]. Cependant, les hydrures peuvent se réorienter (sous contrainte) notamment lors de la phase « Aval du cycle » (opérations de gestion des composants nucléaires après leur utilisation en réacteur : transport, tri, transformation, conditionnement, entreposage...).

Il existe différentes échelles d'observation des hydrures : au microscope optique, on observe des réseaux d'hydrures de plusieurs dizaines de microns de longueur ; au MEB, on décèle des hydrures « macroscopiques » d'environ  $20\ \mu\text{m}$ , constitués de plaquettes d'hydrures, plus ou moins orientées comme l'hydrure « macroscopique », de quelques microns de longueur (5 à 10), et enfin, au MET, on distingue des micro-plaquettes d'hydrures dont l'empilement crée une plaquette [4].

## **2. METHODES EXPERIMENTALES**

### **2.1 Matériau utilisé**

Les éprouvettes anneaux utilisées proviennent de tubes de gainage de combustible : il s'agit donc de Zircaloy-4 détendu, qui a ensuite été hydruré par voie cathodique (opération réalisée par EDF) pour une teneur comprise entre 126 et 185 ppm. Puis, un traitement de réorientation des hydrures (réalisé au CEA-SRMA) a été appliqué sur les tubes. On disposait ainsi de 12 échantillons « anneaux », dont l'orientation des hydrures varie d'une position circonférentielle à radiale. La figure 1 présente quelques micrographies optiques de ces échantillons, révélant les réseaux d'hydrures.

### **2.2 Essais de traction in-situ sous MEB**

#### *2.2.1 Principe de l'essai in-situ*

On a réalisé des essais de traction in-situ sous MEB (qui permettent d'appliquer une sollicitation mécanique et d'observer simultanément la déformation et l'endommagement du matériau à l'échelle de quelques micromètres), afin d'étudier les mécanismes d'endommagement dans les hydrures pour différents niveaux de déformation plastique.

Pendant l'essai de traction, on observe au MEB les hydrures dans la section de l'anneau (plan circonférentiel-radial). Dans ce plan, seules les traces des « plaques » d'hydrures (radiaux et circonférentiels) sont visibles. Les hydrures se présentent donc comme des « fibres » de moins de  $0,5\ \mu\text{m}$  d'épaisseur et de longueur variable (généralement de 10 à  $20\ \mu\text{m}$ ). Selon le grossissement utilisé, on parvient à distinguer les plaquettes constitutives de ces hydrures macroscopiques.

### 2.2.2 Description de l'essai de traction sur anneau

Cet essai consiste à soumettre un anneau prédécoupé dans un tube de gainage (de longueur 5 mm dans le sens axial) à une contrainte circonférentielle en écartant deux demi-cylindres (les « deux D » ou encore « double-D insert ») placés à l'intérieur de l'anneau et en contact avec la face intérieure de celui-ci (*Figure 2*). Il est utilisé couramment – avec des anneaux entaillés – pour comparer la ductilité de différents matériaux irradiés et leur résistance à la traction dans le sens circonférentiel [4]. Le montage est tel que les plans de symétrie de l'anneau et du montage sont confondus, et le jeu est minimisé pour limiter la flexion.

Dans le cadre d'essais in-situ sous MEB, la surface à observer doit être plane et préparée, ce qui impose d'utiliser des éprouvettes de type anneaux lisses, sans entailles. Cependant, afin d'éviter les bandes de cisaillement macroscopiques apparues au cours du premier essai, la géométrie de l'éprouvette a été modifiée. Mais les anneaux avec entailles semi-elliptique ou avec une partie utile (sur la face de l'éprouvette opposée à la surface d'observation) ne conviennent pas non plus : soit la localisation de la déformation est excessive, soit il y a apparition des bandes macroscopiques. C'est donc la géométrie anneau lisse qui a finalement été adoptée (*Figure 3*). D'autre part, ces essais in-situ sont réalisés sous-vide, à 20°C et sans lubrification.

On acquiert les données sur le déplacement imposé et la force mesurée en fonction du temps. La valeur du déplacement mesuré au niveau des mors intègre la déformation du montage et celle de l'anneau. Les déformations locales sont déterminées par l'observation et la technique de corrélation d'images. Cette technique rend nécessaire l'acquisition d'images haute résolution à différentes étapes de chargement : les essais sont donc interrompus périodiquement, l'éprouvette restant sous charge pendant l'acquisition. En revanche, les champs locaux n'étant pas homogènes, il est difficile de définir une contrainte ou une déformation macroscopique. A des fins de comparaison, nous avons utilisé la force normalisée par la section pour caractériser le niveau de contrainte.

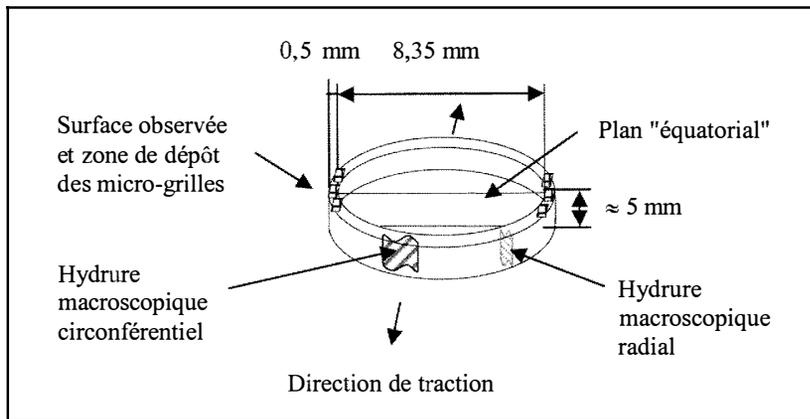


Figure 3 : Représentation schématique (ne respectant pas l'échelle) d'un anneau lisse utilisé pour l'essai in-situ.

### 2.3 Technique de dépôt de micro-grilles (micro-électrolithographie)

Des micro-grilles de pas 4  $\mu\text{m}$  ont été déposées sur les deux premières éprouvettes, et de pas 2  $\mu\text{m}$  sur les deux dernières. La largeur des barreaux de grille est d'environ 0,3  $\mu\text{m}$  dans les deux cas. Chaque micro-grille mesure environ 0,25  $\text{mm}^2$  (leur largeur correspond approximativement à l'épaisseur de l'anneau). La microstructure et les hydrures demeurent visibles malgré les grilles.

Au cours des essais in-situ, nous observions principalement les zones situées au niveau du plan médian de l'éprouvette, perpendiculaire à l'axe de traction, ainsi que celles situées là où les bandes de cisaillement étaient supposées déboucher.

### 2.4 Technique de corrélation d'images numériques

Le principe est de comparer deux images de la même zone à deux états de déformation différents [5]. De nombreux détails locaux (générant des contrastes locaux à la surface de l'éprouvette) sont nécessaires pour effectuer ensuite la corrélation. Ces détails peuvent être naturels (liés à la microstructure) ou artificiels (dépôt de micro-grilles ou de mouchetis).

Trois étapes permettent les traitements par corrélation : l'acquisition des images (numériques), la détermination des déplacements des repères qui donne une mesure discrète du champ local de déplacement en un grand nombre de points, typiquement en chaque intersection de la grille, et enfin le calcul numérique des déformations locales, ou moyennes à l'échelle du pas de la grille.

## 3. RESULTATS

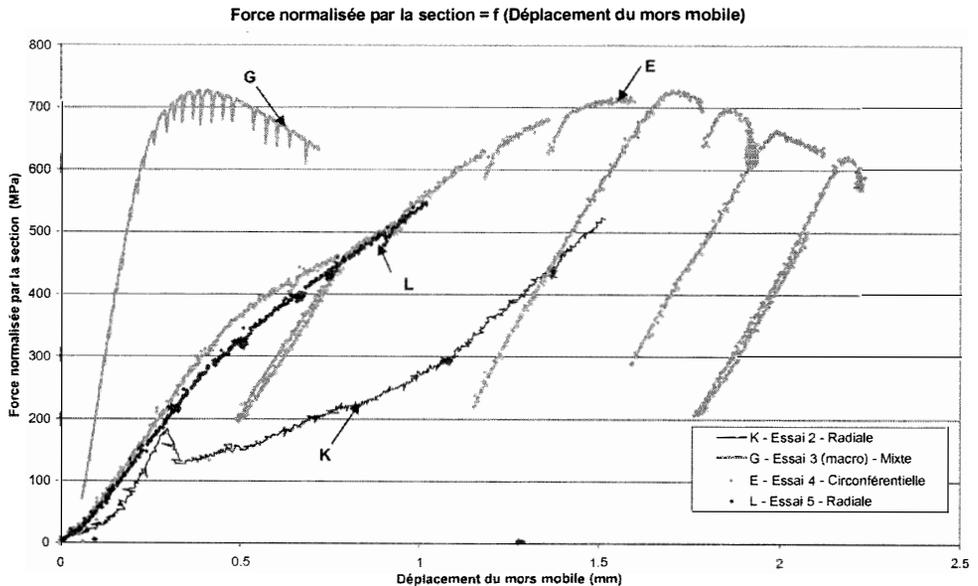
Cinq essais de traction sur anneau ont été réalisés : quatre essais in-situ sous MEB en utilisant la technique des micro-grilles et un essai sur une machine macroscopique en utilisant celle du mouchetis, l'observation étant latérale (*Figure 5a*).

### 3.1 Modes de déformation macroscopiques

#### 3.1.1 Comportement mécanique du Zy-4 hydruré

Les essais étaient pilotés en déplacement imposé avec une vitesse de déplacement de mors mobile constante de 2  $\mu\text{m/s}$  (paramètre imposé par la machine de traction in-situ). Les données de force et de déplacement étaient enregistrées en fonction du temps.

Afin de pouvoir comparer les essais entre eux malgré les différences de géométrie des éprouvettes, les résultats sont présentés en terme de « contrainte apparente » (force normalisée par la section) en fonction du déplacement (puisque l'absence de zone utile pour 3 éprouvettes sur 4 ne permet pas de calculer de déformation). L'ensemble des résultats est cohérent (*Figure 4*).



**Figure 4** : Courbes de la « force normalisée par la section » en fonction du déplacement pour les 3 derniers essais in-situ et l'essai macroscopique

Pour les éprouvettes présentant des hydrures essentiellement radiaux (2<sup>ème</sup> et 5<sup>ème</sup> essais), les contraintes à rupture sont très proches : respectivement 550 et 520 MPa. La courbe de l'éprouvette K – localisation extrême de la déformation par des entailles presque semi-circulaires – présente cependant quelques particularités.

La non-linéarité du début de la courbe s'explique par la phase de « redressement » qui précède la traction proprement dite : l'éprouvette est sollicitée d'abord en flexion et les deux parties « parallèles » à la direction de chargement se « plaquent » progressivement sur les 2 D du montage. La chute brutale de la contrainte est due à un glissement des mors auto-serrants.

De même, les valeurs des contraintes dans les 3<sup>ème</sup> et 4<sup>ème</sup> essais (orientation des hydrures majoritairement circonférentielle) sont similaires : 730 MPa. Les différences d'ordre de grandeur des valeurs de déplacement sont dues à la différence de rigidité des deux machines. Ces courbes mettent en évidence le phénomène de striction qui a été observé : existence d'une contrainte maximale, puis chute de la contrainte jusqu'à l'arrêt de l'essai (interrompu avant rupture dans les deux cas). Les décharges s'expliquent soit par des interruptions dues à la longueur de l'essai (essai 4), soit par la relaxation du matériau lors des pauses nécessaires à l'acquisition d'images.

*En conclusion, la comparaison entre essais met en exergue l'influence de l'orientation des hydrures sur la ductilité : la présence d'hydrures radiaux réduit drastiquement la ductilité du matériau, puisque que les deux éprouvettes en contenant étaient déformées de moins de 1,5% dans les zones étudiées (proches de la zone de rupture finale) à l'étape précédant la ruine de l'éprouvette.*

### 3.1.2 Phénomène de localisation macroscopique

Au cours des trois essais réalisés sur des éprouvettes contenant des hydrures circonférentiels ou mixtes (circonférentiels et radiaux), des bandes de cisaillement macroscopiques sont apparues, quelle que soit la géométrie de l'éprouvette (anneau lisse ou anneau avec partie utile). Ainsi, pour l'éprouvette G, alors que la longueur de la zone utile avait été déterminée pour que des bandes de cisaillement macroscopiques s'intersectant au centre de la zone utile débouchent en dehors de celle-ci, les bandes sont tout de même apparues à l'intérieur de cette zone avec une structure plus complexe, révélée par l'extensométrie de champs (*Figures 5a et 5b*). Cette localisation macroscopique est donc certainement induite par la géométrie complexe en forme d'anneau de l'échantillon, et au mode d'application des efforts. L'endommagement survient à l'intersection de ces plans de cisaillement (*Figure 6*).

## 3.2 Hétérogénéités de déformation à l'échelle de la microstructure : effets des hydrures

### 3.2.1 Effet apparent des hydrures

Lors du dépouillement des résultats du 1<sup>er</sup> essai, la superposition des cartes de déformation à la microstructure a semblé révéler des hétérogénéités de déformation corrélées avec la présence d'hydrures : certaines zones fortement déformées coïncidaient avec des hydrures radiaux (cette éprouvette contenait des hydrures radiaux et circonférentiels) (*Figure 7*).

La solution pour l'attaque chimique utilisée pour révéler des hydrures était constituée d'acide fluorhydrique (10%) et d'acide nitrique (90%).

### 3.2.2 Essai de validation et conclusion sur l'effet «réel» des hydrures

Nous avons donc essayé de valider ce résultat au cours du 4<sup>ème</sup> essai mené dans des conditions similaires – anneau lisse, orientation mixte des hydrures –, mais sans révéler les hydrures par attaque chimique (ce qui implique une observation en électrons rétrodiffusés). Il n'a toutefois pas été possible d'observer le même type de localisation de la déformation autour des hydrures radiaux.

C'est pourquoi, il semble que l'attaque chimique ait induit un artefact : elle aurait «*créé*» le matériau et les hétérogénéités observées ne seraient pas dues aux hydrures, mais à ces défauts en surface. Cependant, nous avons tracé sur les cartes de déformation les directions à  $\pm 45^\circ$  par rapport aux directions principales de la déformation moyenne sur la grille analysée (*Figure 8*). On remarque que la déformation semble concentrée dans des micro-bandes de localisation (à l'échelle d'une zone couverte par une micro-grille) parallèles à ces directions à  $45^\circ$ , selon une géométrie déjà observée sur un matériau similaire non-hydruré [6, 7]. De plus, il semble que les hydrures se trouvent majoritairement dans les domaines en dehors de ces bandes, et que la taille caractéristique de ces dernières (longueur et espacement) est de l'ordre de grandeur de quelques hydrures, soit plus grande que celle des bandes observées dans le matériau non-hydruré [6, 7], dans lequel elle semble en liaison avec la taille des grains. Cette observation semble confirmer le caractère «*renforçant*» des hydrures.

Mais, on ne peut tirer de conclusion ferme. En effet, d'une part, il y a moins d'hydrures radiaux dans cette éprouvette que dans celle utilisée pour le premier essai, et on ne peut pas observer les mécanismes de déformation autour de ceux-ci. D'autre part, la zone analysée n'est peut-être pas suffisamment déformée (déformation moyenne de von Mises d'environ 10%).

*A l'échelle locale des zones étudiées (taille inférieure à  $0,15 \text{ mm}^2$ ), les hydrures semblent perturber les champs mécaniques de déformation. Ainsi, les hydrures circonconférentiels sembleraient se trouver entre des bandes de cisaillement « locales » plutôt qu'à l'intérieur. Cela pourrait confirmer leur nature renforçante. Quant à l'existence de zones de déformation plus fortement sollicitées autour des hydrures radiaux, cela semble être un artefact dû à l'attaque chimique utilisée pour les deux premiers essais.*

### 3.3 Endommagement observé

#### 3.3.1 Hydrures circonconférentiels

Dans les éprouvettes contenant des hydrures circonconférentiels ou mixtes, la déformation et l'endommagement se sont localisés dans des bandes de cisaillement macroscopiques. L'éprouvette menée jusqu'à rupture a rompu suite à la croissance de deux cavités, apparues symétriquement par rapport à l'axe de sollicitation à l'intersection des bandes macroscopiques (Figure 6). Le faciès de rupture de cette éprouvette correspond à une rupture ductile.

#### 3.3.2 Hydrures radiaux : Description de la rupture sur la surface observée (plan circonconférentiel-radial)

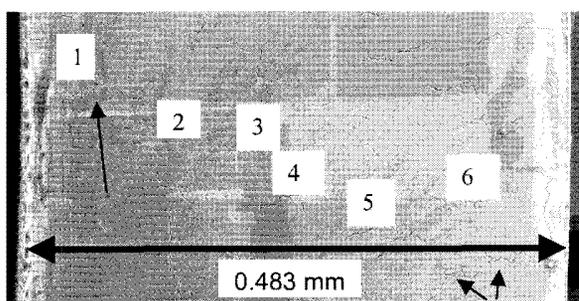
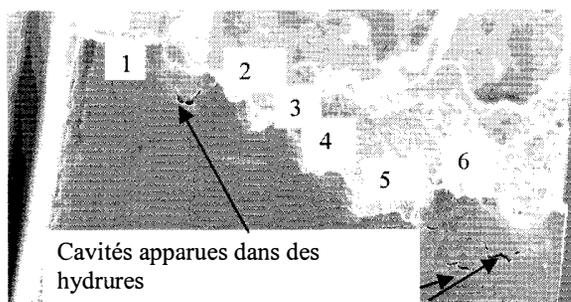


Figure 9a: Surface de l'éprouvette avant essai

Les deux éprouvettes contenant des hydrures radiaux ont rompu brutalement, sans que des bandes de cisaillement macroscopique ou de striction ne soient apparues. La déformation équivalente de von Mises moyenne sur une micro-grille à proximité de la fissure macroscopique avant rupture était inférieure à 1,2%. Aucun signe d'endommagement visible en surface de l'éprouvette (formation de cavités, déformation des grilles) n'a été décelé.

Pour ces deux éprouvettes, d'après l'observation de la surface avant (*Figure 9a*) et après rupture (*Figure 9b*), la fissure semble s'être propagée d'hydrure radial en hydrure radial, au niveau du plan médian de l'éprouvette, là où les hydrures radiaux sont perpendiculaires à l'axe de sollicitation.



**Figure 9b** : Surface de l'éprouvette après rupture

#### 4. CONCLUSIONS

Les essais ont mis en évidence une différence de comportement nette selon l'orientation des hydrures.

Dans les éprouvettes avec hydrures circonférentiels, se développent des bandes de localisation macroscopiques, qui induisent un déplacement par blocs dans lesquels le niveau de déformation diffuse estimé par extensométrie locale reste faible, inférieur à 10% et très peu d'endommagement y est observé. La présence d'hétérogénéités de déformation dues aux hydrures n'est pas exclue : les hydrures semblent se trouver *entre* des bandes de déformation locales (à l'échelle d'une micro-grille) et non à l'intérieur, mais cette observation nécessite une confirmation.

Ainsi, les zones plus fortement sollicitées observées dans la 1<sup>ère</sup> éprouvette semblent être dues à un artefact de l'attaque chimique utilisée. Celle-ci est par ailleurs susceptible d'induire un artefact sur la mesure de déformation en surface.

Dans les éprouvettes avec hydrures radiaux, la rupture de l'éprouvette est brutale et précède l'apparition des bandes de cisaillement. Celles-ci ne sont donc pas observées. La fissure responsable de la rupture se propage suivant des *hydrures radiaux alignés* (perpendiculairement à la contrainte appliquée) dans le plan médian de l'éprouvette. Nous avons observé peu d'endommagement, bien qu'il s'agissait de l'objectif principal. Vraisemblablement, les niveaux de déformation diffuse atteints sont insuffisants pour générer l'endommagement attendu (germination, croissance et coalescence de cavités dans les hydrures, fissuration d'hydrures perpendiculairement à la sollicitation).

#### Références

1. J. Bai, *Nocivité des hydrures dans le Zircaloy-4*, Thèse de l'Ecole Centrale de Paris (1991)
2. S. Arsène, *Effet de la microstructure et de la température sur la transition ductile-fragile des Zircaloy hydrurés*, Thèse de l'Ecole Centrale de Paris (1997).
3. M. Grange, *Fragilisation du Zircaloy-4 par l'hydrogène, comportement, mécanismes d'endommagement, interaction avec la couche d'oxyde, simulation numérique*, Thèse de l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris (1998).
4. V. Perovic et al., *Acta Metall.* Vol 31 No. 9, pp 1381-1391 (1983)

5. P. Yvon et al., Rapport DMN, SEMI/LCMI/RT/01-036/A

6. Pascal Doumalin, *Microextensométrie locale par corrélation d'images numériques. Application aux études micromécaniques par microscopie électronique à balayage*, Thèse de l'Ecole Polytechnique (2000).

7. P. Doumalin et al., *Caractérisation de la déformation dans les matériaux hétérogènes*, à paraître dans Mécanique et Industrie.

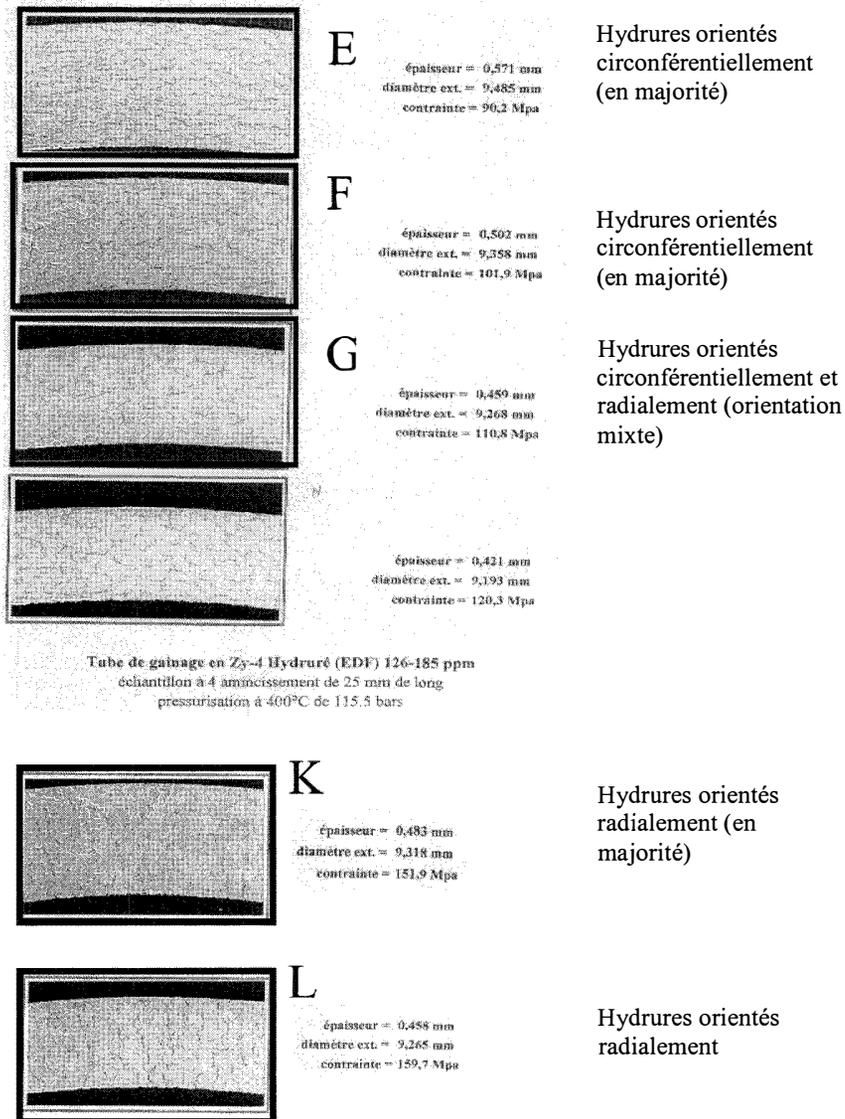
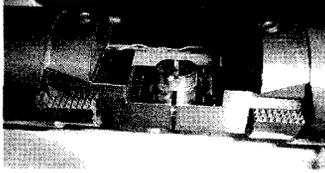
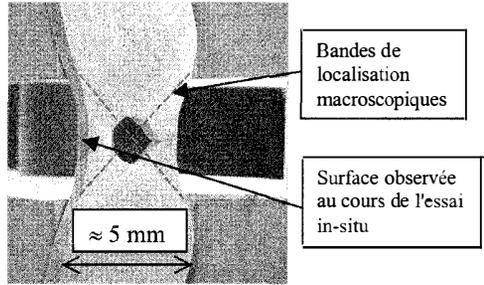


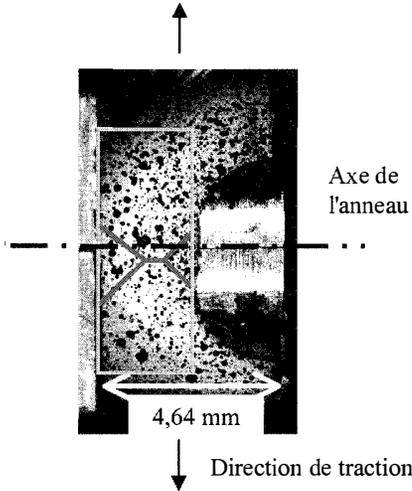
Figure 1 : Coupes métallographiques des éprouvettes anneaux hydrurées utilisées pour les essais de traction.



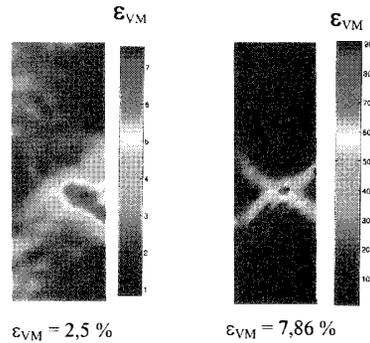
**Figure 2 :** Montage utilisé pour les essais in-situ sous MEB.



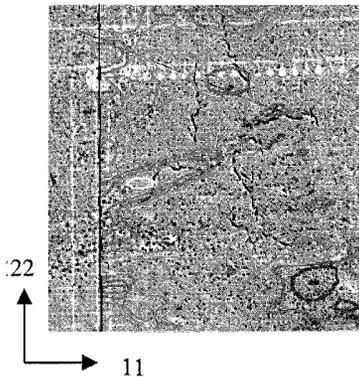
**Figure 6 :** Endommagement à l'intersection des bandes de cisaillement macroscopiques (Anneau lisse initialement).



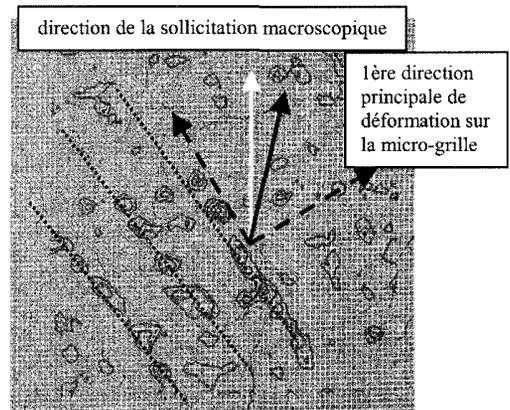
**Figure 5a :** Partie cylindrique de l'éprouvette G sur laquelle a été déposé du mouchetis. Etat initial.



**Figure 5b :** Carte des isovaleurs de déformation de von Misès correspondant à la zone rectangulaire observée (entourée en jaune sur la figure 4a) pour deux niveaux de déformation moyenne sur cette zone différents.



**Figure 7 :** Concentration apparente des isovaleurs de déformation 22 (sens de sollicitation) autour d'un hydrure radial. Les zones jaunes et vertes sont plus déformées que les bleues. Le pas de la micro-grille est de 4  $\mu\text{m}$ .



**Figure 8 :** Carte des isovaleurs de déformation de von Misès superposée à la microstructure : observation de bandes à 45° (flèches en traits pointillés) par rapport à la première direction principale de déformation (flèche en traits pleins). Les zones rouges sont les plus déformées. Le pas de la micro-grille est de 2  $\mu\text{m}$ .