Comportement et rupture de gaines en zircaloy-4 détendu vierges, hydrurées ou irradiées en situation accidentelle de type RIA

Matthieu Le Saux

▶ **To cite this version:**

Matthieu Le Saux. Comportement et rupture de gaines en zircaloy-4 détendu vierges, hydrurées ou irradiées en situation accidentelle de type RIA. Mécanique [physics.med-ph]. École Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2008. Français. NNT : 2008ENMP1608 . tel-00395361

HAL Id: tel-00395361

https://pastel.hal.science/tel-00395361

Submitted on 15 Jun 2009

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.

ED n°432 : Sciences des Métiers de l'Ingénieur

N° attribué par la bibliothèque

THESE

pour obtenir le grade de
Docteur de l'Ecole des Mines de Paris
Spécialité : "Sciences et Génie des Matériaux"

présentée et soutenue publiquement par
Matthieu LE SAUX

le 23 octobre 2008

COMPORTEMENT ET RUPTURE DE GAINES EN ZIRCALOY–4 DETENDU VIERGES, HYDRUREES OU IRRADIEES EN SITUATION ACCIDENTELLE DE TYPE RIA

Directeur de thèse : Jacques BESSON

Jury

M. Sylvain LECLERCQ	EDF	Rapporteur
M. Arthur MOTTA	Pennsylvania State University	Rapporteur
M. Eric ANDRIEU	ENSIACET	Examinateur
M. Jacques BESSON	Mines ParisTech	Examinateur
M. Sébastien CARASSOU	CEA	Examinateur
M. Claude PRIOUL	Ecole Centrale de Paris	Examinateur
M. Jean DESQUINES	IRSN	Invité

A mes parents,
à Rozen.

"The most exciting phrase to hear in science, the one that heralds new discoveries, is not "Eureka!", but "That's funny ...""

Isaac Asimov

Avant–propos

Avant toute chose, je tiens à remercier les membres de mon jury de thèse pour avoir accepté de consacrer une partie de leur précieux temps à l'évaluation de ce travail. Plus précisément, je remercie Claude Prioul pour m'avoir fait l'honneur de présider ce jury, Sylvain Leclercq et Arthur Motta pour leur relecture consciencieuse de ce « tapuscrit » et Eric Andrieu, Jacques Besson, Sébastien Carassou et Jean Desquines pour l'examen attentif de ce travail. Leurs remarques et suggestions ont indéniablement contribué à améliorer la qualité de ce mémoire.

Cette étude s'est déroulée au sein du laboratoire de Comportement Mécanique des Matériaux Irradiés (LCMI) du Service d'Etude des Matériaux Irradiés (SEMI) du Commissariat à L'Energie Atomique (CEA) de Saclay. Je remercie les responsables successifs du LCMI, Claude Sainte-Catherine et Xavier Averty, et du SEMI, Pascal Yvon et Anne Terlain, pour m'avoir accueilli au sein de leur équipe et apporté un soutien matériel.

J'exprime toute ma reconnaissance à Jacques Besson, mon directeur de thèse, pour son enthousiasme, sa disponibilité et ses conseils avisés. J'adresse par ailleurs mes chaleureux remerciements à Christophe Poussard et Sébastien Carassou, qui m'ont successivement encadré au quotidien au SEMI, pour leur implication, leur confiance et leur soutien. Ils ont su me guider efficacement tout en me laissant une grande part d'autonomie.

Les résultats obtenus durant cette thèse sont le fruit du travail de nombreuses personnes. Je remercie sincèrement Philippe Mongabure et Bruno Boisdanghien pour leur précieuse aide à la mise au point des essais de caractérisation mécanique, Jean-Pierre Pizzanelli notamment pour avoir « moucheté » mes éprouvettes, Mickael Gennisson pour la mise en plan des éprouvettes, David Leboulch pour m'avoir aidé à résoudre certains problèmes informatiques et/ou liés à Cast3M, Quentin Auzoux et Roger Limon pour leurs suggestions éclairées, Stéphane Allègre pour son aide à la préparation des échantillons en vue d'observations microscopiques, Olivier Rabouille pour avoir notamment encadré le stage de Yohann Ayoul, Claire Orcière qui a été une stagiaire extrêmement efficace, Jean-Luc Bechade et Annick Bougault qui m'ont permis d'utiliser un des MEB du SRMA, Lionel Gélébart pour m'avoir transmis un tronçon de gaine provenant du SRMA, Olivier Fandeur et Nicolas Hourdequin qui m'ont aidé à « débugger » certains programmes d'implantation numérique dans Cast3M et Patrick Raynaud pour avoir tenté avec persévérance de créer des blisters d'hydrures dans mes éprouvettes. Plus généralement, je remercie tous les membres passés et présents du SEMI pour leur accueil chaleureux et leur sympathie ainsi que toutes les personnes côtoyées au CEA ou ailleurs qui ont rendu ces trois années

agréables.

Mes remerciements vont aussi à tous mes proches, amis ou de la famille, pour leur support et leur précieuse compagnie. Je remercie en particulier mon frère Vincent qui a eu le courage de lire ce mémoire et exprime ma profonde reconnaissance à mes parents pour leur inestimable et inconditionnel soutien. Enfin, je ne manquerai pas de remercier chaleureusement mon amie Rozen, pour sa patience et sa présence indispensable.

Table des matières

Nomenclature **1**

Introduction **5**

1 Etude bibliographique **11**
1.1 Les alliages de zirconium 12
1.1.1 Généralités et microstructure du Zircaloy–4 vierge 12
1.1.2 Evolutions microstructurales en réacteur 15
1.1.3 Modes de déformation plastique 21
1.1.4 Comportement mécanique 23
1.1.5 Endommagement et rupture 32
1.2 Les accidents d'injection de réactivité 50
1.2.1 Déroulement 50
1.2.2 Rupture par interaction mécanique pastille–gaine 55
1.2.3 Essais de caractérisation et critères de rupture 59
1.3 Synthèse 63

2 Comportement mécanique du Zircaloy–4 vierge et irradié **67**
2.1 Introduction 69
2.2 Experimental observations 70
2.2.1 Material and experimental database 70
2.2.2 Analysis of the experimental data 72
2.3 Model description 78
2.3.1 Model formulation 78
2.3.2 Model identification 80
2.3.3 Results and discussion 81
2.4 Example of FEA application 84
2.4.1 Introduction 84
2.4.2 Geometry and finite element modeling 85
2.4.3 Results and discussion 85
2.5 Conclusions 89
2.6 Résumé 90
2.7 Remarques complémentaires 91

3 Comportement mécanique et rupture du Zircaloy–4 hydruré 93
3.1 Introduction . . . 95
3.2 Material and experimental procedure . . . 97
3.2.1 Material . . . 97
3.2.2 Mechanical testing . . . 98
3.2.3 Digital image correlation . . . 103
3.2.4 Damage quantification . . . 103
3.3 Mechanical behavior . . . 104
3.3.1 Tensile properties . . . 104
3.3.2 Plastic anisotropy . . . 108
3.3.3 Modeling . . . 109
3.4 Damage and failure . . . 112
3.4.1 Macroscopic failure modes . . . 112
3.4.2 Macroscopic ductility . . . 114
3.4.3 Microscopic failure mechanisms . . . 117
3.4.4 Damage kinetics due to hydride cracking . . . 123
3.5 Conclusions . . . 125
3.6 Résumé . . . 126

4 Modélisation de la rupture ductile du Zircaloy–4 hydruré 129
4.1 Introduction . . . 130
4.2 Formalisme du modèle . . . 131
4.2.1 Potentiel de Gurson–Tvergaard–Needleman . . . 131
4.2.2 Description de l'endommagement . . . 133
4.2.3 Ecoulement viscoplastique . . . 135
4.3 Identification des paramètres du modèle . . . 136
4.3.1 Introduction . . . 136
4.3.2 Démarche d'identification . . . 137
4.3.3 Loi d'écoulement et coefficients de Hill . . . 139
4.3.4 Germination des cavités . . . 139
4.3.5 Coalescence des cavités . . . 142
4.3.6 Taille de maille . . . 143
4.4 Résultats des simulations . . . 144
4.4.1 Traction axiale . . . 144
4.4.2 Traction circonférentielle . . . 148
4.4.3 Expansion due à la compression . . . 151
4.4.4 Traction plane circonférentielle . . . 153
4.4.5 Essais d'écrasement . . . 156
4.5 Conclusions . . . 159

Conclusions 161

A Implantation numérique **169**
A.1 Introduction . . . 169
A.2 Variables internes . . . 170
A.2.1 Modèle de viscoplasticité . . . 170
A.2.2 Modèle GTN . . . 170
A.3 Intégration des variables internes . . . 171
A.4 Calcul des contraintes . . . 173
A.5 Gestion de la rupture . . . 173

B Plans des éprouvettes **175**

C Moyens et méthodes expérimentales **177**
C.1 Hydruration . . . 177
C.1.1 Chargement en hydrogène . . . 177
C.1.2 Dosage de l'hydrogène . . . 178
C.2 Machine d'essais mécaniques . . . 180
C.3 Moyens d'observation . . . 181
C.4 Préparation des échantillons pour observation en microscopie . . . 181
C.5 Mesure des déformations locales à rupture . . . 182
C.5.1 Essais de traction axiale et de traction circonférentielle . . . 182
C.5.2 Essais d'expansion due à la compression . . . 182
C.6 Calcul des déformations par corrélation d'images numériques 2D . . . 182
C.6.1 Introduction . . . 182
C.6.2 Principe . . . 182
C.6.3 Création du contraste local . . . 184
C.6.4 Matériel optique et acquisition des images . . . 185
C.6.5 Paramètres de corrélation . . . 187
C.6.6 Incertitudes sur les mesures de déformations . . . 188

D Analyse des essais de caractérisation mécanique **191**
D.1 Etat de l'art . . . 191
D.1.1 Rappels . . . 191
D.1.2 Caractérisation des propriétés axiales . . . 192
D.1.3 Caractérisation des propriétés circonférentielles . . . 192
D.1.4 Caractérisation de la rupture lors d'un RIA . . . 195
D.2 Traction axiale . . . 198
D.2.1 Eprouvette et dépouillement des essais . . . 198
D.2.2 Analyse par éléments finis . . . 200
D.3 Traction circonférentielle . . . 201
D.3.1 Eprouvette et dépouillement des essais . . . 201
D.3.2 Influence des dilatations thermiques . . . 202
D.3.3 Comparaison avec des essais de traction circonférentielle pure 203
D.4 Expansion due à la compression . . . 206
D.4.1 Principe et montage . . . 206
D.4.2 Extension du domaine de température d'exploitation . . . 207

D.4.3 Analyse par éléments finis . . . 209
D.4.4 Développement d'un essai EDC biaxé . . . 215
D.5 Traction plane circonférentielle . . . 218
D.5.1 Géométrie . . . 218
D.5.2 Modes de déformation . . . 218
D.5.3 Modes de rupture . . . 222
D.5.4 Influence de la géométrie des mandrins . . . 224
D.6 Echauffement local . . . 227

E Résultats des essais de caractérisation mécanique 229

F Analyse de l'endommagement 235
F.1 Quantification de l'endommagement lié à la rupture des hydrures . . . 235
F.1.1 Introduction . . . 235
F.1.2 Méthodologie . . . 236
F.1.3 Analyse d'images . . . 236
F.2 Fraction volumique des précipités de phase de Laves et des hydrures . . . 238
F.2.1 Précipités de phase de Laves . . . 238
F.2.2 Hydrures . . . 239

G Comparaison et utilisation des modèles de comportement 241

H Compléments sur l'anisotropie de rupture 245

I Modélisation par éléments finis 251
I.1 Introduction . . . 251
I.2 Traction axiale . . . 252
I.3 Traction circonférentielle . . . 253
I.4 Expansion due à la compression . . . 253
I.4.1 Modèle 2D axisymétrique . . . 253
I.4.2 Modèle 2D contraintes planes . . . 254
I.5 Traction plane circonférentielle . . . 255
I.5.1 Modèle 3D . . . 255
I.5.2 Modèle 2D . . . 255
I.6 Ecrasement . . . 257

Bibliographie 282

Nomenclature

Abréviations

APRP	Accident de Perte de Réfrigérant Primaire
AT	Axial Tension
CWSR	Cold–Worked Stress Relieved
DIC	Digital Image Correlation
DNB	Departure of Nucleate Boiling
dpa	déplacement par atome
EDC	Expansion Due à la Compression
EDX	Energy Dispersive X-ray
EF	Eléments Finis
eV	électron Volt
FAD	Failure Assessment Diagram
FEA	Finite Element Analysis
FGR	Fission Gas Release
GTN	Gurson–Tvergaard–Needleman
GWj/t	GigaWatts jour par tonne
HT	Hoop Tension
IP	Internal Pressurization
MEB	Microscope Electronique à Balayage
MET	Microscope Electronique en Transmission
PCMI	Pellet–Clad Mechanical Interaction
ppm	partie par million (en masse)
PST	Plane Strain Tension
PWR	Pressurized Water Reactor
REA	Rod Ejection Accident
REP	Réacteur à Eau Pressurisée
RIA	Reactivity Initiated Accident
RK4	Runge–Kutta du quatrième ordre
SEM	Scanning Electron Microscope
Zy	Zircaloy

^{e}	élastique
^{p}	(visco)plastique

th	thermique
$_0$	initial

Notations mathématiques

Δ	incrément
δ	sous–incrément
∂	dérivée partielle
$\dot{a}$	dérivée par rapport au temps
$\mathbf{a}$	tenseur d'ordre 1 (vecteur)
$\underline{\mathbf{a}}$	tenseur d'ordre 2
$\underline{\underline{\mathbf{A}}}$	tenseur d'ordre 4
$\{A\}$	vecteur
:	produit doublement contracté
tr(.)	trace
$\langle . \rangle$	fonction définie telle que $\langle x \rangle = 0$ si $x \leq 0$ et $\langle x \rangle = x$ sinon

Symboles

C_H	teneur en hydrogène (ppm)
C_{Hp}	teneur en hydrogène précipité (ppm)
C_{Hs}	teneur en hydrogène en solution (ppm)
c_p	chaleur spécifique (J/kg/K)
C_s	limite de solubilité de l'hydrogène (ppm)
$\underline{\underline{\mathbf{C}}}$	tenseur d'élasticité
D	diamètre (m)
e	déformation nominale (—)
e_U	allongement uniforme (—)
E	module d'Young (Pa)
E	énergie des particules incidentes (eV)
f	porosité ou fraction volumique (—)
f_c	porosité critique (—)
f_g	porosité due à la croissance (—)
f_n	porosité due à la germination (—)
f_{nH}	porosité due à la germination par rupture des hydrures (—)
f_{nL}	porosité due à la germination autour des phases de Laves (—)
f_t	porosité totale efficace (—)
$f_\star$	porosité effective (—)
F	force (N)
F_{vp}	loi d'écoulement viscoplastique
g	jeu (m)
$\underline{\underline{\mathbf{H}}}$	tenseur de Hill

$\underline{\mathbf{I}}$	tenseur unité
K	paramètre de résistance plastique (Pa)
l	longueur de diffusion (m)
L	paramètre d'écrouissage (—)
L	longueur (m)
m	exposant de sensibilité de la contrainte à la vitesse de déformation : $\partial \ln \sigma / \partial \ln \dot{\epsilon}$ (—)
m	masse (kg)
M	masse atomique (g/mol)
n	exposant d'écrouissage : $\partial \ln \sigma / \partial \ln \epsilon^p$ (—)
$\underline{\mathbf{n}}$	normale à la surface d'écoulement
N_H	densité surfacique de fissures (m^{-2})
p	déformation (visco)plastique cumulée (—)
P	pression (Pa)
P	périmètre (m)
R	rayon des cavités (m)
s	section (m^2)
S	contrainte nominale (Pa)
$S_Y^{0.2\%}$	contrainte nominale à 0.2% de déformation plastique (Pa)
S_U	contrainte nominale maximale (Pa)
t	épaisseur (m)
T	température (T ou K)
$\{V\}$	variables internes
Z	coefficient de striction : $\Delta s / s_0$ (—)
w	largeur (m)
α	coefficient de dilatation thermique (K^{-1})
δ	terme accélérateur de la croissance des cavités (—)
ϵ	déformation logarithmique (—)
ϕ_t	fluence de neutrons rapides ($n.m^{-2}$)
Φ	potentiel GTN (—)
η	paramètre de viscoplasticité (Pa)
λ	multiplicateur plastique (—)
λ	conductivité thermique (W/m/K)
μ	coefficient de frottement (—)
ν	coefficient de Poisson (—)
ρ	masse volumique (kg/m^3)
σ	contrainte vraie (Pa)
σ_m	contrainte moyenne : $\sigma_{kk}/3$ (Pa)
$\sigma_\star$	contrainte effective (Pa)
σ_H	contrainte équivalente au sens de Hill : $\sqrt{\underline{\boldsymbol{\sigma}} : \underline{\underline{\mathbf{H}}} : \underline{\boldsymbol{\sigma}}}$ (Pa)
σ_y	limite d'élasticité (Pa)
Ω	potentiel viscoplastique (—)
ξ	position axiale relative par rapport au bas de l'assemblage (—)
ψ	angle de localisation (°)

Introduction

Problématique générale

Les Réacteurs à Eau sous Pression (REP) sont constitués d'assemblages combustibles (157 pour les réacteurs de puissance 900 MWe et 193 pour ceux de 1300 MWe) comprenant chacun un réseau carré de 264 crayons. Des grappes de contrôle, regroupant chacune 24 crayons absorbants de neutrons (composés d'un alliage d'argent, cadmium et indium), permettent de réguler la puissance du réacteur ou de l'arrêter totalement. Les assemblages combustibles, renouvelés par tiers ou par quart tous les 12 ou 18 mois, séjournent actuellement 3 ou 4 ans en réacteur. Le combustible nucléaire utilisé dans les REP est constitué de pastilles (cylindres d'environ 8 mm de diamètre et 10 mm de hauteur) de dioxyde d'uranium (UO_2) ou d'oxyde mixte d'uranium et de plutonium (MOX) empilées dans des tubes de gainage (diamètre externe de 9.5 mm, épaisseur de 0.57 mm et longueur de 4 m environ) en alliages de zirconium. Ces gaines représentent les premières barrières de confinement des produits radioactifs – fonction critique qu'elles doivent assurer en toutes circonstances. L'utilisation des alliages de zirconium pour le gainage du combustible est liée à leur très faible absorption des neutrons thermiques, à leur bonne résistance à la corrosion par l'eau à haute température et à leurs bonnes propriétés mécaniques à chaud. Lors de leur séjour en réacteur, les gaines subissent les effets de l'irradiation neutronique et sont oxydées par l'eau du circuit primaire (eau liquide entre 280 °C et 320 °C sous 155 bars, lithine LiOH, acide borique H_3BO3, hydrogène). L'irradiation conduit à la création de défauts microstructuraux. L'oxydation libère notamment de l'hydrogène dont une partie diffuse dans le métal et, une fois la limite de solubilité de l'hydrogène atteinte, précipite sous forme d'hydrures de zirconium. Ces modifications microstructurales, croissantes en fonction du taux de combustion, dégradent les propriétés mécaniques du matériau.

Pour réduire les coûts d'exploitation des réacteurs ainsi que le volume de déchets associé au rechargement de leur coeur, Electricité de France (EdF) envisage d'augmenter le taux de combustion [1] des crayons combustibles de son parc à 62 GWj/t, le taux de combustion autorisé depuis 1998 étant de 52 GWj/t. L'autorisation par les autorités de sûreté d'augmenter le taux de combustion des crayons combustibles est subordonnée à la vérification, entre autres, de la tenue des gaines en situation

[1] Energie thermique produite par les fissions nucléaires par unité de masse combustible, exprimée en GigaWatts jour par tonne (GWj/t).

accidentelle d'injection de réactivité (RIA, Reactivity Initiated Accident) [2]. Cet accident hypothétique de dimensionnement (fréquence inférieure à 10^{-4} par tranche et par an) est causé par l'éjection intempestive d'une grappe de contrôle hors du coeur du réacteur. Cette situation entraîne localement un emballement de la réaction nucléaire qui génère un transitoire rapide de puissance au cours duquel la gaine est soumise à un chargement mécanique multiaxial rapide (vitesse de déformation de l'ordre de $1\,s^{-1}$, voire plus) associé à des températures éventuellement élevées (comprises entre 300 °C et 1000 °C environ).

Il est naturellement impossible de reproduire un RIA en conditions réelles. Néanmoins, des essais représentant une excursion de réactivité visant à simuler un RIA ont été réalisés en réacteurs expérimentaux : entre 1969 et 1970 dans le réacteur SPERT (Special Power Excursion Reactor) aux USA, entre 1978 et 1980 dans le réacteur PBF (Power Burst Facility) aux USA, depuis 1980 dans le réacteur NSRR (Nuclear Safety Research Reactor) au Japon (Fuketa et al., 1996, 1997; Fuketa and Sasajima, 2001; Fuketa et al., 2006) et depuis 1993 dans le réacteur CABRI en France (Schmitz and Papin, 1999; Papin et al., 2007). En se basant sur les résultats des essais réalisés sur des crayons irradiés jusqu'à 32 GWj/t dans les réacteurs SPERT, PBF et NSRR, un critère de sûreté unique avait été établi pour garantir un dégagement d'énergie mécanique limité et préserver le refroidissement du cœur : l'enthalpie [3] déposée dans la pastille de combustible doit rester inférieure à une enthalpie limite de 200 cal/g (MacDonald et al., 1980). Plus tard, certains essais réalisés sur des combustibles à fort taux de combustion (jusqu'à 64 GWj/t) dans les réacteurs NSRR et CABRI ont révélé des ruptures prématurées des gaines pour des niveaux d'enthalpie nettement inférieurs à ceux fixés par le domaine de sûreté (30 cal/g pour le premier essai REP–Na1 réalisé dans le réacteur CABRI !) : le critère de sûreté établi pour les combustibles faiblement irradiés n'est donc pas adapté au cas du combustible à fort taux de combustion (Vitanza, 2006). Cette rupture prématurée des gaines fortement irradiées est généralement attribuée aux hydrures produits lors de réaction d'oxydation de la gaine en réacteur.

L'interprétation des essais réalisés en réacteurs expérimentaux, la transposition des résultats aux conditions réelles attendues en réacteur de puissance et enfin l'évaluation des risques de rupture des gaines en situation de RIA nécessitent le développement de codes de calculs capables de reproduire le comportement thermomécanique des crayons combustibles lors du transitoire. Par exemple, les codes FALCON (Rashid et al., 2004), FRAPTRAN (Cunningham et al., 2001), RANNS (Suzuki et al., 2006a, b) et SCANAIR (Federici et al., 2001) sont respectivement développés par l'Electric Power Research Institute (EPRI) aux USA, la Nuclear Regulatory Commission (NRC) aux USA, le Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI) au Japon et l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) en France. Pour alimenter ces codes de calculs, il est indispensable de disposer de

[2] L'autre accident de référence pour les REP est l'Accident de Perte de Régrigérant Primaire (APRP ou LOCA, Loss of Coolant Accident), lié à la rupture d'une branche du circuit primaire.

[3] L'enthalpie, exprimée en calories par gramme (cal/g), représente la quantité d'énergie accumulée par le combustible pendant la transformation isobare.

modèles de comportement et de critères de rupture pour le matériau de gainage. Le développement de ces outils requiert la caractérisation, en laboratoire, du comportement mécanique du matériau dans des conditions adaptées (température, vitesse de déformation et état de contrainte, ...). En particulier, le programme PROMETRA (PROpriétés MEcaniques en TRAnsitoire) a été engagé en 1992 dans le cadre d'une action tripartite EdF/IRSN/CEA pour étudier le comportement mécanique des matériaux de gainage, irradiés ou non, en conditions de type RIA (Balourdet et al., 1999; Desquines et al., 2005b; Cazalis et al., 2007).

Démarche de l'étude

Ces travaux de thèse s'inscrivent dans cette démarche de caractérisation et de modélisation du comportement mécanique et de la rupture des alliages de zirconium en conditions de type RIA. Plus précisément, l'étude porte sur les gaines en Zircaloy–4 détendu, qui sont actuellement les plus utilisées dans les REP français.

Les modèles proposés dans la littérature pour décrire le comportement des alliages de zirconium vierges ou irradiés ne sont généralement pas adaptés aux conditions spécifiques rencontrées lors des RIA. Le *premier objectif* de cette thèse est de développer, pour les gaines en Zircaloy–4 détendu vierges et irradiées, un modèle de comportement applicable sur l'ensemble du domaine de températures et de vitesses de déformation attendu lors d'un RIA.

La rupture des gaines à fort taux de combustion lors de la première phase du transitoire RIA (phase d'interaction mécanique pastille–gaine) est généralement attribuée aux hydrures, dont la contribution est *a priori* prépondérante par rapport à celle de l'irradiation et de la corrosion (Fuketa et al., 1996, 1997; Schmitz and Papin, 1999; Fuketa and Sasajima, 2001; Papin et al., 2007). La fragilisation des alliages de zirconium par l'hydrogène a été largement abordée dans la littérature, du moins pour des températures inférieures à 300 °C. Ces températures ne sont néanmoins pas d'un intérêt majeur lorsqu'on s'intéresse à la rupture des gaines lors des RIA. Les données concernant les propriétés mécaniques du Zircaloy–4 détendu hydruré aux températures supérieures sont peu nombreuses. En outre, des tôles sont souvent substituées aux gaines, en raison des difficultés de mise en place des essais sur tubes. Inévitablement, la texture cristallographique et les propriétés mécaniques des tôles ne sont pas rigoureusement identiques à celles des tubes. Le *second objectif* de cette thèse est de caractériser dans des conditions adaptées le comportement mécanique, l'endommagement et la rupture de gaines en Zircaloy–4 détendu non irradiées hydrurées. Le matériau a été étudié dans sa finition industrielle, c'est–à–dire sous forme de tube, pour garantir une parfaite transposition des résultats. Nous nous sommes également efforcés d'utiliser et de mettre au point des méthodes et des moyens utilisables en cellules blindées, de telle sorte qu'ils puissent être appliqués aux matériaux irradiés.

Les critères de rupture utilisés pour les gaines dans les codes de calcul dédiés à la simulation du comportement des crayons combustibles lors des RIA sont établis à

partir d'essais mécaniques de laboratoire. La pertinence de ces critères de rupture, basés sur une approche globale, repose directement sur la représentativité des essais, vis–à–vis des sollicitations thermomécaniques auxquelles sont soumises les gaines dans le cas réel, et sur l'interprétation qui en est faite. Dans ce contexte, les modèles décrivant la rupture du matériau à une échelle plus fine sont d'une grande utilité pour progresser dans la compréhension des mécanismes locaux mis en jeu et, de ce fait, correctement interpréter les résultats des essais. Ces modèles de compréhension permettent donc, *in fine*, de justifier ou établir les critères de rupture introduits dans les codes de calcul. Ainsi, le *troisième objectif* de ce travail concerne la modélisation de la rupture ductile des gaines en Zircaloy–4 détendu non irradiées hydrurées.

Plan du mémoire

Ce manuscrit est organisé en quatre chapitres. Certains aspects sont complétés ou détaillés en annexes.

Chapitre 1. Une synthèse bibliographique est réalisée dans le premier chapitre. Les principales caractéristiques métallurgiques et mécaniques des alliages de zirconium sont présentées. Le déroulement des accidents d'injection de réactivité et les conséquences sur les gaines des crayons combustibles sont décrits. Enfin, en s'appuyant sur cet état de l'art, les objectifs de l'étude et la démarche retenue sont justifiés.

Chapitre 2. Le second chapitre est consacré à la modélisation du comportement mécanique, en conditions de type RIA, des gaines en Zircaloy–4 détendu vierges et irradiées. Une base de données incluant les résultats de plus de 500 essais mécaniques, issus du programme PROMETRA et de la littérature restreinte et ouverte, est constituée. Le comportement viscoplastique anisotrope du matériau est analysé en fonction de la température (de 25 °C à 1100 °C), la vitesse de déformation (de $3 \cdot 10^{-4}\,\mathrm{s}^{-1}$ à $5\,\mathrm{s}^{-1}$), la fluence (de $0\,\mathrm{n.m}^{-2}$ à $10^{26}\,\mathrm{n.m}^{-2}$) et les conditions d'irradiation (température d'irradiation comprise entre 320 °C et 380 °C). Un modèle basé sur le formalisme standard de l'élastoviscoplasticité à écrouissage isotrope multiplicatif non linéaire sans seuil est proposé pour décrire le comportement mécanique du matériau. L'anisotropie de plasticité du matériau est représentée à l'aide du critère quadratique de Hill. La loi de comportement, implémentée dans le code de calcul par éléments finis Cast3M (l'annexe A décrit la méthode d'implantation numérique), est utilisée pour simuler et analyser les essais de traction circonférentielle sur anneaux usinés réalisés dans le cadre du programme PROMETRA.

Chapitre 3. Ce chapitre est dédié à la caractérisation du comportement, de l'endommagement et de la rupture des gaines en Zircaloy–4 détendu non irradiées hydrurées de 0 à 1200 ppm (hydrures répartis uniformément orientés dans le plan circonférentiel–axial du tube). Les influences de la température, la direction de sollicitation, l'état de contraintes et de déformations et la teneur en

hydrogène sont étudiées. Des essais de traction axiale, traction circonférentielle, expansion due à la compression et traction plane circonférentielle sont réalisés à 25 °C, 350 °C et 480 °C pour étudier les propriétés élastoplastiques anisotropes et la rupture du matériau. Un modèle est proposé pour décrire le comportement viscoplastique anisotrope du matériau. Une technique de corrélation d'images numériques 2D est employée pour caractériser les champs de déformations locaux des éprouvettes. Les mécanismes d'endommagement et les modes de rupture des éprouvettes sont identifiés d'après les surfaces et les profils de rupture en fonction des conditions de sollicitation et de la teneur en hydrogène. Les cinétiques d'endommagement lié à la rupture des hydrures à température ambiante sont quantifiées à partir d'observations microscopiques.

Les plans des éprouvettes sont donnés en annexe B. Les moyens et les méthodes expérimentales utilisés sont décrits en annexe C. Le lecteur est invité à se rapporter à l'annexe D pour plus de détails sur l'analyse, relativement délicate, des essais spécifiques réalisés durant cette étude. Les principaux résultats des essais sont rassemblés en annexe E. La méthode mise en oeuvre pour quantifier l'endommagement lié à la rupture des hydrures est exposée en annexe F. En annexe G, le modèle proposé dans ce chapitre pour décrire le comportement mécanique du matériau vierge ou hydruré et le modèle développé au chapitre 2 pour le matériau vierge ou irradié en REP sont utilisés conjointement pour comparer les effets respectifs de l'hydrogène, la fluence et les conditions d'irradiation. Quelques résultats d'essais complémentaires relatifs à l'anisotropie de rupture du matériau sont présentés en annexe H.

Chapitre 4. Le dernier chapitre concerne la modélisation du comportement et de la rupture ductile du Zircaloy–4 détendu hydruré, caractérisés au chapitre 3. Le modèle est basé sur celui de Gurson modifié par Tvergaard et Needleman et étendu aux comportements viscoplastiques anisotropes. Le modèle intègre deux sources d'endommagement, respectivement liées aux précipités intermétalliques et aux hydrures. Le modèle décrit la germination, la croissance et la coalescence des cavités. Les paramètres du modèle, implanté dans Cast3M, sont identifiés à partir des résultats des essais mécaniques et des cinétiques d'endommagement mesurées expérimentalement. La méthode d'implantation numérique du modèle dans Cast3M est décrite en annexe A. Des simulations numériques des différents essais mécaniques sont présentées afin d'illustrer la capacité prédictive du modèle et d'approfondir la compréhension de l'endommagement du matériau et de la rupture des éprouvettes. Les maillages et les conditions aux limites des modèles par éléments finis sont détaillées en annexe I.

Chapitre 1

Etude bibliographique

Sommaire

1.1 Les alliages de zirconium 12
1.1.1 Généralités et microstructure du Zircaloy–4 vierge 12
1.1.2 Evolutions microstructurales en réacteur 15
1.1.3 Modes de déformation plastique 21
1.1.4 Comportement mécanique 23
1.1.5 Endommagement et rupture 32
1.2 Les accidents d'injection de réactivité 50
1.2.1 Déroulement 50
1.2.2 Rupture par interaction mécanique pastille–gaine 55
1.2.3 Essais de caractérisation et critères de rupture 59
1.3 Synthèse 63

Ce premier chapitre présente, sans prétention d'exhaustivité, une revue bibliographique sur les principales caractéristiques (métallurgiques et mécaniques) des alliages de zirconium et sur le déroulement et les conséquences des accidents d'injection de réactivité.

1.1 Les alliages de zirconium

1.1.1 Généralités et microstructure du Zircaloy–4 vierge

Le zirconium, élément chimique de numéro atomique 40, présente deux formes allotropiques (Partridge, 1967) :

- la phase α, stable à basse température ($T < 863\,^{\circ}\mathrm{C}$, c'est-à-dire dans le domaine de fonctionnement du réacteur) et de structure cristalline hexagonale compacte ($a = 0.323\,\mathrm{nm}$ et $c/a = 1.594$ à température ambiante) ;
- la phase β, cubique centrée ($a = 0.361\,\mathrm{nm}$), stable à haute température ($T > 863\,^{\circ}\mathrm{C}$) jusqu'à la température de fusion ($T_f = 1855\,^{\circ}\mathrm{C}$).

Dans la mesure où ce travail porte quasi–exclusivement sur l'étude du matériau aux températures inférieures à la température de changement de phase, cette synthèse bibliographique ne concerne que les alliages de zirconium en phase α. Le Zircaloy–4 (Zy–4) est actuellement l'alliage de zirconium le plus utilisé pour les gaines des crayons combustibles des REP français [1]. Néanmoins, de nouveaux alliages de zirconium, dont la plupart contiennent un ajout de Niobium (M5$^{\mathrm{TM}}$, alliage Zr–1%Nb–O optimisé développé par AREVA-NP ; ZIRLO$^{\mathrm{TM}}$, alliage Zr–1%Nb–1%Sn–0.1%Fe développé par Westinghouse Electric Company), commencent à être introduits dans les gestions actuelles. Le choix des alliages de zirconium pour le gainage du combustible est principalement lié à la conjonction de leur très faible absorption des neutrons thermiques, leur bonne résistance mécanique à chaud et leur bonne résistance à la corrosion par l'eau à haute température. Les principaux éléments d'alliages du Zircaloy–4 sont l'étain, le fer, le chrome et l'oxygène ; la composition chimique du matériau est indiquée dans le tableau 1.1.

Tableau 1.1 – Composition chimique du Zircaloy–4 (% massique).

	Sn	Fe	Cr	O	Zr
Norme ASTM B 350.90	1.2–1.7	0.18–0.24	0.07–0.13	0.1–0.14	bal.
Haut étain (ancien standard)	1.40	0.20	0.10	0.12	bal.
Bas étain	1.26	0.21	0.11	0.12	bal.

Dans la phase Zr–α, l'étain et l'oxygène sont en solution solide, respectivement en position substitutionnelle et interstitielle. L'étain améliore les caractéristiques mécaniques du matériau (Kaufmann and Baroch, 1974; Hong et al., 1996). Néanmoins,

[1] Les gaines des crayons combustibles des réacteurs à eau bouillante – technologie qui n'est pas utilisée en France – sont principalement en Zircaloy–2, alliage Zr–1.5%Sn–0.15%Fe–0.05%Ni–0.1%Cr recristallisé.

parce qu'il dégrade la résistance à la corrosion de l'alliage, sa teneur est limitée. L'oxygène améliore considérablement la résistance mécanique de l'alliage sans nuire à sa tenue à la corrosion (Kelly and Smith, 1973; Ruano and Elssner, 1975; Hong et al., 1996). Jusqu'à 800 °C, le fer et le chrome sont très peu solubles dans le Zr–α (Charquet et al., 1989; Toffolon-Masclet et al., 2008). Dans le Zircaloy–4, ils précipitent sous forme de phases de Laves $Zr(Fe,Cr)_2$, essentiellement de structure C14 hexagonale compacte ($a = 0.5107\,\text{nm}$, $c = 0.8279\,\text{nm}$). Généralement, le rapport des concentrations Fe/Cr est d'environ 2–3 pour le Zircaloy–4 (Charquet et al., 1989; Erwin et al., 2001). Ces précipités intermétalliques, dont la taille moyenne est d'environ 200 nm sont répartis aléatoirement dans la matrice ou aux joints de grains (figure 1.1). Ils améliorent la résistance à la corrosion de l'alliage.

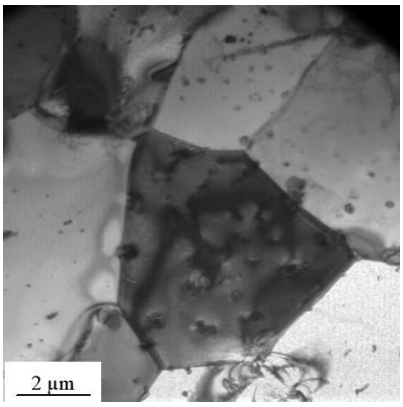
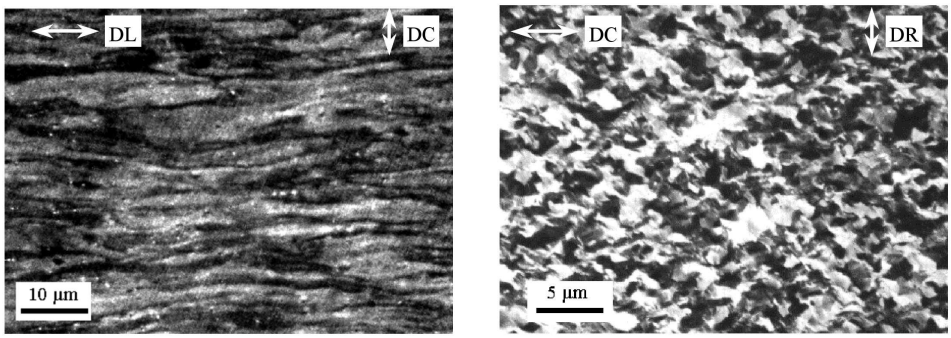


Figure 1.1 – Précipités $Zr(Fe,Cr)_2$ intergranulaires et intragranulaires dans du Zircaloy–4 recristallisé (Serres, 2008).

Après leur mise en forme par laminage à froid au pas de pèlerin, les tubes de gainage subissent un traitement de détentionnement qui consiste à porter le matériau à 450–500 °C pendant quelques heures afin de relaxer l'essentiel des contraintes internes. Ce traitement ne restaure que partiellement l'écrouissage du matériau, sans recristallisation [2]. La microstructure est donc très proche de celle obtenue après la mise en forme du matériau, à savoir des grains très allongés dans la direction de laminage du tube (environ 10–20 μm selon l'axe du tube et 2–5 μm suivant les deux autres directions, figure 1.2) et une densité de dislocations de type $\langle a \rangle$ et $\langle c + a \rangle$ très élevée.

En raison du procédé de mise en forme des tubes et de l'anisotropie plastique des cristaux de Zr–α (maille hexagonale), les tubes de gainage en Zircaloy–4 détendu affichent une texture cristallographique marquée : les axes $\langle c \rangle$ de la maille hexagonale sont préférentiellement inclinés à $\pm$ 30–40° de la direction radiale du tube dans le

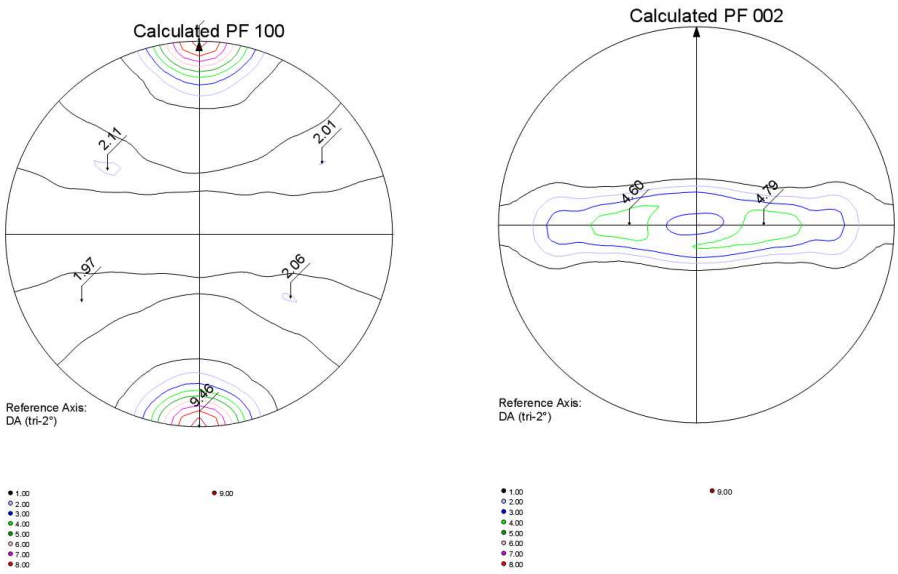
[2] La recristallisation (traitement thermique de quelques heures à environ 600 °C) conduit à la formation de grains équiaxes, plus gros que dans l'état détendu, et élimine la majorité de la structure des dislocations. L'état détendu confère au matériau une résistance mécanique élevée tandis que l'état recristallisé améliore sa résistance au fluage. Ainsi, dans le cas du Zircaloy–4, l'état détendu est utilisé pour les gaines des crayons combustibles et l'état recristallisé est employé pour les tubes guides qui servent à guider les barres de contrôle.



(a) (b)

Figure 1.2 – Microstructure des gaines en Zircaloy–4 détendu dans les plans (a) axial–circonférentiel et (b) circonférentiel–radial (Fandeur, 2001).

plan radial–circonférentiel et les directions $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ sont majoritairement orientées selon la direction de laminage (direction axiale) (figure 1.3) (Limon et al., 1995; Delobelle et al., 1996; Schäffler et al., 2000; Murty and Charit, 2006).



(a) (b)

Figure 1.3 – Texture des gaines en Zircaloy–4 détendu : figures de pôle (a) plans prismatiques $\{10\bar{1}0\}$, (b) plans de base $\{0002\}$ (direction horizontale : direction circonférentielle du tube, direction verticale : direction axiale) (Racine, 2005).

1.1.2 Evolutions microstructurales en réacteur

La microstructure des gaines évolue durant leur séjour en réacteur, sous les effets conjugués de l'irradiation et de l'oxydation par l'eau du circuit primaire qui libère de l'oxygène et de l'hydrogène dans le métal. Ces effets sont croissants en fonction du taux de combustion.

a) Dommage d'irradiation

L'évolution microstructurale des alliages de zirconium sous irradiation est essentiellement liée aux collisions élastiques entre les particules incidentes et les atomes du métal. Lors d'une collision élastique avec un neutron rapide[3], les atomes du métal peuvent être éjectés de leur site cristallin et ainsi créer une paire lacune–interstitiel. L'énergie alors transférée à l'atome éjecté est suffisante pour déplacer d'autres atomes, qui à leur tour peuvent en déplacer d'autres ; ce phénomène en chaîne est appelé *cascade de déplacements d'atomes*[4]. Cette cascade génère une zone riche en lacunes et une zone périphérique riche en interstitiels. Ces défauts ponctuels évoluent rapidement et leur agglomération conduit à la formation de défauts linéaires sous forme de boucles de dislocation lacunaires et interstitielles.

On pourra par exemple se référer aux synthèses très complètes de Northwood (1977), Northwood et al. (1979), Griffiths (1988), Lemaignan and Motta (1994) et Adamson (2000) pour de plus amples informations sur les effets de l'irradiation sur la microstructure des alliages de zirconium. En résumé, les défauts d'irradiation sont essentiellement des boucles lacunaires ou interstitielles (diamètre compris entre 2 et 10 nm) de vecteur de Burgers $\langle a \rangle = 1/3 \langle 11\bar{2}0 \rangle$ (figure 1.4). Des boucles de dislocations lacunaires à composantes $\langle c \rangle$ (diamètre de l'ordre de 100 nm) de vecteur de Burgers $1/6 \langle 20\bar{2}3 \rangle$ apparaissent également pour des fluences supérieures à environ $3 \cdot 10^{25}\,\mathrm{n.m^{-2}}$. La densité et la taille des boucles augmentent avec la fluence. Cette augmentation sature à partir d'une fluence d'environ $0.5 - 5 \cdot 10^{25}\,\mathrm{n.m^{-2}}$ ($E > 1\,\mathrm{MeV}$). La taille des boucles augmente avec la température d'irradiation tandis que leur densité diminue. Dans la mesure où la microstructure du matériau irradié est hors équilibre, un recuit réalisé à une température supérieure à la température d'irradiation restaure les défauts d'irradiation. Le recuit est d'autant plus efficace que sa température est élevée par rapport à la température d'irradiation.

L'irradiation modifie également l'état de précipitation (structure, composition chimique et taille des précipités) du matériau : dans le Zircaloy–4, les précipités de

[3]Le taux d'irradiation dépend de l'énergie des particules incidentes E (en eV). En général, par convention, seul le flux de neutrons rapides qui possèdent une énergie supérieure à 1 MeV est considéré lorsque l'on traite de l'irradiation des matériaux en REP.

[4]L'endommagement du matériau sous irradiation est en général quantifié par le nombre moyen de déplacement d'atomes (dpa). Pour un cycle de fonctionnement en REP, caractérisé par une fluence ϕ_t (nombre de neutrons par unité de surface ayant pénétrés dans le matériau sur la durée de l'irradiation) d'environ $2 \cdot 10^{25}\,\mathrm{n.m^{-2}}$, l'endommagement est de l'ordre de 4 dpa pour les alliages de zirconium.

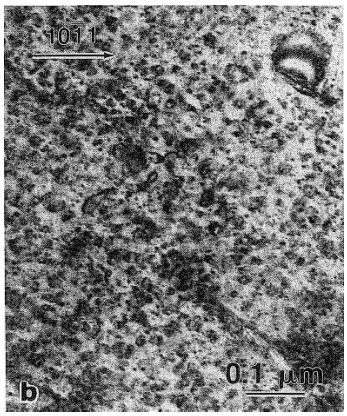


Figure 1.4 – Boucles de dislocations $\langle a \rangle$ dans du Zircaloy–4 irradié à 307 °C à 10^{25} n.m^{-2} (Griffiths et al., 1994).

phase de Laves sont progressivement amorphisés et/ou partiellement dissous (remise en solution du fer dans la matrice essentiellement) par l'irradiation (Gilbon and Simonot, 1994; Simonot, 1995; Motta et al., 1996; Garzarolli et al., 1996; Vizcaíno et al., 2008). L'amorphisation débute en périphérie des précipités et progresse vers leur centre linéairement avec la dose. La majorité des précipités sont totalement amorphisés et dissous après deux cycles en REP environ (selon de la taille des précipités).

Enfin, la texture cristallographique du matériau n'évolue pas de manière significative avec l'irradiation (Fandeur, 2001).

b) Oxydation

La réaction d'oxydation de la face externe de la gaine par l'eau du circuit primaire ($Zr+H_2O \rightarrow ZrO_2+4H$) libère de l'oxygène et de l'hydrogène dans le métal.

La concentration en oxygène dans le métal augmente donc avec le taux de combustion, par diffusion de l'oxygène présent à l'interface métal/oxyde ; Chung and Kassner (1998) ont mesuré une concentration de 2330 ppm dans une gaine en Zircaloy–4 irradiée à 28 GWj/t (à comparer aux 1200 ppm présents dans le matériau vierge).

La corrosion du matériau se traduit également par la formation d'une couche d'oxyde, la zircone (ZrO_2), à l'interface métal/eau (figure 1.5). Une accélération de la cinétique d'oxydation du Zircaloy–4 sous flux neutronique est observée pour les forts taux de combustion (supérieurs à 30–40 GWj/t). Cette accélération est principalement liée à la précipitation et l'accumulation d'hydrures à l'interface métal/oxyde, à la teneur en étain et à l'amorphisation et la dissolution des précipités de phase de Laves sous irradiation (Cheng et al., 1996; Huang et al., 1996; Blat et al., 2000; Bossis et al., 2005). Dans le Zircaloy–4, l'épaisseur de l'oxyde peut atteindre 100 μm après 5 cycles d'irradiation [5].

[5] Actuellement, un des critères de sûreté pour les gaines de crayons combustibles dans les REP

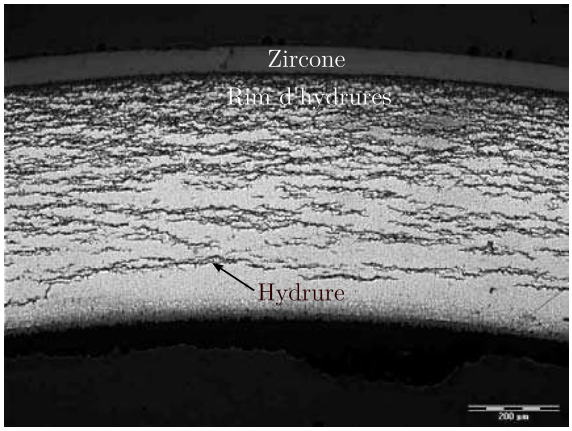


Figure 1.5 – Gaine en Zircaloy–4, irradiée durant 6 cycles en REP, présentant une couche d'oxyde externe, des hydrures et un rim d'hydrures (Bossis et al., 2005).

Le transfert de chaleur entre la gaine et le réfrigérant, et par conséquent la température de la gaine, sont affectés par la faible conductivité thermique de la couche de zircone (environ $2\,\mathrm{W.m^{-1}.K^{-1}}$, c'est-à-dire dix fois moins que le métal), aussi bien en conditions normales de fonctionnement que lors d'un transitoire de puissance. En conditions de fonctionnement normales, avec typiquement un flux de chaleur linéaire de $20\,\mathrm{kW.m^{-1}}$, la température moyenne de la gaine augmente d'environ 0.3 °C par micromètre de zircone externe. La vitesse d'oxydation est d'autant plus importante que la température de la gaine est élevée. Après 4 ou 5 cycles en réacteur, la couche de zircone, dense et adhérente à l'interface métal/oxyde, présente de nombreuses porosités à l'interface oxyde/eau au niveau des étages les plus oxydés. Des fissures circonférentielles apparaissent parfois à la frontière entre ces deux morphologies de zircone et peuvent conduire à la *desquamation* (détachement mécanique) de la couche externe poreuse (figure 1.6). Ainsi, la desquamation d'une couche d'oxyde de $100\,\mu\mathrm{m}$ peut engendrer un gradient de température de 30 °C entre les régions desquamées et non desquamées.

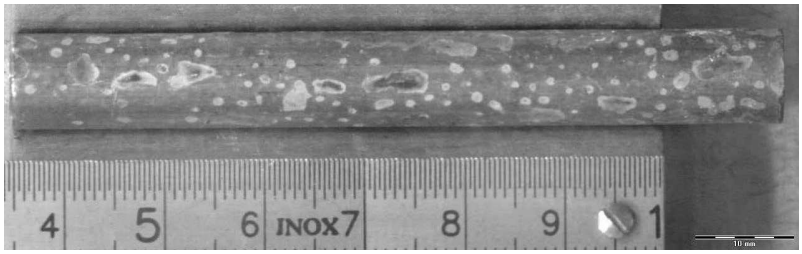


Figure 1.6 – Gaine en Zircaloy–4 irradiée durant 6 cycles et présentant des zones de zircone desquamée (Bossis et al., 2005).

impose que l'épaisseur de la couche d'oxyde n'excède pas $100\,\mu\mathrm{m}$.

c) Hydruration

Lors du processus d'oxydation du zirconium en réacteur, la réduction de l'eau libère de l'hydrogène dont la majeure partie est relâchée dans l'eau. Une faible partie (de 10 à 20% pour le Zircaloy–4) est néanmoins absorbée par le métal, après traversée de la couche externe de zircone. La solubilité de l'hydrogène dans les alliages de zirconium croît rapidement avec la température ; elle est quasiment nulle à température ambiante et vaut environ 125 ppm à 350 °C (Kearns, 1967; Kammenzind et al., 1996; Brachet et al., 2002). Elle augmente également légèrement avec l'irradiation (McMinn et al., 2000; Vizcaíno et al., 2002, 2007). Au–delà de la limite de solubilité de l'hydrogène, l'hydrogène précipite sous forme de plaquettes d'hydrures (figure 1.5). Des teneurs moyennes en hydrogène de 200–800 ppm sont couramment observées dans les gaines en Zircaloy–4 irradiées à environ 60 GWd/tU.

Deux phases d'hydrures stables sont habituellement observées dans les alliages de zirconium (Bradbrook et al., 1972; Northwood and Kosasih, 1983; Perovic et al., 1992) :

- les hydrures δ ($ZrH_{1.53}$ à $ZrH_{1.66}$), de structure cubique à faces centrées (a = 0.4773–04778 nm) et présents pour des teneurs en hydrogène modérées ;
- les hydrures ϵ ($ZrH_{1.66}$ à ZrH_2), présents pour des concentrations en hydrogène plus importantes et dont la structure est tétragonale à faces centrées (a = 0.4980 nm, c = 0.4445 nm).

Une phase d'hydrures métastable, γ, de structure quadratique face centrée (a = 0.4596 nm, c = 0.4969 nm), a également été observée pour de faibles concentrations en hydrogène (de l'ordre de 50 ppm) et des vitesses de refroidissement élevées (supérieures à 3 °C/min) (Nash et al., 1974). Plus récemment, une phase d'hydrures métastable, ζ, de structure hexagonale compacte (a = 0.33 nm, c = 1.029 nm), a été détectée (Zhao et al., 2007). En conditions normales de fonctionnement, la phase δ est largement prédominante dans la mesure où sa croissance est favorisée par des teneurs en oxygène supérieures à 1000 ppm, un refroidissement lent, et une teneur en hydrogène suffisante (supérieure à 100 ppm). La précipitation des hydrures δ s'accompagne d'une dilatation volumique du réseau cristallin d'environ 17% (Northwood and Kosasih, 1983).

Les hydrures « macroscopiques » (0.1–0.2 μm d'épaisseur et 2–10 μm de long) observés à faible grandissement (microscopie optique, MEB) sont issus de l'empilement, lorsque la teneur en hydrogène est suffisante, de plaquettes d'hydrures submicroniques (environ 0.01 μm d'épaisseur et 0.1 μm de long) parallèles entre elles (figure 1.7) (Westlake, 1968; Ells, 1968; Bradbrook et al., 1972; Perovic et al., 1983, 1992; Veleva et al., 2003). Pour plus de clarté, les premiers seront nommés *hydrures* et les secondes *plaquettes* dans la suite. En plus des hydrures « macroscopiques », Chung (2000) et Chung et al. (2002) ont observé au MET dans des gaines en Zircaloy–4 fortement irradiées ($5.9 \cdot 10^{25}$ n.m^{-2}) des hydrures « microscopiques » (0.02–0.08 μm d'épaisseur et 0.1–0.5 μm de long).

Le lieu de précipitation, la morphologie (taille, structure et espacement) et l'orientation des hydrures dépendent de nombreux facteurs, dont la concentration d'hydro-

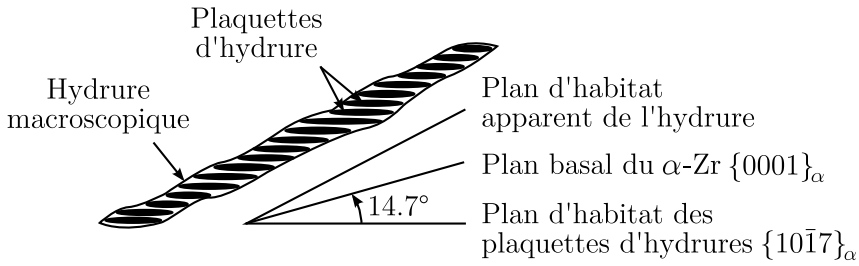


Figure 1.7 – Hydrure « macroscopique » issu de l'empilement de plaquettes d'hydrures submicroniques.

gène en solution, la température, la vitesse de refroidissement, l'état de contrainte et la texture et l'état métallurgique du matériau (détendu, recristallisé, ...) (Westlake, 1968; Ells, 1968, 1970; Perovic et al., 1992; Bai et al., 1994b, a; Kammenzind et al., 1996; Hong et al., 2002; Veleva et al., 2003; Hong and Lee, 2005; Une and Ishimoto, 2006).

Des précipitations aussi bien intra qu'intergranulaires ont été observées. Le lieu de germination des hydrures semble néanmoins influencé par le traitement thermique – qui affecte l'état de contrainte interne local dans les grains et aux joints de grains – subi par le matériau après laminage : la précipitation des hydrures dans le matériau recristallisé est plus intergranulaire que celle du matériau détendu (Bai et al., 1994b; Veleva et al., 2003; Une and Ishimoto, 2006).

L'orientation des plaquettes dépend de l'orientation cristallographique des grains tandis que celle des hydrures dépend de l'orientation des joints de grain et des déformations et contraintes locales – fonctions de l'état métallurgique du matériau et des contraintes externes appliquées – exercées sur le plan de précipitation des plaquettes. Plusieurs plans d'habitat des hydrures δ ont été observés dans les alliages de zirconium en phase α : le plan prismatique $\{10\bar{1}0\}$ (Ells, 1968), le plan pyramidal $\{10\bar{1}1\}$ (Chung et al., 2002; Une and Ishimoto, 2006), le plan basal $\{0001\}$ (Perovic et al., 1992; Chung, 2000; Chung et al., 2002; Neogy et al., 2003; Veleva et al., 2003; Une and Ishimoto, 2006) et le plan $\{10\bar{1}7\}$ (Westlake, 1968; Ells, 1968; Chung, 2000; Chung et al., 2002; Une and Ishimoto, 2006). Dans le Zircaloy–4 non irradié non contraint et le Zircaloy–4 irradié en REP en conditions normales de fonctionnement, le plan d'habitat préférentiel des plaquettes δ est le plan $\{10\bar{1}7\}$, situé à 14.7° du plan de base du α–Zr. Les hydrures « microscopiques » observés par Chung et al. (Chung, 2000; Chung et al., 2002) dans des gaines en Zircaloy–4 fortement irradiées précipitent dans le plan $\{0001\}$. Dans la mesure où la texture des gaines en Zircaloy–4 détendu est telle que la densité maximale d'axes $\langle c \rangle$ se trouve à ±30–40° de la direction radiale, les hydrures précipitent préférentiellement dans le plan circonférentiel-axial, parallèlement aux parois du tube (*hydrures circonférentiels*) ; à l'échelle supérieure, les hydrures forment des réseaux en « zig–zag » (figures 1.5 et 1.8).

Les hydrures ont tendance à précipiter perpendiculairement à la contrainte principale (Ells, 1970; Chung et al., 2002; Singh et al., 2004; Hong and Lee, 2005; Chu

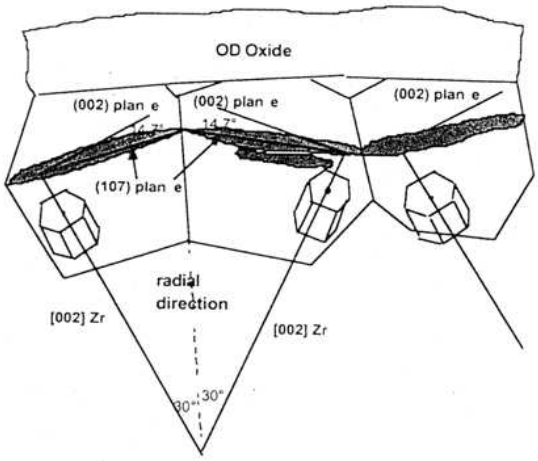


Figure 1.8 – Orientation des hydrures « macroscopiques » dans une gaine en Zircaloy (Chung et al., 2002).

et al., 2008). Des hydrures perpendiculaires aux parois du tube, appelés *hydrures radiaux*, peuvent précipiter lorsque la gaine est refroidie sous contrainte majoritairement circonférentielle à partir d'une température pour laquelle l'hydrogène est en solution solide [6] (figure 1.9). Ce phénomène peut par exemple intervenir lors de la phase de refroidissement succédant aux éventuels transitoires de puissance en réacteur ou lors de l'entreposage du combustible usagé encore chaud et pressurisé.

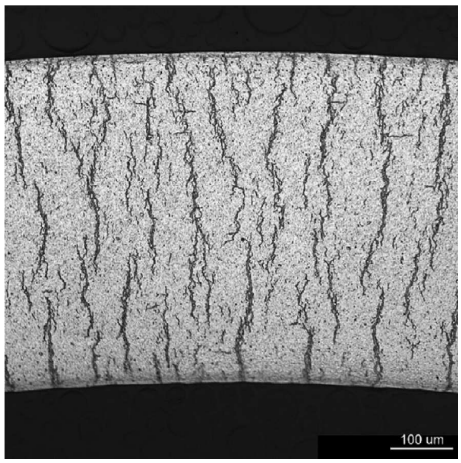


Figure 1.9 – Hydrures radiaux dans une gaine en Zircaloy–4 hydrurée à 230 ppm (Chu et al., 2007).

L'hydrogène diffuse vers les zones où la concentration en hydrogène est la plus faible, la contrainte est la plus élevée et la température est la plus basse (Northwood and Kosasih, 1983). Le gradient de température à travers l'épaisseur de la gaine — imposé par la pastille de combustible en périphérie interne (environ 400 °C) et l'eau

[6] La formation d'hydrures radiaux est plus aisée dans les alliages recristallisés que dans les alliages détendus.

de refroidissement en périphérie externe (environ 350 °C) — conduit l'hydrogène à migrer par thermo–diffusion vers la paroi externe du tube, plus froide. L'accumulation et la précipitation de l'hydrogène [7] aboutissent alors à la formation d'une couche externe dense en hydrures (30 à 80 μm d'épaisseur et concentration en hydrogène pouvant atteindre plusieurs milliers de ppm (Bossis et al., 2005; Raepsaet et al., 2008)), très étendue axialement, appelée *rim* d'hydrures (figure 1.5).

La desquamation de la couche de zircone externe, couramment observée pour les gaines fortement irradiées, génère une zone froide localisée vers laquelle migre l'hydrogène dissous dans le Zr–α des régions chaudes avoisinantes. La structure résultante, appelée *blister* d'hydrures, présente une forme lenticulaire, typiquement de quelques millimètres de diamètre, composée d'hydrure de zirconium quasiment pur [8] (figure 1.10).

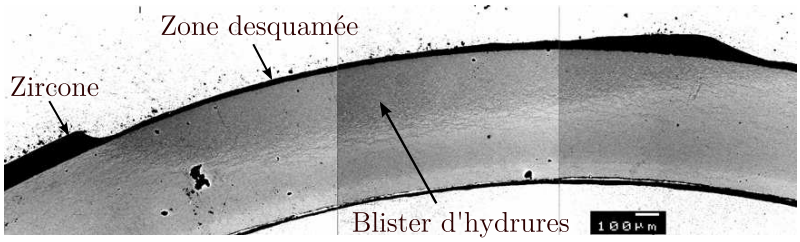


Figure 1.10 – Gaine en Zircaloy–4, irradiée durant 6 cycles en REP, présentant un blister d'hydrures sous une zone de zircone desquamée (Bossis et al., 2005).

1.1.3 Modes de déformation plastique

Les matériaux à structure hexagonale compacte se déforment plastiquement par *glissement des dislocations* et *maclage* (Tenckhoff, 1988, 2005). Les modes de déformation activés dépendent notamment de la température, du niveau de déformation, de la vitesse de déformation, de la direction de sollicitation, de l'irradiation et des éléments d'alliages.

Le glissement des dislocations peut se faire suivant (Tenckhoff, 1988, 2005) :
- quatre plans : basal (B), prismatique (P), pyramidal de première espèce (π_1) et pyramidal de seconde espèce (π_2) (figure 1.11) ;
- deux directions : $\langle a \rangle = 1/3 \langle 11\bar{2}0 \rangle$ et $\langle c+a \rangle = 1/3 \langle 11\bar{2}3 \rangle$).

Ainsi, cinq familles de glissement sont susceptibles d'être activées :
- $B \langle a \rangle$ (3 systèmes de glissement) ;
- $P \langle a \rangle$ (3 systèmes de glissement) ;
- $\pi_1 \langle a \rangle$ (6 systèmes de glissement) ;
- $\pi_1 \langle c+a \rangle$ (12 systèmes de glissement) ;

[7] La limite de solubilité de l'hydrogène est plus faible en paroi externe qu'en paroi interne de la gaine du fait du gradient de température.

[8] La concentration en hydrogène dans les blisters d'hydrures avoisine la concentration maximale des hydrures δ qui est évaluée à environ 16000 ppm.

– $\pi_2 \langle c+a \rangle$ (6 systèmes de glissement).

Dans les alliages de zirconium non irradiés, le glissement principal est le glissement prismatique $P \langle a \rangle$, quelles que soient la température et la direction de sollicitation (Tenckhoff, 1988; Regnard and Lemaignan, 1995; Geyer, 1999; Tenckhoff, 2005). Le glissement pyramidal $\pi_1 \langle a \rangle$ est le système secondaire, qui permet d'accommoder la déformation selon l'axe $\langle a \rangle$ de la maille hexagonale, le plus actif. Le glissement basal $B \langle a \rangle$ est plus difficilement activé. Dans le Zircaloy–4 recristallisé, ces systèmes de glissement secondaires, qui sont plus sensibles que le glissement prismatique à la vitesse de déformation, ne sont activés qu'à partir de 4% de déformation plastique à température ambiante et 1% à 350 °C (Geyer, 1999). Le glissement secondaire $\pi_1 \langle c+a \rangle$ est activé, d'autant plus que la température est élevée, lorsqu'il est nécessaire d'accomoder la déformation selon l'axe $\langle c \rangle$. L'irradiation modifie les modes de glissement principaux du matériau : les cissions critiques des différents modes se rapprochent de telle sorte que le glissement basal, très peu actif sur le matériau non irradié, soit favorisé dans le matériau irradié (Regnard et al., 2002; Onimus et al., 2005, 2006). L'activation privilégiée du glissement basal n'est toutefois observée que lors d'essais de traction transverse et de pressurisation interne ; seuls les glissements prismatiques et pyramidaux sont observés en traction axiale (Onimus et al., 2005). Par ailleurs, un phénomène de *canalisation des dislocations* est observé dans les alliages irradiés (Rosenbaum et al., 1974; Lee and Adamson, 1977; Adamson and Bell, 1985; Garde, 1989; Regnard et al., 2002; Onimus et al., 2004) : pour une contrainte suffisante, les boucles de dislocations créées par l'irradiation sont annihilées par le glissement des dislocations de déformation, créant alors une zone adoucie vierge de défauts d'irradiation dans laquelle le glissement des dislocations suivantes se fait préférentiellement. Ce mécanisme donne lieu à une localisation de la déformation plastique à l'échelle du grain.

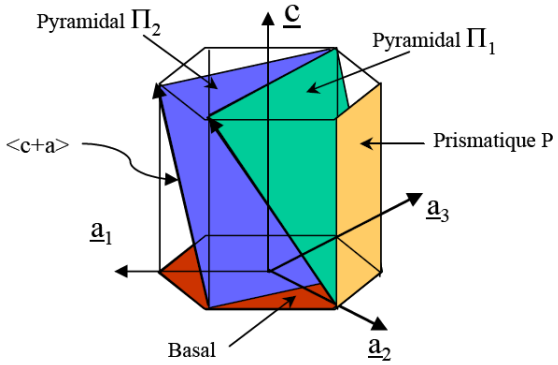


Figure 1.11 – Systèmes de glissement de la maille hexagonale compacte du zirconium en phase α (Onimus, 2003).

Dans les alliages de zirconium, le maclage n'est observé qu'à basse température pour des déformations relativement importantes (supérieures à 3%) (Tenckhoff, 1988; Regnard and Lemaignan, 1995; Geyer, 1999; Tenckhoff, 2005). Il permet d'accommoder la déformation suivant l'axe $\langle c \rangle$ de la maille hexagonale lorsque les glissements cristallographiques seuls, limités en nombre et majoritairement restreints

à la déformation dans la direction $\langle a \rangle$, ne sont pas suffisants. L'apparition du maclage est favorisée par les vitesses et les niveaux de déformation élevés (Tenckhoff, 1988; Geyer, 1999; Tenckhoff, 2005). En revanche, le maclage disparaît au profit du glissement des dislocations en présence d'éléments interstitiels, tels que l'oxygène, ou lorsque la température augmente.

1.1.4 Comportement mécanique

Les alliages de zirconium ont un comportement élastoviscoplastique anisotrope. Plus précisément, la contrainte d'écoulement évolue avec la déformation plastique (écrouissage), la vitesse de déformation (sensibilité de la contrainte à la vitesse de déformation) et la direction de sollicitation (anisotropie). Ces propriétés dépendent notamment de la température, l'irradiation, la teneur en hydrogène, l'état métallurgique et la composition chimique du matériau. Cette partie dresse une synthèse bibliographique des principales propriétés abordées durant notre étude ; les propriétés telles que la croissance sous irradiation, le fluage d'irradiation ou la restauration par exemple ne sont pas traitées.

a) Résistance mécanique

D'une manière générale, la contrainte d'écoulement des alliages de zirconium diminue avec la température (figure 1.12) (Kelly and Smith, 1973; Thorpe and Smith, 1978; Bauer and Lowry, 1978; Derep et al., 1979; Lowry et al., 1981; Yi et al., 1992; Lee et al., 2001, 2007; Elbachiri et al., 2003; Kim et al., 2005; Desquines et al., 2005b; Cazalis et al., 2007). Néanmoins, un « plateau athermique » est parfois observé, en particulier dans les alliages recristallisés, entre 200 °C et 450 °C selon la vitesse de déformation (figure 1.13). Ce palier est attribué au phénomène de *vieillissement dynamique*, lié aux interactions entre les dislocations mobiles et les atomes d'oxygène. Dans certains cas, ce phénomène est associé à des discontinuités périodiques caractéristiques de l'effet Portevin le Châtelier, résultant d'une valeur négative de la sensibilité de la contrainte à la vitesse de déformation. Les effets du vieillissement disparaissent avec l'irradiation, en raison du piégeage des atomes d'oxygène par les lacunes (Veevers and Rotsey, 1968; Kelly and Smith, 1973). Pour plus d'informations sur le phénomène de vieillissement dynamique dans les alliages de zirconium, on pourra se référer aux revues bibliographiques de Prioul (1995) et Graff (2006).

L'irradiation conduit à un fort durcissement du matériau, qui se traduit par une augmentation de la contrainte d'écoulement, due aux boucles de dislocations qui entravent le glissement des dislocations de déformation (figures 1.12 et 1.14) (Higgy and Hammad, 1972; Rieger and Lee, 1974; Bauer and Lowry, 1978; Northwood et al., 1979; Lowry et al., 1981; Yasuda et al., 1987; Tomimura et al., 1996; Regnard et al., 2002; Onimus et al., 2005, 2006; Christodoulou et al., 2007). Conformément à l'évolution de la densité des boucles de dislocations $\langle a \rangle$, le durcissement d'irradiation

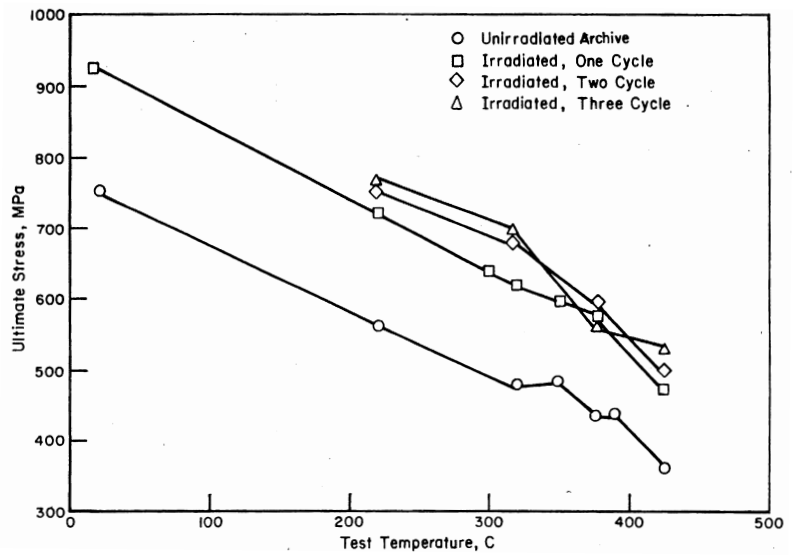


Figure 1.12 – Evolution en fonction de la température de la contrainte maximale mesurée en traction axiale (vitesse de déformation $0.025\,\mathrm{min}^{-1}$) sur des échantillons de gaines en Zircaloy–4 non irradiées et irradiées durant 1, 2 et 3 cycles en REP (Lowry et al., 1981).

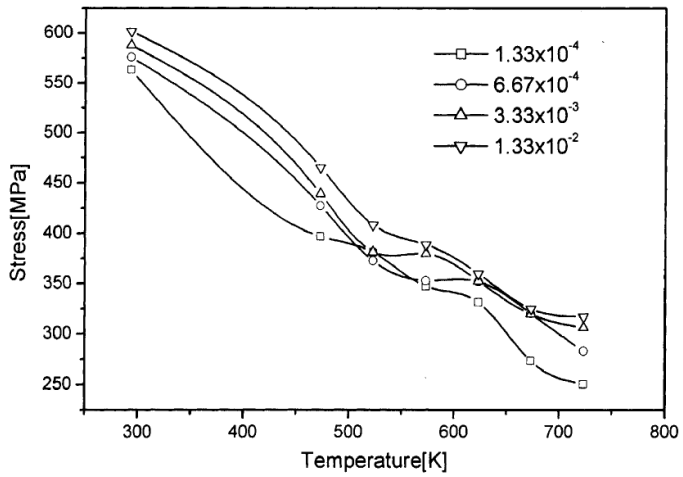


Figure 1.13 – Limite d'élasticité du Zircaloy–4 non irradié en fonction de la température à différentes vitesses de déformation (Lee et al., 2001).

sature rapidement pour des fluences supérieures à $0.5-5\cdot10^{25}$ n.m^{-2}. L'amplitude du durcissement d'irradiation diminue lorsque la température d'irradiation augmente (Christodoulou et al., 2007) : la recombinaison des défauts ponctuels est facilitée par les températures d'irradiation élevées. Lorsqu'il est soumis à des températures supérieures à sa température d'irradiation, le matériau retrouve progressivement – d'autant plus rapidement que la température est élevée par rapport à la température d'irradiation – le comportement du matériau non irradié, du fait de la restauration des défauts d'irradiation (figure 1.15) (Bauer and Lowry, 1978; Lowry et al., 1981; Adamson and Bell, 1985; Tomimura et al., 1996; Ribis et al., 2006; Nakatsuka et al., 2007).

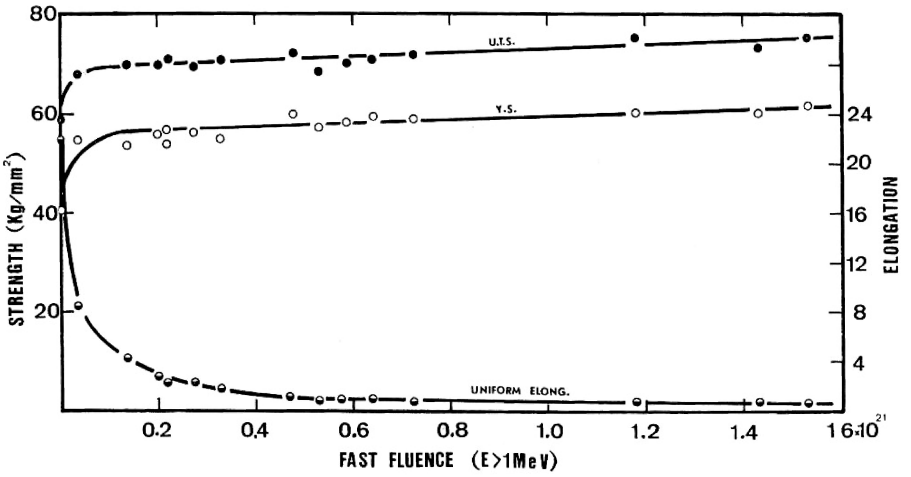


Figure 1.14 – Evolution en fonction de la fluence (en n.cm^{-2}) de la limité d'élasticité, de la contrainte maximale et de l'allongement réparti (en %) du Zircaloy–4 irradié à 335 °C (Higgy and Hammad, 1972).

Enfin, Berat-Robert et al. (Berat-Robert et al., 2000; Berat-Robert, 2001) ont constaté que le comportement mécanique du Zircaloy–4 recristallisé sollicité en traction axiale à 400 °C, et dans une moindre mesure en pression interne, est légèrement renforcé (augmentation de la résistance mécanique et diminution de l'allongement réparti) par la couche d'oxyde (jusqu'à une épaisseur de 30 μm).

b) Ecrouissage

Les natures isotrope et cinématique (effet Bauschinger observé durant des essais cycliques de traction/compression) de l'écrouissage des alliages de zirconium ont été mises en évidence (Delobelle et al., 1996; Prat et al., 1998; Geyer, 1999; Schäffler et al., 2000; Onimus et al., 2006). Un coefficient d'écrouissage moyen de 0.07 à température ambiante et de 0.06 à 300 °C a été déterminé, à partir d'essais de traction circonférentielle, par Link et al. (1998) et Daum et al. (2002b) pour le Zircaloy–4 détendu. L'allongement réparti décroît légèrement en fonction de la température (figure 1.16).

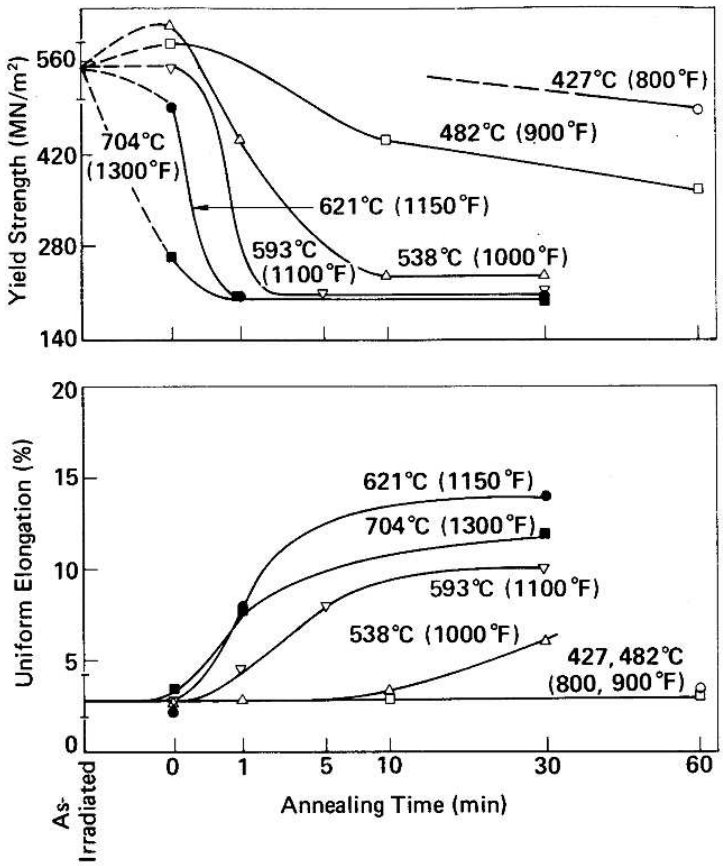


Figure 1.15 – Influence de la température et du temps de recuit sur la limite d'élasticité et l'allongement réparti de gaines en Zircaloy–4 irradiées à environ 350 °C (fluence de $2.3 \cdot 10^{25}$ n.m^{-2}) testées en traction axiale à 371 °C (vitesse de déformation de 0.025 /min) (Bauer and Lowry, 1978).

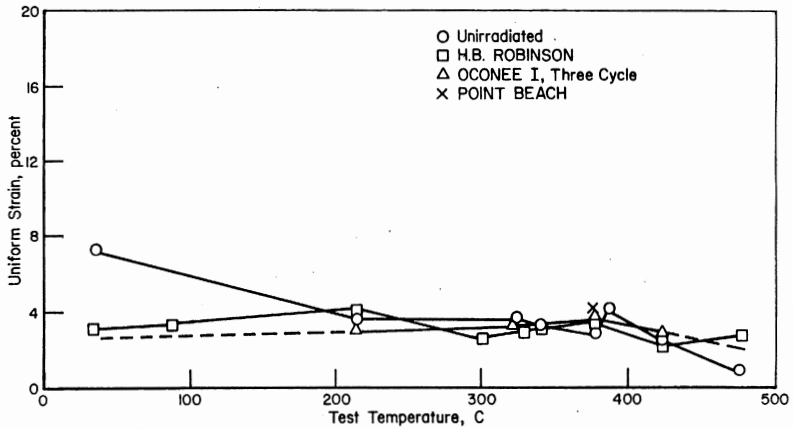


Figure 1.16 – Evolution en fonction de la température de l'allongement réparti mesuré en traction axiale (vitesse de déformation de 0.025 /min) sur des échantillons de gaines en Zircaloy–4 non irradiées et irradiées (Lowry et al., 1981).

L'écrouissage du matériau irradié est – du moins dans le cas du Zircaloy–2, du Zircaloy–4 et du M5 recristallisés – plus important que celui du matériau non irradié en début de plasticité (Yasuda et al., 1987; Onimus et al., 2005, 2006), en raison d'une augmentation de l'écrouissage cinématique avec l'irradiation. Le taux d'écrouissage du matériau irradié décroît rapidement en fonction de la déformation plastique et atteint, pour une même déformation plastique, des valeurs plus faibles que celui du matériau non irradié, qui décroît plus lentement. De nombreux auteurs ont constaté une diminution de l'allongement réparti avec l'irradiation (figures 1.14 et 1.16) (Higgy and Hammad, 1972; Rieger and Lee, 1974; Rosenbaum et al., 1974; Bauer and Lowry, 1978; Derep et al., 1979; Lowry et al., 1981; Yasuda et al., 1987; Garde, 1989; Garde et al., 1996; Tomimura et al., 1996; Adamson, 2000; Regnard et al., 2002). Ce phénomène est associé à une localisation précoce de la déformation dans des bandes de cisaillement macroscopiques étroites.

Un renforcement du matériau par les hydrures (limite d'élasticité peu affectée et augmentation linéaire de la contrainte maximale en fonction de la teneur en hydrogène) est couramment observé à température ambiante lorsque les hydrures sont parallèles à la direction principale de sollicitation (figure 1.17) (Bai et al., 1994b; Prat et al., 1998; Wisner and Adamson, 1998; Bouffioux and Rupa, 2000; Grange et al., 2000a; Arsène et al., 2003a; Yagnik et al., 2004; Kim et al., 2007a). Ce renforcement est souvent attribué à un effet composite, les hydrures étant plus durs que la matrice à cette température (Prat et al., 1998; Yamanaka et al., 1999; Bouffioux and Rupa, 2000; Grange et al., 2000a; Arsène et al., 2003a). Une diminution de l'allongement réparti a également été constatée lorsque la teneur en hydrogène augmente. L'influence des hydrures sur le comportement mécanique du matériau décroît avec la température (Arsène et al., 2003a; Yagnik et al., 2004; Kim et al., 2007a). Il a été montré que le module d'Young et la limite d'élasticité d'hydrures de zirconium solides δ évoluent de manière significative avec la température (figure 1.18) (Barraclough and Beevers, 1969; Puls et al., 2005).

L'hydrogène en solution solide renforce la résistance au fluage du Zircaloy–4 détendu (Bouffioux and Rupa, 2000) tandis qu'il accentue la vitesse de fluage du Zircaloy–4 recuit (Rupa et al., 2002). L'adoucissement du matériau par l'hydrogène en solution solide, également observé par Yamanaka et al. (2004), est attribué à une diminution de l'ancrage des dislocations par les atomes interstitiels (oxygène), une augmentation de la mobilité des dislocations (Rupa et al., 2002) et/ou une réduction de l'énergie de liaison des atomes de zirconium (Yamanaka et al., 2004).

c) Sensibilité de la contrainte à la vitesse de déformation

La sensibilité de la contrainte à la vitesse de déformation est globalement positive (la contrainte d'écoulement augmente avec la vitesse de déformation) et croissante en fonction de la température (Kelly and Smith, 1973; Thorpe and Smith, 1978; Derep et al., 1979; Lowry et al., 1981; Yi et al., 1992; Lee et al., 2001, 2007; Elbachiri et al., 2003). Toutefois, un creux de sensibilité à la vitesse de déformation a été rapporté dans certaines conditions de température et de vitesse de déformation, en particulier

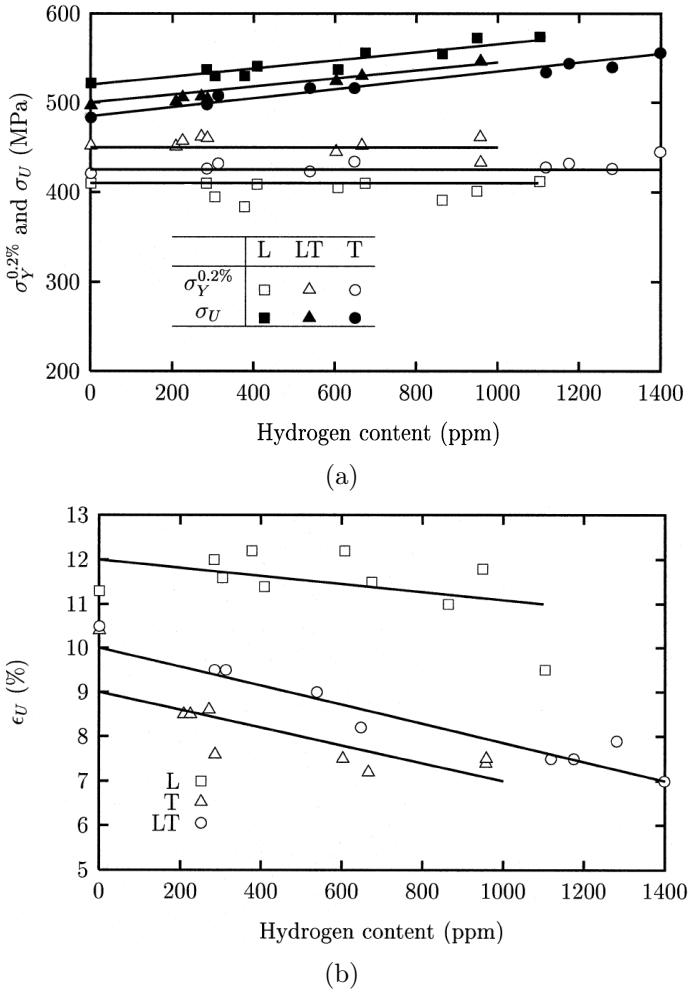
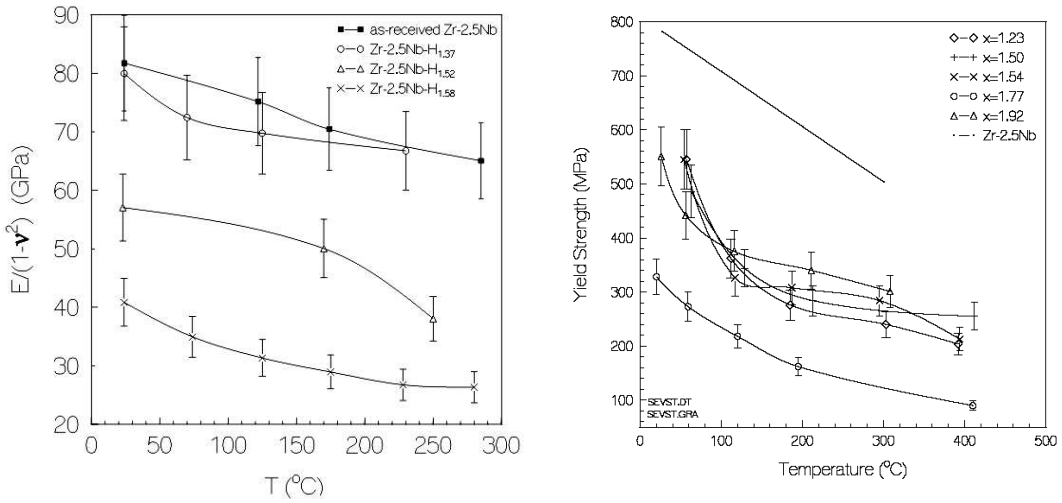


Figure 1.17 – (a) Influence de la teneur en hydrogène (hydrures parallèles aux parois des tôles) sur (a) la limite d'élasticité, la contrainte maximale et (b) l'allongement réparti du Zircaloy–4 recristallisé (sous forme de tôle) testé à température ambiante selon les directions longitudinale (L), transverse (T) et à 45° des directions L et T (Grange et al., 2000a).



(a) (b)

Figure 1.18 – Evolution en fonction de la température du (a) module d'Young apparent et de (b) la limite d'élasticité en compression d'hydrures de zirconium δ massifs de différentes compositions stoechiométriques sollicités en compression (Puls et al., 2005).

dans le cas des alliages recristallisés (figures 1.13 et 1.19). Cette « anomalie » est associée au phénomène de vieillissement dynamique. La sensibilité de la contrainte à la vitesse de déformation du Zircaloy–4 vierge et irradié diminue avec le niveau de contrainte (Delobelle et al., 1996; Geyer, 1999; Schäffler et al., 2000; Nam et al., 2002). Une augmentation avec l'irradiation, liée à l'activation du glissement basal, de la sensibilité de la contrainte à la vitesse de déformation a été observée à 350 °C par Onimus et al. (2006) dans des alliages de zirconium recristallisés. On peut également envisager que cette augmentation est liée à la disparition de l'effet de vieillissement dynamique avec l'irradiation.

d) Anisotropie plastique

La texture marquée du matériau et le faible nombre de systèmes de glissement autorisé par la maille hexagonale compacte confèrent au matériau un comportement mécanique anisotrope (figure 1.20) (Murty and Mahmood, 1991; Limon et al., 1995; Delobelle et al., 1996; Geyer, 1999; Schäffler et al., 2000; Grange et al., 2000a; Murty and Charit, 2006). Plus précisément, dans le cas d'une géométrie tubulaire, son comportement est orthotrope avec pour directions principales les directions radiale, circonférentielle et axiale du tube. L'anisotropie plastique du Zircaloy–4 évolue avec la température, en particulier au–delà de 300 °C (Limon et al., 1995; Schäffler, 1997; Murty and Charit, 2006). Une modification ou plus précisément une réduction de l'anisotropie avec l'irradiation a été observée vers 300 °C dans le Zircaloy recristallisé (Nakatsuka and Nagai, 1987; Mahmood et al., 1989; Murty and

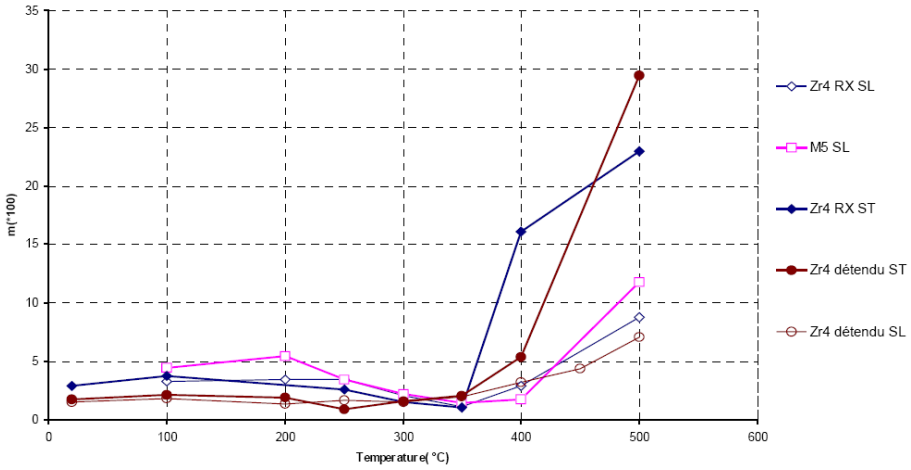


Figure 1.19 – Coefficient de sensibilité de la contrainte à la vitesse de déformation ($\times 100$), $m = \partial \ln \sigma / \partial \ln \dot{\epsilon}$, en fonction de la température pour le M5 et le Zircaloy–4 détendu et recristallisé testés en traction sens long (SL) et sens travers (ST) à $5 \cdot 10^{-5}\,\mathrm{s}^{-1}$ (Elbachiri et al., 2003).

Mahmood, 1991; Mahmood et al., 1992; Yagnik et al., 2005) et le Zircaloy–4 détendu (Bauer and Lowry, 1978; Fandeur, 2001; Yagnik et al., 2005) (figures 1.21 et 1.22). L'anisotropie mesurée lors d'essais de fluage évolue en fonction de la contrainte appliquée ; elle tend vers l'anisotropie obtenue lors d'essais d'écrouissage (vitesse de déformation imposée) lorsque le niveau de contrainte augmente (Limon et al., 1995; Schäffler, 1997). L'évolution de l'anisotropie peut être corrélée à celle des mécanismes de déformation activés. Grange et al. (2000a) n'ont pas constaté de modification par les hydrures de l'anisotropie plastique de tôles en Zircaloy–4 recristallisé testées à température ambiante. En revanche, une réduction, en fonction de la teneur en hydrogène (hydrures circonférentiels), de l'anisotropie plastique de gaines en Zircaloy–4 détendu et recristallisé non irradiées a été observée par Yagnik et al. (2005) à température ambiante (figure 1.22).

e) Modélisation

Plusieurs modèles ont été proposés pour représenter, de manière unifiée, le comportement élastoviscoplastique anisotrope des alliages de zirconium.

Par exemple, un modèle macroscopique phénoménologique a été développé par Robinet (1995) et Delobelle et al. (1996), à partir d'essais multiaxiaux monotones et cycliques (vitesses de déformation comprises entre $6.6 \cdot 10^{-7}\,\mathrm{s}^{-1}$ et $6.6 \cdot 10^{-4}\,\mathrm{s}^{-1}$ pour les chargements à vitesse de déformation imposée), pour décrire le comportement mécanique à 350 °C des gaines en Zircaloy–4 détendu et recristallisé non irradiées. Le modèle a ensuite été étendu au cas du Zircaloy–4 détendu irradié en REP jusqu'à $8.5 \cdot 10^{25}\,\mathrm{n.m}^{-2}$ (Schäffler, 1997; Schäffler et al., 2000), en y incluant par ailleurs les effets de la température entre 350 °C et 400 °C (vitesses de déformation entre $2 \cdot 10^{-6}\,\mathrm{s}^{-1}$ et $2 \cdot 10^{-3}\,\mathrm{s}^{-1}$). Le modèle a finalement été enrichi pour représenter

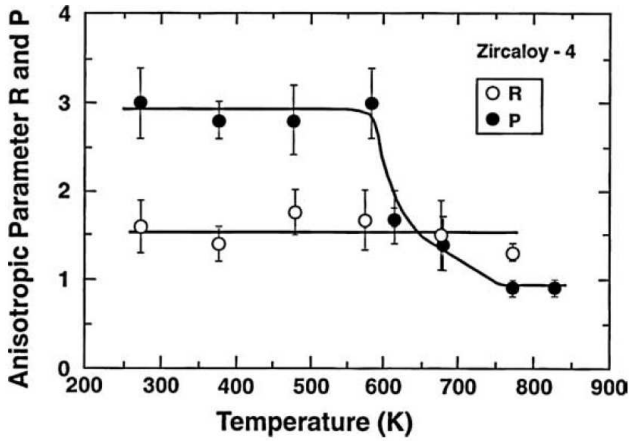


Figure 1.20 – Coefficients de Lankford R et P (rapports entre les déformations plastiques mesurées à travers la largeur et l'épaisseur d'une éprouvette sollicitée en traction uniaxiale selon la direction de laminage et la direction transverse respectivement) de tôles en Zircaloy–4 en fonction de la température (matériau isotrope : $R = P = 1$) (Murty and Charit, 2006).

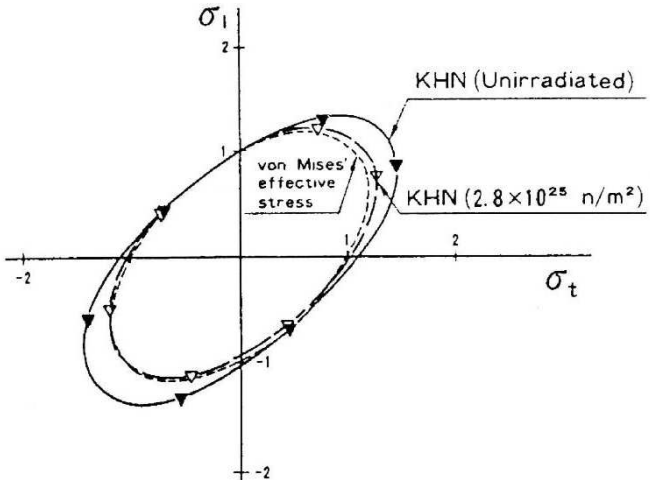


Figure 1.21 – Surfaces de charge normées déterminées à partir de mesures de dureté Knoop sur des tubes en Zircaloy–2 non irradiés et irradiés (fluence de $2.8 \cdot 10^{25}$ n.m^{-2} et température de 300 °C) (Nakatsuka and Nagai, 1987).

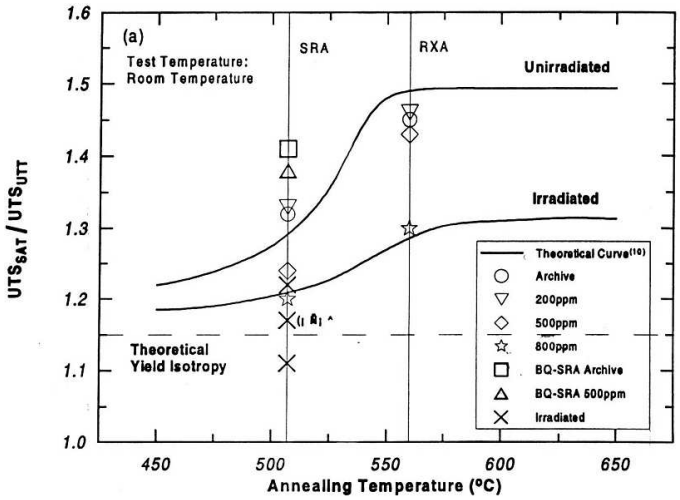


Figure 1.22 – Rapports, en fonction de la température de recuit, des contraintes maximales mesurées à température ambiante en traction plane circonférentielle et en traction axiale sur des gaines en Zircaloy–4 non irradiées contenant différentes teneurs en hydrogène et des gaines irradiées à 10^{26} n.m^{-2} (Yagnik et al., 2005).

l'influence de la température entre 320 °C et 420 °C, ainsi que le fluage thermique à long terme et le fluage d'irradiation (Richard et al., 2003).

Des modèles polycristallins, prenant en compte la microstructure du matériau et les mécanismes physiques à l'origine de la déformation plastique, ont par ailleurs été élaborés. Geyer (1999) a développé un modèle polycristallin pour le Zircaloy–4 recristallisé non irradié, pour des températures d'essais de 20 °C et 350 °C. Fandeur (2001) a identifié ce modèle pour les gaines en Zircaloy–4 détendu non irradiées et irradiées testées à 350 °C. Onimus et al. ont enrichi le modèle de Geyer en prenant en compte les effets de l'irradiation sur l'activation des plans de glissement et les cinétiques d'écrouissage du Zircaloy–4 recristallisé (Onimus, 2003) et du M5 (Onimus et al., 2005) testés à 350 °C. Récemment, un modèle polycristallin simplifié, incluant un nombre de systèmes de glissement et de grains réduit, a été proposé (Rousselier and Leclercq, 2006) et appliqué au Zircaloy–4 recristallisé (Leclercq et al., 2007). Ce modèle permet d'obtenir des temps de calcul acceptables pour les calculs de structure – ce qui n'est, encore à l'heure actuelle, pas le cas de la majorité des modèles polycristallins – tout en conservant les avantages des modèles polycristallins.

1.1.5 Endommagement et rupture

La ductilité et la ténacité du matériau dépendent notamment de la température, la vitesse de déformation, l'état de contrainte, l'irradiation et la teneur, l'orientation et la distribution des hydrures.

a) Influence du chargement thermomécanique

D'une manière générale, la ductilité des alliages de zirconium croît avec la température (figure 1.23) (Lowry et al., 1981; Ahn and Nam, 1990; Lee et al., 2001; Kim et al., 2005; Desquines et al., 2005b; Cazalis et al., 2007). Néanmoins, à vitesse de déformation imposée, un creux de ductilité, associé à une baisse du coefficient de sensibilité de la contrainte à la vitesse de déformation, est parfois observé vers 300 °C [9] (figure 1.24) (Ahn and Nam, 1990; Lee et al., 2001).

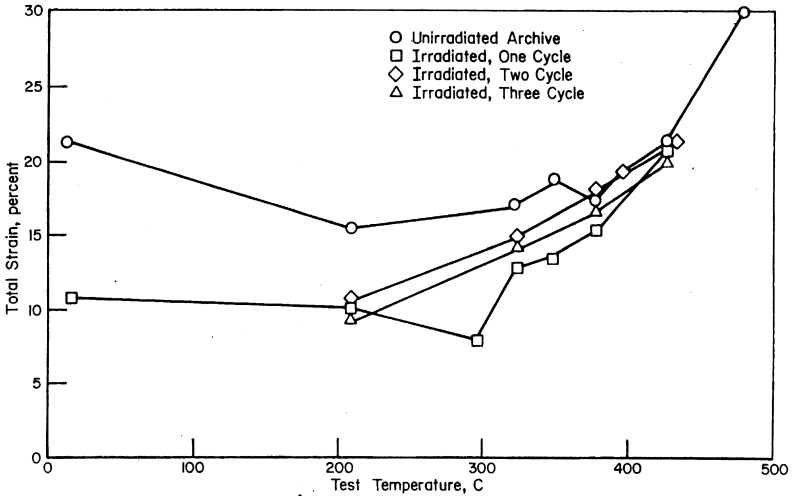


Figure 1.23 – Evolution en fonction de la température de l'élongation totale à rupture mesurée en traction axiale (vitesse de déformation 0.025 /min) sur des échantillons de gaines en Zircaloy–4 non irradiées et irradiées pendant 1, 2 et 3 cycles en REP (Lowry et al., 1981).

La déformation à rupture du matériau diminue lorsque la vitesse de déformation augmente (figure 1.25) (Bauer and Lowry, 1978; Lowry et al., 1981; Grange et al., 2000a; Nakatsuka et al., 2004; Nagase and Fuketa, 2005; Kim et al., 2006).

En outre, la ductilité globale du matériau est sensible à la triaxialité des contraintes et aux défauts géométriques (entailles, ...). Les déformations à rupture déduites d'essais de traction uniaxiale réalisés sur des éprouvettes entaillées sont nettement plus faibles que celles mesurées à partir d'éprouvettes lisses (Coleman and Hardie, 1966; Simpson, 1981; Yunchang and Koss, 1985; Puls, 1991; Huang and Huang, 1994; Prat, 1994; Prat et al., 1998).

b) Influence de l'irradiation

La ductilité macroscopique du matériau décroît avec l'irradiation (figures 1.23 et 1.26) (Higgy and Hammad, 1972; Rieger and Lee, 1974; Bauer and Lowry,

[9] La chute du coefficient de sensibilité à la vitesse de déformation, attribuée au phénomène de vieillissement dynamique, favorise la localisation de la plasticité, et par conséquent la rupture.

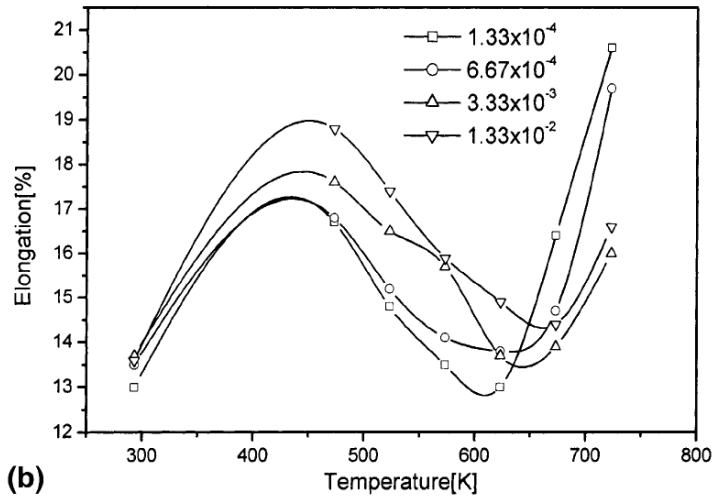


Figure 1.24 – Elongation totale à rupture du Zircaloy–4 non irradié en fonction de la température à différentes vitesses de déformation (Lee et al., 2001).

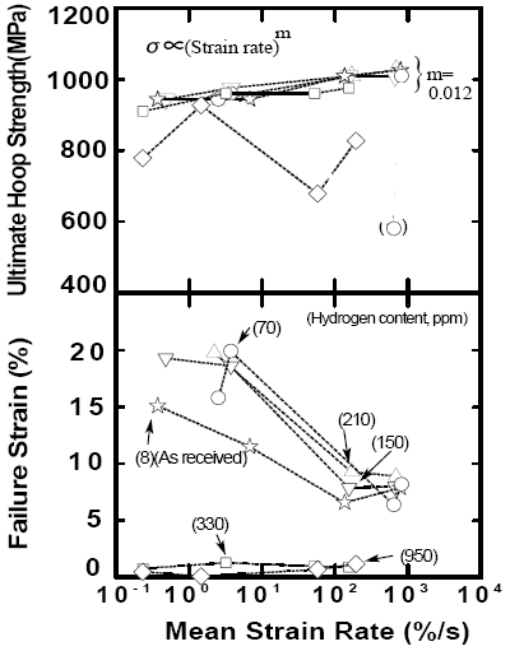


Figure 1.25 – Influence de la vitesse de déformation sur le comportement mécanique (contrainte maximale et déformation à rupture) de gaines en Zircaloy–2 non irradiées contenant différentes teneurs en hydrogène (indiquées entre parenthèses) et testées à température ambiante en éclatement par pressurisation interne (Nakatsuka et al., 2004).

1978; Lowry et al., 1981; Yasuda et al., 1987; Garde, 1989; Garde et al., 1996; Tomimura et al., 1996; Adamson, 2000; Regnard et al., 2002). Cette perte de ductilité apparente est liée à la localisation précoce, évoquée précédemment, de la déformation dans des bandes de cisaillement. Bien qu'à l'échelle macroscopique le matériau irradié se comporte de manière relativement fragile, le faciès de rupture reste ductile à cupules. D'après Yasuda et al. (1987), la densité de cavités dans le Zircaloy–4 irradié augmente avec la fluence : les défauts d'irradiation se regroupent sous l'effet de la déformation et donnent naissance à des cavités.

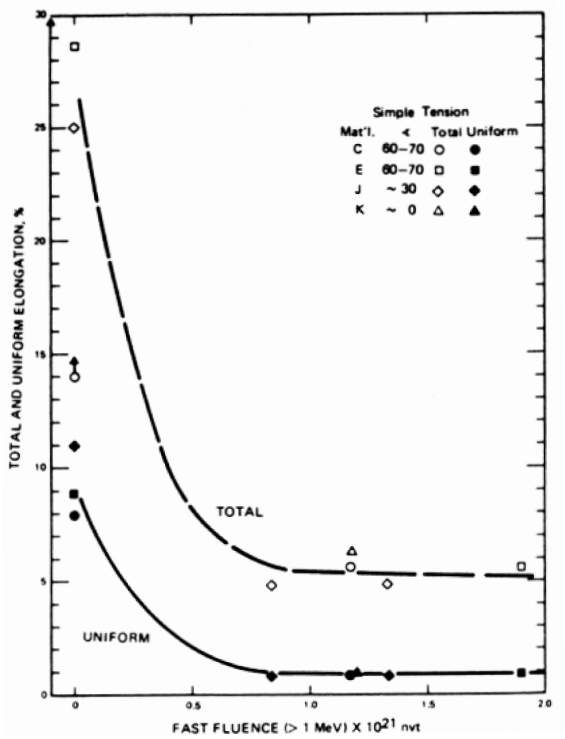


Figure 1.26 – Evolution en fonction de la fluence de l'allongement réparti et de l'allongement total d'éprouvettes en Zircaloy–2 testées à 250 °C à une vitesse de déformation de $0.05\,\mathrm{min}^{-1}$ (Rieger and Lee, 1974).

c) Influence de l'hydrogène

De nombreuses études, menées depuis plusieurs décennies, ont révélé une fragilisation des alliages de zirconium par l'hydrogène. Cette fragilisation n'est observée qu'en présence d'hydrogène précipité sous forme d'hydrures, l'influence de l'hydrogène en solution étant négligeable. L'importance de la fragilisation par l'hydrogène dépend notamment de la morphologie des hydrures, de leur orientation par rapport au chargement appliqué, de la température, de la vitesse de déformation, de l'irradiation et de l'état de contraintes et de déformations. Contrairement à la fragilisation liée à l'irradiation, aucune saturation de la fragilisation par l'hydrogène n'est observée.

A température ambiante, lorsque les hydrures sont uniformément répartis dans le matériau et que leur normale est perpendiculaire à la direction principale de chargement, la ductilité et la ténacité du matériau hydruré décroît en fonction de la teneur en hydrogène (figure 1.27) (Coleman and Hardie, 1966; Simpson, 1981; Yunchang and Koss, 1985; Puls, 1991; Huang and Huang, 1994; Bai et al., 1994b, a; Prat et al., 1998; Wisner and Adamson, 1998; Grange et al., 2000a; Hong et al., 2002; Arsène et al., 2003a; Bertolino et al., 2003; Nakatsuka et al., 2004; Yagnik et al., 2005; Hsu, 2006; Kim et al., 2006; Viswanathan et al., 2006; Kim et al., 2007a; Raynaud et al., 2007).

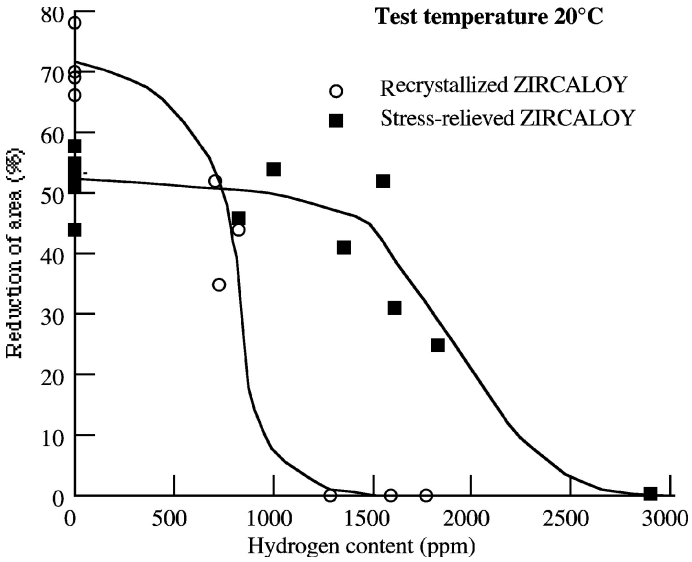
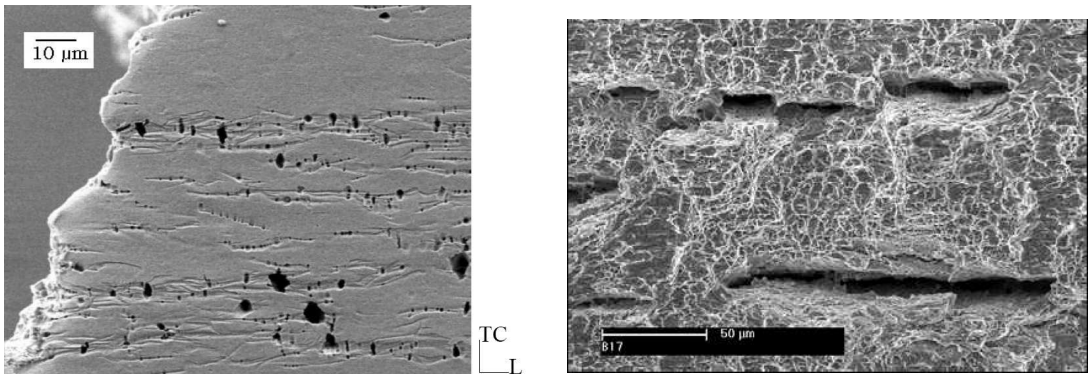


Figure 1.27 – Réduction de section à rupture en fonction de la teneur en hydrogène pour des essais de traction circonférentielle réalisés à température ambiante sur des échantillons de gaine en Zircaloy–4 détendu et du Zircaloy–2 recristallisé non irradiés (Arsène et al., 2003a).

Les hydrures, relativement fragiles à température ambiante, rompent en général perpendiculairement à la direction principale de sollicitation lorsque la déformation plastique de la matrice et/ou la contrainte locale sont suffisantes (figure 1.28) ; la décohésion de l'interface entre la matrice et les hydrures et la rupture des hydrures parallèlement à la direction de sollicitation ne sont que très rarement observées. Pour des teneurs en hydrogène suffisantes, l'endommagement associé à la rupture des hydrures est prépondérant par rapport à l'endommagement lié à la décohésion de l'interface entre la matrice et les précipités de phase de Laves $Zr(Fe,Cr)_2$, observé notamment dans le Zircaloy–4 non irradié non hydruré ou faiblement hydruré (Grange, 1998; Bertolino et al., 2003).

D'après Barraclough and Beevers (1969), les hydrures de zirconium δ massifs sollicités en traction uniaxiale entre 20 °C et 500 °C rompent sans déformation plastique. En revanche, lorsqu'ils sont sollicités en compression, les hydrures massifs se déforment plastiquement, même à température ambiante (Barraclough and Beevers, 1969; Puls et al., 2005). La capacité des hydrures à se déformer est accrue



(a) (b)

Figure 1.28 – (a) Hydrures rompus dans une coupe longueur (L)–épaisseur (TC) près de la surface de rupture d'une éprouvette en Zircaloy–4 recristallisé hydurée à 949 ppm sollicitée à température ambiante en traction uniaxiale selon la direction L (Grange, 1998). (b) Hydrures rompus sur la surface de rupture d'une éprouvette en Zircaloy–4 détendu testée à température ambiante (Raynaud et al., 2007).

lorsque leur composition stoechiométrique augmente. Simpson (1981) et Puls (1991) ont constaté que les hydrures peuvent se déformer plastiquement de quelques pourcents avant de rompre. Plus les hydrures sont massifs et longs – du moins pour des longueurs inférieures à 25 μm (Shi and Puls, 1999) –, moins ils peuvent accommoder la déformation plastique de la matrice (Simpson, 1981; Arsène, 1997; Grange, 1998; Grange et al., 2000a; Hong et al., 2002; Arsène et al., 2003b). Une rotation des hydrures vers la direction de sollicitation, probablement liée au réalignement des plaquettes dans la direction d'écoulement de la matrice, a par ailleurs été observée (Grange, 1998). D'après Grange (1998), du fait des relations de cohérence matrice/hydrures, les hydrures transgranulaires s'accommodent mieux à la déformation plastique que les hydrures intergranulaires (figure 1.29). Les hydrures transgranulaires autorisent par ailleurs la transmission du glissement. Les hydrures intergranulaires ne possèdent pas de relation de cohérence avec la matrice et se situent dans des zones où les incompatibilités de déformation sont importantes. Ils sont donc plus sensibles à la déformation plastique de la matrice ; les lignes de glissement et les joints de macles sont bloqués par les hydrures, qui peuvent rompre en raison de l'élévation du niveau de contrainte local. Ces résultats sont cohérents avec ceux de Arsène et al. (Arsène, 1997; Arsène et al., 2003a) qui constatent que la fragilisation par les hydrures dans le Zircaloy–4 détendu, qui présente une précipitation préférentiellement transgranulaire, est moins importante que dans le Zircaloy–2 recristallisé, qui révèle une précipitation essentiellement intergranulaire.

La déformation plastique macroscopique à partir de laquelle les hydrures rompent à température ambiante a été évaluée, pour le Zircaloy–2 et le Zircaloy–4 recristallisés, à environ 20% par Yunchang and Koss (1985) (figure 1.30), Grange (1998) et Grange et al. (2000a) et 10% par (Arsène, 1997; Arsène et al., 2003b). Ces au-

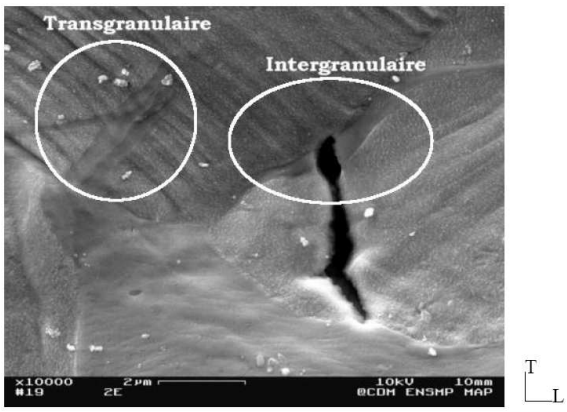


Figure 1.29 – Hydrures transgranulaire et intergranulaire dans une coupe longueur (L)–largeur (T) d'une éprouvette en Zircaloy–4 recristallisé hydrurée à 1100 ppm et sollicitée à température ambiante en traction uniaxiale selon la direction L (Grange, 1998).

teurs ont également constaté que le nombre de fissures amorcées dans les hydrures augmente en fonction de la déformation plastique et que la rupture des hydrures est accélérée lorsque la teneur en hydrogène augmente. Bien que Yunchang and Koss (1985) ne l'aient pas souligné dans leur article, la rupture des hydrures dans des tôles en Zircaloy–2 (hydrures majoritairement perpendiculaires à l'épaisseur des tôles pour les faibles teneurs en hydrogène mais nombreux hydrures parallèles à l'épaisseur pour les plus fortes teneurs) intervient pour des déformations plastiques légèrement plus faibles lorsque les essais de traction uniaxiale sont réalisés selon la direction de laminage du matériau. Cette différence est probablement liée à la morphologie des hydrures, légèrement plus longs et rectilignes selon la direction de laminage et donc plus enclins à rompre lorsqu'ils sont sollicités selon cette direction. En accord avec ces observations, les déformations et les strictions à rupture déduites des essais de traction réalisés selon la direction de laminage sont légèrement plus faibles qu'en traction transverse (Yunchang and Koss, 1985). Grange et al. (2000a) ont également constaté que la ductilité de tôles en Zircaloy–4 recristallisé est, indépendamment de la teneur en hydrogène (normale des hydrures parallèle à l'épaisseur des tôles), légèrement plus importante selon la direction transverse.

La fragilisation par l'hydrogène à température ambiante est influencée par l'état de contraintes et la présence de défauts géométriques. Elle est plus importante lorsque les éprouvettes présentent des entailles et l'endommagement induit par la rupture des hydrures est favorisé par une élévation du taux de triaxialité des contraintes (figure 1.31) (Coleman and Hardie, 1966; Simpson, 1981; Yunchang and Koss, 1985; Puls, 1991; Huang and Huang, 1994; Prat, 1994; Prat et al., 1998). Les hydrures rompent plus facilement et la croissance et la coalescence des cavités sont accélérées lorsque la triaxialité des contraintes augmente, du moins pour des teneurs supérieures à 150 ppm (Yunchang and Koss, 1985).

L'effet fragilisant des hydrures circonférentiels répartis de manière homogène

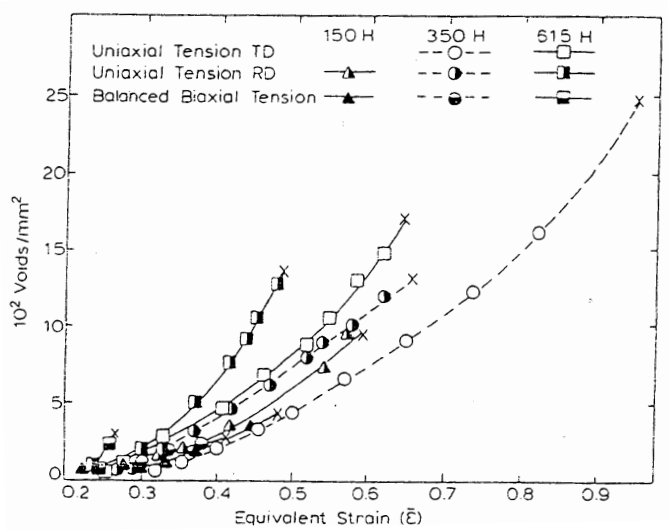
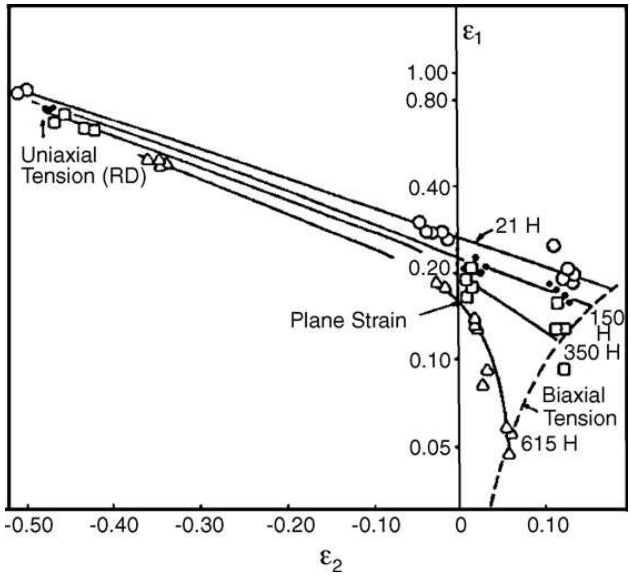


Figure 1.30 – Evolution du nombre de cavités – amorcées par rupture des hydrures – par unité de surface en fonction de la déformation plastique équivalente pour des essais de traction uniaxiale selon les directions de laminage (RD) et transverse (TD) et des essais de traction équibiaxée réalisés à température ambiante sur des échantillons prélevés dans des tôles en Zircaloy–2 hydrurées à différentes teneurs (majorité des hydrures parallèle aux parois des tôles pour les faibles teneurs en hydrogène mais nombreux hydrures perpendiculaires aux parois pour les plus fortes teneurs) (Yunchang and Koss, 1985).



(a)

	Hydrogen Content	Uniaxial (RD)	Plane-Strain	Equibiaxial
$\frac{\bar{\varepsilon}_f}{(\bar{\varepsilon}_f)_{21}}$	150 ppm H	0.80	0.80	0.86
	350	0.78	0.74	0.72
	615	0.61	0.59	0.43

(b)

Figure 1.31 – (a) Déformations principales à rupture dans le plan de tôles en Zircaloy–2 hydrurées à 21 ppm, 150 ppm, 350 ppm et 615 ppm (majorité des hydrures parallèle aux parois des tôles pour les faibles teneurs en hydrogène mais nombreux hydrures perpendiculaires aux parois pour les plus fortes teneurs), testées à température ambiante en traction uniaxiale, traction plane et traction équibiaxiée et (b) déformations équivalentes à rupture normées par la déformation équivalente à rupture du matériau hydruré à 21 ppm (Yunchang and Koss, 1985).

dans le matériau diminue considérablement avec la température (Puls, 1991; Huang and Huang, 1994; Bai et al., 1994b, a; Wisner and Adamson, 1998; Arsène et al., 2003a; Bertolino et al., 2003; Yagnik et al., 2005; Viswanathan et al., 2006; Hsu, 2006; Kim et al., 2007a; Raynaud et al., 2007) ; il est quasi–inexistant au–delà de 300 °C, même pour des teneurs supérieures à 2000 ppm dans le Zircaloy–4 détendu (figure 1.32). L'effet fragilisant des hydrures dans le Zr–2.5%Nb hydruré à 100 ppm (Shi and Puls, 1999) et le Zircaloy–2 hydruré jusqu'à 225 ppm (Viswanathan et al., 2006) diminue considérablement (transition ductile–fragile) à partir de 130 °C environ (figure 1.33). La température a un effet bénéfique sur la capacité des hydrures à se déformer. De plus, la contrainte d'écoulement de la matrice décroît avec la température et sa ductilité augmente. Ainsi, les contraintes locales ne sont pas suffisantes pour rompre les hydrures aux températures élevées.

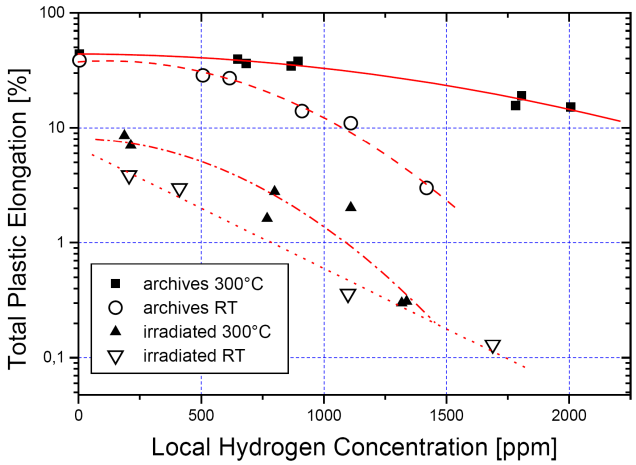


Figure 1.32 – Allongement total à rupture en fonction de la teneur locale maximale en hydrogène d'échantillons de gaines en Zircaloy–4 non irradié et irradié en REP, sollicités en traction axiale à température ambiante et à 300 °C (Yagnik et al., 2005).

Il semblerait que la fragilisation par les hydrures soit légèrement accentuée dans le matériau irradié (figure 1.32) (Arsène et al., 2003b; Nakatsuka et al., 2004; Yagnik et al., 2005). En effet, l'irradiation conduit à une augmentation de la contrainte d'écoulement de la matrice, facilitant la rupture des hydrures pour de plus faibles déformations plastiques, et réduit la capacité d'écrouissage et la ténacité de la matrice entre les hydrures, favorisant la croissance des cavités.

Une fragilisation par les hydrures accrue lorsque la vitesse de déformation augmente a également été rapportée (figure 1.34) (Jernkvist et al., 2003; Kim et al., 2006).

L'influence des hydrures sur l'endommagement et la rupture du matériau dépend de leur orientation par rapport à la direction principale de sollicitation. Pour une même teneur moyenne en hydrogène, la fragilisation par les hydrures à température ambiante est nettement plus importante lorsque les hydrures sont perpendiculaires à la direction principale de chargement (figure 1.35) (Yagnik et al., 2004; Racine, 2005; Racine et al., 2005; Daum et al., 2006; Chu et al., 2007).

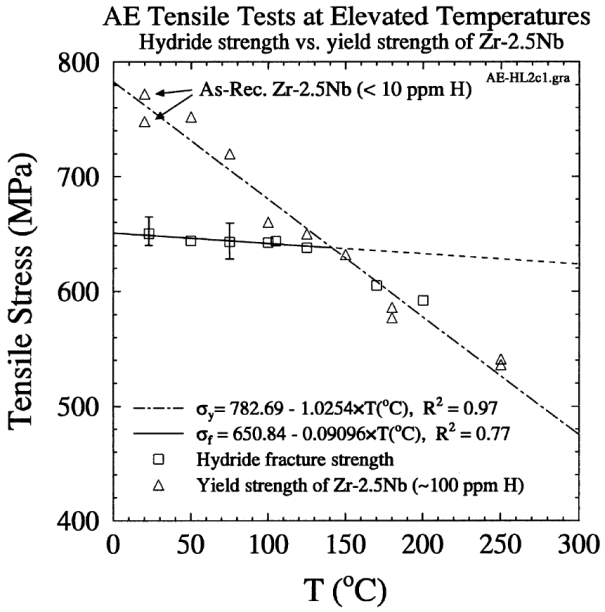


Figure 1.33 – Contrainte à rupture des hydrures et limite d'élasticité du Zr–2.5%Nb en fonction de la température (Shi and Puls, 1999).

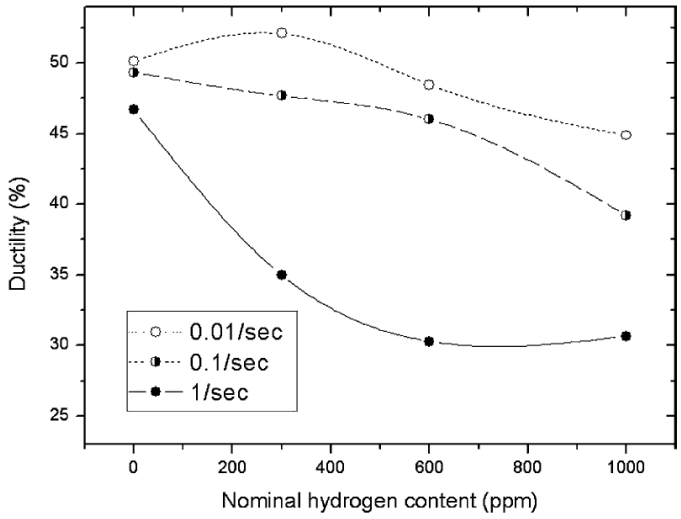


Figure 1.34 – Allongement à rupture en fonction de la teneur en hydrogène pour des essais de traction circonférentielle réalisés à température ambiante à différentes vitesses de déformation sur des gaines en Zircaloy–4 détendu (Kim et al., 2006).

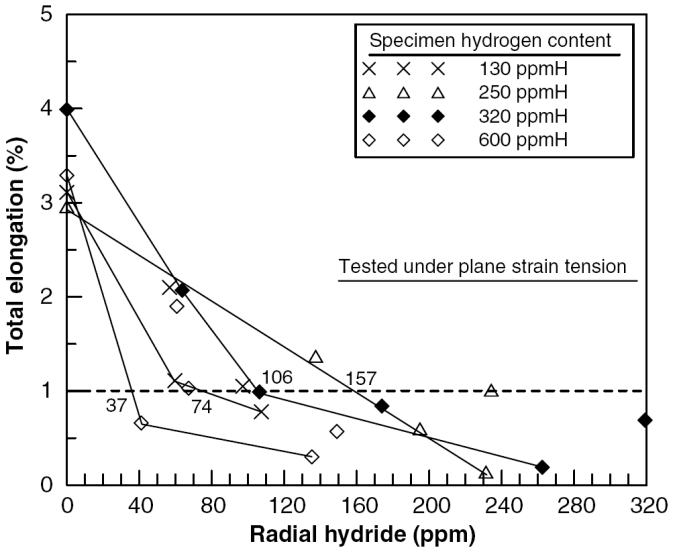


Figure 1.35 – Allongement total à rupture en fonction de la teneur en hydrures radiaux pour des essais de traction plane réalisés à température ambiante selon la direction circonférentielle d'échantillons de gaines en Zircaloy–4 non irradiés contenant différentes teneurs moyennes en hydrogène (Chu et al., 2007).

Par ailleurs, plusieurs études indiquent que la fragilisation par l'hydrogène dépend fortement de la distribution des hydrures (Garde et al., 1996; Daum et al., 2002b, a; Pierron et al., 2003; Glendening et al., 2005; Nagase and Fuketa, 2005; Desquines et al., 2005b; Cazalis et al., 2007; Hermann et al., 2007). Pour une même teneur moyenne en hydrogène, le matériau contenant des concentrations locales en hydrogène élevées est, d'un point de vue macroscopique, moins ductile que le matériau hydruré de manière homogène. Garde et al. (1996), suivis de nombreux auteurs, ont proposé d'exprimer la ductilité du matériau en fonction de la teneur locale en hydrogène plutôt qu'en fonction de la teneur moyenne. En présence de couches externes denses en hydrures (rims ou blisters d'hydrures) et/ou d'une couche de zircone, la ductilité du matériau décroît significativement en fonction de l'épaisseur de la couche, même pour des températures de 400 °C (figure 1.36) (Daum et al., 2002b, a; Pierron et al., 2003; Glendening et al., 2005; Nagase and Fuketa, 2005; Desquines et al., 2005b; Cazalis et al., 2007). La perte de ductilité se stabilise à partir d'une épaisseur de la couche dense en hydrures de l'ordre de 100 μm [10], au-delà de laquelle le matériau se comporte, d'un point de vue macroscopique, de manière quasi–fragile voire fragile. A épaisseur égale, les rims d'hydrures sont plus fragilisants que les blisters d'hydrures, moins étendus (Pierron et al., 2003). Hermann et al. (2007) ont également constaté que plus la taille de la couche dense en hydrures est importante, plus la ductilité macroscopique du matériau est dégradée.

[10]La ductilité macroscopique dépend principalement de l'épaisseur de la couche dense en hydrures lorsque celle-ci est épaisse et que le substrat est faiblement hydruré, tandis qu'elle dépend essentiellement – du moins à faible température – de la teneur en hydrogène dans le substrat lorsque l'épaisseur de la couche dense en hydrures est faible.

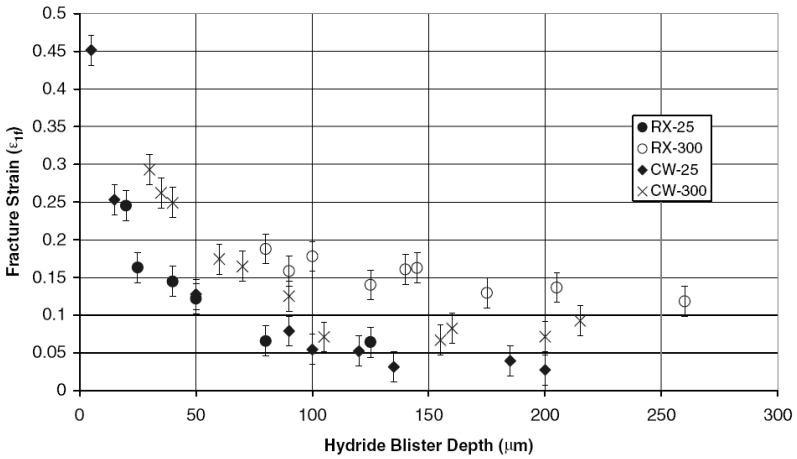


Figure 1.36 – Déformation locale à rupture en fonction de l'épaisseur du rim d'hydrures (3 mm de diamètre) dans des échantillons de tôles en Zircaloy–4 détendu et recristallisé non irradiés testés en traction plane à 25 °C et 300 °C (Pierron et al., 2003).

Cette fragilisation est attribuée à la fissuration rapide des couches denses en hydrures, pour de faibles déformations plastiques macroscopiques (Daum et al., 2002b, a; Glendening et al., 2005), inférieures à 0.02 d'après Pierron et al. (2003). La rupture des rims d'hydrures est quasi-fragile (Daum et al., 2002b; Desquines et al., 2005b; Cazalis et al., 2007). Le comportement des blisters d'hydrures est fragile, même pour des températures de 400 °C (Pierron et al., 2003). Pierron et al. (2003) évaluent la contrainte à rupture des blisters d'hydrures de plus de 50 μm d'épaisseur à moins de 100 MPa. Une contrainte circonférentielle à rupture de 145 MPa a été déterminée à partir d'un essai réalisé à 480 °C sur un échantillon de gaine en Zircaloy–4 détendu irradié en REP et contenant un blister d'hydrures à travers toute son épaisseur (Desquines et al., 2005b; Cazalis et al., 2007). En plus de réduire l'épaisseur de matériau sain, les fissures amorcées dans les couches externes riches en hydrures agissent comme des sites initiateurs d'une propagation ultérieure dans le reste du matériau, appelé *substrat*. L'influence d'un rim d'hydrures en tant que site initiateur de préfissures, accélérant la rupture du matériau, a été mise en évidence par Daum et al. (2002a) : lorsque le rim d'hydrures présent en périphérie externe est retiré avant essai, la ductilité macroscopique du matériau est proche de celle du matériau non hydruré, tandis qu'elle est nettement plus faible lorsque la couche dense en hydrures est conservée (figure 1.37). En revanche, d'après Fuketa et al. (2000), les rims d'hydrures présents en paroi externe de gaines en Zircaloy–4 n'affectent pas la propagation axiale des fissures traversantes. Pour une même concentration moyenne en hydrogène, la propagation axiale des fissures traversantes est moins importante lorsque les éprouvettes présentent un rim d'hydrures : dans la mesure où la teneur en hydrogène dans le substrat du tube avec un rim d'hydrures est plus faible que celle du matériau hydruré uniformément, sa ténacité selon la direction axiale est plus importante.

A épaisseur de couche externe dense en hydrures donnée, la ductilité macrosco-

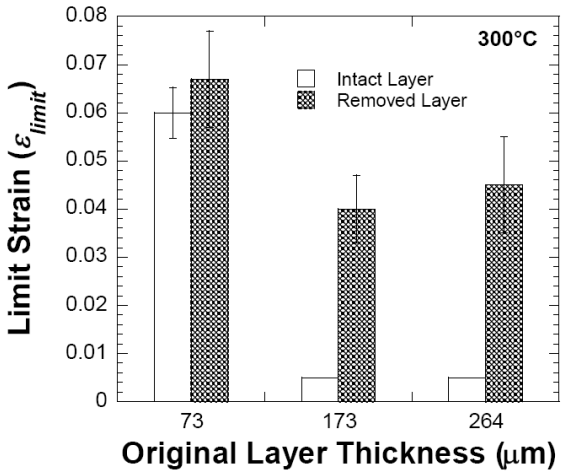


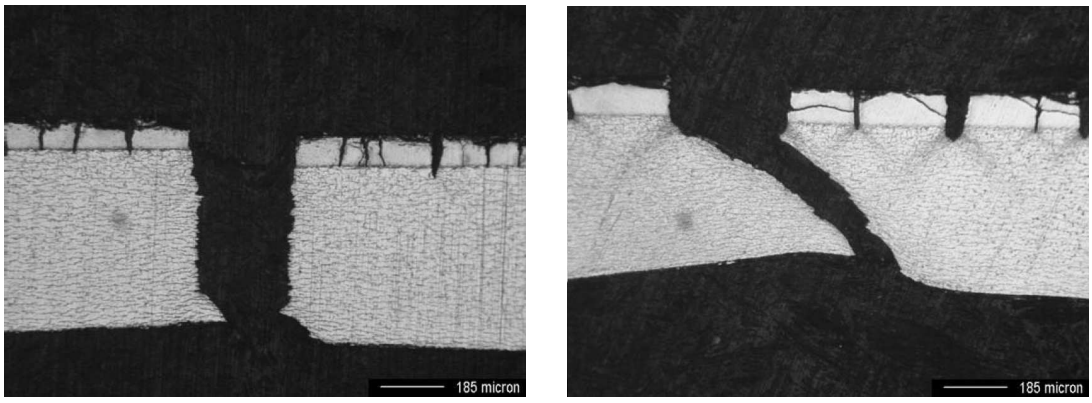
Figure 1.37 – Déformation moyenne à rupture en fonction de l'épaisseur du rim d'hydrures pour des échantillons de gaines en Zircaloy–4 détendu non irradiés testés à 300 °C sans et après retrait du rim d'hydrures (Daum et al., 2002a).

pique du matériau augmente avec la température (Daum et al., 2002b, a; Pierron et al., 2003; Glendening et al., 2005). En outre, la perte de ductilité en fonction de l'épaisseur de la couche dense en hydrures décroît légèrement en fonction de la température. En effet, le mode de rupture dans le substrat dépend de la température. A température ambiante, les fissures, assez peu émoussées, se propagent dans le substrat selon un plan macroscopique perpendiculaire à la direction principale de chargement, principalement par germination, croissance et coalescence de cavités créées par la rupture d'hydrures (figure 1.38(a)). Au-delà de 300 °C, les fissures s'émoussent significativement avant de se propager à travers le substrat par localisation de la déformation dans une bande de cisaillement inclinée à 45° par rapport à l'épaisseur de l'éprouvette (figure 1.38(b)). A ces températures, l'influence des hydrures sur la ductilité et la ténacité du substrat est négligeable. La propagation des fissures dans le substrat dépend de l'orientation des hydrures à température ambiante (Raynaud et al., 2007) : la ténacité du substrat est plus faible lorsque les hydrures sont orientés selon la direction de propagation.

L'étude menée par Glendening et al. (2005) sur du Zircaloy–4 détendu contenant des blisters ou des rims d'hydrures et une teneur en hydrogène dans le substrat d'environ 300–400 ppm ne révèle pas, à épaisseur de couche dense en hydrures donnée, de différence de ductilité significative en traction plane et en traction équibiaxiale. Néanmoins, d'après les résultats de Yunchang and Koss (1985), on peut envisager que la dépendance de la rupture du matériau à l'état de contrainte eusse été plus importante pour des teneurs en hydrogène plus élevées dans le substrat.

d) Modélisation

D'une manière générale, les modèles proposés dans la littérature pour décrire la rupture des alliages de zirconium hydrurés reposent soit sur la description de



(a) (b)

Figure 1.38 – Profils de rupture d'échantillons de tôle en Zircaloy–4 détendu non irradiés (a) contenant un blister d'hydrures de 100 μm d'épaisseur et testé en traction plane à température ambiante et (b) contenant un blister d'hydrures de 105 μm d'épaisseur et testé en traction plane à 300 °C (Pierron, 2002).

l'endommagement du matériau, soit sur les concepts de la mécanique de la rupture élastoplastique.

Un modèle d'endommagement couplé[11] de type Gurson (Gurson, 1977) a été développé par Grange et al. (Grange, 1998; Grange et al., 2000b) pour représenter la rupture ductile, à température ambiante, de tôles en Zircaloy–4 recristallisé non irradiées hydrurées jusqu'à 1200 ppm (hydrures orientés selon la direction principale de chargement). L'endommagement du matériau (germination, croissance et coalescence de cavités) est attribué à la rupture des hydrures. La cinétique de germination de cavités par rupture des hydrures introduite dans le modèle a été déterminée, à partir d'observations métallurgiques, en fonction de la déformation plastique et de la teneur en hydrogène (figure 1.39) (Grange et al., 2000a). La coalescence des cavités intervient d'autant plus tôt que la teneur en hydrogène est élevée. La rupture finale se produit lorsque la fraction volumique des cavités atteint une valeur critique. Le modèle, appliqué à la simulation de structures complexes en Zircaloy–4 recristallisé hydruré, reproduit correctement l'influence des hydrures sur la rupture du matériau. Plus tard, ce modèle a été adapté de manière purement phénoménologique au cas du Zircaloy–4 détendu hydruré jusqu'à 1600 ppm (Desquines et al., 2005a).

En s'appuyant sur le formalisme proposé par Lemaitre and Chaboche (1985), Racine (2005) a proposé un modèle de germination anisotrope non couplé piloté par la déformation pour décrire la rupture de gaines en Zircaloy–4 détendu contenant des hydrures circonférentiels et radiaux. L'influence sur l'endommagement, vis–à–vis d'un chargement de traction circonférentielle, des hydrures circonférentiels est négligée par rapport à celle des hydrures radiaux. Le modèle reproduit correctement, du moins d'un point de vue qualitatif, l'influence des hydrures radiaux sur la rupture

[11] Le terme couplé signifie que l'endommagement est couplé à la plasticité.

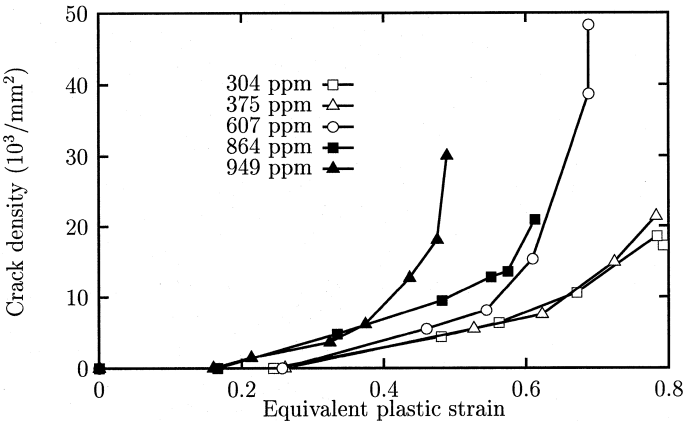


Figure 1.39 – Evolution de la densité surfacique de cavités – amorcées par rupture des hydrures – en fonction de la déformation plastique équivalente pour des essais de traction uniaxiale dans la direction de laminage réalisés à température ambiante sur des échantillons prélevés dans des tôles en Zircaloy–4 recristallisé contenant différentes teneurs en hydrogène (Grange et al., 2000a).

du matériau.

Perales et al. (Perales, 2005; Perales et al., 2008) ont proposé un modèle de zones cohésives avec contact frottant, qu'ils ont appliqué à la simulation de la fissuration du Zircaloy–4 hydruré (figure 1.40). En considérant les hydrures comme des particules élastiques fragiles durcissantes, ce modèle permet d'appréhender l'effet fragilisant des hydrures. En revanche, les auteurs soulignent qu'il serait *a minima* nécessaire de prendre en compte le comportement élastoplastique des hydrures pour pouvoir reproduire correctement les résultats expérimentaux.

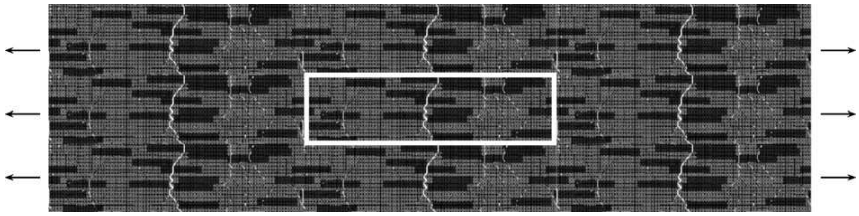


Figure 1.40 – Simulation de la rupture du Zircaloy–4 hydruré à l'aide d'un modèle de zones cohésives (Perales et al., 2008).

Un modèle de plasticité cristalline simplifié, basé sur le formalisme proposé dans Rousselier and Leclercq (2006) et Leclercq et al. (2007), couplé avec de l'endommagement (germination et croissance de cavités) est en cours de développement dans le cadre de la thèse de Doan (En cours). Après identification, ce modèle devrait permettre de reproduire les effets de la température (entre 20 °C et 600 °C) et de la teneur en hydrogène (jusqu'à 600 ppm) sur la rupture ductile de tôles en Zircaloy–4 détendu et recristallisé.

Arsène et al. (Arsène, 1997; Arsène et al., 2003b) ont constaté que le modèle d'endommagement non couplé de Rice and Tracey (1969), qui décrit la croissance de

cavités préexistantes associées ici à des hydrures rompus et pour lequel la rupture se produit lorsque la taille des cavités atteint une valeur critique, ne permet pas de reproduire la transition ductile–fragile brutale observée en fonction de la teneur en hydrogène. En effet, d'après les auteurs, les cavités amorcées par rupture des hydrures ne croissent que très peu avant rupture du matériau. En assimilant les hydrures à des fissures déjà existantes, les auteurs appliquent un modèle de charge limite et remarquent qu'en l'absence d'hydrures radiaux – comme dans le cas du Zircaloy détendu –, la transition ductile–fragile en fonction de la teneur en hydrogène est directement liée à la distance inter–hydrures, qui diminue lorsque la teneur en hydrogène augmente ; la transition intervient lorsque la contrainte à rupture du matériau est suffisamment faible, de telle sorte que le ligament de matrice entre deux fissures amorcées dans les hydrures rompe. En utilisant la mécanique linéaire de la rupture (matrice supposée élastique), il est montré qu'en présence d'hydrures radiaux – comme dans le cas du Zircaloy recristallisé –, la transition ductile–fragile dépend de la longueur maximale du chemin continu d'hydrures radiaux et de la ténacité du matériau non hydruré. Bien que la méthode fournisse des résultats qualitatifs intéressants, il apparaît indispensable d'utiliser la mécanique de la rupture élastoplastique pour tenir compte de la plastification non négligeable de la matrice et obtenir des résultats plus justes d'un point de vue quantitatif.

Kuroda et al. (2001) ont assimilé les hydrures à des fissures préexistantes et ont déterminé à température ambiante, à partir d'un Failure Assessment Diagram (FAD) (figure 1.41), une contrainte à rupture pour des gaines en Zircaloy–2 non irradiées contenant des hydrures circonférentiels répartis uniformément ou accumulés en périphérie externe. Le FAD est construit à partir de paramètres de mécanique de la rupture (facteur d'intensité de contrainte, intégrale de Rice et chargement plastique). Les auteurs déduisent du FAD que les gaines présentant un rim d'hydrures rompent par propagation de fissures tandis que les gaines hydrurées uniformément rompent par instabilité plastique. En appliquant la même démarche, Yamanaka et al. (2002) constatent qu'à 350 °C le chargement à rupture de gaines présentant un rim d'hydrures externe est très proche de celui des gaines présentant des hydrures circonférentiels distribuées de manière homogène. Enfin, Kuroda and Yamanaka (2002) remarquent qu'à température ambiante, la contrainte à rupture est plus sensible aux effets de l'hydruration, fonctions de la distribution et l'orientation des hydrures, qu'à ceux de l'irradiation.

Un modèle basé sur une approche micromécanique et employant les concepts de la mécanique de la rupture élastoplastique a été développé par Chan (1995, 1996) pour décrire la fragilisation par les hydrures dans les alliages de zirconium. La rupture des hydrures est supposée générer un réseau de fissures normales à la direction principale de chargement (figure 1.42). La rupture des ligaments de matrice entre ces fissures intervient lorsque la déformation à rupture de la matrice est atteinte localement. Le modèle reproduit les effets de la morphologie, l'orientation, la fraction volumique et la distribution des hydrures sur la ductilité et la ténacité du matériau. La perte de ductilité est d'autant plus importante que les hydrures sont grands, proches et orientés perpendiculairement à la direction principale de chargement.

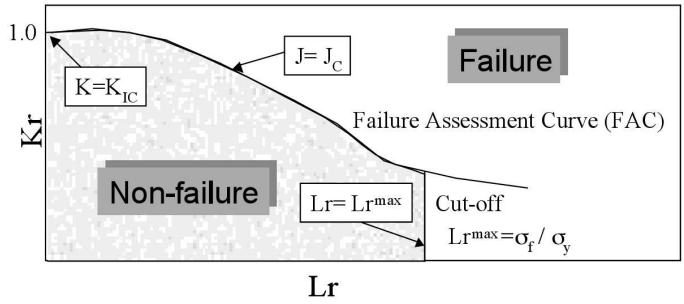


Figure 1.41 – Représentation schématique du Failure Assessment Diagram, exprimé en fonction de L_r et K_r représentant respectivement le chargement appliqué et le facteur d'intensité de contraintes normés par leur valeur à rupture (Kuroda and Yamanaka, 2002).

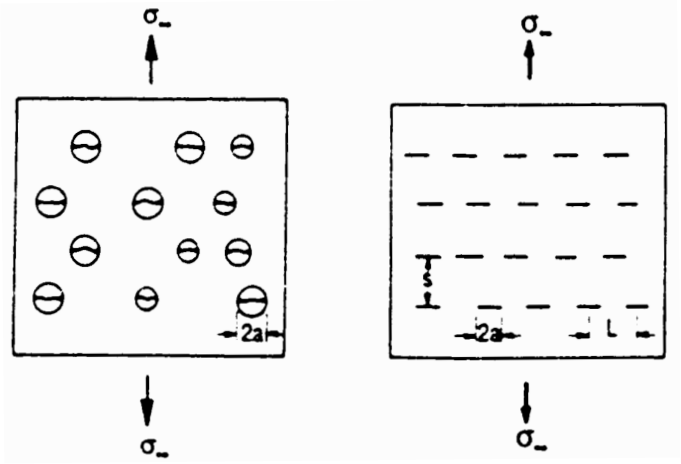


Figure 1.42 – Hydrures rompus modélisés par des rangées de fissures alignées (Chan, 1995).

Pierron et al. (2003) ont proposé un modèle basé sur la mécanique de la rupture élastoplastique pour évaluer l'influence d'un blister d'hydrures sur la rupture de plaques en Zircaloy–4 détendu hydrurées sollicitées en traction plane. La couche externe dense en hydrures est représentée par une fissure unique dont la profondeur est égale à l'épaisseur du blister. Les auteurs déterminent à l'aide de cette analyse une déformation à rupture [12] correspondant à la déformation nécessaire pour que la fissure amorcée dans la couche dense en hydrures se propage à travers l'épaisseur de l'éprouvette. Le modèle reproduit correctement la perte de ductilité macroscopique en fonction de l'épaisseur du blister d'hydrures observée à température ambiante. En revanche, les déformations à rupture mesurées à 300 °C sont fortement surestimées. En effet, tandis qu'elle s'effectue par propagation des fissures à température ambiante, la rupture se produit par instabilité plastique à 300 °C ; la déformation nécessaire à la germination, la croissance et la coalescence des cavités créées par la rupture des hydrures – et par conséquent la ténacité du matériau – est nettement plus importante à 300 °C qu'à température ambiante (Pierron, 2002). On notera que ce type de modèle fait intervenir la ténacité du matériau relative à la propagation d'une fissure à travers son épaisseur. Cependant, la quasi–totalité des études portant sur l'évaluation de la ténacité des gaines en alliages de zirconium concerne la propagation axiale des fissures (Huang, 1993; Grigoriev et al., 1996; Bertolino et al., 2003, 2006). Néanmoins, Raynaud et al. (2007) ont récemment mis au point une procédure permettant d'estimer la ténacité de plaques en Zircaloy pour une propagation à travers leur épaisseur.

1.2 Les accidents d'injection de réactivité

1.2.1 Déroulement

a) Scénario postulé

Le scénario d'accident d'injection de réactivité le plus contraignant pour la conception des REP postule l'éjection intempestive, sous l'effet de la différence de pression d'environ 150 bars entre le circuit primaire et l'enceinte de confinement, d'une grappe de contrôle hors du coeur du réacteur. L'accident d'éjection d'une grappe de contrôle (REA, control Rod Ejection Accident) résulte de la défaillance d'un mécanisme de pilotage. Le REA le plus critique se produirait en conditions d'arrêt à chaud, c'est-à-dire pour une température et une pression de réfrigérant normales mais pour une puissance délivrée par le réacteur quasiment nulle. Cet accident de référence se traduit par une augmentation rapide (quelques dizaines de millisecondes) de la réactivité locale susceptible d'enclencher un emballement de la réaction nucléaire (régime critique). Ce phénomène entraînerait une augmentation brutale de la puissance locale et produirait une quantité d'énergie significative dans

[12] La déformation à rupture dépend fortement de l'épaisseur du blister d'hydrures tandis que la contrainte à rupture est toujours proche de la contrainte maximale.

les crayons combustibles proches de la barre éjectée. Ce transitoire reste néanmoins limité grâce à l'intervention naturelle, du fait de l'élévation de température, de l'effet Doppler neutronique correspondant à une contre–réaction qui inverserait l'évolution de la puissance [13].

La forme et la durée du pic de puissance dépendent du scénario postulé, de la conception du cœur et du crayon combustible et de l'état du combustible (fonction du taux de combustion massique). Des analyses neutroniques de scénarios RIA indiquent que la largeur du pic de puissance se situe entre 30 et 75 ms pour des combustibles dont le taux de combustion moyen excède 40 GWj/tU (Meyer et al., 1996). La largeur du pulse est liée à son amplitude et évolue inversement avec l'augmentation d'enthalpie lors du RIA. Les conséquences d'un REA sur le comportement des crayons combustibles sont synthétisées de manière schématique sur la figure 1.43.

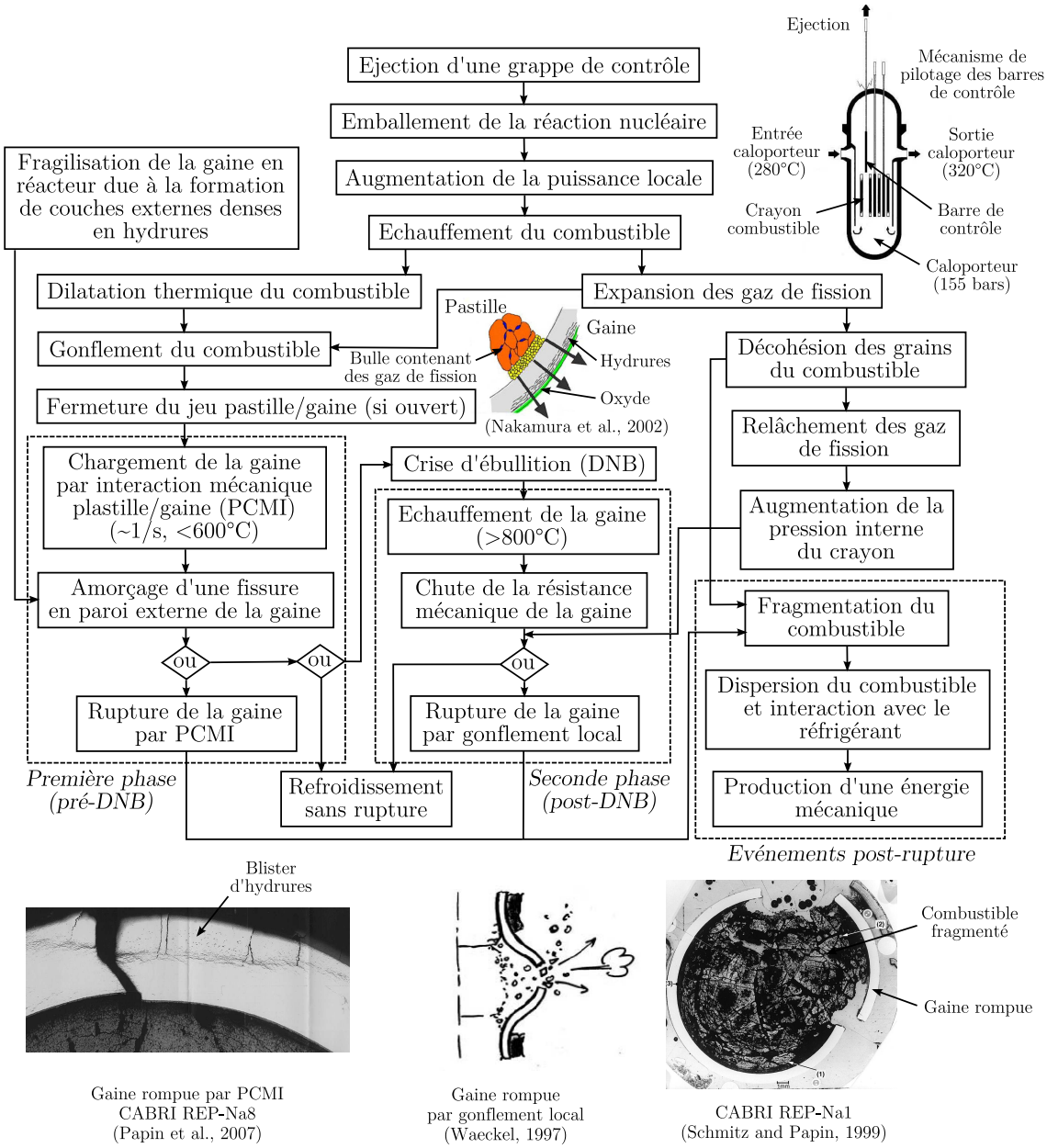
b) Gonflement du combustible et interaction mécanique pastille–gaine

La puissance brutalement injectée en début de transitoire conduit à un échauffement quasi–adiabatique du combustible. La dilatation thermique du combustible qui en résulte produit, après fermeture du jeu entre la pastille et la gaine s'il est ouvert au moment du transitoire [14], une forte interaction mécanique pastille–gaine (PCMI, Pellet Clad Mechanical Interaction) (figure 1.44) (Fuketa et al., 1996, 1997; Schmitz and Papin, 1999; Fuketa and Sasajima, 2001; Papin et al., 2007). Les fissions qui se produisent au sein du combustible conduisent à la formation de gaz de fission (krypton et xénon par exemple) dont une importante quantité – croissante en fonction du taux de combustion – est retenue sous forme de bulles dans les grains, aux joints de grains et dans les porosités préexistantes du combustible. L'échauffement rapide du combustible en début du transitoire RIA induit une surpression des bulles au joints de grains qui engendre la fragmentation du combustible. L'expansion de ces gaz de fission participe au gonflement du combustible lors de la phase de PCMI (Fuketa et al., 1997; Lemoine, 1997; Lemoine and Balourdet, 1997; Sasajima et al., 1999; Schmitz and Papin, 1999; Papin et al., 2007). A même taux de combustion, ce phénomène est plus important dans le cas du combustible MOX – caractérisé par une structure très hétérogène avec des amas riches en plutonium (PuO_2) dans une matrice UO_2 – en raison de la plus forte concentration de gaz retenus aux joints de grains.

Lors de la phase de PCMI, la gaine, dont la température augmente rapidement (environ 1000 °C.s^{-1}), est soumise à un chargement mécanique

[13] Une augmentation de la température accroît l'agitation thermique des atomes et l'absorption des neutrons. Ces pertes conduisent à une diminution du taux de réaction de fission et par conséquent de la puissance.

[14] En conditions normales de fonctionnement en REP, le jeu entre les pastilles et la gaine, de l'ordre de 120 μm en tout début de vie à chaud, se ferme après deux années du fait du gonflement des pastilles sous irradiation et du fluage (fluage thermique et fluage d'irradiation) de la gaine soumise à une contrainte de compression sous l'effet de la pression du réfrigérant, supérieure à la pression interne du crayon.



Gaine rompue par PCMI
CABRI REP-Na8
(Papin et al., 2007)

Gaine rompue
par gonflement local
(Waeckel, 1997)

CABRI REP-Na1
(Schmitz and Papin, 1999)

Figure 1.43 – Déroulement d'un RIA et conséquences sur le comportement des crayons combustibles.

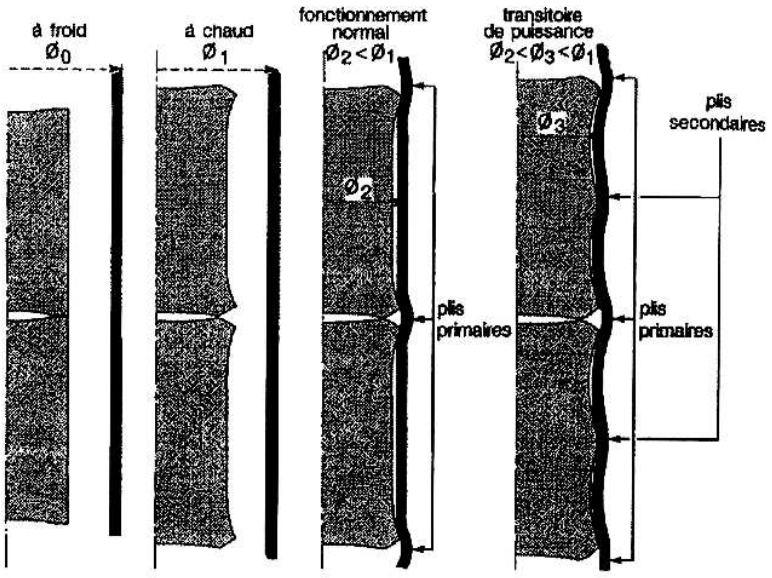


Figure 1.44 – Interaction pastille–gaine (Sauter, 2000).

- stable de type déplacement imposé ;
- multiaxial (traction circonférentielle combinée à une traction axiale) avec un rapport de biaxialité des déformations axiale et circonférentielle compris entre 0 (traction plane dans la direction ciconférentielle) et 1 (traction équibaxiée) [15] (Figure 1.45) (Cazalis et al., 2007) ;
- rapide (vitesse de déformation tangentielle de l'ordre de $1\,s^{-1}$ [16]).

Au cours de cette phase, la température de la gaine reste modérée, en général inférieure à 600 °C. Les gaines les plus fragilisées par leur séjour en réacteur (irradiation, corrosion, hydruration, ...) sont alors susceptibles de rompre de manière partiellement fragile (Fuketa et al., 1996, 1997; Schmitz and Papin, 1999; Fuketa and Sasajima, 2001; Papin et al., 2007). Du fait de la déformation de la gaine au cours du transitoire, une desquamation de la couche d'oxyde a également été observée (Desquines et al., 2005c; Georgenthum et al., 2006; Papin et al., 2007). Ce phénomène modifie les échanges thermiques entre la gaine et le réfrigérant (création de zones froides plus fragiles, modification de l'apparition de la crise d'ébullition) et conduit à une ovalisation (déformation non uniforme) de la gaine.

[15] L'état de déformation dépend des conditions de contact entre les pastilles et la gaine : la déformation est plane dans le cas d'un contact sans frottement (« lubrification » due à un éventuel rim autour des pastilles) et équibiaxiale lorsqu'il n'y a aucun glissement. Dans le cas d'un comportement mécanique isotrope de la gaine, le rapport des contraintes axiale et circonférentielle est compris entre 0.5 (traction plane circonférentielle) et 1 (traction équibiaxiale).

[16] A titre de comparaison, la vitesse de déformation tangentielle imposée par la pastille à la gaine lors d'une rampe de puissance ($100\,W.cm^{-1}.min^{-1}$) est de l'ordre de 10^{-5}–$10^{-4}\,s^{-1}$.

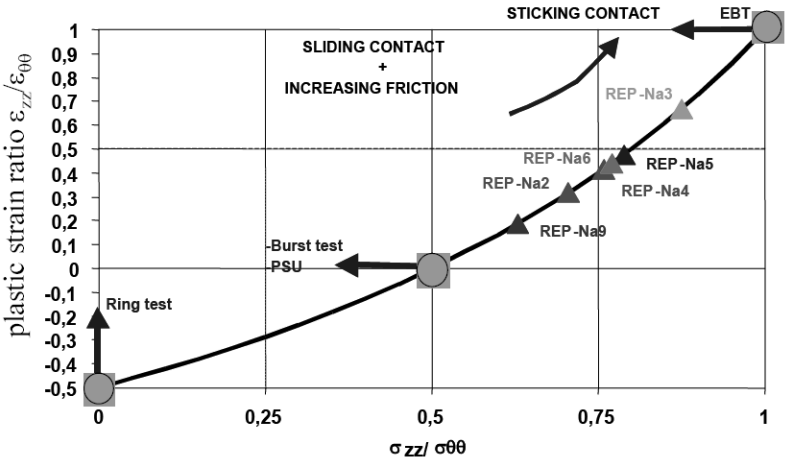


Figure 1.45 – Rapports des déformations et des contraintes axiales et circonférentielles (hypothèse de plasticité isotrope) moyennes déduits des essais CABRI REP–Na et rapports de biaxialité caractéristiques des principaux essais de laboratoire réalisés dans le cadre des études traitant du comportement des gaines de crayons combustibles en conditions de type RIA (EBT : traction équibiaxée par emboutissage, PSU : traction plane circonférentielle sur anneau large entaillé) (Cazalis et al., 2007).

c) Crise d'ébullition et relâchement des gaz de fission

Dans un second temps, dans l'hypothèse où le crayon aurait résisté à la phase de PCMI, la température de la gaine augmente significativement du fait de la chaleur transférée par le combustible. Une crise d'ébullition (DNB, Departure from Nucleate Boiling) de l'eau surchauffée entourant le crayon, suivie d'un assèchement de la paroi externe de la gaine [17], peut alors se produire (Fuketa et al., 1996, 1997; Fuketa and Sasajima, 2001). La présence d'une couche d'oxyde externe retarde l'activation de la crise d'ébullition, qui se trouve par ailleurs écourtée. Sugiyama and Fuketa (2001) constatent que ce phénomène ne dépend pas de l'épaisseur de la couche d'oxyde et précisent qu'il semble gouverné par un changement de potentiel chimique plutôt que par un changement de rugosité de la surface en contact avec le réfrigérant. Lors d'une DNB, la température de la gaine peut dépasser 800 °C pendant plusieurs secondes, jusqu'à l'intervention du remouillage. La résistance mécanique de la gaine chute alors de manière significative.

Parallèlement, la pression à l'intérieur du crayon combustible augmente considérablement en raison du relâchement, suite à la fragmentation du combustible, des gaz de fission (FGR, Fission Gas Release) occlus dans la pastille (Fuketa et al., 1997; Lemoine, 1997; Lemoine and Balourdet, 1997; Sasajima et al., 1999; Schmitz and Papin, 1999; Fuketa and Sasajima, 2001; Papin et al., 2007). Ce relâchement peut atteindre 20%. Le FGR est accentué pour les crayons combustibles fortement irra-

[17] formation d'un film de vapeur, mauvais conducteur de chaleur, qui se formerait autour du crayon alors isolé de l'eau de refroidissement.

diés, en particulier dans le cas des combustibles MOX qui renferment une grande quantité de gaz de fission. Le chargement mécanique résultant, qui se traduit par un chargement de pression instable sollicitant la gaine avec un rapport de biaxialité des contraintes axiale et circonférentielle proche de 0.5, intervient principalement après la phase de PCMI (après réouverture du jeu entre la pastille et la gaine au cours de la phase de refroidissement du RIA succédant à pic de puissance) (Lemoine and Balourdet, 1997). La gaine, soumise à de fortes températures et à un différentiel de pression positif entre l'atmosphère interne du crayon et le réfrigérant, peut alors rompre par éclatement suite à un gonflement local.

d) Remouillage

Un troisième mode de rupture peut intervenir lors de la phase de remouillage succédant à la crise d'ébullition. En effet, la trempe à laquelle serait soumise la gaine, alors extrêmement chaude, peut conduire à une rupture fragile, d'autant plus aisément que son oxydation, accélérée par les fortes températures rencontrées lors du transitoire RIA, est importante. En outre, lors de la phase de refroidissement, les hydrures présents dans la gaine, et dont une partie, voire la totalité, a été remise en solution au cours du transitoire, reprécipitent sous contrainte. Ces hydrures radiaux, dont la normale est parallèle à la direction principale de chargement (direction circonférentielle), fragilisent considérablement le matériau (Daum et al., 2006; Chu et al., 2007). Néanmoins, bien que des hydrures radiaux soient souvent observés dans les gaines irradiées ayant subi un transitoire de type RIA, aucune rupture n'a jusqu'à présent été constatée lors de la phase de remouillage.

e) Ejection du combustible après rupture

En cas de rupture de la gaine, le combustible fragmenté et extrêmement chaud peut se disperser dans le réfrigérant et conduire à la production d'une énergie mécanique (vaporisation de l'eau de refroidissement avec génération d'un pic de pression) susceptible d'endommager les assemblages voisins, voire même les composants internes et la cuve du réacteur.

1.2.2 Rupture par interaction mécanique pastille–gaine

a) Influence du transitoire et des conditions pré-accidentelles

La phase du transitoire de puissance durant laquelle la gaine est la plus susceptible de rompre dépend du taux de combustion du matériau au moment du transitoire (figure 1.46). La rupture par PCMI est unanimement considérée comme la plus restrictive pour les crayons à fort taux de combustion (>30–40 GWj/t), fragilisés durant leur séjour en réacteur. La rupture à haute température post–DNB semble être la plus limitative pour les crayons vierges ou peu irradiés. Le risque

de rupture post–DNB augmente avec l'énergie accumulée par le crayon combustible durant le transitoire. Les mécanismes de rupture des gaines lors de la phase de PCMI sont relativement bien identifiés grâce à l'analyse des essais réalisés dans les réacteurs CABRI et NSRR en particulier [18]. Par ailleurs, l'autorisation d'augmenter le taux de combustion des crayons combustibles REP requiert la vérification de la tenue des gaines à forts taux de combustion. Ainsi, notre effort de recherche est essentiellement consacré à l'étude du comportement et de la rupture des gaines lors de la phase de PCMI.

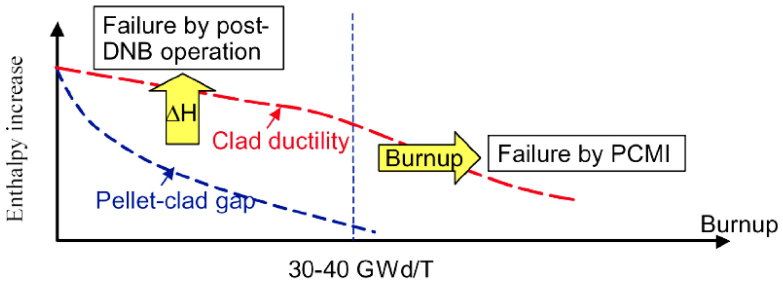


Figure 1.46 – Rupture des gaines en fonction de leur taux de combustion massique et de l'enthalpie déposée dans le crayon combustible au cours du transitoire (Rudling et al., 2005).

Le chargement engendré par PCMI dépend du jeu pastille/gaine avant le transitoire RIA [19]. Une fois le jeu entre la pastille et la gaine fermé, le glissement entre ces deux éléments est peu probable (Nakamura et al., 2000). Le gonflement du combustible est alors directement transféré à la gaine (efforts circonférentiels et axiaux). Montgomery et al. (2004) indiquent qu'en conditions de PCMI, le frottement entre la pastille et la gaine a une influence significative sur la distribution des contraintes et des déformations dans les gaines présentant un blister d'hydrures en périphérie externe. Une réduction du coefficient de frottement accentue la localisation de la déformation dans le substrat et facilite par conséquent la rupture de la gaine. Pour les forts coefficients de frottement, l'ensemble de la circonférence de la gaine intervient dans le processus de déformation et la localisation est retardée. Par ailleurs, le travail à fournir pour localiser la déformation dans le ligament sous–jacent au blister d'hydrures est plus important en PCMI qu'en pression interne.

Le transitoire caractérisant le RIA est habituellement qualifié par la largeur du pic de puissance et la quantité totale d'énergie déposée. Le retard entre le chargement mécanique et l'échauffement de la gaine dépend de la largeur du pic de puissance (figure 1.47). Une augmentation rapide de la puissance engendre par PCMI dans la

[18] Les essais CABRI REP–Na ont été réalisés dans une boucle sodium à 280 °C. Les essais NSRR ont été conduits en eau à température ambiante à pression atmosphérique. Ces conditions thermo-hydrauliques ont permis d'étudier le comportement des crayons combustibles REP durant la phase de PCMI qui se produit sans échauffement significatif de la gaine. En revanche, la phase de DNB et les phénomènes post–rupture n'ont jusqu'à présent pu être correctement reproduits.

[19] Pour rappel, le jeu entre les pastilles et la gaine est totalement fermé après environ 2 cycles d'irradiation en REP en conditions normales de fonctionnement.

gaine, dont la température n'a pas eu le temps de croître significativement, de fortes contraintes et déformations. Ainsi, la rupture des gaines à fort taux de combustion, dont la ductilité et la ténacité sont faibles à basses températures, est favorisée lorsque le pic de puissance est étroit. Dans le cas de pics de puissance plus larges, la température de la gaine augmente conjointement avec le chargement mécanique. Le risque de rupture fragile de la gaine dès les premiers instants du transitoire est alors réduit dans la mesure où la ductilité du matériau augmente avec la température (effet intrinsèque de la température, réduction de l'effet de l'hydrogène, restauration des défauts d'irradiation).

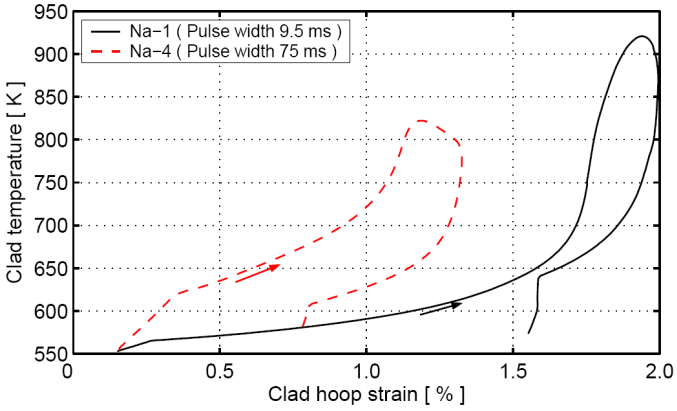


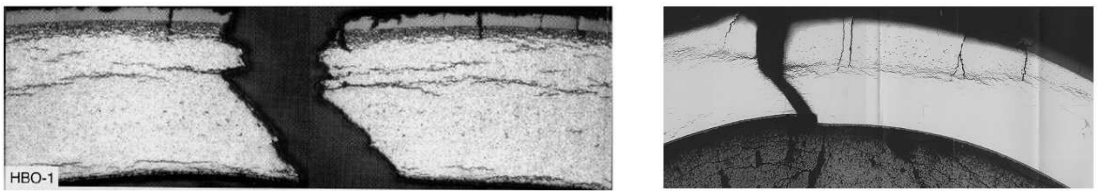
Figure 1.47 – Evolution des valeurs moyennes radiales, se rapportant aux positions axiales où la puissance est maximale (plan de flux maximum), de la température et de la déformation calculées à l'aide de SCANAIR pour les essais CABRI REP–Na 1 et REP–Na 4 (Jernkvist et al., 2003).

b) Mécanismes de rupture

L'interprétation des essais réalisés dans les réacteurs NSRR et CABRI ont permis d'identifier les mécanismes de rupture des gaines à fort taux de combustion lors de la phase de PCMI (Fuketa et al., 1997; Lemoine and Balourdet, 1997; Chung and Kassner, 1998; Schmitz and Papin, 1999; Chung, 2000; Papin et al., 2007). Lors des essais CABRI REP–Na 8 et Na 10, les gaines irradiées à environ 60 GWj/t ont rompues pour des déformations circonférentielles moyennes de l'ordre de 1%, illustrant la faible ductilité macroscopique du matériau. Le processus de rupture se déroule en deux étapes : la première concerne la propagation à travers l'épaisseur de la gaine de fissures amorcées dans des couches externes fragiles ; la seconde implique la propagation axiale de ces fissures traversantes, aboutissant à de longues fissures axiales.

Propagation radiale des fissures. Le chargement multiaxial engendré par le gonflement thermique et gazeux du combustible conduit, dès les premières déformations plastiques de la gaine, à l'amorçage de fissures radiales dans les couches fragiles riches en hydrogène (rims et blisters d'hydrures) présentes en

périphérie externe des gaines des crayons fortement irradiés. Les ruptures observées dans ces couches externes révèlent typiquement un faciès de rupture fragile, du moins pour des températures modérées (Fuketa et al., 1996). La fissure se propage ensuite dans le substrat vers la paroi interne de la gaine de manière généralement ductile (figure 1.48). La rupture des gaines lors de la phase de PCMI dépend donc fortement de l'épaisseur des couches externes denses en hydrures, et par conséquent de la taille initiale des fissures (Daum et al., 2002b, a; Pierron et al., 2003; Glendening et al., 2005; Nagase and Fuketa, 2005; Cazalis et al., 2007; Hermann et al., 2007).



(a) (b)

Figure 1.48 – Ruptures amorcées (a) dans un rim d'hydrures lors de l'essai HBO–1 réalisé dans le réacteur NSRR (Fuketa et al., 1996), et (b) dans un blister d'hydrures lors de l'essai CABRI REP–Na 8 (Papin et al., 2007).

La propagation des fissures amorcées dans les couches externes fragiles est limitée dans le substrat, plus ou moins ductile selon la température, l'irradiation et la teneur en hydrogène. Néanmoins, la zone de rupture ductile est également observée pour les gaines à fort taux de combustion. Le substrat rompt par localisation de la déformation à travers l'épaisseur de la gaine dans une bande de cisaillement orientée à 45° par rapport aux directions radiale et circonférentielle du tube. Cette localisation de la déformation en cisaillement est probablement favorisée par :

- les températures relativement élevées, qui conduisent à une diminution du coefficient d'écrouissage du matériau et à une augmentation de la déformation nécessaire à la germination de cavités ;
- l'état irradié du matériau, qui présente alors naturellement une forte tendance à la localisation de la déformation ;
- le chargement mécanique, proche d'une traction plane dans la direction circonférentielle, auquel est soumise la gaine lors de la phase de PCMI.

Une zone de transition est couramment observée entre la zone de rupture fragile à l'extérieur de la gaine et la zone de rupture ductile dans le substrat (Desquines et al., 2005b; Cazalis et al., 2007; Hermann et al., 2007). La propagation des fissures s'y effectue selon la direction radiale, *a priori* par pseudo–clivage. La taille de cette zone dépend notamment des distributions des hydrures et de la température à travers l'épaisseur de la gaine. Les faibles températures, les fortes concentrations en hydrogène et la présence d'hydrures radiaux en pointe de fissure – à la fin de l'étape de rupture fragile dans les

couches externes – favorisent cette phase de transition. L'influence du gradient de concentration en hydrogène sur la transition fragile/ductile de la rupture semble être prépondérante par rapport à celle du gradient de température ; ce type de rupture fragile/ductile est aussi bien observé lors d'un transitoire de puissance en réacteur, induisant un gradient de température important selon l'épaisseur de la gaine (Fuketa et al., 1996, 1997), que lors d'essais de laboratoire réalisés à température homogène (Desquines et al., 2005b; Cazalis et al., 2007).

Propagation axiale des fissures. Généralement, seules quelques unes des fissures radiales amorcées dans les couches externes fragiles conduisent à des fissures traversantes. La propagation instable de ces défauts initiaux, d'extension axiale limitée, selon la direction axiale de la gaine est supposée intervenir dans un second temps (Chung and Kassner, 1998). Cette propagation axiale s'effectue généralement selon un chemin préférentiel influencé par les zones riches en hydrogène (figure 1.49) (Fuketa et al., 1997).

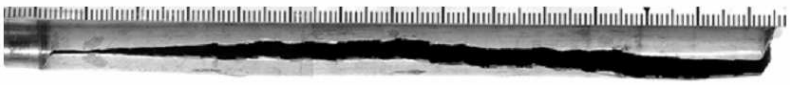


Figure 1.49 – Gaine de crayon combustible rompue lors de l'essai OI-11 réalisé au NSRR (Fuketa et al., 2005).

La propagation des fissures à travers l'épaisseur de la gaine dépend de la ductilité du matériau, caractérisant sa capacité à se déformer sans se rompre, tandis que la propagation axiale des fissures initiales est liée à la ténacité et au module de déchirement du matériau, qui contrôlent l'activation et l'arrêt de la propagation.

1.2.3 Essais de caractérisation et critères de rupture

a) Introduction

Pour prévoir, à l'aide de codes de calculs, le comportement des crayons combustibles en situation de RIA, il est nécessaire de tenir compte, à l'échelle du réacteur, de nombreux phénomènes complexes tels que le comportement thermique et thermohydraulique du crayon, le comportement transitoire des gaz de fission et le comportement mécanique du combustible et de la gaine. Pour conserver des temps de calculs acceptables, le formalisme des modèles introduits dans les codes de calcul pour décrire chacun de ces phénomènes doit rester relativement simple. En particulier, pour représenter la rupture des gaines, il n'est pas envisageable d'exploiter directement des modèles aussi « complexes » que ceux évoqués en partie 1.1.5, qui décrivent à une échelle plus ou moins fine les mécanismes physiques mis en jeu. Les critères de rupture utilisés – ou du moins qui pourraient l'être – dans les codes de calcul dédiés à la simulation du comportement des crayons combustibles lors d'un

RIA sont « globaux ». Déterminés à partir d'essais de caractérisation mécanique « analytiques » réalisés en laboratoire, ils sont généralement exprimés en terme de déformation à rupture ou de densité d'énergie de déformation à rupture. Ces critères ne sont donc pas intrinsèques au matériau et dépendent de la géométrie et du chargement. Leur pertinence repose par conséquent sur la représentativité, vis–à–vis du chargement subi par la gaine lors du transitoire, des essais de caractérisation de laboratoire. Plus précisément, en se concentrant sur l'étude de la rupture des gaines lors de la phase de PCMI, ces essais doivent être représentatifs en terme de :

- température : comprise entre 300 °C et 600 °C environ lors de la phase de PCMI [20] ;
- vitesse de chauffage : environ 100 °C.s^{-1} [21] ;
- vitesse de déformation circonférentielle : entre 0.1 et 1 s^{-1} ;
- état de contraintes et de déformations : chargement compris entre une traction plane selon la direction circonférentielle (déformation axiale nulle) et une traction équibiaxiale selon les directions circonférentielle et axiale ;
- mode de rupture : propagation de fissures à travers l'épaisseur de la gaine et propagation axiale de ces fissures traversantes.

Il est également nécessaire que ces essais soient réalisés sur un matériau dont la microstructure et la géométrie soient proches de celles du matériau utilisé en réacteur.

b) Critères de rupture en déformation

Les critères de rupture exprimés en terme de déformation sont fondés sur l'hypothèse que la gaine rompt lorsque sa déformation dépasse une déformation critique.

Link et al. (1998) ont mis au point un essai de traction sur anneaux larges entaillés pour déterminer la déformation à rupture des gaines en conditions de traction plane selon leur direction circonférentielle. Le mode de rupture dans la région centrale de l'éprouvette, sollicitée en traction plane, est similaire à celui des gaines lors de la phase de PCMI. Cet essai a été exploité par Daum et al. (Daum et al., 2002b, a, c) pour déterminer, à des températures de 25 °C et 300 °C et des vitesses de déformation de 0.001 s^{-1} et 0.2 s^{-1}, la déformation locale à rupture de gaines en Zircaloy–4

[20] La température de la gaine lors de la phase post–DNB est supérieure à 800 °C. Bien que les températures inférieures à 300 °C ne soient pas directement utiles dans le cadre des études RIA, elles le sont pour l'interprétation des essais réalisés à partir de la température ambiante dans le réacteur NSRR par exemple.

[21] Au cours du transitoire RIA, la température de gaine augmente à une vitesse d'environ 1000 °C.s^{-1}. Les essais de laboratoire étant réalisés à température constante, de telles vitesses de chauffage ne sont pas nécessaires. Toutefois, pour les essais réalisés à des températures supérieures à la température d'irradiation, la vitesse de chauffe permettant d'atteindre la température de consigne doit être suffisante afin d'éviter d'éventuels recuit des défauts d'irradiation, redistribution des hydrures et/ou recristallisation du matériau. Les défauts d'irradiation du matériau porté à plus de 600 °C sont totalement recuits en seulement quelques dizaines de secondes (Lowry et al., 1981; Tomimura et al., 1996). La recristallisation du matériau est plus lente (Dunlop et al., 2007). Des vitesses de chauffe d'au moins 100 °C/s sont donc nécessaires pour les essais réalisés à des température élevées.

détendu non irradiées présentant un rim d'hydrures en périphérie externe. Les déformations locales à rupture sont mesurées après essai en paroi externe de l'éprouvette à l'aide d'une technique de micro–indentation. Deux mesures de déformation sont proposées :

- une déformation limite, correspondant à la déformation moyenne dans la zone utile de l'éprouvette rompue [22] ;
- une déformation à rupture locale.

Jernkvist (2006) a déterminé, en fonction de la température (de 20 °C à 400 °C), la vitesse de déformation (de $5 \cdot 10^{-5}\,\mathrm{s}^{-1}$ à $1\,\mathrm{s}^{-1}$), la teneur en hydrogène (de 0 ppm à 1941 ppm) et la fluence (de $0\,\mathrm{n.m}^{-2}$ à $12 \cdot 10^{25}\,\mathrm{n.m}^{-2}$), une déformation circonférentielle à rupture pour les gaines en Zircaloy–2 recristallisé et en Zircaloy–4 détendu. Les déformations à rupture sont calculées à partir des allongements totaux (déduits des réponses mécaniques macroscopiques) mesurés lors d'essais de traction axiale ($\sigma_{zz}/\sigma_{\theta\theta} \approx \infty$) et d'éclatement par pressurisation interne avec ($\sigma_{zz}/\sigma_{\theta\theta} \approx 0$) et sans ($\sigma_{zz}/\sigma_{\theta\theta} \approx 0.5$) reprise de l'effet de fond. Les biaxialités du chargement caractéristiques de ces essais étant différentes de celle du chargement par PCMI ($\sigma_{zz}/\sigma_{\theta\theta} \approx 1$), un facteur de correction, fonction de l'essai considéré, est appliqué aux déformations totales pour évaluer les déformations circonférentielles à rupture.

En s'inspirant de précédents travaux (Kuroda et al., 2001; Yamanaka et al., 2002; Kuroda and Yamanaka, 2002; Pierron et al., 2003), Desquines et al. (2005b) ont utilisé le concept de la mécanique de la rupture élastoplastique pour déterminer une déformation circonférentielle à rupture en fonction de l'épaisseur des couches externes denses en hydrures. Pour cela, les blisters et rims d'hydrures sont sans distinction assimilés à des défauts préexistants. Cette analyse est fondée sur les allongements globaux à rupture déduits des essais de traction circonférentielle sur anneau réalisés dans le cadre du programme PROMETRA. En combinant cette approche avec une relation probabiliste reliant la taille des défauts et l'épaisseur de la couche de zircone ou à la teneur moyenne en hydrogène, Desquines and Fleurot (2005) ont établi un modèle probabiliste du risque de rupture de la gaine lors d'un RIA, exprimé en fonction de la déformation circonférentielle, l'épaisseur de la couche de zircone (ou de la teneur moyenne en hydrogène), de la température et de la hauteur du crayon considérée. On notera l'absence de données expérimentales – nécessaires à l'élaboration de ce critère – concernant la ténacité du matériau pour des températures supérieures à 400 °C (figure 1.50). Ce critère de rupture est actuellement utilisé par l'IRSN dans le code de calcul SCANAIR.

c) Critères en densité d'énergie de déformation

Les critères de rupture exprimés en terme d'énergie de déformation sont basés sur la détermination d'une densité d'énergie de déformation plastique critique au-delà de laquelle le matériau rompt. La densité d'énergie de déformation plastique à rupture est calculée, à l'aide d'un modèle décrivant le comportement mécanique du

[22] La déformation limite peut être considérée comme une borne inférieure de la déformation à rupture des gaines non irradiées hydrurées.

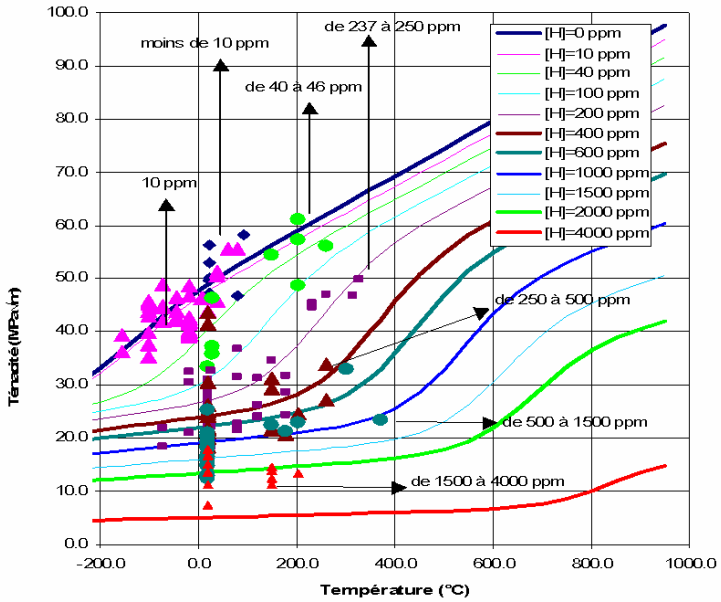


Figure 1.50 – Ténacité du Zircaloy en fonction de la température pour différentes teneurs moyennes en hydrogène (Desquines and Fleurot, 2005).

matériau, à partir des courbes contrainte–déformation expérimentales mesurées lors d'essais mécaniques de laboratoire. L'intérêt et la validité des critères de rupture en énergie de déformation critique ont été discutés par Motta (2004).

La densité d'énergie de déformation critique, utilisée dans FALCON, a été évaluée par l'EPRI (Montgomery and Rashid, 1997; Rashid et al., 2000; Yang et al., 2000; Rashid et al., 2004) à partir des résultats d'essais de traction axiale, traction circonférentielle et éclatement par pressurisation interne réalisés à $7 \cdot 10^{-5}\,\mathrm{s}^{-1}$, entre 40 °C et 400 °C, sur des échantillons de gaine en Zircaloy–4 irradiés jusqu'à un taux de combustion de 68 GWj/t (fluence, épaisseur de couche d'oxyde et teneur en hydrogène jusqu'à $12 \cdot 10^{25}\,\mathrm{n.m}^{-2}$, 120 μm et 800 ppm, respectivement). Pour tenir compte de la différence de biaxialité du chargement entre le cas réel et les essais de traction axiale et traction circonférentielle, des facteurs de correction sont appliqués aux déformations totales à rupture mesurées. La densité d'énergie de déformation plastique à rupture est finalement exprimée en fonction de l'épaisseur de la couche d'oxyde [23].

Le même type d'approche est proposée par EdF (Bernaudat and Pupier, 2005; Leclercq et al., 2008). La base de données expérimentales exploitée pour établir ce critère comprend les résultats d'essais de traction circonférentielle et d'éclatement par pressurisation interne réalisés aux USA pour l'EPRI ainsi que dans le cadre du programme PROMETRA (températures de 20 °C à 600 °C, vitesses de déformation de $0.01\,\mathrm{s}^{-1}$ à $5\,\mathrm{s}^{-1}$, taux de combustion massique jusqu'à 68 GWj/t, épaisseur de couche d'oxyde jusqu'à 120 μm). Les essais réalisés à des températures inférieures à 280 °C sont rejetés. Les essais de traction axiale ne sont pas retenus car le mode

[23] La teneur en hydrogène est une fonction croissante de l'épaisseur de la couche de zircone.

de rupture des éprouvettes n'est pas représentatif. Des facteurs de correction sont appliqués pour corriger les différences de vitesse de déformation et de biaxialité des déformations [24]. Enfin, une borne inférieure de la densité d'énergie de déformation plastique critique est établie en fonction de l'épaisseur de la couche de zircone (Leclercq et al., 2008) ou du taux de combustion moyen (Bernaudat and Pupier, 2005). Ce critère est utilisé dans SCANAIR par EdF.

On notera que le calcul de la densité d'énergie de déformation dépend du modèle utilisé pour décrire le comportement mécanique du matériau. L'utilisation, pour l'élaboration des critères de rupture en déformation critique ou en densité d'énergie de déformation critique, des résultats d'essais de traction axiale et de traction circonférentielle est discutable dans la mesure où, même en admettant que les facteurs de correction permettent de s'affranchir de la différence des chargements mécaniques, les modes de rupture ne sont pas représentatifs de ceux générés par PCMI. Les incertitudes liées à cette démarche sont d'autant plus importantes que les critères sont généralement établis à partir de données globales issues des réponses macroscopiques des éprouvettes [25]. Conscients des limitations de cette approche, Leclercq et al. (2008) ont très récemment mis au point un essai d'électromagnétoformage qui devrait permettre de reproduire plus fidèlement le chargement mécanique et le mode de rupture de la gaine lors de la phase de PCMI.

Afin d'établir un critère en densité d'énergie de déformation à rupture, Grigoriev et al. (2001) ont développé, puis validé à l'aide de simulations par éléments finis (Dufourneaud et al., 2002), un essai d'expansion due à la compression visant à simuler le chargement engendré par PCMI. Cet essai consiste à solliciter mécaniquement un échantillon de gaine grâce à l'expansion radiale d'une pastille cylindrique en Teflon [26] placée à l'intérieur de l'éprouvette et comprimée axialement entre deux pistons. La densité d'énergie de déformation critique est calculée à partir de la courbe force–déplacement, qui permet de calculer l'énergie injectée dans l'échantillon, et des variations de diamètre moyenne et à rupture du tube.

1.3 Synthèse

Cette étude bibliographique a permis de faire un état des lieux non exhaustif des connaissances actuelles sur la microstructure, les modes de déformations plastiques ainsi que le comportement mécanique, l'endommagement et la rupture des alliages de zirconium, et plus particulièrement du Zircaloy–4. Le déroulement des accidents d'injection de réactivité, les processus de rupture éventuels des gaines au cours du

[24] Le facteur de correction de biaxialité des déformations est exprimé en fonction de la teneur en hydrogène.

[25] Lorsque l'éprouvette rompt après striction, la déformation globale à rupture dépend directement de la géométrie de l'éprouvette : la déformation totale à rupture tend vers l'allongement réparti lorsque la longueur utile de l'éprouvette augmente. Il conviendrait plutôt d'utiliser des valeurs locales de déformations à rupture (réductions de section à rupture par exemple).

[26] L'utilisation de Teflon limite la température d'exploitation de l'essai à 340 °C environ.

transitoire et les principaux critères de rupture utilisés pour les gaines dans ce cadre ont également été détaillés. Les principaux points à retenir sont les suivants :

- Le Zircaloy–4 est un alliage de zirconium contenant principalement de l'étain, du fer, du chrome et de l'oxygène. L'oxygène est en solution solide interstitielle et l'étain est en solution solide substitutionnelle. Le fer et le chrome sont présents sous la forme de précipités de phase de Laves $Zr(Fe,Cr)_2$. Le matériau est constitué de grains de Zr–α de structure hexagonale compacte allongés selon la direction de laminage. Le matériau présente une texture cristallographique anisotrope marquée : les axes $\langle c \rangle$ de la maille hexagonale sont situés à $\pm 30 - 40°$ autour la direction radiale du tube dans le plan radial–circonférentiel et les directions $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ sont majoritairement orientées selon la direction axiale.
- La microstructure du matériau évolue lors de son séjour en réacteur sous les effets de : (i) l'irradiation, dont les principales conséquences sont de créer de nombreuses boucles de dislocations $\langle a \rangle$ et d'amorphiser les précipités ; (ii) l'oxydation par l'eau du circuit primaire, qui conduit à la formation d'une couche de zircone externe et à l'absorption d'hydrogène qui, à partir d'une certaine teneur, précipite sous forme d'hydrures de zirconium δ.
- Le matériau non irradié se déforme principalement par glissement des dislocations $\langle a \rangle$ dans les plans prismatiques. Les glissements $\pi_1 \langle a \rangle$, $\pi_1 \langle c + a \rangle$ et $B \langle a \rangle$ sont occasionnellement observés selon la température, le niveau de déformation plastique et le type de sollicitation. Le matériau irradié se déforme par canalisation, *a priori* basale bien qu'il n'existe à l'heure actuelle pas de consensus sur le système de canalisation activé notamment en traction transverse.
- Le Zircaloy–4 présente un comportement mécanique élastoviscoplastique anisotrope. D'une manière générale, à l'exception d'éventuelles « anomalies » liées au phénomène de vieillissement dynamique, la résistance mécanique du matériau non irradié, qui présente un écrouissage mixte (isotrope et cinématique), décroît avec la température et croît avec la vitesse de déformation. L'irradiation conduit entre autres à un fort durcissement du matériau ainsi qu'à une diminution de l'allongement réparti, du moins pour des températures inférieures à la température d'irradiation. Le matériau est renforcé par les hydrures aux faibles températures. La texture cristallographique marquée du matériau lui confère des propriétés mécaniques anisotropes. Des modèles, macroscopiques ou polycristallins, ont été proposés pour décrire le comportement mécanique des alliages de zirconium en conditions normales de fonctionnement ou, plus rarement, en régime incidentel (rampe de puissance) peu intense.
- Généralement, la ductilité du matériau augmente avec la température et diminue légèrement avec la vitesse de déformation. Par ailleurs, elle décroît lorsque les éprouvettes présentent des entailles et/ou lorsque la triaxialité des contraintes augmente. L'irradiation provoque une perte de ductilité apparente du matériau, liée à une localisation précoce de la déformation. En outre, le matériau est fragilisé par les hydrures. Cette fragilisation dépend notamment de la température, l'état de contrainte et la distribution, la morphologie et l'orientation des hydrures. Des modèles, décrivant l'endommagement du matériau ou basés sur la mécanique de la rupture élastoplastique, ont été développés pour

analyser la rupture des alliages de zirconium hydrurés.

- L'accident d'injection de réactivité, causé par l'éjection intempestive d'une grappe de contrôle, conduit successivement au gonflement du combustible, qui génère une forte interaction mécanique pastille–gaine, et à une crise d'ébullition, au cours de laquelle la température de la gaine augmente considérablement ($> 800\,°C$). La phase de PCMI se traduit par un chargement mécanique multiaxial (compris entre une traction plane dans la direction circonférentielle et une traction équibiaxiale selon les directions circonférentielle et axiale) rapide (environ $1\,s^{-1}$) de la gaine, dont la température n'excède pas $600\,°C$. Durant la phase post–DNB, la gaine est soumise à un chargement de pression interne lié au relâchement des gaz de fission.
- La phase de PCMI est communément considérée comme la plus critique pour les gaines à fort taux de combustion, fragilisées durant leur séjour en réacteur. L'hydruration représente, devant l'irradiation et l'oxydation, le principal mécanisme de fragilisation responsable de la rupture des gaines lors de la phase de PCMI. La rupture des gaines lors de la phase de PCMI est systématiquement amorcée dans les couches externes fragiles denses en hydrures (rims et blisters d'hydrures). La propagation ultérieure de ces défauts à travers l'épaisseur de la gaine dépend notamment de la température, la vitesse de déformation, l'irradiation, la teneur en hydrogène et l'état de contrainte. Certaines des fissures traversantes peuvent se propager dans un second temps selon la direction axiale du tube.
- Les critères de rupture utilisés pour les gaines dans les codes de calcul servant à prévoir le comportement des crayons combustibles et à évaluer leur risque de rupture en situation de RIA sont, d'une manière générale, exprimés en terme de déformation à rupture ou de densité d'énergie de déformation à rupture. La justesse de ces critères « globaux » , établis à partir d'essais mécaniques de laboratoire, est intimement liée à la pertinence de ces essais.

Cette étude bibliographique a mis en exergue, dans le cadre des études relatives au comportement et à la rupture des gaines lors des RIA, un certain nombre de manques :

- Les modèles existants permettant de décrire le comportement mécanique des gaines en Zircaloy–4 détendu vierges ou irradiées ne sont pas adaptés aux conditions de sollicitations thermomécaniques spécifiques des RIA, notamment en terme de température et de vitesse de déformation.
- Des tôles sont souvent substituées aux tubes de gainage pour faciliter le développement et la réalisation d'essais mécaniques. Toutefois, bien que tout soit fait pour ce soit le cas, ces tôles ne présentent pas une microstructure et une texture rigoureusement identiques à celles des tubes. Or, ces caractéristiques ont une influence directe sur la morphologie des hydrures et les propriétés mécaniques du matériau.
- Bien que les études portant sur la caractérisation des propriétés mécaniques du Zircaloy–4 détendu hydruré soient nombreuses, les données pour les températures supérieures à $300\,°C$, qui sont d'un intérêt majeur dans le cadre des

études relatives au RIA, manquent.
- Il est pour le moment difficile de conclure quant à l'influence de l'hydrogène sur l'anisotropie plastique des alliages de zirconium, dans la mesure où les quelques résultats publiés à ce sujet divergent.
- Il n'existe pas de données quantitatives sur les cinétiques de germination et de croissance des cavités créées par rupture des hydrures dans les gaines en Zircaloy–4 détendu.
- La plupart des essais de laboratoire réalisés pour élaborer des critères de rupture pour les gaines des crayons combustibles ne reproduisent qu'approximativement le chargement thermomécanique auquel les gaines sont soumises lors de la phase de PCMI des RIA.
- L'influence, sur l'endommagement et la rupture des gaines en Zircaloy–4 détendu hydrurées, d'un chargement de traction plane ou de traction équibiaxiale par rapport à un chargement de traction uniaxiale n'est pas évidente.
- L'éventuelle anisotropie de l'endommagement des gaines en Zircaloy–4 détendu hydruré n'a, à notre connaissance, pas été abordée.

La démarche retenue dans le cadre de cette thèse pour répondre à ces besoins est la suivante :

1. Comportement mécanique du Zircaloy–4 vierge et irradié :
   - constitution d'une base de données expérimentales adaptée à l'étude du comportement mécanique, en conditions de type RIA, des gaines en Zircaloy–4 détendu vierges et irradiées ;
   - développement et identification d'un modèle pour décrire le comportement mécanique du matériau dans des domaines de température et de vitesses de déformation adaptés au contexte.
2. Comportement mécanique et rupture du Zircaloy–4 non irradié hydruré [27] :
   - développement et réalisation, à différentes températures, de divers essais mécaniques de laboratoire sur des échantillons de gaines en Zircaloy–4 détendu non irradiés hydrurés à différentes teneurs (hydrures circonférentiels) ;
   - analyse de l'endommagement et de la rupture du matériau en fonction des conditions de sollicitation.
3. Application de l'approche locale de la rupture pour modéliser le comportement et la rupture du Zircaloy–4 non irradié hydruré.

[27] Il existe une forte corrélation entre le niveau d'irradiation et le taux d'hydruration. Le fait de travailler sur le matériau non irradié hydruré permet d'isoler les effets, *a priori* importants, de l'hydrogène sur le comportement et la rupture du matériau.

Chapitre 2

Comportement mécanique du Zircaloy–4 vierge et irradié

Sommaire

2.1 Introduction 69
2.2 Experimental observations 70
2.2.1 Material and experimental database 70
2.2.2 Analysis of the experimental data 72
2.3 Model description 78
2.3.1 Model formulation 78
2.3.2 Model identification 80
2.3.3 Results and discussion 81
2.4 Example of FEA application 84
2.4.1 Introduction 84
2.4.2 Geometry and finite element modeling 85
2.4.3 Results and discussion 85
2.5 Conclusions 89
2.6 Résumé 90
2.7 Remarques complémentaires 91

Ce chapitre présente le modèle développé pour représenter le comportement mécanique, en conditions de type RIA, des gaines en Zircaloy–4 détendu vierges et irradiées. La base de données expérimentales constituée pour réaliser ce travail est dans un premier temps décrite. Le comportement viscoplastique anisotrope – ou plus précisément la résistance mécanique, l'écrouissage, la sensibilité de la contrainte à la vitesse de déformation et l'anisotropie plastique – du matériau sont ensuite analysés. La dépendance de ces propriétés vis-à-vis de la température, de la vitesse de déformation ainsi que du niveau et des conditions d'irradiation sont discutées. Dans une seconde partie, le formalisme du modèle proposé, basé sur une approche macroscopique phénoménologique, et la méthode d'ajustement des paramètres sont détaillés. Le modèle identifié est ensuite confronté aux résultats expérimentaux. Enfin, une analyse par éléments finis des essais de traction circonférentielle sur anneaux usinés, utilisant le modèle développé pour décrire le comportement mécanique du matériau de l'éprouvette, est présentée.

Ce travail a fait l'objet d'un article paru dans la revue Journal of Nuclear Materials. *L'article a été accepté dans sa version définitive, présentée ci-après, le 25 Avril 2008 (Le Saux et al., 2008). Après un résumé des principaux résultats obtenus, quelques remarques complémentaires seront apportées en fin de chapitre.*

A Model to Describe the Anisotropic Viscoplastic Mechanical Behavior of Fresh and Irradiated Zircaloy–4 Fuel Claddings under RIA Loading Conditions

M. Le Saux [a,⋆], J. Besson [b], S. Carassou [a], C. Poussard [c], X. Averty [a]

[a] *CEA-Saclay, DEN/DMN/SEMI, 91191 Gif-Sur-Yvette, France*
[b] *Mines ParisTech, Centre des Matériaux, CNRS UMR 7633, BP 87, 91003 Evry, France*
[c] *CEA-Saclay, DEN/DSNI, 91191 Gif-Sur-Yvette, France*
⋆ *Tel : +33 1 69 08 18 18, Fax : +33 1 69 08 93 24, E-mail : matthieu.lesaux@cea.fr*

Abstract

This paper presents a unified phenomenological model to describe the anisotropic viscoplastic mechanical behavior of Cold-Worked Stress Relieved (CWSR) Zircaloy–4 fuel claddings submitted to Reactivity Initiated Accident (RIA) loading conditions. The model relies on a multiplicative viscoplastic formulation and reproduces strain hardening, strain rate sensitivity and plastic anisotropy of the material. It includes temperature, fluence and irradiation conditions dependences within RIA typical ranges. Model parameters have been tuned using axial tensile, hoop tensile and closed-end internal pressurization tests results essentially obtained from the

PROMETRA program, dedicated to the study of zirconium alloys under RIA loading conditions. Once calibrated, the model provides a reliable description of the mechanical behavior of the fresh and irradiated (fluence up to $10 \cdot 10^{25}\,\mathrm{n.m^{-2}}$ or burnup up to 64 GWd/tU) material within large temperature (from 20 °C up to 1100 °C) and strain rate ranges (from $3 \cdot 10^{-4}\,\mathrm{s^{-1}}$ up to $5\,\mathrm{s^{-1}}$), representative of the RIA spectrum. Finally, the model is used for the finite element analysis of the hoop tensile tests performed within the PROMETRA program.

2.1 Introduction

The need to increase fuel burnup in Pressurized Water Reactors (PWR) initiated safety studies aiming at evaluating the consequences of postulated events on higher burnup fuels. Reactivity Initiated Accidents (RIA), for which the postulated initiator is the inadvertent ejection of a control rod, are among the most severe design basis accidents. This accident generates a fast energy injection in the fuel (about 50 ms), leading to a rapid expansion of the fuel pellets (with thermal and possibly fission gases contributions). The surrounding cladding tube is then submitted to Pellet Clad Mechanical Interaction (PCMI), which results in a strain–controlled multiaxial mechanical loading under high strain rate (typically $1\,\mathrm{s^{-1}}$) associated with a high heating rate (about $10^3\,\mathrm{°C.s^{-1}}$) thermal loading. Since the clad remains at fairly low temperatures during this early stage of the transient (below 800 °C if starting from hot zero power conditions), the fast mechanical loading generated may cause partially brittle failures of high burnup fuel claddings, embrittled due to metal-water reactions and accumulation of irradiation damage during reactor exposure. At a later stage of the transient, a Departure from Nucleate Boiling (DNB) may occur at the clad outer surface due to the heat transferred from the pellets. Then, the cladding material could remain at high temperatures (above 800 °C) for several seconds, until rewetting. During this fairly long period, rod internal pressure may increase, due to fission gas release after pellet–clad gap re-opening, and lead to clad failure through pressure-controlled clad ballooning. The evaluation of the risk of rod failure during RIAs currently requires the use of transient fuel behavior codes (Federici et al., 2001). These codes are developed in conjunction with full–scale experiments (Papin et al., 2007), in order to provide an accurate interpretation of the tests with the aim of transposing results to the reactor case.

For that purpose, suitable models are necessary to describe the mechanical behavior of fuel claddings under RIA conditions. Several models, either based on macroscopic constitutive equations (Delobelle et al., 1996; Schäffler et al., 2000; Jernkvist, 1999) or micromechanical polycrystalline descriptions (Onimus et al., 2004; Leclercq et al., 2007; Geyer, 1999), have been proposed in the literature to simulate the mechanical behavior of zirconium alloys cladding materials. However, most of them are not appropriate in the field of RIA studies as they are usually restricted to limited temperature and strain rate ranges specific of normal or slightly off-normal conditions. Moreover, micromechanical models still remain too complex and CPU–time

consuming to be used in transient fuel behavior codes, although efforts have been made to avoid these restrictions (Leclercq et al., 2007). Within this framework, the present paper proposes a macroscopic constitutive model to describe the anisotropic viscoplastic behavior of fresh and highly irradiated Cold-Worked Stress Relieved (CWSR) Zircaloy–4 fuel claddings under RIA loading conditions. Suitable out-of-pile tests results, essentially collected from the PROMETRA (TRAnsient MEchanical PROperties) program (Balourdet et al., 1999; Yvon et al., 2001; Desquines et al., 2005b; Cazalis et al., 2007), carried out in Commissariat à l'Energie Atomique (CEA) hot laboratories and undertaken by the French Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) in collaboration with Electricité de France (EdF) and CEA, have been gathered for the identification of the model parameters within temperature and strain rate ranges representative of those encountered during RIA transients.

This paper is organized as follows. The material under study and the selected experimental database are described in Section 2.2. The anisotropic viscoplastic mechanical properties of the material are then discussed. In particular, the influences of test temperature, strain rate, fluence and irradiation conditions are analyzed. In Section 2.3, the formulation of the proposed model is detailed and its ability to reproduce, once calibrated, the experimental data is illustrated. Finally, using the present model to describe the mechanical behavior of the cladding specimens, a Finite Element Analysis (FEA) of the hoop tensile tests performed within the PROMETRA program is presented in Section 2.4.

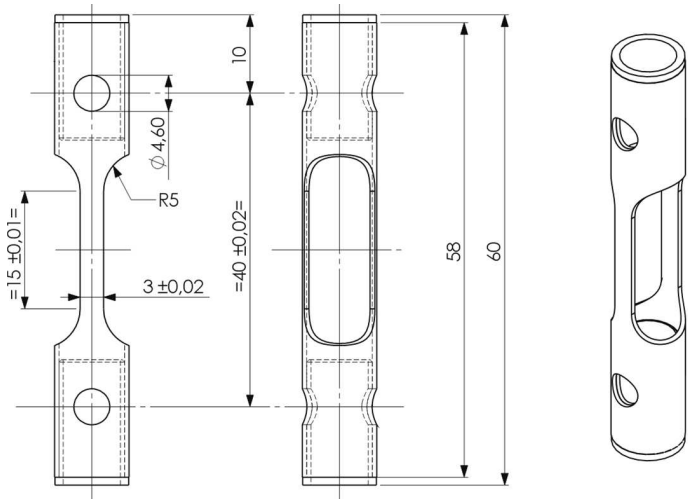
2.2 Experimental observations

2.2.1 Material and experimental database

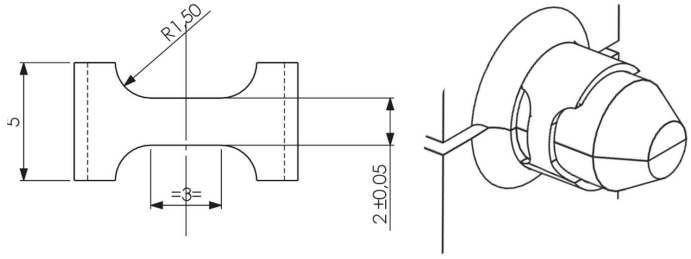
The material consists of CWSR Zircaloy–4 tubes, which is commonly used for fuel claddings in PWRs. Its weight composition is 1.2-1.7% Sn, 0.18-0.24% Fe, 0.07-0.13% Cr, 0.1-0.14% O, Zr balance, according to the ASTM B 350.90 specification. Before irradiation, the cladding tubes present a nominal external diameter and a thickness of 9.5 mm and 0.57 mm, respectively. The stress relieved state is obtained by heat treatment at a temperature lower than 500 °C. The grains then remain elongated along the rolling direction (tubes axial direction) and the density of dislocations is high, resulting in a high mechanical strength. The fabrication process of cladding tubes leads to the development of a strongly marked crystallographic texture of the material (typically, the $\langle c \rangle$ directions are symmetrically oriented at about 30° from the tube radial direction in the radial-tangential plane).

The PROMETRA experimental database was used to study the mechanical behavior of the material under thermal-mechanical loading conditions representative of those generated during RIAs. This database gathers uniaxial Axial Tensile (AT) and Hoop Tensile (HT) tests and biaxial (axial to hoop stress ratio of 0.5) closed–end Internal Pressurization (IP) burst tests results for the non–irradiated and the

irradiated material (fluence up to about $10 \cdot 10^{25}$ n.m^{-2} or burnup up to 64 GWd/tU). Geometries of the specimens tested within the PROMETRA program are detailed in Fig. 2.1. These tests were performed under high strain rate (from 0.01 s^{-1} to 5 s^{-1})



(a)



(b)

Figure 2.1 – (a) AT specimen and (b) HT specimen (mandrels used to load the specimen are shown on the right) tested within the PROMETRA program.

within a large temperature range (from 20 °C up to 1100 °C). The irradiated specimens were machined from fuel cladding tubes irradiated in French PWRs. Except for some IP samples, the oxide layer of irradiated tubes was mechanically removed beforehand. The tests were performed under constant temperature. A furnace heating technique (slow heating rate, about 0.2 °C/s) was used for the tests conducted below 480°C. For higher temperatures, fast heating techniques, using the Joule effect (about 100 °C/s) for AT tests and an induction heating system (about 200 °C/s) for HT tests, were used to minimize the potential annealing, hydrides redistribution or even recrystallization of the material (which are highly time-dependent processes (Yvon et al., 2001)). For AT and HT tests, engineering strain and engineering stress were calculated by dividing the cross–head displacement by the specimen initial gauge length and the applied force by the initial cross–section, respectively. For IP tests, the mean engineering hoop strain in the tube thickness is equal to $\Delta D_e/D_m$, where D_e and D_m are the external and the initial mean tube diameter, and the

difference between the engineering values of hoop and radial stresses is given by $PD_m/2t$, where P is the internal pressure and t is the initial tube thickness. In conformity with the negligible contribution during RIAs of elastic strains compared to plastic strains, the present paper only focuses on the inelastic behavior of the material. Parameters such as the yield stress at 0.2% plastic strain, $S_Y^{0.2\%}$, the ultimate (or maximum) stress, S_U, and the uniform elongation at the onset of necking (plastic strain which corresponds to S_U), e_U, were determined from the engineering stress-strain curves. True plastic strain and true stress are denoted ϵ^p and σ, respectively. Tests conducted on specimens machined in spalled areas of highly corroded claddings were not considered, since hydride blisters, which significantly affect the macroscopic mechanical behavior of the material, are generally observed in those regions (Cazalis et al., 2007). Moreover, the determination of hoop tensile stress–strain properties from HT tests performed on ring specimens is complex due to structural effects such as bending and friction. Nevertheless, as revealed by FEA of the HT tests performed within the PROMETRA program (described in Section 2.4), whereas the influence of these effects are significant within the elastic domain and at the onset of plasticity, one can assume that the ultimate stress is only slightly affected. Hence, for HT tests, only the ultimate stresses have been considered. Note that an international Round Robin, currently being pursued, has been launched in 2001 in order to compare the results obtained from different methods involving various sample geometries and experimental devices (Arsène and Bai, 1998; Daum et al., 2002c; Desquines et al., 2005b; Sugiyama et al., 2005) for generating hoop tensile properties (Billone, 2001).

Experimental results extracted from the open access (Limon et al., 1995; Elbachiri et al., 2003) and restricted literature were also used in order to enlarge the experimental database, in particular for low temperatures (from 20 °C to 350 °C) and low strain rates ($3 \cdot 10^{-4}\,\mathrm{s}^{-1}$). Due to confidentiality reasons, some of these data will not explicitly appear in the figures shown in this paper. Finally, the experimental database gathers 521 tests results divided as listed in Table 2.1. These data reveal an evident scatter, especially for the irradiated material, due to the various origins of the material and to uncertainties on irradiation and testing conditions. Furthermore, evaluation of uniform elongation is difficult due to the low hardening properties of the material.

2.2.2 Analysis of the experimental data

Strength, strain hardening, strain rate sensitivity and plastic anisotropy of the material have been analysed. Their dependence on temperature, fluence, irradiation conditions and plastic strain are discussed below.

a) Strength

For all testing conditions (AT, HT or IP tests), the flow stress of the fresh material normally decreases with increasing temperature, T, due to the increase of

Tableau 2.1 – Exploited experimental database.

Tests	Fresh material		Irradiated material[a]	
	Ranges	Number	Ranges	Number
AT	20–1100 °C $3 \cdot 10^{-4}$–5 s^{-1}	54	20–1100 °C $3 \cdot 10^{-4}$–5 s^{-1}	124
HT	20–900 °C $3 \cdot 10^{-4}$–5 s^{-1}	34	20–600 °C $3 \cdot 10^{-4}$–5 s^{-1}	168
IP	20–400 °C $3 \cdot 10^{-4}$–$1.5 \cdot 10^{-2}$ s^{-1}	59	20–350 °C $3 \cdot 10^{-4}$–$1.5 \cdot 10^{-2}$ s^{-1}	82

[a] from 1 cycle up to 5 cycles in PWR

dislocation mobility (Fig. 2.2(a)). A slight inflection can be observed between about 300 °C and 600 °C.

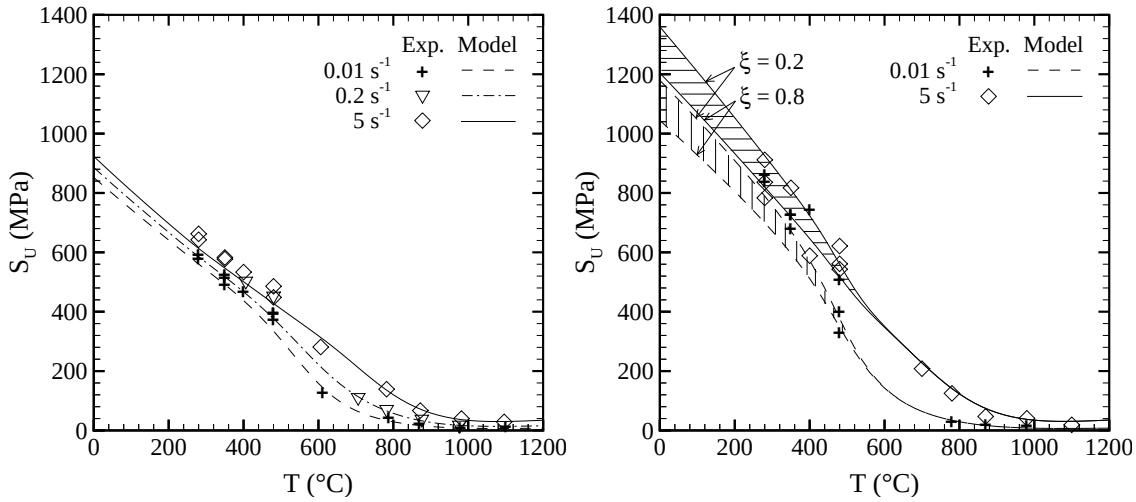


Figure 2.2 – Variation of the ultimate stress as a function of temperature and strain rate for AT tests performed (a) on the fresh material and (b) on the material irradiated for 5 cycles (fluence around 10.10^{25} n.m^{-2}).

Besides, comparison of Figs. 2.2(a) and 2.2(b) shows that neutron irradiation leads to a significant hardening (*i.e.* increase in flow stress) of the material, due to the formation of point defect clusters (high density of irradiation induced loops) that act as obstacles against the glide of deformation dislocations (Onimus et al., 2004; Northwood et al., 1979; Regnard et al., 2002). This effect is significant at low fluences, ϕ_t ($E > 1$ MeV), then quickly saturates beyond about $2 \cdot 10^{25}$ n.m^{-2} (*i.e.* one annual cycle in PWR). The saturation is related to a balance between the creation and the recombination of irradiation defects. The amplitude of the irradia-

tion hardening significantly decreases with increasing test temperature, in particular beyond the irradiation temperature (about 350 °C), due to a partial recovery of the non equilibrium microstructure of the irradiated material (reduction of the point defects density and growth of the irradiation induced loops). The flow stress of the irradiated material tends towards that of the non–irradiated material at high test temperatures, for which irradiation defects are quasi–instantaneously recovered according to literature results (see Tomimura et al. (1996) for example).

Moreover, mechanical properties of the material depend on irradiation conditions. Irradiation temperature is not uniform along fuel cladding tubes (it varies from about 320 °C to 380 °C) since temperature of the primary coolant is higher at the upper part of the assembly. As the external oxide layer acts as a heat insulator, the thermal gradient along fuel claddings is intensified by the faster clad oxidation kinetics for the higher, warmer spans. Therefore, in addition to fluence, the irradiation hardening amplitude depends on the original state of the tested specimen, which depends on its axial position along the tubes. Fig. 2.3 shows in accordance with the observations reported in Christodoulou et al. (2007) that, for a given neutron fluence, the flow stress of the material decreases with increasing normalized axial position $\xi = z/l$, where z is the axial position computed from the bottom of the assembly and l is the total length of the cladding tube (for example, $l = 3.66\,\mathrm{m}$ for french PWR 900 MW reactors). Actually, a higher irradiation temperature al-

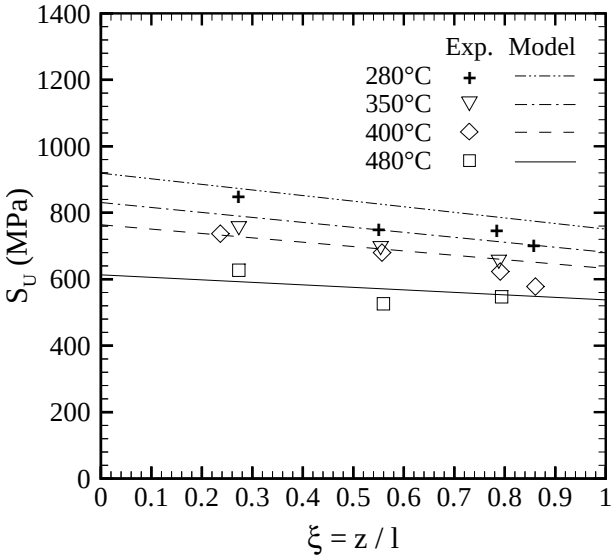


Figure 2.3 – Variation of the ultimate stress as a function of the normalized axial position of the specimen along the cladding tubes for HT tests conducted at various temperatures under a strain rate of $5\,\mathrm{s}^{-1}$ on the material irradiated for 5 cycles.

lows a more efficient recombination of point defects and thus a lower density of loops after irradiation (Northwood et al., 1979). One can expect that the axial position effect (or more specifically the irradiation temperature effect) is attenuated with increasing test temperature, in particular above the irradiation temperature.

Indeed, magnitude of the variation of material strength as a function of the axial position/irradiation temperature increases with increasing the irradiation time.

b) Strain hardening

As shown in Figs. 2.4 and 2.5, the instantaneous strain hardening exponent of the material

$$n = \frac{\partial \ln \sigma}{\partial \ln \epsilon^p} = \frac{\epsilon^p}{\sigma} \frac{\partial \sigma}{\partial \epsilon^p} \tag{2.1}$$

varies continuously during plastic deformation ; it slightly increases with plastic strain at low plastic strain levels (less than 0.5%) and decreases at higher strain levels. The influence of plastic strain on the strain hardening behavior of Zircaloy–

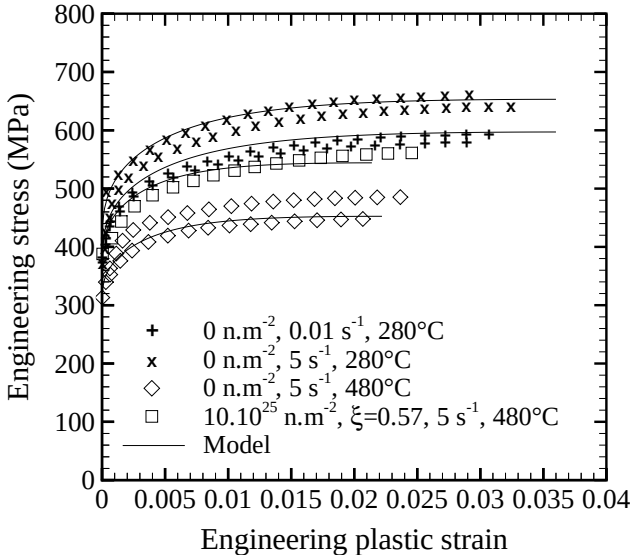


Figure 2.4 – Experimental (symbols) and simulated (lines) engineering stress–plastic strain curves (up to uniform elongation) for AT tests performed under various conditions on the non–irradiated material and the material irradiated for 5 cycles.

4 fuel claddings is often ignored by other investigators, who consider one average strain hardening exponent over a large plastic strain range. For example, an average strain hardening exponent of about 0.06 is reported in Link et al. (1998) for the fresh material at 300 °C. This value is in good agreement with the mean value, calculated up to uniform elongation, of the instantaneous strain hardening exponent depicted in Fig. 2.5. The instantaneous strain hardening globally decreases with increasing temperature, which is consistent with the thermally activated dislocation cross-slip and climb. Besides, it decreases with increasing irradiation, in particular for plastic strains close to the uniform elongation. Indeed, independently of plastic deformation, the flow stress σ increases with irradiation. Furthermore, according to the observations of Onimus et al. (2004, 2006), the strain hardening rate $\partial\sigma/\partial\epsilon^p$ of the irradiated material is clearly higher at the onset of plastic flow (due to the plastic strain localization at the grain scale). Then, it rapidly decreases (channels

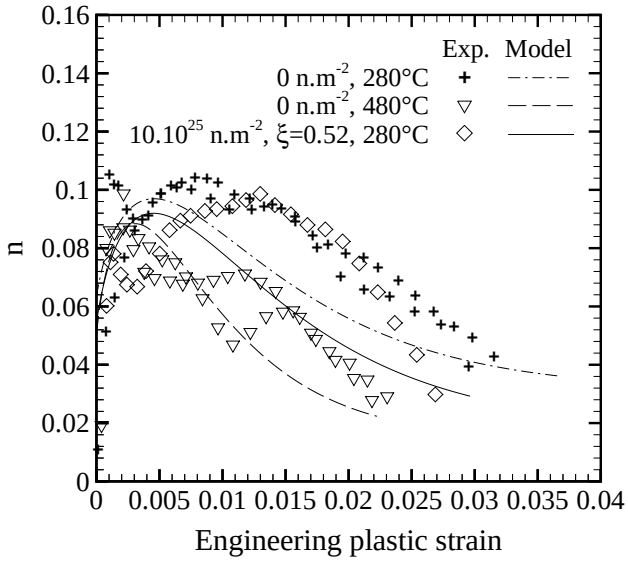


Figure 2.5 – Variation of the instantaneous strain hardening exponent, $n = \partial \ln \sigma / \partial \ln \epsilon^p$, as a function of plastic strain (up to uniform elongation) for AT tests performed under a strain rate of $5\,\mathrm{s}^{-1}$ on the non–irradiated material and the material irradiated for 5 cycles.

propagation from grain to grain) to values of the same order of magnitude as those of the non–irradiated material, that decreases more gradually. In accordance, the uniform strain continuously decreases with increasing temperature. Irradiation leads to a clear reduction in uniform elongation, associated to a highly localized necking, as previously observed by Regnard et al. (2002). The irradiation effect on the strain hardening behavior is reduced with increasing test temperature (irradiation damage recovery).

c) Strain rate sensitivity

Fig. 2.2 also illustrates the strain rate sensitive strength of the material. The strain rate sensitivity, defined as the change in flow stress over a strain rate range, is described by the parameter

$$m = \frac{\partial \ln \sigma}{\partial \ln \dot{\epsilon}} \tag{2.2}$$

which can be approximated by $m \approx (\ln \sigma_2 - \ln \sigma_1)/(\ln \dot{\epsilon}_2 - \ln \dot{\epsilon}_1)$ where σ_1 and σ_2 are the flow stresses measured during tests conducted – for similar test temperature, irradiation conditions and plastic strain level – under strain rates $\dot{\epsilon}_1$ and $\dot{\epsilon}_2$, respectively. As shown in Fig. 2.6, whatever the test temperature, the strain rate sensitivity is positive, *i.e.* the flow stress increases with increasing strain rate. It is nearly constant between 20 °C and 300 °C and increases significantly beyond. No evidence of drop in strain rate sensitivity, manifestation of dynamic strain aging (due to the mutual interaction between the oxygen solute atoms and the dislocations) sometimes observed around 350 °C (depending on strain rate) in zirconium

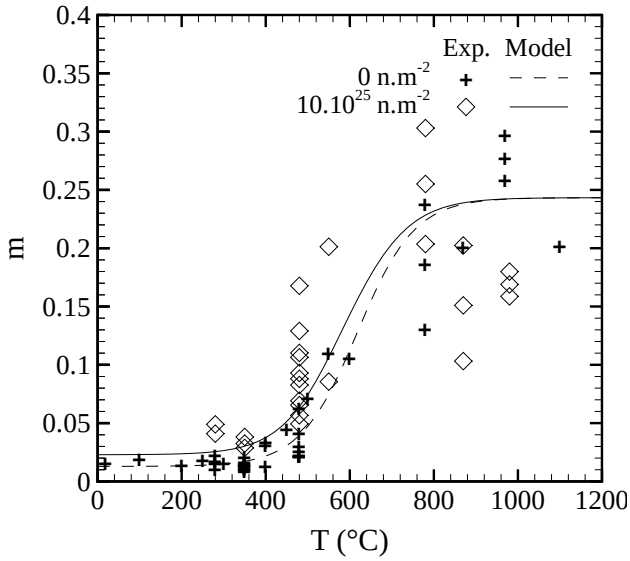


Figure 2.6 – Variation of the strain rate sensitivity exponent, $m = \partial \ln \sigma / \partial \ln \dot{\epsilon}$, as a function of temperature for AT tests performed on the non–irradiated material and the irradiated material for 5 cycles.

alloys (Lee et al., 2001; Elbachiri et al., 2003), is detected. Furthermore, as already observed in recrystallized zirconium alloys (Onimus et al., 2006), it seems that irradiation increases the strain rate sensitivity of the material for temperatures lower than about 500 °C.

d) Plastic anisotropy

Due to the hexagonal close-packed lattice of zirconium combined with the processing of fuel cladding tubes, the material exhibits a strong crystallographic texture implying anisotropic, and more specifically orthotropic mechanical properties in the tube reference system, defined by radial (r), hoop (θ) and axial (z) directions. For example, plastic anisotropy is highlighted by the ratios of axial to hoop plastic strain increments measured during AT and IP tests (Fig. 2.7) and by comparing the flow stresses measured during AT and HT tests (Figs. 2.2 and 2.9). The axial to hoop plastic strain ratios used in the present work are in good agreement with the approximate ratio of -1.8 reported in Delobelle et al. (1996), Schäffler et al. (2000) and Daum et al. (2002c) for the non–irradiated material under axial tension at 350 °C. As shown in Fig. 2.7 and in accordance with the observations of Murty and Charit (2006), plastic anisotropy of the fresh material depends on test temperature, in particular above 300 °C. Note that the variation as a function of temperature of plastic anisotropy is more marked for lower strain rates and plastic strain levels. This evolution may be partially explained by the activation of different slip systems depending on testing conditions. Whatever the test temperature and the plastic strain level, it has been established that prismatic glide is predominant for the non–irradiated material (Tenckhoff, 2005). Nevertheless, other mechanisms

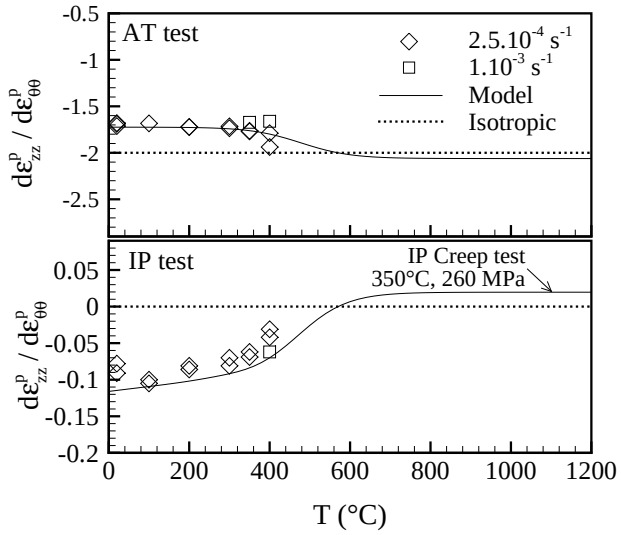


Figure 2.7 – Variation as a function of test temperature of the ratios of axial to hoop plastic strain increments obtained during AT tests (for axial plastic strain values of 0.01 and 0.02) and IP tests (for hoop plastic strain values of 0.01 and 0.015) conducted on the fresh material under various strain rates.

are present : slip on the first pyramidal system has been observed at high plastic strains and high temperatures and, although hardly observed, basal glide becomes significant for high temperatures (above about 500 °C), low strain rates and high plastic strain levels. Moreover, as illustrated by the difference between flow stresses measured during AT and HT tests, plastic anisotropy of the material depends on irradiation. Note that studies dealing with the influence of irradiation on the plastic anisotropy of zirconium alloys are very few (Nakatsuka and Nagai, 1987; Mahmood et al., 1989; Yagnik et al., 2004). Onimus et al. (2004) and Onimus et al. (2006) observed an irradiation-induced change in the principal slip system activation. Basal slip becomes the dominant deformation mechanism for the irradiated material, since the increase under irradiation of the critical resolved shear stresses for prismatic and pyramidal slip systems is greater than for the basal slip system. In addition, one can expect that hydrides generally observed in fuel claddings irradiated in PWRs may influence the material anisotropy.

2.3 Model description

2.3.1 Model formulation

In order to reproduce these effects, a unified (only one type of inelastic deformation is considered) anisotropic viscoplastic model, with no stress threshold between elastic and viscoplastic regimes (and thus only appropriate for monotonic loading) and including a multiplicative plastic strain dependent strain hardening, is propo-

sed. The total strain, $\underline{\boldsymbol{\epsilon}}$, can be split up into a sum of elastic, $\underline{\boldsymbol{\epsilon}}^e$, and viscoplastic, $\underline{\boldsymbol{\epsilon}}^p$, parts. The elastic contribution, which is assumed to be isotropic, is described by a temperature dependent Young's modulus, $E(T)$, and a Poisson's ratio, ν, according to the isotropic Hooke's law.

The texture-induced plastic orthotropy of the material is described by a Hill's quadratic yield criterion (Hill, 1950) (isotropic hardening) :

$$\sigma_H(\underline{\boldsymbol{\sigma}}, T, \phi_t) = \sqrt{\underline{\boldsymbol{\sigma}} : \underline{\underline{\mathbf{H}}}(T, \phi_t) : \underline{\boldsymbol{\sigma}}} \tag{2.3}$$

where $\underline{\boldsymbol{\sigma}}$ is the stress tensor and $\underline{\underline{\mathbf{H}}}$ is a symmetric fourth rank tensor. The equivalent stress has the following expression when expressed in the anisotropy principal axes, which coincide with the tube reference system axes (r, θ, z) :

$$\begin{aligned}\sigma_H = \big[&H_{rr}(\sigma_{\theta\theta} - \sigma_{zz})^2 + H_{\theta\theta}(\sigma_{zz} - \sigma_{rr})^2 + H_{zz}(\sigma_{rr} - \sigma_{\theta\theta})^2 \\ &+2H_{r\theta}\sigma_{r\theta}^2 + 2H_{rz}\sigma_{rz}^2 + 2H_{\theta z}\sigma_{\theta z}^2\big]^{1/2}\end{aligned} \tag{2.4}$$

Since shear components are unknown and play no role in the simulated mechanical tests, they are assumed to be equal to the isotropic ones, *i.e.* $H_{r\theta} = H_{rz} = H_{\theta z} = 1.5$. In order to determine the anisotropy coefficients H_{rr}, $H_{\theta\theta}$ and H_{zz}, which are defined up to a multiplicative constant, the axial direction is fixed as the reference one, leading to $\sigma_H = \sigma_{zz}$ for an AT test so that $H_{rr} + H_{\theta\theta} = 1$ (normalization condition).

The viscoplastic strain rate tensor, $\underline{\dot{\boldsymbol{\epsilon}}}^p$, obeys the normality rule and is expressed using a viscoplastic potential

$$\Omega = \dot{p}_0 \frac{m\eta}{m+1} \left(\frac{\sigma_H}{\eta}\right)^{\frac{1+m}{m}} \tag{2.5}$$

so that

$$\underline{\dot{\boldsymbol{\epsilon}}}^p = \frac{\partial \Omega}{\partial \underline{\boldsymbol{\sigma}}} = \dot{p} \frac{\partial \sigma_H}{\partial \underline{\boldsymbol{\sigma}}} = \dot{p} \underline{\underline{\mathbf{H}}} : \frac{\underline{\boldsymbol{\sigma}}}{\sigma_H} \tag{2.6}$$

The equivalent viscoplastic strain rate is given by :

$$\dot{p} = \dot{p}_0 \left(\frac{\sigma_H(\underline{\boldsymbol{\sigma}}, T, \phi_t)}{\eta(p, T, \phi_t, \xi)}\right)^{1/m(T,\phi_t)} \tag{2.7}$$

where m is the strain rate sensitivity exponent defined in Eq. 2.2, $\dot{p}_0$ is the reference strain rate fixed to $1\,\mathrm{s}^{-1}$ and η is a non–linear viscosity coefficient. For the sake of clarity, η is separated into strength and strain hardening contributions :

$$\eta(p, T, \phi_t, \xi) = K(T, \phi_t, \xi) L(p, T, \phi_t) \tag{2.8}$$

where K is the strength coefficient (independent on p) and L is the strain hardening coefficient (dependent on p). The strain hardening exponent of the material (Eq. 2.1) is then given by $n = \partial \ln L / \partial \ln \epsilon^p$ under uniaxial loading.

2.3.2 Model identification

The proposed model includes four parameters to be adjusted : the strain rate sensitivity exponent m, the strength coefficient K, the strain hardening coefficient L and the Hill tensor $\underline{\underline{\mathbf{H}}}$. According to the experimental observations partially described in Section 2.2, m is considered as temperature and fluence dependent, K is defined as temperature, fluence and irradiation conditions dependent, L is regarded as plastic strain, temperature and fluence dependent and $\underline{\underline{\mathbf{H}}}$ depends on temperature and fluence. Since the irradiation temperature is not available for the majority of the tested specimens, the influence of irradiation conditions is expressed in term of normalized axial position of the samples along the fuel cladding tubes, which is known for all the irradiated specimens. Nevertheless, an approximate linear relation between the irradiation temperature T_i and the normalized axial position ξ can be established from the few irradiation temperature data available : $T_i(\,\mathrm{K}) = 594.35 + 49.673\xi$.

Description of the strongly non–linear evolutions of these parameters as a function of plastic strain, temperature and fluence within wide ranges requires a large number of secondary parameters. The 46 resulting secondary parameters have been identified using the whole experimental database summarized in Table 2.1. The Newton's optimization method has been applied to minimize weighted least square cost functions introduced to characterize the difference between experimental data and model predictions. The general identification procedure is summarized in Table 2.2, where in particular the experimental data used to tune each parameter are specified.

Tableau 2.2 – Identification procedure.

Parameter	Signification	Data	Test
m	Strain rate sensitivity	$\sigma_Y^{x\%\,b}$	AT
L	Strain hardening	$\sigma = f(\epsilon^p)$ up to ϵ_U if available	AT
		$\sigma_Y^{x\%\,b}$, σ_U and ϵ_U otherwise	AT
K	Strength	$\sigma_Y^{x\%\,b}$, σ_U	AT
$\underline{\underline{\mathbf{H}}}$	Anisotropy	$d\epsilon^p_{zz}/d\epsilon^p_{\theta\theta}$ [a]	AT
		σ_U	HT
		$d\epsilon^p_{zz}/d\epsilon^p_{\theta\theta}$ [a], $\sigma_Y^{x\%\,b}$ and σ_U	IP

[a] for the fresh material only

[b] $x = 0.1, 0.2, 0.5, 1$ when available

As a first step, while considering the normalization condition chosen for the determination of the Hill coefficients, the parameters m, L and K were evaluated using AT tests results. First, m and L were independently identified using for m : $\sigma_Y^{x\%}$ with $x = 0.1, 0.2, 0.5, 1$ when available ; for L : $\sigma = f(\epsilon^p)$ up to ϵ_U if available, $\sigma_Y^{x\%}$ with $x = 0.1, 0.2, 0.5, 1$, σ_U and ϵ_U otherwise). Then, considering these adjusted values as the initial ones for the identification process, K was tuned on the basis of $\sigma_Y^{x\%}$ with $x = 0.1, 0.2, 0.5, 1$ and σ_U. A global adjustment of m, L and K was

subsequently performed on all AT tests data.

Afterwards, parameters describing plastic anisotropy ($\underline{\underline{\mathbf{H}}}$) were identified on the basis of AT ($d\epsilon^p_{zz}/d\epsilon^p_{\theta\theta}$ available for the fresh material only), HT (σ_U) and IP ($d\epsilon^p_{zz}/d\epsilon^p_{\theta\theta}$ available for the fresh material only, $\sigma_Y^{x\%}$ with $x = 0.1, 0.2, 0.5, 1$ and σ_U) tests results. Note that for temperatures greater than 400 °C, only stress–plastic strain data in the hoop direction were available (up to 900 °C for the fresh material and 600 °C for the irradiated material) for the determination of anisotropy coefficients. However, since for a given loading direction the activated deformation mechanisms and consequently the macroscopic plastic anisotropy essentially depend on the local stress level, one can expect that anisotropy of the material subjected to high temperature and high strain rate strain hardening tests is closed to that deduced from creep tests conducted at moderated stress levels (low strain rate) under moderated temperatures. Hence, the anisotropy coefficients have also been identified so that the ratio $d\epsilon^p_{zz}/d\epsilon^p_{\theta\theta}$ predicted for IP tests tends, when increasing temperature, towards the ratio value of 0.019 deduced from IP creep tests conducted at 350 °C at a fixed stress level equal to 260 MPa up to a hoop plastic strain of 0.025 (Limon et al., 1995).

Finally, a global parameters adjustment was achieved over the whole experimental database. In order to avoid non–physical extreme parameter values and prevent numerical problems in simulation codes, all functions introduced to describe evolutions of model parameters have been defined so that smooth evolutions with lower and upper values are obtained. Tuned values of the parameters are reported in Table 2.3.

2.3.3 Results and discussion

Fig. 2.2 compares experimental and simulated evolutions of S_U as a function of temperature for AT tests carried out under different strain rates on the non–irradiated material and the material irradiated for 5 cycles. Model predictions are obtained from the response of an elementary representative volume. The good agreement reveals the ability of the model to reproduce the influences of temperature, fluence and strain rate on the flow stress. Moreover, as depicted in Fig. 2.3, the model accurately captures the effects of irradiation conditions on material strength. Furthermore, the temperature, irradiation and plastic strain dependent strain hardening behavior of the material (Figs. 2.4 and 2.5), including uniform elongation (Fig 2.8), is correctly predicted by the model. Note in particular that the proposed formulation for the strain hardening coefficient, L, provides a better description of both plastic strain dependent strain hardening and uniform elongation than the classical power law type equation (replacing L by $p^{\bar{n}}$ in Eq. 2.8) that includes only one average strain hardening parameter $\bar{n}$ and for which $\epsilon_U = \bar{n}$ under uniaxial tension (in accordance with the Considère's plastic instability criterion). Besides, plastic anisotropy is fairly well reproduced (Figs. 2.7 and 2.9). Hence, the model provides a reasonable description of the material mechanical behavior within the studied domain, *i.e.* for temperatures from 20 °C up to 1100 °C, strain rates between $3 \cdot 10^{-4}\,\mathrm{s}^{-1}$ and $5\,\mathrm{s}^{-1}$ and fast neutron fluences from $0\,\mathrm{n.m}^{-2}$ up to $10 \cdot 10^{25}\,\mathrm{n.m}^{-2}$.

Tableau 2.3 – Adjusted model parameters (T in K, ϕ_t in 10^{25}n.m^{-2} and ξ in m/m).

Elasticity :
$E(T) = 1.059 \cdot 10^{11} - 36 \cdot 10^6 T$, $\nu = 0.342$

Irradiation damage :
$\Phi(\phi_t) = 1 - \exp(-0.3\phi_t)$

Strain rate sensitivity :
$m(T, \phi_t) = 1/[m_0(T)(1 - m_\phi(T, \phi_t))]]$
with $m_0(T) = 77.68 M_{0T} + 4.11(1 - M_{0T}(T))$
where $M_{0T}(T) = 1/[1 + \exp(10.2(T/692 - 1))]$
and $m_\phi(T, \phi_t) = 0.46\Phi(\phi_t)/[1 + \exp(14.49(T/870 - 1))]$

Strength :
$K(T, \phi_t, \xi) = K_0(T)(1 + K_\phi(T, \phi_t, \xi))$
with $K_0(T) = (1.409 \cdot 10^9 - 1.1558 \cdot 10^6 T) K_{0T}(T) + 4.05 \cdot 10^7 (1 - K_{0T}(T))$
where $K_{0T}(T) = 1/[1 + \exp(6.62(T/1007 - 1))]$
and $K_\phi(T, \phi_t, \xi) = 0.42(1 - 6.44 \cdot 10^{-2} \phi_t \xi)\Phi(\phi_t)/[1 + \exp(19(T/768 - 1))]$

Strain hardening :
$L(p, T, \phi_t) = (p + 1 \cdot 10^{-4})^{n_0(T,\phi_t)} \exp(-\alpha_n(T)p) + (p + 1 \cdot 10^{-4})^{n_\infty(T,\phi_t)}(1 - \exp(-\alpha_n(T)p))$
with $n_0(T, \phi_t) = n_{00}(T)(1 - n_{0\phi}(T, \phi_t))$
with $n_{00}(T) = 7.9 \cdot 10^{-2} N_{00T}(T) + 3 \cdot 10^{-2}(1 - N_{00T}(T))$
where $N_{00T}(T) = 1/[1 + \exp(4(T/620 - 1))]$
and $n_{0\phi}(T, \phi_t) = 0.24\Phi(\phi_t)/[1 + \exp(7(T/630 - 1))]$
and $n_\infty(T, \phi_t) = n_{\infty 0}(T)(1 - n_{\infty\phi}(T, \phi_t))$
with $n_{\infty 0}(T) = 5 \cdot 10^{-2} N_{\infty 0T}(T) + 5.6 \cdot 10^{-3}(1 - N_{\infty 0T}(T))$
where $N_{\infty 0T}(T) = 1/[1 + \exp(5(T/590 - 1))]$
and $n_{\infty\phi}(T, \phi_t) = 0.63\Phi(\phi_t)/[1 + \exp(7(T/630 - 1))]$
and $\alpha_n(T) = 40.45 \exp(2.03 \cdot 10^{-3} T)$

Anisotropy :
$H_{rr}(T, \phi_t) = 0.485 + 9.5 \cdot 10^{-2}(1 - \Phi(\phi_t))/[1 + \exp(12(T/740 - 1))] + 0.32\Phi(\phi_t)/[1 + \exp(10(T/660 - 1))]$
$H_{zz}(T, \phi_t) = 0.52 + (-0.23 + 4 \cdot 10^{-4} T)(1 - \Phi(\phi_t))/[1 + \exp(15(T/550 - 1))] - 0.16\Phi(\phi_t)/[1 + \exp(20(T/920 - 1))]$

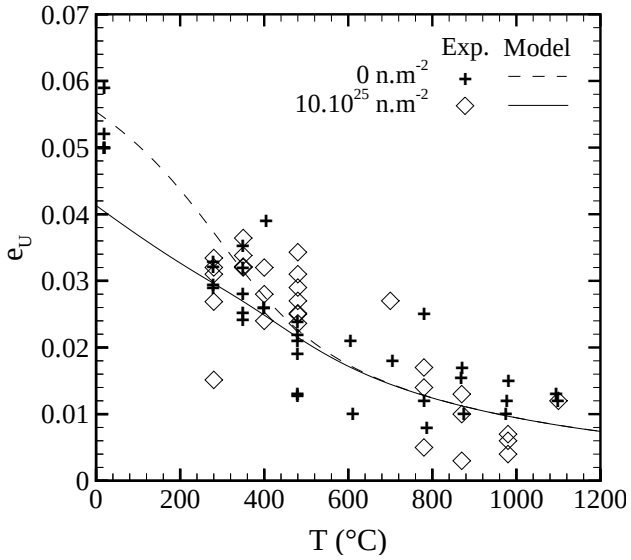


Figure 2.8 – Variation of the uniform plastic strain as a function of temperature for AT tests performed on the non–irradiated material and the irradiated material for 5 cycles (no strain rate and irradiation conditions effect).

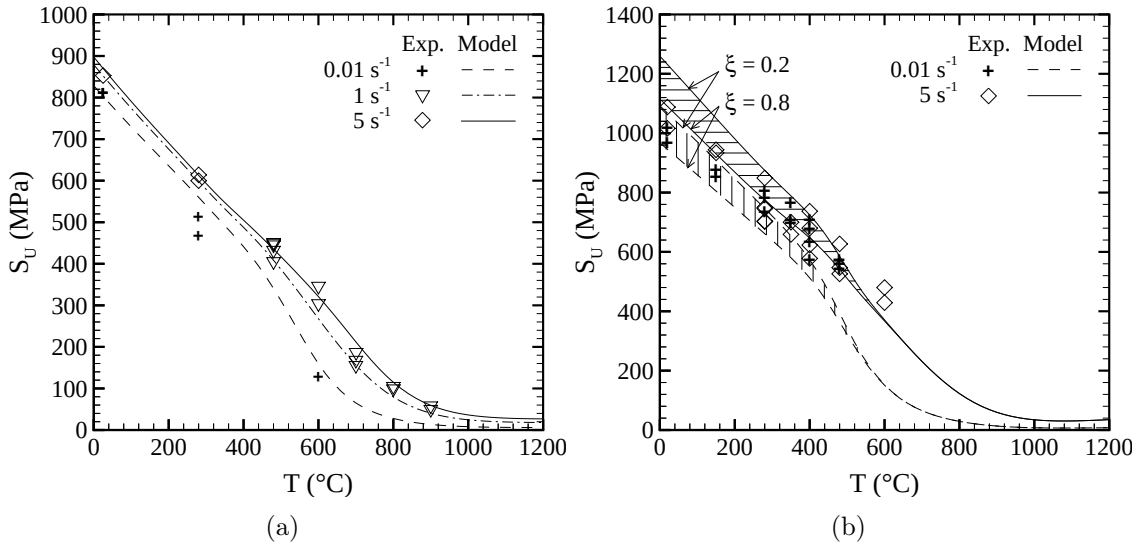


Figure 2.9 – Variation of the ultimate stress as a function of temperature and strain rate for HT tests performed (a) on the fresh material and (b) on the material irradiated for 5 cycles (fluence around $10.10^{25}\,\mathrm{n.m^{-2}}$).

The average value over the whole identification database of the relative error $|(y_{\text{exp}} - y_{\text{sim}})/y_{\text{exp}}|$ between experimental quantities (yield and flow stresses and uniform plastic strains), y_{exp}, and the corresponding simulated values, y_{sim}, is equal to about 8% on yield and flow stresses and 62% on uniform elongations, which is satisfactory compared to the experimental scatter (Figs. 2.2, 2.4, 2.8 and 2.9). Nevertheless, the predictive capability of the model is expected to decrease with increasing temperature. Indeed, description of plastic anisotropy in particular is approximative for the upper part of the temperature range, due to the lack of data pertaining to HT tests and IP tests, especially over 600 °C for the irradiated material.

2.4 Example of FEA application

2.4.1 Introduction

The proposed model has been implemented into the finite element code Cast3M developed at CEA (`http://www-cast3m.cea.fr/cast3m/index.jsp`). Due to the geometry of the tubes, designs of the specimens used to measure fuel claddings axial and hoop tensile properties are not standardized. Finite Element Analysis (FEA) of the AT tests performed within the PROMETRA program showed that plastic strains and stresses are homogeneous within the gauge length of the specimens. Therefore, AT tests can be considered as uniaxial and axial tensile properties of fuel claddings can be derived straightforwardly from the measured load–displacement data using the standard procedure : plastic displacement is obtained by substracting the effective elastic displacement from the mandrel total displacement (machine compliance and offset displacement are determined by standard means) ; engineering plastic strain is then calculated by dividing the plastic displacement by the initial calibrated gauge length and engineering stress is determined by dividing the load by the initial total cross-sectional area of the two gauges.

As specified in Section 2.2, interpretation of the ring HT tests performed within the PROMETRA program for evaluating the properties of the cladding material in the hoop direction is less obvious, because of structural effects that occur during the experiments (bending, friction ...). Due to the small size of the specimen and to the relative ease of the test achievement (suitable for a use in hot cells), the correct interpretation of the ring tensile test is an important issue for the study of the mechanical behavior of irradiated cladding materials. For this purpose, FEA investigations are necessary to provide a further understanding of the test. An inverse method, combining FEA and tests results, was previously proposed to derive hoop stress–plastic strain properties from raw HT tests data (Balourdet et al., 1999; Yvon et al., 2001). Nevertheless, in the FEA of those studies, plastic anisotropy and viscosity of the material as well as friction between the sides of the mandrels and the sample gauges were not hitherto taken into account. Here, a more precise simulation of the tests was developed in order to examine the consequences of structural artefacts and check if the direct conversion of the raw load–displacement data to

stress–plastic strain properties results in significant discrepancies compared to the intrinsic mechanical properties of the material.

2.4.2 Geometry and finite element modeling

The ring specimen used within PROMETRA consists of a 5 mm large small ring with two gauges of 3 mm length and 2 mm width (Fig. 2.1(b)). The sample is placed around two half–cylinder inserts attached to the cross–heads and pulled apart inside the ring. No lubrification is used between the mandrels and the specimen. The mandrels are designed to have a gap of about $30\,\mu$m between their sides and the sample gauges in order to minimize the combined effects of bending and friction. Load and cross-head displacement are measured during the experiments.

Brick elements with quadratic interpolation (20 nodes, 27 Gauss points) are used for the calculations, based on a large displacement and large strain formulation. According to the symmetries, only 1/8 of the system is considered. Standard boundary conditions are applied and a contact area involving sliding with friction is defined between the inner surface of the ring specimen and the outer surface of the die inserts. Friction is modeled by the classical Coulomb's friction law (friction coefficient, μ). An initial gap, g, is introduced between the sides of the mandrels and the specimen gauges. The cross-head displacement is applied on the tangential direction of the sample gauge section. The set of constitutive equations proposed in the present paper is used to describe the mechanical behavior of the cladding specimens.

2.4.3 Results and discussion

Due to bending and friction, plastic strain and stress fields are not homogeneous within the calibrated parts of the ring sample : plastic strains are concentrated in the middle of the calibrated region and strain and stress gradients are observed through the sample thickness (Fig. 2.10). Note that local deformations of the specimen are influenced by plastic anisotropy of the material. The influence on structural artefacts of temperature, strain rate, fluence, initial gap and friction coefficient between the ring specimen and the mandrels have been analyzed. The methodology consists in comparing the intrinsic hoop stress–plastic strain properties (response of an elementary representative volume undergoing a pure hoop tensile loading) predicted by the set of constitutive equations proposed in the present paper and those deduced from three-dimensional FEA of the HT tests. The conversion of load–displacement data calculated by FEA into engineering stress–plastic strain relationship has been performed by applying the standard procedure stated above, *i.e.* using the initial cross-sectional area and the initial calibrated gauge length. Nevertheless, a more local estimation of plastic strain can be obtained from FEA by computing the area-averaged plastic strain at the center of the specimen gauges. Then, an effective gauge length can be defined so that the ratio between the plastic displacement and this length corresponds to the aforementioned area-averaged plastic strain. Differences

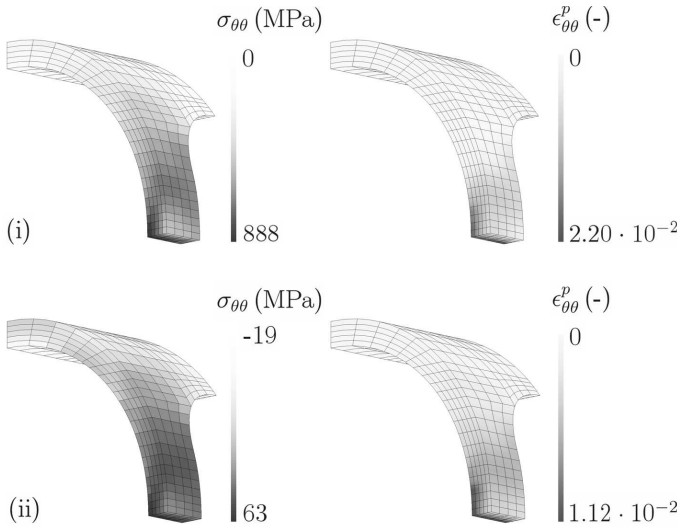


Figure 2.10 – Stress and plastic strain fields in the hoop direction calculated at a global plastic strain of 0.01 for HT tests performed at a displacement rate of $15\,\mathrm{mm.s^{-1}}$ at (i) 350 °C and (ii) 900 °C with $\mu = 0.4$ and $g = 0.3\,\mu$m on the material irradiated for 5 cycles (with $\xi = 0.5$).

between intrinsic and FEA–calculated plastic strain, stress and uniform elongation measurements are discussed below.

a) Stress–plastic strain relationship

Structural artefacts can be quantified by the relative difference between FEA and intrinsic flow stress for a given global strain (Fig. 2.11). The term global refers to quantities deduced from the measured load–displacement data. Artefacts are shown to be significant both in the elastic regime and at the beginning of global plasticity. For all testing conditions, the yield stress deduced from FEA is 10 to 20% lower than the intrinsic stress at the onset of plasticity, since the gauge section is submitted to a combination of tensile and bending loads. Yet, as the bending contribution rapidly decreases during deformation, this underestimation does not exceed 10% on S_U whatever the testing conditions.

b) Plastic strain

The difference between intrinsic and FEA–obtained stress–plastic strain data may be partially due to the fact that the 3 mm calibrated length (which is commonly used as the gauge length to interpret test data) does not rigorously pertain to the effective gauge length. Indeed, as illustrated in Fig. 2.12, the instantaneous effective gauge length determined by FEA varies during loading, in particular for low global plastic deformations (lower than about 0.005). As a consequence of bending, whereas no plasticity is expected at the beginning of the test according to

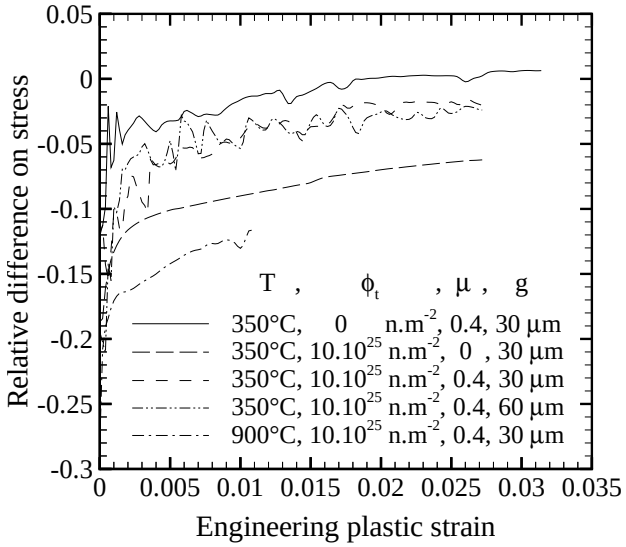


Figure 2.11 – Calculated variation as a function of the global plastic strain up to the intrinsic uniform elongation of the relative difference between the FEA-obtained (using the standard procedure) and the intrinsic engineering stress levels for HT tests performed at a displacement rate of 15 mm.s^{-1} under various conditions with $\xi = 0.5$ for the irradiated material.

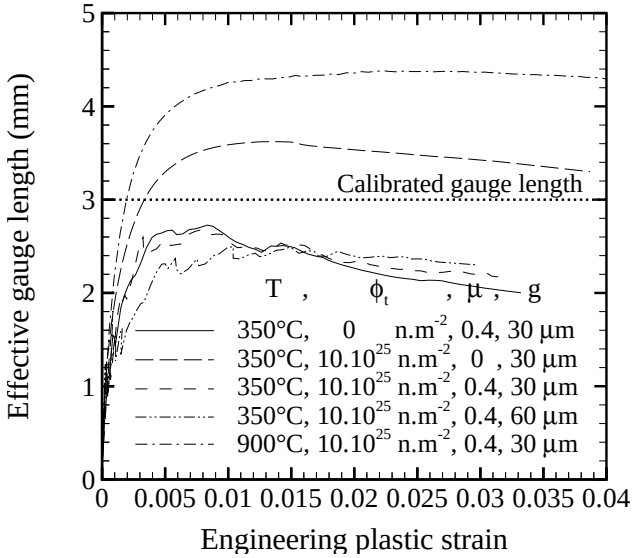


Figure 2.12 – Calculated variation of the effective gauge length as a function of the global plastic strain up to uniform elongation for HT tests performed at a displacement rate of 15 mm.s^{-1} under various conditions with $\xi = 0.5$ for the irradiated material.

the measured global response, plastic deformation occurs locally within the gauge section. Furthermore, while the effective gauge length decreases with increasing friction coefficient and initial gap, it increases with increasing test temperature. Indeed, the strain rate sensitivity of the material flow strength significantly increases with increasing temperature between about 400 °C and 800 °C. Therefore, as a high strain rate sensitivity tends to stabilize strain localization within the gauge parts, specimen deformation is more diffuse at higher temperatures. For example, at 350 °C for $\mu = 0.4$ the effective gauge length is about 2–2.5 mm for global plastic strain greater than 0.005, while it is approximately 4–4.5 mm at 900 °C. As a consequence, by using the calibrated length of 3 mm, plastic strain is underestimated by up to 50% at 350 °C and overestimated by up to 30% at 900 °C.

c) Stress

The underestimation of stress values is amplified with increasing fluence and more significantly with increasing temperature. Indeed, discrepancy between the actual strain rate within the gauge section and the expected strain rate (imposed displacement rate divided by the calibrated gauge length) is logically of the same order of magnitude as for plastic strain (approximately a 50% underestimation at 350 °C and a 30% overestimation at 900 °C). This may importantly influence the specimen reponse, in particular at high temperatures for which the flow stress strongly depends on strain rate. For example, at 900 °C, according to the constitutive equation proposed in the present paper, the ultimate stress in the hoop direction decreases by about 9% when the strain rate is $3.5\,\mathrm{s}^{-1}$ ($= 70\% \cdot 5\,\mathrm{s}^{-1}$) instead of the expected $5\,\mathrm{s}^{-1}$. On the other hand, the difference between the intrinsic stress level and that deduced from FEA decreases with increasing the friction coefficient between the ring specimen and the die inserts. A quite good correlation is obtained for a friction coefficient of 0.4 (Fig. 2.11), which appears to be a realistic value considering the surface roughness of the irradiated samples and the absence of lubrification between the mandrels and the specimen.

d) Uniform elongation

In conformity with these observations, necking is substantially influenced by testing conditions : strain localization is enhanced with increasing friction coefficient and initial gap and delayed with increasing temperature. For example, for the material irradiated for 5 cycles tested at 350 °C, the uniform elongation is overestimated by about 40% for $\mu = 0$ and $g = 30\,\mu$m, 20% for $\mu = 0.4$ and $g = 30\,\mu$m and 40% for $\mu = 0.4$ and $g = 0\,\mu$m. At 900 °C for $\mu = 0.4$ and $g = 0.3\,\mu$m, the global uniform plastic strain is more than twice greater than the intrinsic one, probably as a consequence of the high strain rate sensitivity of the material that confers to the ring specimen a high resistance to necking. These results justify that uniform elongation measured during HT tests were not taken into account in the identification procedure described in Section 2.2.

According to this analysis, structural artefacts become relatively low for global hoop plastic strain levels greater than about 0.005. Then, one can consider that the stress–plastic strain properties directly evaluated from the raw load–displacement data are satisfactorily accurate in that range. However, the use of the effective gauge length deduced from FEA for each testing condition instead of the calibrated length should significantly improve the predictions. Besides, a better knowledge of the value of the friction coefficient between the ring specimen and the mandrels is essential for further understanding of the test. An experimental evaluation of this coefficient is currently in progress. The iterative method previously mentioned can then be used to refine the assessment of the hoop mechanical properties if necessary.

2.5 Conclusions

The anisotropic viscoplastic mechanical behavior of fresh and irradiated CWSR Zircaloy–4 fuel claddings has been analyzed on the basis of axial tensile, hoop tensile and closed-end internal pressurization tests results mainly extracted from the PROMETRA database, appropriate in the field of RIA studies. In particular, the effects of temperature (from 20 °C up to 1100 °C), strain rate (from $3 \cdot 10^{-4}\,\mathrm{s}^{-1}$ up to $5\,\mathrm{s}^{-1}$), fluence (from $0\,\mathrm{n.m}^{-2}$ up to $10 \cdot 10^{25}\,\mathrm{n.m}^{-2}$) and irradiation conditions (irradiation temperature or, in the absence thereof, axial position of the sample along the fuel cladding) on the inelastic properties of the material have been investigated. A phenomenological model, based on a unified multiplicative viscoplastic formulation, was developed in order to reproduce these material features. Plastic anisotropy is introduced using a temperature and irradiation dependent Hill's yield criterion. Then, the model ability to simulate the whole experimental database mentioned above has been demonstrated. Finally, the efficiency of the present model for finite element applications has been illustrated. In particular, the hoop tensile tests performed within the PROMETRA program have been analysed and validity of the stress–plastic strain properties deduced from the tests was discussed.

The model proposed in the present paper only describes the mechanical behavior of the material and does not reproduce its fracture. In order to provide a better understanding of the failure mechanisms of fuel claddings during RIAs, with the aim of predicting their survivability, a Gurson–Tvergaard–Needleman (GTN) type model (Gurson, 1977; Tvergaard and Needleman, 1984; Grange et al., 2000b), coupling the deformation model described in the present paper with damage, is conjointly developed. In particular, since hydride embrittlement has been identified as one of the main limiting phenomenon to burnup increase (Papin et al., 2007), the analysis of the influence of hydride precipitates on the ductile fracture (*i.e.* void nucleation, growth and coalescence) of cladding tubes is envisioned. Determination and identification of the model parameters will be performed by combination of numerical simulations and reliable out–of–pile experiments developed elsewhere carried out under RIA loading conditions (Le Saux et al., 2007).

Acknowledgements

The authors would like to thank all people who contributed to the realization of the PROMETRA program. The financial and technical support from Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire and Electricité de France is also acknowledged.

2.6 Résumé

Le comportement viscoplastique anisotrope en conditions de type RIA des gaines en Zircaloy–4 détendu vierges et irradiées a été analysé à partir des résultats de plus de 500 essais mécaniques (traction axiale, traction circonférentielle, pressurisation interne sans reprise de l'effet de fond) issus du programme PROMETRA et de la littérature restreinte et ouverte. Des informations complémentaires sur les essais de traction axiale et de traction circonférentielle sont données en annexes D.2 et D.3.

Le domaine d'investigation, qui recouvre – dépasse même – l'ensemble des conditions attendues lors d'un RIA, est le suivant :

- températures : de 25 °C à 1100 °C ;
- vitesses de déformation : de $3 \cdot 10^{-4}\,\mathrm{s}^{-1}$ à $5\,\mathrm{s}^{-1}$;
- fluences : de $0\,\mathrm{n.m}^{-2}$ à $10 \cdot 10^{25}\,\mathrm{n.m}^{-2}$ (soit de 0 à 5 cycles d'irradiation en REP) ;
- températures d'irradiation : de 320 °C à 380 °C.

Les principales conclusions quant au comportement mécanique du matériau sont résumées ci-dessous :

- La résistance mécanique du matériau décroît de manière continue en fonction de la température. Le matériau est durci par l'irradiation, en particulier pour des températures inférieures à la température d'irradiation. Le durcissement d'irradiation est d'autant plus important que la température d'irradiation (ou la cote axiale par rapport au bas de l'assemblage) est faible.
- L'écrouissage instantané du matériau évolue en fonction de la déformation plastique, décroît globalement en fonction de la température et diminue avec l'irradiation pour des déformations plastiques proches de l'allongement uniforme.
- La contrainte d'écoulement augmente avec la vitesse de déformation (sensibilité de la contrainte à la vitesse de déformation positive). Cette sensibilité est croissante en fonction de la température et de l'irradiation.
- Le comportement plastique du matériau est orthotrope. Cette anisotropie évolue en fonction de la température et de la fluence.

Un modèle a été développé pour représenter ces propriétés. Les principaux points à retenir sont :

- Le modèle repose sur le formalisme standard de l'élastoviscoplasticité à écrouissage isotrope multiplicatif non linéaire sans seuil. L'anisotropie plastique est prise en compte à l'aide du critère quadratique de Hill.
- Les quatre paramètres du modèle, décrivant respectivement la résistance mécanique, l'écrouissage, la sensibilité de la contrainte à la vitesse de déformation et l'anisotropie plastique du matériau, sont ajustés, à partir de la base de données expérimentale, en fonction de la déformation plastique, la température, la fluence et/ou les conditions d'irradiation.
- Le modèle reproduit correctement les propriétés mécaniques du matériau pour l'ensemble des conditions étudiées. En raison du manque de données concernant l'anisotropie plastique du matériau au-delà de 600 °C, on peut s'attendre à ce que le modèle décrive moins fidèlement le comportement mécanique du matériau dans toutes les directions à ces températures.

Enfin, le modèle, intégré dans le code de calcul par éléments finis Cast3M, est utilisé pour analyser les essais de traction circonférentielle sur anneaux usinés réalisés dans le cadre du programme PROMETRA. On se référera à l'annexe A pour plus de détails sur la méthode d'intégration du modèle dans Cast3M. Les principaux résultats sont résumés ci-après. L'essai souffre d'effets structuraux importants, liés à la flexion des zones utiles et au frottement entre la paroi interne de l'éprouvette et les mandrins, dans le régime élastique et en tout début de plasticité globale. Néanmoins, l'importance de ces artefacts est relativement faible pour des déformations plastiques globales supérieures à 0.005 environ. Les propriétés contrainte–déformation plastique circonférentielles peuvent donc être évaluées de manière satisfaisante, pour des déformations plastiques supérieures à 0.005, par exploitation directe de la courbe force–déplacement.

2.7 Remarques complémentaires

Dans la mesure où certains choix de modélisation n'ont été que partiellement argumentés au cours de ce chapitre, il est utile d'apporter quelques précisions complémentaires :

- L'évolution de la vitesse de déformation viscoplastique est souvent exprimée à l'aide d'une fonction en sinus hyperbolique de la contrainte pour décrire les fortes non linéarités du comportement viscoplastique des alliages de zirconium (Delobelle et al., 1996; Schäffler et al., 2000; Fandeur, 2001; Richard et al., 2003). Cependant, la non linéarité de la vitesse de fluage en fonction de la contrainte est faible dans les domaines de vitesses de déformation et de contraintes étudiés dans le cadre de notre étude. Ainsi, l'écoulement viscoplastique peut être correctement décrit, comme dans le cas du modèle proposé, à l'aide d'une fonction puissance de la contrainte.
- Toutes les caractéristiques de l'anisotropie plastique du matériau ne peuvent être prises en compte à l'aide du critère quadratique de Hill. En effet, la nature

cinématique de l'écrouissage des alliages de zirconium a été mise en évidence par de nombreux auteurs (Delobelle et al., 1996; Prat et al., 1998; Geyer, 1999; Schäffler et al., 2000; Onimus et al., 2006). Des variables d'écrouissage cinématique (contraintes internes), caractérisées par une anisotropie différente de celle de l'écrouissage isotrope, sont généralement introduites pour représenter ce phénomène. Toutefois, dans la mesure où la base de données à disposition ne comprend pas d'essais de chargement cyclique, il serait difficile de déterminer de façon fiable les éventuelles contraintes internes. Par ailleurs, pour représenter l'évolution de l'anisotropie plastique en fonction de la contrainte, il pourrait être envisagé de décomposer la déformation inélastique en deux déformations viscoplastiques à écrouissage isotrope caractérisées par des anisotropies (décrites à l'aide du critère de Hill par exemple) et des coefficients de sensibilité de la contrainte à la vitesse de déformation distincts. Ainsi, le modèle serait exprimé de telle sorte que les deux natures de déformations viscoplastiques prédominent respectivement à faibles et fortes contraintes. Cependant, les données disponibles sont quasi-exclusivement issues d'essais d'écrouissage (fortes contraintes). Le manque de données pour les faibles contraintes, qui pourraient être obtenues à l'aide d'essais de fluage par exemple, ne permet pas une mise au point fiable de ce type d'approche. Par conséquent, au demeurant, pour ne pas alourdir inutilement le modèle, la formulation retenue n'inclue qu'une seule nature de déformation viscoplastique répondant à un critère de Hill.

– La microstructure et par conséquent le comportement mécanique des gaines évoluent en réacteur sous les effets de l'irradiation, la corrosion et l'hydruration. Ces modifications dépendent des conditions d'irradiation, ou plus précisément de la température d'irradiation qui, par conception, est plus élevée en haut du crayon combustible. La couche d'oxyde étant un isolant thermique, l'oxydation y est alors favorisée, accentuant de ce fait le gradient de température le long du crayon. La teneur en hydrogène absorbée par le métal est directement liée à l'épaisseur de la couche d'oxyde. Ainsi, dans la mesure où le dommage d'irradiation, la température d'irradiation et l'hydruration sont intimement liés, il est difficile, avec les données disponibles, de déconvoluer leurs influences sur le comportement mécanique du matériau. Par conséquent, l'ensemble des effets de l'irradiation en REP sont exprimés, dans le modèle proposé, en fonction de la fluence de neutrons rapides ($E > 1\,\mathrm{MeV}$) et de la température d'irradiation/cote de prélèvement. De ce fait, l'influence de l'hydrogène n'est qu'implicitement prise en compte. Le chapitre suivant, consacré à l'étude du comportement du Zircaloy–4 non irradié hydruré, permettra d'isoler les effets de l'hydrogène.
– D'une manière générale, les capacités prédictives des modèles phénoménologiques sont faibles en dehors de leur domaine d'identification. Ainsi, et même si les fonctions décrivant les évolutions non linéaires des paramètres du modèle en fonction de la déformation plastique, la température, la fluence et les conditions d'irradiation, ont été définies de façon à obtenir des évolutions régulières bornées, l'utilisation éventuelle du modèle proposé en dehors de son domaine d'identification doit être réalisée avec précaution.

Chapitre 3

Comportement mécanique et rupture du Zircaloy–4 hydruré

Sommaire

3.1 Introduction 95
3.2 Material and experimental procedure 97
3.2.1 Material 97
3.2.2 Mechanical testing 98
3.2.3 Digital image correlation 103
3.2.4 Damage quantification 103
3.3 Mechanical behavior 104
3.3.1 Tensile properties 104
3.3.2 Plastic anisotropy 108
3.3.3 Modeling 109
3.4 Damage and failure 112
3.4.1 Macroscopic failure modes 112
3.4.2 Macroscopic ductility 114
3.4.3 Microscopic failure mechanisms 117
3.4.4 Damage kinetics due to hydride cracking 123
3.5 Conclusions 125
3.6 Résumé 126

Conformément à l'analyse bibliographique menée au chapitre 1, le comportement et la rupture des gaines lors de la phase de PCMI des RIA sont affectés par l'hydruration du matériau en réacteur. L'objectif de ce chapitre est de caractériser le comportement, l'endommagement et la rupture de gaines en Zircaloy–4 détendu non irradiées uniformément hydrurées. Les influences combinées de la température, la teneur en hydrogène, la direction de sollicitation et l'état de contraintes et de déformations sont analysées à l'aide d'essais mécaniques adaptés. Le matériau étudié et les techniques expérimentales utilisées pour caractériser ses propriétés mécaniques sont dans un premier temps décrits. Le comportement plastique anisotrope du matériau est ensuite étudié. Enfin, les mécanismes d'endommagement et de rupture sont analysés.

Ce chapitre est rédigé sous la forme d'un projet d'article.

Behavior and Failure of Hydrided Zircaloy-4 Fuel Claddings under RIA Loading Conditions

M. Le Saux [a,⋆], J. Besson [b], S. Carassou [a], C. Poussard [c], X. Averty [a]

[a] *CEA-Saclay, DEN/DMN/SEMI, 91191 Gif-Sur-Yvette, France*
[b] *Mines ParisTech, Centre des Matériaux, CNRS UMR 7633, BP 87, 91003 Evry, France*
[c] *CEA-Saclay, DEN/DSNI, 91191 Gif-Sur-Yvette, France*
⋆ *Tel : +33 1 69 08 18 18, Fax : +33 1 69 08 93 24, E-mail : matthieu.lesaux@cea.fr*

Abstract

In the framework of safety studies intended to verify the integrity of high burnup fuels during Reactivity Initiated Accidents in Pressurized Water Reactors, the anisotropic viscoplastic behavior and the fracture of cold–worked stress relieved Zircaloy–4 cladding tubes is investigated under appropriate loading conditions. In order to study the combined effects of temperature, hydrogen content and specimen geometry/stress state, axial tensile, hoop tensile, expansion due to compression and hoop plane strain tensile tests are performed at room temperature, 350 °C and 480 °C on the material containing various hydrogen contents up to 1200 wt. ppm (hydrides are circumferential and homogeneously distributed). These tests are combined with digital image correlation and metallographic and fractographic observations. The flow stress of the material decreases with increasing temperature. The material is strenghtened by hydrides and softened by dissolved hydrogen. Plastic anisotropy depends on temperature but not on hydrogen content. A model is proposed to describe these features. The ductility of the material decreases with increasing hydrogen

content at room temperature due to damage nucleation by hydride cracking. The plastic strain that leads to hydride fracture at room temperature decreases with increasing hydrogen content. The influence of stress triaxiality on hydride cracking is negligible in the studied range. The influence of hydrogen on material ductility is negligible at 350 °C and 480 °C since hydrides do not crack at these temperatures. The ductility of the material increases with increasing temperature. The evolution of material ductility is associated with a change in both the macroscopic fracture mode of the specimens and the microscopic failure mechanisms.

3.1 Introduction

The mechanical properties of zirconium alloys used as fuel cladding material in Pressurized Water Reactors (PWRs) degrade during reactor exposure due to a combination of oxidation, hydriding and irradiation damage (Garde et al., 1996). In order to optimize the use of nuclear fuels and improve the management of PWRs, it is planned to progressively extend the discharge burnup of fuel assemblies. This extension could enhance cladding degradation and may increase the likelihood of cladding failure during design basis accidents such as the Reactivity Initiated Accident (RIA). Caused by the inadvertent ejection of a control rod, this postulated scenario leads to a fast transient local increase of the power in fuel assemblies in the vicinity of the ejected control rod. The resulting abrupt fuel pellet thermal expansion leads to Pellet–Clad Mechanical Interaction (PCMI). This PCMI forces the fuel cladding to deform at high strain rate (typically $1\,s^{-1}$) under multiaxial tension (combination of axial and hoop components) with a strain path between plane strain hoop tension and equal–biaxial tension (Cazalis et al., 2007). During this early stage of the transient, the temperature of the cladding approximately ranges from 350 °C up to 600 °C. In the framework of safety studies, it is necessary (to avoid fuel rod failure and fuel dispersion) to verify that high burnup fuel claddings withstand the mechanical loading resulting from PCMI. Therefore, the assessment, using out–of–pile tests, and the modeling of both the viscoplastic behavior and the failure of the material are important issues.

During reactor operation, the metal–water reaction at the fuel cladding outer surface introduces hydrogen into the metal. Hydrogen uptake is commonly identified as a main contributor to limiting the fracture resistance of high burnup fuel claddings during the PCMI stage of RIAs (Fuketa et al., 1996, 1997; Schmitz and Papin, 1999; Fuketa and Sasajima, 2001; Papin et al., 2007). The solubility of hydrogen in Zircaloy–4 at the cladding operating temperature (roughly 350 °C) is scarcely more than 100 wt. ppm (Kearns, 1967). Above this solubility limit, excess hydrogen precipitates as δ–hydride platelets in the cladding material. Mean hydrogen content of about 200–800 wt. ppm are commonly observed in Zircaloy–4 fuel claddings at burnup around 60 GWd/tU. Due to the crystallographic orientation of the cladding material, hydrides are oriented with their normal preferentially aligned along the tube radial direction. These hydrides are usually called circumferential hydrides.

Moreover, due to the effect of the thermal gradient across the cladding thickness on the migration and precipitation of hydrogen, hydride rims and blisters, which consist of very high hydride concentration or solid hydride, are often observed at the clad outer surface (Garde et al., 1996; Fuketa et al., 1997; Bossis et al., 2005; Cazalis et al., 2007; Papin et al., 2007). Full–scale RIA experiments performed in the NSRR (Fuketa et al., 1996, 1997; Fuketa and Sasajima, 2001) and CABRI (Schmitz and Papin, 1999; Papin et al., 2007) reactors on high burnup fuel rods showed premature rod failure due to the detrimental effect of these brittle (at least up to 400 °C (Pierron et al., 2003)) external layers. As suggested by Daum et al. (2002b), Daum et al. (2002a), Pierron et al. (2003) and Glendening et al. (2005), hydride rims or blisters crack at the onset of plastic yielding of the substrate at the very beginning of the RIA transient. Under the PCMI loading, some of these incipient cracks propagate in a more or less ductile manner (with limited axial extension) through the hydrided substrate beneath the hydride rim or blister. Axial propagation (axial splitting) of the resulting through–wall defects may occur subsequently to the through–thickness propagation (Chung and Kassner, 1998; Fuketa et al., 1996; Meyer et al., 1997; Fuketa et al., 1997). As shown by Daum et al. (2002b), Daum et al. (2002a), Pierron et al. (2003), Glendening et al. (2005), Nagase and Fuketa (2005), Cazalis et al. (2007) and Hermann et al. (2007), the macroscopic ductility of the material abruptly decreases with increasing hydride rim or blister thickness. Considering that these hydride–rich external layers act as nucleation sites for further crack propagation, the cladding fracture under PCMI is controlled by the crack growth resistance of the substrate, which is in particular influenced by hydride content, temperature and stress/strain state.

The influence of uniformly distributed circumferential hydrides on the mechanical properties of zirconium alloys has been extensively studied over the years. In particular, it has been shown that the material is embrittled by hydrides at room temperature (Coleman and Hardie, 1966; Simpson, 1981; Yunchang and Koss, 1985; Puls, 1991; Huang and Huang, 1994; Bai et al., 1994b, a; Prat et al., 1998; Wisner and Adamson, 1998; Grange et al., 2000a; Arsène et al., 2003a; Bertolino et al., 2003; Yagnik et al., 2005; Hsu, 2006; Kim et al., 2007a; Raynaud et al., 2007) and that hydride embrittlement decreases with increasing temperature (Puls, 1991; Huang and Huang, 1994; Bai et al., 1994b, a; Wisner and Adamson, 1998; Arsène et al., 2003a; Bertolino et al., 2003; Yagnik et al., 2005; Viswanathan et al., 2006; Hsu, 2006; Kim et al., 2007a; Raynaud et al., 2007). However, most of these investigations were not interested in the mechanical behavior of the hydrided material for temperatures greater than 300 °C, which are of prime interest in the field of RIA studies. Nevertheless, note that lower temperatures (even room temperature) are of interest for the interpretation of NSRR experiments. In addition, sheet materials are often used for experimental ease instead of the cladding tube material. Inevitably, those sheets do not exhibit rigorously identical crystallographic texture and mechanical properties. Furthermore, it is expected that the stress state and the presence of geometrical defects such as notches influence the mechanical behavior of the material and the importance of hydride embrittlement (Coleman and Hardie, 1966; Simpson, 1981; Yunchang and Koss, 1985; Puls, 1991; Huang and Huang,

1994; Prat et al., 1998). Thus, in order to accurately evaluate the risk of rod failure during the PCMI stage of RIAs, it is important to characterize the material mechanical behavior and fracture under representative loading conditions.

The present work addresses the characterization and the modeling of the effects of hydrogen, temperature and stress/strain state on both the viscoplastic behavior and the failure of Zircaloy–4 fuel claddings under RIA loading conditions. The paper is organized as follows. The material under study and the experimental techniques used to characterize its mechanical properties are described in Section 3.2. Section 3.3 deals with the study and the modeling of the anisotropic viscoplastic properties of the material. Macroscopic failure modes and ductility and microscopic failure mechanisms of the specimens are analyzed in Section 3.4.

3.2 Material and experimental procedure

3.2.1 Material

The material of this study is Cold–Worked Stress Relieved (CWSR) Zircaloy–4 tube, which is commonly used for fuel claddings in French PWRs. Its chemical weight composition is 1.3% Sn, 0.21% Fe, 0.11% Cr, 0.128% O, Zr balance. Tin and oxygen are in solid solution. Iron and chromium are insoluble in α–Zr (Charquet et al., 1989). They are present almost entirely in the form of hexagonal close–packed $Zr(Fe,Cr)_2$ Laves phase precipitates, both intergranular and intragranular. The diameter of these stable second–phase intermetallic compound precipitates is about 200 nm. The outer diameter and the thickness of the cladding are about 9.5 mm and 0.57 mm, respectively. The stress relieved state is obtained by heat treatment at a temperature below 500 °C. The microstructure of the material is characterized by elongated grains along the rolling direction (about 10–20 μm long in the rolling direction and 2–5 μm wide in the transverse direction), which corresponds to the tube axial direction. Due to the fabrication process, the material exhibits a strong crystallographic texture with a majority of basal poles oriented at $\pm 30 - 40°$ from the tube radial direction (Delobelle et al., 1996; Schäffler et al., 2000).

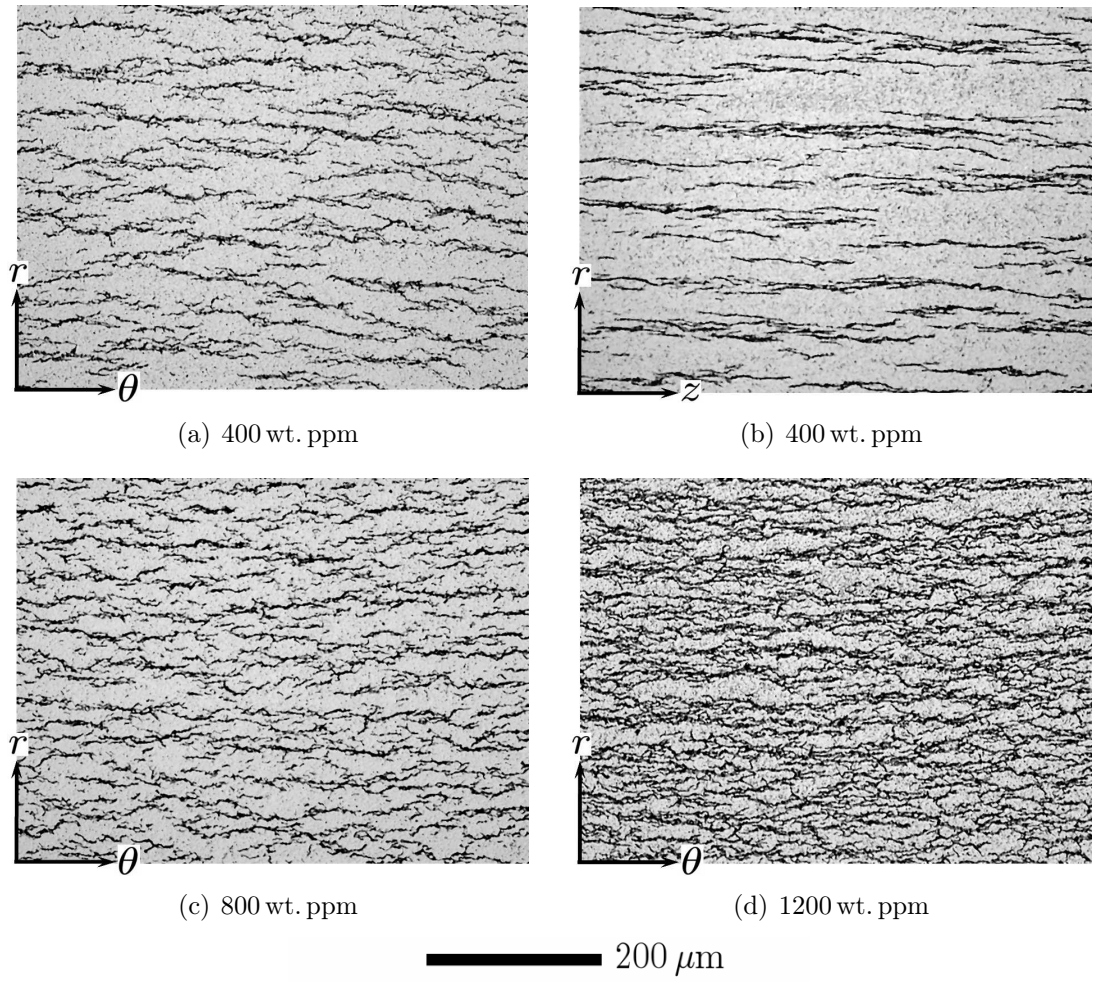
Tubes have been artificially hydrided at 400 °C in an argon/hydrogen mixture, and then slowly cooled (2 °C/min) to room temperature. Nominal hydrogen contents of about 400 wt. ppm, 800 wt. ppm and 1200 wt. ppm were obtained, depending on exposure time. When the solubility of hydrogen in Zircaloy–4 is exceeded, stable δ–hydrides (face–centered cubic, $ZrH_{1.53}$ to $ZrH_{1.66}$) precipitate. The precipitation of δ–hydrides leads to a volume expansion of about 17% (Northwood and Kosasih, 1983). Thickness and diameter of the tubes were measured after hydriding. Mechanical properties of the material are not expected to be modified by the heat treatment applied during the hydriding procedure. The hydriding technique results in a uniform hydride precipitation across the tube thickness. Local hydrogen contents along the tubes have been measured using both an inert gas fusion technique and an image analysis method. The later was applied on skeletonized optical microscope images

of polished (mechanical grinding ranging from 180 to 1200 grit and polishing to 6 μm to 1 μm diamond pastes) and etched (solution of HNO_3 (9 parts) and HF (1 part)) cross–sections of samples cut before testing at the heads of the specimens. Hydrogen contents were then obtained from the measured hydride surface fractions by using the digital image processing package Hydruro/Hydromorph developed at CEA. Hydrogen contents obtained from this method are closed to those determined by using the inert gas fusion technique. Although some variations are observed along the tube axial direction, the difference between nominal and actual contents does not exceed ±20%. The δ–hydrides precipitate as fine platelets (Perovic et al., 1992; Chung, 2000) both intergranular and transgranular. Stack of these microscopic hydride platelets forms macroscopic hydrides (50 to 200 μm long and 0.3 to 0.6 μm wide) predominantly oriented along the circumferential–axial plane (circumferential hydrides). In the present work, macroscopic hydrides are considered as single entities and will be referred to as hydrides for sake of convenience. Examples of optical micrographs of the hydrided material are shown in Fig. 3.1. The morphology of hydrides was characterized using the Hydruro/Hydromorph package. Since grains are elongated along the axial direction of the tube, hydrides are slightly straighter and longer along the axial direction z than along the circumferential direction θ. An example is given in Figs. 3.1(a) and 3.1(b) for an hydrogen content of 400 wt. ppm.

3.2.2 Mechanical testing

a) Introduction

Four types of tests have been carried out in order to study the mechanical behavior and the failure of the material : Axial Tensile (AT) tests, Hoop Tensile (HT) tests, Expansion Due to Compression (EDC) tests and Plane Strain Tensile (PST) tests. Except for EDC tests which have been conducted only at room temperature, specimens were tested up to fracture at room temperature, 350 °C and 480 °C (temperature accuracy ±2 °C). The tests were carried out at a constant displacement rate of 1.5 $mm.s^{-1}$ for AT tests, 0.3 $mm.s^{-1}$ for HT tests, 1.5 $mm.s^{-1}$ for EDC tests and 0.2 $mm.s^{-1}$ for PST tests so that the strain rate is about 0.1 s^{-1} within the specimen gauges (for AT, HT and PST tests, the strain rate is roughly equal to the imposed displacement rate divided by the geometrical gauge length of the specimen). This strain rate corresponds to the lower bound of the strain rate range expected during RIAs (roughly 0.1 s^{-1} up to 1 s^{-1}). However, no significant effect of strain rate on material ductility is expected within this range (Link et al., 1998; Prat et al., 1998; Nakatsuka et al., 2004; Nagase and Fuketa, 2005; Kim et al., 2006). An electro–mechanical tensile testing machine equipped with a 50 kN load cell and a displacement sensor was used. Once reached, by using a furnace heating technique (about 0.2 °C/s), the target temperature is maintained for about one hour so that the thermodynamical equilibrium condition for the hydrogen/Zircaloy system is almost established before testing. Thus, fractions of precipitated hydrides and hydrogen in solid solution during the experiments can be readily determined from the solubility



(a) 400 wt. ppm (b) 400 wt. ppm

(c) 800 wt. ppm (d) 1200 wt. ppm

Figure 3.1 – Hydride distribution for various hydrogen contents. Circumferential (θ,r) and axial (z,r) tube cross–sections are compared for an hydrogen content of 400 wt. ppm in (a) and (b).

limit of hydrogen in Zircaloy–4 at equilibrium. Note that this work does not aim at reproducing the thermal transient generated during a RIA. After testing, fracture surfaces of the tested specimens were observed by Scanning Electron Microscope (SEM) fractography.

b) Axial and hoop tensile tests

In order to characterize the anisotropic plastic behavior of both the base material and the hydrided material, tensile tests have been performed in the tube axial and hoop directions. Geometries of the AT and HT specimens, developed in the field of the PROMETRA (TRAnsient MEchanical PROperties) program undertaken by the French Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) in collaboration with Electricité de France (EdF) and Commissariat à l'Energie Atomique (CEA) (Cazalis et al., 2007), are detailed in Figs. 3.2(a) and 3.2(b). The AT specimen is 58 mm long with two 15 mm long and 3 mm wide gauges. The specimen is stretched by pins (inserted through the head of the cladding sample reinforced by end caps) attached to the cross–head. The HT specimen consists of a 5 mm large ring machined to obtain a 3 mm gauge length for a width of 2 mm. The sample is placed around two half–cylinder inserts (diameter 8.34 mm) attached to the cross–heads and pulled apart inside the ring.

Engineering strain and engineering stress were respectively calculated by dividing the cross–head displacement by the specimen initial gauge length, L_0, and the applied force by the specimen initial cross–section, s_0. Yield stress at 0.2% plastic strain, $S_Y^{0.2\%}$, ultimate (or maximum) stress, S_U, and uniform elongation at the onset of necking (plastic strain which corresponds to S_U), e_U, were then determined on the engineering stress–strain curves. True plastic strain and true stress are denoted ϵ^p and σ, respectively. As reported elsewhere (Le Saux et al., 2008), interpretation of HT tests is complex due to structural effects that occur during the experiment (bending, friction...). As a consequence, whereas they undoubtedly provide interesting information about the mechanical behavior of the material, stress–plastic strain data deduced from HT tests must be considered with caution. It was shown in Le Saux et al. (2008) that, contrary to $S_Y^{0.2\%}$ and e_U, one can assume that S_U measured during HT tests is only slightly affected by structural artefacts. Finally, in order to characterize the ductility of the material, the cross–section reduction, $Z = \Delta s/s_0$, has been optically measured after fracture of the specimens (observations performed perpendicularly to the specimens width–thickness plane) with a relative accuracy of about $\pm 2\%$.

c) Expansion Due to Compression tests

During the PCMI stage of RIAs, clad failure occurs by axial propagation of a through–thickness crack under a predominant hoop tension loading. Due to the specimen geometry, fractures generated during HT tests are not fully representative of this failure mode. In order to study damage and fracture of the material under more

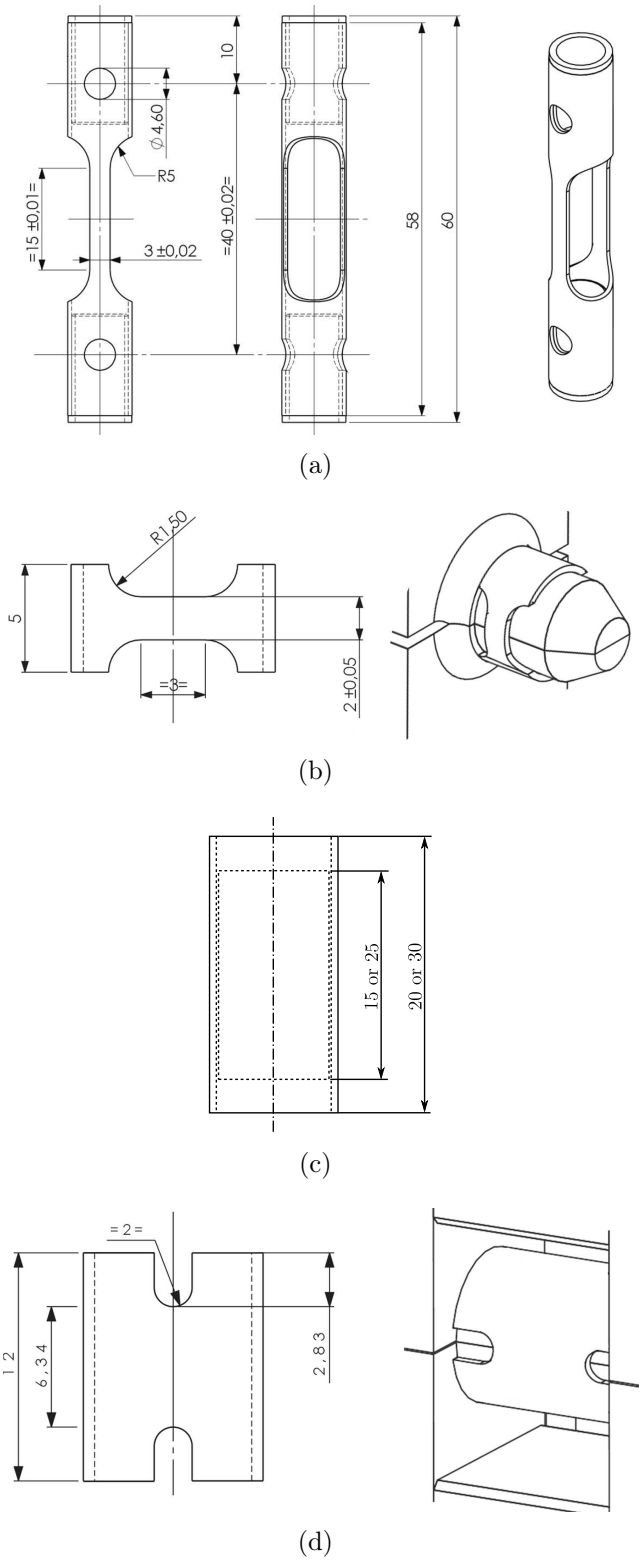


Figure 3.2 – (a) AT specimen, (b) HT specimen, (c) EDC specimen and (d) PST specimen.

realistic loading conditions and rupture modes, EDC tests have been carried out. The EDC test, initially developed at Studsvik AB (Grigoriev et al., 2001; Dufourneaud et al., 2002), consists in loading a cladding tube specimen through the radial expansion of a cylindrical pellet axially compressed inside the tube by a pair of pistons (in practice, only the upper piston is moving). Whereas the feasibility of EDC tests at high temperature (up to 900 °C) has been demonstrated (Le Saux et al., 2007), the tests have been performed only at room temperature in the present work. In fact, the ductility of the studied material at 350 °C and 480 °C does not allow to correctly perform the tests until specimen fracture as the pellet is highly deformable. The cladding sample is 20 mm or 30 mm long and the inner pellet is 15 mm or 25 mm long with a diameter of 8.2 mm (Fig. 3.2(c)). A polymer pellet (Teflon) was used to minimize friction effects. As verified by Finite Element Analysis (FEA) and deformation measurements in the radial and hoop directions after testing, the loading generated during EDC tests is near pure hoop tension (Le Saux et al., 2007). The hoop strain to fracture was determined from perimeter measurements with a relative accuracy of about $\pm 3\% : \Delta P/P_0$, where P_0 is the initial perimeter of the tube and ΔP is the perimeter increase measured after failure at the mid–plane of the tube (where the perimeter variation is maximum).

d) Plane strain tensile tests

As a result of PCMI during RIAs, fuel claddings are submitted to a multiaxial loading (combination of axial and hoop components) with a strain path between plane strain hoop tension and equal–biaxial tension (depending on friction between the fuel and the cladding). Previous studies (Coleman and Hardie, 1966; Simpson, 1981; Yunchang and Koss, 1985; Puls, 1991; Prat et al., 1998) showed a reduced ductility of homogeneously hydrided zirconium alloys in the presence of geometrical defects such as notches and with increasing stress/strain triaxiality at room temperature. Note on the other hand that the failure of CWSR Zircaloy–4 containing hydride blisters and a hydrogen content of about 300 wt. ppm within the substrate appeared to be nearly insensitive to stress/strain triaxiality in the range of plane strain tension to equal–biaxial tension at 25 °C, 300 °C and 375 °C (Glendening et al., 2005). In order to study the material failure under loading conditions representative of PCMI (and resulting in similar fracture features) and analyze the influence of notches and the stress/strain state on material ductility, hoop PST experiments have been carried out. The wide double edge–notched ring specimen initially developed at Pennsylvania State University (PSU) (Link et al., 1998) was used to achieve a plane strain tensile loading in the middle of the specimen. Stress triaxiality (defined as the ratio of mean stress to effective stress) in the middle of the specimen is about $1/\sqrt{3}$, to be compared to the $1/3$ ratio obtained for AT, HT and EDC tests. The geometry of the specimen is shown in Fig. 3.2(d). It consists of a 12 mm long ring with two 6.4 mm wide gauge sections flanked by 2 mm diameter notches. Two half–cylinder inserts (diameter 8.32 mm) attached to the cross–heads are used to load the specimen. Contrary to the configuration proposed by PSU, the four notches were oriented perpendicularly to the pulling direction in order to minimize friction effects,

although this introduces bending. According to FEA results, a good approximation of the strain rate within the gauge section is obtained by dividing the cross–head displacement rate by the notches diameter. The plane strain deformation state at the center of the specimen over more than 1/3 of its width was checked using FEA and a digital image correlation method. This last technique was also used to evaluate strains to failure.

3.2.3 Digital image correlation

A 2D Digital Image Correlation (DIC) technique was used to characterize deformation and failure modes of AT, HT and PST specimens. DIC is an optical method that provides local displacement and strain fields on the surface of the observed object by comparing digital images of a reference and a deformed configuration. The surfaces to analyze were illuminated in white–light and observed by an optical camera (resolution of 768×576 pixels, image rate of 25 images per second) during the experiments. The random patterns that offer the local contrast required for the identification of homologous points were obtained by spraying paint with an airbrush on the observed surfaces. Spots of the specklegram have a diameter of about 40 μm. In addition to those *in–situ* DICs, *post–mortem* DICs were performed for PST tests in order to determine local strain fields at failure. For that purpose, outer surfaces of the specimens were observed before and after testing with an optical magnifier (1596×1196 pixels). The CorrelManuV software developed at LMS/Ecole Polytechnique (`http://www.lms.polytechnique.fr/users/bornert/CMV_14`) was used for the DICs. The gauge length of the measured local strain fields is about 500 μm. An accuracy of approximately ±0.01 is expected on strain measurements.

3.2.4 Damage quantification

The kinetics of damage caused by hydride cracking at room temperature was quantified for AT, HT and EDC tests by applying the procedure proposed by Yunchang and Koss (1985) and Grange et al. (2000a). The method consists in determining void nucleation and growth rates as a function of plastic strain by taking advantage of the plastic strain gradient (due to necking) along the loading direction of the broken specimens.

For that purpose, the specimens were sectioned in the middle of their width along the loading direction. The thickness–length cross–sections were then mechanically polished (mechanical grinding ranging from 180 to 1200 grit and polishing from 6 μm to 1 μm diamond pastes) and chemically etched (solution of HNO_3 (9 parts) and HF (1 part)). These sections were observed using a SEM with a backscattered electron imaging. A magnification of ×1000 (resolution of about 0.1 μm) appeared to be sufficient to resolve hydride cracking. Damage maps (100×500 μm^2) were taken at different distances from the fracture surface. Artifacts due to sample

preparation are expected to be negligible. Density, dimensions, orientation and surface fraction of voids created by hydride cracking were then determined by using the image processing program ImageJ (`http://rsb.info.nih.gov/ij/`).

Engineering deformations in the width, e_w, and the thickness, e_t, of AT and HT specimens were measured along their gauge length as a function of the distance from the fracture surface. Only thickness deformation measurements were achieved in the mid–plane section of EDC specimens. Assuming volume conservation, the local equivalent plastic strain is calculated by :

$$p = -\ln((1+e_w)(1+e_t)) \qquad \text{for AT tests} \tag{3.1}$$

$$p = -\frac{1}{\sqrt{H_{rr}+H_{zz}}}\ln((1+e_w)(1+e_t)) \qquad \text{for HT tests} \tag{3.2}$$

$$p = -\frac{\sqrt{H_{rr}+H_{zz}}}{H_{zz}}\ln(1+e_t) \qquad \text{for EDC tests} \tag{3.3}$$

where $H_{rr} = 0.58$ and $H_{zz} = 0.41$ are the Hill coefficients determined at room temperature by Le Saux et al. (2008) to take into account plastic anisotropy. Note that it is preferable to determine the plastic strain from experimental measurements since strain localization predicted by FEA strongly depends on damage and mesh size.

Finally, by correlating the damage data to the corresponding strain profile, the dependence of void size and density on plastic strain was determined. This procedure is illustrated in Fig. 3.3.

3.3 Mechanical behavior

3.3.1 Tensile properties

Fig. 3.4 shows the engineering stress–plastic strain curves obtained for AT and HT tests performed for different hydrogen contents at 25 °C, 350 °C and 480 °C. The flow stress of the material decreases with increasing temperature, T, due to the increase of dislocations mobility. The instantaneous strain hardening exponent of the material, $n = \partial \ln \sigma / \partial \ln \epsilon^p$, depends on plastic strain : it increases with increasing plastic strain at low plastic strain levels (lower than about 1%) and then decreases up to uniform elongation (Fig. 3.5). In agreement with the thermally activated cross–slip and climb of dislocations, the strain hardening exponent of the material and consequently the uniform elongation decrease with increasing temperature.

The evolution as a function of hydrogen content of $S_Y^{0.2\%}$, S_U and e_U for AT tests and S_U for HT tests are depicted in Fig. 3.6 (two samples tested for each condition). At room temperature, S_U linearly increases with increasing hydrogen content, whereas the influence of hydrogen on $S_Y^{0.2\%}$ is smaller (Fig. 3.6(a)), as previously observed by Bai et al. (1994b), Prat et al. (1998), Wisner and Adamson (1998), Grange et al. (2000a), Arsène et al. (2003a), Yagnik et al. (2004) and Kim et al. (2007a).

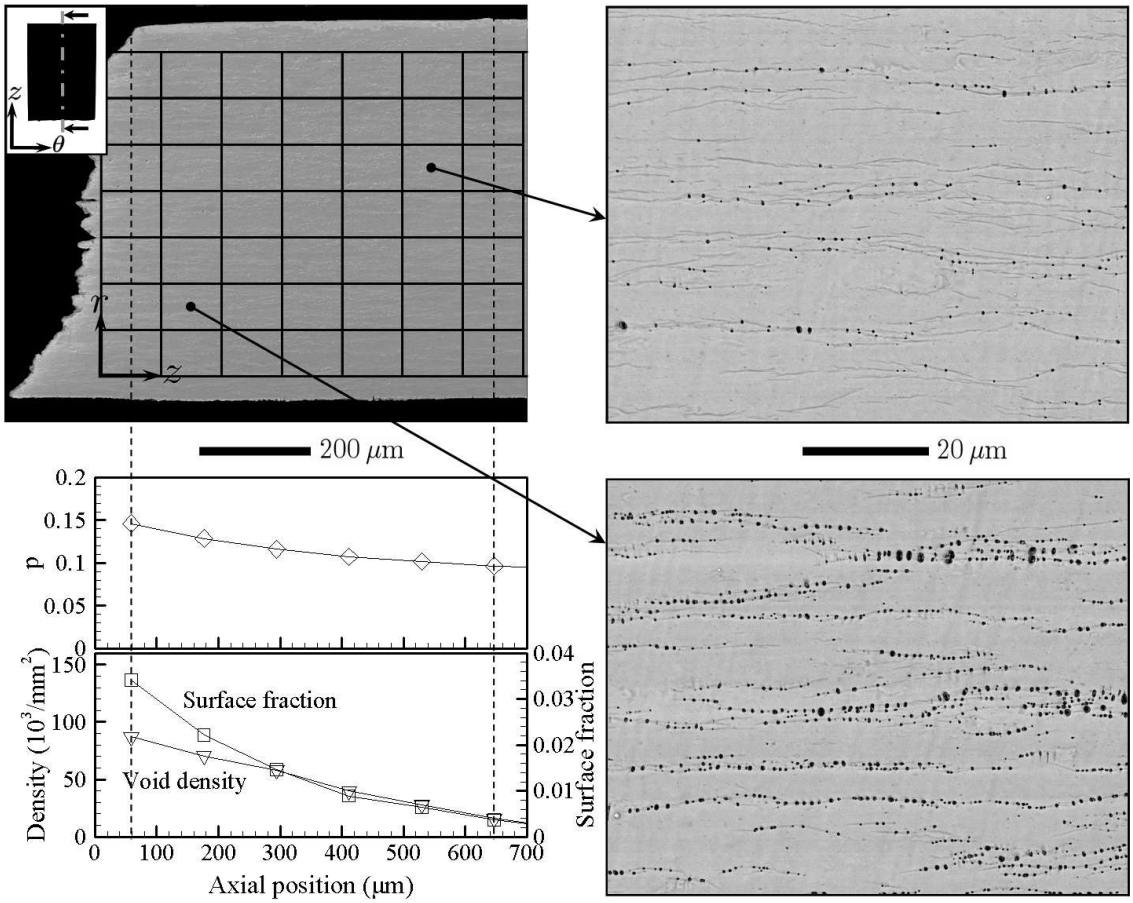


Figure 3.3 – Quantification of damage kinetics due to hydride cracking at room temperature by SEM observations of polished and etched thickness–length cross–sections of broken specimens (example of an AT specimen hydrided at 1200 wt. ppm).

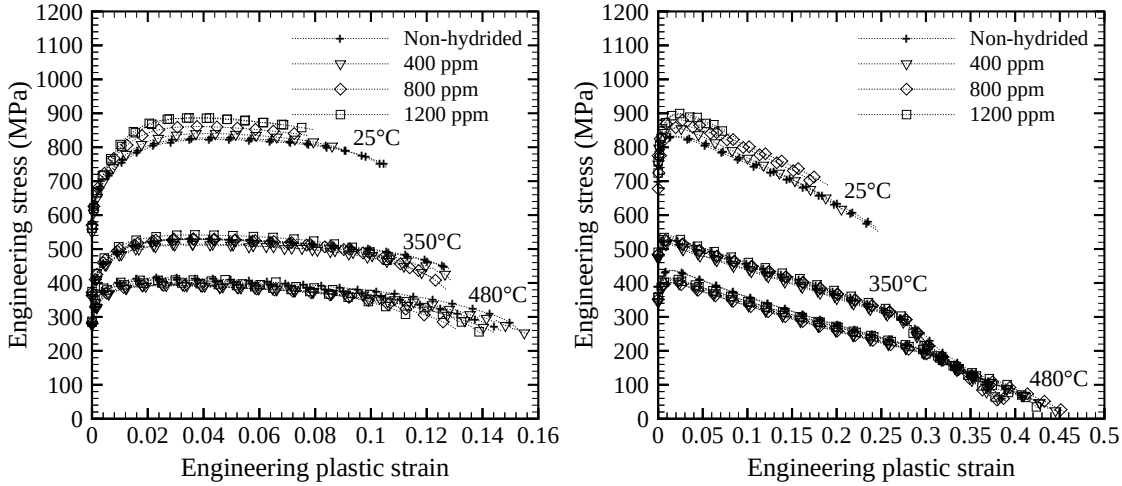


Figure 3.4 – Engineering stress–plastic strain curves for (a) AT and (b) HT tests for different temperatures and hydrogen contents.

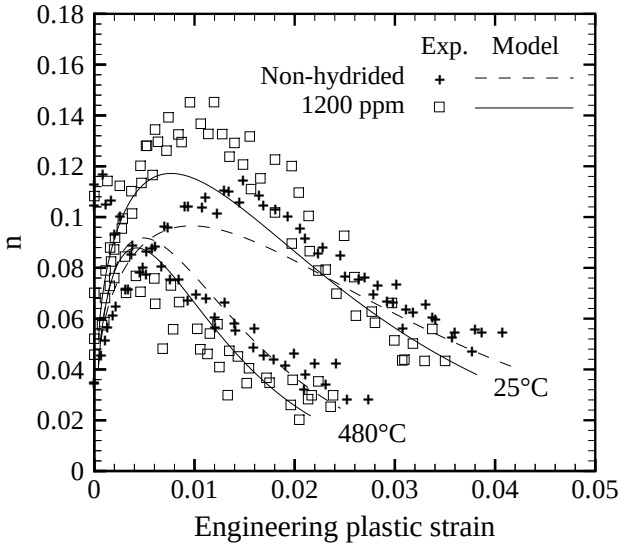


Figure 3.5 – Variation of the instantaneous strain hardening exponent, $n = \partial \ln \sigma / \partial \ln \epsilon^p$, as a function of plastic strain (up to uniform elongation) for AT tests performed at 25 °C and 480 °C on the non–hydrided material and the material hydrided at 1200 wt. ppm.

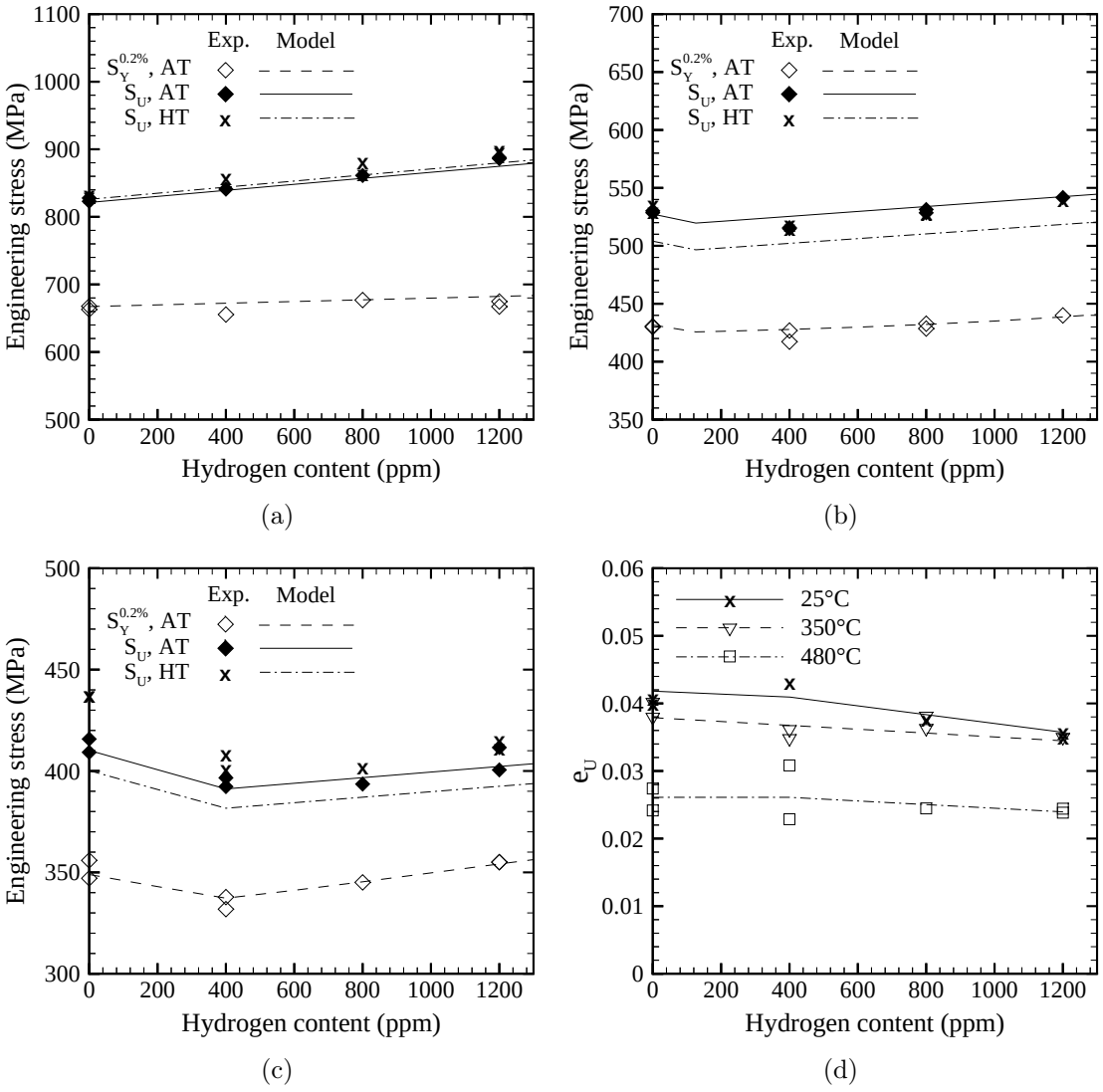


Figure 3.6 – Evolution as a function of hydrogen content of $S_Y^{0.2\%}$ and S_U for AT and S_U for HT tests performed at (a) 25 °C, (b) 350 °C and (c) 480 °C. (d) Variation of e_U as a function of hydrogen content for AT tests conducted at 25 °C, 350 °C and 480 °C.

This mechanical strengthening, typical of particle–reinforced material, is commonly attributed to a composite reinforcement caused by hydrides (harder than the matrix at room temperature) (Yamanaka et al., 1999; Grange et al., 2000a; Arsène et al., 2003b). Indeed, as shown in Fig. 3.5, the instantaneous strain hardening exponent of the hydrided material is higher than that of the non–hydrided material for plastic strains lower than about 0.02. This can be explained by the plastic strain incompatibilities between the matrix and hydrides. For higher plastic strain levels, the influence of local plastic strain incompatibilities on the macroscopic behavior of the material becomes negligible. A slight softening of the hydrided material compared to the non–hydrided material is even observed. e_U slightly decreases with increasing hydrogen content (Fig. 3.6(d)).

At 350 °C and 480 °C, the material mechanical strength slightly decreases as a function of hydrogen content for low hydrogen amounts (Figs. 3.6(b) and 3.6(c)). On the other hand, it increases for higher hydrogen contents. The terminal solid solubility limit of hydrogen in the α phase of zirconium, C_s, strongly depends on temperature : according to the results reported in Kearns (1967) for Zircaloy–4, C_s is negligible at room temperature, 125 wt. ppm at 350 °C and 400 wt. ppm at 480 °C. Insofar as all hydrogen is in solid solution for hydrogen contents lower than C_s, the decrease in material strength for low hydrogen contents at 350 °C and 480 °C is probably due to a softening effect of the dissolved hydrogen. This softening is supposed to be attributed to a decrease of the Zr–Zr bond order caused by solute hydrogen (Yamanaka et al., 2004), to a decrease of the dislocation pinning caused by interstitial atoms and/or to the enhancement of dislocation mobility (Rupa et al., 2002). The strengthening observed for higher hydrogen contents reflects the hardening contribution of hydrides. This hardening is expected to decrease when temperature increases, as deformability of hydrides is increased (Barraclough and Beevers, 1969; Arsène et al., 2003b; Puls et al., 2005).

3.3.2 Plastic anisotropy

Plastic orthotropy in the tube reference system (defined by radial (r), hoop (θ) and axial (z) directions) can be evaluated, for example, by measuring the ratio of axial to hoop strains during AT tests (Fig. 3.7) and by comparing the flow stresses measured during AT and HT tests. The mean axial and hoop strains were measured before necking by DIC. It is shown that plastic anisotropy is nearly constant from room temperature up to 350 °C then evolves when increasing temperature. These results are consistent with the observations reported by Murty and Charit (2006) and Le Saux et al. (2008). In accordance with the results obtained by Grange et al. (2000a) for recrystallized Zircaloy–4 sheets tested at room temperature, no significant effect of hydrogen on plastic anisotropy is observed. This is consistent with the fact that hydride precipitation is not expected to modify the material texture.

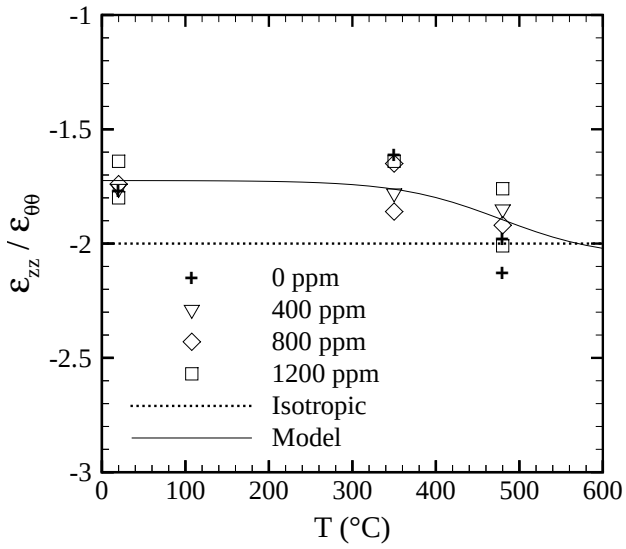


Figure 3.7 – Variation as a function of temperature for various hydrogen contents of the ratio of axial to hoop plastic strains measured during AT tests.

3.3.3 Modeling

a) Plastic anisotropy

A Hill equivalent stress (Hill, 1950) is used to account for plastic anisotropy of the material :

$$\sigma_H = \sqrt{\underline{\boldsymbol{\sigma}} : \underline{\underline{\mathbf{H}}} : \underline{\boldsymbol{\sigma}}} \tag{3.4}$$

where $\underline{\boldsymbol{\sigma}}$ is the stress tensor and $\underline{\underline{\mathbf{H}}}$ is a symmetric fourth rank tensor. When expressed in the anisotropy principal axes (which coincide with the tube reference system axes), the equivalent stress is calculated as :

$$\sigma_H = \big[H_{rr}(\sigma_{\theta\theta} - \sigma_{zz})^2 + H_{\theta\theta}(\sigma_{zz} - \sigma_{rr})^2 + H_{zz}(\sigma_{rr} - \sigma_{\theta\theta})^2 + 2H_{r\theta}\sigma_{r\theta}^2 + 2H_{rz}\sigma_{rz}^2 + 2H_{\theta z}\sigma_{\theta z}^2\big]^{1/2} \tag{3.5}$$

For the determination of $\underline{\underline{\mathbf{H}}}$, the axial direction was fixed as the reference one, leading to $\sigma_H = \sigma_{zz}$ for an AT test (normalization condition). As shown above, plastic anisotropy depends on temperature and is identical for all hydrogen contents. Therefore, the Hill coefficients previously identified in Le Saux et al. (2008) are used in the present work. The good agreement with the experimental data reported here is verified in Fig. 3.7.

b) Viscoplastic flow

A multiplicative non linear isotropic hardening model is used to describe the viscoplastic flow of the material. The model involves the viscoplastic potential :

$$\Omega = \dot{p}_0 \frac{m\eta}{m+1} \left(\frac{\sigma_H}{\eta}\right)^{\frac{1+m}{m}} \tag{3.6}$$

The viscoplastic strain rate tensor is obtained assuming normality so that :

$$\underline{\dot{\boldsymbol{\epsilon}}}^p = \frac{\partial \Omega}{\partial \underline{\boldsymbol{\sigma}}} = \dot{p}\frac{\partial \sigma_H}{\partial \underline{\boldsymbol{\sigma}}} = \dot{p}\underline{\underline{\mathbf{H}}} : \frac{\underline{\boldsymbol{\sigma}}}{\sigma_H} \tag{3.7}$$

The equivalent viscoplastic strain rate is given by :

$$\dot{p} = \dot{p}_0 \left(\frac{\sigma_H(T)}{\eta(p, T, C_{Hs}, C_{Hp})} \right)^{1/m(T)} \tag{3.8}$$

where m is the strain rate sensitivity coefficient, $\dot{p}_0$ is the reference strain rate fixed to $1\,\mathrm{s}^{-1}$. η is a non–linear viscosity coefficient which can be expressed as :

$$\eta(p, T, C_{Hs}, C_{Hp}) = K(T, C_{Hs}, C_{Hp}) L(p, T, C_{Hp}) \tag{3.9}$$

where K is the strength coefficient and L is the strain hardening coefficient depending on p. Note that the instantaneous strain hardening exponent is given by $n = \partial \ln L / \partial \ln \epsilon^p$ in the case of a uniaxial loading. According to the experimental results, the strength coefficient K depends on temperature T, hydrogen in solid solution content C_{Hs} and precipitated hydride content C_{Hp}. The influence of hydrides on K decreases when temperature increases, as mechanical properties of hydrides evolve with temperature. The strain hardening coefficient L is expressed as a function of plastic strain, temperature and hydride content. In the present work, tests were performed under only one strain rate. Therefore, the value proposed in Le Saux et al. (2008) for m is used to describe the temperature dependent strain rate sensitivity of the material, which is assumed to be independent on hydrogen content according to Grange et al. (2000a). Dissolved and precipitated hydrogen contents are evaluated from the total hydrogen content C_H and the terminal solubility limit of hydrogen C_s :

$$C_{Hs}(T) = \min(C_H; C_s(T)) \,;\, C_{Hp}(T) = C_H - C_{Hs}(T) \tag{3.10}$$

According to Kearns (1967), the terminal solubility limit of hydrogen in Zircaloy–4 under equilibrium conditions up to 550 °C is given by $C_s(T) = 99000 \exp(-34523/RT)$, where $R = 8.314\,\mathrm{J.mol^{-1}.K^{-1}}$ is the gas constant.

Since no damage was experimentally observed before the onset of necking, the viscoplastic flow law was adjusted without taking into account any coupling with damage. Moreover, isothermal conditions are assumed as the adiabatic heating due to plastic dissipation (which can be roughly evaluated by $S_U e_U$ at the onset of necking) is not expected to exceed 15 °C in the more detrimental cases. While considering the normalization condition chosen for the determination of Hill coefficients, the model parameters K and L were identified using only AT test results. A least squares fitting method, based on AT stress–plastic strain data before necking, was used. Values of the adjusted parameters are reported in Table 3.1.

As shown in Figs. 3.5, 3.6 and 3.8, the model accurately reproduces the plastic properties of the material up to uniform elongation. In particular, the combined effects of temperature and hydrogen content on strength and strain hardening are correctly described.

Tableau 3.1 – Model parameters (T in K, C_{Hs} and C_{Hp} in ppm).

Elasticity (Le Saux et al., 2008) :
$E = 1.059 \cdot 10^{11} - 36 \cdot 10^{6} T$, $\nu = 0.342$

Strain rate sensitivity (Le Saux et al., 2008) :
$m = 1/[77.68 M_T + 4.11(1 - M_T)]$
where $M_T = 1/[1 + \exp(10.2(T/692 - 1))]$

Strain hardening :
$L = (p + 1 \cdot 10^{-4})^{n_0} \exp(-\alpha_n p) + (1 - \exp(-\alpha_n p))$
with $n_0 = (1 + 1.45 \cdot 10^{-4} C_{Hp})[4.86 \cdot 10^{-2} N_{0T} + 2.35 \cdot 10^{-2}(1 - N_{0T})]$
where $N_{0T} = 1/[1 + \exp(12(T/(810 - 9.19 \cdot 10^{-2} C_{Hp}) - 1))]$
and $\alpha_n = (53.16 + 1.27 \cdot 10^{-2} C_{Hp})[1 + \exp(11.1(T/738 - 1))]$

Strength :
$K = [1 - 1.175 \cdot 10^{-4} C_{Hs} + (6.15 \cdot 10^{-5} - 4.38 \cdot 10^{-8} T) C_{Hp}][(1.409 \cdot 10^{9} - 8.952 \cdot 10^{5} T) K_T + 4.05 \cdot 10^{7}(1 - K_T)]$
where $K_T = 1/[1 + \exp(1.77(T/1007 - 1))]$

Plastic anisotropy (Le Saux et al., 2008) :
$H_{rr} = 0.485 + 9.5 \cdot 10^{-2}/[1 + \exp(12(T/740 - 1))]$
$H_{\theta\theta} = 1 - H_{rr}$
$H_{zz} = 0.52 + (-0.23 + 4 \cdot 10^{-4} T)/[1 + \exp(15(T/550 - 1))]$
$H_{r\theta} = H_{rz} = H_{\theta z} = 1.5$

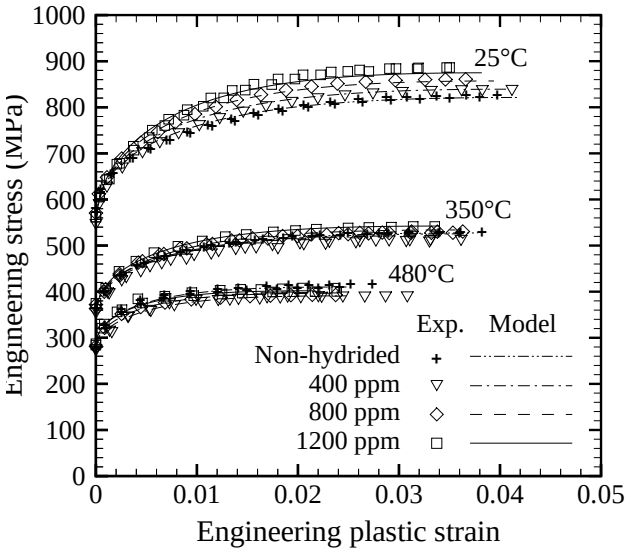


Figure 3.8 – Engineering stress-–plastic strain curves up to uniform elongation for AT tests for different temperatures and hydrogen contents.

3.4 Damage and failure

3.4.1 Macroscopic failure modes

Five types of macroscopic fracture modes are observed depending on specimen geometry, temperature and hydrogen content : slant fracture, cup–and–cone like fracture, stable fracture, through–thickness slant fracture and flat fracture (Fig. 3.9).

Slant fracture is observed for AT tests performed at room temperature on the non–hydrided material and at 350 °C and 480 °C whatever the hydrogen content. This fracture mode, initiated at the center of the specimen gauge width after very little necking, is characteristic of plane stress failure in thin specimens. The macroscopic fracture plane is oriented at about 56±3° to the loading direction. The theoretical inclination angle of localization ψ is given as a function of the axial to hoop strain ratios represented in Fig. 3.7 : $\psi = \arctan\sqrt{-\epsilon_{zz}/\epsilon_{\theta\theta}}$ (Hill, 1952), which is approximately equal to 53° at 25 °C and 350 °C and 54.5° at 480 °C. These values compare well with the values measured experimentally.

Cup–and–cone like rupture occurs in the case of HT tests performed at room temperature on the non–hydrided material and the material hydrided at 400 wt. ppm. Fracture originates after necking in the middle of the specimen gauge section. This central crack first grows nearly perpendicularly to the loading direction. Then, it propagates in the remaining ligaments of the specimen width along localized shear planes oriented at roughly 45° to the specimen axis. The cup–and–cone fracture mode is favored by the lower gauge width to thickness ratio of HT specimens compared to AT specimens.

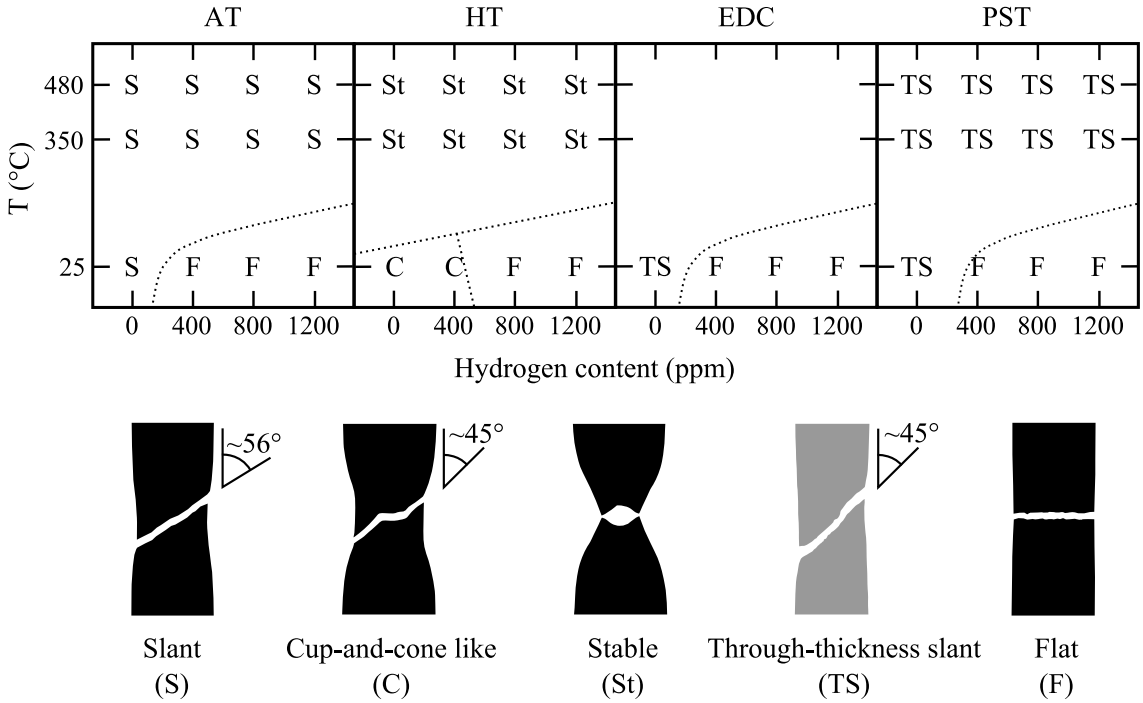


Figure 3.9 – Macroscopic failure modes as a function of specimen geometry, temperature and hydrogen content (black : width–length plane ; grey : thickness–length cross–section).

At 350 °C and 480 °C whatever the hydrogen content, the central crack initiated after large necking at the center of HT specimens grows in a stable manner with a large crack tip opening angle until final fracture (stable fracture). The abrupt change of slope observed on the stress–plastic strain curves (Fig. 3.4(b)) is associated with the initiation of the macroscopic crack.

Through–thickness slant fracture is observed for EDC tests performed at room temperature on the non–hydrided material and PST tests conducted at room temperature on the non–hydrided material and at 350 °C and 480 °C regardless of the hydrogen content. Fracture of EDC specimens initiates on the inner surface at the mid–plane of the cladding, where the deformation is maximum. The incipient crack propagates through the specimen thickness with a 45° angle with respect to the hoop loading direction. The through–thickness crack subsequently propagates along the axial direction of the specimen. This fracture mode is representative of the PCMI–induced failure observed during RIAs.

Initiation of failure in PST specimens results from a through–thickness shearing in the plane strain region along a plane inclined at 45° from the cladding thickness. This fracture mode by shear localization is promoted by the plane strain tension loading and the low strain hardening of the material (Needleman and Rice, 1978; Tvergaard, 1981). Examination of the broken specimens shows that the through–thickness crack initiates on the inner surface of the specimen in the plane strain region. Crack initiation is expected to be slightly accelerated by the strain and

stress concentration due to the contact of the specimen with the edges of the mandrels. This strain and stress concentration is influenced by bending of the specimen between mandrels at the beginning of loading. Nevertheless, as confirmed by FEA, the fracture mode is not modified by this artefact. The crack then propagates as expected along the axial direction of the tube. Finally, when it approaches the notches, where the deformation mode tends toward uniaxial tension in the hoop direction, the crack propagates at about 45° from axial and hoop directions until final fracture.

For the four types of tests, a flat rupture mode is observed in the case of the hydrided material tested at room temperature. The fracture surface is macroscopically perpendicular to the principal loading direction. Fracture occurs prior to the development of localized necking.

3.4.2 Macroscopic ductility

The change of the macroscopic fracture mode as a function of specimen geometry, temperature and hydrogen content is associated with an evolution of the macroscopic ductility of the material.

Fig. 3.10 shows the evolution as a function of hydrogen content of the cross–section reduction at failure, Z, for AT and HT tests performed at 25 °C, 350 °C and 480 °C. Whatever the hydrogen content, the ductility of the material increases with increasing temperature. At room temperature, Z decreases as hydrogen content increases, demonstrating the embrittlement effect of hydrides. However, failure remains ductile in all cases as it occurs after necking ($Z > e_U/(1+e_U)$). On the other hand, no significant effect of hydrogen on material ductility is observed at 350 °C and 480 °C. This reveals a reduction of the detrimental effect of hydrides when temperature increases. These results are consistent with those reported by Puls (1991), Bai et al. (1994b), Bai et al. (1994a), Wisner and Adamson (1998), Arsène et al. (2003a), Bertolino et al. (2003), Yagnik et al. (2005), Hsu (2006), Kim et al. (2007a) and Raynaud et al. (2007). A sharp decrease (ductile–to–brittle transition) of the embrittlement effect of hydrides was observed around 130 °C in Zr–2.5%Nb hydrided at 100 wt. ppm (Shi and Puls, 1999) and Zircaloy–2 hydrided at 225 wt. ppm (Viswanathan et al., 2006).

Z is higher for HT tests than for AT tests. However, it is difficult to conclude about the anisotropy of rupture since the failure modes observed during these tests are not similar. The higher resistance to fracture of HT specimens may be attributed to their higher gauge width to thickness ratio compared to AT specimens (Asserin-Lebert et al., 2005). It would have been necessary to use similar specimens machined in the different directions of the material (obviously difficult in the present case due to the tubular geometry of the material) in order to properly assess the possible anisotropy of failure. Yunchang and Koss (1985) and Grange et al. (2000a) reported a higher ductility in the transverse direction in comparison to the rolling direction of non–hydrided and hydrided Zircaloy–2 and recristallized Zircaloy–4 sheets. The results obtained in the present work are consistent with this tendency.

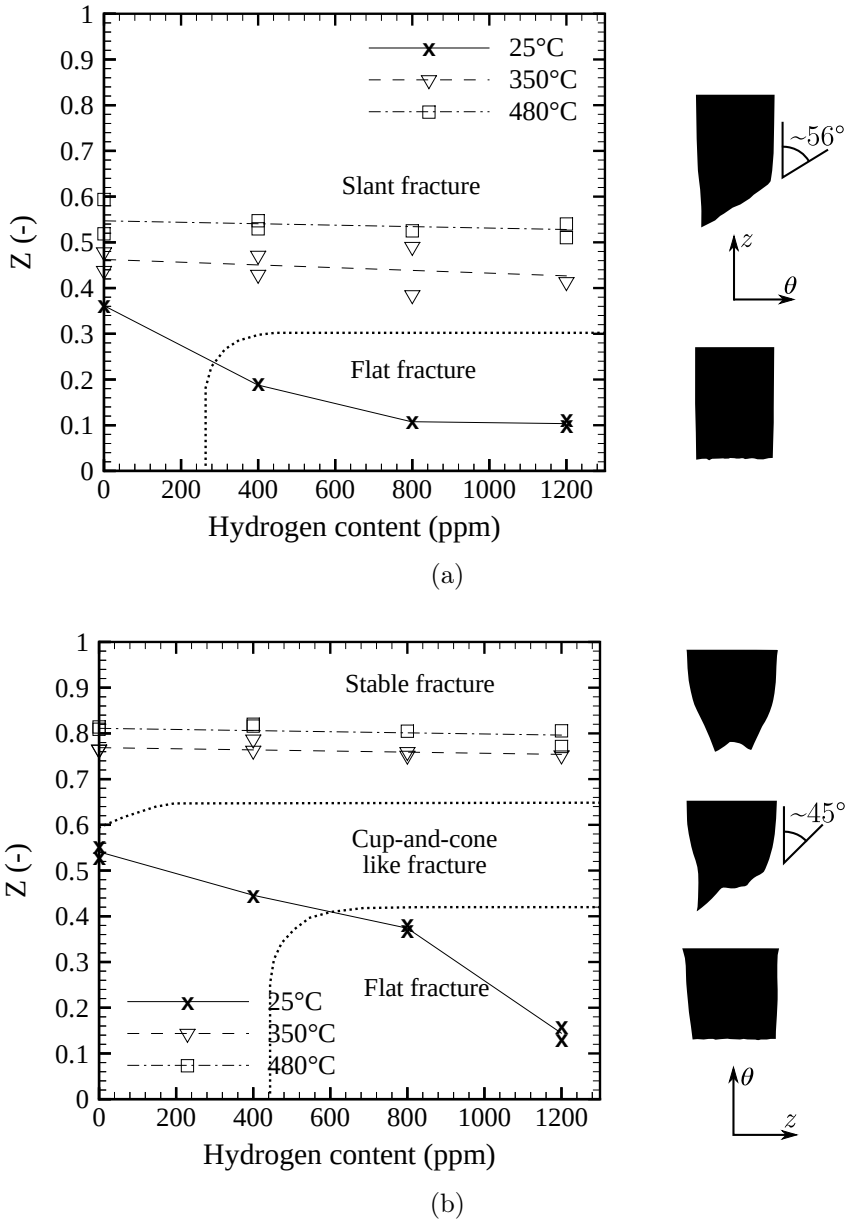


Figure 3.10 – Evolution of the cross–section reduction at failure as a function of hydrogen content for (a) AT tests and (b) HT tests performed at 25 °C, 350 °C and 480 °C (relative accuracy of about ±2%).

The hoop strains to fracture measured after EDC tests carried out at room temperature are plotted as a function of hydrogen content in Fig. 3.11. As for AT

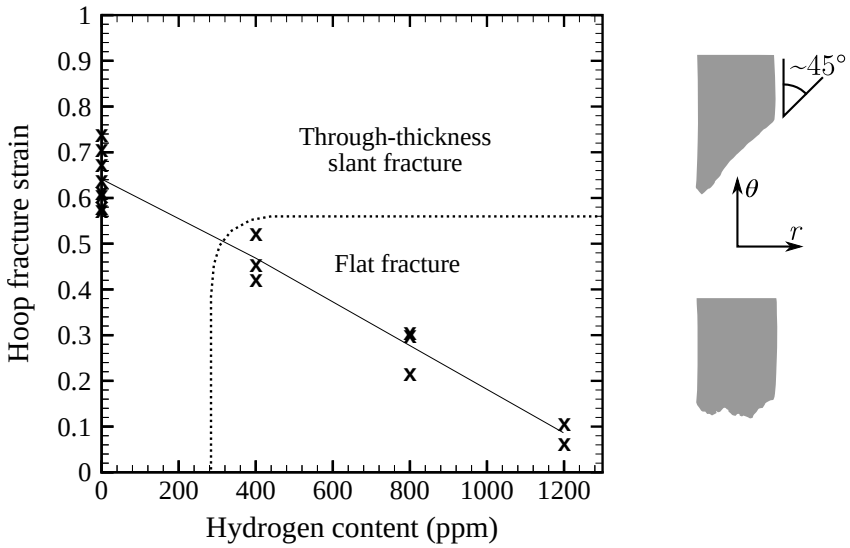


Figure 3.11 – Evolution of the hoop strain to fracture as a function of hydrogen content for EDC tests performed at 25 °C (relative accuracy of about ±3%).

and HT tests, the ductility of the material is significantly reduced when increasing hydrogen content. For the non–hydrided material and the material hydrided to 400 wt. ppm, strains to fracture obtained from EDC tests, which can be approximated by $Z/(1-Z)$, are higher than those deduced from AT tests. Again, this may be partially a consequence of the difference in failure modes, due to plastic anisotropy and distinct specimen geometry.

The maximum hoop strains measured on the outer surface at mid–width of PST specimens (where plane strain tension is expected) by using DIC just before failure (*in–situ* DIC) and after failure (*post–mortem* DIC) are shown in Fig. 3.12. Whereas they provide important information on material ductility, these values should not be rigorously considered as fracture strains. Indeed, fracture initiates at the center of the specimen inner surface in the case of the material with a significant ductility (non–hydrided material whatever the temperature and hydrided material at 350 °C and 480 °C). FEA showed that the maximum plastic strain is roughly twice greater on the inner surface of PST specimens than on their outer surface, due in particular to the contact of the specimens with mandrels. On the other hand, fracture initiates at the root of the specimen notches in the case of the hydrided material tested at 25 °C. Note that the gauge length of the measured local strain fields is slightly higher for the tests conducted at 350 °C and 480 °C compared to that performed at room temperature, due to a lower contrast to noise ratio of the digital images. The strain values obtained in the present work are in good agreement with the fracture strains obtained by Daum et al. (2002a) from micro–indentation measurements on the outer surface of PST specimens with notches at the top and bottom of the half—cylinder

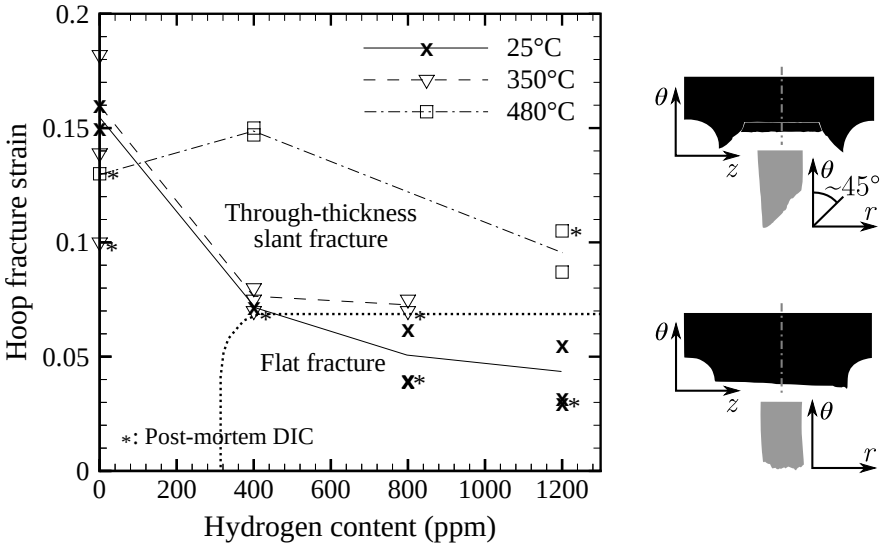


Figure 3.12 – Evolution as a function of hydrogen content of the maximum hoop strain to fracture determined just before failure (*in–situ* DIC) and after failure (*post–mortem* DIC) on the outer surface at mid–width of PST specimens tested at 25 °C, 350 °C and 480 °C (accuracy of about ±0.01).

inserts. Ductility of the material under plane strain tension decreases with increasing hydrogen content at room temperature. In the case of the material hydrided at 800 wt. ppm and 1200 wt. ppm tested at room temperature, fracture occurs before the appearance of the load decrease, associated with strain localization, on the load–plastic displacement curve. On the other hand, no significant effect of temperature is observed for the non–hydrided material. Even considering that strains to failure measured on the outer surface of PST specimens are nearly two times lower than on the inner surface, fracture strains determined during PST tests (plane strain tensile loading) appear to be lower than those deduced from EDC tests (uniaxial tensile loading). This suggests that the material ductility depends on the local stress/strain state.

3.4.3 Microscopic failure mechanisms

a) Non–hydrided material

SEM fractographies of the non–hydrided specimens show for all testing conditions a ductile fracture aspect with fracture surfaces covered by dimples (Fig. 3.13). The ductile fracture process typically involves three main stages : (i) void nucleation, (ii) void growth by plastic deformation of the surrounding matrix and (iii) void coalescence by interaction between voids, leading to final fracture. SEM observations of cross–sections of the broken specimens show that void size and density decrease when moving away from the fracture surface (Fig. 3.14). Energy Dispersive X–ray

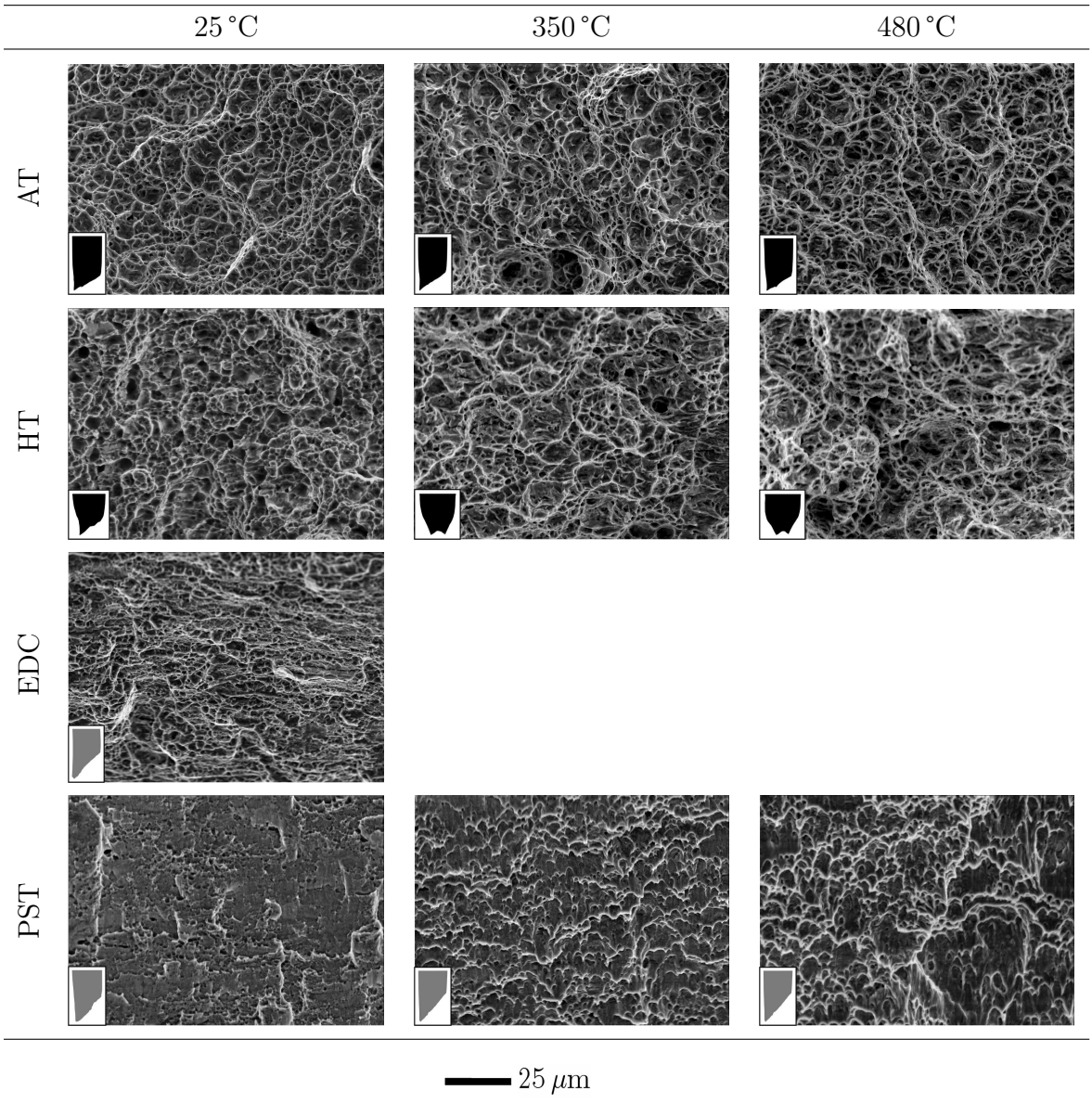


Figure 3.13 – Fracture surfaces of non–hydrided AT, HT, EDC and PST specimens tested at 25 °C, 350 °C and 480 °C.

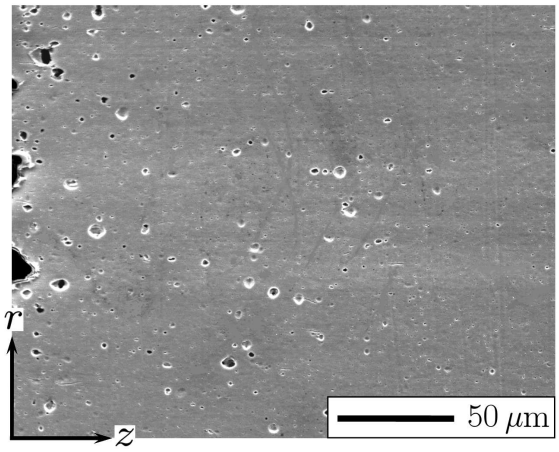


Figure 3.14 – Voids on a polished and etched cross–section near the fracture surface of a non–hydrided AT specimen tested at 350 °C.

(EDX) analysis revealed the presence of Laves phase precipitates $Zr(Fe,Cr)_2$ inside some dimples/voids (Fig. 3.15). As previously observed by Bertolino et al. (2003),

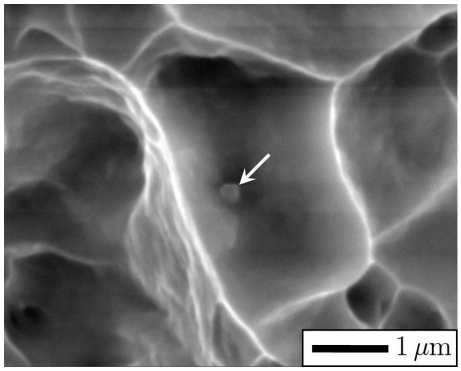


Figure 3.15 – $Zr(Fe,Cr)_2$ precipitate observed on the fracture surface of a non–hydrided AT specimen tested at room temperature.

these precipitates act as void nucleation sites mainly by particle/matrix interface debonding (no inclusion fracture is observed). Caré and Zaoui (1996) observed in Zr–702 that voids nucleate first at grain boundary triple points or at grain boundaries (voids may nucleate at grain boundary triple points even without precipitate near the junction) and that intragranular cavities appear at precipitates for higher plastic strain levels. Caré and Zaoui (1996) also showed that the crystallographic texture of the material is responsible for delayed void nucleation when the tensile tests are performed along the transverse direction compared to the rolling direction. This damage nucleation anisotropy, which would require to be checked in the present case, may at least partially explain the higher strains to fracture measured during HT and EDC tests compared to AT tests.

The void growth and coalescence modes, and consequently the shape of dimples on the fracture surfaces, depend on the local stress state and the fracture mode

(opening or shear fracture). In the case of AT, HT and EDC tests, void growth is appreciable near the fracture surface, due to the increase in stress triaxiality after the onset of necking. Most of the cavities growing below the fracture surface are almost spherical and void coalescence essentially occurs by internal necking of intervoid ligaments (Thomason, 1985) (Fig. 3.16(a)). Dimples associated with these voids appear rather equiaxed on the fracture surfaces. As shown by image analysis of fracture surfaces and cross–sections of the broken specimens, cavities are slightly fewer, larger and deeper at 350 °C and 480 °C than at 25 °C (Table 3.2).

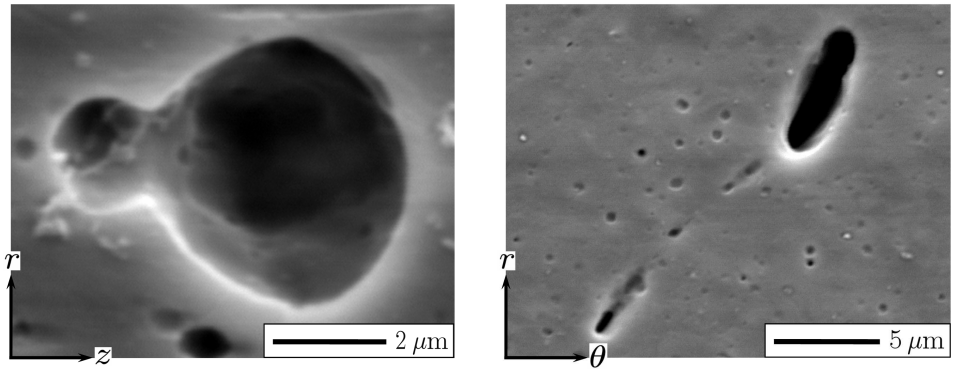
Tableau 3.2 – Mean density of dimples in $10^3/\text{mm}^2$ (standard deviation $7 \cdot 10^3/\text{mm}^2$) on the fracture surfaces of non–hydrided and hydrided at 1200 wt. ppm AT and HT specimens tested at 25 °C, 350 °C and 480 °C.

Test	Non–hydrided			1200 wt. ppm	
	25 °C	350 °C	480 °C	350 °C	480 °C
AT	166	142	145	195	192
HT	140	124	114	203	175

In the case of PST tests, for which strain localization easily develops into a shear band, void growth is limited and void coalescence rapidly takes place mainly by internal shearing between voids (Faleskog and Fong Shih, 1997) (Fig. 3.16(b)), although internal necking is also observed. In accordance with these observations, elongated parabolic–shaped dimples oriented along the shear direction are evidenced on the fracture surfaces (combination of normal and shear separation). Fracture surfaces of the non–hydrided EDC and PST specimens show different features although macroscopic failure modes are similar (through–thickness slant fracture). This is probably due to the higher macroscopic ductility of EDC specimens compared to PST specimens which are more susceptible to plastic shear localization.

b) Hydrided material

As shown in Fig. 3.17, large primary voids/secondary cracks perpendicular to the loading direction are clearly visible on the fracture surfaces of the specimens tested at room temperature. These voids correspond to broken hydrides. Their length is close to the length of hydrides in the corresponding direction. The fracture surfaces appear rather brittle for high hydrogen contents. As shown in Fig. 3.3, hydrides (which are aligned along the main tensile loading direction) break due to their low ductility at room temperature into several fragments normal to the macroscopic tension axis. No debonding between the interface of the matrix and hydrides is observed. SEM observations show that there is more damage near the notches than at the center of hydrided PST specimens. Fracture of the hydrided PST specimens tested at room temperature is thus expected to initiate at the root of notches, where stress triaxiality is the lowest (about 1/3) and plastic strain the largest, according to DIC and FEA.



(a) (b)

Figure 3.16 – Void coalescence by (a) internal necking of intervoid ligaments during an AT test and (b) internal shearing between voids during a PST test.

Therefore, the larger stress triaxiality at the center of PST specimens (about $1/\sqrt{3}$) is not sufficient to influence damage of the hydrided material. In that case, the evolution of damage due to hydride cracking at room temperature is expected to be mainly plastic strain controlled.

The fracture surfaces have a mixed appearance with small dimples within the ductile ligaments between the broken hydrides. According to a void sheet localization mechanism (Cox and Low, 1974; Faleskog and Fong Shih, 1997; Bandstra et al., 1998), the coalescence process involves the formation of large primary voids by hydride cracking, subsequently linked by sheets of secondary microvoids probably nucleated at Laves phase particles and at grain boundary triple nodes. Accordingly, the fracture profiles across the specimens thickness show a zig–zag aspect with primary voids separated by planes inclined at about 45° to the principal tension axis (Fig. 3.3). The second population of voids accelerates the onset of void coalescence (Faleskog and Fong Shih, 1997; Fabrègue and Pardoen, 2008). Hydrides significantly affect the nucleation stage of the damage process at room temperature, which is therefore dominated by hydride cracking at high hydrogen content. Nearly no broken hydrides are observed on the fracture surfaces of the specimens tested at 350 °C. Hydride fragmentation disappears at 480 °C. This may be attributed to a decrease of the matrix strength and probably an increase of the hydride ductility with increasing temperature (Arsène et al., 2003a). This observation is consistent with the negligible effect of hydrogen on material ductility reported above at 350 °C and 480 °C. Similarly to the non–hydrided material, fracture surfaces of the hydrided material tested at 350 °C and 480 °C are covered with ductile dimples. On the other hand, the dimples are smaller and more numerous for the hydrided material than for the non–hydrided material (Table 3.2). The reaction of hydrogen with $Zr(Fe,Cr)_2$ precipitates during hydrogen absorption may have increased the volume of precipitates (inducing heterogeneous local strain and stress fields) (Bertolino et al., 2003; Lelièvre et al., 2002). Consequently, the nucleation of cavities around $Zr(Fe,Cr)_2$

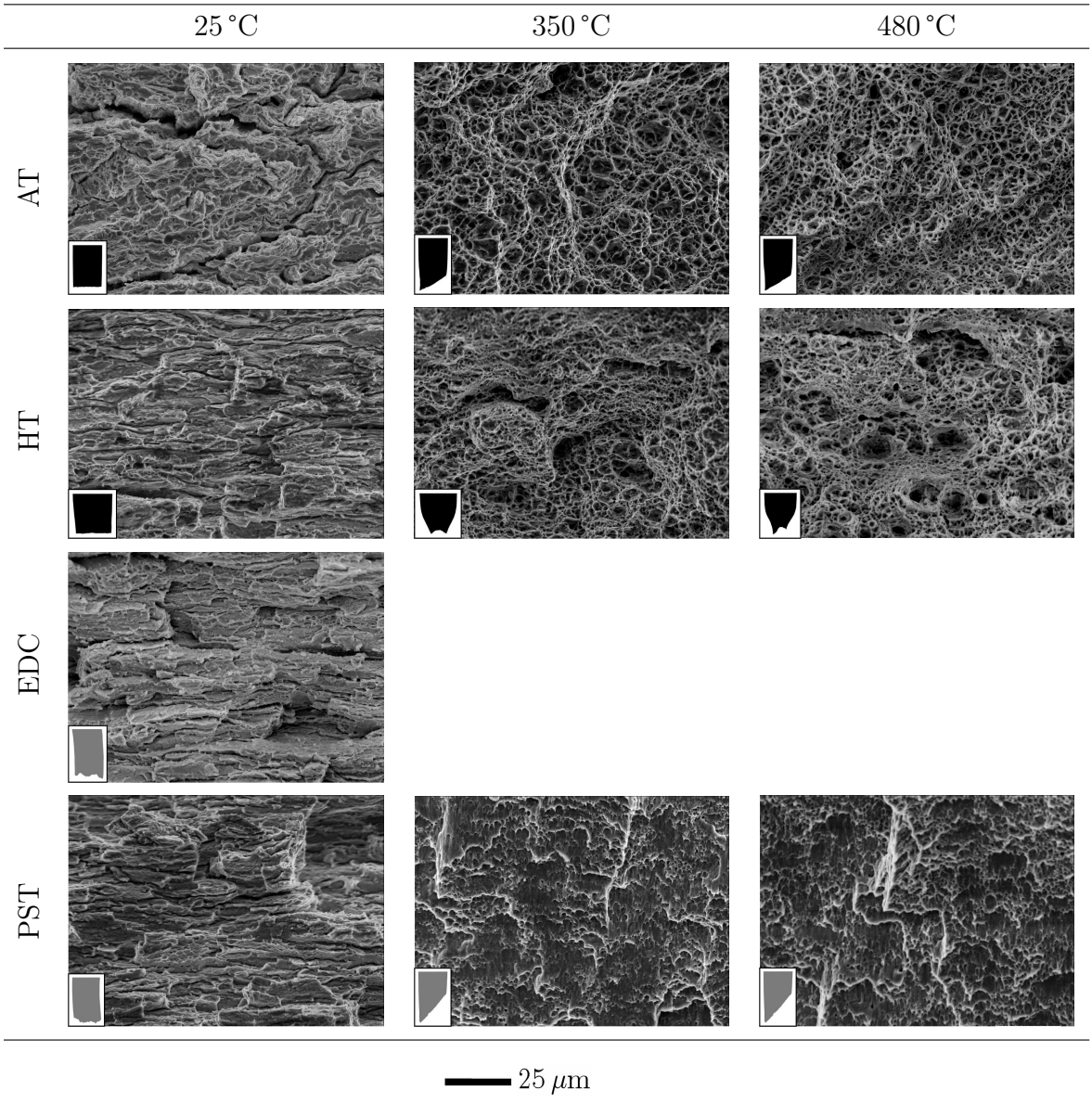


Figure 3.17 – Fracture surfaces of AT, HT, EDC and PST specimens hydrided at 1200 wt. ppm tested at 25 °C, 350 °C and 480 °C.

precipitates is probably favored in the case of the hydrided material. However, that does not have any significant effect on the macroscopic ductility of the material.

3.4.4 Damage kinetics due to hydride cracking

The method described in Section 3.2.4 and illustrated in Fig. 3.3 is used to determine, as a function of plastic strain, crack nucleation and growth rates due to hydride cracking at room temperature. As shown in Fig. 3.18, hydride cracking is preceded by plastic deformation in accordance with the results reported in Simpson (1981), Yunchang and Koss (1985), Puls (1991), Grange et al. (2000a), Arsène et al. (2003b) and Veleva et al. (2003). Whatever the conditions, no hydride cracking is observed for local plastic strains lower than 0.08. Therefore, the onset of necking in the specimens is not influenced by damage. The plastic strain that leads to hydride

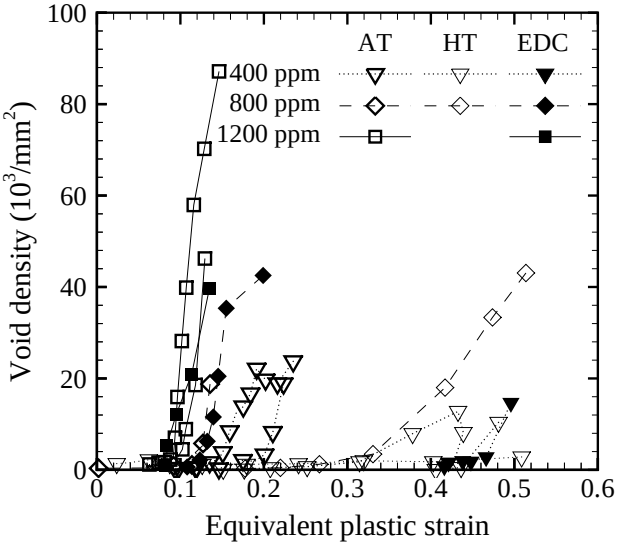


Figure 3.18 – Void density due to hydride cracking as a function of plastic strain for AT, HT and EDC tests performed at room temperature for different hydrogen contents.

cracking decreases with increasing hydrogen content. This is due to the higher density and thickness of hydrides with increasing hydrogen content. Indeed, it has been reported that wide and long hydrides are more susceptible to cracking (Simpson, 1981; Shi and Puls, 1999; Hong et al., 2002; Arsène et al., 2003b). The strain necessary to nucleate cracks is clearly higher for HT and EDC tests than for AT tests for the material hydrided at 400 wt. ppm. This is compatible with the differences in macroscopic ductility observed during these tests. To a lesser extent, Yunchang and Koss (1985) also observed in Zircaloy–2 sheets hydrided up to 615 wt. ppm (although most of the hydrides were circumferential, a significant fraction of hydrides were radial) that hydride cracking occurs for lower plastic strain levels in the case of uniaxial tensile tests conducted along the rolling direction of the sheet compared to tests performed along the transverse direction. In the present case, this may be due

to the material texture and/or to the fact that hydrides are longer and straighter along the tube axial direction than along its circumferential direction, according to the morphology of the material grains. Note that, in general, hydride embrittlement is far more important when the normal to hydride plane is parallel to the loading direction (Daum et al., 2006; Chu et al., 2007). For the material hydrided at 800 wt. ppm and 1200 wt. ppm, the critical strains measured during AT and EDC are similar. This suggests that the potential influence of hydride morphology on hydride cracking becomes negligible at high hydrogen contents.

Beyond the plastic strain that leads to hydride cracking, the crack density exponentially increases as a function of plastic strain (both the number of cracks per hydride and the fraction of cracked hydrides increase). The linear first stage of the damage kinetics observed by Grange et al. (2000a) in recrystallized Zircaloy–4 sheets and attributed to crack nucleation at intergranular hydrides is not observed in the present work. This is consistent with the majority of transgranular hydrides observed in the CWSR material compared to the recrystallized material (Bai et al., 1994b; Veleva et al., 2003; Une and Ishimoto, 2006).

Fig. 3.19 shows the average values of the mean and maximum cross–sectional areas of voids (thickness–length cross–section) as a function of plastic strain for AT tests performed at room temperature for different hydrogen contents. The mean area

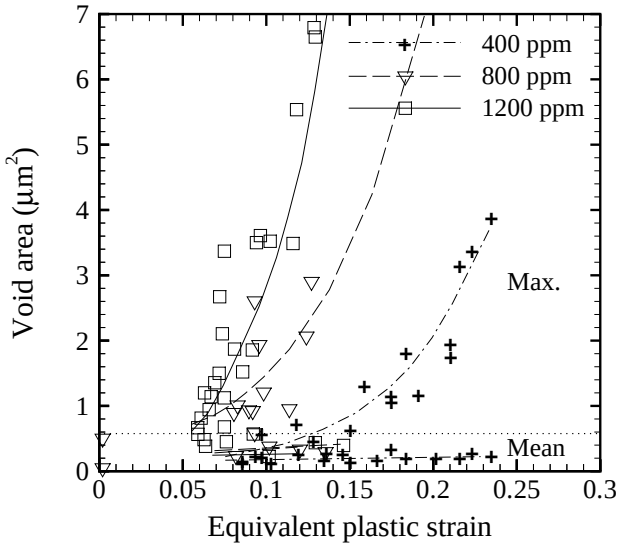


Figure 3.19 – Average values of the mean and maximum cross–sectional areas of voids (thickness–length cross–section) as a function of plastic strain for AT tests performed at room temperature for different hydrogen contents.

remains constant with increasing plastic strain, confirming that hydride cracking is a continuous process as a function of plastic strain. The area of the largest voids increases as a function of plastic strain, reflecting void growth and coalescence, which are also illustrated in Fig. 3.3. The void growth rate increases slightly with increasing hydrogen content due to the easier interaction between neighboring voids (the spacing between the voids nucleated by hydride cracking is reduced).

3.5 Conclusions

In this study, anisotropic plastic behavior and failure of Zircaloy–4 fuel claddings under loading conditions relevant to the Pellet–Clad Mechanical Interaction (PCMI) stage of Reactivity Initiated Accidents (RIA) are analyzed. The effects of temperature (from room temperature up to 480 °C), hydrogen content (from 0 up to 1200 wt. ppm) and stress/strain state (from uniaxial tension up to plane strain tension) are investigated.

The material exhibits anisotropic plastic properties. Plastic anisotropy depends on temperature. No significant effect of hydrogen on plastic anisotropy is observed. The mechanical strength of the material decreases with increasing temperature. The material is reinforced by hydride precipitates and softened by dissolved hydrogen. A model is proposed to describe these properties before uniform elongation. Hill's yield criterion is used to account for plastic anisotropy.

The ductility of the material increases with increasing temperature. A higher ductility is observed along the circumferential direction compared to the axial direction. At room temperature, the material is embrittled by hydrogen precipitated as circumferential hydrides. At 350 °C and 480 °C, hydrogen, which is partially dissolved (its solubility limit at equilibrium in Zircaloy–4 is about 125 wt. ppm at 350 °C and 400 wt. ppm at 480 °C), does not have any significant effect on material ductility for hydrogen contents up to 1200 wt. ppm. Therefore, for temperatures higher than 350 °C, ductility of Zircaloy–4 during the PCMI stage of RIAs is not expected to be reduced by hydrogen, even for large amounts of hydride precipitates (up to at least 1000 wt. ppm).

The macroscopic fracture modes of the specimens and the microscopic damage mechanisms involved in the ductile fracture of the material (*i.e.* void nucleation, growth and coalescence) depend on temperature, hydrogen content and specimen geometry/local stress/strain state. In particular, damage nucleation essentially occurs at Laves phase precipitates (interfacial debonding) and at grain boundary triple nodes in the case of the non–hydrided material whatever the temperature and the hydrided material at 350 °C and 480 °C. In the case of the hydrided material tested at room temperature, void nucleation is mainly the result of hydride cracking. Hydrides do not crack at 350 °C and 480 °C. Void coalescence takes place by internal necking or internal shearing depending on the local stress/strain state.

Damage due to hydride cracking at room temperature depends mainly on strain. It is not significantly influenced by stress triaxiality in the studied range (from 1/3 to $1/\sqrt{3}$). Quantitative metallographic observations show that hydride cracking at room temperature is preceded by plastic deformation (larger than 0.08) and accelerates with increasing hydrogen content. For the material hydrided at 400 wt. ppm, hydride cracking occurs at higher plastic strain levels under hoop tension than under axial tension. This anisotropy of damage nucleation is negligible for higher hydrogen contents.

Acknowledgements

The authors would like to thank Philippe Mongabure, Bruno Boisdanghien and Jean-Pierre Pizzanelli for their technical support in mechanical testing. Jean-Luc Bechade and Annick Bougault are also gratefully acknowledged for allowing and helping us to use the SEM of CEA/SRMA.

3.6 Résumé

Le comportement plastique anisotrope, l'endommagement et la rupture des gaines en Zircaloy–4 détendu non irradiées hydrurées ont été analysés à l'aide d'essais mécaniques (traction axiale, traction circonférentielle, expansion due à la compression, traction plane circonférentielle) et de caractérisations microstructurales. Les moyens et les méthodes expérimentales utilisées et développées pour ce travail (hydruration, machine d'essais mécaniques, moyens d'observations, préparation des échantillons, mesures des déformations locales, corrélation d'images numériques) sont décrits en annexe C. Une analyse plus complète des essais de traction axiale, traction circonférentielle, expansion due à la compression et traction plane circonférentielle est menée en annexe D. Dans cette annexe, il est également montré que les essais se sont déroulés dans des conditions quasi–isothermes (la chaleur dégagée par la plastification des éprouvettes est négligeable) jusqu'à l'apparition de la striction. En revanche, un échauffement local significatif est pressenti avant la rupture des éprouvettes. Les principaux résultats des essais de caractérisation mécanique sont récapitulés sous forme de tableaux en annexe E. L'annexe F.1 détaille la méthode utilisée pour quantifier l'endommagement lié à la rupture des hydrures à température ambiante.

Les conditions expérimentales des essais sont :

- températures : 25 °C, 350 °C et 480 °C ;
- vitesse de déformation : $0.1\,\mathrm{s}^{-1}$;
- teneurs en hydrogène : 0 ppm, 400 ppm, 800 ppm et 1200 ppm.

Les principales conclusions de cette étude sont les suivantes :

- La résistance mécanique et l'écrouissage du matériau, hydruré ou non, diminuent avec la température. La présence d'hydrures conduit, par effet composite, à une augmentation de la contrainte d'écoulement du matériau à température ambiante. Cet effet durcissant décroît en fonction de la température. L'hydrogène en solution solide provoque une perte de résistance mécanique du matériau.
- Le comportement plastique du matériau est orthotrope. Cette anisotropie évolue notamment en fonction de la température. En revanche, elle n'est pas modifiée par l'hydrogène, qu'il soit précipité ou en solution solide.
- Un modèle a été développé pour décrire le comportement viscoplastique anisotrope du matériau. Ce modèle reproduit correctement les effets de la température et de l'hydrogène, qu'il soit précipité ou dissous. Un critère de Hill est

utilisé pour représenter l'anisotropie plastique du matériau. En annexe G, ce modèle est comparé au modèle proposé au chapitre 2 pour le matériau vierge et irradié en REP afin d'examiner les influences respectives de l'hydrogène, la fluence et les conditions d'irradiation sur le comportement mécanique du matériau.

– Les modes de rupture macroscopiques des éprouvettes et les mécanismes d'endommagement du matériau dépendent de la température, la teneur en hydrogène et la géométrie de l'éprouvette.
– La ductilité du matériau augmente avec la température. Elle diminue lorsque la teneur en hydrogène augmente à température ambiante. En revanche, quelle que soit la teneur en hydrogène, l'effet fragilisant des hydrures est insignifiant à 350 °C et 480 °C. Les résultats suggèrent une ductilité légèrement plus importante en traction circonférentielle qu'en traction axiale. Néanmoins, dans la mesure où les modes de rupture des éprouvettes de traction axiale et de traction circonférentielle sont différents (sauf pour le matériau hydruré testé à température ambiante), on ne peut affirmer que la rupture du matériau est anisotrope. Pour tenter de reproduire en traction axiale les modes de rupture des éprouvettes de traction circonférentielle, des essais complémentaires ont été réalisés sur des éprouvettes « bi–languettes » dont les zones calibrées présentent des dimensions identiques à celles des anneaux de traction circonférentielle ; les résultats sont décrits en annexe H. Les modes de rupture restent différents de ceux des anneaux de traction circonférentielle. A ce stade, il n'est donc toujours pas possible de conclure quant au caractère anisotrope de la rupture du matériau.
– La rupture du matériau suit, quelles que soient les conditions étudiées, le schéma de la rupture ductile, faisant intervenir le germination, la croissance et la coalescence de cavités. L'endommagement du matériau non hydruré est *a priori* essentiellement provoqué par la décohésion de l'interface entre la matrice et les précipités de phases de Laves. Dans le cas du matériau hydruré testé à température ambiante, la rupture des hydrures perpendiculairement à la direction principale de chargement constitue la principale source d'endommagement. La déformation localisée entre les cavités primaires créées par la rupture des hydrures conduit à la germination d'une seconde population de cavités, liée aux précipités de phases de Laves. Aucune rupture d'hydrures n'est observée à 350 °C et 480 °C. La coalescence se produit par striction des ligaments entre les cavités existantes dans le cas des essais AT, HT et EDC. Dans le cas des essais PST, pour lesquels une localisation de la déformation macroscopique en cisaillement est observée, la croissance des cavités est limitée et la coalescence intervient par cisaillement.
– L'influence de la déformation plastique est prépondérante sur l'apparition de l'endommagement par rupture des hydrures par rapport à la triaxialité des contraintes dans la gamme étudiée (de 1/3 à $1/\sqrt{3}$). Une analyse quantitative de l'endommagement lié à la rupture des hydrures à température ambiante a été menée. Il a été montré que la rupture des hydrures n'intervient qu'à partir d'une déformation plastique limite. Cette déformation limite est d'autant

plus faible que la teneur en hydrogène est élevée. Elle vaut environ 0.08 dans le cas du matériau hydruré à 1200 ppm. Au–delà de la déformation limite, la rupture des hydrures se produit continûment en fonction de la déformation plastique. Dans le cas du matériau hydruré à 400 ppm, les hydrures rompent pour des niveaux de déformation plastique plus élevés en traction circonférentielle qu'en traction axiale. Cette anisotropie devient négligeable pour les plus fortes teneurs.

Chapitre 4

Modélisation de la rupture ductile du Zircaloy–4 hydruré

Sommaire

4.1 Introduction 130
4.2 Formalisme du modèle 131
4.2.1 Potentiel de Gurson–Tvergaard–Needleman 131
4.2.2 Description de l'endommagement 133
4.2.3 Ecoulement viscoplastique 135
4.3 Identification des paramètres du modèle 136
4.3.1 Introduction 136
4.3.2 Démarche d'identification 137
4.3.3 Loi d'écoulement et coefficients de Hill 139
4.3.4 Germination des cavités 139
4.3.5 Coalescence des cavités 142
4.3.6 Taille de maille 143
4.4 Résultats des simulations 144
4.4.1 Traction axiale 144
4.4.2 Traction circonférentielle 148
4.4.3 Expansion due à la compression 151
4.4.4 Traction plane circonférentielle 153
4.4.5 Essais d'écrasement 156
4.5 Conclusions 159

Ce chapitre est consacré à la modélisation du comportement et de la rupture, étudiés au chapitre précédent, des gaines en Zircaloy–4 détendu non irradiées hydrurées. Le comportement viscoplastique anisotrope et l'endommagement ductile du matériau sont décrits à l'aide d'un modèle basé sur celui de Gurson–Tvergaard–Needleman. Après une introduction justifiant ce choix, le formalisme du modèle est détaillé. Les paramètres du modèle sont ensuite déterminés à partir des résultats du chapitre précédent. Enfin, les résultats de simulations numériques des différents essais réalisés dans le cadre de cette thèse sont présentés.

4.1 Introduction

Pour évaluer les risques de rupture des gaines lors d'un RIA, il est important de disposer de modèles de rupture prédictifs. Comme nous l'avons déjà évoqué en section 1.2.3, les critères de rupture utilisés dans les codes de calcul simulant le comportement des crayons combustibles lors du transitoire sont généralement basés sur une approche globale. Bien qu'attrayante pour la simplicité de sa formulation, cette approche requiert la réalisation d'essais mécaniques reproduisant au mieux le chargement auquel sont soumises les gaines en conditions réelles. Dans le cas présent, cette tâche est loin d'être aisée. Quant à eux, les modèles basés sur une approche locale décrivent les mécanismes physiques mis en jeu. Leur utilisation n'est donc *a priori* pas limitée à une géométrie particulière. En contrepartie, ces modèles sont plus complexes et coûteux en temps de calcul. En pratique, les approches globale et locale sont complémentaires : les modèles basés sur une approche locale permettent de progresser dans la compréhension des mécanismes physiques impliqués et, à terme, d'affiner et/ou de justifier les critères de rupture reposant sur une approche globale.

Il a été choisi de positionner cette étude dans une démarche de compréhension, visant à mieux appréhender l'endommagement et la rupture du matériau afin d'améliorer les critères de rupture utilisés dans les codes de calcul. Un modèle basé sur une approche locale, qui – parce qu'il décrit les mécanismes physiques mis en jeu – permet d'espérer une bonne transférabilité des éprouvettes de laboratoires aux structures, a donc été retenu pour représenter la rupture ductile du matériau (chapitre 3). Il existe dans la littérature plusieurs modèles pour décrire l'endommagement des matériaux. Ils sont de deux types :

1. Les modèles découplés : le comportement du matériau n'est pas affecté par l'endommagement (McClintock, 1966; Rice and Tracey, 1969). Ces modèles décrivent la croissance de cavités dans une matrice supposée incompressible. Les variables d'endommagement peuvent être calculées *a posteriori*, en post–traitement de calculs par éléments finis. L'amorçage de la rupture ductile intervient lorsque les paramètres d'endommagement atteignent une valeur critique.
2. Les modèles couplés : le comportement est couplé à l'endommagement. Ces modèles prennent en compte l'adoucissement du matériau dû à l'endommagement. Les plus utilisés sont les modèles de Lemaitre and Chaboche (1985) et Rousselier (1987), basés sur une approche thermodynamique, et celui de

Gurson (1977) modifié par Tvergaard et Needleman (Tvergaard and Needleman, 1984; Tvergaard, 1990), à l'origine issu d'une démarche micromécanique. Ces modèles permettent de décrire à la fois l'amorçage et la propagation des fissures.

Un modèle basé sur celui de Gurson–Tvergaard–Needleman (GTN) a été utilisé dans le cadre de cette étude. Ce modèle inclut des paramètres directement liés à des grandeurs physiques. En particulier, l'endommagement est exprimé en terme de fraction volumique de cavités. Ce modèle a déjà été utilisé avec succès pour représenter la rupture, à température ambiante, de tôles en Zircaloy–4 recristallisé non irradiées et hydrurées (Grange, 1998; Grange et al., 2000b). En se basant sur ces travaux, l'objectif de ce travail est d'étendre et d'ajuster le modèle pour décrire le comportement et l'endommagement, caractérisés au chapitre précédent, entre 25 °C et 480 °C des gaines en Zircaloy–4 détendu non irradiées hydrurées.

4.2 Formalisme du modèle

4.2.1 Potentiel de Gurson–Tvergaard–Needleman

Le modèle de Gurson–Tvergaard–Needleman est basé sur le modèle micromécanique de Gurson (1977), établi, à l'image des travaux de Rice and Tracey (1969), à partir de l'analyse de la croissance d'une cavité sphérique dans une matrice rigide parfaitement plastique. Ce modèle est le premier à introduire un fort couplage entre la déformation et l'endommagement. L'expression originelle du critère de plasticité établi par Gurson est :

$$\Phi(\underline{\boldsymbol{\sigma}}, \sigma_0, f) = \left(\frac{\sigma_{eq}}{\sigma_0}\right)^2 + 2f\cosh\left(\frac{3}{2}\frac{\sigma_m}{\sigma_0}\right) - 1 - f^2 = 0 \tag{4.1}$$

où $\underline{\boldsymbol{\sigma}}$ est le tenseur des contraintes macroscopiques, σ_{eq} est la contrainte macroscopique équivalente au sens de von Mises, $\sigma_m = \sigma_{kk}/3$ est la contrainte macroscopique moyenne, f est la porosité du matériau [1] et σ_0 est la limite d'élasticité de la matrice.

Le modèle de Gurson a été étendu par Tvergaard and Needleman (1984) pour tenir compte de l'écrouissage isotrope de la matrice en remplaçant la limite d'élasticité du matériau parfaitement plastique σ_0 par une contrainte d'écoulement moyenne dans la matrice $\sigma_\star$. La surface d'écoulement est identique à celle de von Mises (matériau incompressible) lorsque la porosité f est nulle et en est très proche lorsque les contraintes hydrostatiques sont faibles. Chu and Needleman (1980) ont introduit une composante de germination de nouvelles cavités venant s'ajouter à la croissance des cavités existantes. Le modèle originel de Gurson prévoit la rupture du matériau lorsque f vaut 1. La ductilité réelle du matériau est donc fortement sur–estimée.

[1] La porosité est définie par le rapport entre le volume des cavités V_c et le volume total du matériau V : $f = \frac{V_c}{V}$.

Tvergaard et Needleman (Tvergaard, 1981; Tvergaard and Needleman, 1984; Tvergaard, 1990) ont introduit de manière heuristique trois paramètres supplémentaires q_1, q_2 et q_3 pour tenir compte de l'écrouissage et de l'interaction entre les cavités voisines. Pour reproduire la perte rapide de résistance mécanique du matériau juste après le début de la coalescence des cavités, Tvergaard and Needleman (1984) ont défini de manière phénoménologique une porosité effective $f_\star$, fonction de la porosité. La porosité effective permet d'accélérer artificiellement la croissance des cavités prédite par le modèle de Gurson. Les matériaux viscoplastiques ont également été abordés (Pan et al., 1983; Leblond et al., 1994; Hao and Brocks, 1997; Prat et al., 1998; Rivalin et al., 2000; Grange et al., 2000b; Klöcker and Tvergaard, 2003). Dans ce cas, la contrainte dépend à la fois de la déformation plastique p et de la vitesse de déformation plastique $\dot{p}$. Pour les faibles sensibilités de la contrainte à la vitesse de déformation, la surface d'écoulement reste identique. Le modèle de Gurson a par ailleurs été utilisé dans le cadre des matériaux plastiques orthotropes obéissant au critère quadratique de Hill (Liao et al., 1997; Prat et al., 1998; Rivalin et al., 2000; Grange et al., 2000b; Benzerga et al., 2002; Wang et al., 2004). La contrainte de von Mises σ_{eq} est alors remplacée par la contrainte équivalente au sens de Hill (1950) σ_H (équation 3.4). Seule la contribution des contraintes déviatoriques est modifiée par cette extension ; l'endommagement reste isotrope.

Bien qu'elles n'aient pas été utilisées pour ce travail, on notera que d'autres extensions au modèle de Gurson ont été proposées dans la littérature : Leblond et al. (1995) ont proposé un critère de plasticité qui fait intervenir deux limites d'élasticité distinctes pour améliorer la prédiction du modèle pour les forts coefficients d'écrouissage. Le modèle a été étendu au cas de l'écrouissage cinématique (Mear and Hutchinson, 1985; Leblond et al., 1995; Besson and Guillemer-Neel, 2003). Les influences de la forme (Pardoen and Hutchinson, 2000; Gologanu et al., 1993, 1994; Benzerga et al., 2004) et de la taille (Wen et al., 2005) des cavités ont été étudiées. Des modèles qui tiennent compte de la présence d'une seconde population de cavités autour des cavités primaires ont été développés (Perrin and Leblond, 2000; Fabrègue and Pardoen, 2008). L'influence, pour les faibles triaxialités, de la présence à l'intérieur des cavités de particules – qui empêchent leur contraction dans la direction perpendiculaire à la direction principale de chargement – a été intégrée (Siruguet and Leblond, 2004a, b).

La forme retenue du potentiel GTN, étendu aux comportements viscoplastiques anisotropes, s'écrit :

$$\Phi(\underline{\boldsymbol{\sigma}}, \sigma_\star, f_\star) = \left(\frac{\sigma_H}{\sigma_\star}\right)^2 + 2q_1 f_\star \cosh\left(q_2 \frac{3}{h}\frac{\sigma_m}{\sigma_\star}\right) - 1 - q_3 f_\star^2 \tag{4.2}$$

où $\sigma_\star$ est la contrainte effective (vue par le matériau constituant la matrice) du matériau poreux définie implicitement par l'équation :

$$\Phi(\underline{\boldsymbol{\sigma}}, \sigma_\star, f_\star) = 0 \tag{4.3}$$

h est une fonction des coefficients de Hill, établie par Benzerga and Besson (2001) à partir d'une analyse micromécanique, permettant de prendre en compte l'influence

de l'anisotropie plastique sur la croissance des cavités :

$$h = \left[\frac{4}{5}\frac{H_{rr}+H_{\theta\theta}+H_{zz}}{H_{rr}H_{\theta\theta}+H_{\theta\theta}H_{zz}+H_{zz}H_{rr}} + \frac{6}{5}\left(\frac{1}{H_{r\theta}}+\frac{1}{H_{rz}}+\frac{1}{H_{\theta z}}\right)\right]^{1/2} \tag{4.4}$$

4.2.2 Description de l'endommagement

La porosité totale efficace (ayant un effet mécanique), f_t, est exprimée en fonction de la porosité de germination de nouvelles cavités, f_n, et de la porosité de croissance des cavités existantes par déformation plastique de la matrice, f_g :

$$\dot{f}_t = \dot{f}_n + \dot{f}_g \tag{4.5}$$

Conformément aux observations détaillées au chapitre 3, deux populations de cavités sont considérées :

1. des cavités initialement sphériques créées essentiellement par décohésion de l'interface précipités de phase de Laves/matrice ;
2. des cavités ou microfissures rectangulaires de type « penny shaped » créées par fragmentation des hydrures.

Ainsi, la porosité de germination fait intervenir deux variables f_{nL} et f_{nH} correspondant respectivement à la germination de cavités par décohésion de l'interface précipités/matrice et à la germination, par rupture des hydrures, de microfissures supposées avoir le même effet mécanique que des cavités cylindriques de même section projetée dans le plan perpendiculaire à la direction principale de chargement [2] (Figure 4.1) :

$$\dot{f}_n = \dot{f}_{nL} + \dot{f}_{nH} \tag{4.6}$$

La germination des microfissures n'engendre pas, contrairement au cas de la germination par décohésion [3], de variation de porosité. La porosité réelle (associée à une variation de volume) ne doit donc pas inclure le volume fictif lié à la germination de cavités par rupture des hydrures. L'évolution de la porosité réelle s'écrit donc :

$$\dot{f} = \dot{f}_{nL} + \dot{f}_g \tag{4.7}$$

Une approche similaire a été proposée par Besson et al. (2000), Grange et al. (2000b) and Besson and Guillemer-Neel (2003). Le taux de croissance des cavités est obtenu à partir de l'hypothèse de conservation de la masse [4] (on suppose que la variation

[2] Cette propriété a été démontrée par Gologanu et al. (1994) dans le cas de cavités sphériques.

[3] Après décohésion, la particule à l'intérieur de la cavité est supposée ne plus jouer aucun rôle mécanique ; tout se passe comme si la particule était retirée.

[4] La porosité réelle est définie par le rapport entre le volume des cavités V_c et le volume total du matériau V : $f = \frac{V_c}{V}$. Par dérivation, en l'absence de germination de nouvelles cavités, on obtient le taux de croissance des cavités : $\dot{f}_g = \dot{f} = \frac{\dot{V}_c V - V_c \dot{V}}{V^2}$. D'après l'hypothèse d'incompressibilité de la matrice, on a $\dot{V} = \dot{V}_c$. La vitesse de variation de volume du matériau poreux $\frac{\dot{V}}{V}$ est directement liée au taux de déformation viscoplastique $\underline{\dot{\boldsymbol{\epsilon}}}^p$ par $\frac{\dot{V}}{V} = \mathrm{tr}(\underline{\dot{\boldsymbol{\epsilon}}}^p)$. On obtient donc finalement : $\dot{f}_g = \left(1 - \frac{V_c}{V}\right)\frac{\dot{V}}{V} = (1-f)\mathrm{tr}(\underline{\dot{\boldsymbol{\epsilon}}}^p)$.

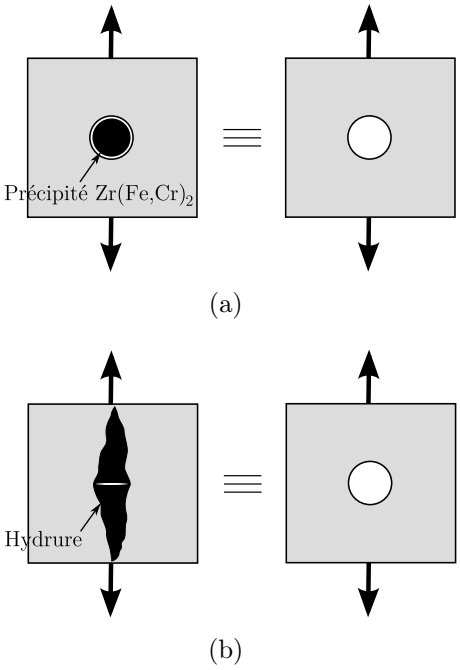


Figure 4.1 – Germination de cavités par (a) décohésion de l'interface précipités de phase de Laves/matrice et (b) rupture des hydrures.

de volume élastique n'engendre pas de changement de porosité) :

$$\dot{f}_g = (1-f)\mathrm{tr}(\underline{\dot{\boldsymbol{\epsilon}}}^p) = (1-f)^2 \dot{p}\underline{\mathbf{n}} : \underline{\mathbf{I}} \tag{4.8}$$

où $\underline{\mathbf{I}}$ est le tenseur unité du second ordre. Pour tenir compte de l'accélération de la croissance des cavités lors de la coalescence, la porosité effective, exprimée ici en fonction de la porosité totale efficace f_t, est décrite par Tvergaard and Needleman (1984) :

$$f_\star(f_t) = \begin{cases} f_t & \text{si } f_t < f_c \\ f_c + \delta(f_t - f_c) & \text{sinon} \end{cases} \tag{4.9}$$

où f_c est la porosité critique pour laquelle les cavités commencent à coalescer (de telle sorte la porosité est plus endommageante que si elle restait sphérique) et δ est un terme accélérateur exprimé par :

$$\delta = \frac{f_{\star u} - f_c}{f_f - f_c} > 1 \tag{4.10}$$

Il y a rupture lorsque $f_\star = f_{\star u} = 1/q_1$, *i.e.* $f_t = f_f = f_c + (f_{\star u} - f_c)/\delta$. Pour ne pas rendre le modèle trop complexe, l'accélération (mécanisme de « void sheet ») de la coalescence des cavités primaires (créées par rupture des hydrures) due à la présence, dans les bandes de cisaillement qui les séparent, de cavités secondaires (liées à la décohésion de la matrice autour des phases de Laves) n'est pas explicitement

intégrée[5]. Néanmoins, comme l'ont fait Gao and Kim (2005), cette accélération sera implicitement prise en compte à travers les paramètres f_c and δ.

4.2.3 Ecoulement viscoplastique

L'écoulement du matériau est supposé viscoplastique sans seuil. Le potentiel viscoplastique est exprimé par :

$$\Omega = \sigma_\star \geq 0 \tag{4.11}$$

L'écoulement viscoplastique est supposé vérifier la règle de normalité. Le tenseur des vitesses de déformations viscoplastiques s'écrit :

$$\underline{\dot{\boldsymbol{\epsilon}}}^p = (1-f)\dot{\lambda}\frac{\partial\Omega}{\partial\underline{\boldsymbol{\sigma}}} = (1-f)\dot{\lambda}\frac{\partial\sigma_\star}{\partial\underline{\boldsymbol{\sigma}}} \tag{4.12}$$

où $\dot{\lambda}$ est le multiplicateur plastique donné par la loi d'écoulement viscoplastique du matériau, F_{vp} :

$$\dot{\lambda} = F_{vp}(\Omega) \tag{4.13}$$

$\sigma_\star$ est une fonction homogène de $\underline{\boldsymbol{\sigma}}$ de degré 1 et différentiable. D'après le théorème d'Euler, on a alors $(\partial\sigma_\star/\partial\underline{\boldsymbol{\sigma}}) : \underline{\boldsymbol{\sigma}} = \sigma_\star$. L'équation 4.12 donne donc :

$$\underline{\dot{\boldsymbol{\epsilon}}}^p : \underline{\boldsymbol{\sigma}} = (1-f)\dot{\lambda}\frac{\partial\sigma_\star}{\partial\underline{\boldsymbol{\sigma}}} : \underline{\boldsymbol{\sigma}} = (1-f)\dot{\lambda}\sigma_\star \tag{4.14}$$

En écrivant l'égalité de la puissance plastique macroscopique et de la puissance plastique microscopique :

$$\underline{\dot{\boldsymbol{\epsilon}}}^p : \underline{\boldsymbol{\sigma}} = (1-f)\dot{p}\sigma_\star \tag{4.15}$$

on obtient, par comparaison avec l'équation 4.14, l'évolution de la déformation viscoplastique cumulée p :

$$\dot{p} = \dot{\lambda} = F_{vp}(\Omega) \tag{4.16}$$

Le tenseur des déformations viscoplastiques vaut donc :

$$\underline{\dot{\boldsymbol{\epsilon}}}^p = (1-f)\dot{p}\underline{\mathbf{n}} \text{ avec } \underline{\mathbf{n}} = \frac{\partial\sigma_\star}{\partial\underline{\boldsymbol{\sigma}}} \tag{4.17}$$

$\sigma_\star$ étant définie de façon implicite, la direction d'écoulement $\underline{\mathbf{n}}$ peut être calculée en notant qu'à porosité constante une variation de $\underline{\boldsymbol{\sigma}}$ induit une variation de $\sigma_\star$ telle que Φ reste nulle :

$$\delta\Phi = \frac{\partial\Phi}{\partial\underline{\boldsymbol{\sigma}}} : \delta\underline{\boldsymbol{\sigma}} + \frac{\partial\Phi}{\partial\sigma_\star}\delta\sigma_\star = 0 \tag{4.18}$$

On obtient alors :

$$\underline{\mathbf{n}} = -\left(\frac{\partial\Phi}{\partial\sigma_\star}\right)^{-1}\frac{\partial\Phi}{\partial\underline{\boldsymbol{\sigma}}} \tag{4.19}$$

[5]Des modèles permettant de reproduire ce phénomène ont été proposés par Perrin and Leblond (2000) et Fabrègue and Pardoen (2008).

avec

$$\frac{\partial \Phi}{\partial \sigma_\star} = -\frac{2\sigma_H^2}{\sigma_\star^3} - \frac{6 f_\star q_1 q_2 \sigma_m}{h \sigma_\star^2} \sinh\left(q_2 \frac{3}{h} \frac{\sigma_m}{\sigma_\star}\right) \tag{4.20}$$

et

$$\frac{\partial \Phi}{\partial \underline{\boldsymbol{\sigma}}} = \frac{2}{\sigma_\star^2} \underline{\underline{\mathbf{H}}} : \underline{\boldsymbol{\sigma}} + \frac{2 f_\star q_1 q_2}{h \sigma_\star} \sinh\left(q_2 \frac{3}{h} \frac{\sigma_m}{\sigma_\star}\right) \underline{\mathbf{I}} \tag{4.21}$$

4.3 Identification des paramètres du modèle

4.3.1 Introduction

Le modèle comporte 9 paramètres à ajuster : la loi d'écoulement viscoplastique F_{vp}, le tenseur de Hill $\underline{\underline{\mathbf{H}}}$, les lois de germination des cavités liées aux précipités de phase de Laves $\dot{f}_{nL}$ et aux hydrures $\dot{f}_{nH}$, les paramètres q_1, q_2 et q_3, la porosité critique conduisant à la coalescence des cavités f_c et le paramètre d'accélération δ.

Le modèle a été implanté dans le code de calcul par éléments finis Cast3M, via le sous–programme utilisateur UMAT (User MATerial). Une méthode de Runge–Kutta du quatrième ordre avec pas de temps adaptatif a été utilisée pour intégrer les variables internes du modèle. La méthode est détaillée en annexe A.

Pour des raisons numériques, notamment dans le cas des calculs 3D, il n'a pas été possible de simuler l'ensemble du processus de rupture des éprouvettes. Plus précisément, malgré les efforts mis en oeuvre, des difficultés de convergence globale (équilibrage de la structure) ont été rencontrées dès la rupture d'un ou au mieux de quelques points de Gauss. En effet, il est à l'heure actuelle difficile de traiter ce type de problème avec Cast3M qui ne dispose pas des outils adéquats (adaptation automatique du pas de temps et retrait des éléments rompus notamment). Par ailleurs, la matrice tangente locale potentiellement fournie en sortie de UMAT n'est pour le moment pas exploitée par Cast3M pour calculer la matrice de rigidité élémentaire. Nous nous sommes donc concentrés sur l'amorçage des fissures, ne pouvant reproduire leur propagation.

D'une manière générale, la symétrie d'une structure ne doit pas être exploitée lorsque la fissure s'amorce au niveau du plan de symétrie. Lorsque la propagation de la fissure s'effectue selon le plan de symétrie, l'énergie nécessaire pour rompre un point de Gauss est doublée (Devillers-Guerville, 1998). Néanmoins, ce problème peut être contourné en introduisant des éléments dont la dimension perpendiculaire au plan de symétrie est deux fois plus faible que dans le cas non–symétrique. En revanche, la symétrie ne doit en toute rigueur pas être exploitée lorsque la fissure quitte le plan de symétrie. Dans cette étude, les symétries ont tout de même été exploitées pour conserver des temps de calcul raisonnables tout en autorisant un maillage suffisamment fin. Cette simplification n'est pas réellement problématique dans la mesure où la propagation des fissures n'a, quoi qu'il en soit, pas pu être entièrement simulée.

Les modèles par éléments finis des différentes géométries simulées sont détaillés en annexe I.

4.3.2 Démarche d'identification

La machine de traction utilisée durant cette thèse est relativement molle (raideur faible estimée à environ 5000 kN/m). L'énergie élastique emmagasinée dans la machine est donc conséquente. En outre, l'énergie élastique stockée dans l'éprouvette, d'autant plus importante que l'éprouvette est longue, est significative dans le cas des essais AT. On peut donc supposer que les essais AT en particulier se sont déroulés de manière relativement instable [6]. Des simulations par éléments finis des essais de traction axiale réalisés en introduisant une partie élastique aux extrémités de l'éprouvette – destinée à représenter la rigidité de la machine – ont confirmé cette supposition : la convergence des calculs après le développement de la striction est d'autant plus difficile que le module d'Young de la partie élastique est faible ; les difficultés de convergence deviennent importantes pour des modules d'élasticité définis de telle sorte que l'énergie élastique emmagasinée soit inférieure ou égale à l'énergie stockée dans le dispositif expérimental. Il est donc probable que les courbes force–déplacement traverse mesurées durant les essais de traction axiale en particulier n'intègrent pas la totalité de la réponse des éprouvettes après striction [7]. En revanche, les déformations locales à rupture ne sont *a priori* pas affectées par cette instabilité. Il est donc préférable d'identifier les paramètres du modèle d'endommagement à partir des déformations locales à rupture plutôt qu'à partir des courbes force–déplacement traverse. On peut néanmoins espérer que les essais HT, EDC et PST se soient déroulés de manière plus stable que les essais AT car les éprouvettes utilisées sont nettement moins élancées. Il est également probable que la température ait un effet bénéfique sur la stabilité des essais : la contrainte supportée par l'éprouvette et par conséquent l'énergie emmagasinée sont d'autant plus faibles que la température est élevée. On remarquera notamment que pour les essais HT réalisés à 350 °C et 480 °C, les courbes contrainte–déformation plastique (figure 3.4(b)) retranscrivent correctement la propagation stable de la fissure.

Dans le cas des éprouvettes AT, des calculs par éléments finis et des mesures de déformations par corrélation d'images ont montré que, pour un niveau de déformation suffisant, deux bandes étroites de déformations plastiques localisées, symétriques par rapport à l'axe de l'éprouvette, se forment au sein de la striction diffuse [8]. Ces bandes sont inclinées à environ 56° par rapport à la direction de char-

[6] Grossièrement, une machine infiniment dure travaille en déplacement imposé tandis qu'une machine infiniment molle travaille à charge imposée.

[7] La courbe force–déplacement traverse indique que l'éprouvette est rompue pour un déplacement traverse d'autant plus faible que la machine est molle et l'éprouvette est longue.

[8] Il a été constaté que le déplacement pour lequel la striction localisée apparaît au sein de la striction diffuse dépend de la précision fixée sur le résidu des forces internes et externes (paramètre `PRECISION` de la procédure `PASAPAS` de Cast3M) pour la convergence des calculs par éléments finis : la localisation de la déformation intervient d'autant plus tôt que la précision est élevée. La réponse macroscopique tend néanmoins à converger lorsqu'on réduit la valeur du critère de précision. Quoi

gement. Pour le matériau non hydruré quelle que soit la température ou le matériau hydruré testé à 350 °C et 480 °C, la rupture s'amorce à la jonction des bandes et se propage dans l'une d'entre elles (figure 3.10(a)). Les parties adjacentes de part et d'autres des bandes de déformations ne se déforment plus. Une fois ces bandes amorcées, la variation de largeur des zones utiles de l'éprouvette entre les bandes est minime. Pour le matériau hydruré testé à température ambiante, la rupture intervient avant la formation des bandes de déformations localisées. Les éprouvettes rompent brutalement perpendiculairement à la direction principale de chargement. Elles se déforment très peu entre l'amorçage de la fissure et la rupture finale. Quelles que soient les conditions, on peut donc légitimement considérer que la variation de largeur de l'éprouvette au moment de l'amorçage de la fissure est très proche de la variation de largeur de l'éprouvette rompue.

Dans le cas des essais HT réalisés sur le matériau non hydruré ou hydruré à 400 ppm quelle que soit la température ou le matériau hydruré testé à 350 °C et 480 °C, la fissure amorcée au centre de la zone utile se propage de manière relativement stable selon la largeur de l'éprouvette (figure 3.10(b)). L'éprouvette continue donc de se contracter selon sa largeur après l'amorçage de la fissure centrale, jusqu'à la rupture finale. Le profil de déformation à l'amorçage de la fissure est donc très différent du profil à rupture. En revanche, ces profils sont *a priori* proches dans le cas des éprouvettes hydrurées testées à température ambiante, qui rompent brutalement selon un plan macroscopique perpendiculaire à la direction de sollicitation.

Dans le cas des éprouvettes EDC non hydrurées, la rupture se produit par propagation d'une fissure à travers l'épaisseur de l'échantillon. Le plan de rupture macroscopique est incliné à environ 45° par rapport à la direction principale de chargement (figure 3.11). Le matériau hydruré testé à température ambiante rompt brutalement selon un plan macroscopique orthogonal à la direction principale de sollicitation. Dans les deux cas, la variation de diamètre externe de l'éprouvette évolue peu entre l'amorçage de la fissure et la rupture finale de l'échantillon.

Les modes de rupture des éprouvettes PST sont assez proches de ceux des éprouvettes EDC (figure 3.12). On peut supposer que les déformations locales de l'éprouvette au moment de l'amorçage de la fissure sont proches des déformations locales à rupture.

En résumé, on peut raisonnablement considérer, mis à part pour les essais HT réalisés sur le matériau non hydruré quelle que soit la température ou le matériau hydruré testé à 350 °C et 480 °C, que l'amorçage des fissures entraine quasi–simultanément la rupture finale des éprouvettes (la propagation des fissures est instable). La procédure d'identification consiste à déterminer par essais successifs les paramètres du modèle décrivant l'endommagement du matériau afin d'obtenir un bon accord entre :

– les déformations locales (profils de réduction de largeur pour les essais AT et HT, variation de diamètre externe pour les essais EDC, déformations circon-

qu'il en soit, ce constat justifie lui aussi l'utilisation des déformations locales plutôt que la courbe force–déplacement pour l'identification des paramètres du modèle.

férentielles en paroi externe pour les essais PST) calculées à l'amorçage d'une fissure (rupture d'un point de Gauss) et les déformations locales mesurées expérimentalement après rupture des éprouvettes ;
– éventuellement les courbes force–déplacement numériques et expérimentales.

Malgré la prise en compte de l'anisotropie plastique du matériau, qui affecte la croissance des cavités, il s'est avéré impossible de déterminer un jeu de paramètres unique permettant de simuler l'ensemble des essais. Cette difficulté est attribuée à l'anisotropie de l'endommagement, qui n'est pas prise en compte dans le modèle. Un premier jeu de paramètres a alors été déterminé à partir des essais de traction axiale uniquement. Ces paramètres ont ensuite été utilisés pour simuler les autres essais. Cette démarche permet d'approfondir l'étude de l'endommagement du matériau et de la rupture des éprouvettes.

4.3.3 Loi d'écoulement et coefficients de Hill

La loi d'écoulement viscoplastique développée en section 3.3.3 (équation 3.8) est utilisée pour décrire le comportement mécanique du matériau non endommagé (F_{vp}).

L'anisotropie plastique est décrite à l'aide des coefficients de Hill identifiés en section 2.3, déjà utilisés en section 3.3.3. Le paramètre h (équation 4.4) vaut alors 2.031 à 25 °C, 1.997 à 350 °C et 1.995 à 480 °C. h reste donc très proche de 2, valeur caractéristique d'un matériau isotrope.

4.3.4 Germination des cavités

a) Décohésion de l'interface matrice/précipités de phase de Laves

La germination de cavités par décohésion de l'interface matrice/précipités de phase de Laves est supposée dépendre de la déformation plastique :

$$\dot{f}_{nL} = A_{nL}\dot{p} \tag{4.22}$$

Il est difficile de quantifier expérimentalement la cinétique de germination de ces cavités en raison des faibles dimensions des précipités. En l'absence de données quantitatives supplémentaires, la loi de germination suivante a été retenue :

$$A_{nL} = \begin{cases} \frac{f_{NL}}{p_{NLf} - p_{NLi}} & \text{si } p_{NLi} < p < p_{NLf} \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \tag{4.23}$$

où p_{NLi} est la déformation plastique minimale à laquelle débute la germination et p_{NLf} est la déformation plastique maximale pour laquelle la germination s'arrête. f_{NL} est la fraction volumique des précipités de phase de Laves autour desquels la germination de cavités peut se produire. Le fer et le chrome sont insolubles dans le zirconium en phase α jusqu'à 800 °C environ (Charquet et al., 1989). En considérant que tout le fer et le chrome précipite sous forme de phases de Laves $Zr(Fe,Cr)_2$, la

fraction volumique totale des précipités peut être évaluée à partir de la composition chimique du matériau (section 3.2.1) ; elle vaut $f_L = 0.0045$ (le détail du calcul est disponible en annexe F.2.1). Cette valeur est proche de celle déterminée par Erwin et al. (2001). On suppose que tous les précipités $Zr(Fe,Cr)_2$ sont susceptibles de contribuer à la germination de cavités. On a donc : $f_{NL} = f_L = 0.0045$. Les valeurs identifiées par analyse inverse en traction axiale pour p_{NLi} et p_{NLf} sont respectivement 0.04 et 0.3, quelle que soit la température. La germination des cavités par décohésion de l'interface matrice/précipités de phase de Laves débute donc dès l'apparition de la striction des éprouvettes.

b) Rupture des hydrures

Conformément aux observations expérimentales, la germination de cavités par rupture des hydrures à température ambiante est contrôlée par la déformation plastique de la matrice :

$$\dot{f}_{nH} = A_{nH}\dot{p} \tag{4.24}$$

Les hydrures ne rompent que lorsqu'ils sont sollicités en traction. L'équation précédente ne vaut donc que lorsque $\sigma_{kk} > 0$. Dans le cas contraire, $\dot{f}_{nH} = 0$. Les microfissures i liées à la fragmentation des hydrures en traction uniaxiale peuvent être apparentées à des rectangles dans le plan perpendiculaire à la direction de chargement (hauteur d_{Hi} et largeur l_{Hi} selon l'épaisseur et la largeur de l'éprouvette respectivement) (figure 4.2). Ces microfissures sont supposées avoir le même effet

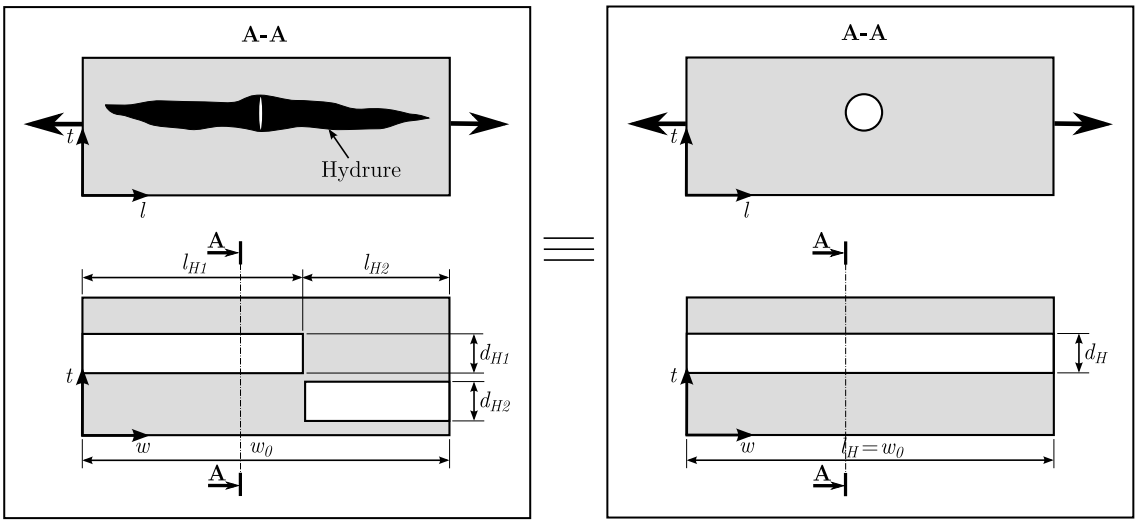


Figure 4.2 – Microfissure amorcée par rupture d'un hydrure et cavité cylindrique équivalente en terme d'effet mécanique (l : longueur, w : largeur, t : épaisseur).

mécanique que des cavités cylindriques de même section projetée $d_{Hi}l_{Hi}$ (Grange et al., 2000b). Connaissant le volume des cavités, $\pi d_{Hi}^2 l_{Hi}/4$, la porosité de germination peut être évaluée à partir de la densité de fissures N_H mesurée à l'aide

d'observations métallurgiques en section 3.4.4 :

$$f_{nH} = \frac{N_H}{w_0} \sum_{1 \leq i \leq N_H} \frac{\pi d_{Hi}^2 l_{Hi}}{4} \tag{4.25}$$

où w_0 est la largeur de la zone utile de l'éprouvette. Les microfissures sont supposées avoir initialement toutes la même hauteur d_H : $d_{Hi} = d_H$. On suppose par ailleurs, en accord avec les observations expérimentales, que l'endommagement est homogène dans la largeur de l'éprouvette. Ainsi, l'endommagement observé dans le plan de coupe axial est représentatif de l'endommagement de l'éprouvette. On a donc : $\sum_{1 \leq i \leq N_H} l_{Hi} = w_0$. Finalement :

$$f_{nH} = \frac{\pi d_H^2 N_H}{4} \tag{4.26}$$

d_H est pris égal à la plus petite valeur moyenne des hauteurs de microfissures mesurées, à savoir $0.4\,\mu$m environ. Naturellement, cette valeur est proche de l'épaisseur moyenne des hydrures. La figure 4.3 représente l'évolution de la porosité de germination en fonction de la déformation plastique équivalente. Le taux de germination

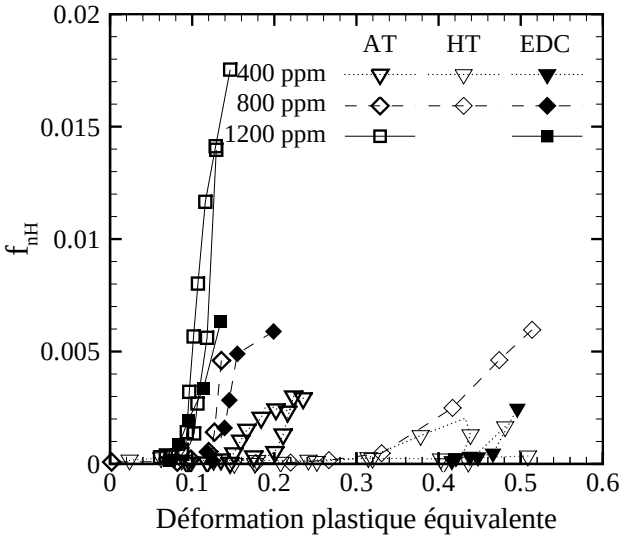


Figure 4.3 – Porosité de germination effective liée à la rupture des hydrures en fonction de la déformation plastique équivalente pour des essais AT, HT et EDC réalisés à température ambiante sur le matériau contenant différentes teneurs en hydrogène.

de cavités est obtenu par simple dérivation de l'équation 4.26 :

$$\dot{f}_{nH} = \frac{\pi d_H^2}{4} \frac{dN_H}{dp} \dot{p} \tag{4.27}$$

Ces résultats sont utilisés pour ajuster l'intensité de germination

$$A_{nH} = \frac{\pi d_H^2}{4} \frac{dN_H}{dp} \tag{4.28}$$

Bien que les cinétiques de germination des cavités ne soient pas rigoureusement identiques en traction axiale et en traction circonférentielle – notamment dans le cas du matériau hydruré à 400 ppm –, l'intensité de germination est identifiée, en première approximation, à partir des résultats obtenus en traction axiale uniquement. Pour cela, la loi normale proposée par Chu and Needleman (1980) est retenue :

$$A_{nH} = \frac{f_{NH}}{s_{NH}\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{1}{2}\left(\frac{p-\epsilon_{NH}}{s_{NH}}\right)^2\right) \tag{4.29}$$

où f_{NH} est la fraction volumique des hydrures pouvant participer à la germination de cavités, $\epsilon_{NH} = 0.331 - 1.41 \cdot 10^{-4} C_{Hp}$ est la déformation moyenne pour laquelle 50% de f_{NH} ont conduit à la germination de cavités, $s_{NH} = 5.97 \cdot 10^{-2} - 2.25 \cdot 10^{-5} C_{Hp}$ est l'écart type de la distribution des déformations à rupture. La fraction volumique des hydrures peut être exprimée en fonction de la teneur totale en hydrogène précipité C_{Hp} (en ppm) : $f_{ZrH} = 6.7 \cdot 10^{-5} C_{Hp}$; on se référera à l'annexe F.2.2 pour plus de détails sur ce calcul. C_{Hp} est obtenu à partir de la teneur totale en hydrogène et de la température à l'aide de l'équation 3.10. Conformément aux observations du chapitre précédent, les hydrures ne cassent pas à 350 °C et à 480 °C. La fraction volumique des hydrures susceptibles de rompre dépend donc de la température. D'après les études de Fearnehough and Cowan (1967), Huang and Huang (1994), Shi and Puls (1999) et Viswanathan et al. (2006), l'effet fragilisant des hydrures décroît à partir d'environ 100 °C et devient négligeable vers 300 °C. En se basant sur ces résultats, f_{NH} est exprimée en fonction de f_{ZrH} et de la température T (en K) de telle sorte que $f_{NH} = f_{ZrH}$ à température ambiante et $f_{NH} = 0$ à partir de 300 °C environ : $f_{NH} = f_{ZrH}/[1 + \exp(18(T/450 - 1))]$. On notera que la fonction de transition en fonction de la température est approximative dans la mesure où elle dépend en réalité du matériau, de la morphologie des hydrures et du type d'essai.

4.3.5 Coalescence des cavités

Les paramètres q_1, q_2 et q_3, introduits pour tenir compte de l'interaction entre les cavités voisines, sont généralement obtenus à partir de calculs sur cellules élémentaires décrivant un type d'interaction donné. $q_1 = 1.5$ [9], $q_2 = 1$ (Becker et al., 1988) et $q_3 = q_1^2$ sont des valeurs couramment utilisées dans la littérature, que nous avons retenues. La porosité effective à rupture vaut donc $f_{\star u} = 1/q_1 \approx 0.67$.

La fonction $f_\star$ (équation 4.9) fait intervenir deux paramètres ajustables : f_c et δ. Les courbes force–déplacement ne présentent pas de pente de propagation de fissures, mis à part pour les essais HT réalisés à 350 °C et 480 °C. Pour les raisons évoquées en début de section, la propagation des fissures durant ces essais n'a pu être simulée. Il est donc impossible, à moins de réaliser des calculs de cellules élémentaires, de correctement déterminer le paramètre δ. Les valeurs utilisées dans la littérature sont

[9] La valeur théorique de q_1 obtenue par Perrin and Leblond (1990) pour des cavités sphériques est de $4/e$.

généralement comprises entre 3 et 8. Dans cette étude, δ est arbitrairement fixé à 5, quelle que soit la température et la teneur en hydrogène.

Les observations métallurgiques présentées précédemment ne permettent pas de déterminer de manière fiable la porosité critique f_c conduisant à la coalescence des cavités. f_c a donc été évaluée par identification inverse à partir des résultats des essais mécaniques. Ce paramètre est considéré comme indépendant de la triaxialité. f_c est évalué à 0.0045 en l'absence de rupture d'hydrures (matériau non hydruré testé à température ambiante ou matériau hydruré testé à 350 °C et 480 °C). La coalescence des cavités intervient donc pour une porosité égale à la fraction volumique des précipités de phase de Laves autour desquels la germination de cavités peut se produire (f_{NL}). Cette faible valeur de f_c peut être justifiée par le faible écrouissage du matériau. f_c est estimé à 0.03 lorsque la germination des cavités se fait essentiellement par rupture des hydrures (matériau hydruré à température ambiante quelle que soit la teneur en hydrogène). Cette valeur est proche de la porosité de germination maximale mesurée dans le cas du matériau hydruré à 1200 ppm (figure 4.3). Cela indique que la croissance des cavités dans le matériau fortement hydruré est très faible avant que la coalescence intervienne. La rupture du matériau est donc essentiellement contrôlée par la rupture des hydrures. La valeur de f_c obtenue lorsque la germination des cavités est liée à la fragmentation des hydrures est plus importante que lorsque la germination se produit par décohésion de l'interface matrice/précipités de phase de Laves. Or, la fraction volumique des hydrures pouvant participer à la germination de cavités, f_{NH}, est supérieure à la fraction volumique des précipités de phase de Laves autour desquels la germination peut se produire, f_{NL}. Ce résultat est en accord avec ceux de Zhang et al. (2000) qui indiquent que la coalescence intervient pour une porosité d'autant plus importante que la porosité initiale est élevée.

La porosité à rupture, $f_f = f_c + (f_{\star u} - f_c)/\delta$, vaut finalement 0.137 en l'absence de rupture d'hydrures et 0.157 lorsque la germination des cavités se fait essentiellement par rupture des hydrures.

4.3.6 Taille de maille

Les calculs par éléments finis réalisés avec des modèles basés sur une approche locale – tel que celui utilisé dans le cadre de cette thèse – révèlent, en raison de l'adoucissement du matériau lié à son endommagement, une forte dépendance vis–à–vis de la taille de maille. Les énergies d'amorçage et de propagation des fissures sont d'autant plus faibles que la taille des éléments est petite, du fait du confinement plus important de la plasticité en pointe de fissure. En particulier, la vitesse de propagation de la fissure dépend fortement de la dimension des éléments perpendiculaire à la direction de propagation. En réalité, les champs de contraintes et de déformations dépendent également du type d'éléments ainsi que de leur forme et leur orientation. La solution la plus couramment retenue pour résoudre ce problème consiste à considérer la taille de maille comme un paramètre ajustable du

modèle[10]. Il peut également être envisagé de relier la taille de maille à des paramètres métallurgiques tels que la taille des grains ou la distance entre les inclusions. Des tailles de maille valant de 1 à 6 fois la distance inter–inclusions sont trouvées dans la littérature (Rousselier, 1987; Bron and Besson, 2006).

Une taille de maille de $50\times50\,\mu$m a été déterminée par Grange et al. (2000a) pour le Zircaloy–4 recristallisé hydruré ou non testé à température ambiante. Nous ne disposons pas de résultats d'essais mécaniques appropriés (traction sur éprouvette préfissurée ou essai de ténacité sur éprouvette CT par exemple) pour correctement déterminer la taille de maille pour le matériau étudié. Une taille de maille de $100\times100\times100\,\mu$m ($100\times100\,\mu$m en 2D) a été retenue, quelles que soient la température et la teneur en hydrogène. Cette taille de maille est suffisamment grande pour conserver, en accord avec les ressources informatiques disponibles, des temps de calcul raisonnables et suffisamment petite pour décrire correctement les champs mécaniques locaux. Cette taille de maille, qui est assimilée à un paramètre matériau (longueur caractéristique), doit être identique pour tous les calculs.

Le tableau 4.1 regroupe les valeurs ajustées de l'ensemble des paramètres du modèle GTN.

4.4 Résultats des simulations

4.4.1 Traction axiale

La figure 4.4 représente les réponses contrainte–déformation plastique simulées et expérimentales des éprouvettes AT. Les courbes contrainte–déformation plastique sont correctement reproduites par la simulation jusqu'à une déformation plastique globale d'environ 0.08. Les effets de la température et de la teneur en hydrogène sont convenablement pris en compte. D'après les réponses globales, la rupture intervient pour une déformation plastique globale nettement plus importante dans le cas des calculs. En revanche, comme l'illustre la figure 4.5, les réductions de largeur à rupture sont correctement reproduites[11]. On soulignera que les variations de largeur calculées à la déformation plastique globale pour laquelle est censée se produire la rupture d'après les courbes contrainte–déformation plastique expérimentales sont largement inférieures aux variations de largeur à rupture mesurées expérimentalement. Ce constat illustre l'instabilité expérimentale de l'essai évoquée en section 4.3.2. Il est également possible que la localisation tardive observée dans le cas des calculs soit en partie liée à une description imparfaite de la striction, qui est très sensible à l'écrouissage et la sensibilité à la vitesse de déformation, et au fait que la loi d'écoulement viscoplastique utilisée ne présente pas de seuil. Ces hypothèses

[10]Des formulations non locales sont également proposées dans la littérature pour résoudre le problème de dépendance vis–à–vis de la taille de maille.

[11]On soulignera que les déformations calculées sont totales tandis que les déformations expérimentales sont résiduelles.

Tableau 4.1 – Paramètres du modèle GTN identifiés à partir des essais AT ; les valeurs de certains paramètres ajustés à partir des essais HT et EDC sont indiquées entre parenthèses (T en K et C_{Hp} en ppm).

Elasticité, comportement du matériau non endommagé, anisotropie :
voir tableau 3.1

Germination des cavités :

$$A_{nL} = \begin{cases} \frac{f_{NL}}{p_{NLf}-p_{NLi}} & \text{si } p_{NLi} < p < p_{NLf} \\ 0 & \text{sinon} \end{cases}$$

où $f_{NL} = 0.0045$
$p_{NLi} = 0.04$ (0.2 en traction circonférentielle)
$p_{NLf} = 0.3$ (1 en traction circonférentielle)

$$A_{nH} = \frac{f_{NH}}{s_{NH}\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{1}{2}\left(\frac{p-\epsilon_{NH}}{s_{NH}}\right)^2\right)$$

où $f_{NH} = 6.7 \cdot 10^{-5} C_{Hp}/[1 + \exp(18(T/450 - 1))]$
$\epsilon_{NH} = 0.331 - 1.41 \cdot 10^{-4} C_{Hp}$
(0.544 en traction circonf. pour le matériau hydruré à 400 ppm)
$s_{NH} = 5.97 \cdot 10^{-2} - 2.25 \cdot 10^{-5} C_{Hp}$

Coalescence des cavités :
$q_1 = 1.5$, $q_2 = 1$, $q_3 = q_1^2$

$$f_c = \begin{cases} 0.03 & \text{si } f_{NH} \neq 0 \\ 0.0045 & \text{sinon} \end{cases}$$

$\delta = 5$

Taille de maille :
$100 \times 100 \times 100\,\mu$m en 3D, $100 \times 100\,\mu$m en 2D

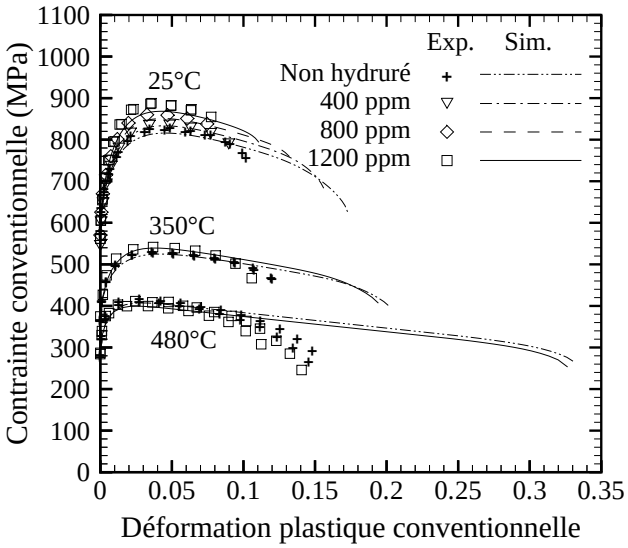
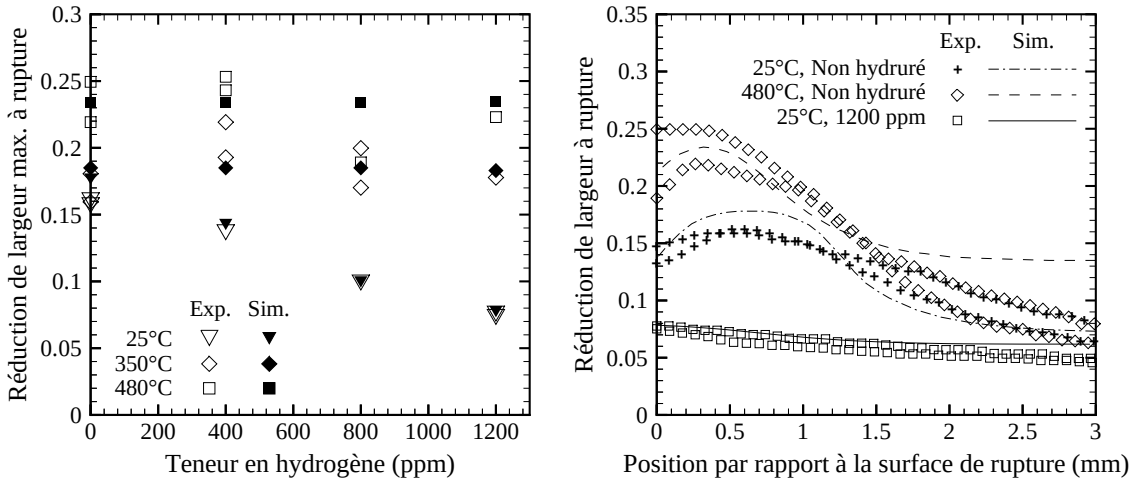


Figure 4.4 – Courbes contrainte–déformation plastique expérimentales et simulées des essais AT pour différentes températures et teneurs en hydrogène.

sont cohérentes avec les déformations trop importantes calculées à 480 °C loin de la surface de rupture (figure 4.5(b)). Quoi qu'il en soit, ces observations confirment l'importance de baser l'identification des paramètres du modèle sur des déformations locales plutôt que sur les courbes contrainte–déformation plastique globales. La simu-



(a) (b)

Figure 4.5 – (a) Réductions de largeur maximales à rupture calculées et expérimentales pour les éprouvettes AT. (b) Profils de variation de largeur à rupture par rapport à la surface de rupture d'éprouvettes AT testées dans différentes conditions.

lation prévoit de manière satisfaisante la fragilisation par les hydrures à température ambiante, l'effet inexistant de l'hydrogène à 350 °C et 480 °C et l'augmentation de la ductilité du matériau avec la température. Les paramètres du modèle décrivant

l'endommagement associé aux précipités de phase de Laves ne dépendent pas de la température. L'augmentation de la ductilité avec la température est donc uniquement liée à l'effet stabilisateur de la viscosité du matériau, croissante en fonction de la température, sur la localisation de la déformation. La figure 4.6 compare les champs de déformation axiale expérimentaux (mesurés par DIC) et calculés avant la rupture d'éprouvettes AT non hydrurées et hydrurées à 1200 ppm testées à température ambiante. Les champs de déformations sont relativement bien reproduits par la simulation. Dans le cas du matériau non hydruré quelle que soit la température

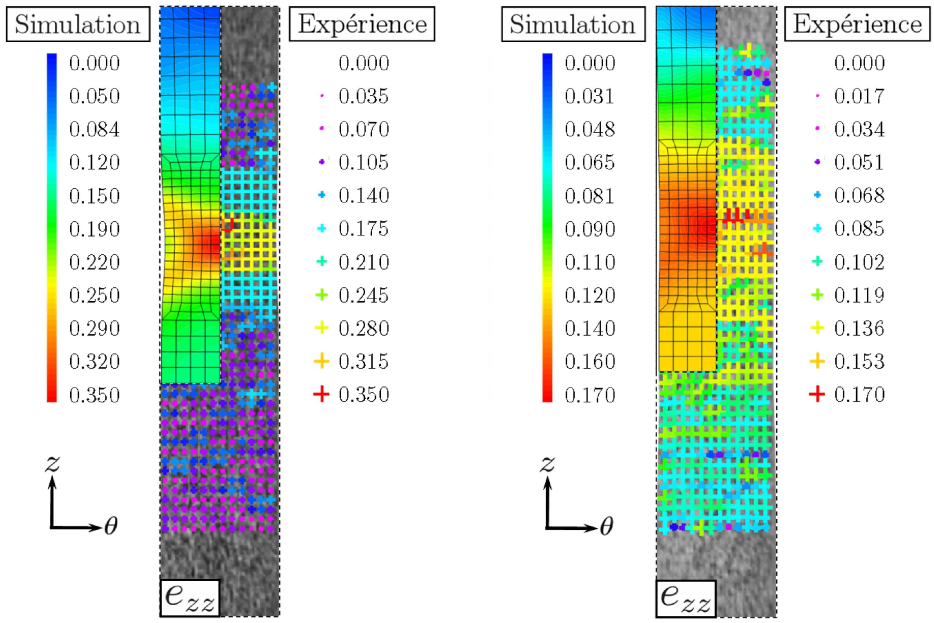
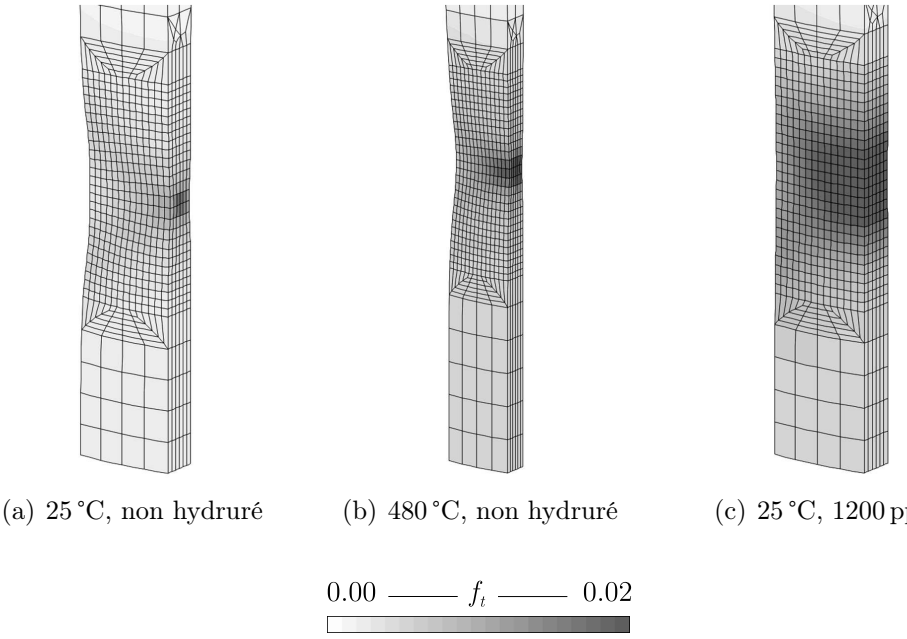


Figure 4.6 – Champs de déformation axiale de Green–Lagrange mesurés par corrélation d'images et calculés par éléments finis pour des essais AT réalisés à température ambiante sur (a) le matériau non hydruré et (b) le matériau hydruré à 1200 ppm. Les champs de déformation sont représentés pour une variation de largeur maximale de -0.13 dans le premier cas et de -0.08 dans le second.

et du matériau hydruré testé à 350 °C et 480 °C, l'endommagement est essentiellement localisé au coeur de la zone de striction au moment de l'amorçage de la fissure (figure 4.7). En effet, la triaxialité et donc la croissance des cavités y sont maximales du fait de l'entaille créée par la striction localisée. Les calculs montrent que l'endommagement du matériau hydruré testé à température ambiante est plus diffus et essentiellement contrôlé par la germination des cavités. Le matériau rompt avant que la croissance des cavités ne devienne significative. La croissance des cavités est d'autant plus faible que la teneur en hydrogène est élevée.

La simulation reproduit correctement le lieu d'amorçage de la rupture qui, quelles que soient les conditions, est situé à environ 3–4 mm du plan médian des longueurs



(a) 25 °C, non hydruré (b) 480 °C, non hydruré (c) 25 °C, 1200 ppm

Figure 4.7 – Champs de porosité totale calculés au moment de l'amorçage de la rupture d'éprouvettes AT.

utiles de l'éprouvette. En début d'essai, la déformation de l'éprouvette est maximale aux extrémités des longueurs calibrées, au niveau de la jonction avec les congés de raccordement. Ces hétérogénéités évoluent vers le centre des longueurs utiles de l'éprouvette au cours du chargement. La striction puis la rupture interviennent au voisinage de ces hétérogénéités avant qu'elles n'aient eu le temps d'atteindre le centre des zones utiles. L'allure des champs de déformation et de porosité au moment de l'amorçage de la fissure laisse penser que l'orientation macroscopique du plan de rupture (56° ou 90° par rapport à la direction principale de chargement selon les cas) aurait pu, avec un maillage adapté, être correctement reproduit par les calculs si la propagation de la fissure avait pu être simulée.

4.4.2 Traction circonférentielle

Les courbes contrainte–déformation plastique simulées et expérimentales des essais HT sont comparées sur la figure 4.8. Les courbes expérimentales ne sont pas parfaitement reproduites pour les faibles déformations plastiques globales. Cet écart, qui n'est pas observé dans le cas des essais AT (figure 4.4), est attribué à une description imparfaite de l'écrouissage selon la direction circonférentielle : le modèle ne tient pas compte de la nature cinématique de l'écrouissage – discutée en section 2.7 – et les paramètres du modèle décrivant l'écrouissage du matériau ont été identifiés à partir des résultats des essais AT uniquement. Bien que l'écrouissage cinématique puisse conduire à une croissance des cavités et une localisation de la déformation légèrement plus rapides que l'écrouissage isotrope (Besson and Guillemer-Neel, 2003),

les déformations locales à rupture sont *a priori* peu affectées. Les profils de défor-

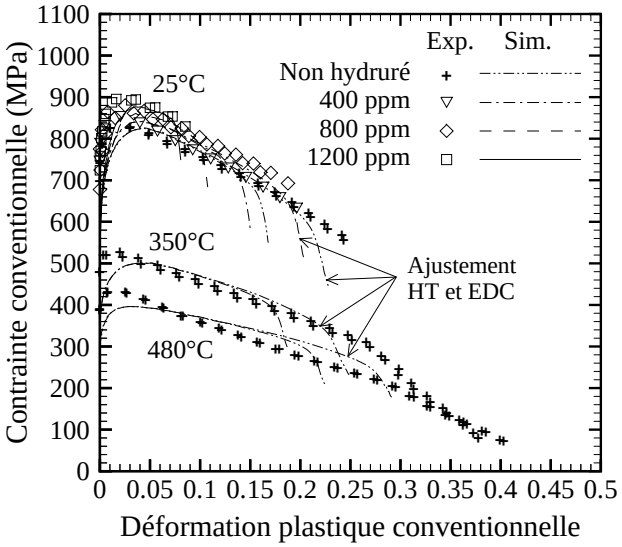


Figure 4.8 – Courbes contrainte–déformation plastique expérimentales et simulées des essais HT pour différentes températures et teneurs en hydrogène. Les résultats de calculs réalisés avec les paramètres ajustés à partir des essais HT et EDC sont également indiqués.

mation à rupture selon la largeur des éprouvettes testées à température ambiante sont représentées sur la figure 4.9. Les variations de largeur à 350 °C et 480 °C ne sont pas indiquées : on rappellera en effet que, du fait du mode de rupture des éprouvettes à ces températures, les variations de largeur calculées au moment de l'amorçage de la fissure centrale ne peuvent être comparées aux réductions de largeur expérimentales mesurées après essais [12]. Quelles que soient les conditions, la rupture s'amorce, conformément à l'expérience, en paroi interne au centre de la longueur utile de l'éprouvette, où la déformation plastique et le taux de triaxialité sont maximaux (figure 4.10).

Dans le cas du matériau non hydruré testé à température ambiante ou quelle que soit la teneur en hydrogène à 350 °C et 480 °C, la ductilité des éprouvettes HT est sous–estimée par le modèle. A 350 °C et 480 °C, le modèle prévoit un amorçage de la fissure centrale trop rapide. Comme déjà évoqué en section 4.3.2, aucun jeu de paramètres permettant de représenter à la fois la rupture des éprouvettes AT et des éprouvettes HT n'a pu être déterminé. La différence de ductilité observée au chapitre précédent entre les essais de traction axiale et de traction circonférentielle ne peut donc pas être entièrement expliquée par la différence des modes de déformation et de rupture des éprouvettes. En particulier, des calculs par éléments finis ont montré que la ductilité plus importante des éprouvettes HT n'est pas attribuée à une localisation de la déformation plastique plus tardive que pour les éprouvettes AT. Ainsi, comme déjà suggéré en section 3.4.3, l'endommagement ou plus précisément la germination des cavités dans le matériau non hydruré n'est probablement pas

[12] Il aurait fallu réaliser des essais interrompus au moment de l'amorçage de la fissure centrale.

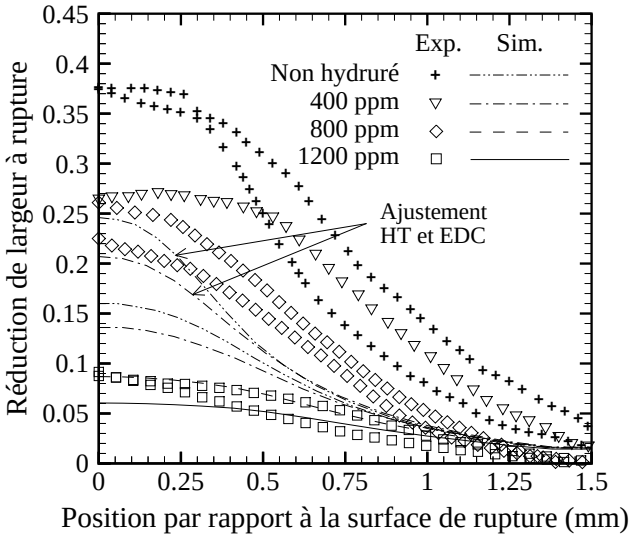
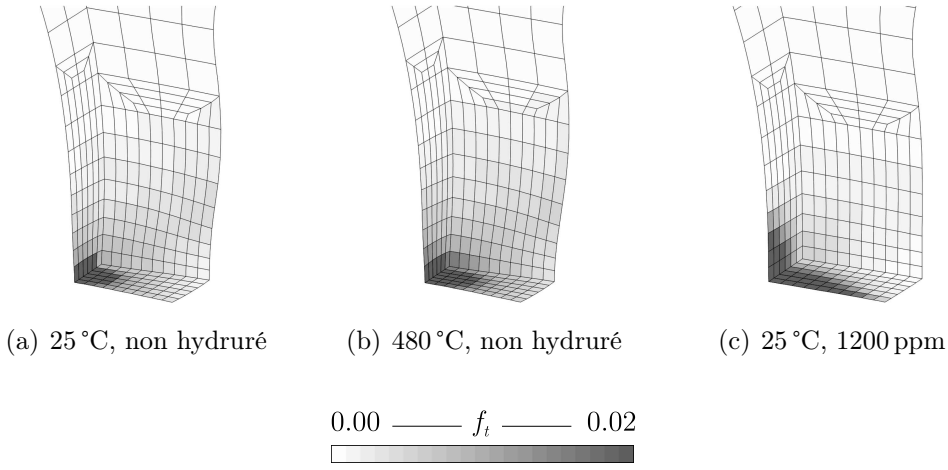


Figure 4.9 – Profils de variation de largeur calculés et expérimentaux par rapport à la surface de rupture d'éprouvettes HT testées à température ambiante. Les résultats de calculs réalisés avec les paramètres ajustés à partir des essais HT et EDC sont également indiqués.



(a) 25 °C, non hydruré (b) 480 °C, non hydruré (c) 25 °C, 1200 ppm

Figure 4.10 – Champs de porosité totale calculés au moment de l'amorçage de la rupture d'éprouvettes HT.

isotrope. L'anisotropie peut *a priori* être attribuée à la microstructure et à la texture cristallographique du matériau (Caré and Zaoui, 1996). Dans sa forme actuelle, le modèle ne permet pas de représenter une telle anisotropie. Pour illustrer ces propos, les essais HT ont été simulés en définissant une germination des cavités autour des précipités de phase Laves plus tardive qu'en traction axiale : $p_{NLi} = 0.2$ et $p_{NLf} = 1$, les autres paramètres étant inchangés. Comme le montrent les figures 4.8 et 4.9, les résultats expérimentaux sont nettement mieux reproduits avec ce jeu de paramètres. Naturellement, la ductilité des éprouvettes AT est sur–estimée avec ces paramètres.

Les déformations à rupture à température ambiante du matériau hydruré à 400 ppm et à 800 ppm sont également sous–estimées. Ces résultats sont cohérents avec les cinétiques d'endommagement mesurées en section 3.4.4. Celles–ci indiquent que pour ces teneurs les hydrures rompent pour une déformation plastique plus élevée en traction circonférentielle qu'en traction axiale (figure 4.3). On rappellera que $\dot{f}_{nH}$ a, en première approximation, été ajusté sur les cinétiques mesurées en traction axiale uniquement. La rupture des hydrures est donc vraisemblablement anisotrope, du moins jusqu'à des teneurs de 800 ppm. Cette anisotropie de germination est probablement liée à la morphologie des hydrures et/ou à la texture du matériau. Les figures 4.8 et 4.9 représentent les réponses calculées lorsque $\dot{f}_{nH}$ est ajusté pour le matériau hydruré à 400 ppm sur les cinétiques d'endommagement mesurées pour les essais HT et EDC : $p_{NLi} = 0.2$, $p_{NLf} = 1$ et $\epsilon_{NH} = 0.544$, les autres paramètres restant identiques. Les prévisions du modèle sont clairement améliorées avec ces paramètres. Ces résultats témoignent du caractère anisotrope de la rupture des hydrures pour des teneurs en hydrogène modérées. Conformément aux cinétiques d'endommagement mesurées, qui sont identiques en traction axiale et en traction circonférentielle pour le matériau fortement hydruré, la déformation à rupture du matériau hydruré à 1200 ppm est correctement reproduite par la simulation. Dans ce cas, la rupture des hydrures est donc isotrope. On peut en effet s'attendre à ce que, pour les fortes teneurs en hydrogène, l'influence de la densité des hydrures devienne prépondérante par rapport aux effets supposés de la morphologie des hydrures et/ou de la texture du matériau.

4.4.3 Expansion due à la compression

La figure 4.11 compare les déformations circonférentielles à rupture expérimentales et calculées des éprouvettes EDC testées à température ambiante. L'accord est satisfaisant pour le matériau hydruré à 800 ppm et 1200 ppm. En revanche, la ductilité du matériau non hydruré et du matériau hydruré à 400 ppm est sous–estimée par la simulation. La raison présumée de cet écart (anisotropie d'endommagement) a déjà été discutée en section 4.4.2. Les déformations à rupture calculées avec le jeu de paramètres – déjà utilisé dans la section précédente pour simuler les essais HT – identifié à partir des essais HT et EDC pour le matériau non hydruré et le matériau hydruré à 400 ppm ($p_{NLi} = 0.2$, $p_{NLf} = 1$ et $\epsilon_{NH} = 0.544$) sont reportées sur la figure 4.11. Les résultats expérimentaux sont nettement mieux reproduits avec ces paramètres. Cela suggère, une fois encore, une anisotropie de germination des cavités

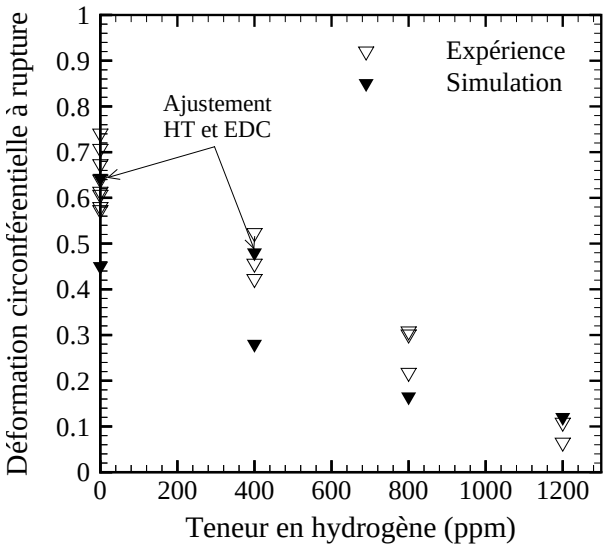
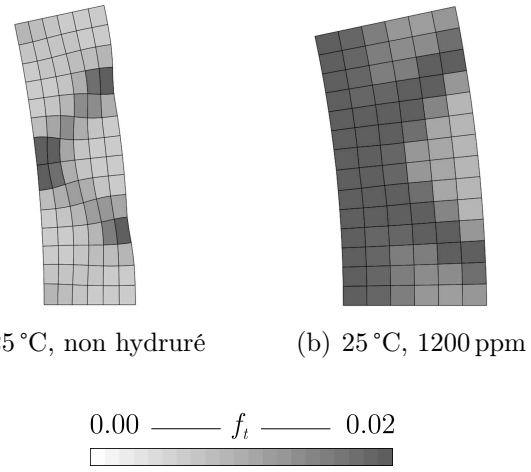


Figure 4.11 – Déformations circonférentielles à rupture expérimentales et calculées des éprouvettes EDC testées à température ambiante. Les résultats de calculs réalisés avec les paramètres ajustés à partir des essais HT et EDC ($p_{NLi} = 0.2$, $p_{NLf} = 1$ et $\epsilon_{NH} = 0.544$) sont également indiqués.

dans le matériau non hydruré et le matériau faiblement hydruré. D'après le modèle, la rupture s'amorce, quelle que soit la teneur en hydrogène, en paroi interne de l'éprouvette, où la déformation plastique est maximale (figure 4.12). La simulation prévoit une localisation de la déformation à 45° par rapport à la direction circonférentielle. Ces résultats concordent avec le plan de rupture macroscopique orienté à 45° de la direction circonférentielle observé expérimentalement pour le matériau non hydruré.



(a) 25 °C, non hydruré (b) 25 °C, 1200 ppm

Figure 4.12 – Champs de porosité totale calculés au moment de l'amorçage de la rupture d'éprouvettes EDC testées à température ambiante.

4.4.4 Traction plane circonférentielle

La figure 4.13 représente les courbes force rapportée à la section–déplacement plastique expérimentales et calculées pour les éprouvettes PST. On soulignera que pour conserver des temps de calcul raisonnables, les simulations 3D des essais ont été réalisées avec des éléments de $200\times200\times200\,\mu$m (au lieu de $100\times100\times100\,\mu$m pour les autres essais). Quelle que soient les conditions, le déplacement plastique à rupture expérimental est inférieur au déplacement calculé, probablement en raison de l'instabilité de la machine et/ou de la description imparfaite de la localisation de la déformation (fortement dépendante de l'écrouissage et de la sensibilité de la contrainte à la vitesse de déformation). La sous–estimation des efforts observée pour les faibles déplacements plastiques est vraisemblablement liée une description approximative, déjà évoquée pour les essais HT (section 4.4.2), de l'écrouissage du matériau selon la direction circonférentielle. Le fait de ne pas tenir compte de l'écrouissage cinématique a probablement une influence sur le déplacement plastique pour lequel la localisation de la déformation intervient. On peut en revanche considérer que les déformations locales à rupture sont peu affectées. Les champs de déformations cir-

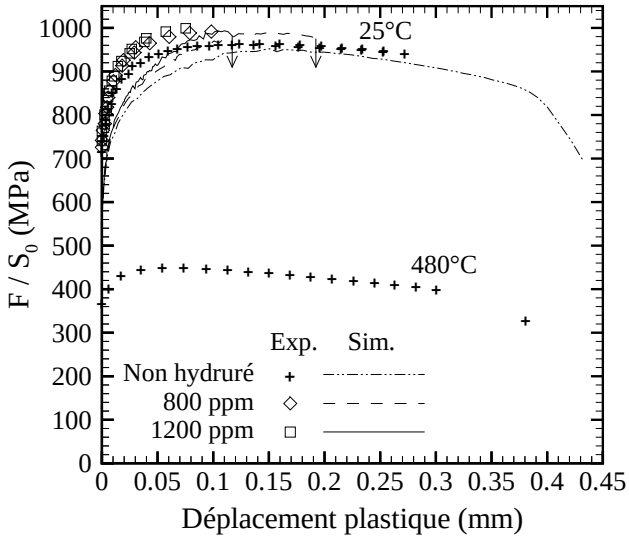
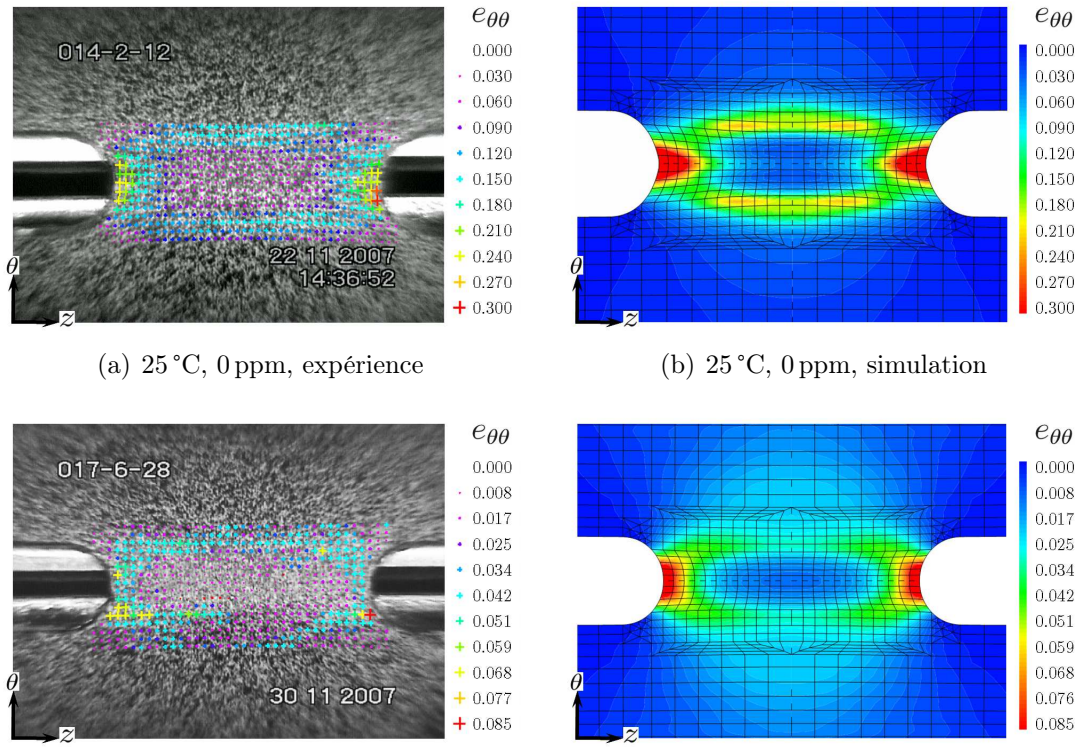


Figure 4.13 – Courbes force rapportée à la section–déplacement plastique expérimentales et simulées d'éprouvettes PST pour différentes températures et teneurs en hydrogène.

conférentielles en paroi externe des éprouvettes juste avant l'amorçage d'une fissure sont relativement bien représentés par le modèle (figures 4.14 et 4.15). La sollicitation étant majoritairement circonférentielle durant les essais PST, on aurait pu penser, à l'image des résultats obtenus pour les essais HT et EDC, que les déformations locales du matériau non hydruré eussent été sous–estimées avec le jeu de paramètres identifié à partir des essais AT. On en déduit que l'endommagement est plus rapide lors des essais PST que lors des essais HT et EDC. Il est donc possible que l'endommagement du matériau soit influencé par l'état de contraintes local. Expérimentalement, la rupture des éprouvettes PST non hydrurées testées à



(a) 25 °C, 0 ppm, expérience

(b) 25 °C, 0 ppm, simulation

(c) 25 °C, 1200 ppm, expérience

(d) 25 °C, 1200 ppm, simulation

Figure 4.14 – Champs des déformations circonférentielles de Green–Lagrange mesurés par corrélation d'images *in–situ* et calculés (bien que la structure complète soit représentée sur la figure, seul un huitième de l'éprouvette a été modélisé) en paroi externe d'éprouvettes PST juste avant rupture.

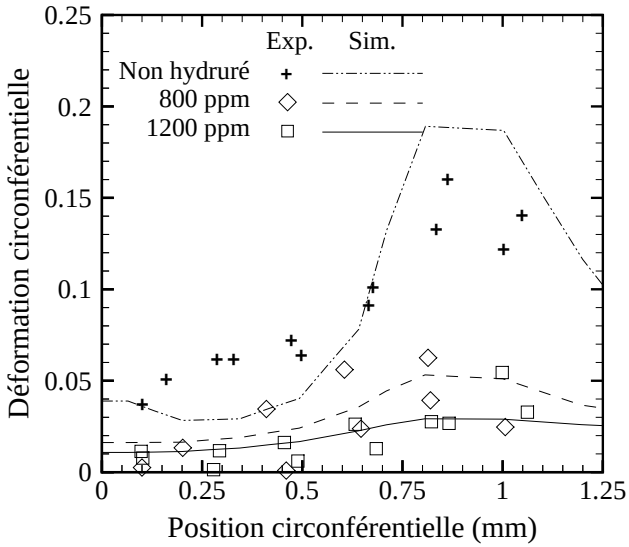


Figure 4.15 – Distributions circonférentielles (position par rapport au centre de la longueur utile de l'éprouvette) des déformations circonférentielles de Green–Lagrange calculées et mesurées par DIC, à l'amorçage de la rupture, en paroi externe au milieu d'éprouvettes PST testées à température ambiante.

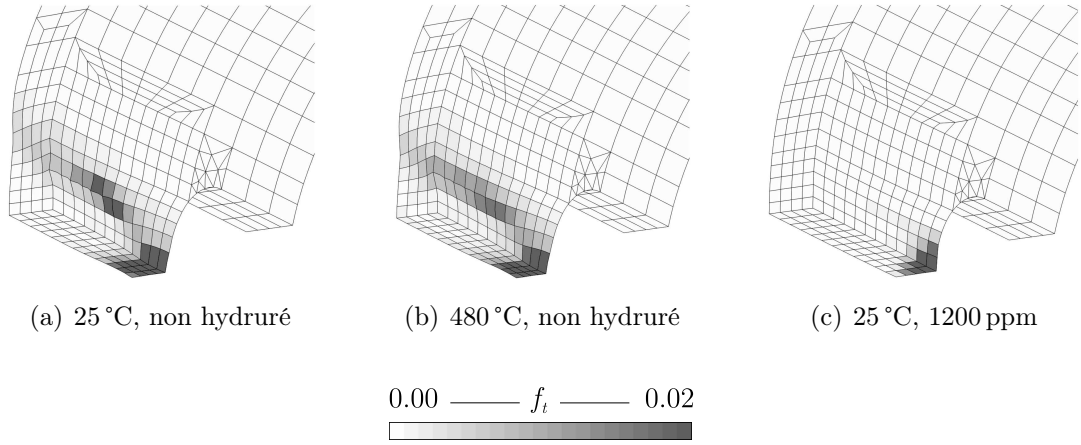
température ambiante et des éprouvettes testées à 350 °C et 480 °C quelle que soit la teneur en hydrogène se produit dans la zone de déformation plane par localisation de la déformation en cisaillement à travers l'épaisseur des échantillons. Lorsque l'état de contrainte est dominé par du cisaillement, le volume des cavités évolue peu tandis que leur forme et leur orientation changent considérablement, comme le montrent les figures 3.13, 3.16(b) et 3.17. Ainsi, bien que la porosité évolue peu *stricto sensu*, la déformation des cavités contribue largement à l'adoucissement du matériau [13] (Zhang et al., 2001; Barsoum and Faleskog, 2007b; Nahshon and Hutchinson, 2008). Ce phénomène n'est pas pris en compte dans le modèle proposé : bien qu'il reproduise naturellement l'influence de la triaxialité sur la croissance des cavités, le modèle ne prévoit aucune croissance des cavités – et par conséquent aucun adoucissement mécanique – lorsque la contrainte moyenne est nulle, comme dans le cas d'un chargement en cisaillement. Nahshon and Hutchinson (2008) ont très récemment modifié de manière phénoménologique le modèle GTN pour tenir compte de l'adoucissement du matériau en cisaillement pur, lié au changement de forme et d'orientation des cavités.

Le modèle prévoit correctement le lieu d'amorçage de la fissure dans le matériau hydruré testé à température ambiante, à savoir en fond d'encoches en paroi interne de l'éprouvette (figure 4.16(c)). Ce résultat prouve que l'hypothèse d'indépendance des paramètres du modèle d'endommagement vis–à–vis de la triaxialité est acceptable –

[13] Il a été montré que la rupture de certains matériaux métalliques aux faibles triaxialités dépend non seulement de la triaxialité mais également du paramètre de Lode (Lode, 1925), relié au troisième invariant du tenseur des contraintes déviatoriques (Bao and Wierzbicki, 2004; Barsoum and Faleskog, 2007a, b; Nahshon and Hutchinson, 2008).

du moins dans la gamme de triaxialités étudiée – pour le matériau non hydruré testé à température ambiante. D'après le modèle, la rupture des éprouvettes non hydrurées testées à température ambiante s'amorce en fond d'encoches (figure 4.16(a)), alors qu'expérimentalement elle s'amorce en paroi interne dans la zone de déformation plane. On remarquera néanmoins que la fraction volumique de cavités calculée dans la zone de déformation plane au moment de l'amorçage de la fissure est proche de l'endommagement en fond d'encoches. On peut donc imaginer qu'avec un ajustement plus précis des paramètres du modèle d'endommagement pour ces essais et/ou en prenant en compte l'adoucissement du matériau lié à la déformation des cavités en cisaillement, le lieu d'amorçage de la rupture aurait été correctement reproduit.

Malgré ces imperfections, les champs de déformation et de porosité calculés au moment de l'amorçage de la fissure sont cohérents avec les profils de rupture observés expérimentalement (figure 3.12).



(a) 25 °C, non hydruré (b) 480 °C, non hydruré (c) 25 °C, 1200 ppm

Figure 4.16 – Champs de porosité totale calculés au moment de l'amorçage de la rupture d'éprouvettes PST.

4.4.5 Essais d'écrasement

Afin d'illustrer la capacité prédictive et éventuellement les limitations du modèle, des essais d'écrasement sur anneaux ont été réalisés et simulés. L'essai consiste à comprimer un tronçon de tube de gainage perpendiculairement à son axe. L'échantillon est principalement sollicité selon sa direction circonférentielle ; certaines zones sont sollicitées en traction, d'autres en compression. Des échantillons de 15 mm de long (longueur déterminée à partir de calculs par éléments finis) ont été utilisés pour obtenir un état de déformation plane (déformation axiale nulle). Les essais ont été réalisés à température ambiante à une vitesse de déplacement traverse de 0.1 mm/s sur le matériau non hydruré et le matériau hydruré à 800 ppm et 1200 ppm. La figure 4.17 représente les courbes force rapportée à la section–déplacement traverse obtenues.

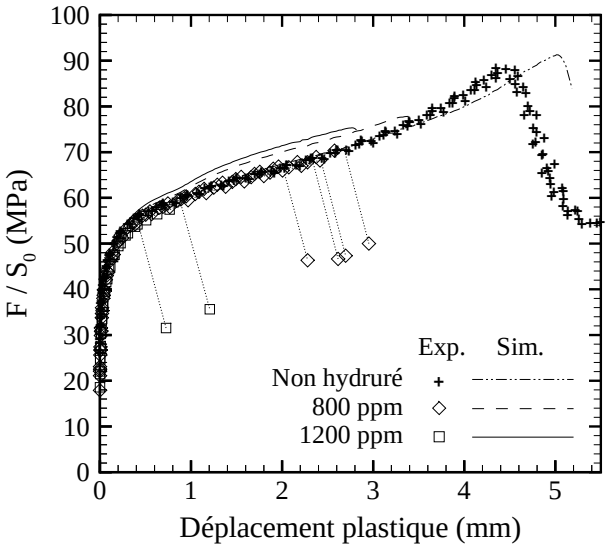
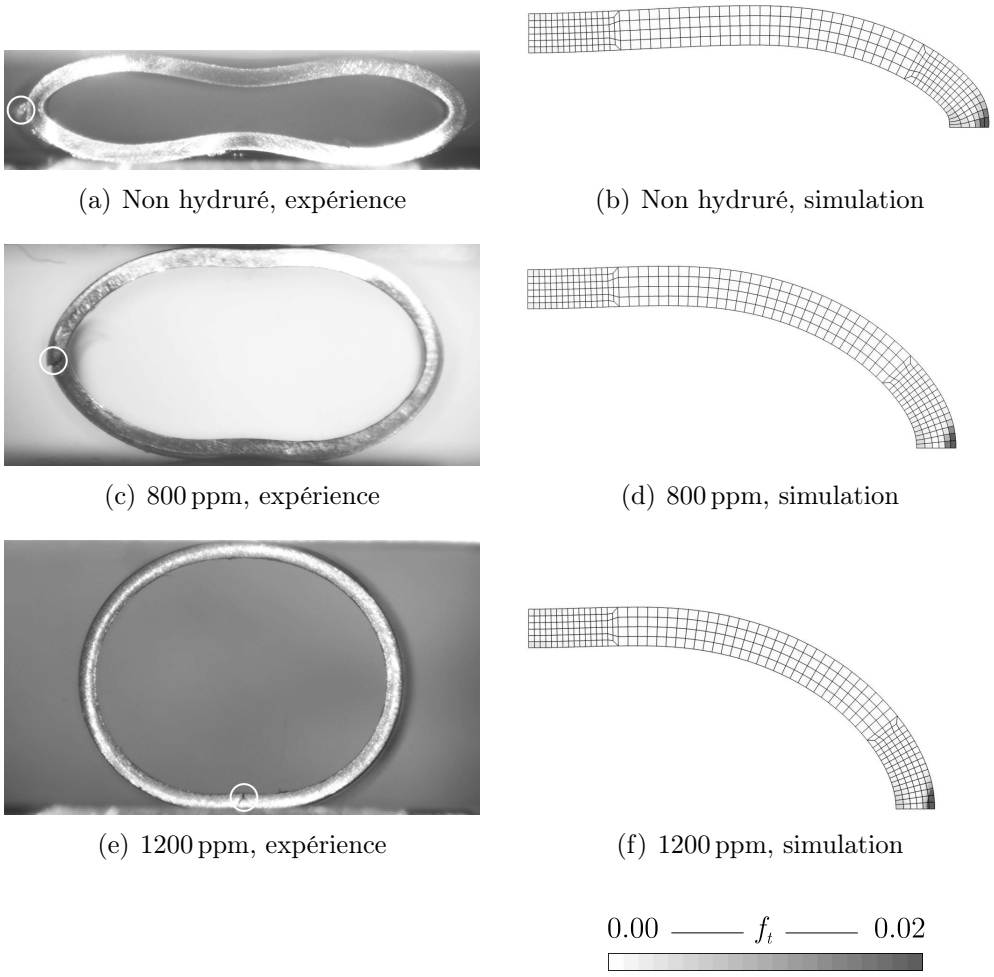


Figure 4.17 – Courbes force rapportée à la section–déplacement traverse expérimentales et simulées des essais d'écrasement réalisés à température ambiante pour différentes teneurs en hydrogène.

L'effet fragilisant des hydrures est une fois de plus mis en évidence. En revanche, leur effet durcissant, constaté durant les essais AT, HT, EDC et PST, est ici inexistant. Ceci est probablement lié au fait qu'environ la moitié de l'éprouvette est sollicitée en compression. En effet, les résultats de Barraclough and Beevers (1969) et Puls et al. (2005) laissent penser que le module d'Young et la limite d'élasticité d'hydrures massifs δ sollicités en compression sont inférieurs à ceux du Zircaloy–4. L'effet durcissant des hydrures dans les zones sollicitées en traction est donc probablement contre–balancé par l'effet adoucissant des hydrures dans les régions comprimées. Dans le cas du matériau non hydruré et du matériau hydruré à 800 ppm, la fissure s'est amorcée en paroi externe au niveau du plan médian horizontal de l'échantillon (figures 4.18(a) et 4.18(c)). La fissure s'est amorcée en paroi interne au niveau du plan médian vertical dans le cas du matériau hydruré à 1200 ppm (figure 4.18(e)).

Le maillage et les conditions aux limites du modèle par éléments finis sont présentés en annexe I.6. Le chargement de l'éprouvette peut être apparenté à un chargement de flexion : au voisinage du plan médian vertical, la partie interne de l'éprouvette est sollicitée en traction circonférentielle et sa partie externe en compression ; au voisinage du plan médian horizontal, la partie interne de l'éprouvette est sollicitée en compression tandis que sa partie externe est sollicitée en traction. Les simulations montrent que la déformation plastique cumulée est maximale en paroi interne au niveau du plan médian vertical de l'éprouvette en début d'essai (jusqu'à un déplacement traverse d'environ 2.5 mm). Elle est ensuite maximale en paroi interne au niveau du plan médian horizontal de l'éprouvette.

Les simulations reproduisent de manière satisfaisante les résultats expérimentaux (courbes force rapportée à la section–déplacement et lieu d'amorçage des fissures) pour le matériau non hydruré et le matériau hydruré à 800 ppm. On constate néan-



(a) Non hydruré, expérience

(b) Non hydruré, simulation

(c) 800 ppm, expérience

(d) 800 ppm, simulation

(e) 1200 ppm, expérience

(f) 1200 ppm, simulation

Figure 4.18 – Essais d'écrasement, au moment de l'amorçage d'une fissure, réalisés à température ambiante pour différentes teneurs en hydrogène.

moins que les efforts sont sur–estimés dans le cas du matériau hydruré. En effet, la prise en compte du durcissement par les hydrures dans le modèle est faite sans distinction entre les chargements de traction et de compression. La validité du modèle n'est toutefois pas remise en cause dans le cadre de cette étude car, en réalité, le modèle est uniquement destiné à décrire le comportement du matériau soumis à un chargement de traction. Le fait que la fissure s'amorce en paroi externe latérale dans le matériau non hydruré (figure 4.18(b)), alors qu'à partir d'un certain niveau de chargement la déformation plastique cumulée est maximale en paroi interne, est dû à la croissance des cavités, importante en paroi externe (sollicitée en traction) et nulle en paroi interne (sollicitée en compression). La rupture du matériau hydruré à 800 ppm intervient avant que la croissance des cavités ne soit significative. Dans ce cas, l'endommagement est essentiellement attribué à la germination des cavités par rupture des hydrures. Dans le modèle, les hydrures ne rompent que lorsque le matériau est sollicité en traction ($\sigma_{kk} > 0$). Ce choix de modélisation permet de reproduire l'amorçage de la fissure en paroi externe latérale dans le matériau hydruré à 800 ppm (figure 4.18(d)).

La simulation prévoit un déplacement traverse à rupture beaucoup trop élevé dans le cas du matériau hydruré à 1200 pm. Naturellement, le lieu d'amorçage de la rupture est mal évalué : la fissure s'amorce en paroi externe latérale au lieu de s'amorcer en paroi interne au niveau du plan médian vertical de l'éprouvette (figure 4.18(f)). Une teneur locale en hydrogène plus importante que la teneur moyenne de 1200 ppm pourrait être en partie à l'origine de cet écart. On notera par ailleurs que l'échantillon est sollicité en traction selon la direction radiale dans certaines régions (régions comprimées selon la direction circonférentielle), *i.e.* selon la normale des hydrures. Or, la fragilisation par les hydrures est plus importante lorsque les hydrures sont orthogonaux à la direction de traction (Racine, 2005; Daum et al., 2006; Chu et al., 2007). Cette configuration est donc plus pénalisante que si tous les hydrures étaient orientés selon la direction de sollicitation. On rappellera que le modèle rend compte des effets des hydrures uniquement lorsqu'ils sont majoritairement parallèles à la direction de traction.

4.5 Conclusions

Le modèle couplé de Gurson–Tvergaard–Needleman a été utilisé pour représenter le comportement viscoplastique anisotrope et la rupture ductile du matériau. Les paramètres du modèle ont été identifiés à partir des résultats expérimentaux exposés au chapitre 3. On retiendra les points suivants :

- Le modèle intègre deux sources d'endommagement, respectivement associées aux précipités de phase de Laves et aux hydrures circonférentiels [14].
- La germination des cavités autour des précipités de phase de Laves est supposée être contrôlée par la déformation plastique.

[14] Le modèle n'est valide que lorsque les hydrures sont orientés selon la direction de chargement.

- La loi de germination des cavités par rupture des hydrures est établie en fonction de la déformation plastique, de la teneur en hydrogène et de la température à partir des observations quantitatives du chapitre précédent.
- La porosité critique conduisant à la coalescence des cavités est plus faible dans le cas où l'endommagement est associé aux précipités de phase de Laves que lorsqu'il est attribué aux hydrures.
- Malgré la prise en compte de l'anisotropie plastique, une description isotrope de l'endommagement ne permet pas de reproduire, à l'aide d'un jeu de paramètres unique, l'ensemble des résultats expérimentaux pour le matériau non hydruré ou faiblement hydruré à température ambiante ou à 350 °C et 480 °C quelle que soit le teneur en hydrogène. Une meilleure description peut être obtenue en définissant une germination de cavités – par décohésion de l'interface précipités de phase de Laves/matrice et par rupture des hydrures – plus tardive en traction circonférentielle qu'en traction axiale. Dans l'état actuel des choses, le modèle doit donc être considéré comme un outil de compréhension plutôt que de prévision.

Conclusions

Conclusions

L'augmentation du taux de combustion des crayons combustibles dans les réacteurs à eau pressurisée (REP) est un enjeu industriel majeur. La gaine des crayons combustibles constitue la première barrière de confinement des produits de fission. Il est donc primordial de garantir son intégrité en toutes conditions. L'accident d'injection de réactivité (RIA) est l'un des accidents de dimensionnement les plus contraignants pour les gaines à fort taux de combustion, dont les propriétés mécaniques ont été altérées sous les effets de l'irradiation, l'oxydation par l'eau du circuit primaire et l'hydruration. Au cours du transitoire RIA, la gaine est soumise à un chargement mécanique multiaxial rapide (vitesse de déformation d'environ $1\,s^{-1}$) associé à des températures éventuellement élevées (entre 300 °C et 1000 °C environ). L'évaluation des risques de rupture des gaines en situation de type RIA requiert l'élaboration de modèles prédictifs et une connaissance approfondie du comportement mécanique du matériau qui les constitue. Les données expérimentales et les modèles proposés dans la littérature ne sont souvent pas adaptés aux conditions spécifiques des RIA.

Au cours de cette étude, nous nous sommes intéressés au comportement et à la rupture des gaines en Zircaloy–4 détendu. Plus précisément, cette étude a été consacrée à :

1. la modélisation du comportement mécanique des gaines en Zircaloy–4 détendu vierges et irradiées dans des domaines de températures et de vitesses de déformation représentatifs de ceux rencontrés lors des RIA ;
2. la caractérisation dans des conditions adaptées du comportement et de la rupture des gaines en Zircaloy–4 détendu non irradiées hydrurées ;
3. la modélisation de la rupture ductile des gaines en Zircaloy–4 détendu hydrurées.

Modélisation du comportement mécanique du Zircaloy–4 vierge et irradié

Le comportement mécanique du Zircaloy–4 détendu vierge et irradié a été étudié puis modélisé en exploitant une base de données expérimentales comprenant les

résultats déjà existants de plus de 500 essais mécaniques (traction axiale, traction circonférentielle, pressurisation interne sans reprise de l'effet de fond). Les influences de la température (entre 25 °C et 1100 °C), de la vitesse de déformation (de $3{\cdot}10^{-4}\,\mathrm{s}^{-1}$ à $5\,\mathrm{s}^{-1}$), de la fluence (de $0\,\mathrm{n.m}^{-2}$ à $10^{26}\,\mathrm{n.m}^{-2}$) et des conditions d'irradiation (températures d'irradiation de 320 °C à 380 °C) ont été analysées. Les tendances suivantes ont été dégagées :

- La résistance mécanique du matériau décroît en fonction de la température. Elle augmente en fonction de la fluence, en particulier pour des températures inférieures à la température d'irradiation. Le durcissement d'irradiation est d'autant plus important que la température d'irradiation (ou la cote axiale par rapport au bas l'assemblage) est faible.
- L'écrouissage instantané du matériau évolue en fonction de la déformation plastique. Il décroît en fonction de la température. L'irradiation conduit à une diminution de l'écrouissage, du moins pour des déformations plastiques proches de l'allongement réparti et des températures inférieures à la température d'irradiation.
- La contrainte d'écoulement du matériau augmente avec la vitesse de déformation. Cette sensibilité est croissante en fonction de la température et de la fluence.
- Les propriétés plastiques du matériau sont orthotropes. L'anisotropie dépend notamment de la température et de la fluence.

Un modèle a été développé pour décrire l'ensemble de ces propriétés :

- Le modèle repose sur le formalisme standard de l'élastoviscoplasticité à écrouissage isotrope multiplicatif non linéaire sans seuil.
- Le critère quadratique de Hill a été utilisé pour décrire l'anisotropie plastique du matériau.

Le modèle a été implémenté dans le code de calcul par éléments finis Cast3M. Il a été utilisé pour analyser les essais de traction circonférentielle sur anneaux usinés réalisés dans le cadre du programme PROMETRA. Les principales conclusions sont les suivantes :

- La flexion des zones utiles de l'éprouvette est importante dans le régime élastique et en début de plasticité globale.
- Les effets structuraux (flexion des zones utiles, frottement entre la paroi interne de l'éprouvette et les mandrins) deviennent relativement faibles à partir d'une déformation plastique globale d'environ 0.005.
- L'exploitation directe de la courbe force–déplacement fournit une bonne évaluation des propriétés contrainte–déformation plastique circonférentielles pour des déformations plastiques supérieures à 0.005.

Caractérisation du comportement mécanique et de la rupture du Zircaloy–4 hydruré

Le comportement mécanique et la rupture des gaines en Zircaloy–4 détendu hydrurées (hydrures circonférentiels) ont été caractérisés à l'aide d'essais de traction axiale, traction circonférentielle, expansion due à la compression et traction plane circonférentielle. Ces essais ont été réalisés à 25 °C, 350 °C et 480 °C à une vitesse de déformation d'environ $0.1\,s^{-1}$. Les principaux résultats sont les suivants :

- Qu'il soit sollicité selon la direction axiale ou circonférentielle, le matériau est durcit par les hydrures à température ambiante. Ce phénomène est lié à une augmentation de la capacité d'écrouissage du matériau, attribué à un effet composite. Ce renforcement décroit en fonction de la température. L'allongement réparti diminue avec la teneur en hydrogène. Le matériau est adoucit par l'hydrogène en solution solide à 350 °C et 480 °C. La résistance mécanique, l'écrouissage et l'allongement réparti du matériau, hydruré ou non, diminuent en fonction de la température.
- L'anisotropie plastique du matériau est peu modifiée par l'hydrogène, qu'il soit précipité ou en solution solide. En revanche, elle dépend de la température.
- Le matériau est fragilisé par les hydrures à température ambiante. L'influence des hydrures est insignifiante à 350 °C et 480 °C. La ductilité du matériau augmente avec la température. La ductilité semble être légèrement plus importante en traction circonférentielle qu'en traction axiale.
- Les modes de rupture macroscopiques des éprouvettes évoluent en fonction de la température, la teneur en hydrogène et la géométrie de l'éprouvette.
- Quelles que soient les conditions, le matériau rompt de manière ductile, *i.e.* par germination, croissance et coalescence de cavités. La décohésion de l'interface entre la matrice et les précipités de phases de Laves est la principale source d'endommagement dans le matériau non hydruré. L'endommagement est essentiellement lié à la rupture des hydrures perpendiculairement à la direction principale de chargement dans le cas du matériau hydruré testé à température ambiante. Une seconde population de cavités, associée aux précipités de phases de Laves, est observée entre les cavités primaires créées par la rupture des hydrures. Les hydrures ne rompent pas à 350 °C et 480 °C. Durant les essais AT, HT et EDC, la coalescence des cavités intervient principalement par striction interne. Dans le cas des essais PST, les cavités croissent très peu et la coalescence intervient par localisation de la déformation dans des bandes de cisaillement intense.
- L'endommagement du matériau hydruré à température ambiante dépend essentiellement de la déformation plastique, l'influence de la triaxialité étant plus faible dans la gamme étudiée. Les hydrures ne rompent qu'à partir d'une déformation plastique seuil. Cette déformation plastique limite diminue lorsque la teneur en hydrogène augmente. Elle est d'environ 0.08 à 1200 ppm. La rupture des hydrures intervient pour des déformations plus importantes en traction circonférentielle qu'en traction axiale pour les plus faibles teneurs en hydro-

gène. La rupture des hydrures se produit de manière continue en fonction de la déformation plastique.

Modélisation de la rupture ductile du Zircaloy–4 hydruré

Un modèle basé sur celui de Gurson modifié par Tvergaard et Needleman a été utilisé pour simuler la rupture ductile du Zircaloy–4 détendu hydruré.

- Le modèle décrit le comportement viscoplastique anisotrope du matériau en fonction de la température et de la teneur en hydrogène.
- Il représente également la germination continue, la croissance et la coalescence des cavités. La germination de cavités est attribuée aux précipités de phases de Laves et/ou aux hydrures selon les conditions.
- Les paramètres du modèle d'endommagement ont été identifiés à partir des résultats des essais de caractérisation mécanique et des cinétiques d'endommagement mesurées.
- L'impossibilité de déterminer – mis à part pour le matériau fortement hydruré testé à température ambiante – un jeu de paramètres unique permettant de simuler à la fois les essais de traction axiale et de traction circonférentielle suggère une anisotropie d'endommagement. Plus précisément, la germination des cavités semble plus tardive en traction circonférentielle qu'en traction axiale.

Perspectives

De nombreuses perspectives peuvent être envisagées suite à ce travail. Tout d'abord, sur le plan expérimental :

- A l'image des travaux de Schäffler (1997) et Geyer (1999) par exemple, il serait intéressant de réaliser, en combinant une sollicitation de traction/compression et de pression interne, des essais avec différents rapport de biaxialité des contraintes pour caractériser de manière plus approfondie l'anisotropie plastique du matériau.
- Une analyse très approximative des essais réalisés dans le cadre de cette thèse suggère un échauffement local significatif du matériau dû à la déformation plastique importante des éprouvettes après striction. Il semblerait par ailleurs que la chaleur produite n'ait pas le temps de se dissiper durant les essais, réalisés à une vitesse de déformation relativement importante. Il est probable que la rupture des éprouvettes ait été influencée par cet échauffement. Par la suite, il peut être envisagé d'utiliser une caméra infra–rouge à haute fréquence d'acquisition pour mesurer durant les essais l'évolution de la température le long des éprouvettes.
- Dans le cadre de cette thèse, les essais ont été réalisés à une vitesse de déformation d'environ $0.1\,\mathrm{s}^{-1}$. Cette vitesse représente la borne inférieure des vitesses attendues lors d'un RIA. Pour analyser l'éventuelle influence de la vitesse de

déformation sur la rupture du matériau, il serait intéressant de conduire le même type d'étude à des vitesses plus élevées (1–10 s^{-1}).

- Des essais de traction plane ont été réalisés pour étudier l'effet de la triaxialité sur l'endommagement et la rupture du matériau. Le développement d'un essai EDC biaxé a été entrepris pour atteindre des triaxialités plus importantes. Ces essais devraient permettre d'étudier de manière plus approfondie l'effet du taux de triaxialité sur l'endommagement et la rupture du matériau.
- Les résultats de cette étude suggèrent que la rupture du matériau, qu'il soit hydruré ou non, est anisotrope. Il est toutefois impossible de l'affirmer dans la mesure où les modes de rupture macroscopiques des éprouvettes de traction axiale et de traction circonférentielle, dont les géométries sont inévitablement différentes, ne sont pas identiques (mis à part pour le matériau fortement hydruré testé à température ambiante pour lequel les deux types d'éprouvettes présentent des modes de rupture et des ductilités macroscopiques similaires). Pour tenter de reproduire les modes de rupture macroscopiques des éprouvettes de traction circonférentielle, des essais de traction axiale ont été réalisés sur des éprouvettes « bi–languettes » dont les zones calibrées présentent des dimensions identiques à celles des anneaux. Les modes de rupture de ces éprouvettes restent différents de ceux des anneaux, qui sont probablement indirectement influencés par le contact frottant avec les mandrins (la localisation de la déformation est facilitée au voisinage du plan médian des longueurs calibrées qui n'est pas en contact avec les mandrins). Pour espérer reproduire en traction axiale les modes de rupture des anneaux de traction circonférentielle et de ce fait pouvoir se prononcer sur le caractère anisotrope de la rupture du matériau, on pourrait envisager d'utiliser des éprouvettes « bi–languettes » avec des longueurs calibrées encore plus faibles.
- L'endommagement lié à la rupture des hydrures à température ambiante a été quantifié à partir d'observations réalisées sur les éprouvettes rompues. Bien qu'extrêmement fastidieuse, cette méthode pourrait être appliquée au matériau non hydruré pour déterminer la cinétique de l'endommagement associé aux précipités de phases de Laves. Il serait également intéressant de réaliser des essais interrompus ou des essais in–situ sous MEB pour analyser avec plus de précision l'endommagement du matériau.
- L'échauffement de la gaine lors d'un RIA conduit à la dissolution d'une partie voire de la totalité des hydrures. Lors du refroidissement de la gaine succédant au transitoire, l'hydrogène en solution solide reprécipite sous contrainte majoritairement circonférentielle (chargement de pression interne lié aux gaz de fission). Lorsque la contrainte est suffisante, les hydrures précipitent perpendiculairement aux parois du tube (hydrures radiaux). Parce qu'ils sont orientés orthogonalement à la direction principale de sollicitation, les hydrures radiaux sont plus fragilisants que les hydrures circonférentiels (Yagnik et al., 2004; Racine, 2005; Racine et al., 2005; Daum et al., 2006; Chu et al., 2007). Il serait donc intéressant d'étudier l'influence des hydrures radiaux sur le comportement mécanique et la rupture des gaines lors de la phase de refroidissement des RIA ou de l'entreposage du combustible.

- La rupture des gaines lors de la phase de PCMI est systématiquement amorcée dans les couches externes fragiles denses en hydrures (rims et blisters d'hydrures). La ductilité macroscopique du matériau décroît de manière significative lorsque l'épaisseur de ces couches augmente (Daum et al., 2002b, a; Pierron et al., 2003; Glendening et al., 2005). P. Raynaud et A. Motta de Pennsylvania State University ont tenté de créer, à l'aide de la méthode mise au point par Raynaud et al. (2007) pour des tôles en Zircaloy–4, des blisters d'hydrures externes dans des tronçons de tubes que nous leur avons transmis. Bien qu'encourageants, les premiers résultats ne répondent pas encore entièrement aux attentes. Il serait intéressant de poursuivre ces efforts pour étudier l'influence des blisters d'hydrures sur la rupture du matériau, en particulier à des températures représentatives de celles rencontrées lors des RIA. Dans la mesure où les couches externes fragiles denses en hydrures rompent pour de très faibles déformations, il pourrait également être envisagé de remplacer les blisters d'hydrures par des entailles (obtenues par électroérosion) ou des fissures (obtenues par fatigue par exemple) préexistantes.
- On peut s'interroger quant à la transférabilité des résultats obtenus à d'autres alliages de zirconium tels que le M5. En particulier, le M5 s'oxyde et s'hydrure nettement moins que le Zircaloy–4 en conditions normales de fonctionnement : la teneur en hydrogène dans le M5 irradié durant 6 cycles en REP (taux de combustion d'environ 70 MWj/t) est de l'ordre de 100 ppm (Bossis et al., 2005; Mardon and Dunn, 2007). Dans ce cas, la totalité de l'hydrogène est en solution solide à la température de fonctionnement en REP. Il n'est néanmoins pas exclu que des teneurs en hydrogène plus importantes puissent être atteintes pour des taux de combustion plus élevés. En outre, dans le M5, les hydrures précipitent préférentiellement aux joints de grains et la proportion d'hydrures radiaux n'est pas négligeable. Par conséquent, pour une même teneur en hydrogène, la perte de ductilité du matériau liée à la présence d'hydrures est *a priori* plus importante dans le M5 que dans le Zircaloy–4. Il pourrait donc être intéressant d'appliquer la démarche proposée dans le cadre de cette thèse pour caractériser le comportement et la rupture du M5.

Quant à la modélisation du comportement et de la rupture du matériau, on peut envisager les perspectives suivantes :

- Comme évoqué précédemment, il serait intéressant d'approfondir l'étude de l'anisotropie de rupture, d'étudier l'influence de l'orientation et de la répartition des hydrures et de considérer l'effet de l'échauffement local dû à la déformation plastique. Ces aspects pourraient être intégrés dans le modèle pour améliorer la description de la rupture du matériau.
- La rupture du Zircaloy–4 irradié est également de nature ductile du point de vue microscopique. On peut donc envisager d'étendre le modèle d'endommagement au cas du matériau irradié, en considérant les points suivants. La structure des hydrures δ est peu modifiée par l'irradiation. La contrainte d'écoulement du matériau augmente avec l'irradiation tandis que l'écrouissage diminue. La rupture des hydrures et la croissance des cavités sont donc *a priori* favori-

sées dans le matériau irradié. Le modèle proposé au chapitre 2, rendant compte des effets de l'irradiation sur le comportement mécanique du Zircaloy–4, pourrait être utilisé pour représenter le comportement du matériau non endommagé dans le modèle GTN. Les précipités de phase de Laves deviennent amorphes sous les effets de l'irradiation ; ils peuvent même être dissous pour les fortes fluences. Ces précipités ne contribuent donc *a priori* pas à l'endommagement du matériau irradié. En revanche, le regroupement des défauts d'irradiation sous l'effet de la déformation donne naissance à des cavités.

– La teneur en hydrogène varie à travers l'épaisseur des gaines irradiées en REP. La modélisation de ce type de matériau à gradient de propriétés est aisément envisageable à l'aide de la méthode des éléments finis, en affectant par exemple des propriétés distinctes aux différents éléments du maillage. On pourrait donc envisager d'utiliser le modèle proposé pour décrire le comportement et la rupture du Zircaloy–4 hydruré pour étudier l'influence de la distribution des hydrures sur la réponse mécanique des gaines.
– Il serait intéressant de développer dans Cast3M les outils spécifiques (adaptation automatique du pas de temps, retrait des éléments rompus, ...) indispensables pour simuler l'ensemble du processus de rupture (amorçage et propagation de fissures) des éprouvettes.
– Cette étude montre que l'endommagement du matériau, qu'il soit hydruré ou non, est relativement faible dans les conditions étudiées. En particulier, comme l'ont confirmé les observations et les calculs par éléments finis, la croissance des cavités est réduite du fait des faibles triaxialités atteintes. Par conséquent, le couplage entre le comportement et l'endommagement s'avère faible. Une bonne approximation des paramètres critiques de rupture pourrait donc être obtenue à l'aide d'un modèle d'endommagement non couplé, moins complexe que le modèle proposé dans cette étude. On notera qu'il est important que ce modèle tienne compte à la fois de la germination et de la croissance des cavités. La rupture intervenant principalement par instabilité plastique, un critère de rupture exprimé en déformation plastique limite peut également être envisagé. On remarquera que le fait que le comportement du matériau soit peu influencé par l'endommagement justifie les approches généralement utilisées pour évaluer la rupture des gaines lors des RIA (critères de rupture, appliqués en post–traitement dans les codes de calculs RIA, exprimés en termes de déformation ou de densité d'énergie de déformation critique). La pertinence de ces critères dépend donc essentiellement de la manière dont ils sont établis et des données utilisées. On pourrait envisager d'utiliser le modèle développé durant cette thèse pour établir ce type de critère de rupture (par exemple, simulation du comportement et de la rupture de gaines soumises à un chargement représentatif de celui engendré lors d'un RIA et détermination par le calcul des grandeurs d'intérêt (déformations, contraintes, ...)).

Annexe A

Implantation numérique

Cette annexe décrit la méthode d'implantation numérique des modèles élaborés durant cette thèse dans le code de calcul par éléments finis Cast3M (version 2007) développé au CEA[1]*. Les modèles ont été intégrés via le sous–programme utilisateur UMAT (User MATerial) de Cast3M. Le code est écrit en langage Esope (Fortran77 auquel certaines instructions ont été ajoutées). Le modèle implémenté est utilisable pour des calculs 3D, axisymétriques 2D, en déformations planes, en déformations planes généralisées et en contraintes planes.*

A.1 Introduction

Dans sa version 2007, Cast3M dispose, via le module MISTRAL (MaterIal STRAin Laws) développé au CEA/SEMI (Limon, 2002; Limon et al., 2004), d'un modèle de comportement d'élastoviscoplasticité orthotrope. Néanmoins, l'utilisation du modèle viscoplastique développé dans le cadre de cette thèse aurait nécessiter une adaptation des sources du modèle MISTRAL.

Le modèle GTN développé pour décrire le comportement et la rupture ductile du matériau couple l'endommagement du matériau avec son comportement viscoplastique anisotrope. Il combine par ailleurs la germination de cavités initialement sphériques (décohésion de l'interface précipités de phase de Laves/matrice) engendrant une variation de volume et la germination de micro–fissures (cavités de type « penny shaped » créées par fragmentation des hydrures) n'induisant pas de variation de volume. Le modèle GTN disponible dans la version 2007 de Cast3M n'est utilisable que dans le cas des matériaux élastoplastiques ou viscoplastiques à écrouissage linéaire isotropes. De plus, il n'intègre qu'une source d'endommagement dont la germination engendre une variation de volume.

Ainsi, ont été implantés dans Cast3M via le sous–programme UMAT :
- un modèle d'élastoviscoplasticité à écrouissage isotrope multiplicatif, non linéaire, sans seuil ;

[1] `http://www-cast3m.cea.fr/cast3m/index.jsp`

– un modèle GTN applicable aux matériaux viscoplastiques anisotropes à écrouissage non linéaire et incluant la germination de deux types de cavités associée ou non à une variation de volume.

Connaissant les grandeurs suivantes (fournies à UMAT par Cast3M) au début du pas de temps :

– contraintes,
– déformations et incréments de déformations,
– paramètres extérieurs (température, teneur en hydrogène, fluence, ...) et incréments des paramètres extérieurs,
– coefficients décrivant la loi de comportement du matériau,
– variables internes (ou intégrées) décrivant l'état du matériau,

l'intégration consiste à calculer, à partir du comportement, les contraintes et les variables internes en fin d'incrément. Dans certains cas, le comportement doit également fournir la matrice tangente cohérente $\partial\Delta\underline{\boldsymbol{\sigma}}/\partial\Delta\underline{\boldsymbol{\epsilon}}$.

Les contraintes, les déformations et les incréments de déformations fournis à UMAT par Cast3M sont définis dans la base générale de Cast3M. Le matériau étudié étant orthotrope, il est nécessaire dans UMAT d'exprimer ces grandeurs dans la base d'orthotropie du matériau. Cette opération a été réalisée à l'aide de la matrice de passage de la base générale de Cast3M à la base locale de l'élément fini et de la matrice de passage de la base locale de l'élément fini à la base principale d'orthotropie. Naturellement, la manipulation inverse est réalisée en sortie de UMAT afin d'exprimer les grandeurs dans la base générale de Cast3M.

A.2 Variables internes

A.2.1 Modèle de viscoplasticité

L'état du matériau est représenté par les variables internes suivantes :

$$\{V\} = \{p, \underline{\boldsymbol{\epsilon}}^p\} \tag{A.1}$$

Les évolutions de ces variables sont respectivement données par la loi d'écoulement viscoplastique du matériau, F_{vp}, et la règle de normalité :

$$\begin{cases} \dot{p} & = F_{vp} \\ \underline{\dot{\boldsymbol{\epsilon}}}^p & = \dot{p}\underline{\mathbf{n}} \end{cases} \tag{A.2}$$

où $\underline{\mathbf{n}} = \partial\sigma_H/\partial\underline{\boldsymbol{\sigma}}$ est la direction d'écoulement.

A.2.2 Modèle GTN

Les variables internes choisies pour représenter l'état du matériau sont :

$$\{V\} = \{p, \underline{\boldsymbol{\epsilon}}^p, f_{nL}, f_{nH}, f_g\} \tag{A.3}$$

Leurs évolutions sont définies par les équations différentielles suivantes :

$$\begin{cases} \dot{p} & = F_{vp}(\sigma_\star) \\ \dot{\underline{\boldsymbol{\epsilon}}}^p & = (1-f)\dot{p}\underline{\mathbf{n}} \\ \dot{f}_{nL} & = A_{nL}(p,\ldots)\dot{p} \\ \dot{f}_{nH} & = A_{nH}(p,\ldots)\dot{p} \\ \dot{f}_g & = (1-f)^2\dot{p}\underline{\mathbf{n}} : \underline{\mathbf{I}} \end{cases} \tag{A.4}$$

Connaissant $\underline{\boldsymbol{\sigma}}$ et $\{V\}$ au début du pas de temps considéré, les variables auxiliaires σ_H, σ_m et $f_\star$, qui sont utilisées durant le calcul, sont aisément calculées de manière explicite. Sa définition étant implicite, $\sigma_\star$ est évaluée de manière itérative à l'aide de la méthode de Newton–Raphson :

$$\sigma_\star^{i+1} = \sigma_\star^i - \frac{\Phi(\sigma_\star^i)}{\partial\Phi(\sigma_\star^i)/\partial\sigma_\star^i} \tag{A.5}$$

où l'exposant i indique l'itération courante. La convergence de la méthode peut toutefois être rendue difficile par les valeurs très faibles que peut prendre $\partial\Phi/\partial\sigma_\star$. Ainsi, il est préférable de remplacer la fonction Φ par :

$$\hat{\Phi} = \Phi\sigma_\star^2 \tag{A.6}$$

avec :

$$\frac{\partial\hat{\Phi}}{\partial\sigma_\star} = 2\sigma_\star\left[2q_1f_\star\cosh\left(q_2\frac{3}{h}\frac{\sigma_m}{\sigma_\star}\right) - 1 - q_3f_\star^2\right] - \frac{6}{h}f_\star q_1 q_2\sigma_m\sinh\left(q_2\frac{3}{h}\frac{\sigma_m}{\sigma_\star}\right) \tag{A.7}$$

Le bon fonctionnement de la méthode de Newton–Raphson requiert une valeur initiale suffisamment proche du vrai zéro. La valeur de départ de $\sigma_\star$ est choisie égale à la racine positive de $\hat{\Phi} = 0$ (obtenue à l'aide du logiciel de calcul formel libre Maxima), où le cosinus hyperbolique a été remplacé par son développement limité d'ordre 2 ou 4. Par exemple, dans le cas d'un développement limité du second ordre ($\cosh(x) = 1 - x^2/2!$), cette racine vaut :

$$\sigma_\star^0 = \frac{1}{h}\sqrt{\frac{h^2\sigma_H^2 - 9q_1q_2^2f_\star\sigma_m^2}{q_3f_\star^2 - 2q_1f_\star + 1}} \tag{A.8}$$

La convergence est obtenue lorsque $|\hat{\Phi}| < \varepsilon$, où ε représente la tolérance fixée.

A.3 Intégration des variables internes

La matrice tangente potentiellement fournie par UMAT n'est pas exploitée par Cast3M dans sa version de développement 2007, ce qui est rédhibitoire pour l'utilisation d'une méthode d'intégration implicite. Connaissant au début du pas de temps les contraintes, les variables internes, les paramètres extérieurs et les coefficients de

la loi de comportement, une méthode explicite de Runge–Kutta du quatrième ordre (RK4) est utilisée pour intégrer sur un incrément Δt les équations du système A.4 :

$$\begin{aligned}
\{\Delta V_1\} &= \Delta t\{\dot{V}\}\left(t, \{V\}\right) \\
\{\Delta V_2\} &= \Delta t\{\dot{V}\}\left(t + \frac{\Delta t}{2}, \{V\} + \frac{1}{2}\{\Delta V_1\}\right) \\
\{\Delta V_3\} &= \Delta t\{\dot{V}\}\left(t + \frac{\Delta t}{2}, \{V\} + \frac{1}{2}\{\Delta V_2\}\right) \\
\{\Delta V_4\} &= \Delta t\{\dot{V}\}\left(t + \Delta t, \{V\} + \{\Delta V_3\}\right)
\end{aligned} \tag{A.9}$$

$$\{V\}\left(t + \Delta t\right) = \{V\}\left(t\right) + \frac{1}{6}\{\Delta V_1\} + \frac{1}{3}\{\Delta V_2\} + \frac{1}{3}\{\Delta V_3\} + \frac{1}{6}\{\Delta V_4\} + O\left(\Delta t^5\right)$$

Afin d'améliorer l'efficacité de la méthode, celle-ci est associée à un calcul du pas de temps adaptatif. Le pas Δt est divisé en n sous–pas δt ($\Delta t = \sum_{1 \leq k \leq n} \delta t_k$) dont la taille est évaluée afin d'adapter la méthode aux non–linéarités du problème et d'obtenir la précision désirée tout en minimisant le temps de calcul (en maximisant la taille des sous–pas). Concrètement, des grands pas de temps sont réalisés lorsque $\{\dot{V}\}$ varie peu tandis que la discrétisation temporelle est affinée dans le cas contraire. La méthode utilisée pour calculer le pas adaptatif consiste à construire deux évaluations de $\{V\}\left(t + \delta t\right)$ notées $\{V_I\}$ et $\{V_{II}\}$, respectivement obtenues avec un sous–pas de temps δt et deux sous–pas successifs correspondants à $\delta t/2$. La différence entre ces deux estimations constitue une approximation de l'erreur de troncature :

$$\{E\} = |\{V_{II}\} - \{V_I\}| \tag{A.10}$$

Si l'erreur commise est inférieure à la précision désirée $\{\varepsilon\}$, alors la solution est retenue et la taille du pas de temps suivant est augmentée. Si la précision requise n'est pas atteinte, le pas de temps actuel est réduit et le calcul est repris. La précision désirée pour chacune des variables internes est estimée à partir des valeurs de la variable au pas de temps précédent et de sa dérivée temporelle :

$$\{\varepsilon\} = \varepsilon\left(\{|V|\} + \delta t\{|\dot{V}|\}\right) \tag{A.11}$$

Le nouveau pas de temps optimal est évalué à partir de l'erreur commise :

$$\delta t_{k+1} = \delta t_k S\min\left(\frac{\{\varepsilon\}}{\{E\}}\right)^{1/5} \tag{A.12}$$

où $S = 0.9$ est un facteur de sécurité. Pour éviter des corrections trop importantes, le facteur correctif $\delta t_{k+1}/\delta t_k$ est borné par une valeur minimale (0.1) et une valeur maximale (10).

La méthode à pas de temps adaptatif nécessite 11 évaluations de la dérivée $\{\dot{V}\}$ par sous–pas (les 2 intégrations RK4 partagent le même point de départ), c'est-à-dire 3 de plus qu'une intégration en deux fois sur $\delta t/2$ qui une offre précision identique. Le temps de calcul supplémentaire est néanmoins exploité pour augmenter la précision

de la solution ; les deux résultats d'ordre 4 obtenus avec RK4 sont combinés pour obtenir un résultat du cinquième ordre :

$$\{V\}(t+\delta t) + O\left(\delta t^6\right) = \{V_{II}\} + \frac{1}{15}\left(\{V_{II}\} - \{V_I\}\right) \tag{A.13}$$

A chaque étape du schéma RK4, pour éviter d'éventuels problèmes de divergence numérique, on vérifie que la variation des variables internes $\{\delta V\}$ sur δt reste acceptable. Lorsque cette variation est supérieure à une valeur maximale $\{\delta V_{\max}\}$, on impose $\delta t = \min\left(\{\delta V_{\max}\}/\{|\dot{V}|\}(t,\{V\})\right)$. En pratique, cette vérification n'est effectuée que sur p, f_{nL}, f_{nH} et f_g, les 6 composantes du tenseur des déformations viscoplastiques leur étant directement liées.

A.4 Calcul des contraintes

Les contraintes sont calculées à chaque étape de l'intégration. La déformation totale est décomposée de manière additive en une partie thermique $\underline{\boldsymbol{\epsilon}}^{th}$, une partie élastique $\underline{\boldsymbol{\epsilon}}^{e}$ et une partie viscoplastique $\underline{\boldsymbol{\epsilon}}^{p}$, définies dans le cas anisotrope :

$$\underline{\boldsymbol{\epsilon}} = \underline{\boldsymbol{\epsilon}}^{th} + \underline{\boldsymbol{\epsilon}}^{e} + \underline{\boldsymbol{\epsilon}}^{p} \tag{A.14}$$

Les déformations d'origine thermique, supposées ne pas dépendre de la porosité, sont liées à la variation de température et sont obtenues à partir du coefficient de dilatation thermique sécant (ou moyen) $\underline{\boldsymbol{\alpha}}(T)$:

$$\underline{\boldsymbol{\epsilon}}^{th} = \underline{\boldsymbol{\alpha}}(T)(T - T_{ref}) \tag{A.15}$$

où T_{ref} est la température de référence à laquelle les déformations d'origine thermique sont nulles. Connaissant par ailleurs les déformations viscoplastiques, on obtient les déformations élastiques :

$$\underline{\boldsymbol{\epsilon}}^{e} = \underline{\boldsymbol{\epsilon}} - \underline{\boldsymbol{\epsilon}}^{th} - \underline{\boldsymbol{\epsilon}}^{p} \tag{A.16}$$

La contrainte macroscopique est alors calculée à partir de la loi de Hooke :

$$\underline{\boldsymbol{\sigma}} = \underline{\underline{\mathbf{C}}} : \underline{\boldsymbol{\epsilon}}^{e} \tag{A.17}$$

où $\underline{\underline{\mathbf{C}}}$ est le tenseur d'élasticité d'ordre 4, défini dans le cas anisotrope, dont la dépendance vis-à-vis de la porosité est négligée.

A.5 Gestion de la rupture

Dans le cas du modèle GTN, pour assurer la stabilité numérique du schéma d'intégration, l'équation 4.9 est utilisée jusqu'à $f_\star = 0.95 f_{\star u}$. Au-delà, le matériau est considéré rompu. D'un point de vue numérique, la rupture se traduit par une

contrainte nulle pour toute déformation. Pour éviter de rencontrer des problèmes de convergence numérique liés à une éventuelle non inversibilité de la matrice de rigidité globale, le comportement mécanique des points de Gauss rompus est remplacé par un comportement élastique avec un raideur très faible (module d'Young 10^{-5} fois plus petit que celui du matériau intègre) (Liu et al., 1994; Besson et al., 2003), de sorte que $\underline{\boldsymbol{\sigma}} \simeq \underline{\mathbf{0}}$.

Annexe B

Plans des éprouvettes

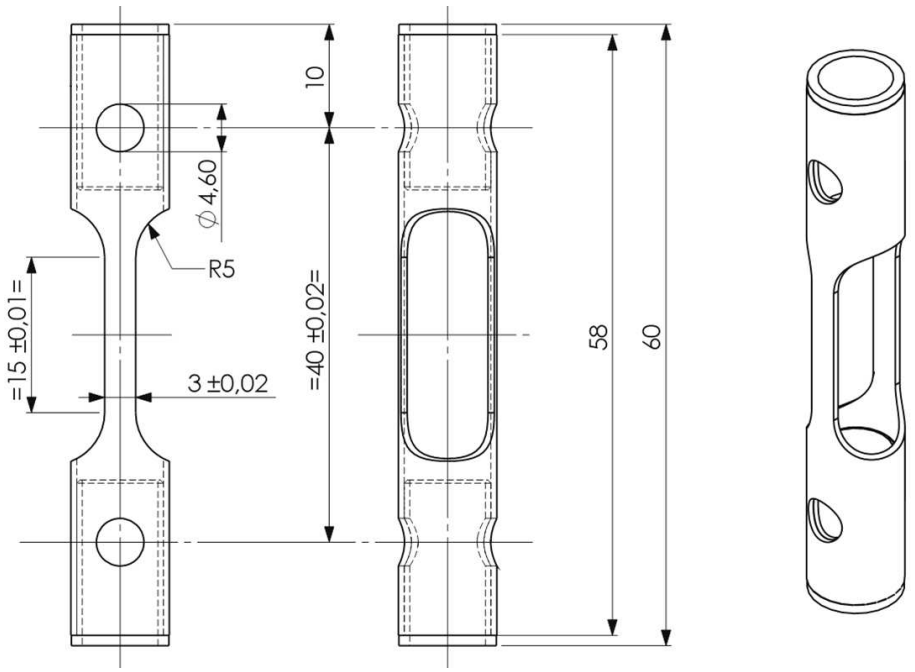


Figure B.1 – Eprouvette de traction axiale, AT (dimensions en mm).

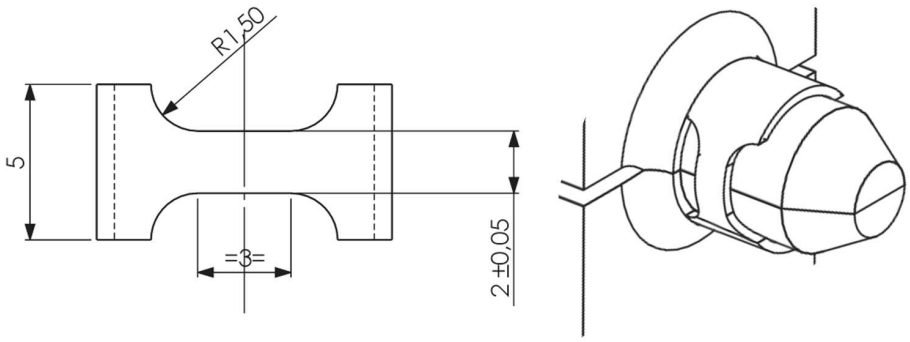


Figure B.2 – Eprouvette de traction circonférentielle, HT (dimensions en mm).

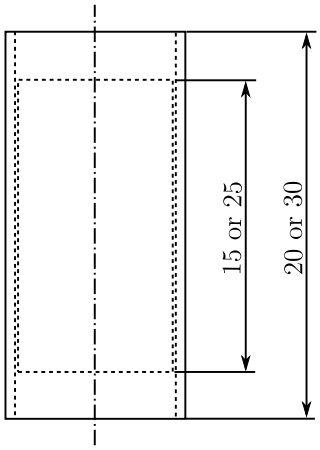


Figure B.3 – Eprouvette d'expansion due à la compression, EDC (dimensions en mm).

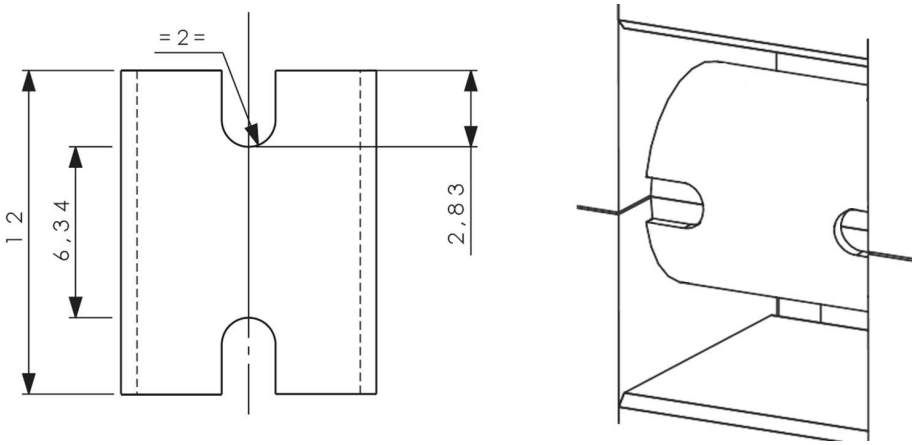


Figure B.4 – Eprouvette de traction plane circonférentielle, PST (dimensions en mm).

Annexe C

Moyens et méthodes expérimentales

Cette annexe détaille les moyens et les méthodes expérimentales utilisées et développées durant cette thèse : hydruration, machine d'essais mécaniques, moyens d'observations, préparation des échantillons, mesures des déformations locales, corrélation d'images numériques.

C.1 Hydruration

C.1.1 Chargement en hydrogène

Le matériau a été hydruré par voie gazeuse par AREVA-NP (Cézus). Après un léger décapage, des tronçons de tubes de gainage de 500 mm de long ont été placés dans un four porté à 400 °C et balayés par un flux d'argon/hydrogène. Le matériau a ensuite été refroidi très lentement ($< 2\,°C/min$) afin de permettre la précipitation des hydrures δ. Les hydrures précipitent de manière homogène dans l'épaisseur du matériau. La durée du traitement thermique contrôle la teneur en hydrogène absorbée. Malgré les précautions prises, la formation d'une couche d'oxyde est inévitable, ralentissant alors la pénétration de l'hydrogène dans le matériau. Ainsi, pour les teneurs en hydrogène supérieures à 400 ppm, afin d'éviter des traitements trop longs, le traitement thermique (maintien en température puis refroidissement lent) a été subdivisé en plusieurs étapes. Entre chacune de ces étapes, le matériau est lentement refroidi et la couche d'oxyde est ôtée par polissage mécanique suivi d'un décapage dans une solution d'acide fluorhydrique. Les durées des traitements thermiques appliqués pour chacune des teneurs souhaitées sont les suivantes :

- 400 ppm : 3h ;
- 800 ppm : 4h30 puis 4h30 puis 1h30 ;
- 1200 ppm : 3h45 puis 4h30 puis 4h30 puis 2h30.

C.1.2 Dosage de l'hydrogène

Deux méthodes ont été combinées pour déterminer les teneurs en hydrogène obtenues : une méthode de fusion (ou d'extraction à chaud sous vide) et une méthode d'analyse d'images.

Méthode de fusion. La teneur en hydrogène réellement absorbée par le matériau a été déterminée par fusion (1800 °C) de coupons de métal (10 mm de long environ) prélevés aux extrémités de chaque tronçon de tubes hydrurés ainsi que tous les 100 mm sur la longueur d'un tronçon témoin pour chacune des teneurs désirées. La quantité d'hydrogène dégagée lors de la fusion du coupon (dans une enceinte sous vide) correspond à une mesure globale de l'hydrogène présent dans le coupon, qu'il soit en solution solide ou sous forme d'hydrures.

Méthode d'analyse d'images. A température ambiante, l'hydrogène se trouve quasi-exclusivement sous forme d'hydrures, du fait de sa très faible limite de solubilité (Kearns, 1967; Kammenzind et al., 1996; Brachet et al., 2002). Ainsi, la teneur totale en hydrogène dans le matériau est directement liée à la quantité d'hydrures à température ambiante. Cette propriété a été exploitée pour mesurer les teneurs locales en hydrogène à différentes cotes axiales le long des tronçons de tubes hydrurés dans lesquels ont été prélevées les éprouvettes. Pour cela, la méthodologie mise au point au CEA/SEMI, basée sur l'analyse d'images de sections polies attaquées (pour révéler les hydrures par contraste optique) du matériau, a été utilisée. Les images acquises avec un grossissement de ×16 ou ×40 à l'aide d'un microscope optique sont traitées de la manière suivante par le module Hydruro, développé au CEA/SEMI dans le logiciel AnalySIS :

- élimination des bordures pour s'affranchir des effets de bords ;
- correction de l'éclairage pour améliorer le contraste et réduire les artefacts d'éclairage (figure C.1(a)) ;
- conversion en niveaux de gris ;
- seuillage et binarisation (figure C.1(c)) ;
- squelettisation pour s'affranchir des artefacts liés à l'attaque chimique qui tend à accentuer, de manière difficilement maîtrisable, l'épaisseur des hydrures (la teneur en hydrogène est supposée être directement proportionnelle à la longueur cumulée des hydrures, qui peuvent donc être assimilés à des objets sans épaisseur) (figure C.1(d)).

Une « fraction surfacique » des hydrures est ensuite calculée puis convertie en teneur en hydrogène équivalente à l'aide d'une droite de calibration établie au CEA/SEMI par étalonnage (à partir d'échantillons contenant différentes teneurs en hydrogène connues déterminées au préalable à l'aide d'une méthode de fusion).

Comme le montre la figure C.2, les résultats obtenus avec les deux méthodes sont proches. On constate néanmoins que les teneurs déterminées par analyse d'images

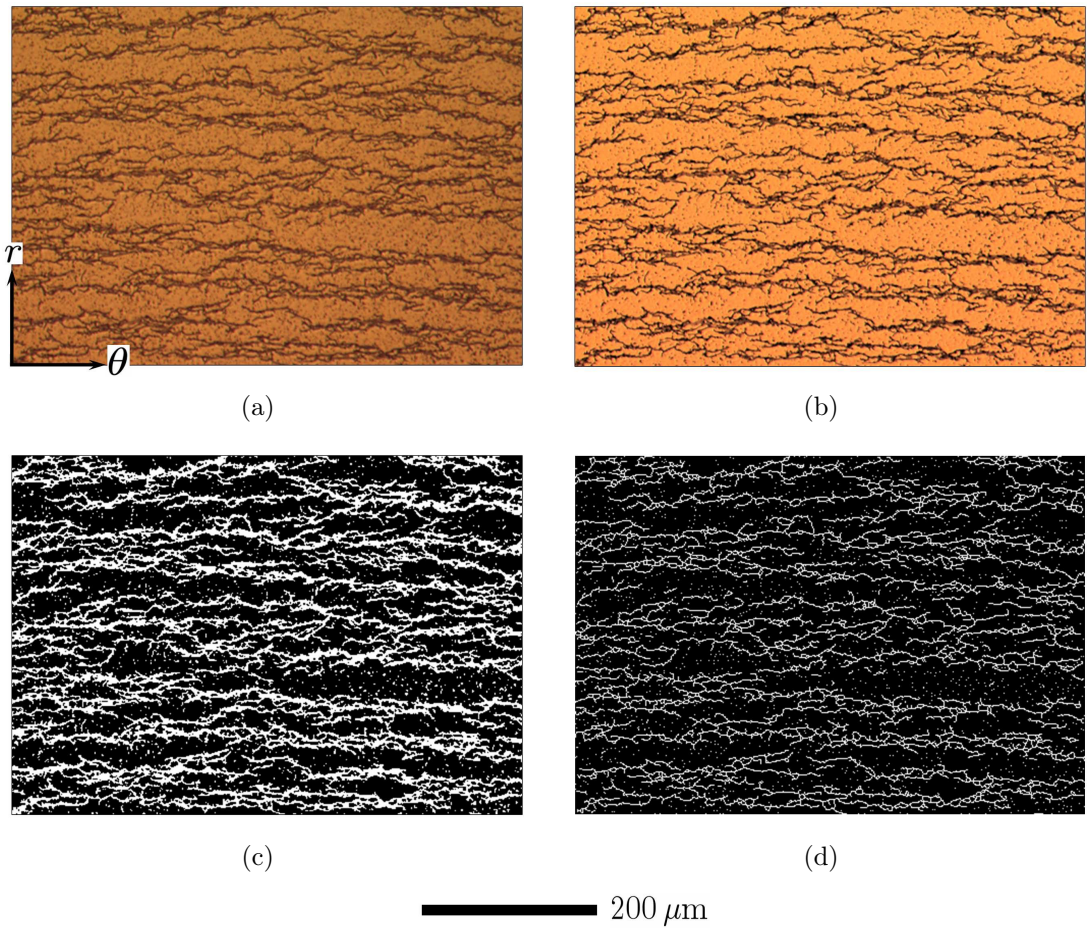


Figure C.1 – Exemple de traitement d'images (grossissement ×16) réalisé à l'aide du module Hydruro pour déterminer la teneur en hydrogène : (a) image originale, (b) image après correction de l'éclairage, (c) image binarisée et (d) image squelettisée.

sont systématiquement supérieures à celles obtenues par fusion. La droite de calibration utilisée dans Hydruro pour déduire une teneur en hydrogène à partir de la fraction surfacique des hydrures mesurée est probablement à l'origine de cet écart. Il est en effet possible que les hydrures dans le matériau ayant servi à la mise au point de cet étalonnage aient une morphologie légèrement différente de ceux présents dans le matériau étudié ici.

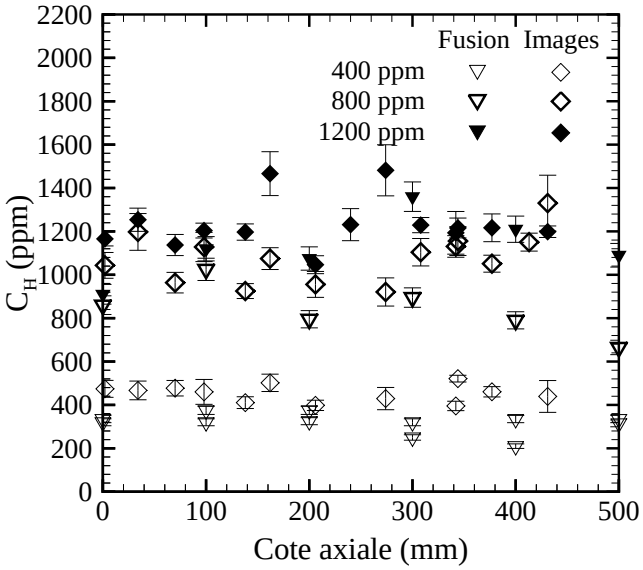


Figure C.2 – Teneurs en hydrogène mesurées pour chaque teneur de consigne (400 ppm, 800 ppm et 1200 ppm) à l'aide d'une méthode de fusion et d'une méthode d'analyse d'images.

Malgré la présence de fluctuations locales inhérentes (plus importantes dans le cas du dosage par analyse d'images basé sur des informations surfaciques), la concentration en hydrogène est relativement homogène le long des tubes : l'écart relatif entre les teneurs mesurées localement et les teneurs de consigne n'excède pas $\pm 20\%$. Dans le cadre de cette étude, cette précision est acceptable. Ainsi, on considère que la teneur en hydrogène des éprouvettes est égale à la teneur moyenne de consigne du tube dans lequel elles sont prélevées (400 ppm, 800 ppm ou 1200 ppm).

C.2 Machine d'essais mécaniques

Tous les essais ont été réalisés au CEA/SEMI sur une machine de traction électromécanique INSTRON équipée d'une cellule de force de 50 kN et de capteurs de déplacement et d'effort. Un four (vitesse de chauffe d'environ 0.2 °C/s) a été utilisé pour les essais en température. Afin d'homogénéiser la température à l'intérieur du four (qui dispose d'une seule zone) et par conséquent minimiser le gradient thermique le long des éprouvettes, une buse soufflant de l'air comprimé à l'intérieur du four a été employée.

C.3 Moyens d'observation

Les observations métallographiques ont été effectuées à l'aide du microscope optique Reichert-Jung MeF3 disponible au CEA/SEMI.

Un microscope électronique à balayage (MEB) conventionnel Leica Stereoscan 260, développé par Cambridge Instrument et situé au CEA/SRMA, a été utilisé pour les fractographies et la caractérisation de l'endommagement du matériau. Les observations ont été réalisées en modes électrons secondaires ou rétrodiffusés avec une tension d'accélération de 20 kV et une distance de travail comprise entre 10 et 25 mm.

C.4 Préparation des échantillons pour observation en microscopie

Des coupes polies ont été observées en microscopie (optique et MEB) pour caractériser la microstructure du matériau avant essai et qualifier et quantifier l'endommagement et la rupture des éprouvettes après essai.

Après découpe sous eau (pour éviter un éventuel échauffement du matériau), les échantillons ont été enrobés à froid dans une résine Araldite. Ils ont ensuite été polis à l'aide de papiers abrasifs SiC (180, 320, 600 et 1200) puis de suspension diamantée (6 μm, 3 μm et 1 μm) (durée de polissage comprise entre 5 et 15 min pour chaque étape).

Les grains et les hydrures ont été révélés à l'aide d'une attaque chimique de 1 à 2 secondes réalisée dans un bain composé d'acide nitrique (HNO_3) et d'acide fluorhydrique (HF) dans les proportions volumiques 1 : 9. L'attaque dissous préférentiellement les hydrures. Il est important de ne pas laisser trop longtemps le métal en contact avec la solution pour éviter une attaque trop forte susceptible d'endommager la surface (piqûres).

Les coupes polies préparées pour quantifier l'endommagement du matériau ont subi un polissage mécano-chimique réalisé à l'aide d'un coton imbibé de la solution d'attaque (un aller–retour). Ce polissage/attaque permet de déboucher les cavités éventuellement rebouchées par le polissage mécanique simple. La résine utilisée – choisie parce qu'elle permet de réaliser l'enrobage à température ambiante et par conséquent d'éviter les éventuelles dissolution, diffusion et reprécipitation des hydrures – n'étant pas conductrice, les échantillons ont été métallisés à l'or pour permettre leur observation au MEB.

C.5 Mesure des déformations locales à rupture

C.5.1 Essais de traction axiale et de traction circonférentielle

La ductilité des éprouvettes de traction axiale et de traction circonférentielle a été caractérisée à partir de mesures de réduction de section à rupture (coefficient de striction) : $Z = (s_0 - s)/s_0$, où s_0 est la section initiale de la zone utile de l'éprouvette et s est la valeur de la section projetée après rupture. Cette dernière a été mesurée à l'aide des outils de mesure du logiciel AnalySIS à partir d'images prises à l'aide d'une loupe binoculaire (résolution de 1596×1196 pixels) perpendiculairement au plan épaisseur–largeur de l'éprouvette. L'incertitude relative sur les mesures de Z est estimée à environ $\pm 2\%$.

C.5.2 Essais d'expansion due à la compression

Les déformations circonférentielles moyennes à rupture des éprouvettes d'expansion due à la compression ont été déterminées avec une précision relative d'environ $\pm 3\%$ à partir de mesures de périmètre réalisées à l'aide d'un ruban : $(P - P_0)/P_0$, où P_0 est le périmètre externe initial du tube et P est le périmètre (corrigé de l'ouverture de la fissure) mesuré au niveau du plan médian de l'éprouvette rompues, où la déformation est maximale.

C.6 Calcul des déformations par corrélation d'images numériques 2D

C.6.1 Introduction

Une technique de corrélation d'images numériques 2D a été utilisée pour caractériser les champs de déformation des éprouvettes durant les essais PST. Après une brève description du principe de la méthode, cette section décrit la technique de préparation des échantillons, le matériel optique et la technique d'acquisition des images, les paramètres de corrélation, les incertitudes sur les mesures de déformations et l'application de la technique aux essais PST. Les applications de corrélation d'images présentées dans ce document ont été réalisées à l'aide du logiciel CorrelManuV développé au Laboratoire de Mécanique des Solides (LMS) de l'Ecole Polytechnique [1].

C.6.2 Principe

La corrélation d'images numériques est une technique de mesure optique sans contact qui permet d'accéder aux champs de déplacements et de déformations à

[1] `http://www.lms.polytechnique.fr/users/bornert/CMV_14`

différentes échelles. Le principe de base de la méthode consiste à comparer deux images numériques de la surface d'un objet correspondant à deux états mécaniques différents, dits de *référence* et *déformé*. En pratique, il s'agit de sélectionner dans la *zone d'étude* sur l'image de la configuration de référence un domaine de pixels appelé *domaine de corrélation* (identifié par les valeurs des niveaux de gris de chaque pixel) et de chercher – après application d'une transformation décrivant le déplacement et la déformation du motif – dans une *zone de recherche* prédéfinie de l'image de la configuration déformée le domaine le plus semblable en terme de niveaux de gris (principe d'*appariement*) (figure C.3). La ressemblance entre les domaines des deux configurations est quantifiée à l'aide d'un *coefficient de corrélation*.

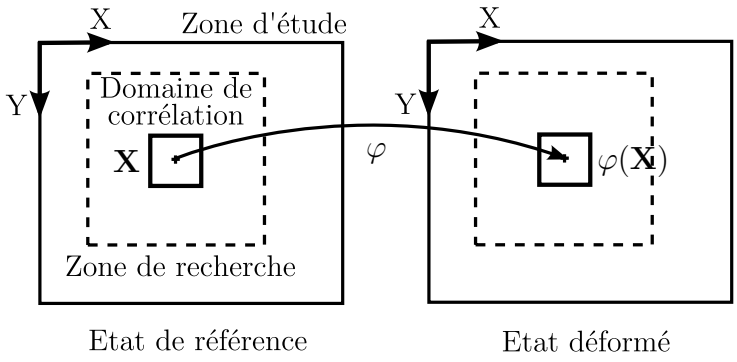


Figure C.3 – Principe de la méthode de corrélation d'images numériques 2D.

La méthode comporte trois étapes principales :

- réalisation de l'essai et acquisition des images de la zone à analyser avant et après déformation ;
- traitement des images pour accéder aux champs de déplacement ;
- traitement numérique permettant de calculer les champs de déformations.

Contraste local. Lorsque le contraste naturel de la surface à analyser n'est pas suffisant à l'échelle de la mesure, il est nécessaire de créer un marquage adapté pour l'appariement des domaines homologues. Ce marquage peut être réalisé de plusieurs manières selon l'application, le moyen utilisé pour générer les images (MEB, suivi optique, ...) et l'échelle de la mesure : par exemple, tampon encreur ou éponge imprégnée pour les échelles les plus macroscopiques, dépôt de microgrilles par microélectrolithographie pour les échelles plus fines en observations MEB notamment, ou encore gravure chimique ou mécanique ou mouchetis de peinture appliqué à l'aide d'une bombe de peinture ou d'un aérographe pour les échelles intermédiaires.

Mesure du champ de déplacement. La mesure du champ de déplacement est obtenue en associant les points homologues de la configuration de référence et de la configuration déformée par exploitation du contraste local des images au voisinage des points analysés. La procédure consiste à minimiser une fonction

de corrélation, définie par exemple dans CorrelManuV par :

$$C(\varphi) = 1 - \frac{\sum_{i\in D}\left(f(\mathbf{X}_i) - \overline{f}_D\right)\left(g(\varphi(\mathbf{X}_i)) - \overline{g}_D\right)}{\sqrt{\sum_{i\in D}\left(f(\mathbf{X}_i) - \overline{f}_D\right)^2}\sqrt{\sum_{i\in D}\left(g(\varphi(\mathbf{X}_i)) - \overline{g}_D\right)^2}} \tag{C.1}$$

où i est le pixel considéré, D est le domaine de corrélation, φ est la transformation mécanique, $\mathbf{X}_i$ et $\varphi(\mathbf{X}_i)$ sont les coordonnées des pixels dans les images de référence et déformée, $f(\mathbf{X}_i)$ et $g(\varphi(\mathbf{X}_i))$ sont les niveaux de gris dans les images de référence et déformée et $\overline{f}_D$ et $\overline{g}_D$ sont les moyennes de niveaux de gris sur D (Doumalin, 2005). Cette technique permet de déterminer les déplacement au pixel près tout en minimisant la sensibilité aux variations de contraste et de luminosité. Une précision subpixel est obtenue par interpolation des niveaux de gris de l'image déformée. Le déplacement plan de chaque point de mesure $\mathbf{X}$ est ensuite calculé :

$$u(\mathbf{X}) = \varphi(\mathbf{X}) - \mathbf{X} \tag{C.2}$$

En pratique, la détermination du champ de déplacement est réalisée en trois étapes :

- définition de la zone d'étude (qui ne recouvre pas nécessairement toute l'image acquise) sur la configuration de référence ;
- découpage de la zone d'étude en domaines de corrélation ;
- appariement des points homologues sur les configurations déformées (corrélation des zones d'intérêt).

Les caractéristiques du quadrillage de référence sont liées aux dimensions du marquage ; par exemple, le domaine de corrélation doit contenir au moins une tache si le marquage est réalisé à l'aide d'un mouchetis. L'appariement entre points homologues matériels est réalisé de manière automatique en utilisant une technique de corrélation numérique [2].

Calcul du champ de déformation. Le champ de déformation est ensuite obtenu par dérivation discrète du champ de déplacement. La déformation au point de mesure est calculée à l'aide d'une intégrale de contour à partir de la moyenne du gradient de transformation sur un petit voisinage fonction du schéma d'intégration retenu.

Une description plus complète de la méthode de corrélation d'images 2D et de son expression analytique et numérique (en particulier dans CorrelManuV) est menée par Doumalin (2005).

C.6.3 Création du contraste local

En accord avec la résolution du matériel optique à disposition et la résolution spatiale [3] des mesures de déformations souhaitée (quelques centaines de μm), le

[2] L'appariement entre points homologues peut éventuellement être réalisé manuellement lorsque la qualité de l'image, l'insuffisance ou la variation trop importante entre deux configurations du contraste local rendent les algorithmes de corrélation inefficaces.

[3] distance entre 2 points de mesure.

marquage a été réalisé à l'aide d'un mouchetis de peinture pulvérisé sur la surface des éprouvettes. La peinture Pyromark series 2500 à base de silicone dédiée aux surfaces métalliques soumises à de fortes températures (jusqu'à environ 1100 °C) a été utilisée. En effet, d'après l'étude exploratoire de Goguel et al. (2005a), cette peinture résiste aux fortes températures sans trop s'écailler ou changer de couleur et sa souplesse permet une accommodation satisfaisante à la déformation du support.

Avant d'appliquer le mouchetis de peinture noire, une fine couche de peinture blanche uniforme – du même type que celle utilisée pour le mouchetis – a été déposée sur la surface de l'échantillon pour accentuer le contraste du marquage et réduire les reflets de lumière pouvant perturber la corrélation d'images. Cette technique a été employée pour les essais réalisés à température ambiante, pour lesquels les déformations de l'échantillon restent modérées. En revanche, un écaillage de la couche de peinture blanche a été observé pour les essais réalisés aux plus fortes températures, pour lesquels les déformations deviennent importantes localement. Cet écaillage est par ailleurs favorisé par le durcissement et par conséquent la fragilisation de la peinture au cours des essais réalisés en température. Ainsi, pour éviter cette perte d'adhérence, qui rend la corrélation d'images impossible, un mouchetis de peinture blanche a été directement appliqué sur les surfaces à analyser pour les essais conduits à 350 °C et 480 °C. Naturellement, dans cette configuration, le contraste du marquage est moins riche. Néanmoins, celui-ci reste suffisant, d'autant plus que la surface des échantillons hydrurés est recouverte d'une couche d'oxyde très fine dont l'aspect est plus sombre et plus mat que celui du matériau d'origine et qu'une très légère oxydation des zones non recouvertes de peinture entre les taches a été constatée sur le matériau non hydruré pour les essais réalisés en température.

La sous–couche et le mouchetis de peinture ont été déposés à l'aide d'un aérographe. En pratique, pour que le marquage soit bien résolu, chaque tache de mouchetis doit recouvrir de 3 à 5 pixels. La distance entre la buse et l'objet, la pression d'air, la taille de la buse et le temps d'application ont été optimisés afin de réaliser un mouchetis homogène et suffisamment fin pour autoriser une bonne résolution spatiale de la mesure des déformations. Les dimensions caractéristiques des taches de mouchetis obtenues, qui recouvrent environ 50% de la surface à analyser, valent en moyenne 40 μm, celles des plus grosses taches avoisinnant 200 μm (Figure C.4).

C.6.4 Matériel optique et acquisition des images

Les champs de déformations des éprouvettes PST ont été déterminés à différents instants du chargement jusqu'à rupture par corrélation d'image *in-situ*. Une caméra analogique couleur 8 bits (256 couleurs) CFM400 a été utilisée pour filmer les essais. Elle intègre un zoom optique $\times 18$ et affiche une vitesse d'obturation (temps d'acquisition par pixel) de 1/3 s à 1/10000 s permettant une fréquence maximale d'acquisition de 25 images par seconde. La taille des images est de 768×576 pixels. Pour améliorer la luminosité, un éclairage annulaire par fibres optiques (lumière blanche) a été placé autour de l'objectif de la caméra. Les images ont été acquises à l'aide d'un magnétoscope DV puis numérisées et converties en niveaux de gris. Les

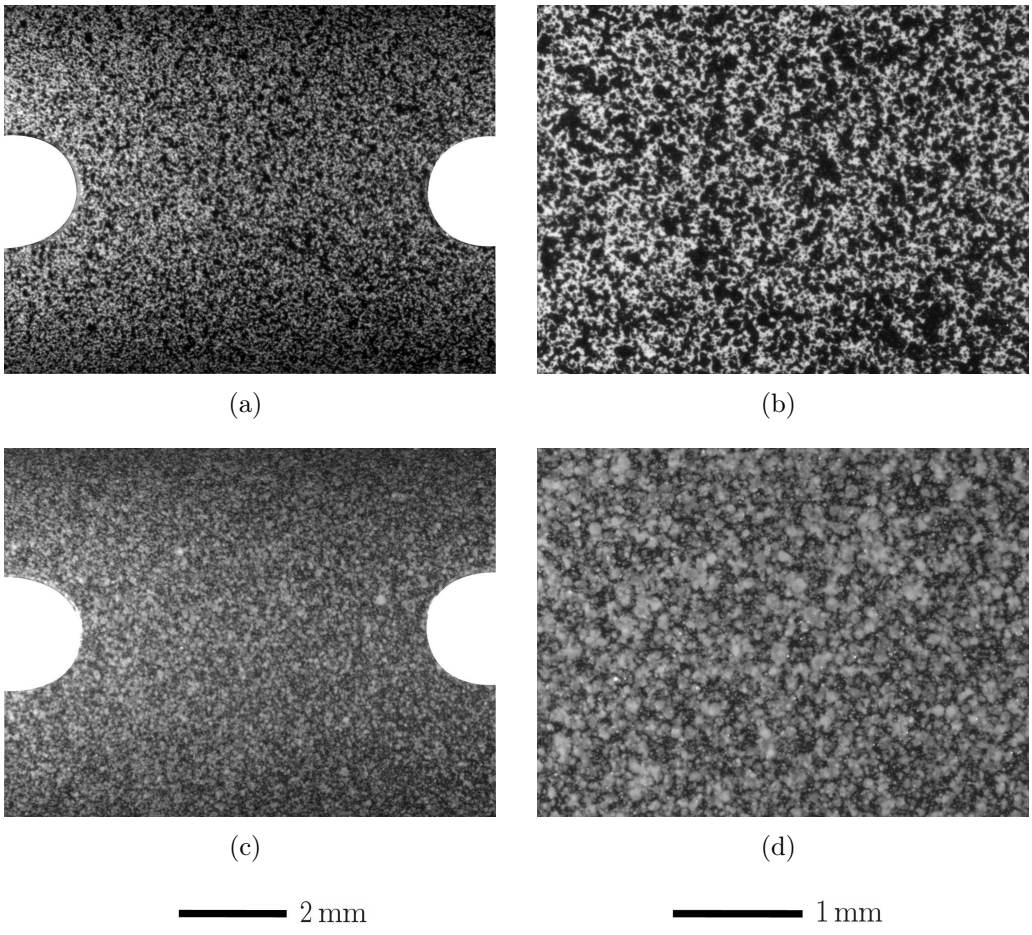


Figure C.4 – Eprouvettes PST avec mouchetis (a), (b) noir sur fond blanc pour les essais réalisés à température ambiante et (c), (d) blanc directement sur la surface à analyser pour les essais réalisés à 350 °C et 480 °C.

images couvrent une zone d'environ $10.7 \times 8.1\,\mathrm{mm}^2$. La résolution (taille des pixels) est donc d'environ $14\,\mu$m, soit 0.071 pixels/μm. La taille des zones analysées est d'environ $6 \times 2.5\,\mathrm{mm}^2$.

Les champs de déformation à rupture de ces éprouvettes ont par ailleurs été mesurés *post-mortem* en comparant les images du coté rompu des éprouvettes prises à l'aide d'une loupe binoculaire (éclairage par fibres optiques en lumière blanche) à celles prises avant essai à l'aide du même dispositif imageur. Le macrographe utilisé offre une résolution de 1596×1196 pixels. Les images couvrent une zone d'environ $9.1 \times 6.8\,\mathrm{mm}^2$. La résolution est d'environ $5.7\,\mu$m, soit 0.175 pixels/μm. La taille des zones analysées est d'environ $7.8 \times 3.5\,\mathrm{mm}^2$.

L'éclairage et l'ouverture du diaphragme de la caméra et du macrographe ont été ajustés afin d'optimiser la qualité des images pour la corrélation. On rappellera notamment que la profondeur de champ, qui doit être suffisante dans notre cas dans la mesure où les surfaces analysées sont bombées, augmente lorsque le diaphragme se ferme. Par ailleurs, afin d'exploiter le maximum de la dynamique des images (quantité de niveaux de gris effectifs), l'histogramme des niveaux de gris doit être le plus large possible sans saturation.

C.6.5 Paramètres de corrélation

La taille des domaines de corrélation a été choisie de manière à obtenir, en accord avec les dimensions du marquage, un compromis satisfaisant entre l'incertitude des mesures et la résolution spatiale. En effet, un grand domaine assure une incertitude plus faible sur le gradient de transformation (le nombre de points voisins utilisés pour le calcul des déformations est plus important) mais dégrade le caractère local de la mesure. Du fait de la convection forcée dans le four qui engendre un écoulement d'air, un flou variable a été constaté sur les images prises durant les essais réalisés à 350 °C et 480 °C. Les résultats obtenus par corrélation d'images incluent donc un déplacement parasite lié à ce phénomène. Par ailleurs, le contraste des surfaces analysées est plus faible pour les essais réalisés en température (mouchetis blanc directement sur le métal) que pour les essais conduits à température ambiante (mouchetis noir sur fond blanc). Afin de conserver une précision satisfaisante, des domaines de corrélation de taille plus importante ont été définis pour les essais réalisés en température (tableau C.1).

Parce qu'il est symétrique et offre un bon compromis entre précision et localité du résultat, un schéma d'intégration pour lequel le voisinage est délimité par la position des 8 premiers voisins (schéma d'intégration 2 de CorrelManuV) a été utilisé. L'hypothèse de déformation isochore est retenue pour le calcul de la composante hors–plan de la déformation.

Tableau C.1 – Paramètres et caractéristiques de la corrélation d'images pour les essais PST.

Température (°C)	25	350	480
Corrélation in-situ *(1 pixel = 14 μm)*			
Taille du domaine de corrélation, a (pixels)	14×14	25×25	30×30
Résolution spatiale (μm)	392	700	840
Résolution de la mesure des déplacements, σ_u (pixels)	0.1	0.3	0.4
Résolution de la mesure des déformations, σ_F (%)	0.4	0.6	0.7
Corrélation post-mortem *(1 pixel = 5.7μm)*			
Taille du domaine de corrélation, a (pixels)	40×40	45×45	45×45
Résolution spatiale (μm)	456	513	513
Résolution de la mesure des déplacements, σ_u (pixels)	0.3	0.3	0.3
Résolution de la mesure des déformations, σ_F (%)	0.7	0.7	0.7

C.6.6 Incertitudes sur les mesures de déformations

La technique de corrélation d'images est basée sur l'hypothèse de conservation du flot optique (intensité lumineuse de l'objet conservée au cours du mouvement). Les erreurs sur les mesures locales de déplacement dépendent de la qualité du marquage, du dispositif imageur (bruit de la caméra, ...) et des défauts géométriques (distorsions optiques, variations de grandissement, ...). Les mouvements de corps rigides dans le plan d'observation n'ont *a priori* pas d'incidence sur les mesures de déformations (mesures relatives) attendues dans le cadre de la présente étude. En revanche, les mouvements hors–plans sont susceptibles d'introduire une perte de mise au point voire une modification de l'éclairage pouvant générer des erreurs de mesure. Afin d'estimer l'erreur réalisée sur la mesure des déplacements et des déformations, la méthode proposée par Doumalin (2005) et utilisée par exemple par Racine (2005) et Moulart (2007) a été appliquée. Cette démarche consiste à traiter – en appliquant une procédure identique à celle utilisée pour l'essai mécanique – des images enregistrées successivement sur la configuration non déformée puis des images obtenues après application d'un mouvement rigide plan équivalent au déplacement qui serait observé au cours d'un essai réel. Dans notre cas, les mouvements rigides ont été appliqués avant chaque essai par mouvement de la caméra horizontalement puis verticalement, c'est–à–dire respectivement selon les direction X et Y des images.

Incertitude sur les mesures de déformations globales. Pour chaque essai et pour chacun des 3 tests effectués (absence de transformation, translation selon X et translation selon Y), la moyenne de la translation locale, son écart–type et les écarts maximaux par rapport à la moyenne ont été calculés à l'aide de CorrelManuV. Ces données permettent d'« évaluer la précision de mesure à partir de l'analyse d'un mouvement de translation pure » (mode d'emploi de

CorrelManuV).

L'écart–type de la différence entre le déplacement mesuré et celui qui serait associé à une transformation homogène d'intensité la déformation moyenne ont également été déterminés. Ceci permet d'« évaluer la précision de mesure à partir de l'analyse d'un mouvement de translation pure lorsque celui-ci est perturbé par un mouvement hors plan ou de rotation rigide » (mode d'emploi de CorrelManuV).

Incertitude sur les mesures de déformations locales. La résolution sur la mesure des déformations locales a été évaluée de deux manières :

1. Pour le schéma d'intégration 2 de CorrelManuV, la précision sur chaque composante du gradient de transformation locale $\underline{\mathbf{F}}$ peut être évaluée d'après Doumalin (2005) par :

$$\sigma_F = \frac{\sqrt{3}\sigma_u}{4a} \tag{C.3}$$

   où σ_u est la précision en pixels de la mesure de déplacement calculée à partir des analyses en translation pure et en déformation homogène décrite précédemment et a est la taille du domaine de corrélation en pixels. Cette grandeur fournit un minorant de la résolution sur la mesure des déplacements.

2. Par ailleurs, les incertitudes à l'échelle locale ont été analysées à partir des fonctions de distribution des composantes de la déformation locale. L'écart-type représente un minorant sur la mesure des déformations. On notera que les déformations sont relativement homogènes, les plus fortes hétérogénéités se situant au niveau des bords du domaine de corrélation où la netteté de l'image et l'éclairage sont moins optimaux. L'incertitude sur la mesure des déplacements peut ensuite être déduite de l'équation C.3.

Les résolutions sur les mesures des déplacements et des déformations obtenues pour les corrélations d'images *in-situ* et *post-mortem* sont proches (tableau C.1). Les valeurs des incertitudes obtenues étant des minorants, on peut raisonnablement considérer que la résolution sur la mesure des déformations est d'environ ± 0.01.

Annexe D

Analyse des essais de caractérisation mécanique

Après une analyse critique des principaux essais de caractérisation mécanique des gaines des crayons combustibles recensés dans la littérature, cette annexe fournit des informations complémentaires sur l'interprétation des essais réalisés durant cette thèse.

D.1 Etat de l'art

D.1.1 Rappels

L'évaluation des risques de rupture des gaines en situation de type RIA requiert l'élaboration de modèles prédictifs et donc une connaissance approfondie du comportement mécanique du matériau qui les constitue. Pour cela, il est nécessaire de disposer d'essais mécaniques « analytiques » de laboratoire appropriés.

Pour permettre l'étude des propriétés des gaines irradiées en enceintes blindées, ces essais doivent répondre aux spécificités suivantes :

- quantité de matière réduite pour réduire les coûts et optimiser l'activité (le matériau irradié est rare et extrêmement cher) ;
- opérations de préparation des échantillons (dépastillage, usinage, ...) limitées ;
- montage et instrumentation relativement simples ;
- réalisation des essais aisée.

Le comportement mécanique et la rupture du matériau étant sensibles au conditions de sollicitations thermomécaniques, il est indispensable de réaliser les essais dans des domaines représentatifs de ceux rencontrés lors du transitoire RIA :

- température : entre 300 °C et 600 °C environ lors de la phase de PCMI et supérieure à 800 °C lors de la phase post–DNB ;
- vitesse de chauffage : environ 100 °C.s^{-1} ;
- vitesse de déformation circonférentielle : entre 0.1 et 1 s^{-1} ;

– état de contraintes et de déformations : entre une traction plane selon la direction circonférentielle et une traction équibiaxiale selon les directions circonférentielle et axiale ;
– mode de rupture : propagation axiale d'une fissure traversante.

Du fait de la géométrie tubulaire du matériau étudié, la conception de dispositifs adaptés n'est pas aisée ; les éprouvettes utilisées ne sont généralement pas normalisées.

D.1.2 Caractérisation des propriétés axiales

Il existe plusieurs géométries pour caractériser les propriétés mécaniques des tubes de gainage selon leur direction axiale :

– La plus ancienne est un tronçon de tube renforcé au niveau de ses extrémités par des pièces intérieures de façon à pouvoir le soumettre à un chargement de traction par l'intermédiaire de deux embouts serrants (swage–locks) (figure D.1) (Durocher and Cauvin, 1986; Limon et al., 1994a; Berat-Robert et al., 2000; Schäffler, 1997; Geyer, 1999; Schäffler et al., 2000; Yagnik et al., 2005). Les difficultés de serrage des swage–locks et de définition d'une longueur utile rendent l'interprétation des essais délicate en l'absence d'extensométrie.

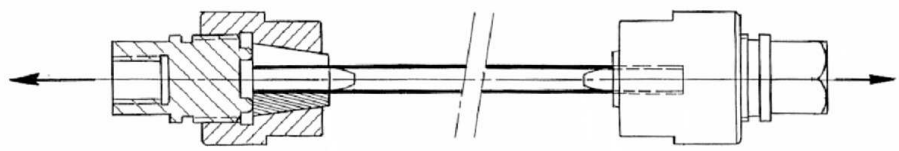


Figure D.1 – Eprouvette tubulaire avec amarrages swage–locks (Berat-Robert et al., 2000).

– Un peu plus tard, pour pallier les défauts de l'éprouvette avec amarrages swage–locks, une éprouvette usinée dite « bi–languettes », contenant deux zones calibrées, a été mise au point (figure D.2) (Durocher and Cauvin, 1986; Limon et al., 1994b; Balourdet et al., 1999; Daum et al., 2002c; Desquines et al., 2005b; Cazalis et al., 2007). C'est ce type de géométrie qui est utilisé au CEA/SEMI dans le cadre du programme PROMETRA notamment. Une technique de chauffage par effet Joule a été développée pour atteindre des vitesses de chauffe d'au moins $100\,^{\circ}\mathrm{C.s}^{-1}$ (Balourdet et al., 1999).
– Une éprouvette usinée ne comprenant qu'une zone utile a récemment été utilisée (Yagnik et al., 2005; Hsu, 2006; Lee et al., 2007). Cette géométrie est proche d'une demie éprouvette « bi–languettes ».

D.1.3 Caractérisation des propriétés circonférentielles

Plusieurs dispositifs sont utilisés pour caractériser les propriétés mécaniques des tubes de gainage selon la direction circonférentielle :

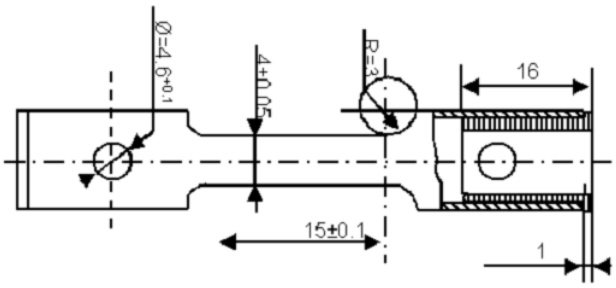


Figure D.2 – Eprouvette « bi–languettes » (Desquines et al., 2005b).

– La première approche consistait à solliciter une éprouvette annulaire pleine (tronçon de tube sans zone utile) en écartant deux mandrins demi–cylindriques autour desquels elle était préalablement insérée (figure D.3) (Durocher and Cauvin, 1986; Lee et al., 2001; Hong et al., 2002; Racine, 2005; Racine et al., 2005; Desquines et al., 2005b; Cazalis et al., 2007). L'inconvénient majeur de cet essai est la difficulté d'évaluation de la longueur utile.

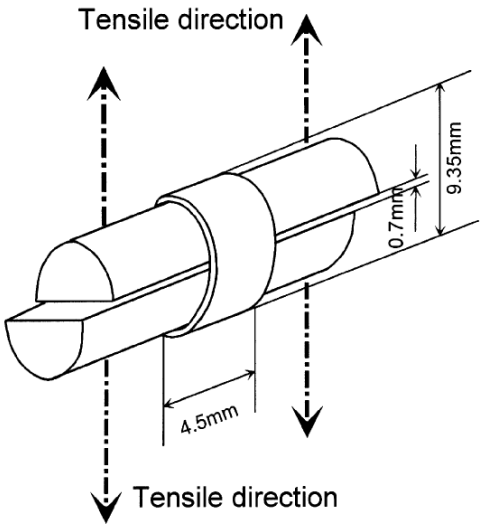


Figure D.3 – Anneau plein (Hong et al., 2002).

– Des anneaux usinés présentant deux zones utiles ont ensuite été mis au point (figure D.4) (Balourdet et al., 1999; Bates et al., 2000; Yvon et al., 2001; Daum et al., 2002c; Kim et al., 2005; Desquines et al., 2005b; Cazalis et al., 2007). L'éprouvette est sollicitée en écartant deux mandrins demi–cylindriques autour desquels elle est préalablement insérée. Les zones utiles sont placées perpendiculairement à la direction de sollicitation. Des vitesses de chauffage de 200 °C.s^{-1} ont pu être atteintes à l'aide d'une technique de chauffage par induction développée dans le cadre du programme PROMETRA (Yvon et al., 2001).
– Une pièce en forme d'« os de chien » (dogbone) est parfois insérée entre les

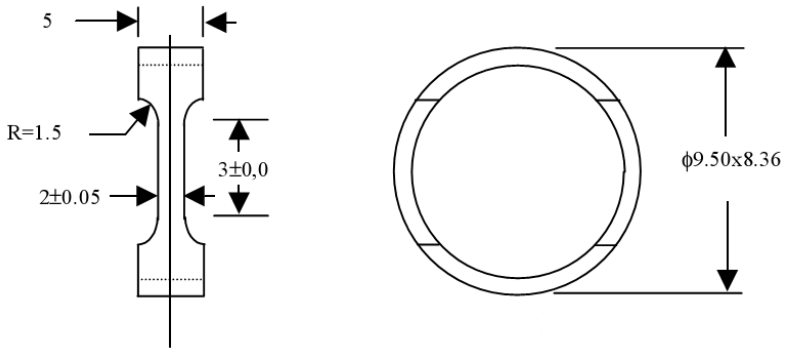


Figure D.4 – Anneau usiné (Desquines et al., 2005b).

deux zones calibrées de l'éprouvette pour supprimer la flexion des zones utiles (figure D.5) (Arsène, 1997; Arsène and Bai, 1998; Arsène et al., 2003a; Kim et al., 2006; Seok et al., 2006; Kim et al., 2007a; Bae et al., 2008). Des calculs par éléments finis réalisés dans le cadre de cette thèse ont confirmé le fait que les efforts mesurés et les champs de déformations sont fortement influencés par le frottement entre l'éprouvette et le dogbone. Le dogbone est généralement recouvert de Teflon pour minimiser les effets du frottement. Dans ce cas, les essais ne peuvent être réalisés au-delà de 300 °C environ. Par ailleurs, l'interprétation des essais est relativement complexe ; elle requiert une analyse par éléments finis. Comme l'ont confirmé les simulations réalisées durant cette thèse, la détermination des efforts réellement transmis à l'anneau nécessite l'évaluation des efforts de réaction exercés par le dogbone sur l'éprouvette. Il est également nécessaire d'estimer la longueur utile de l'éprouvette, qui n'est pas égale à la longueur calibrée

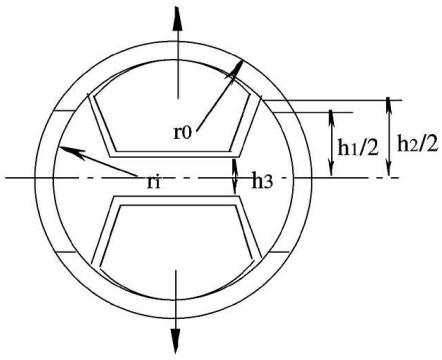


Figure D.5 – Anneau usiné avec dogbone (Arsène et al., 2003a).

– Très récemment, un anneau usiné ne comprenant qu'une zone utile alignée avec l'axe de sollicitation a été proposé (Sugiyama et al., 2005). Les mandrins sont recouverts de Teflon pour réduire l'influence du frottement. La température d'exploitation de l'essai est donc limitée à environ 300 °C. Comme l'ont révélé des calculs par éléments finis réalisés durant cette thèse, les efforts réellement

transmis à l'unique zone utile ne sont pas égaux aux efforts mesurés durant les essais. En outre, il est difficile de déterminer le déplacement et la zone utile à considérer pour calculer la déformation.

– Des essais de pressurisation interne avec reprise de l'effet de fond ont par ailleurs été réalisés (Schäffler, 1997; Geyer, 1999; Schäffler et al., 2000; Legrand et al., 2002). Contrairement aux essais de traction sur anneaux, ces essais ne souffrent d'aucun effet structural. On notera que la machine utilisée pour réaliser ce type d'essais permet, en combinant une sollicitation de traction/compression et de pression interne, de solliciter les échantillons de gaine sur l'ensemble du domaine de biaxialité selon les directions axiale et circonférentielle. La mise au point de ces essais est néanmoins difficile. En outre, ils nécessitent une grande quantité de matière et ne peuvent être réalisés au-delà de 400 °C (chargement par pressurisation d'huile haute température).

D.1.4 Caractérisation de la rupture lors d'un RIA

Le chargement mécanique et le mode de rupture générés lors des essais décrits précédemment ne sont pas représentatifs de ceux engendrés lors des RIA, particulièrement lors de la phase de PCMI. Des essais spécifiques ont alors été mis au point pour étudier la rupture des tubes de gainage dans des conditions plus représentatives.

– Un anneau large entaillé a été développé pour caractériser la rupture des gaines en conditions de traction plane selon leur direction circonférentielle (figure D.6) (Link et al., 1998; Bates et al., 2000; Yvon et al., 2001; Daum et al., 2002c; Desquines et al., 2005b; Cazalis et al., 2007). L'éprouvette est placée autour de deux mandrins demi–cylindriques. Le chargement est appliqué en écartant les mandrins. L'éprouvette est orientée de telle sorte que les encoches soient placées selon la direction de sollicitation. Grâce aux encoches, une condition de déformation plane est obtenue au centre de l'éprouvette. Le mode de rupture dans cette zone est similaire à celui observé lors de la phase de PCMI. Néanmoins, les déformations de l'éprouvette étant fortement hétérogènes, l'interprétation de ce type d'essais est délicate.

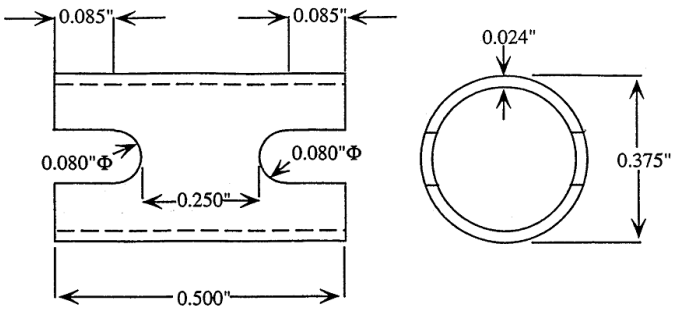


Figure D.6 – Anneau large entaillé (Link et al., 1998).

– Une éprouvette semi–tubulaire présentant deux encoches et une rainure en périphérie externe (localized ductility arc) a été mise au point pour étudier le comportement mécanique des gaines sollicitées selon leur direction circonférentielle en conditions de déformation plane (Wisner and Adamson, 1998). Plus tard, Yagnik et al. (2005) ont proposé une éprouvette assez similaire, sans encoches (slotted–arc test) (figure D.7). Lors de l'usinage de la rainure externe, des zones d'intérêt majeur, telles que des rims ou blisters d'hydrures, peuvent être retirées. Par ailleurs, la flexion importante de la zone utile de l'éprouvette rend l'interprétation de l'essai complexe.

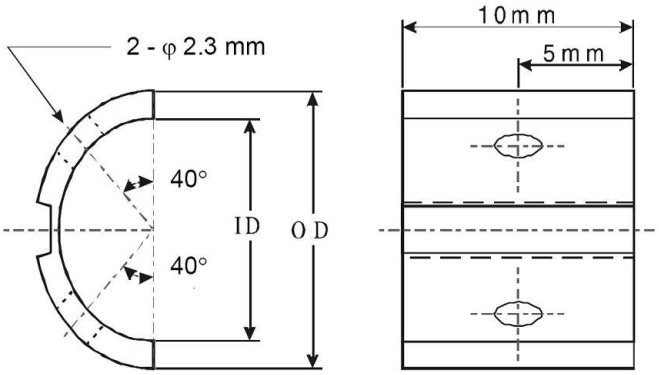


Figure D.7 – Slotted–arc test (Yagnik et al., 2005).

– Des essais d'emboutissage (punch tests en anglais) ont également été mis au point (figure D.8) (Yunchang and Koss, 1985; Glendening et al., 2005). L'essai consiste à déformer un échantillon entre une matrice et une contre matrice au moyen d'un poinçon hémisphérique. L'échantillon est soumis à un chargement de traction équibiaxiale, représentatif du chargement le plus contraignant rencontré lors de la phase de PCMI d'un RIA. Toutefois, ces essais sont pour le moment réalisés sur des plaques et non des échantillons de tubes.

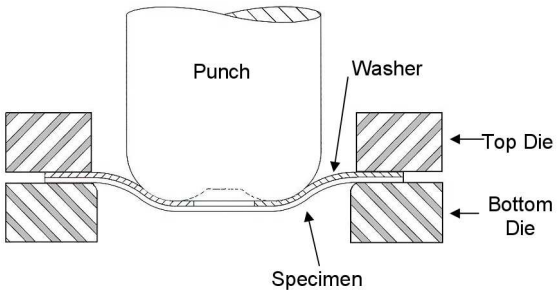


Figure D.8 – Essai d'emboutissage (Glendening et al., 2005).

– Des essais d'éclatement par pressurisation interne sans reprise de l'effet de fond ont par ailleurs été effectués (Hong et al., 2002; Nakatsuka et al., 2004; Nagase and Fuketa, 2005; Yagnik et al., 2005; Kim et al., 2007a, 2008). Ces essais

simulent correctement le chargement mécanique post–DNB du transitoire RIA. En revanche, ils ne sont pas adaptés à l'étude de la rupture des gaines lors de la phase de PCMI (chargement de type déplacement imposé). Ils requièrent par ailleurs une grande quantité de matière et ne peuvent être réalisés au–delà de 400 °C.

– Un essai d'électromagnétoformage a récemment été développé (figure D.9) (Leclercq et al., 2008). Les forces mécaniques provoquant la déformation de l'échantillon de tube sont générées par un champ magnétique. L'échantillon est placé à l'intérieur d'une matrice présentant une « fenêtre » elliptique dans laquelle il est libre de se déformer. La biaxialité des déformations dépend de la taille et de la forme de cette fenêtre. Cet essai permet d'atteindre des vitesses de déformation très élevées (plusieurs dizaines de s^{-1}) et un chargement proche d'une traction équibiaxiale. Son principal inconvénient est sa difficulté de mise en oeuvre, en particulier en enceinte blindée.

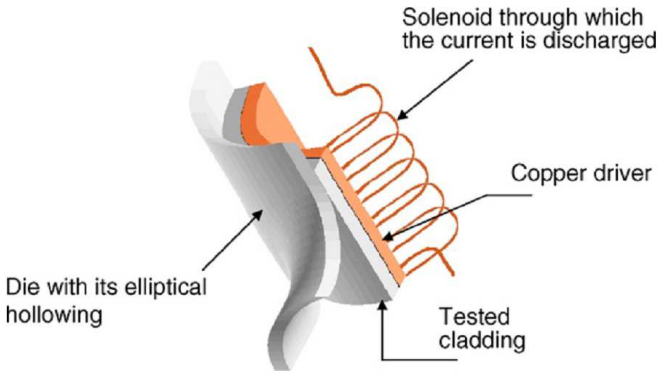


Figure D.9 – Essai d'électromagnétoformage (Leclercq et al., 2008).

– Un essai d'expansion due à la compression a été mis au point pour simuler la chargement par PCMI (figure D.5) (Grigoriev et al., 2001; Dufourneaud et al., 2002). L'essai consiste à comprimer axialement une pastille cylindrique placée à l'intérieur de l'échantillon de gaine. La déformation de l'éprouvette résulte de l'augmentation de diamètre de la pastille. Le mode de rupture de l'échantillon est identique à celui de la gaine lors de la phase de PCMI. En revanche, le chargement mécanique n'est pas réellement représentatif : la sollicitation est proche d'une traction uniaxiale selon la direction circonférentielle. Par ailleurs, les essais n'ont jusqu'à présent pas été conduits au–delà de 340 °C en raison de l'utilisation de Teflon pour les pastilles.
– Des essais de compression sur anneaux sont également utilisés, souvent pour la simplicité de leur mise en oeuvre, principalement dans le cadre des études portant sur la rupture des gaines en conditions d'APRP (figure D.11) (Hobson, 1973; Daum et al., 2006; Kim et al., 2007b). La paroi externe de l'éprouvette tubulaire est sollicitée en traction circonférentielle. L'usage montre que pour une longueur d'éprouvette suffisante (supérieure à 15 mm), un état de déformation plane est obtenu localement. La complexité des champs de déformations

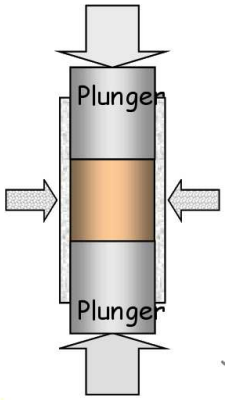


Figure D.10 – Essai d'expansion due à la compression (Grigoriev et al., 2001).

et de contraintes rend néanmoins l'interprétation de l'essai délicate.

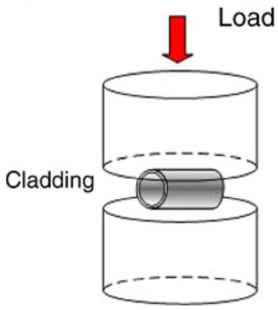


Figure D.11 – Essai de compression sur anneau (Kim et al., 2007b).

Les principales caractéristiques de ces essais, leur commodité pour l'étude des matériaux irradiés et leur représentativité vis–à–vis des conditions spécifiques au RIA sont résumées dans le tableau D.1. On remarquera qu'aucun essai ne réunit toutes les conditions requises.

D.2 Traction axiale

D.2.1 Eprouvette et dépouillement des essais

La géométrie de l'éprouvette de traction axiale utilisée durant cette thèse est identique à celle employée au CEA/SEMI dans le cadre du programme PROMETRA. Elle comporte deux zones utiles de 15 mm de long et 3 mm de large (figure B.1). Les extrémités de l'éprouvette sont renforcées par des bouchons cylindriques. Elles sont également percées pour permettre le passage des goupilles d'amarrage.

Tableau D.1 – Principaux essais de caractérisation des gaines des crayons combustibles : possibilité d'évaluation du comportement mécanique par analyse directe ; représentativité des essais, dans leur version actuelle, en termes de mode de rupture, température, T, vitesse de chauffage, $\dot{T}$, vitesse de déformation, $\dot{\epsilon}$ et biaxialité des déformations, $\epsilon_{zz}/\epsilon_{\theta\theta}$; quantité de matière requise ; facilité d'interprétation.

Essai	Comportement	Mode rupture	T	$\dot{T}$	$\dot{\epsilon}$	$\epsilon_{zz}/\epsilon_{\theta\theta}$	Quantité matière	Interprétation
Eprouvette tubulaire avec amarrages swage–locks	+	−	+	−	+	−	−	−
Eprouvette bi–languettes ou mono–languette	+	−	+	+	+	−	−	+
Anneau plein	+	−	+	+	+	−	+	−
Anneau usiné avec deux zones utiles	+	−	+	+	+	−	+	+
Anneau usiné avec deux zones utiles et dogbone	+	−	−	−	+	−	+	−
Anneau usiné avec une zone utile	+	−	−	−	+	−	+	−
Pressurisation interne	+	Post–DNB	−	−	+	+	−	+
Anneau large entaillé	−	+	+	−	+	+	+	−
Eprouvettes localized ductility arc ou slotted–arc	+	−	+	−	+	+	+	−
Emboutissage	−	+	+	−	+	+	Pas tube	+
Electromagnétoformage	−	+	−	−	+	+	+	−
Expansion due à la compression	−	+	−	−	+	−	+	+
Compression sur anneau	−	+	+	−	+	+	+	−

+ : Bon

− : Mauvais

Les essais sont réalisés à vitesse de déplacement de traverse imposée. La courbe force–déplacement traverse mesurée est dépouillée de la manière suivante :

- la déformation axiale conventionnelle est évaluée par le rapport entre le déplacement traverse mesuré et la longueur calibrée de l'éprouvette ;
- la déformation plastique axiale conventionnelle, e^p_{zz}, est déterminée à partir de cette déformation totale et de la pente élastique apparente évaluée par régression linéaire ;
- la contrainte axiale conventionnelle, S_{zz}, est calculée à partir du rapport effort mesuré/section initiale de la zone utile de l'éprouvette.

La déformation plastique rationnelle et la contrainte rationnelle sont respectivement déterminées par $\epsilon^p_{zz} = \ln(1 + e^p_{zz})$ et $\sigma_{zz} = S_{zz}(1 + e^p_{zz})$.

D.2.2 Analyse par éléments finis

Des calculs par éléments finis ont été réalisés à l'aide de Cast3M pour analyser le comportement de l'éprouvette durant les essais et contrôler la validité de l'interprétation qui en est généralement faite. Le modèle GPL, développé au CEA/SEMI (Goguel et al., 2005b; Poussard et al., 2006; Le Saux et al., 2007), a été utilisé pour décrire le comportement mécanique du matériau de gainage. Ce modèle représente les propriétés viscoplastiques anisotropes du Zircaloy–4 détendu vierge ou irradié pour des températures comprises entre 200 °C et 800 °C. Le maillage et les conditions aux limites du modèle EF sont décrits en section I.2. Les calculs ont été réalisés pour des températures comprises entre 200 °C et 800 °C, des vitesses de déformation comprises entre $0.01\,\mathrm{s}^{-1}$ et $5\,\mathrm{s}^{-1}$ et des fluences comprises entre $0\,\mathrm{n.m}^{-2}$ et $10^{26}\,\mathrm{n.m}^{-2}$.

Ces calculs ont confirmé que, quelles que soient les conditions étudiées, les champs de déformations et de contraintes sont relativement homogènes dans la zone utile de l'éprouvette (figure D.12). Afin d'évaluer les effets de structure ainsi que la pertinence des données extraites des essais, les courbes contrainte–déformation plastique calculées à partir des simulations EF ont été comparées aux courbes caractéristiques du comportement intrinsèque du matériau (calculs « point matériel »). La méthode appliquée pour interpréter les résultats des simulations est identique à celle qui est utilisée pour les essais réels.

L'erreur relative entre les contraintes globales déduites des calculs EF et les contraintes intrinsèques du matériau est négligeable : elle n'excède pas 3% pour la limite d'élasticité et 1% pour la contrainte maximale. L'écart relatif sur l'allongement réparti est plus important. Quelles que soient les conditions étudiées, l'allongement réparti déduit des simulations est supérieur à l'allongement réparti intrinsèque. L'écart relatif est croissant en fonction de la température : il est inférieur à 5% à 200 °C, vaut environ 15% à 500 °C et atteint 50% environ à 800 °C. Cette sur–estimation de l'allongement réparti peut être expliquée par une sous–estimation de la longueur utile. En effet, des déformations plastiques se développent, d'autant plus que la température est élevée, en dehors de la zone calibrée au niveau des

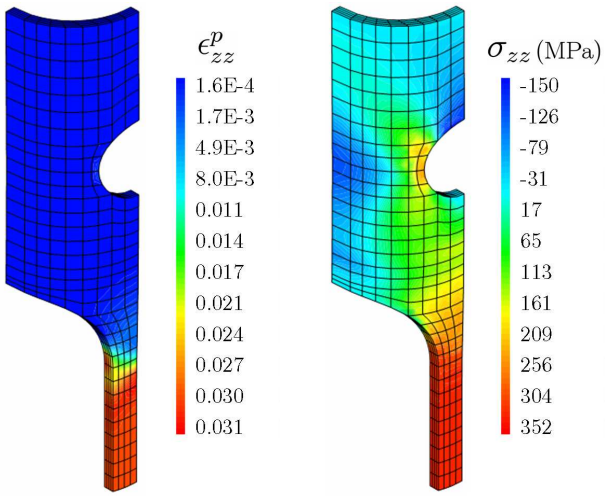


Figure D.12 – (a) Champ de déformation plastique et (c) champ de contrainte selon la direction axiale à l'initiation de la striction diffuse d'une éprouvette AT en Zircaloy–4 non irradié sollicitée à 480 °C et 0.01 s^{-1}.

congés de raccordement. Ce phénomène peut notamment être attribué à l'augmentation significative en fonction de la température du coefficient de sensibilité de la contrainte à la vitesse de déformation. Une sensibilité de la contrainte à la vitesse de déformation élevée tend à stabiliser la localisation de la déformation. Dans ce cas, la déformation de l'éprouvette est plus diffuse. La longueur utile réelle est donc légèrement supérieure à la longueur calibrée, qui est classiquement utilisée pour le calcul de la déformation globale à partir du déplacement de la traverse. Néanmoins, la sur–estimation de l'allongement est jugée acceptable, en particulier aux températures modérées, au regard des difficultés d'évaluation de l'allongement réparti du fait du faible écrouissage du matériau.

D.3 Traction circonférentielle

D.3.1 Eprouvette et dépouillement des essais

La géométrie de l'éprouvette retenue pour caractériser les propriétés mécaniques circonférentielles du matériau est celle qui est actuellement utilisée au CEA/SEMI dans le cadre du programme PROMETRA notamment. L'éprouvette se présente sous la forme d'un anneau de 5 mm de large comprenant deux zones utiles de 3 mm de long et 2 mm de large (figure B.2). L'éprouvette est sollicitée en écartant deux mandrins demi–cylindriques de 8.34 mm de diamètre autour desquels elle est préala-

blement insérée [1]. Les zones utiles sont placées perpendiculairement à la direction de sollicitation pour minimiser les effets néfastes du frottement entre la paroi interne de l'éprouvette et les mandrins. Les essais sont conduits à vitesse de déplacement traverse constante. La contrainte et la déformation plastique sont évaluées à partir de la courbe force–déplacement traverse en utilisant la méthode décrite précédemment pour les essais de traction axiale (section D.2).

D.3.2 Influence des dilatations thermiques

Les mandrins utilisés pour les essais HT sont en Inconel 718, alliage Ni–Cr–Fe retenu pour sa haute résistance mécanique à haute température. L'Iconel 718 et le Zircaloy–4 présentent des coefficients de dilatation thermique très différents. Par conséquent, lorsque les essais sont réalisés en température, le jeu initial entre l'anneau et les mandrins est différent du jeu mesuré à température ambiante. Il est important, pour correctement interpréter les essais, de connaître l'évolution du jeu entre l'anneau et les mandrins en fonction de la température. La température est supposée homogène dans tout le dispositif. En l'absence de contraintes extérieures, le diamètre interne D_{ai} de l'anneau soumis à une température T peut être évalué par :

$$D_{ai} = D_{ai0} + (\alpha_\theta D_{am0} - \alpha_r e_{a0})(T - T_{ref}) \tag{D.1}$$

où D_{ai0}, D_{am0} et e_{a0} sont respectivement le diamètre interne, le diamètre moyen et l'épaisseur de l'éprouvette à la température de référence $T_{ref} = 25\,^\circ\mathrm{C}$, à laquelle les déformations d'origine thermique sont nulles. $\alpha_r = 5.62 \cdot 10^{-6} + 4.38 \cdot 10^{-9} T$ et $\alpha_\theta = 5.41 \cdot 10^{-6} + 2.19 \cdot 10^{-9} T$ (valeurs valables pour des températures comprises entre 300 K et 1120 K) sont les coefficients de dilatation thermique selon les directions radiale et circonférentielle de l'anneau (Limon et al., 1996). Le diamètre externe, D_{me}, des mandrins libres de se déformer sous l'effet de la température est exprimé par :

$$D_{me} = D_{me0} + \alpha_m D_{me0}(T - T_{ref}) \tag{D.2}$$

où D_{me0} est la valeur du diamètre externe des mandrins à température ambiante et $\alpha_m = 5.805220 \cdot 10^{-14} T^3 - 9.860805 \cdot 10^{-11} T^2 + 5.935004 \cdot 10^{-8} T + 2.057392 \cdot 10^{-6}$ (expression valable pour des températures comprises entre 30 K et 1140 K) est le coefficient de dilatation thermique de l'Inconel 718 (logiciel Material Property Database (MPDB) développé par JAHM Software, Inc. [2]).

La variation théorique du jeu, en l'absence de contact, entre la paroi interne de l'anneau et la paroi externe des mandrins vaut :

$$\Delta g = (D_{me} - D_{me0}) - (D_{ai} - D_{ai0}) \tag{D.3}$$

[1] Afin de minorer la flexion des longueurs utiles au cours du chargement, les demi-cylindriques sont conçus de telle sorte que le jeu initial entre l'éprouvette et les mandrins n'excède pas 30 μm. Ainsi, la mise en place de l'éprouvette et la fermeture du jeu s'effectue dans le domaine de déformation élastique.

[2] `http://www.jahm.com`

Concrètement, cela signifie que si la valeur du jeu initial entre l'anneau et les mandrins est inférieure à Δg à la température considérée, l'échantillon est sollicité mécaniquement avant même la réalisation de l'essai, par le seul fait de soumettre le dispositif à la température de consigne.

La déformation mécanique circonférentielle de l'anneau imposée par le différentiel de dilatation thermique de l'anneau et des mandrins vaut (hypothèse des petites perturbations) :

$$\epsilon_{\theta\theta} = \frac{\langle D_{me} - D_{ai} \rangle}{D_{ai0}} \tag{D.4}$$

où la fonction $\langle . \rangle$ est telle que $\langle x \rangle = 0$ si $x \leq 0$ et $\langle x \rangle = x$ sinon. Dans la mesure où l'essai de traction sur anneau n'est pas dédié à l'étude des propriétés élastiques du matériau, cette déformation mécanique au cours du chauffage n'est pas problématique tant qu'elle ne conduit pas à la plastification de l'éprouvette. En considérant de manière conservative une vitesse de chauffage de $0.2\,°C.s^{-1}$ (chauffage four), la vitesse de déformation de l'éprouvette est estimée à $10^{-6}\,s^{-1}$. La limite d'élasticité du matériau selon la direction circonférentielle peut être évaluée, à cette vitesse de déformation pour chacune des températures considérées, à l'aide du modèle proposé au chapitre 2. Connaissant le module d'Young du matériau, la déformation correspondant à la limite d'élasticité est aisément calculée. Il est finalement possible d'appréhender la plastification ou non de l'éprouvette portée à la température de l'essai en comparant cette valeur à celle de la déformation évaluée à l'aide de l'équation D.4.

La figure D.13 représente l'évolution, en fonction de la température de l'essai, de la variation du jeu entre l'anneau et les mandrins (équation D.3) et la variation, pour différents jeux initiaux, des déformations mécaniques totale et plastique liées à la différence des déformations d'origine thermique de l'éprouvette et des mandrins.

On constate que pour un jeu initial de $20\,\mu m$ (jeu obtenu avec le montage utilisé dans le cadre de cette thèse), l'éprouvette ne plastifie que pour des températures d'essai supérieures à $500\,°C$ environ. Les essais HT réalisés durant cette thèse jusqu'à $480\,°C$ (chapitre 3) sont donc valides, d'autant plus que les données exposées sont conservatives.

D.3.3 Comparaison avec des essais de traction circonférentielle pure

Une analyse expérimentale des essais de traction sur anneaux a été réalisée en complément à l'analyse EF menée en section 2.4. La méthode employée consiste à comparer les résultats d'essais de traction sur anneaux à des résultats obtenus en traction circonférentielle pure. Les essais de traction circonférentielle pure avaient été réalisés en 2002 sur la machine de traction biaxée du CEA/SRMA en soumettant un échantillon de gaine à un chargement de pression interne, combiné à une traction axiale pour reprendre les effets de fond (Legrand et al., 2002). Les effets structuraux sont minimes durant ces essais. Les données qui en sont extraites sont donc supposées

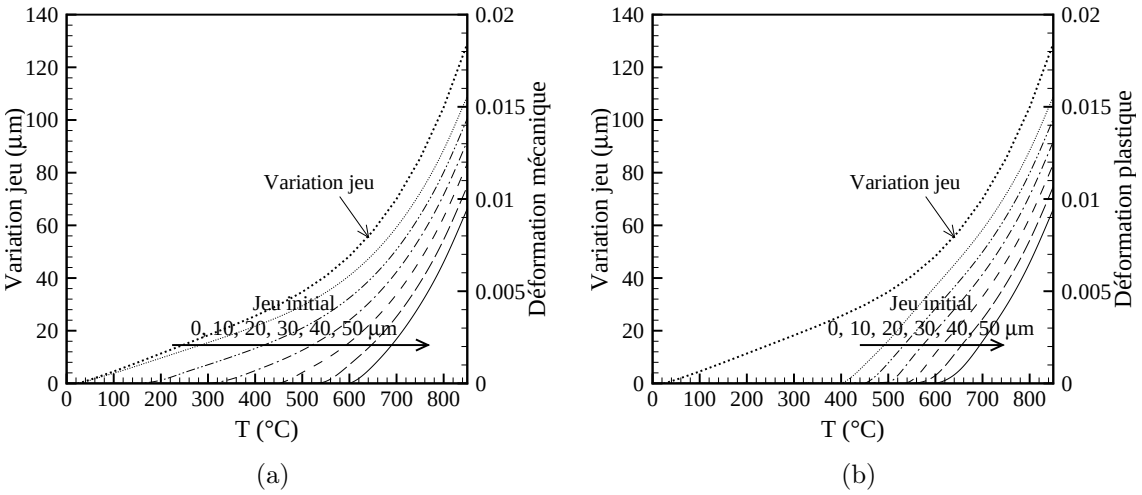


Figure D.13 – Evolution, en fonction de la température, de la variation du jeu initial entre l'éprouvette et les mandrins et, pour différents jeux initiaux, de (a) la déformation mécanique totale et (b) la déformation plastique, causées par la différence de dilatation thermique de l'éprouvette et des mandrins ($D_{ai0} = 8.36\,\text{mm}$, $e_{a0} = 0.57\,\text{mm}$).

être intrinsèques au matériau. Les essais de traction sur anneaux ont été conduits à partir de tronçons de tube, qui nous ont été transmis par le CEA/SRMA, issus du même lot de matière que celui utilisé pour les essais de traction circonférentielle pure. Ces essais ont été réalisés dans des conditions de chargement identiques, à savoir pour des températures de 25 °C et 350 °C et une vitesse de déformation circonférentielle de $2 \cdot 10^{-4}\,\text{s}^{-1}$.

Dans le cas des essais de traction circonférentielle pure, la déformation circonférentielle moyenne conventionnelle vaut $\Delta D_e/D_m$, où D_e et D_m sont respectivement les diamètres externe et moyen initiaux du tube. La contrainte circonférentielle moyenne conventionnelle est obtenue par $PD_m/2t - P/2$ (Limon, 2001), où P est la pression interne et t est l'épaisseur initiale de l'échantillon. La déformation plastique conventionnelle est déterminée à partir de la déformation totale et de la pente élastique apparente des courbes contrainte–déformation. Malheureusement, les essais de traction circonférentielle pure n'ont été conduits qu'à des déformations plastiques circonférentielles inférieures à 0.012 environ. L'analyse suivante ne concerne donc que les faibles niveaux de déformation plastique. Il n'est en particulier pas possible de conclure quant à la validité de l'allongement réparti déduit des essais de traction sur éprouvettes annulaires.

La figure D.14 représente les courbes contrainte–déformation plastique obtenues pour chacun des essais. L'accord entre les résultats des essais de traction sur anneaux et de traction circonférentielle pure est tout à fait satisfaisant à température ambiante. En particulier, à partir de 0.2% de déformation plastique environ, les contraintes intrinsèques du matériau ne sont sur–estimées que de moins de 3%. En

revanche, à 350 °C, cette sur–estimation atteint près de 10% quel que soit le niveau de déformation plastique. Ce constat est toutefois à nuancer dans la mesure où l'on ne dispose que d'un seul essai de traction circonfentielle pure à cette température.

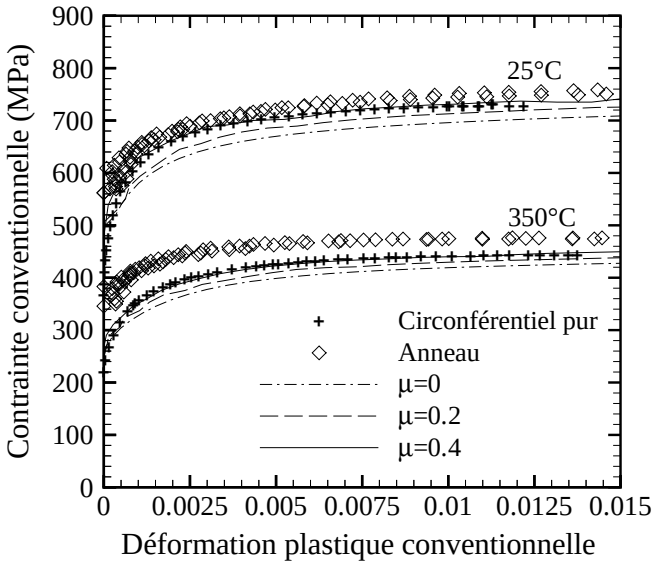


Figure D.14 – Courbes contrainte–déformation plastique conventionnelles à 25 °C et 350 °C déduites des essais de traction circonférentielle pure, des essais de traction sur anneaux et, pour différents coefficients de frottement μ, des simulations EF des essais de traction sur anneaux (vitesse de déformation de $2 \cdot 10^{-4}\,\mathrm{s}^{-1}$).

Des calculs EF des essais de traction sur anneaux ont été réalisés pour valider les simulations, évaluer le frottement entre l'anneau et les mandrins et tenter d'expliquer l'écart observé à 350 °C entre les résultats de traction circonférentielle pure et de traction sur anneaux. Le modèle utilisé pour décrire le comportement mécanique du matériau se base sur le formalisme de viscoplasticité anisotrope proposé au chapitre 2. La vitesse de déformation plastique équivalente s'écrit :

$$\dot{p} = \dot{p}_0 \left(\frac{\sigma_H}{KL(p)} \right)^{1/m} \tag{D.5}$$

avec $L(p) = (p + 1 \cdot 10^{-4})^{n_0} \exp(-\alpha_n p) + (p + 1 \cdot 10^{-4})^{n_\infty} (1 - \exp(-\alpha_n p))$. Certains paramètres du modèle ont été réajustés, pour chacune des températures, pour reproduire plus fidèlement les courbes contrainte–déformation déduites des essais de traction circonférentielle pure. Les paramètres d'anisotropie et de sensibilité de la contrainte à la vitesse de déformation du modèle identifié au chapitre 2 ont été conservés. Les valeurs des paramètres réajustés sont regroupées dans le tableau D.2.

On constate, conformément aux résultats de la section 2.4, que, pour une même déformation plastique globale, le niveau de contrainte déduit des calculs EF augmente avec le coefficient de frottement entre l'anneau et les mandrins. Pour un coefficient de frottement de 0.4, la simulation reproduit correctement les résultats

Tableau D.2 – Paramètres des modèles de comportement utilisés pour la simulations des essais de traction sur anneaux à 25 °C et 350 °C.

T (°C)	K	n_0	n_∞	α_n	m	H_{rr}	$H_{\theta\theta}$	H_{zz}
25	$1.022 \cdot 10^9$	0.0894	0.05	1590	0.0129	0.580	0.420	0.409
350	$0.6777 \cdot 10^9$	0.0998	0.05	903	0.0172	0.568	0.432	0.522

des essais de traction sur anneau à température ambiante. En revanche, à 350 °C, quel que soit le niveau de déformation, les contraintes sont sous–estimées par la simulation, même pour un coefficient de frottement de 0.4. Cet écart n'est pour le moment pas expliqué. On rappellera toutefois qu'un seul essai de traction circonfentielle pure a été réalisé à 350 °C (tout comme à 25 °C d'ailleurs). Il est donc possible que la courbe contrainte–déformation plastique déduite de cet essai, et par conséquent la loi de comportement établie à partir de celle–ci, ne reflètent pas parfaitement le comportement mécanique du matériau. On notera par ailleurs que la courbe calculée à 350 °C avec un coefficient de frottement de 0.4 est très proche de celle déduite des essais de traction circonférentielle pure.

D.4 Expansion due à la compression

D.4.1 Principe et montage

L'essai d'Expansion Due à la Compression (EDC) consiste à solliciter un échantillon de tube de gainage par l'intermédiaire d'une pastille cylindrique placée à l'intérieur de l'éprouvette et comprimée axialement entre deux pistons (figure D.15). Sous l'effet de l'augmentation du diamètre de la pastille au cours de l'essai, l'échantillon est sollicité en traction, essentiellement circonférentielle.

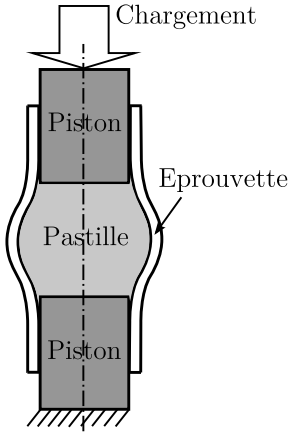


Figure D.15 – Schéma de principe de l'essai d'expansion due à la compression.

Un montage inversé a été mis au point pour garantir un bon alignement de

l'éprouvette et de l'axe de traction/compression. Le piston supérieur est relié à la traverse mobile de la machine de traction tandis que le piston inférieur est fixe[3]. Il a été choisi de ne pas faire reposer l'éprouvette sur un éventuel appui inférieur. Ainsi, le plan de déformation maximale de l'éprouvette, libre de glisser le long des pistons, reste identique tout au long de l'essai. Pour maintenir l'éprouvette en position avant essai, une légère précharge est appliquée afin de fermer le jeu entre la pastille et l'éprouvette.

L'effort et le déplacement de la traverse sont mesurés durant les essais, conduits à vitesse de déplacement traverse constante. Le mode de rupture des éprouvettes est représentatif de celui des gaines lors de la phase de PCMI des RIA (figure D.16).

(a) (b)

Figure D.16 – Eprouvettes de 30 mm de long rompues après des essais EDC réalisés à température ambiante à 1.5 mm/s : (a) échantillon en Zircaloy–4 non hydruré et pastille en aluminium ; (b) échantillon en Zircaloy–4 hydruré à 800 ppm et pastille en Teflon.

D.4.2 Extension du domaine de température d'exploitation

La température d'exploitation de l'essai était jusqu'à présent limitée à 340 °C en raison de l'utilisation de Teflon pour la pastille. Cette température représente la borne inférieure du domaine de température attendu lors d'un RIA. Dans la mesure où la ductilité du matériau dépend fortement de la température, il est important de pouvoir réaliser les essais à des températures appropriées. La méthode proposée pour étendre le domaine de température d'exploitation de l'essai consiste tout simplement à adapter le matériau de la pastille selon la température de l'essai. Le matériau constitutif de la pastille doit être peu résistant et très ductile, tout en restant à l'état solide à la température considérée. Comme nous le verrons plus loin, il est également préférable que le coefficient de frottement de la pastille soit le plus faible

[3]Des essais préliminaires ont été réalisés avec un piston inférieur dont la base présentait une articulation rotulée avec le reste montage. Ce dispositif permet *a priori* de rectifier les éventuels défauts d'alignement. Cependant, l'expérience a montré que ce dispositif ne remplit pas systématiquement son rôle : il a été constaté que la rotation libre du piston inférieur rendait le montage plus sensible aux éventuelles excentricités de l'axe du tube par rapport à l'axe de compression.

possible. Les matériaux suivants ont été retenus selon la température d'exploitation T :

- $25\,°C \leq T \leq 300\,°C$: Teflon (type PTFE, fusion à environ 330 °C) ;
- $300\,°C \leq T \leq 600\,°C$: Aluminium (nuance 1050, fusion à environ 660 °C) ;
- $600\,°C \leq T \leq 900\,°C$: Cuivre (nuance Cu OF, fusion à environ 1080 °C) ;

Une première série d'essais a montré la faisabilité d'essais EDC jusqu'à 900 °C (Le Saux et al., 2007). Ces essais ont été réalisés à une vitesse de déplacement traverse de $0.4\,mm.s^{-1}$ sur des échantillons de gaine en Zircaloy–4 détendu vierge de 20 mm de long avec des pastilles de 15 mm de long. La vitesse de déformation circonférentielle du tube au niveau de son plan médian est évaluée à $0.02\,s^{-1}$ environ. Les essais ont été menés jusqu'à ce que les pistons soient séparés d'environ 1 mm.

Seuls les essais réalisés à température ambiante ont provoqué la rupture du matériau, en raison de sa ductilité élevée aux plus fortes températures. Afin d'atteindre des déformations plus importantes susceptibles de conduire à la rupture des éprouvettes même en température, les essais ultérieurs ont été réalisés avec des pastilles de 25 mm de long et des tubes de 30 mm de long. Cependant, dans cette configuration, il est apparu au début des essais réalisés avec des pastilles en aluminium et en cuivre, que la déformation maximale de l'échantillon de gaine était maximale sous les pistons et non au centre de l'éprouvette (figure D.17).

Figure D.17 – Eprouvette de 30 mm de long en Zircaloy–4 non hydruré au cours d'un essai EDC réalisé à température ambiante à l'aide d'une pastille en aluminium (vitesse de déplacement de $1.5\,mm.s^{-1}$).

Des calculs EF ont montré que ce phénomène est lié au frottement entre la pastille et l'éprouvette, plus important pour les pastilles en aluminium et en cuivre que pour les pastilles en Teflon ; cet effet est inexistant pour un coefficient de frottement nul. Ces deux « bosses » se rejoignent naturellement au fur et à mesure que les pistons se rapprochent, pour n'en former qu'une seule au centre de l'éprouvette en fin d'essai. Ce phénomène est logiquement réduit lorsque la longueur de la pastille et du tube diminue : il est quasi–inexistant dans le cas de tubes et de pastilles de 20 mm et 15 mm de long respectivement. Les tentatives mises en oeuvre pour éviter ce phénomène (lubrification à la graisse au graphite entre la pastille et le tube, rainures verticales remplies de graisse au graphite autour de la pastille, chanfreins aux extrémités de la pastille) se sont avérées peu concluantes. On notera que ce phénomène n'est pas réellement rédhibitoire lorsque le matériau rompt assez tardivement

durant l'essai : les déformations circonférentielles à rupture mesurées après des essais réalisés à température ambiante avec des pastilles en Teflon et en aluminium de 25 mm de long sur des échantillons de gaine vierges sont identiques.

Quoi qu'il en soit, malgré la longueur plus importante des pastilles, les éprouvettes n'ont pas rompues pour les essais conduits à partir de 350 °C. Nous nous sommes donc contentés, dans le cadre de cette thèse, de réaliser des essais à température ambiante.

D.4.3 Analyse par éléments finis

Un modèle par éléments finis a été développé pour analyser les modes de déformations de l'éprouvette durant les essais EDC. Le maillage et les conditions aux limites sont décrits en annexe I.4.1.

a) Propriétés mécaniques des pastilles

Les propriétés mécaniques des pastilles ont été évaluées à partir d'essais de compression réalisés aux différentes températures. La déformation de la pastille lors des essais de compression n'étant pas parfaitement homogène, une méthode d'identification inverse a été mise au point. Comme les essais de compression ont été réalisés à une vitesse de déplacement identique à celle des essais EDC, la sensibilité de la contrainte à la vitesse de déformation du matériau des pastilles n'est pas prise en compte. Le comportement élastoplastique, supposé isotrope, du matériau est représenté à l'aide du modèle de Ramberg–Osgood :

$$p = \left\langle \frac{\sigma - \sigma_y}{K} \right\rangle^{1/n} \tag{D.6}$$

où p est la déformation plastique cumulée, σ est la contrainte, σ_y est la limite d'élasticité et n est le coefficient d'écrouissage. La partie élastique est décrite à l'aide du module d'Young E et du coefficient de Poisson ν. Les paramètres du modèle ont été identifiés de telle sorte que les courbes force–déplacement expérimentales et simulées coïncident. Pour cela, l'algorithme d'optimisation de Levengerb–Marquardt disponible dans le logiciel de calcul numérique Matlab, qui a été couplé à Cast3M, a été utilisé. Une étude de sensibilité a montré que l'influence du coefficient de frottement entre le piston et la pastille est faible sur la réponse force–déplacement. Ce coefficient a ainsi été fixé arbitrairement à 0.05 dans le cas des pastilles en Teflon et à 0.2 pour les pastilles en aluminium et cuivre. Les valeurs ajustées des paramètres du modèle sont regroupées dans le tableau D.3. Des exemples de comparaison entre les courbes force–déplacement expérimentales et simulées sont représentées sur la figure D.18.

Chen and Chen (2000) ont proposé une méthode analytique pour évaluer, à partir de la courbe force–déplacement, la courbe contrainte–déformation d'un cylindre

Tableau D.3 – Paramètres du modèle décrivant le comportement élastoplastique des pastilles en Teflon, aluminium et cuivre (vitesse de déformation d'environ $0.025\,\mathrm{s}^{-1}$).

Matériau	Teflon		Aluminium			Cuivre		
T (°C)	25	300	300	480	600	600	800	900
E (GPa)	0.6	0.6	55	45	36	50	40	35
ν	0.474	0.474	0.33	0.33	0.33	0.345	0.345	0.345
σ_y (MPa)	8	0.42	7.47	3.06	1.62	9.39	3.86	4
K (MPa)	30	3.48	49.53	11.07	3.84	39.6	16.44	11
n	0.5	0.5	0.13	0.031	0.06	0.026	0.017	0.01

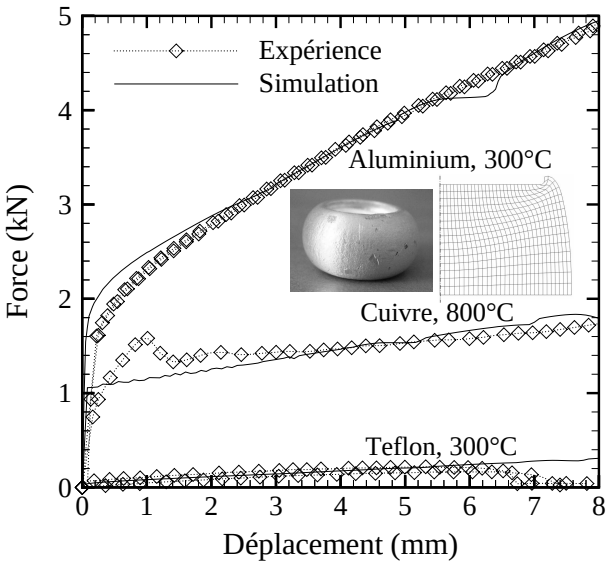


Figure D.18 – Réponses force–déplacement expérimentales et calculées de pastilles en Teflon, aluminium et cuivre comprimées à différentes températures (vitesse de déformation d'environ $0.025\,\mathrm{s}^{-1}$).

comprimé en présence de frottement à l'interface entre le cylindre et les pistons. En supposant que le volume du matériau est conservé au cours de l'essai, la déformation et la contrainte d'écoulement sont respectivement déterminées par :

$$\epsilon = \ln(L/L_0) \tag{D.7}$$

$$\sigma = F\left(S + \frac{2\pi R^3 \mu}{3\sqrt{3}L}\right)^{-1} \tag{D.8}$$

où L est la longueur de la pastille, L_0 est sa longueur initiale, F est l'effort, $S = V/L$ est la section moyenne du cylindre équivalent à l'éprouvette en forme de tonneau (du fait du frottement), V est le volume de la pastille, R est le rayon de la pastille et μ est le coefficient de frottement entre la pastille et les pistons. Comme l'illustre la figure D.19, les courbes contrainte–déformation obtenues à l'aide de cette méthode directe sont relativement proches de celles obtenues par identification inverse, du moins pour des déformations inférieures à 0.3 environ.

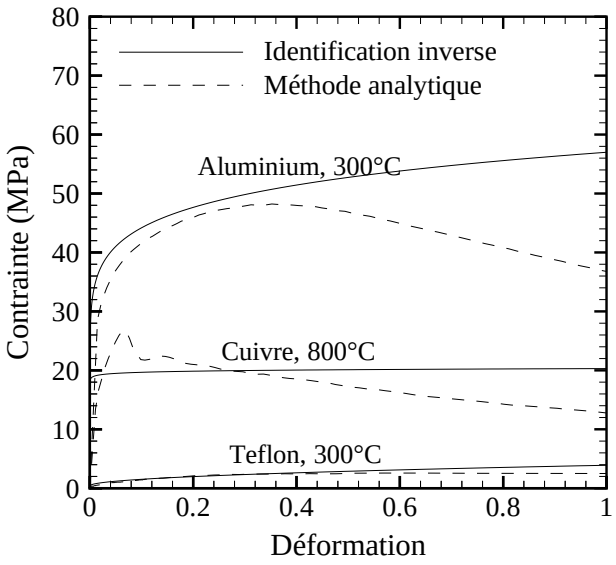


Figure D.19 – Exemples de courbes contrainte–déformation déterminées par identification inverse et par dépouillement direct des courbes force–déplacement (vitesse de déformation d'environ $0.025\,\mathrm{s}^{-1}$).

b) Identification des coefficients de frottement

Le modèle GPL, déjà exploité pour analyser les essais de traction axiale (section D.2), a été utilisé pour décrire le comportement mécanique des échantillons de gaine en Zircaloy–4. L'influence négligeable du coefficient de frottement entre le piston et le tube a été vérifiée. La figure D.20 illustre l'influence des coefficients de frottement entre le piston et le pastille, μ_{PiP}, et entre le tube et la pastille, μ_{TP}, sur la réponse force–déplacement et sur les déformations locales du tube.

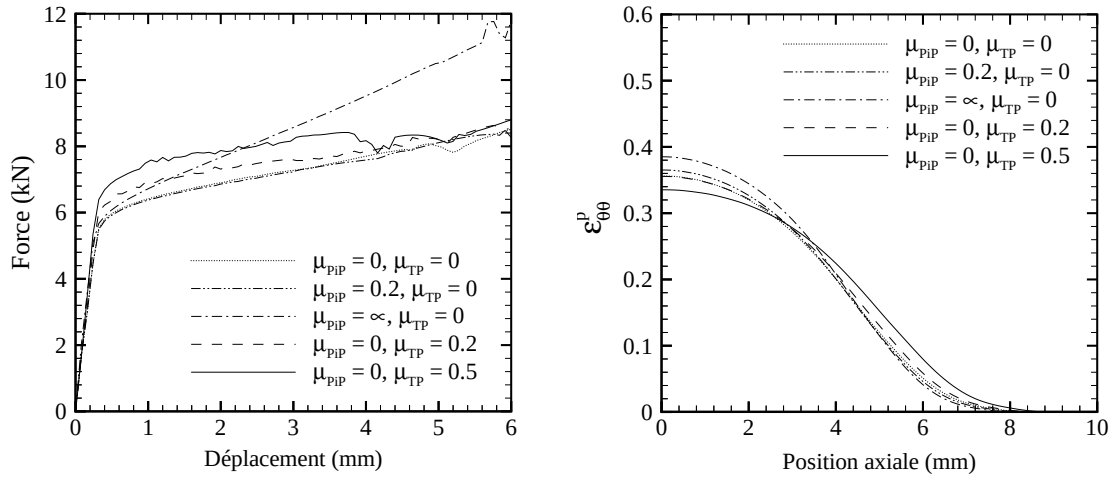


Figure D.20 – Influence des coefficients de frottement entre le piston et la pastille, μ_{PiP}, et entre le tube et la pastille, μ_{TP}, sur (a) la réponse force–déplacement et, pour un déplacement du piston de 8 mm, sur (b) la déformation plastique circonférentielle en paroi externe du tube ; essai EDC réalisé à 300 °C et 0.4 mm.s^{-1} avec une pastille en aluminium.

Lorsque le coefficient de frottement entre le piston et la pastille augmente, la déformation locale de la pastille au voisinage du piston est réduite et la localisation de la déformation circonférentielle du tube au voisinage du plan médian est légèrement accentuée. En revanche, son influence sur la réponse force–déplacement est négligeable, du moins pour des valeurs d'un ordre de grandeur physique (comprises entre 0 et 1). Une augmentation du coefficient de frottement entre le tube et la pastille conduit notamment, pour un même déplacement du piston, à une élévation de l'effort axial appliqué, une localisation de la déformation circonférentielle du tube moins prononcée et une contraction axiale du tube plus importante. L'influence de μ_{TP} sur la réponse force–déplacement piston et sur les champs de déformations et de contraintes dans le tube est nettement plus importante que celle de μ_{PiP}. On notera que l'influence de ces coefficients de frottement sur la distribution radiale des contraintes et des déformations dans le tube de gainage est faible. Dans la suite, afin de simplifier le problème, les coefficients de frottement μ_{TP} et μ_{PiP} sont supposés égaux ; l'influence de μ_{TP} est prépondérante.

En supposant que le comportement de l'échantillon tubulaire est correctement décrit par le modèle GPL, les coefficients μ_{TP} et μ_{PiP} ont été ajustés par méthode inverse pour chaque pastille aux différentes températures de façon à ce que la corrélation entre les courbes force–déplacement expérimentales et calculées soit satisfaisante. Les résultats sont regroupés dans le tableau D.4. Des exemples de comparaison entre la simulation et l'expérience sont illustrés sur la figure D.21.

Tableau D.4 – Valeurs identifiées des coefficients de frottement entre le piston et la pastille, μ_{PiP}, et le tube et la pastille, μ_{TP}, pour les pastilles en Teflon, aluminium et cuivre aux températures étudiées.

Matériau	Teflon		Aluminium			Cuivre		
T (°C)	25	300	300	480	600	600	800	900
$\mu_{TP} = \mu_{PiP}$	0.1	0.05	0.2	0.25	0.05	0.2	0.2	0.1

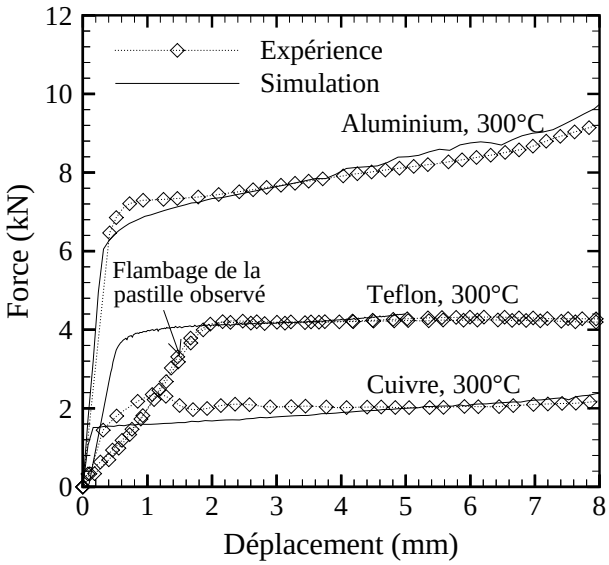


Figure D.21 – Exemples de courbes force–déplacement numériques et expérimentales ; essais EDC réalisés à une vitesse de déplacement traverse de $0.4\,\mathrm{mm.s^{-1}}$.

c) Modes de déformation

Le modèle EF ainsi identifié a été utilisé pour analyser les modes de déformation de l'éprouvette durant les essais. Comme l'illustre la figure D.22, les champs de déformations et de contraintes sont relativement homogènes au centre de l'éprouvette. L'éprouvette est soumise à un chargement très proche d'une traction uniaxiale selon la direction ciconférentielle. Cela a été confirmé par des mesures de variation de diamètre et d'épaisseur après essai : le rapport entre les déformations radiale et circonférentielle déduites de ces mesures est proche de -0.5. Tout au long de l'essai, la déformation est maximale au niveau du plan médian du tube. Un léger gradient des déformations plastiques circonférentielles est observé à travers l'épaisseur de la gaine, du fait du chargement en déplacement imposé : les déformations sont supérieures d'environ 15% en paroi interne. Une compression axiale de l'échantillon, légèrement plus importante en paroi interne (d'environ 15%) est observée.

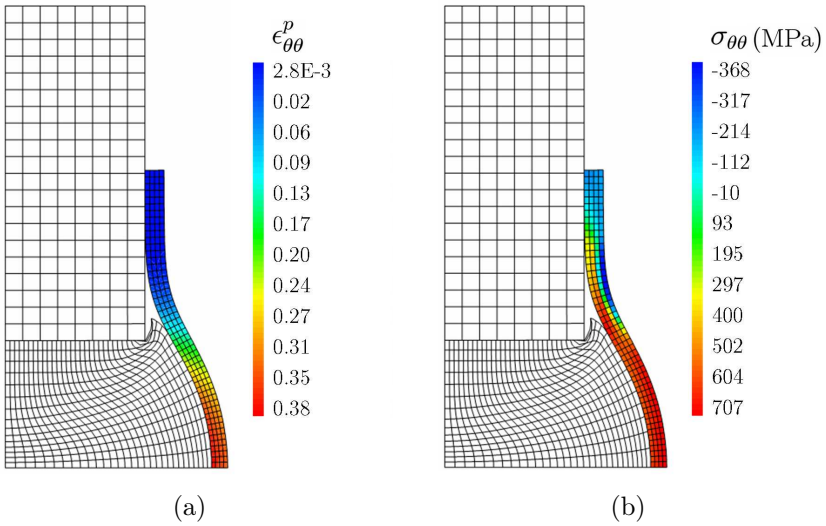


Figure D.22 – Isovaleurs des (a) déformations plastiques circonférentielles et (b) des contraintes circonférentielles dans l'échantillon de gaine pour un déplacement de piston de 7 mm ; essai EDC réalisé à 300 °C et 0.4 mm.s^{-1} avec une pastille en aluminium.

Après plastification, la contrainte circonférentielle est maximale en périphérie externe de la gaine. En cas de rupture fragile, la contrainte circonférentielle, qui représente la contrainte principale maximale, tiendrait probablement un rôle important, en particulier en présence de couches denses en hydrures (rims ou blisters d'hydrures) en périphérie externe.

Le modèle de Rice and Tracey (1969) a été utilisé en post–traitement des calculs EF pour examiner le lieu d'amorçage des fissures en cas de rupture ductile. Ce modèle décrit la croissance de cavités sphériques de rayon R dans une matrice rigide

parfaitement plastique. Le taux de croissance des cavités peut être évalué par :

$$\frac{\dot{R}}{R} = 0.283 \exp\left(\frac{3}{2}\frac{\sigma_m}{\sigma_{eq}}\right)\dot{\epsilon}^p \tag{D.9}$$

où σ_m est la contrainte moyenne, σ_{eq} est la contrainte équivalente et ϵ^p est la déformation plastique. σ_m/σ_{eq} représente le taux de triaxialité des contraintes. On a alors :

$$\frac{R}{R_0} = \exp\left(0.283 \int_0^{\epsilon^p} \exp\left(\frac{3}{2}\frac{\sigma_m}{\sigma_{eq}}\right) \mathrm{d}\epsilon^p\right) \tag{D.10}$$

où R_0 est le rayon initial des cavités. Il est important de noter que ce modèle ne décrit que la croissance des cavités et ne représente que très approximativement l'endommagement du matériau étudié. L'allure du champ R/R_0 est très proche de celle du champ de déformation plastique circonférentielle (figure D.22(a)). La croissance des cavités est maximale en paroi interne au niveau du plan médian du tube, où la déformation plastique est maximale. Les ruptures de type ductile s'amorcent donc probablement en périphérie interne médiane de l'éprouvette.

D.4.4 Développement d'un essai EDC biaxé

Lors d'un essai EDC, l'échantillon de gaine est soumis à un chargement de traction circonférentielle pure. Cette sollicitation n'est pas représentative de celle générée par PCMI lors d'un RIA qui, pour rappel, est comprise en une sollicitation de traction plane circonférentielle et sollicitation de traction équibiaxiale.

Un dispositif adapté au montage EDC classique a été développé pour atteindre un état de contraintes et de déformations plus proche de celui rencontré lors de la phase de PCMI. La méthode consiste à contrôler la déformation axiale de l'échantillon au cours de l'essai. Pour cela, des têtes sont soudées aux extrémités de l'éprouvette. Ces têtes sont reliées à un dispositif rigide qui empêche la contraction axiale de l'échantillon. Des bagues rigides, solidaires de ce dispositif, sont également placées autour des extrémités de l'éprouvette. Ainsi, l'éprouvette ne peut se déformer que dans la zone centrale de longueur l_F, appelée « fenêtre » dans la suite, laissée libre entre ces bagues. Ce principe est proche de celui récemment mis au point par Leclercq et al. (2008) pour l'essai d'électromagnétoformage. Le dispositif a été conçu de telle sorte que la préparation de l'éprouvette (soudage des têtes notamment) et l'assemblage des différents éléments du montage puissent être réalisés en cellules blindées pour application aux matériaux irradiés. Le montage est représenté sur la figure D.23.

Des simulations par éléments finis ont été réalisées pour vérifier l'efficacité de la méthode (figure D.24). Comme le montre la figure D.25, la déformation axiale de l'éprouvette, et par conséquent la biaxialité des déformations et des contraintes, dépend de la hauteur de la « fenêtre ».

D'après ces calculs, il est possible d'atteindre des biaxialités des déformations et des contraintes proches de celles attendues lors de la phase de PCMI des RIA. Pour des raisons de délai, nous n'avons malheureusement pas pu tester expérimentalement ce dispositif durant cette thèse.

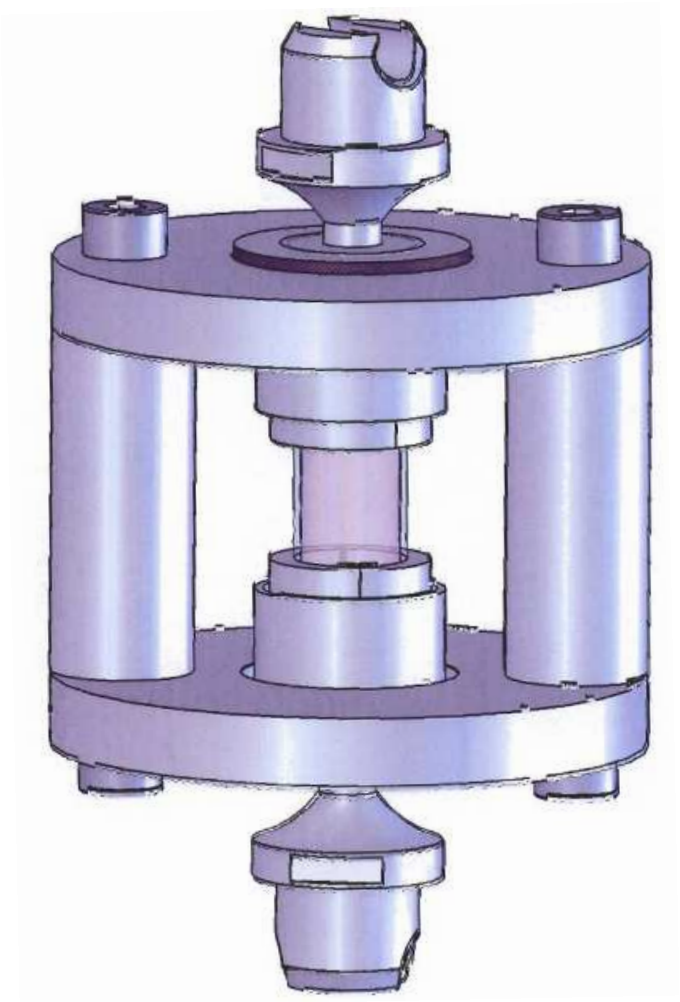


Figure D.23 – Dispositif mis au point pour « contrôler » la biaxialité des déformations de l'éprouvette lors des essais EDC.

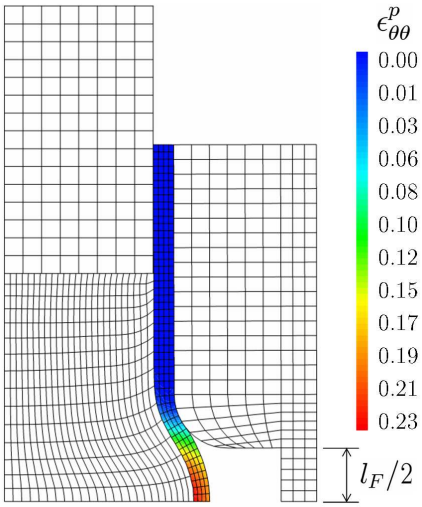


Figure D.24 – Isovaleurs des déformations plastiques circonférentielles. Simulation d'un essai EDC (300 °C, 0.4 mm.s^{-1}, pastille en aluminium) avec une version simplifiée du dispositif mis au point pour « contrôler » la biaxialité des déformations ; longueur de la fenêtre centrale, $l_F = 6$ mm.

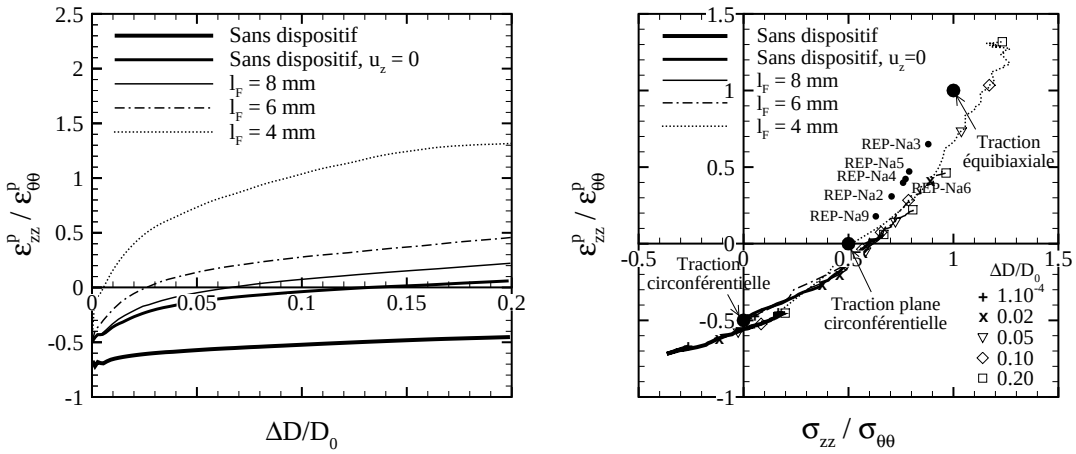


Figure D.25 – Evolution du rapport entre les déformations plastiques axiale et circonférentielle en fonction (a) de la déformation circonférentielle en paroi externe du tube au niveau de son plan médian et (b) du rapport entre les contraintes circonférentielle et axiale (les points caractéristiques des essais CABRI REP–Na sont également indiqués). Simulations d'essais EDC classiques, avec les extrémités du tube bloquées et avec différentes longueurs de la fenêtre centrale, l_F (300 °C, 0.4 mm.s^{-1}, pastille en aluminium, hypothèse de plasticité isotrope).

D.5 Traction plane circonférentielle

D.5.1 Géométrie

La géométrie, appelée PST [4] dans la suite, utilisée pour solliciter les échantillons de gaine en traction plane selon leur direction circonférentielle se présente sous la forme d'un anneau de 12 mm de long comportant deux zones utiles de 6.4 mm de long, chacune étant bordée de deux encoches de 2 mm de diamètre (figure B.4). L'éprouvette est sollicitée en écartant deux mandrins demi–cylindriques de 8.2 mm de diamètre. Les mandrins présentent en leurs extrémités des chanfreins de 0.2 mm. Cette géométrie permet de confiner les déformations plastiques en fond d'encoches et par conséquent de limiter les déformations axiales dans la région centrale de la zone utile. Contrairement à la configuration utilisée à l'université de Pennsylvania State (Link et al., 1998), les encoches sont orientées perpendiculairement à la direction de sollicitation afin de minimiser les effets du frottement entre la zone utile de l'éprouvette et les mandrins [5]. En effet, des essais, combinés avec des calculs par éléments finis, réalisés avec les encoches placées selon la direction de sollicitation ont mis en évidence une très forte sensibilité des déformations locales et de la rupture au frottement entre la paroi interne de l'éprouvette et les mandrins [6]. L'effort et le déplacement de la traverse sont mesurés durant les essais.

D.5.2 Modes de déformation

Les champs de déformation en paroi externe des éprouvettes PST ont été caractérisés au cours du chargement jusqu'à rupture par corrélation d'images *in–situ* (annexe C.6). La figure D.26 représente les champs de déformations de Green–Lagrange axiale et circonférentielle mesurées en début de plasticité globale, à l'instabilité globale (correspondant à l'effort maximal sur la réponse globale) et juste avant rupture d'une éprouvette PST non hydrurée testée à température ambiante. Le terme global fait référence aux informations extraites de la réponse force–déplacement.

Un programme Matlab a été développé pour extraire des fichiers issus de l'analyse CorrelManuV des distributions particulières – notamment distribution axiale au centre et aux extrémités de la zone utile et distribution circonférentielle au centre de la zone utile et près des encoches – des composantes de la déformation (figure D.27). L'état de déformation plane (déformation axiale négligeable) est vérifié sur plus d'1/3 de la largeur de la section réduite de l'éprouvette dans sa partie centrale (figures D.27(b) et D.27(d)). La zone de traction plane s'étend sur toute la longueur de la zone utile dans la direction circonférentielle (figure D.27(c)). A cause des effets de bord dus aux surfaces libres, la sollicitation est proche d'une traction uniaxiale dans la direction circonférentielle en dehors de la zone de traction plane (figure D.27(d)).

[4] Plane Strain Tension

[5] En contrepartie, la zone utile fléchie légèrement lorsque les mandrins s'écartent.

[6] Dans cette configuration, la rupture intervient, dans certains cas, en dehors de la zone utile.

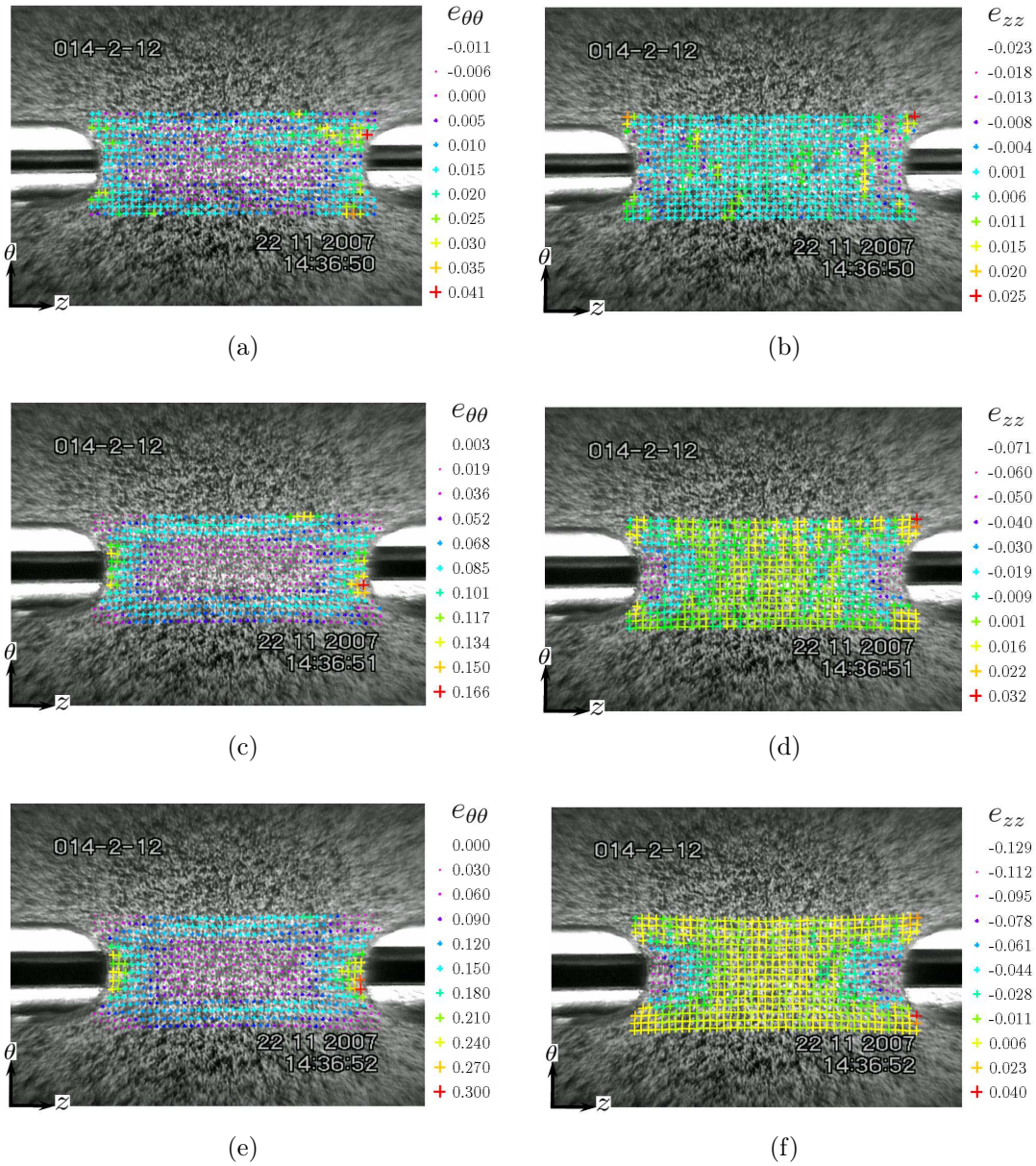


Figure D.26 – Champs des déformations circonférentielle $e_{\theta\theta}$ et axiale e_{zz} (a,b) en début de plasticité globale, (c,d) à l'instabilité globale et (e,f) juste avant rupture sur éprouvette PST non hydrurée testée à température ambiante.

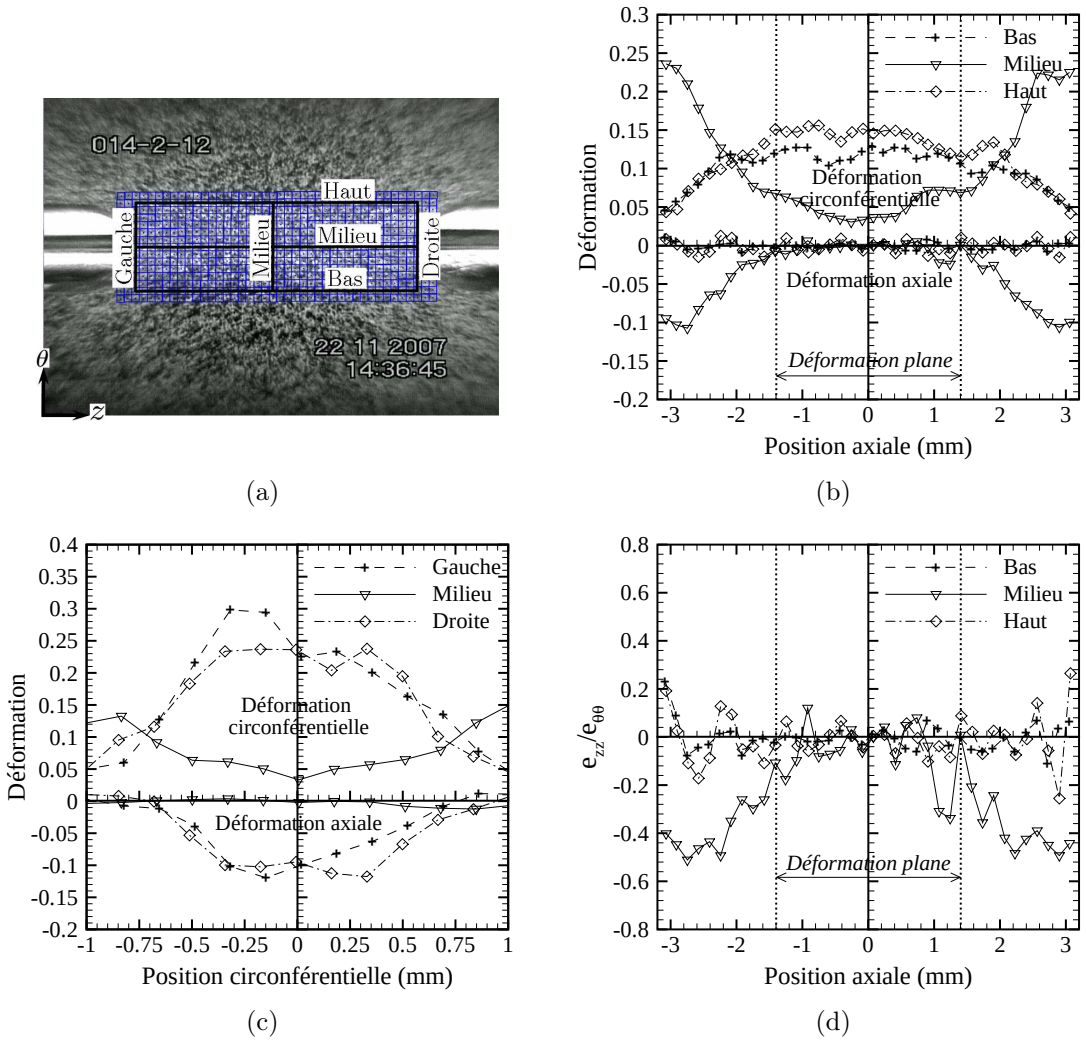


Figure D.27 – (a) Dénomination des distributions des déformations extraites de la corrélation d'images ; distributions (b) axiale et (c) circonférentielle des déformations axiale et circonférentielle et (d) distribution axiale du rapport des déformations axiale et circonférentielle juste avant rupture d'une éprouvette PST non hydrurée testée à température ambiante.

Des calculs par éléments finis ont également été réalisés pour analyser les champs de déformations et de contraintes dans toute l'éprouvette. On observe un très bon accord entre les résultats de DIC et les résultats de calculs EF (figure D.28).

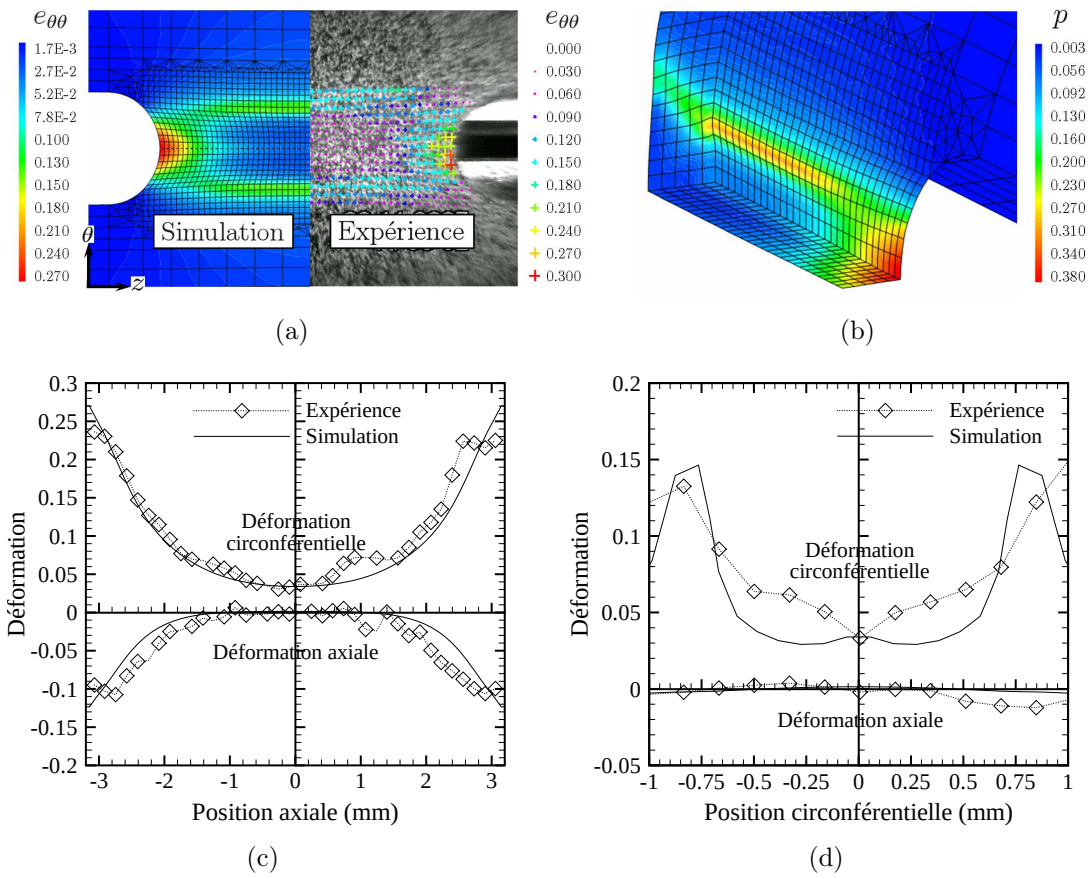


Figure D.28 – Comparaison des déformations mesurées par DIC et calculées par EF (sans endommagement) avant rupture d'une éprouvette PST non hydrurée testée à température ambiante : (a) champ de déformation circonférentielle de Green–Lagrange, (b) déformation plastique cumulée, (c) distribution axiale et (d) distribution circonférentielle des déformations axiale et circonférentielle au milieu de l'éprouvette.

Dans le domaine élastique global, du fait de la flexion, la paroi externe de la zone utile de l'éprouvette est sollicitée en compression circonférentielle. Dès l'entrée en plasticité globale, l'ensemble de la zone utile de l'éprouvette est soumis à un chargement de traction circonférentielle (figure D.26(a)). L'instabilité globale est associée à la formation de deux bandes de localisation de la déformation symétriques par rapport à l'axe de l'éprouvette et se rejoignant au fond des encoches, où la déformation circonférentielle est maximale (figure D.26(c)). Cette localisation de la déformation en paroi externe reflète le développement, favorisé par le chargement de traction plane, de bandes de cisaillement à travers l'épaisseur de l'éprouvette. L'observation des éprouvettes après essai et les calculs par éléments finis montrent

que le lieu d'amorçage de ces bandes en paroi interne est influencé par la concentration de déformations liée au contact entre l'éprouvette et les angles des mandrins. Les résultats de calculs EF indiquent que la déformation plastique maximale dans la zone de déformation plane est, quel que soit le niveau de chargement une fois la plasticité généralisée dans la zone utile, environ deux fois plus importante en paroi interne qu'en paroi externe (figure D.28(b)). L'intensité des bandes de localisation augmente au cours du chargement (figure D.26(e)) jusqu'à l'amorçage d'une fissure.

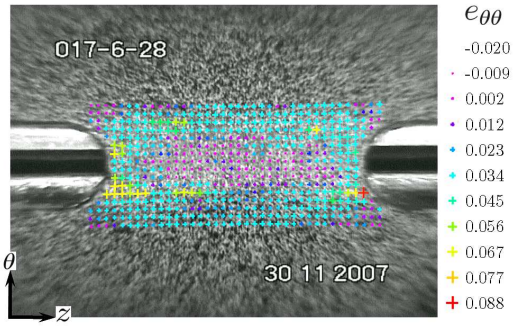
Les champs de déformations à rupture des éprouvettes PST ont également été mesurés par corrélation d'images *post–mortem* à l'aide d'images prises avant et après essai. On notera que la corrélation d'images *post–mortem* ne fournit que les déformations résiduelles tandis que les déformations calculées à l'aide de la corrélation *in–situ* incluent les déformations élastiques, qui sont néanmoins négligeables au moment de la rupture. La figure D.29 représente les champs de déformation circonférentielle obtenus par corrélation d'images *in–situ* juste avant rupture et corrélation *post–mortem* pour des essais PST réalisés dans différentes conditions. L'accord entre les déformations mesurées à l'aide des deux méthodes est satisfaisant.

D.5.3 Modes de rupture

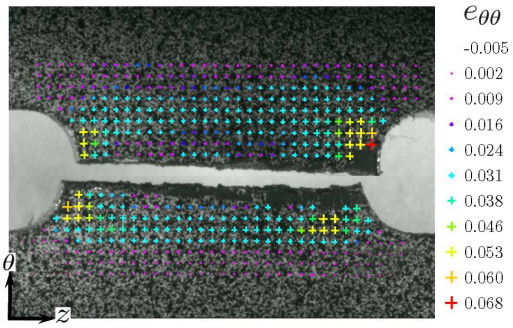
Lorsque le matériau est suffisamment ductile, la rupture intervient dans les bandes de localisation de la déformation (figures D.29(d) et D.29(f)). La fissure critique s'amorce en paroi interne dans la zone de déformation plane au niveau de l'une des zones de contact entre l'éprouvette et les extrémités des mors (figure D.30). Le modèle de Rice and Tracey (1969), déjà décrit en section D.4, utilisé en post–traitement de calculs par éléments finis, indique qu'au moment de la rupture, l'endommagement du matériau est plus important dans cette région. Il est important de souligner que le fait que la fissure s'amorce au niveau de l'une des zones de contact ne remet pas la validité des essais en cause. En effet, comme il est démontré dans la section D.5.4, le mode de rupture n'est pas altéré par cet « artefact », dont la principale conséquence est d'accélérer la localisation de la déformation [7] sans réellement en changer la nature. La fissure naissante se propage aisément à travers l'épaisseur de l'éprouvette à 45° de la direction radiale le long de la bande de cisaillement concernée. La fissure traversante croît ensuite selon la direction axiale de l'éprouvette. Lorsqu'elle s'approche des encoches (où le mode de déformation est proche d'une traction uniaxiale dans la direction circonférentielle), la fissure bifurque et se propage en biseau à 45° de la direction principale de chargement et débouche finalement au fond des encoches.

Lorsque le matériau est plus fragile, comme dans le cas du matériau hydruré testé à température ambiante, la surface de rupture est macroscopiquement plate (normale orientée perpendiculairement à la direction principale de chargement), avec éventuellement une petite zone en biseau (lèvre de cisaillement) sur les bords de la

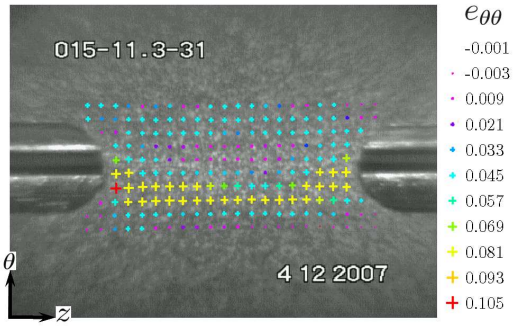
[7] Le déplacement des mandrins à appliquer pour atteindre une même déformation locale est plus faible en présence du phénomène de « poinçonnement ».



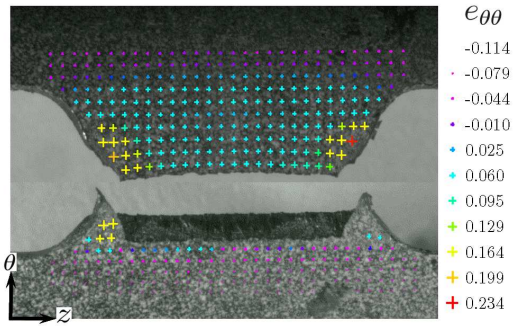
(a) 25 °C, 1200 ppm, *in–situ*



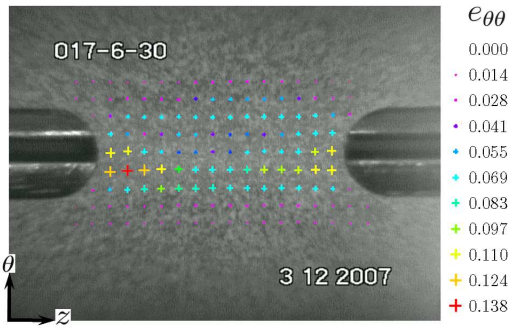
(b) 25 °C, 1200 ppm, *post–mortem*



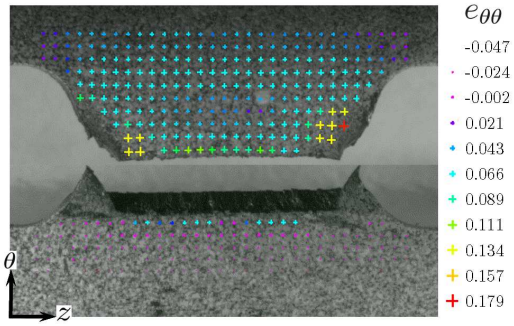
(c) 350 °C, 400 ppm, *in–situ*



(d) 350 °C, 400 ppm, *post–mortem*



(e) 480 °C, 1200 ppm, *in–situ*



(f) 480 °C, 1200 ppm, *post–mortem*

Figure D.29 – Champs des déformation circonférentielle mesurés par corrélation d'images *in–situ* juste avant rupture et corrélation *post–mortem* (a,b) pour une éprouvette PST hydrurée à 1200 ppm testée à température ambiante, (c,d) une éprouvette PST hydrurée à 400 ppm testée à 350 °C et (e,f) une éprouvette PST hydrurée à 1200 ppm testée à 480 °C.

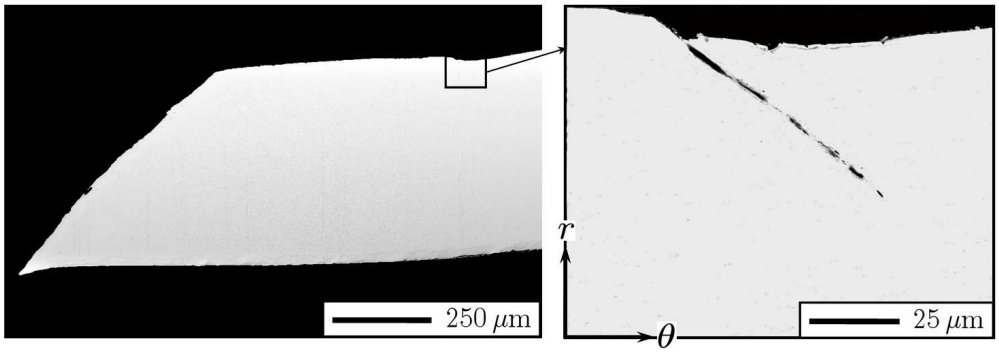


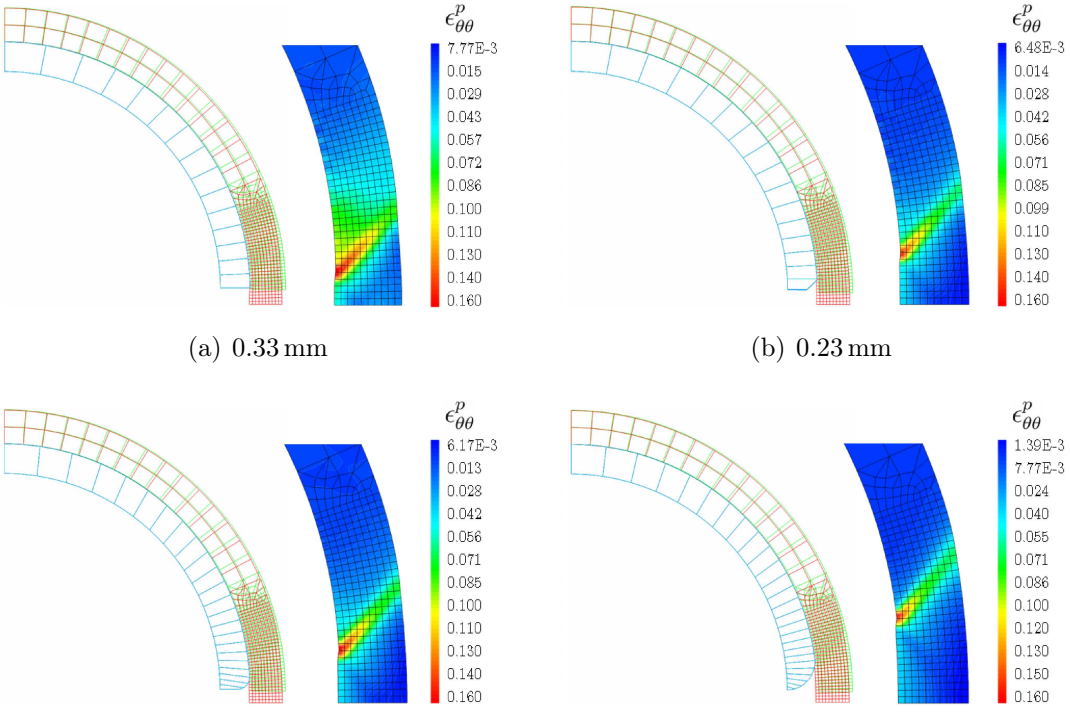
Figure D.30 – Fissure amorcée en paroi interne, dans la zone de déformation plane au niveau de l'une des zones de contact avec les extrémités des mors, d'une éprouvette PST hydrurée à 800 ppm testée à 350 °C.

surface de rupture au niveau des encoches (figure D.29(b)). La rupture étant extrêmement rapide, il est difficile de déterminer avec exactitude l'endroit où elle s'est amorcée. Néanmoins, des observations au MEB ont montré que l'endommagement du matériau hydruré est plus important au voisinage des encoches qu'au centre de l'éprouvette. Ces observations sont appuyées par le modèle de Rice et Tracey qui confirme qu'au moment de la rupture, le rayon des cavités est maximal en fond d'encoches. Il est donc probable que, dans ces conditions, la rupture ait été amorcée en fond d'encoches, où la triaxialité des contraintes et des déformations est minimale et les déformations plastiques et les contraintes maximales. Ainsi, il apparaît que la différence de triaxialité des contraintes entre le centre de l'éprouvette (environ $1/\sqrt{3}$) et le fond des encoches (environ $1/3$) n'est pas suffisante pour influencer de manière significative l'endommagement du matériau hydruré, qui est alors principalement contrôlé par la déformation plastique. La fissure est ensuite supposée se propager dans la zone de traction plane selon l'axe de l'éprouvette en dehors des bandes de localisation de la déformation qui, bien que naissantes, sont relativement diffuses et peu intenses au moment de la rupture.

D.5.4 Influence de la géométrie des mandrins

Pour étudier l'influence, sur le mode de rupture et les valeurs de déformations locales à rupture, du « poinçonnement » de l'éprouvette au niveau des extrémités des mandrins, différentes géométries de mandrins ont été comparées à l'aide de calculs EF : mandrins sans chanfrein ni arrondi, mandrins avec chanfreins et mandrins avec arrondis. Des simulations 3D ont montré que la zone centrale de l'éprouvette, en condition de déformation plane, est plus sensible à la forme des mandrins que la région proche des encoches (figure D.28(b)). Ainsi, les calculs EF ont été réalisés en 2D dans le plan (r,θ) de l'éprouvette avec une hypothèse de déformation plane.

Les résultats indiquent que, quelle que soit la géométrie, il y a formation d'une bande de la localisation de la déformation en cisaillement, initiée au niveau de l'extrémité des mandrins, à travers l'épaisseur de l'éprouvette (figure D.31). Par ailleurs,



(a) 0.33 mm (b) 0.23 mm

(c) 0.24 mm (d) 0.19 mm

Figure D.31 – Configurations initiale (vert) et déformée (rouge) de l'éprouvette et champ de déformation plastique circonférentielle pour des essais PST réalisés avec (a) mandrins sans chanfrein ni arrondi, (b) mandrins avec chanfreins de 0.2 mm et mandrins avec arrondis de (c) 0.2 mm et (c) 0.5 mm de diamètre ; pour chaque configuration, le déplacement plastique global conduisant à une déformation plastique circonférentielle maximale de 0.16 en paroi interne de l'éprouvette est indiqué dans les légendes secondaires.

pour chacune des géométries étudiées, la déformation maximale en paroi interne (au niveau de la zone de contact entre l'éprouvette et les extrémités des mandrins) est environ deux fois plus élevée qu'en paroi externe. La bande de déformation localisée est plus large lorsque les mandrins ne présentent ni chanfrein ni arrondi. La localisation de la déformation est d'autant plus rapide que la taille des chanfreins ou des arrondis, et donc l'espace initial entre les zones de contact de l'anneau avec les mandrins, est importante : le déplacement plastique à appliquer pour atteindre localement un même niveau de déformation diminue lorsque cet espace initial augmente. Les bandes de localisation de la déformation s'amorcent donc plus au centre de la zone utile de l'éprouvette lorsque cet espace initial est minimal. Ceci peut être expliqué par la flexion plus importante des zones utiles de l'éprouvette lorsque les mandrins s'écartent. Quoi qu'il en soit, le mode de rupture n'est pas réellement affecté par la géométrie des mandrins. Il n'y a aucune différence entre les configurations avec mandrins chanfreinés et mandrins arrondis aux extrémités lorsque le diamètre de l'arrondi est identique à la taille des chanfreins. L'intensité du « poinçonnement » est donc essentiellement liée à la flexion des zones utiles de l'éprouvette, plutôt qu'aux singularités aux extrémités des mandrins. Concrètement, des mandrins avec chanfreins ou congés de dimension d sont équivalents à des mandrins sans chanfrein ni congé initialement espacés de $2d$. On conçoit donc aisément que l'effet du « poinçonnement » est le plus faible dans la configuration pour laquelle les mandrins ne présentent ni chanfrein ni arrondi, de telle sorte qu'il n'y ait initialement aucun espace entre les mandrins ; dans ce cas, la flexion des zones utiles de l'éprouvette est minimisée. Néanmoins, des calculs EF ont montré que, dans cette configuration, la déformation de l'éprouvette est plus sensible au frottement entre la paroi interne de l'anneau et les mandrins : plus le frottement est élevé, plus la déformation de l'éprouvette est localisée entre les mandrins, moins espacés que pour les autres configurations analysées. Cet effet s'oppose alors à la localisation de la déformation en cisaillement à travers l'épaisseur de l'éprouvette. Il est donc important, dans la configuration sans chanfrein ni arrondi en particulier, que le frottement entre l'éprouvette et les mandrins soit le plus faible possible.

En résumé, les modes de déformation de l'éprouvette, et de ce fait les modes de rupture, sont peu affectés par la géométrie des mandrins : des bandes de localisation de la déformation en cisaillement se développent à travers l'épaisseur de l'éprouvette avec une déformation maximale en paroi interne environ deux fois plus importante qu'en paroi externe[8]. Par conséquent, le choix d'une géométrie pour les mandrins – du moins parmi celles étudiées – n'est pas réellement capital tant qu'une analyse par éléments finis est menée en parallèle pour correctement interpréter les essais. On peut donc conclure que les essais réalisés dans le cadre de cette thèse avec des mandrins chanfreinés (chanfreins de 0.2 mm), ainsi que les informations qui en sont extraites, sont valides.

[8]De manière pragmatique, il est envisageable de considérer que la déformation locale à rupture de l'éprouvette est environ deux fois plus importante que celle mesurée en paroi externe par corrélation d'images par exemple.

D.6 Echauffement local

Les propriétés mécaniques du Zircaloy–4 et la solubilité des hydrures dépendent fortement de la température. Les essais mécaniques ont été conduits à une vitesse de déformation relativement importante ($0.1\,\mathrm{s}^{-1}$). Ainsi, l'influence éventuelle, sur la striction et la rupture des éprouvettes AT et HT, de l'échauffement causé par la déformation plastique a été évaluée.

En conditions d'échauffement adiabatique, en supposant que 90% de la puissance plastique est transformée en chaleur, l'équation de la chaleur s'écrit :

$$\rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} = \beta \underline{\boldsymbol{\sigma}} : \underline{\dot{\boldsymbol{\epsilon}}}^p \tag{D.11}$$

où c_p est la chaleur spécifique en J/kg/K, ρ est la masse volumique en kg/m^3 et $\beta = 0.9$ est le coefficient de Taylor Quinney (Taylor and Quinney, 1937). La chaleur produite au moment de la striction des éprouvettes peut être approchée par :

$$\Delta T \approx \frac{\beta S_U e_U}{\rho c_p} \tag{D.12}$$

où S_U est la contrainte maximale exprimée en Pa et e_U est l'allongement réparti. On obtient un majorant de la production de chaleur locale au moment de la rupture des éprouvettes à partir de :

$$\Delta T \approx \frac{\beta S_U e_F}{\rho c_p} \tag{D.13}$$

où e_F est la déformation locale à rupture qui peut être évaluée à partir de $Z/(Z-1)$ en traction uniaxiale, avec Z la réduction de section des éprouvettes rompues. La longueur de diffusion peut être évaluée par :

$$l \approx \sqrt{D\tau} \tag{D.14}$$

où τ est le temps caractéristique de l'essai. $D = \lambda/\rho c_p$ est la diffusivité thermique du matériau en m^2/s, où λ est la conductivité thermique en W/m/K. D'après l'International Nuclear Safety Center Material Properties Database [9], la chaleur spécifique, la densité et la conductivité thermique du Zircaloy valent respectivement :

$$\begin{aligned} c_p &= 255.66 + 0.1024T \text{ (en J/kg/K)} \\ \rho &= 6595.2 - 0.1477T \text{ (en kg/m}^3\text{)} \\ \lambda &= 12.767 - 5.4348 \cdot 10^{-4}T + 8.9818 \cdot 10^{-6}T^2 \text{ (en W/m/K)} \end{aligned}$$

Les moyennes des échauffements et des longueurs de diffusion calculés à l'apparition de la striction et de la rupture des éprouvettes AT et HT sont regroupés dans le tableau D.5. Il est important de noter que, du fait de l'hypothèse d'échauffement

[9] `http://www.insc.anl.gov/matprop/zircaloy/index.php`

Tableau D.5 – Echauffement et longueur de diffusion (en mm) au moment de la striction et de la rupture d'éprouvettes AT et HT testées à $0.1\,\mathrm{s}^{-1}$ à différentes températures.

T (°C)	AT				HT			
	Striction		Rupture		Striction		Rupture	
	ΔT	l	ΔT	l	ΔT	l	ΔT	l
25	16	1.6	95	2.4	9	1.2	276	3.4
350	8	1.4	183	2.7	3	0.8	738	4.8
480	4	1.2	197	2.8	2	0.9	725	5.0

adiabatique, les valeurs calculées de l'élévation de température liée à la déformation plastique du matériau représentent une borne supérieure de l'échauffement réel. Quelles que soient les conditions, l'échauffement au moment de la striction reste faible. On peut dès lors supposer que le développement de la striction diffuse n'est pas affectée par l'échauffement produit par la déformation plastique du matériau. En revanche, l'échauffement local au moment de la rupture est significatif. Les longueurs de diffusion sont relativement faibles. La chaleur produite n'a donc *a priori* pas réellement le temps de se dissiper au cours des essais. Il est donc possible que la rupture des éprouvettes ait été influencée par l'échauffement du matériau dans les zones de déformation localisée.

Annexe E

Résultats des essais de caractérisation mécanique

Cette annexe rassemble sous forme de tableaux les principaux résultats de la majorité des essais de traction axiale, traction circonférentielle, expansion due à la compression et traction plane circonférentielle réalisés durant cette thèse sur le matériau hydruré ou non.

Dans les tableaux qui suivent, T représente la température de l'essai, C_H est la concentration moyenne en hydrogène, $S_Y^{0.2\%}$ et $S_Y^{0.5\%}$ sont respectivement les contraintes nominales à 0.2% et 0.5% de déformation plastique, S_U est la contrainte nominale maximale, e_U est l'allongement réparti, e_F est l'allongement total à rupture, Z est le coefficient de striction et $e_{\theta\theta F}$ est la déformation circonférentielle à rupture.

Tableau E.1 – Résultats des essais de traction axiale (vitesse de déplacement de la traverse de $1.5\,\mathrm{mm.s^{-1}}$).

Référence éprouvette	T (°C)	C_H (ppm)	$S_Y^{0.2\%}$ (MPa)	S_U (MPa)	e_U (—)	e_F (—)	Z (—)
014-1-03	25	0	663	823	0.040	0.106	
014-1-04	25	0	668	828	0.041	0.108	0.363
015-11.3-03	25	400	655	841	0.043	0.091	0.191
016-1-02	25	800	677	861	0.038	0.080	0.110
017-6-02	25	1200	675	886	0.035	0.081	0.114
017-6-08	25	1200	667	888	0.036	0.077	0.101
014-1-05	350	0	431	529	0.038	0.130	0.479
014-1-06	350	0	430	530	0.040	0.130	0.438
015-11.3-05	350	400	417	515	0.036	0.125	0.429
015-11.3-07	350	400	427	516	0.035	0.129	0.471
016-1-06	350	800	429	531	0.038	0.117	0.384
016-1-10	350	800	433	528	0.036	0.127	0.490
017-6-04	350	1200	440	542	0.035	0.109	0.414
014-1-07	480	0	356	416	0.027	0.163	0.519
014-1-08	480	0	347	409	0.024	0.156	0.594
015-11.3-09	480	400	332	392	0.031	0.145	0.547
015-11.3-11	480	400	338	397	0.023	0.156	0.529
016-1-08	480	800	345	394	0.024	0.131	0.525
017-6-06	480	1200	355	401	0.024	0.112	0.511
017-6-10	480	1200	355	412	0.024	0.141	0.540

Tableau E.2 – Résultats des essais de traction circonférentielle (vitesse de déplacement de la traverse de $0.3\,\mathrm{mm.s^{-1}}$).

Référence éprouvette	T (°C)	C_H (ppm)	$S_Y^{0.5\%}$ (MPa)	S_U (MPa)	e_U (—)	e_F (—)	Z (—)
014-1-09	25	0	806	832	0.017	0.249	0.553
014-2-01	25	0	811	830	0.014	0.246	0.530
015-11.3-13	25	400	836	858	0.019	0.214	0.447
016-1-12	25	800	809	863	0.028	0.170	0.383
016-1-20	25	800	852	881	0.022	0.191	0.371
017-6-12	25	1200	851	900	0.023	0.077	0.134
017-6-14	25	1200	855	895	0.022	0.087	0.163
014-2-03	350	0	528	536	0.012	0.389	0.764
014-2-04	350	0	512	529	0.011	0.389	0.765
015-11.3-15	350	400	508	519	0.011	0.381	0.763
015-11.3-19	350	400	502	515	0.012	0.370	0.787
016-1-14	350	800	514	528	0.013	0.386	0.760
016-1-18	350	800	518	527	0.011	0.390	0.751
017-6-16	350	1200	529	539	0.012	0.377	0.753
014-2-05	480	0	421	437	0.014	0.421	0.814
014-2-06	480	0	418	437	0.014	0.411	0.809
015-11.3-17	480	400	386	401	0.016	0.445	0.816
015-11.3-21	480	400	389	408	0.016	0.439	0.820
016-1-16	480	800	391	402	0.013	0.455	0.805
017-6-18	480	1200	393	411	0.014	0.428	0.806
017-6-20	480	1200	406	415	0.012	0.426	0.772

Tableau E.3 – Déformations circonférentielles nominales à rupture des éprouvettes d'expansion due à la compression (vitesse de déplacement de la traverse de $1.5\,\mathrm{mm.s^{-1}}$).

Référence éprouvette	T (°C)	C_H (ppm)	$e_{\theta\theta F}$ (—)
014-2-18	25	0	0.607
014-2-19	25	0	0.640
014-2-20	25	0	0.614
014-2-21	25	0	0.573
014-2-23	25	0	0.580
014-2-24	25	0	0.741
014-3-01	25	0	0.707
014-3-02	25	0	0.674
015-12.3-02	25	400	0.523
015-12.3-04	25	400	0.456
015-12.3-08	25	400	0.423
016-2-02	25	800	0.301
016-2-04	25	800	0.218
016-2-06	25	800	0.308
017-7-03	25	1200	0.109
017-7-05	25	1200	0.065
014-2-25	350	0	0.741

Tableau E.4 – Déformations circonférentielles de Green–Lagrange mesurées juste avant rupture (corrélation d'images *in–situ*) et après rupture (corrélation d'images *post–mortem*) en paroi externe au centre la zone utile des éprouvettes de traction plane circonférentielle (vitesse de déplacement de la traverse de $0.2\,\mathrm{mm.s^{-1}}$).

Référence	T	C_H	$e_{\theta\theta F}$ (—)	
éprouvette	(°C)	(ppm)	*in–situ*	*post–mortem*
014-2-11	25	0	0.160	
014-2-12	25	0	0.150	
015-11.3-23	25	400	0.072	
016-1-22	25	800	0.040	
016-1-28	25	800	0.062	0.040
017-6-22	25	1200	0.055	
017-6-28	25	1200	0.032	0.030
014-2-13	350	0	0.139	
014-2-14	350	0	0.182	0.100
015-11.3-25	350	400	0.075	
015-11.3-31	350	400	0.075	0.070
016-1-30	350	800	0.080	0.070
014-2-15	480	0		0.130
015-11.3-27	480	400	0.150	
015-11.3-29	480	400	0.147	
017-6-30	480	1200	0.087	0.105

Annexe F

Analyse de l'endommagement

Cette annexe décrit la méthode utilisée pour quantifier l'endommagement lié à la rupture des hydrures à température ambiante et détaille le calcul des fractions volumiques des phases de Laves $Zr(Fe,Cr)_2$ et des hydrures $ZrH_{1.5}$–$ZrH_{1.66}$.

F.1 Quantification de l'endommagement lié à la rupture des hydrures

F.1.1 Introduction

De nombreuses techniques expérimentales sont proposées dans la littérature pour qualifier et quantifier l'endommagement des matériaux :

- méthodes indirectes à partir de mesures physiques : densité (Pardoen et al., 1998; Ochsner et al., 2001), module d'Young (Dong et al., 1997), acoustique (Mummery et al., 1993; El Guerjouma et al., 2001), résistivité (Weber and Schwartz, 2001), ...
- méthodes directes à partir d'images *in–situ* ou *ex–situ* : imagerie en surface (Yunchang and Koss, 1985; Grange et al., 2000a; Besson et al., 2000), imagerie en volume (Buffière et al., 1999; Maire et al., 2001), ...

Les méthodes de caractérisation indirectes sont difficiles à mettre en oeuvre, en particulier lorsque l'endommagement du matériau est faible comme c'est le cas ici. Les méthodes directes permettent à la fois de quantifier l'endommagement et de caractériser la morphologie des cavités.

Les cinétiques de l'endommagement lié à la rupture des hydrures à température ambiante ont été quantifiées à l'aide d'une méthode directe basée sur l'analyse d'images de surface.

F.1.2 Méthodologie

A l'image des études de Yunchang and Koss (1985) et Grange et al. (2000a), la gamme de déformation offerte par le gradient de déformation plastique le long de la direction de chargement des éprouvettes rompues (du fait de la striction) a été exploitée. Les éprouvettes ont été découpées au milieu de leur largeur le long de l'axe de sollicitation (plan longueur–épaisseur). Une fois polies puis légèrement polies/attaquées chimiquement pour déboucher les cavités éventuellement rebouchées par le polissage mécanique, les sections ont été observées au MEB en mode électrons rétrodiffusés (pour accentuer le contraste). Un grossissement de $\times 1000$ (résolution spatiale d'environ $0.1\,\mu$m) est apparu suffisant pour détecter la rupture des hydrures. Des cartographies d'endommagement ($100\times500\,\mu\text{m}^2$) ont ainsi été effectuées à différentes positions par rapport à la surface de rupture. Pour chaque échantillon, entre 100 et 150 images (7 images à travers l'épaisseur pour chaque cote axiale) ont été analysées. Les mesures d'endommagement ont finalement été reliées à la déformation plastique équivalente locale par l'intermédiaire de la cote axiale par rapport à la surface de rupture.

F.1.3 Analyse d'images

Les caractéristiques (densité, dimensions, orientation, fraction surfacique, ...) des microfissures amorcées par la fragmentation des hydrures ont été déterminées à l'aide du logiciel libre d'analyse d'images ImageJ v1.37, développé par le National Institute of Health (USA) [1]. Les images ont été traitées de la manière suivante :

- conversion en niveaux de gris (figure F.1(a)) ;
- seuillage et binarisation pour séparer les cavités de la matrice (figure F.1(b)) ;
- filtrage du bruit (rayures de polissage, piqûres d'attaque chimique, poussières, ...), remplissage des trous et séparation des particules en contact (du fait de leur coalescence) (figure F.1(c)) ;
- analyse des particules (figure F.1(d)).

Il est important de respecter l'ordre de réalisation de ces opérations. Les bornes inférieure et supérieure imposées pour le seuillage dépendent de la répartition des niveaux de gris. Elles ont donc été ajustées pour chaque échantillon et éventuellement pour certaines images d'un même échantillon. Une macro–commandes en Java a été développée pour automatiser la séquence de traitement d'images. Dans ImageJ, les particules sont entre autres définies par :

- un centroïde (point central de la sélection) ;
- un centre de masse (centroïde pondéré par les niveaux de gris) ;
- les coordonnées, la largeur et la hauteur du rectangle dans lequel s'inscrit la particule ;
- le petit et le grand axe de l'ellipse ajustée à la particule ainsi que l'angle entre le grand axe et l'axe horizontal de l'image ;

[1] `http://rsb.info.nih.gov/ij/`

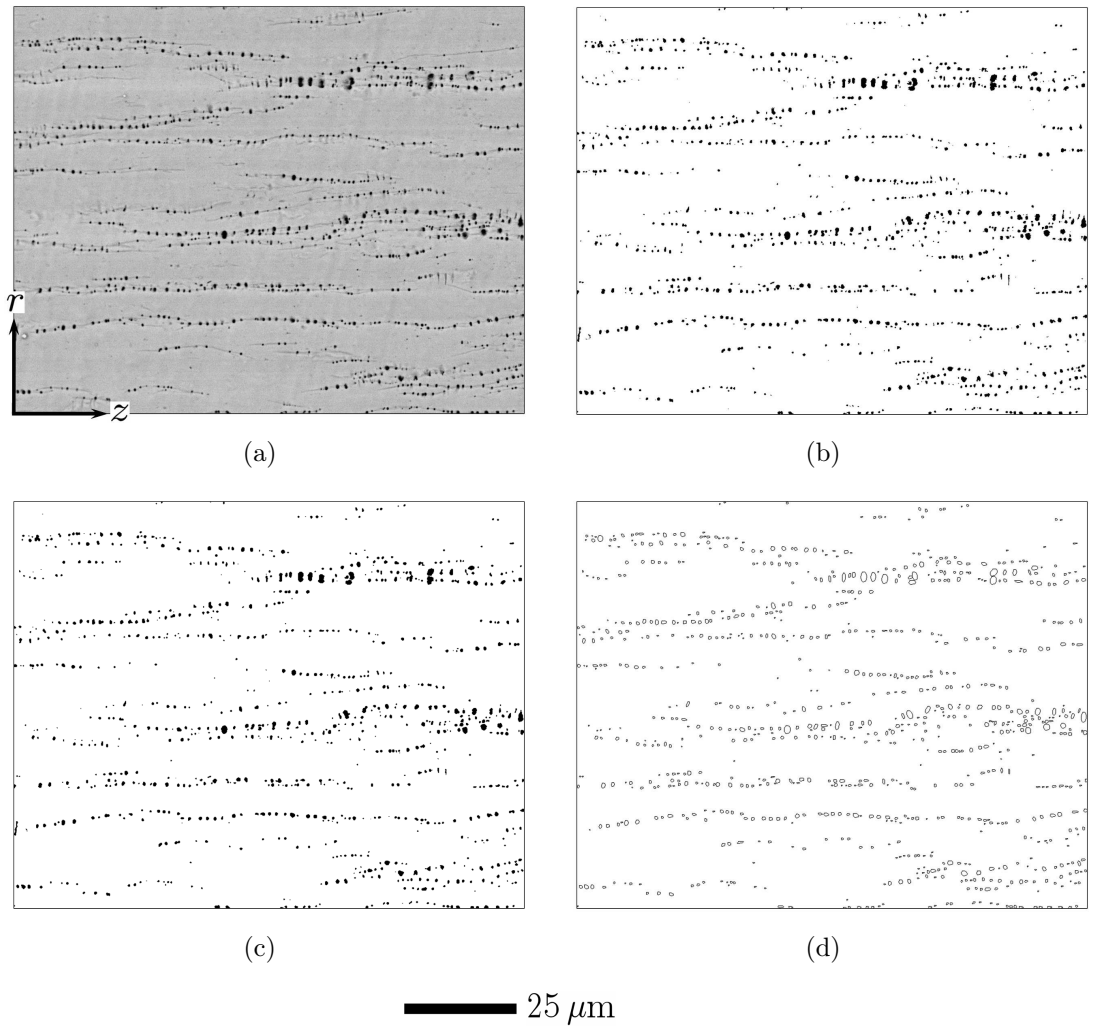


Figure F.1 – Exemple de traitement d'images visant à caractériser l'endommagement lié à la rupture des hydrures dans une éprouvette AT hydrurée à 1200 ppm testée à température ambiante : (a) image originale en niveaux de gris, (b) image binarisée, (c) image après filtrage du bruit, remplissage des trous et séparation des particules en contact, (d) taches identifiées représentées par des ellipses.

- un périmètre P_p ;
- une surface S_p ;
- une circularité définie par $4\pi S_p/P_p^2$ (un cercle parfait présente une circularité de 1) ;
- un diamètre de Ferret (plus grande distance entre deux points quelconques de la particule).

Ces données, ainsi que la densité (nombre de particules par unité de surface) et la fraction surfacique des particules, sont accessibles par l'utilisateur. On notera que les particules présentant une taille inférieure à 3 pixels et une circularité inférieure à 0.4 ont été ignorées pour ne pas prendre en compte les parasites qui n'ont éventuellement pas été éliminés par le traitement d'images. Les caractéristiques moyennes des particules/cavités pour chaque position axiale par rapport à la surface de rupture ont été évaluées à partir des résultats de l'analyse de 7 images prises à travers l'épaisseur de l'échantillon.

L'évolution de la surface et de la fraction surfacique des cavités en fonction de la déformation plastique renseignent sur la croissance des cavités (les microfissures créées par la rupture des hydrures n'ont pas de volume initialement). L'évolution de la densité de microfissures informe sur la germination des cavités. L'évolution de la largeur et de la hauteur des rectangles (respectivement orientées selon la direction de chargement et l'épaisseur de l'éprouvette) dans lesquels s'inscrivent les cavités donnent des indications sur la forme des cavités.

F.2 Fraction volumique des précipités de phase de Laves et des hydrures

F.2.1 Précipités de phase de Laves

La fraction volumique des précipités de phases de Laves $Zr(Fe_2,Cr_1)_2$ vaut :

$$f_L = \frac{V_L}{V} = \frac{m_L}{m}\frac{\rho}{\rho_L} \tag{F.1}$$

où V, m et ρ sont respectivement le volume, la masse et la densité du matériau (matrice + précipités) et V_L, m_L et ρ_L ceux des phases de Laves. En supposant que tout le fer et le chrome se trouve sous forme précipitée, f_L peut être déterminée par :

$$f_L = \frac{m_L}{m_{Cr}}\frac{m_{Cr}}{m}\frac{\rho}{\rho_L} \text{ ou } f_L = \frac{m_L}{m_{Fe}}\frac{m_{Fe}}{m}\frac{\rho}{\rho_L} \tag{F.2}$$

où m_{Cr} et m_{Fe} sont respectivement les masses du chrome et du fer. Les fractions massiques du chrome et du fer valent respectivement :

$$\frac{m_{Cr}}{m_L} = \frac{c(Cr/Zr)M_{Cr}}{M_{Zr} + c(Cr/Zr)M_{Cr} + c(Fe/Zr)M_{Fe}} \approx 0.20 \tag{F.3}$$

$$\frac{m_{Fe}}{m_L} = \frac{c(Fe/Zr)M_{Fe}}{M_{Zr} + c(Cr/Zr)M_{Cr} + c(Fe/Zr)M_{Fe}} \approx 0.44 \tag{F.4}$$

où $c(Cr/Zr) = 1$ et $c(Fe/Zr) = 2$ sont respectivement les fractions atomiques du chrome et du fer dans les phases de Laves (Charquet et al., 1989; Erwin et al., 2001) et $M_{Zr} = 91.2\,\mathrm{g/mol}$, $M_{Cr} = 52\,\mathrm{g/mol}$ et $M_{Fe} = 55.845\,\mathrm{g/mol}$ sont les masses atomiques du zirconium, du chrome et du fer. Les fractions massiques du chrome et du fer dans le matériau sont obtenues à partir de la composition chimique du matériau : $m_{Cr}/m = 1.1 \cdot 10^{-3}$ et $m_{Fe}/m = 2.1 \cdot 10^{-3}$. Enfin, connaissant les densités des phases de Laves et du matériau, $7500\,\mathrm{kg/m^3}$ et $6500\,\mathrm{kg/m^3}$ respectivement (Erwin et al., 2001), la fraction volumiques des phases de Laves peut être calculée :

$$f_L \approx 0.45\% \tag{F.5}$$

F.2.2 Hydrures

La fraction volumique des hydrures $ZrH_{1.6}$ est déterminée par :

$$f_{ZrH} = \frac{V_{ZrH}}{V} = \frac{m_{ZrH}}{m}\frac{\rho}{\rho_{ZrH}} \tag{F.6}$$

où V, m et ρ représentent respectivement le volume, la masse et la densité du matériau (matrice + hydrures) et V_{ZrH}, m_{ZrH} et ρ_{ZrH} sont ceux des hydrures. La fraction volumique des hydrures f_{ZrH} vaut :

$$f_{ZrH} = \frac{m_{ZrH}}{m_H}\frac{m_H}{m}\frac{\rho}{\rho_{ZrH}} \tag{F.7}$$

où m_H est la masse de l'hydrogène. La fraction massique de l'hydrogène dans les hydrures est obtenue à partir de :

$$\frac{m_H}{m_{ZrH}} = \frac{c(H/Zr)M_H}{M_{Zr} + c(H/Zr)M_H} \approx 0.017 \tag{F.8}$$

où $c(H/Zr) = 1.6$ est la fraction atomique de l'hydrogène dans les hydrures et $M_{Zr} = 91.2\,\mathrm{g/mol}$, $M_H = 1\,\mathrm{g/mol}$ sont les masses atomiques du zirconium et de l'hydrogène. La fraction volumique des hydrures δ est d'environ $5650\,\mathrm{kg/m^3}$ et celle de l'ensemble du matériau 6500 $\mathrm{g/cm^3}$. D'après cette analyse, la fraction volumique des hydrures vaut approximativement :

$$f_{ZrH} \approx 6.7 \cdot 10^{-5} C_{Hp} \tag{F.9}$$

où C_{Hp} est la teneur en hydrogène précipité exprimée en ppm.

Annexe G

Comparaison et utilisation des modèles de comportement

Le modèle présenté au chapitre 2 décrit le comportement mécanique des gaines en Zircaloy–4 vierges ou irradiées en REP pour des températures et des vitesses de déformation respectivement comprises entre 20 °C et 1100 °C et $3 \cdot 10^{-4}\,\mathrm{s}^{-1}$ et $5\,\mathrm{s}^{-1}$. Le modèle proposé au chapitre 3 décrit le comportement des gaines en Zircaloy–4 non irradiées, hydrurées ou non, testées spécifiquement durant cette thèse entre 25 °C et 480 °C à une vitesse de déformation de $0.1\,\mathrm{s}^{-1}$. Ces deux modèles reposent sur le même formalisme général. Comme le montre la figure G.1, bien qu'identifié dans un vaste domaine de températures et de vitesses de déformation pour des gaines issues de lots variés, le premier modèle décrit de manière satisfaisante le comportement du matériau vierge testé spécifiquement pour les besoins de la présente étude. On vérifie également que la prévision du second modèle est meilleure dans ce cas précis.

La teneur moyenne en hydrogène C_H dans les gaines ayant séjourné en REP [1] dépend du niveau et des conditions d'irradiation. Elle peut par exemple être exprimée en fonction de la fluence ϕ_t et de la cote axiale relative par rapport au bas de l'assemblage ξ : $C_H = 37\xi \exp(0.3\phi_t)$ (corrélation établie à partir d'une source de données à diffusion restreinte). On rappellera par ailleurs qu'une relation a été formulée en section 2.3.2 pour exprimer l'évolution croissante de la température d'irradiation T_i en fonction de la cote de prélèvement relative par rapport au bas de l'assemblage : $T_i(\,\mathrm{K}) = 594.35 + 49.673\xi$. Comme illustré sur la figure G.2, la teneur moyenne en hydrogène est d'autant plus importante que la fluence et la cote de prélèvement relative par rapport au bas de l'assemblage/température d'irradiation sont élevées. En utilisant cette corrélation et en admettant en première approximation que l'hydrogène a le même effet sur le comportement mécanique du matériau irradié que sur celui du matériau non irradié (en particulier, le comportement mécanique global du matériau est supposé ne pas dépendre de la distribution de l'hydrogène), il est possible de déconvoluer, à l'aide des modèles développés pour le matériau irradié et le matériau

[1] La distribution de l'hydrogène dans les gaines irradiées en REP est généralement hétérogène.

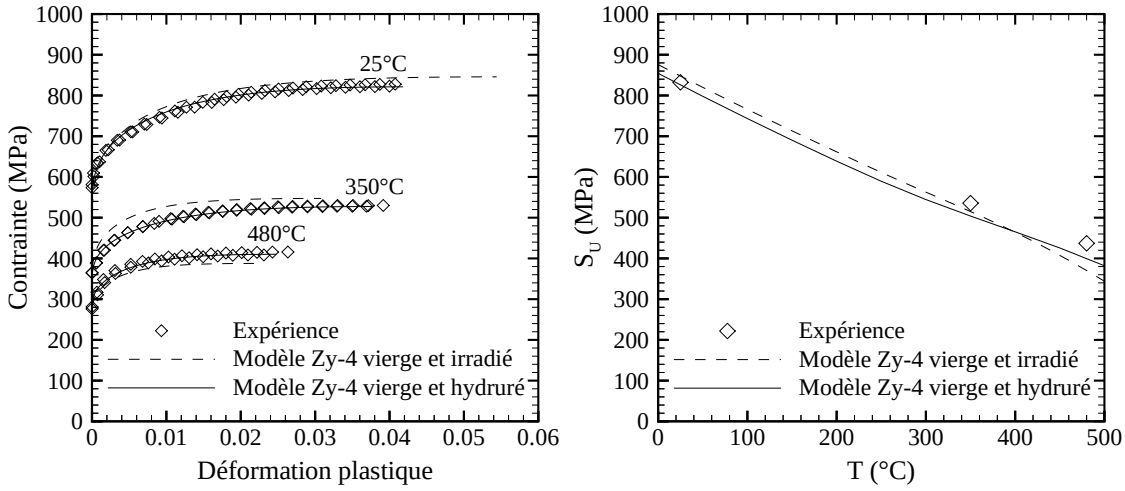


Figure G.1 – (a) Courbes contrainte–déformation plastique conventionnelles (jusqu'à l'allongement réparti) en traction axiale et (b) contrainte maximale en traction circonférentielle en fonction de la température pour le matériau vierge ; données expérimentales et résultats obtenus à l'aide des modèles respectivement développés pour le Zircaloy-4 vierge et irradié (chapitre 2) et le Zircaloy–4 vierge et hydruré (chapitre 3) (vitesse de déformation de $0.1\,\mathrm{s}^{-1}$).

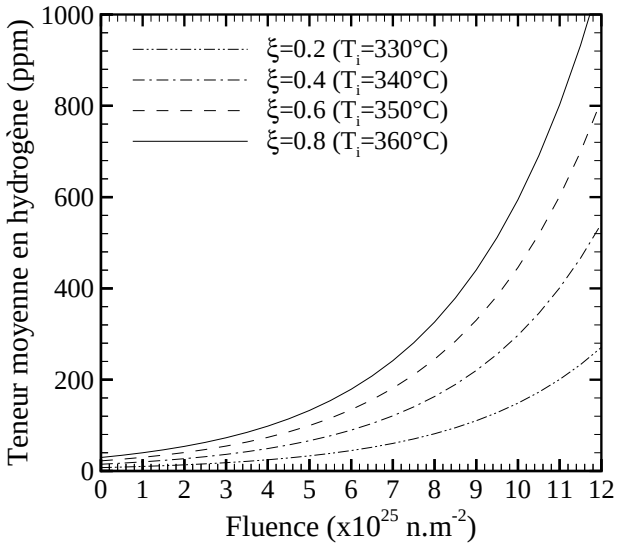


Figure G.2 – Teneur moyenne en hydrogène en fonction de la fluence pour différentes cotes de prélèvement relatives par rapport au bas de l'assemblage/températures d'irradiation.

hydruré, les effets de l'hydrogène, la fluence et les conditions d'irradiation sur le comportement mécanique du matériau. Comme le montre la figure G.3(a), à teneur moyenne en hydrogène équivalente, la résistance mécanique du matériau irradié est nettement plus élevée que celle du matériau non irradié à température ambiante. On en déduit que, dans ces conditions, l'effet de l'irradiation sur le durcissement du matériau est plus important que celui des hydrures. En comparant sur cette même figure les courbes obtenues à fluence donnée ($10^{26}\,\mathrm{n.m^{-2}}$) pour le matériau irradié à différentes cotes de prélèvement par rapport au bas de l'assemblage, on constate que l'influence de la température d'irradiation (durcissement d'irradiation d'autant plus faible que la température d'irradiation est élevée) est prépondérante par rapport à celle de l'hydrogène dans le domaine considéré : la résistance mécanique du matériau irradié est plus faible en haut de l'assemblage qu'en bas, alors que la concentration moyenne en hydrogène (précipité) y est supérieure. A 480 °C, le matériau est adoucit par l'hydrogène (majoritairement en solution solide) et le durcissement induit par l'irradiation est clairement plus faible qu'à température ambiante (figure G.3(b)). A cette température, la température d'irradiation et l'hydrogène contribuent tous deux à la décroissance de la résistance mécanique du matériau irradié en fonction de la cote de prélèvement par rapport au bas de l'assemblage.

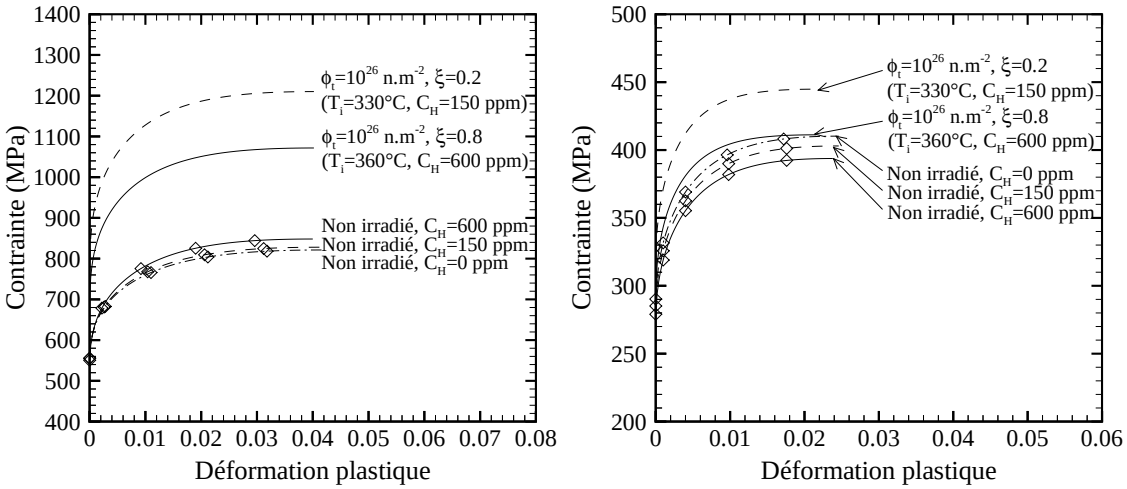


Figure G.3 – Courbes contrainte–déformation plastique conventionnelles (jusqu'à l'allongement réparti) calculées à l'aide des modèles respectivement développés pour le Zircaloy-4 vierge et irradié et le Zircaloy–4 vierge et hydruré pour des essais de traction axiale réalisés à (a) 25 °C et (b) 480 °C (vitesse de déformation de $0.1\,\mathrm{s^{-1}}$).

Annexe H

Compléments sur l'anisotropie de rupture

D'après les résultats exposés au chapitre 3, l'endommagement et la rupture du matériau, qu'il soit hydruré ou non, semblent être anisotropes. Il est cependant difficile de se prononcer dans la mesure où les éprouvettes utilisées pour solliciter le matériau selon les directions axiale et circonférentielle sont très différentes (figures B.1 et B.2) ; les effets de structure et par conséquent les modes de rupture macroscopiques ne sont donc pas identiques (figure 3.9). Il est naturellement impossible de disposer d'éprouvettes rigoureusement identiques pour les essais de traction axiale (AT, Axial Tension) et de traction circonférentielle (HT, Hoop Tension) du fait de la géométrie tubulaire du matériau. Néanmoins, pour tenter de reproduire les modes de rupture macroscopiques des éprouvettes HT et ainsi espérer conclure quant à l'anisotropie de rupture du matériau, des essais de traction axiale ont été réalisés sur des éprouvettes « bi–languettes » dont les zones calibrées/utiles présentent des dimensions identiques à celles de l'anneau HT (figure H.1) ; ces éprouvettes seront qualifiées de « petites » dans la suite par opposition aux éprouvettes bi–languettes « standard ». Les principaux résultats de ces essais sont regroupés dans le tableau H.1.

La figure H.2 compare les courbes contrainte–déformation plastique obtenues avec les petites éprouvettes AT et les éprouvettes AT standard. Les limites d'élasticité, les contraintes maximales et les allongements répartis sont représentés sur la figure H.3. Les résultats obtenus avec les deux types d'éprouvettes sont assez proches jusqu'à l'allongement réparti. On remarquera néanmoins que les allongements répartis déduits des essais réalisés sur les petites éprouvettes sont plus importants que ceux obtenus à l'aide des éprouvettes standard. Cet écart est probablement dû aux déformations plastiques non négligeables qui se développent dans les congés de raccordement en dehors de la zone calibrée des petites éprouvettes AT ; dans ce cas, la longueur utile effective est plus importante que la longueur calibrée. Au–delà de l'allongement réparti, les courbes contrainte–déformation plastique dépendent fortement de la longueur utile : les petites éprouvettes rompent pour un allongement total plus important que les éprouvettes standards, plus longues.

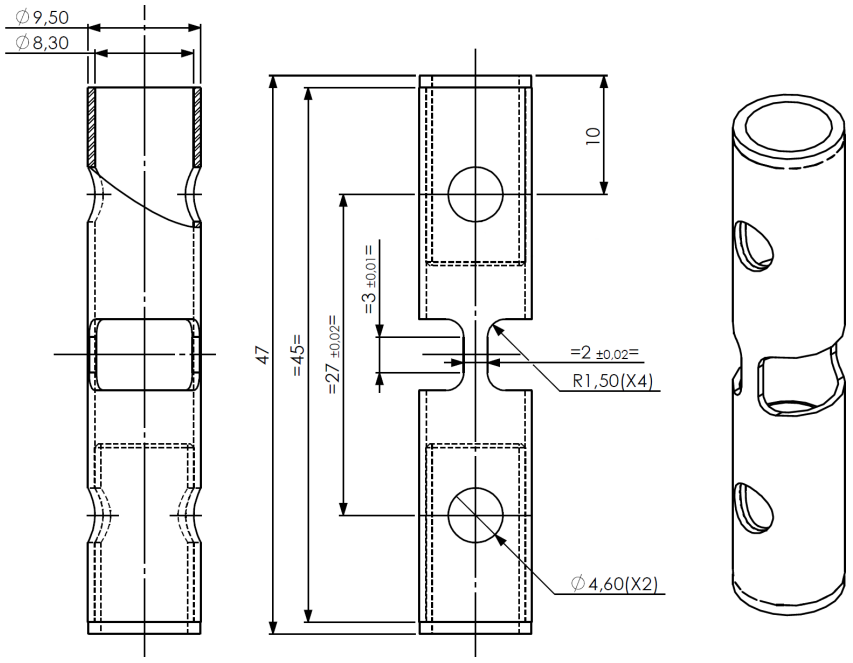


Figure H.1 – Eprouvette de traction axiale avec dimensions des zones calibrées proches de celles de l'anneau de traction circonférentielle (dimensions en mm).

Tableau H.1 – Résultats des essais AT sur éprouvettes bi–languettes avec dimensions des zones calibrées proches de celles de l'anneau de traction circonférentielle (vitesse de déplacement de la traverse de $0.3\,\mathrm{mm.s^{-1}}$).

Référence éprouvette	T (°C)	C_H (ppm)	$S_Y^{0.2\%}$ (MPa)	S_U (MPa)	e_U (—)	e_F (—)	Z (—)
014-4-01	25	0	660	811	0.056	0.201	0.438
014-4-02	25	0	655	820	0.055	0.190	0.397
015-12.3-23	25	400	665	833	0.050	0.154	0.300
015-12.3-24	25	400	669	837	0.051	0.185	0.340
017-8-01	25	1200	664	864	0.048	0.077	0.186
017-8-02	25	1200	662	874	0.043	0.076	0.159
014-4-03	480	0	381	440	0.032	0.346	0.609
014-4-04	480	0	378	430	0.030	0.370	0.613

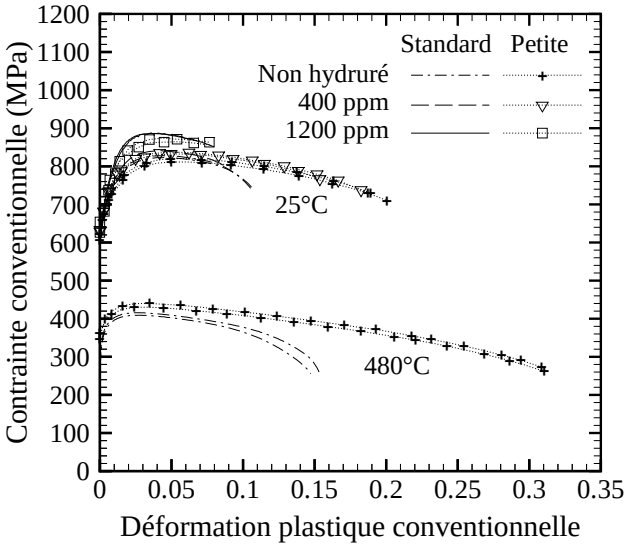
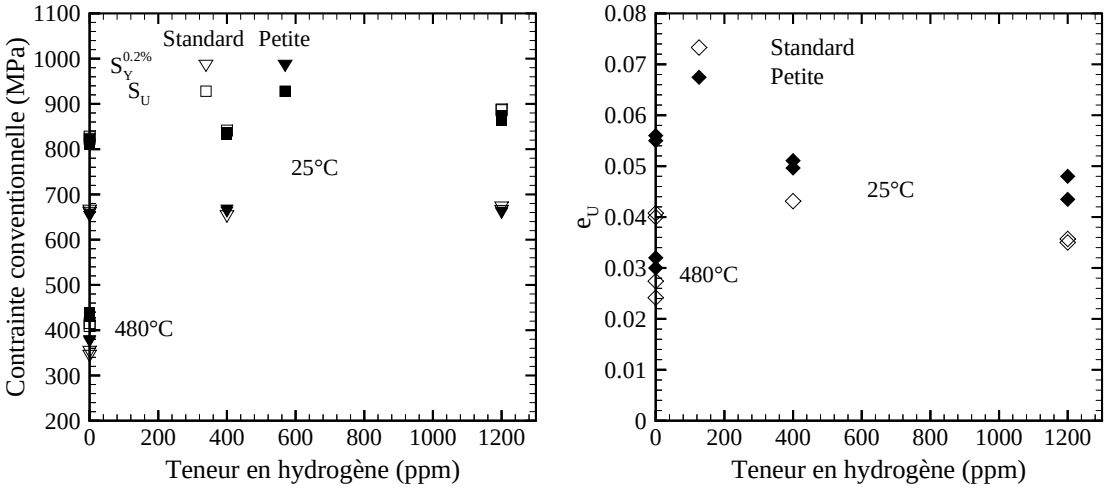


Figure H.2 – Courbes contrainte–déformation plastique conventionnelles pour des essais de traction axiale réalisés sur des éprouvettes AT standard et de petites éprouvettes AT.



(a) (b)

Figure H.3 – Evolution en fonction de la concentration en hydrogène de (a) la contrainte à 0.2% de déformation plastique et la contrainte maximale et (b) l'allongement réparti pour des essais de traction axiale réalisés sur des éprouvettes AT standard et de petites éprouvettes AT.

La figure H.4 représente les modes de rupture macroscopiques des petites éprouvettes AT en fonction de la température et de la teneur en hydrogène. Les modes

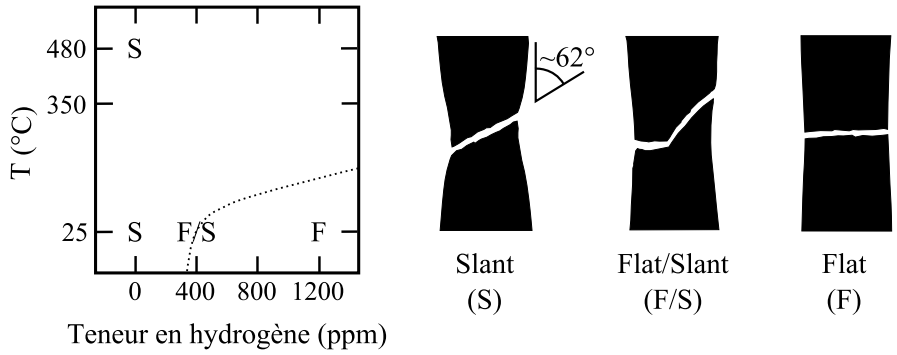


Figure H.4 – Modes de rupture macroscopiques des petites éprouvettes AT en fonction de la température et la teneur en hydrogène.

de rupture sont globalement identiques à ceux des éprouvettes AT standard (figure 3.9), à savoir rupture inclinée à travers la largeur de l'éprouvette pour le matériau non hydruré quelle que soit la température [1] et rupture plate perpendiculaire à la direction axiale dans le cas du matériau hydruré testé à température ambiante ; la rupture macroscopique de la petite éprouvette AT hydrurée à 400 ppm testée à température ambiante est intermédiaire entre ces deux modes. Malgré des zones calibrées de mêmes dimensions, les petites éprouvettes AT ne permettent donc pas de reproduire les modes de rupture macroscopiques des anneaux HT (mis à part pour le matériau fortement hydruré testé à température ambiante).

Les réductions de section à rupture des petites éprouvettes AT sont comparées sur la figure H.5 à celles des éprouvettes AT standard et HT. La ductilité macroscopique des petites éprouvettes AT est légèrement plus élevée que celle des éprouvettes AT standard dans le cas du matériau vierge testé à 25 °C et 480 °C et du matériau hydruré à 400 ppm testé à température ambiante. Elle reste néanmoins sensiblement inférieure à la ductilité macroscopique déduite des essais HT. Dans la mesure où les modes de rupture macroscopiques des petites éprouvettes AT sont – comme ceux des éprouvettes AT standard – différents des modes de rupture des éprouvettes HT, il reste cependant difficile de se prononcer quant au caractère anisotrope de la rupture du matériau.

Des éprouvettes AT avec des longueurs calibrées encore plus faibles auraient peut–être permis de reproduire les modes de rupture des éprouvettes HT. Il est en effet probable que la localisation de la déformation et par conséquent les modes de rupture macroscopiques des éprouvettes HT soient indirectement influencés par les mandrins (effets de structure) : dès l'apparition de la striction diffuse, la localisation

[1] On notera néanmoins que l'angle entre le plan de rupture macroscopique des petites éprouvettes, qui présentent une faible longueur utile, et la direction principale de chargement est d'environ 62° alors qu'il est d'environ 56° dans le cas des éprouvettes standard. Par ailleurs, la rupture des petites éprouvettes s'amorce au centre des zones utiles alors qu'elle s'amorce à 3–4 mm du plan médian des longueurs utiles des éprouvettes standard.

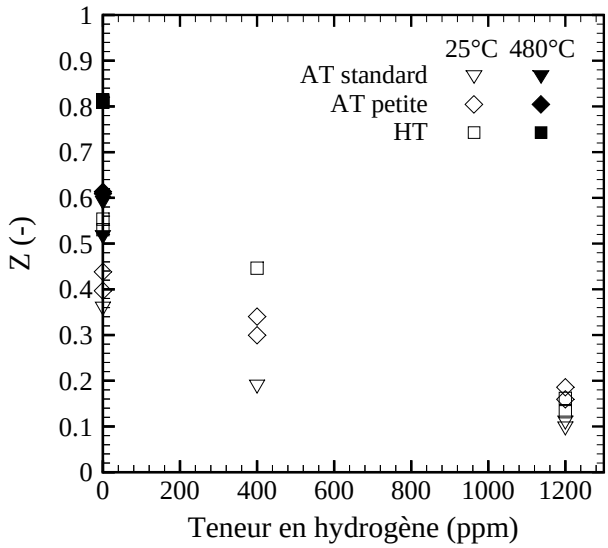


Figure H.5 – Evolution en fonction de la teneur en hydrogène de la réduction de section à rupture de petites éprouvettes AT, d'éprouvettes AT standard et d'éprouvettes HT.

de la déformation est vraisemblablement facilitée et de ce fait accentuée dans les régions – peu étendues – de l'anneau qui ne sont pas ou plus en contact frottant avec les mandrins [2].

[2] L'écartement entre les mandrins est généralement inférieur à 1 mm au moment de la rupture des éprouvettes.

Annexe I

Modélisation par éléments finis

Les maillages et les conditions aux limites des modèles par éléments finis des différents essais réalisés durant cette thèse (traction axiale, traction circonférentielle, expansion due à la compression, traction plane circonférentielle et écrasement) sont détaillés dans cette annexe. Les plans des éprouvettes sont disponibles en annexe B.

I.1 Introduction

Les calculs ont été réalisés à l'aide du code de calcul par éléments finis Cast3M (version 2007). Ils ont été menés en grands déplacements, grandes rotations et grandes déformations. Des éléments quadratiques sous–intégrés ont été utilisés. Pour cela, le fichier source de Cast3M `elquoi.eso`, dans lequel sont définies les caractéristiques des éléments finis, a été modifié pour obtenir une intégration réduite des éléments. En effet, pour les fortes déformations, d'importantes variations de pression ont été observées à l'intérieur des éléments linéaires classiques [1] ; ce phénomène est accentué lorsque l'endommagement du matériau est pris en compte. Par ailleurs, les points de Gauss des éléments à intégration réduite ont, contrairement à ceux des éléments quadratiques à intégration complète, tous le même poids et par conséquent la même énergie de rupture.

Dans le cas des calculs réalisés avec prise en compte de l'endommagement, la convergence globale du calcul de structure requiert des pas de temps très faibles lorsque l'endommagement devient significatif. Bien entendu, les pas de temps ne doivent pas nécessairement être aussi petits lorsque le matériau n'est pas encore endommagé ou lorsque l'endommagement est faible. Cast3M ne dispose pas de procédure spécifique pour adapter automatiquement le pas de temps selon la difficulté de convergence. Ainsi, une procédure a été mise au point, via la procédure utilisateur `PERSO1` de la procédure `PASAPAS` de Cast3M, pour adapter le pas de temps du

[1] Les éléments linéaires à intégration sélective (méthode B–bar) permettent d'éviter ces variations de pression (Besson et al., 2004). Toutefois, ce type d'éléments n'est, à notre connaissance, pas disponible dans Cast3M.

calcul de structure en fonction de l'endommagement du matériau. Cette procédure redéfinit la liste des pas de temps à calculer selon la porosité maximale calculée au pas de temps précédent sur toute la structure ; les pas de temps sont d'autant plus petits que l'endommagement est important.

La taille et la forme des éléments ont été ajustés selon le type (avec ou sans endommagement) et les objectifs des calculs. Les maillages présentés ici ne sont donc que des exemples.

I.2 Traction axiale

En raison des symétries du système (géométrie, matériau et chargement), seul un huitième de l'éprouvette de traction axiale « bi–languettes » est modélisé. Le maillage et les conditions aux limites sont représentés sur la figure I.1. Des conditions aux limites de symétries standards sont appliquées (déplacement normal aux plans de symétrie nul). Les bouchons renforçants sont supposés solidaires de l'éprouvette. Leur comportement est supposé élastique isotrope ($E = 105900 - 36T\,\mathrm{MPa}$, $\nu = 0.342$). Seul le huitième supérieur de la goupille d'amarrage, en liaison complète avec le bouchon et l'éprouvette, est représenté ; un comportement élastique isotrope lui est attribué ($E = 200000\,\mathrm{MPa}$, $\nu = 0.3$). Le chargement (déplacement axial imposé) est appliqué à l'axe d'amarrage.

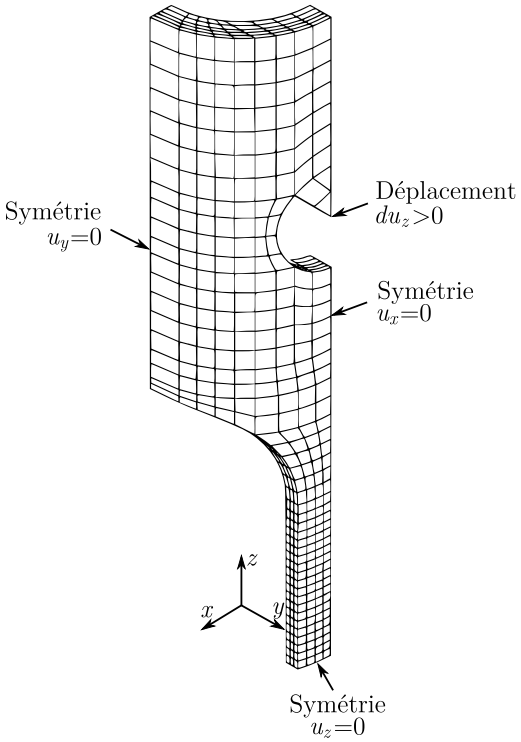


Figure I.1 – Maillage de l'éprouvette « bi–languettes » et conditions aux limites.

I.3 Traction circonférentielle

Un huitième de l'anneau de traction circonférentielle et des mandrins sont modélisés (figure I.2). Les symétries sont prises en compte à l'aide de conditions aux limites standards. Les mandrins sont supposés indéformables. Un contact frottant de type Coulomb est défini entre la paroi interne de l'éprouvette et la paroi externe des mandrins. Le chargement est appliqué à la section médiane de la longueur calibrée de l'éprouvette.

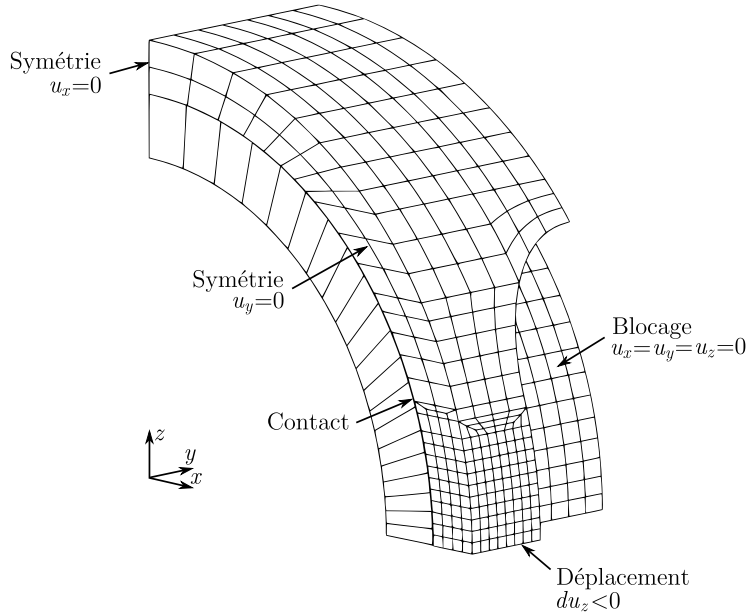


Figure I.2 – Maillage de l'anneau de traction circonférentielle et conditions aux limites.

I.4 Expansion due à la compression

I.4.1 Modèle 2D axisymétrique

L'essai d'expansion due à la compression est simulé à l'aide d'un modèle 2D axisymétrique. Le tube, la pastille et les pistons sont supposés alignés. Ainsi, seulement un quart de la section du dispositif est représenté. Le maillage et les conditions aux limites sont représentés sur la figure I.3. Un contact frottant de type Coulomb est introduit entre les différents éléments du montage. Le chargement est appliqué au sommet du piston, dont le comportement est supposé élastique isotrope ($E = 200000\,\mathrm{MPa}$, $\nu = 0.3$).

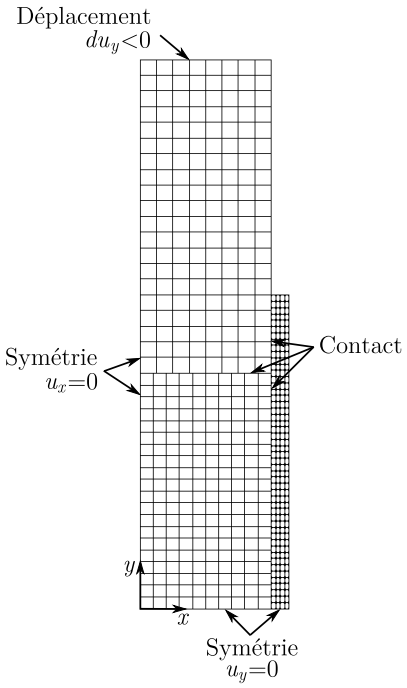


Figure I.3 – Maillage du modèle 2D axisymétrique (plan (r,z)) de l'essai d'expansion due à la compression et conditions aux limites.

I.4.2 Modèle 2D contraintes planes

Les essais EDC n'ont pu être simulés à l'aide du modèle 2D axisymétrique jusqu'à la rupture de l'échantillon, du fait des déformations extrêmement importantes de la pastille [2]. D'après les résultats obtenus avec le modèle 2D axisymétrique, l'échantillon de gaine est soumis, au niveau de son plan médian, à un chargement proche d'une traction uniaxiale selon la direction circonférentielle. Un modèle 2D en contraintes planes a donc été utilisé pour simuler les essais EDC jusqu'à la rupture de l'éprouvette. Pour cela, seule une portion de coupe (r,θ) de la gaine est représentée (figure I.4). Un défaut géométrique 1000 fois plus petit que l'épaisseur de l'échantillon est introduit pour forcer la localisation de la déformation dans une région donnée sans modifier le comportement de la structure. Pour simuler le gonflement de la pastille lors de l'essai réel, la paroi interne de l'éprouvette est soumise à un déplacement radial imposé.

[2] Une solution permettant de simuler la totalité de l'essai serait d'utiliser une technique de remaillage.

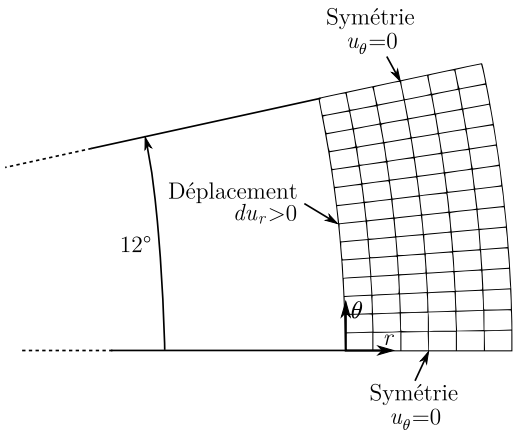


Figure I.4 – Maillage du modèle 2D contraintes planes (plan (r,θ)) de l'essai d'expansion due à la compression et conditions aux limites.

I.5 Traction plane circonférentielle

I.5.1 Modèle 3D

Outre les dimensions de l'éprouvette et des mandrins, le modèle utilisé pour simuler l'essai de traction plane circonférentielle sur anneau large est similaire à celui adopter pour l'essai de traction circonférentielle (annexe I.3). La figure I.6 représente le maillage et les conditions aux limites.

I.5.2 Modèle 2D

Pour réduire le nombre de degrés de liberté, et par conséquent le temps de calcul [3], un modèle simplifié de l'essai de traction plane circonférentielle a été utilisé. La déformation axiale étant quasiment nulle au centre de l'éprouvette, un modèle 2D en déformations planes, représentant la section médiane (r,θ) de l'anneau et des mandrins, a été retenu pour simuler les essais pour lesquels la rupture s'est amorcée dans la zone de déformation plane [4]. Seul un quart de la section est modélisé (figure I.6). Un contact frottant est introduit entre la paroi interne de l'éprouvette et la paroi externe des mandrins supposés infiniment rigides. Le chargement est appliqué au centre de la longueur calibrée de l'éprouvette.

[3] Comme précisé en section 4.3, il est nécessaire de raffiner considérablement le maillage dans les zones susceptibles de s'endommager.

[4] Ce modèle n'est pas représentatif du comportement de l'éprouvette à proximité des encoches.

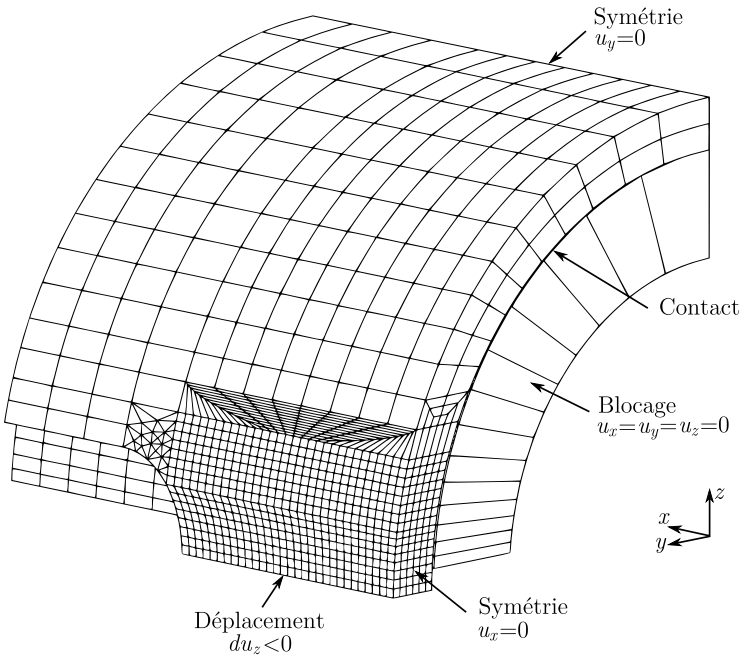


Figure I.5 – Maillage de l'anneau large de traction plane circonférentielle et conditions aux limites.

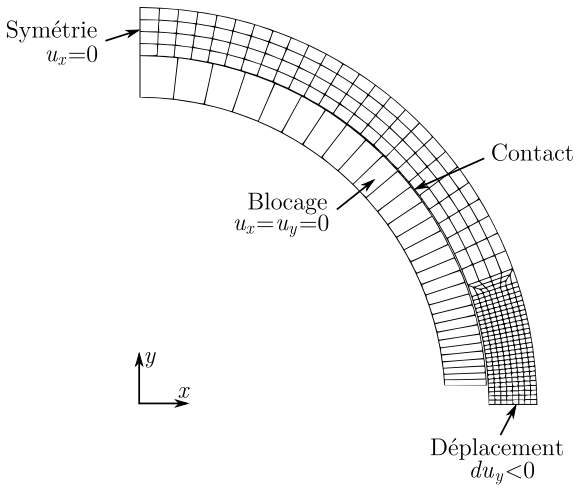


Figure I.6 – Maillage du modèle 2D en déformations planes (plan (r,θ)) de l'anneau de traction plane circonférentielle et conditions aux limites.

I.6 Ecrasement

L'essai d'écrasement sur anneau est simulé à l'aide d'un modèle 2D en déformations planes. Une quart de la section est modélisé (figure I.7). Un contact frottant (coefficient de frottement de 0.2) est défini entre la paroi externe de l'échantillon et les plateaux de compression, supposés indéformables. Le déplacement imposé est appliqué au plateau supérieur tandis que le plateau inférieur est fixe.

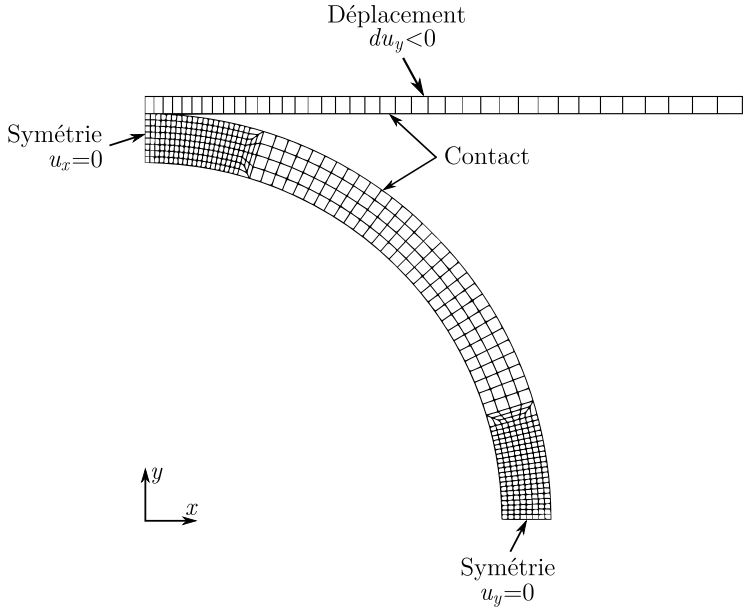


Figure I.7 – Maillage du modèle 2D en déformations planes (plan (r,θ)) de l'essai d'écrasement et conditions aux limites.

Bibliographie

Adamson, R. (2000). Effects of neutron irradiation on microstructure and properties of Zircaloy. In : *12th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1354*, pp. 15–31. Toronto, Canada.

Adamson, R., Bell, W. (1985). Effects of neutron irradiation and oxygen content on the microstructure and mechanical properties of Zircaloy. In : *Microstructure and mechanical behaviour of materials, international symposiums*, volume 1, pp. 237–246. Xian, China.

Ahn, J., Nam, S. (1990). The effect of dynamic strain ageing on the anomalous strain rate dependent tensile strain of Zircaloy–4. *Materials Letters* 9(10), 413–415.

Arsène, S. (1997). Effet de la microstructure et de la température sur la transition ductile–fragile des Zircaloy hydrurés. Ph.D. thesis, Ecole Centrale Paris, France.

Arsène, S., Bai, J. (1998). A new approach to measuring transverse properties of structural tubing by a ring test – experimental investigation. *Journal of Testing and Evaluation* 26(1), 26–30.

Arsène, S., Bai, J., Bompard, P. (2003a). Hydride embrittlement and irradiation effects on the hoop mechanical properties of Pressurized Water Reactor (PWR) and Boiling–Water Reactor (BWR) Zircaloy cladding tubes : Part I. Hydride embrittlement in stress–relieved, annealed, and recrystallized Zircaloys at 20 °C and 300 °C. *Metallurgical and Materials Transactions A* 34A, 553–566.

Arsène, S., Bai, J., Bompard, P. (2003b). Hydride embrittlement and irradiation effects on the hoop mechanical properties of Pressurized Water Reactor (PWR) and Boiling–Water Reactor (BWR) Zircaloy cladding tubes : Part III. Mechanical behavior of hydride in stress–relieved annealed and recrystallized Zircaloys at 20 °C and 300 °C. *Metallurgical and Materials Transactions A* 34A, 579–588.

Asserin-Lebert, A., Besson, J., Gourgues, A. (2005). Fracture of 6056 aluminum sheet materials : effect of specimen thickness and hardening behavior on strain localization and toughness. *Materials Science and Engineering A* 395, 186–194.

Bae, B., Cho, S., Seok, C. (2008). A study on ring tensile specimens. *Materials Science and Engineering A* 483–484, 248–250.

Bai, J., Gilbon, N., Ji, D., Prioul, C., François, D. (1994a). Hydride embrittlement in Zircaloy–4 plate. Part II : Interaction between the tensile stress and hydride morphology. *Metallurgical and Materials Transactions A* 25, 1199–1208.

Bai, J., Prioul, C., François, D. (1994b). Hydride embrittlement in Zircaloy–4 plate. Part I : Influence of microstructure on the hydride embrittlement in Zircaloy–4 at 20 °C and 350 °C. *Metallurgical and Materials Transactions A* 25, 1185–1197.

Balourdet, M., Bernaudat, C., Basini, V., Hourdequin, N. (1999). The PROMETRA programme : Assessment of mechanical properties of Zircaloy–4 fuel cladding during an RIA. In : *15th International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology*, C04/4, pp. II–485–II–492. Seoul, Korea.

Bandstra, J., Goto, D., Koss, D. (1998). Ductile failure as a result of a void–sheet instability : experiment and computational modeling. *Materials Science and Engineering A* 249, 46–54.

Bao, Y., Wierzbicki, T. (2004). On fracture locus in the equivalent strain and stress triaxiality space. *International Journal of Mechanical Sciences* 46, 81–98.

Barraclough, K., Beevers, C. (1969). Some observations on the deformation characteristics of bulk polycristalline zirconium hydrides. Part 1 – The deformation and fracture of hydrides based on the δ–phase. *Journal of Materials Science* 4, 518–525.

Barsoum, I., Faleskog, J. (2007a). Rupture mechanisms in combined tension and shear – Experiments. *International Journal of Solids and Structures* 44, 1768–1786.

Barsoum, I., Faleskog, J. (2007b). Rupture mechanisms in combined tension and shear – Micromechanics. *International Journal of Solids and Structures* 44, 5481–5498.

Bates, D., Koss, D., Motta, A., Majumbdar, S. (2000). Influence of specimen design on the deformation and failure of Zircaloy cladding. In : *International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance*, pp. 1201–1210. Park City, Utah.

Bauer, A., Lowry, L. (1978). Tensile properties and annealing characteristics of H.B. Robinson spent fuel cladding. *Nuclear Technology* 41, 359–372.

Becker, R., Needleman, A., Richmond, O., V., T. (1988). Void growth and failure in notched bars. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 36, 317–351.

Benzerga, A., Besson, J. (2001). Plastic potentials for anisotropic porous solids. *European Journal of Mechanics* 20A(3), 397–434.

Benzerga, A., Besson, J., Batisse, R., Pineau, A. (2002). Synergistic effects of plastic anisotropy and void coalescence on fracture mode in plane strain. *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering* 10, 73–102.

Benzerga, A., Besson, J., Pineau, A. (2004). Anisotropic ductile fracture. Part II : theory. *Acta Materialia* 52, 4639–4650.

Berat-Robert, L. (2001). Influence de la zircone sur le comportement en fluage des gaines de combustible en Zircaloy–4. Ph.D. thesis, Ecole Centrale Paris, France.

Berat-Robert, L., Limon, R., Pelchat, J., Cappelaere, C., Maury, R., Pelé, J., Prioul, C., Bouffioux, P., Diz, J. (2000). Influence of a zirconia layer on the mechanical behavior of Zircaloy–4 claddings and thimble tubes. In : *International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance*. Park City, Utah.

Bernaudat, C., Pupier, P. (2005). A new analytical approach to study the rod ejection accident in PWRs. In : *International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance*, pp. 602–614. Kyoto, Japan.

Bertolino, G., Meyer, G., Perez Ipiña, J. (2003). Effects of hydrogen content and temperature on fracture toughness of Zircaloy–4. *Journal of Nuclear Materials* 320, 272–279.

Bertolino, G., Meyer, G., Perez Ipiña, J. (2006). Influence of the crack-tip hydride concentration on the fracture toughness of Zircaloy–4. *Journal of Nuclear Materials* 348, 205–212.

Besson, J., Berdin, C., Bugat, S., Desmorat, R., Feyel, F., Forest, S., Lorentz, E., Maire, E., Pardoen, T., Pineau, A., Tanguy, B. (2004). *Local approach to fracture*. Les Presses de l'Ecole des Mines de Paris.

Besson, J., Devillers-Guerville, L., Pineau, A. (2000). Modeling of scatter and size effect in ductile fracture : application to thermal embrittlement of duplex stainless steels. *Engineering Fracture Mechanics* 67, 169–190.

Besson, J., Guillemer-Neel, C. (2003). An extension of the Green and Gurson models to kinematic hardening. *Mechanics of Materials* 35, 1–18.

Besson, J., Steglich, D., Brocks, W. (2003). Modeling of plane strain ductile rupture. *International Journal of Plasticity* 19, 1517–1541.

Billone, M. (2001). The mechanical properties experts group update on Round Robin test results. Report, Argonne, USA.

Blat, M., Legras, L., Noel, D., Amanrich, H. (2000). Contribution to a better understanding of the detrimental role of hydrogen on the corrosion rate of Zircaloy–4 cladding materials. In : *12th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1354*, pp. 563–591. Toronto, Canada.

Bossis, P., Pêcheur, D., Hanifi, K., Thomazet, J., Blat, M. (2005). Comparison of the high burn–up corrosion on M5 and low tin Zircaloy–4. In : *14th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1467*, volume 3, pp. 494–525. Stockholm, Sweden.

Bouffioux, P., Rupa, N. (2000). Impact of hydrogen on plasticity and creep of unirradiated Zircaloy–4 cladding tubes. In : *12th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1354*, pp. 399–424. Toronto, Canada.

Brachet, J., Portier, L., Forgeron, T., Hivroz, J., Hamon, D., Guilbert, T., Bredel, T., Yvon, P., Mardon, J., Jacques, P. (2002). Influence of hydrogen content on the α/β phase transformation temperatures and on the thermal-mechanical behavior of Zy–4, M4 (ZrSnFeV), and M5^{TM} (ZrNbO) alloys during the first phase of LOCA transient. In : *13th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1423*, pp. 673–701. Annecy, France.

Bradbrook, J., Lorimer, G., Ridley, N. (1972). The precipitation of zirconium hydride in zirconium and Zircaloy–2. *Journal of Nuclear Materials* 42, 142–160.

Bron, F., Besson, J. (2006). Simulation of the ductile tearing for two grades of 2024 aluminum alloy thin sheets. *Engineering Fracture Mechanics* 73, 1531–1552.

Buffière, J., Maire, E., Cloetens, P., Lormand, G., Fougères, R. (1999). Characterization of internal damage in a MMCp using X–ray synchrotron phase contrast microtomography. *Acta Materialia* 47(5), 1613–1625.

Caré, S., Zaoui, A. (1996). Cavitation at triple nodes in α–zirconium polycrystals. *Acta Materialia* 44(4), 1323–1336.

Cazalis, B., Desquines, J., Poussard, C., Petit, M., Monerie, Y., Bernaudat, C., Yvon, P., Averty, X. (2007). The PROMETRA program : Fuel cladding mechanical behavior under high strain rate. *Nuclear Technology* 157, 215–229.

Chan, K. (1995). A fracture model for hydride–induced embrittlement. *Acta Metallurgica Materialia* 43(12), 4325–4335.

Chan, K. (1996). A micromechanical model for predicting hydride embrittlement in nuclear fuel cladding material. *Journal of Nuclear Materials* 227, 220–236.

Charquet, D., Hahn, R., Ortlieb, E., Gros, J., Wadier, J. (1989). Solubility limits and formation of intermetallic precipitates in ZrSnFeCr. In : *8th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1023*, pp. 405–422. Philadelphia, USA.

Chen, F., Chen, C. (2000). On the nonuniform deformation of the cylinder compression test. *Journal of Engineering Materials and Technology* 122, 192–197.

Cheng, B., Gilmore, P., Klepfer, H. (1996). PWR Zircaloy fuel cladding corrosion performance, mechanisms, and modeling. In : *11th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1295*, pp. 137–160. Garmisch-Partenkirchen, Germany.

Christodoulou, N., St Lawrence, S., Chow, C. (2007). Irradiation strengthening and effect of test temperature on Zr–2.5Nb pressure tube material. In : *19th International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology*, D03/1. Toronto, Canada.

Chu, C., Needleman, A. (1980). Void nucleation effects in biaxially stretched sheets. *Journal of Engineering Materials and Technology* 102, 249–256.

Chu, H., Wu, S., Kuo, R. (2008). Hydride reorientation in Zircaloy–4 cladding. *Journal of Nuclear Materials* 373, 319–327.

Chu, H., Wu, S., Chien, K., Kuo, R. (2007). Effect of radial hydrides on the axial and hoop mechanical properties of Zircaloy–4 cladding. *Journal of Nuclear Materials* 362, 93–103.

Chung, H. (2000). Fundamental metallurgical aspects of axial splitting in Zircaloy cladding. In : *International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance*, pp. 325–344. Park City, Utah.

Chung, H., Daum, R., Hiller, J., Billone, M. (2002). Characteristics of hydride precipitation and reorientation in spent–fuel cladding. In : *13th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1423*, pp. 561–582. Annecy, France.

Chung, H., Kassner, T. (1998). Cladding metallurgy and fracture behavior during reactivity–initiated accidents at high burnup. *Nuclear Engineering and Design* 186, 411–427.

Coleman, C., Hardie, D. (1966). The hydrogen embrittlement of alpha zirconium – a review. *Journal of Less-Common Metals* 2, 168–185.

Cox, T., Low, J. (1974). An investigation of the plastic fracture of AISI 4340 and 18 nickel–200 grade maraging steels. *Metallurgical Transactions* 5, 1457–1470.

Cunningham, M., Beyer, C., Medvedev, P., Berna, G. (2001). FRAPTRAN : A computer code for the transient analysis of oxide fuel rods. Report NUREG/CR-6739, Vol. 1, PNNL-13576, Nuclear Regulatory Commission and Pacific Northwest National Laboratory.

Daum, R., Bates, D., Koss, D., Motta, A. (2002a). The influence of a hydrided layer on the fracture of Zircaloy–4 cladding tubes. In : *International Conference on Hydrogen Effects on Material Behavior and Corrosion Deformation Interactions*, pp. 249–259. Moran, Wyoming.

Daum, R., Majumbdar, S., Liu, W., Billone, M. (2006). Radial–hydride embrittlement of high–burnup Zircaloy–4 fuel cladding. *Journal of Nuclear Science and Technology* 43(9), 1054–1067.

Daum, R., Majumdar, S., Tsai, H., Billone, M., Koss, D., Bates, D., Motta, A. (2002b). Embrittlement of hydrided Zircaloy–4 under RIA–like conditions. In : *13th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1423*, pp. 702–719. Annecy, France.

Daum, R., Majumdar, S., Tsai, H., Bray, T., Koss, D., Motta, A., Billone, M. (2002c). Mechanical property testing of irradiated Zircaloy cladding under reactor transient conditions. In : *4th International Symposium on Small Specimen Test Techniques, ASTM STP 1418*, pp. 195–210. Reno, Nevada.

Delobelle, P., Robinet, P., Geyer, P., Bouffioux, P. (1996). A model to describe the anisotropic viscoplastic behaviour of Zircaloy–4 tubes. *Journal of Nuclear Materials* 238, 135–162.

Derep, J., Ibrahim, S., Rouby, R., Fantozzi, G. (1979). Deformation behaviour of Zircaloy–4 between 77 and 900 K. *Acta Metallurgica* 28, 607–619.

Desquines, J., Busser, V., Perales, F. (2005a). Simulating hydride embrittlement on cold–worked stress–relieved Zircaloy–4 with Gurson–Tvergaard–Needleman damage model. In : *18th International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology*, G03/3, pp. 1508–1515. Beijing, China.

Desquines, J., Cazalis, B., Bernaudat, C., Poussard, C., Averty, X., Yvon, P. (2005b). Mechanical properties of Zircaloy–4 PWR fuel cladding with burnup 54-64 MWd/kgU and implications for RIA behavior. In : *14th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1467*, volume 2, pp. 851–872. Stockholm, Sweden.

Desquines, J., Fleurot, J. (2005). The use of elastic plastic fracture mechanics for cladding failure analysis under RIA transients. Réunion Crocodile.

Desquines, J., Georgenthum, V., Lemoine, F., Cazalis, B. (2005c). The fracture and spallation of zirconia layers in high burnup PWR fuel claddings submitted to RIA transients. In : *18th International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology*, C03/1, pp. 444–453. Beijing, China.

Devillers-Guerville, L. (1998). Rupture d'aciers inoxydables austéno–ferritiques moulés, fragilisés par vieillissement à 350–400 °C : Aspects microstructuraux – simulation numérique de la dispersion et des effets d'échelle. Ph.D. thesis, Ecole des Mines de Paris, France.

Doan, D. (En cours). Comportement et rupture d'alliages de zirconium des gaines de crayon combustible des centrales nucléaires en situation accidentelle de type RIA. Ph.D. thesis, Ecole des Mines de Paris, France.

Dong, M., Prioul, C., François, D. (1997). Damage effect on the fracture toughness of nodular cast iron : Part I damage characterization and plastic flow stress modelling. *Metallurgical and Materials Transactions A* 28, 2245–2254.

Doumalin, P. (2005). Microextensométrie locale par corrélation d'images numériques. Ph.D. thesis, Ecole Polytechnique, France.

Dufourneaud, O., Varias, A., Grigoriev, V., Jakobsson, R., Schrire, D. (2002). Elastic–plastic deformation of a nuclear fuel cladding specimen under the internal pressure of a polymer pellet. In : *5th World Congress on Computational Mechanics*. Vienna, Austria.

Dunlop, J., Bréchet, Y., Legras, L., Zurob, H. (2007). Modelling isothermal and non–isothermal recrystallisation kinetics : Application to Zircaloy–4. *Journal of Nuclear Materials* 366(1-2), 178–186.

Durocher, A., Cauvin, R. (1986). Validation par comparaison des différentes géométries d'éprouvettes de traction prélevées sur gaines. Report NT SRMA 86-1524, CEA, Saclay.

El Guerjouma, R., Baboux, J., Ducret, D., Godin, N., Guy, P., Huguet, S., Jayet, Y., Monnier, T. (2001). Non–destructive evaluation of damage and failure of fibre reinforced polymer composites using ultrasonic waves and acoustic emission. *Advanced Engineering Materials* 3(8), 601–608.

Elbachiri, K., Crepin, J., Bretheau, T., Rebeyrolle, V. (2003). Influence de la microstructure des alliages de zirconium sur leur sensibilité à la vitesse de déformation et à la température. In : *16ème Congrès Français de Mécanique*. Nice, France.

Ells, C. (1968). Hydride precipitation in zirconium alloys. *Journal of Nuclear Materials* 28, 129–151.

Ells, C. (1970). Stress orientation in hydride in zirconium alloys. *Journal of Nuclear Materials* 35, 306–315.

Erwin, K., Delaire, O., Motta, A., Chu, Y., Mancini, D., Birtcher, R. (2001). Observation of second–phase particles in bulk zirconium alloys using synchroton radiation. *Journal of Nuclear Materials* 294(3), 299–304.

Fabrègue, D., Pardoen, T. (2008). A constitutive model for elastoplastic solids containing primary and secondary voids. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 56(3), 719–741.

Faleskog, J., Fong Shih, C. (1997). Micromechanics of coalescence – I. Synergistic effects of elasticity, plastic yielding and multi–size–scale voids. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 45(1), 21–50.

Fandeur, O. (2001). Etude expérimentale et modélisation mécanique de la corrosion sous contrainte des gaines en Zircaloy–4. Ph.D. thesis, Ecole Centrale Paris, France.

Fearnehough, G., Cowan, A. (1967). The effect of hydrogen and strain rate on the "ductile-brittle" behaviour of Zircaloy. *Journal of Nuclear Materials* 22, 127–147.

Federici, E., Lamare, F., Bessiron, V., Papin, J. (2001). The SCANAIR code version 3.2 : Main features and status of qualification. In : *Technical Committee Meeting on Fuel Behaviour Under Transient and LOCA Conditions, IAEA-TECDOC-1320*, pp. 88–101. Halden, Norway.

Fuketa, T., Nagase, F., Ishijima, K., Fujishiro, T. (1996). NSRR/RIA experiments with high–burnup PWR fuels. *Nuclear Safety* 37(4), 328–342.

Fuketa, T., Nakamura, T., Sasajima, H., Nagase, F., Uetsuka, H., Kikuchi., K., Abe, T. (2000). Behavior of PWR and BWR fuels during reactivity–initiated accident conditions. In : *International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance*. Park City, Utah.

Fuketa, T., Sasajima, H., Mori, Y., Ishijima, K. (1997). Fuel failure and fission gas release in high burnup PWR fuels under RIA conditions. *Journal of Nuclear Materials* 248, 249–256.

Fuketa, T., Sasajima, H. Sugiyama, T. (2001). Behavior of high burnup PWR fuels with low–tin Zircaloy–4 cladding under reactivity–initiated–accident conditions. *Nuclear Technology* 133(1), 50–62.

Fuketa, T., Sugiyama, T., Nagase, F. (2006). Behavior of 60 to 78 MWd/kgU PWR fuels under reactivity–initiated accident conditions. *Journal of Nuclear Science and Technology* 43(9), 1080–1088.

Fuketa, T., Sugiyama, T., Sasajima, H., Nagase, F. (2005). NSRR RIA–simulating experiments on high burnup LWR fuels. In : *International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance*, pp. 633–645. Kyoto, Japan.

Gao, X., Kim, J. (2005). Modeling of ductile fracture : Significance of void coalescence. *International Journal of Solids and Structures* 43, 6277–6293.

Garde, A. (1989). Effects of irradiation and hydriding on the mechanical properties of Zircaloy–4 at high fluence. In : *8th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1023*, pp. 548–569. Philadelphia, USA.

Garde, A., Smith, G., Pirek, R. (1996). Effects of hydride precipitate localization and neutron fluence on the ductility of irradiated Zircaloy–4. In : *11th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1295*, pp. 407–430. Garmisch-Partenkirchen, Germany.

Garzarolli, F., Goll, W., Seibold, A., Ray, I. (1996). Effect of in–PWR irradiation on size structure, and composition of intermetallic precipitates of Zr alloys. In : *11th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1295*, pp. 541–556. Garmisch-Partenkirchen, Germany.

Georgenthum, V., Desquines, J., Bessiron, V. (2006). Influence of outer zirconia transient cracking and spalling on thermomechanical behaviour of high burnup

fuel rod submitted to RIA. *Journal of Nuclear Science and Technology* 43(9), 1089–1096.

Geyer, P. (1999). Comportement élasto–viscoplastique de tubes en Zircaloy–4 : Approche expérimentale et modélisation micromécanique. Ph.D. thesis, Ecole des Mines de Paris, France.

Gilbon, D., Simonot, C. (1994). Effect of irradiation on the microstructure of Zircaloy–4. In : *10th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1245*, pp. 521–548. Baltimore, MD.

Glendening, A., Koss, D., Motta, A., Pierron, O., Daum, R. (2005). Failure of hydrided Zircaloy–4 under equal-biaxial and plane–strain tensile deformation. In : *14th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1467*, volume 2, pp. 833–848. Stockholm, Sweden.

Goguel, R., Poussard, C., Gennisson, M. (2005a). PROMETRA : Développement et mise en oeuvre à froid de la technique de corrélation d'images par la mesure de déformation à rupture sur anneaux de type PENN STATE. Report DMN/SEMI/LCMI/NT/2005-001/A, CEA, Saclay.

Goguel, R., Poussard, C., Limon, R. (2005b). Identification d'une loi de déformation viscoplastique anisotrope pour le Zircaloy–4 détendu applicable à la sollicitation RIA. Report DMN/SEMI/LCMI/NT/2005-033/A, CEA, Saclay.

Gologanu, M., Leblond, J., Devaux, J. (1993). Approximate models for ductile metals containing non-spherical voids – case of axisymmetric prolate ellipsoidal cavities. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 41, 1723–1754.

Gologanu, M., Leblond, J., Devaux, J. (1994). Approximate models for ductile metals containing non-spherical voids – case of axisymmetric oblate ellipsoidal cavities. *Journal of Engineering Materials And Technology* 116, 290–297.

Graff, S. (2006). Viscoplastic behavior of zirconium alloys in the temperatures range 20 °C–400 °C : characterization and modeling of strain ageing phenomena. Ph.D. thesis, Ecole des Mines de Paris, France.

Grange, M. (1998). Fragilisation du Zircaloy–4 par l'hydrogène : comportement, mécanismes d'endommagement, interaction avec la couche d'oxyde, simulation numérique. Ph.D. thesis, Ecole des Mines de Paris, France.

Grange, M., Besson, J., Andrieu, E. (2000a). Anisotropic behavior and rupture of hydrided Zircaloy–4 sheets. *Metallurgical and Materials Transactions A* 31, 679–690.

Grange, M., Besson, J., Andrieu, E. (2000b). An anisotropic Gurson type model to represent the ductile rupture of hydrided Zircaloy–4 sheets. *Internal Journal of Fracture* 105, 273–293.

Griffiths, M. (1988). A review of microstructural evolution in zirconium alloys during irradiation. *Journal of Nuclear Materials* 159, 190–218.

Griffiths, M., Chow, C., Coleman, C., Holt, R., Sagat, S., Urbanic, V. (1994). Evolution of microstructure in zirconium alloy core components of nuclear reactors during service. In : *Effects of Radiation on Materials : 16th International Symposium, ASTM STP 1175*, pp. 1077–1110. Philadelphia, PA.

Grigoriev, V., Jakobsson, R., Schrire, D. (2001). Experimental evaluation of critical strain energy density for irradiated cladding under simulated RIA conditions. In : *ENS Topfuel 2001*. Stockholm, Sweden.

Grigoriev, V., Josefsson, B., Rosborg, B. (1996). Fracture toughness of Zircaloy cladding tubes. In : *11th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1295*, pp. 431–447. Garmisch-Partenkirchen, Germany.

Gurson, A. (1977). Continuum theory of ductile rupture by void nucleation and growth : Part I – Yield criteria and flow rules for porous ductile media. *Journal of Engineering Materials and Technology* 99, 2–15.

Hao, S., Brocks, W. (1997). The Gurson–Tvergaard–Needleman–model for rate and temperature–dependent materials with isotropic and kinematic hardening. *Computational Mechanics* 20, 34–40.

Hermann, A., Yagnik, S., Gavillet, D. (2007). Effect of local hydride accumulations on Zircaloy cladding mechanical properties. In : *15th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry*. Sunriver, Oregon.

Higgy, H., Hammad, F. (1972). Effect of neutron irradiation on the tensile properties of Zircaloy–2 and Zircaloy–4. *Journal of Nuclear Materials* 44, 215–227.

Hill, R. (1950). *The Mathematical Theory of Plasticity*. Clarendon Press, Oxford.

Hill, R. (1952). On discontinuous plastic states, with special reference to localized necking in thin sheets. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 1, 19–30.

Hobson, D. (1973). Ductile–brittle behavior of Zircaloy fuel cladding. In : *ANS Topical Meeting on Water Reactor Safety*, pp. 274–288. Salt Lake City, Utah.

Hong, H., Kim, S., Lee, K. (1996). Effects of alloying elements on the tensile properties and oxidation behavior of modified Zircaloy–4 in 360 °C water. *Journal of Nuclear Materials* 238(2-3), 211–217.

Hong, S., Lee, K. (2005). Stress–induced reorientation of hydrides and mechanical properties of Zircaloy–4 cladding tubes. *Journal of Nuclear Materials* 340, 203–208.

Hong, S., Lee, K., Kim, K. (2002). Effect of the circumferential hydrides on the deformation and fracture of Zircaloy cladding tubes. *Journal of Nuclear Materials* 303, 169–176.

Hsu, H. (2006). An evaluation of hydrided Zircaloy–4 cladding fracture behavior by X–specimen test. *Journal of Alloys and Compounds* 426, 256–262.

Huang, F. (1993). Brittle–fracture potential of irradiated Zircaloy–2 pressure tubes. *Journal of Nuclear Materials* 207, 103–115.

Huang, J., Huang, S. (1994). Effect of hydrogen contents on the mechanical properties of Zircaloy–4. *Journal of Nuclear Materials* 208, 166–179.

Huang, P., Mahmood, T., Adamson, R. (1996). Effects of thermomechanical processing on in–reactor corrosion and post–irradiation mechanical properties of Zircaloy–2. In : *11th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1295*, pp. 726–755. Garmisch-Partenkirchen, Germany.

Jernkvist, L. (1999). A model for inelastic deformation of irradiated Zirconium alloy cladding under transient conditions. In : *15th International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology*, C04/3, pp. II–477–II–484. Seoul, Korea.

Jernkvist, L. (2006). Computational assessment of burnup–dependent fuel failure thresholds for reactivity initiated accidents. *Journal of Nuclear Science and Technology* 43(5), 546–561.

Jernkvist, L., Massih, A., Rudling, P. (2003). A strain–based clad failure criterion for reactivity initiated accidents in light water reactors. Report TR 03-008, Quantum Technologies, Sweden.

Kammenzind, B., Franklin, D., Duffin, W., Peters, H. (1996). Hydrogen pickup and redistribution in alpha–annealed Zircaloy–4. In : *11th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1295*. Garmisch-Partenkirchen, Germany.

Kaufmann, P., Baroch, E. (1974). Potential for improvement of mechanical properties in Zircaloy cold-rolled strip and sheet. In : *Symposium on Zirconium in Nuclear Applications, ASTM STP 551*, pp. 129–139. Portland, Oregon.

Kearns, J. (1967). Terminal solubility and partitioning of hydrogen in the alpha phase of zirconium, Zircaloy–2 and Zircaloy–4. *Journal of Nuclear Materials* 22(3), 292–303.

Kelly, P., Smith, P. (1973). Strain ageing in zirconium–oxygen alloys. *Journal of Nuclear Materials* 46, 23–34.

Kim, J., Lee, M., Choi, B., Jeong, Y. (2006). Effects of oxide and hydrogen on the circumferential mechanical properties of Zircaloy–4 cladding. *Nuclear Engineering and Design* 236, 1867–1873.

Kim, J., Lee, M., Choi, B., Jeong, Y. (2007a). Effect of the hydrogen contents on the circumferential mechanical properties of zirconium alloy claddings. *Journal of Alloys and Compounds* 431, 155–161.

Kim, J., Lee, M., Choi, B., Jeong, Y. (2007b). Failure behavior of Zircaloy–4 cladding after oxidation and water quench. *Journal of Nuclear Materials* 362(1), 36–45.

Kim, J., Lee, M., Jeong, Y., Lim, J. (2008). Behavior of zirconium fuel cladding under fast pressurization rates. *Nuclear Engineering and Design* 238(6), 1441–1447.

Kim, S., Bang, J., Kim, D., Kim, Y., Yang, Y., Lee, C., Ahn, S., Kim, D., Oh, W., Seo, H. (2005). Evaluation of mechanical strength and ductility of high burn-up nuclear fuel cladding. In : *International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance*. Kyoto, Japan.

Klöcker, H., Tvergaard, V. (2003). Growth and coalescence of non–spherical voids in metals deformed at elevated temperature. *International Journal of Mechanical Sciences* 45(8), 1283–1308.

Kuroda, M., Yamanaka, S. (2002). Assessment of the combined effects of irradiation and hydrogenation on the fracture behavior of Zircaloy fuel claddings by fracture mechanics. *Journal of Nuclear Science and Technology* 39(3), 234–240.

Kuroda, M., Yamanaka, S., Nagase, F., Uetsuka, H. (2001). Analysis of the fracture behavior of hydrided fuel cladding by fracture mechanics. *Nuclear Engineering and Design* 203, 185–194.

Le Saux, M., Besson, J., Carassou, S., Poussard, C., Averty, X. (2008). A model to describe the anisotropic viscoplastic mechanical behavior of fresh and irradiated Zircaloy–4 fuel claddings under RIA loading conditions. *Journal of Nuclear Materials* 378, 60–69.

Le Saux, M., Poussard, C., Averty, X., Sainte Catherine, C., Besson, J. (2007). High temperature expansion due to compression test for the determination of a cladding material failure criterion under RIA loading conditions. In : *International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance*, pp. 526–535. San Francisco, California.

Leblond, J., Perrin, G., Devaux, J. (1995). An improved Gurson–type model for hardenable ductile metals. *European Journal of Mechanics A/Solids* 14, 499–527.

Leblond, J., Perrin, G., Suquet, P. (1994). Exact results and approximate models for porous viscoplastic solids. *International Journal of Plasticity* 10, 213–235.

Leclercq, S., Parrot, A., Leroy, M. (2008). Failure characteristics of cladding tubes under RIA conditions. *Nuclear Engineering and Design* 238(9), 2206–2218.

Leclercq, S., Rousselier, G., Cailletaud, G. (2007). A generic method for modeling the behavior of anisotropic metallic materials : Application to recrystallized zirconium alloys. *Mechanics of Materials* 39, 458–472.

Lee, D., Adamson, R. (1977). Modeling of localized deformation in neutron irradiated Zircaloy–2. In : *3rd International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 633*, pp. 385–401. Quebec, Canada.

Lee, K., Kim, S., Kim, K., Hong, S. (2001). Ductility and strain rate sensitivity of Zircaloy–4 nuclear fuel claddings. *Journal of Nuclear Materials* 295, 21–26.

Lee, M., Kim, J., Choi, B., Jeong, Y. (2007). Mechanical properties and dynamic strain aging behavior of Zr–1.5Nb–0.4Sn–0.2Fe alloy. *Journal of Alloys and Compounds* 428, 99–105.

Legrand, A., Gélébart, L., Maury, R., Allais, L. (2002). Qualification de la machine de sollicitations biaxées en traction/compression – pression interne : essais de chargement monotone à rapport de biaxialité constant sur Zircaloy–4 détendu et recristallisé. Report NT SRMA 2002-2520, CEA, Saclay.

Lelièvre, G., Fruchart, D., Convert, P., Lefèvre-Joud, F. (2002). Characterisation by neutron diffraction in high temperature pressurised water of the surface corrosion and hydrogen embrittlement of Zircaloy–4. *Journal of Alloys and Compounds* 347, 288–294.

Lemaignan, C., Motta, A. (1994). *Zirconium Alloys in Nuclear Applications, Nuclear Materials, Vol. 10, Materials Science and Technology series*. R.W. Cahn, P. Haasen, E.J. Kramer, B.R.T. Frost edition.

Lemaitre, J., Chaboche, J. (1985). *Mécanique des matériaux solides*. Dunod, Paris.

Lemoine, F. (1997). High burnup fuel behavior related to fission gas effects under reactivity initiated accidents (RIA) conditions. *Journal of Nuclear Materials* 248, 238–248.

Lemoine, F., Balourdet, M. (1997). RIA related analytical studies and separate effect tests. In : *International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance*, pp. 693–703. Portland, Oregon.

Liao, K., Pan, J., Tang, S. (1997). Approximate yield criteria for anisotropic porous ductile sheet metals. *Mechanics of Materials* 26(4), 213–226.

Limon, R. (2001). Contraintes moyennes dans un tube cylindrique soumis à un essai en pression interne ou externe. Report SEMI/LEMO/RT/01-015/A, CEA, Saclay.

Limon, R. (2002). Module Mistral (version 2.0) : Description du modèle général de déformation de matériau de gainage anisotrope. Report DMN/SEMI/LCMI/RT/02-017/A, CEA, Saclay.

Limon, R., Béchade, J., Lehmann, S., Maury, R., Soniak, A., Mardon, J. (1995). Influence de la température sur l'anisotropie plastique du Zircaloy–4. In : *Journées d'Etudes Propriétés – Microstructure, Le Zirconium*, pp. 133–143. Saclay, France.

Limon, R., Bentejac, F., Strub, C. (2004). Introduction du module MISTRAL (version 2) dans le code CAST3M (version 2004). Report DMN/SEMI/LCMI/NT/2004-025A, CEA, Saclay.

Limon, R., Lehmann, S., Pelchat, J. (1994a). Essais inter–laboratoires de traction, d'éclatement et de fluage – résultats du GEZA. Report NT SRMA 94-2066, CEA, Saclay.

Limon, R., Lehmann, S., Pelchat, J. (1994b). Validation des éprouvettes de traction longitudinale et transversale usinées. Report NT SRMA 94-2075, CEA, Saclay.

Limon, R., Lehmann, S., Pelchat, J. (1996). Coefficients de dilatation thermique du zirconium et de ses alliages. Point des connaissances et proposition pour les codes METEOR et TOUTATIS. Report SEMI/LEMO 96/08, CEA, Saclay.

Link, T., Koss, T., Motta, A. (1998). Failure of Zircaloy cladding under transverse plane-strain deformation. *Nuclear Engineering and Design* 186, 379–394.

Liu, Y., Murakami, S., Kanagawa, Y. (1994). Mesh–dependence and stress singularity in finite element analysis of creep crack growth by continuum damage mechanics approach. *European Journal of Mechanics A/Solids* 13(3), 395–417.

Lode, W. (1925). The influence of the intermediate principal stress on yielding and failure of iron, copper and nickel. *Eng. Math. Mech.* 5, 142.

Lowry, L., Markworth, A., Perrin, J., Landow, M. (1981). Evaluating strength and ductility of irradiated Zircaloy, Task 5 Experimental data final report. Report NUREG/CR-1729, BMI-2066, Vol. 1, US Nuclear Regulatory Commission.

MacDonald, P., Seiffert, S., Martinson, Z., McCardell, R., Owen, D., Fukuda, S. (1980). Assessment of light–water reactor fuel damage during a reactivity–initiated accident. *Nuclear Safety* 21(5), 582–602.

Mahmood, S., Daugherty, W., Murty, K. (1989). Anisotropic biaxial creep of Zircaloy cladding : Effects of recrystallization and neutron irradiation. In : *10th International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology*, C02/4, pp. 59–64. Anaheim, California.

Mahmood, S., Hussein, S., Godavarti, P., Murty, K. (1992). Impression testing to determine the effects of recrystallization and radiation on deformation anisotropy of Zircaloy TREX. In : *15th International Symposium on the Effects of Radiation on Materials, ASTM STP 1125*, pp. 337–354. Nashville, Tennessee.

Maire, E., Owen, A., Buffière, J., Withers, P. (2001). A synchrotron X–ray study of a Ti/SiCf composite during in situ straining. *Acta Materialia* 49, 153–163.

Mardon, J., Dunn, B. (2007). Overview of the M5 alloy behavior under RIA and LOCA conditions. In : *International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance*, pp. 496–514. San Francisco, California.

McClintock, F. (1966). A criterion for ductile fracture by the growth of holes. *Journal of Applied Mechanics* 35, 363–371.

McMinn, A., Darby, E., Schofield, J. (2000). The terminal solubility of hydrogen in zirconium alloys. In : *12th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1354*, pp. 173–195. Toronto, Canada.

Mear, M., Hutchinson, J. (1985). Influence of yield surface curvature on flow localization in dilatant plasticity. *Mechanics of Material* 4, 395–407.

Meyer, R., McCardell, R., Chung, H., Diamond, D., Scott, H. (1996). A regulatory assessment of test data for reactivity initiated accidents. *Nuclear Safety* 37, 271–288.

Meyer, R., McCardell, R., Scott, H. (1997). A regulatory assessment of test data for reactivity initiated accidents. In : *International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance*, pp. 729–744. Portland, Oregon.

Montgomery, R., Rashid, J., Dunham, R., Ozer, O., Yagnik, S., g, R. (2004). The mechanical response of cladding with a hydride lens under PCMI loading conditions. In : *International Seminar on Pellet-Clad Interaction in Water Reactor Fuels*. Aix-en-Provence, France.

Montgomery, R., Rashid, Y. (1997). Review and analysis of RIA–simulation experiments on intermediate and high burnup test rods. In : *International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance*, pp. 711–720. Portland, Oregon.

Motta, A. (2004). A review of the strain energy density (SED) approach to analyzing reactivity initiated accident (RIA) in high burnup fuel. Report EPRI proposal review submitted to NRC, Pennsylvania State University, USA.

Motta, A., Faldowski, J., Howe, L., Okamoto, P. (1996). In situ studies of phase transformations in zirconium alloys and compounds under irradiation. In : *11th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1295*, pp. 557–579. Garmisch-Partenkirchen, Germany.

Moulart, R. (2007). Développement et mise en oeuvre d'une méthode de mesure de champs de déformation à l'échelle micrométrique. Ph.D. thesis, Ecole Nationale Supérieure d'Arts et Métiers, France.

Mummery, P., Derby, B., Scruby, C. (1993). Acoustic emission from particulate-reinforced metal matrix composites. *Acta Metallurgica et Materialia* 41, 1431–1445.

Murty, K., Charit, I. (2006). Texture development and anisotropic deformation of Zircaloys. *Progress in Nuclear Energy* 48, 325–359.

Murty, K., Mahmood, S. (1991). Effects of recrystallization and neutron irradiation on creep anisotropy of Zircaloy cladding. In : *9th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1132*, pp. 198–217. Kobe, Japan.

Nagase, F., Fuketa, T. (2005). Investigation of hydride rim effect on failure of Zircaloy–4 cladding with tube burst test. *Journal of Nuclear Science and Technology* 42(1), 58–65.

Nahshon, K., Hutchinson, J. (2008). Modification of the Gurson model for shear failure. *European Journal of Mechanics A/Solids* 27, 1–17.

Nakamura, T., Yoshinaga, M., Takahashi, M., Okonogi, K., Ishijima, K. (2000). Boiling water reactor fuel behavior under reactivity–initiated–accident conditions at burnup of 41 to 45 GWd/tonneU. *Nuclear Technology* 129, 141–151.

Nakatsuka, M., Nagai, M. (1987). Reduction of plastic anisotropy of Zircaloy cladding by neutron irradiation. I. Yield loci obtained from knoop hardness. *Journal of Nuclear Science and Technology* 24, 832–838.

Nakatsuka, M., Uchida, K., Miyazaki, A., Ishii, Y. (2007). Annealing study on neutron irradiation effects in resonance frequencies of Zircaloy plates by EMAR method. *Journal of Nuclear Science and Technology* 44(10), 1285–1294.

Nakatsuka, M., Une, K., Tokunaga, K., Ohta, T. (2004). Mechanical properties of high burnup BWR fuel cladding tubes under simulated RIA conditions. In : *International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance*, pp. 526–535. Orlando, Florida.

Nam, C., Choi, B., Lee, M., Jeong, Y. (2002). Creep strength of Zircaloy–4 cladding depending on applied stress and annealing temperature. *Journal of Nuclear Materials* 305(1), 70–76.

Nash, B., Lorimer, G., Ridley, N. (1974). The relationship between gamma and delta hydrides in zirconium–hydrogen alloys of low hydrogen concentration. *Journal of Nuclear Materials* 49(3), 262–280.

Needleman, A., Rice, J. (1978). Limits to ductility set by plastic flow localization. In : *Koistinen, D.P., Wang, N.M. (Eds.), Mechanics of sheet metal forming*, p. 237–267. Plenum Publishing Corporation, New York.

Neogy, S., Srivastava, D., Tewari, R., Singh, R., Dey, G., Banerjee, S. (2003). Microstructural study of hydride formation in Zr–1Nb alloy. *Journal of Nuclear Materials* 322(2-3), 195–203.

Northwood, D. (1977). Irradiation damage in zirconium and its alloys. *Atomic Energy Review* 15(4), 547–610.

Northwood, D., Gilbert, R., Bahen, L., Kelly, P., Blake, R., Jostsons, A., Faulkner, D., Bell, W., Adamson, R. (1979). Characterization of neutron irradiation damage in Zirconium alloys – An international "Round-Robin" experiment. *Journal of Nuclear Materials* 79, 379–394.

Northwood, D., Kosasih, U. (1983). Hydrides and delayed hydrogen cracking in zirconium and its alloys. *International Metal Reviews* 28, 92–121.

Ochsner, A., Gegner, J., Winter, W., Kuhn, G. (2001). Experimental and numerical investigations of ductile damage in aluminium alloys. *Materials Science and Engineering* 318A, 328–333.

Onimus, F. (2003). Approche expérimentale et modélisation micromécanique du comportement des alliages de zirconium irradiés. Ph.D. thesis, Ecole Centrale Paris, France.

Onimus, F., Béchade, J., Gilbon, D., Pilvin, P. (2006). Investigation of neutron radiation effects on the mechanical behavior of recrystallized zirconium alloys. *Journal of Nuclear Materials* 358, 176–189.

Onimus, F., Béchade, J., Prioul, C., Pilvin, P., Monnet, I., Doriot, S., Verhaeghe, B., Gilbon, D., Robert, L., Legras, L., Mardon, J. (2005). Plastic deformation of irradiated zirconium alloys : TEM investigations and micro–mechanical modelling. In : *14th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1467*, volume 2, pp. 53–77. Stockholm, Sweden.

Onimus, F., Monnet, I., Béchade, J., Prioul, C., Pilvin, P. (2004). A statistical TEM investigation of dislocation channeling mechanism in neutron irradiated zirconium alloys. *Journal of Nuclear Materials* 328, 165–179.

Pan, J., Saje, M., Needleman, A. (1983). Localization of deformation in rate sensitive porous plastic solids. *International Journal of Fracture* 21, 261–278.

Papin, J., Cazalis, B., Frizonnet, J., Desquines, J., Lemoine, F., Georgenthum, V., Lamare, F., Petit, M. (2007). Summary and interpretation of the CABRI REP–Na program. *Nuclear Technology* 157(3), 230–250.

Pardoen, T., Doghri, I., Delannay, F. (1998). Experimental and numerical comparison of void growth models and void coalescence criteria for the prediction of ductile fracture in copper bars. *Acta Metallurgica* 46(2), 541–552.

Pardoen, T., Hutchinson, J. (2000). An extended model for void growth and coalescence. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 48, 2467–2512.

Partridge, P. (1967). The crystallography and deformation modes of hexagonal close–packed metals. *Metallurgical reviews* 118, 169–194.

Perales, F. (2005). Fissuration des matériaux à gradient de propriétés. Application au Zircaloy hydruré. Ph.D. thesis, Université Montpellier II, France.

Perales, F., Bourgeois, S., Chrysochoos, A., Monerie, Y. (2008). Two field multibody method for periodic homogenization in fracture mechanics of nonlinear heterogeneous materials. *Engineering Fracture Mechanics* 75(11), 3378–3398.

Perovic, V., Weatherly, G., Mac Ewen, S., Leger, M. (1992). The influence of prior deformation on hydride precipitation in Zircaloy. *Acta Metallurgica et Materialia* 40(2), 363–372.

Perovic, V., Weatherly, G., Simpson, L. (1983). Hydride precipitation in α/β zirconium alloys. *Acta Metallurgica* 31(9), 1381–1391.

Perrin, G., Leblond, J. (1990). Analytical study of a hollow sphere made of plastic porous material and subjected to hydrostatic tension – application to some problems in ductile fracture of metals. *International Journal of Plasticity* 6(6), 677–699.

Perrin, G., Leblond, J. (2000). Accelerated void growth in porous ductile solids containing two populations of cavities. *International Journal of Plasticity* 16(1), 91–120.

Pierron, O. (2002). Influence of hydride "blisters" on failure of Zircaloy–4 sheet. Master's thesis, The Pennsylvania State University, USA.

Pierron, O., Koss, D., Motta, A., Chan, K. (2003). The influence of hydride blisters on the fracture of Zircaloy–4. *Journal of Nuclear Materials* 322, 21–35.

Poussard, C., Goguel, R., Le Saux, M., Besson, J., Carassou, S., Averty, X., Limon, R., Desquines, J., Cazalis, B., Bernaudat, C. (2006). Identification of an anisotropic visco–plastic constitutive equation (GPL law) applicable to RIA loading conditions and Zircaloy–4 stress relieved cladding alloys tested within PROMETRA. In : *Fuel Safety Research Meeting*. Tokai, Japan.

Prat, F. (1994). Etude et modélisation de l'effet de l'hydruration sur le comportement mécanique de composants de structure en Zircaloy–4. Ph.D. thesis, Ecole des Mines de Paris, France.

Prat, F., Grange, M., Besson, J., Andrieu, E. (1998). Behavior and rupture of hydrided Zircaloy–4 tubes and sheets. *Metallurgical and Materials Transactions A* 29, 1643–1651.

Prioul, C. (1995). Le vieillissement dynamique dans les alliages de zirconium. Conséquences sur les propriétés mécaniques. In : *Journées d'Etudes Propriétés – Microstructure, Le Zirconium*, pp. 25–34. Saclay, France.

Puls, M. (1991). Fracture initiation at hydrides in zirconium. *Metallurgical transactions A* 22(10), 2327–2337.

Puls, M., Shi, S., Rabier, J. (2005). Experimental studies of mechanical properties of solid zirconium hydrides. *Journal of Nuclear Materials* 336, 73–80.

Racine, A. (2005). Influence de l'orientation des hydrures sur les modes de déformation, d'endommagement et de rupture du Zircaloy–4 hydruré. Ph.D. thesis, Ecole Polytechnique, France.

Racine, A., Bornert, M., Sainte Catherine, C., Cappelaere, C., Caldemaison, D. (2005). Experimental investigation of strain, damage and failure of hydrided Zircaloy–4 with various hydride orientations. In : *18th International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology*, C04/6, pp. 524–538. Beijing, China.

Raepsaet, C., Bossis, P., Hamon, D., Béchade, J., Brachet, J. (2008). Quantification and local distribution of hydrogen within Zircaloy–4 PWR nuclear fuel cladding tubes at the nuclear microprobe of the Pierre Süe laboratory from μ–ERDA. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* doi :10.1016/j.nimb.2008.03.041.

Rashid, Y., Montgomery, R., Lyon, W., Yang, R. (2000). A cladding failure model for fuel rods subjected to operational and accident transients. In : *Nuclear Fuel Behavior Modeling at High Burnup and its Experimental Support*, pp. 197–199. Windermere, UK.

Rashid, Y., Dunham, R., Montgomery, R. (2004). Fuel analysis and licensing code : FALCON MOD01. Volume 1 : Theoretical and numerical bases. Technical Report ANA-04-0666, EPRI, Palo Alto, CA.

Raynaud, P., Koss, D., Motta, A., Chan, K. (2007). Fracture toughness of hydrided Zircaloy–4 sheet under through–thickness crack growth conditions. In : *15th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry*. Sunriver, Oregon.

Regnard, C., Lemaignan, C. (1995). Systèmes de déformation activés dans le Zircaloy–4 lors d'une sollicitation de type interaction pastille–gaine. In : *Journées d'Etudes Propriétés – Microstructure, Le Zirconium*, pp. 231–240. Saclay, France.

Regnard, C., Verhaeghe, B., Lefebvre-Joud, F., Lemaignan, C. (2002). Activated slip systems and localized straining of irradiated Zr alloys in circumferential loadings. In : *13th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1423*, pp. 384–399. Annecy, France.

Ribis, J., Onimus, F., Béchade, J., Doriot, S., Cappelaere, C., Lemaignan, C., Barbu, A. (2006). Restauration des défauts d'irradiation dans les alliages de zirconium, approche expérimentale et modélisation. In : *Matériaux 2006*. Dijon, France.

Rice, J., Tracey, D. (1969). On the ductile enlargement of voids in triaxial stress. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 17, 201–217.

Richard, F., Delobelle, P., Leclercq, S., Bouffioux, P., Rousselier, G. (2003). Modeling of the cold work stress relieved Zircaloy–4 cladding tubes mechanical behavior under PWR operating conditions. In : *17th International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology*, C02/6. Prague, Czech Republic.

Rieger, G., Lee, D. (1974). Strength and ductility of neutron irradiated and textured Zircaloy–2. In : *Symposium on Zirconium in Nuclear Applications, ASTM STP 551*, pp. 355–369. Portland, Oregon.

Rivalin, F., Besson, J., Pineau, A., Di Fant, M. (2000). Ductile tearing of pipeline–steel wide plates : II. Modeling of in–plane crack propagation. *Engineering Fracture Mechanics* 68(3), 347–364.

Robinet, P. (1995). Etude expérimentale et modélisation du comportement viscoplastique anisotrope du Zircaloy–4 dans deux états métallurgiques. Ph.D. thesis, U.F.R. des Sciences et technique de l'université de Franche-Comté, France.

Rosenbaum, H., Rierger, G., Lee, D. (1974). Localized deformation and fracture in neutron irradiated Zircaloy–2. *Metallurgical Transactions* 5, 1867–1874.

Rousselier, G. (1987). Ductile fracture models and their potential in local approach of fracture. *Nuclear Engineering and Design* 105, 97–111.

Rousselier, G., Leclercq, S. (2006). A simplified "polycrystalline" model for viscoplastic and damage finite element analyses. *International Journal of Plasticity* 22, 685–712.

Ruano, O., Elssner, G. (1975). On solid solution hardening in the zirconium–oxygen system. *Journal of Less Common Metals* 40, 121–128.

Rudling, P., Adamson, R., Garzarolli, F. (2005). Annual review of information on Zircaloy technology : Loss of coolant accidents, LOCA, and reactivity initiated accidents, RIA, in BWRs and PWRs. Technical Report IZNA-4 Special Topics Report, Advanced Nuclear Technology International, Sweden.

Rupa, N., Clavel, M., Bouffioux, P., Domain, C., Legris, A. (2002). About the mechanisms governing the hydrogen effect on viscoplasticity of unirradiated fully annealed Zircaloy–4 sheet. In : *13th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1423*, pp. 811–834. Annecy, France.

Sasajima, H., Nakamura, T., Fuketa, T. (1999). Fission gas release behavior of high burnup UO_2 fuel under reactivity initiated accident conditions. *Journal of Nuclear Science and Technology* 36(11), 1101–1104.

Sauter, F. (2000). Modélisation du comportement viscoplastique du dioxyde d'uranium. Ph.D. thesis, Institut National Polytechnique de Lorraine, France.

Schäffler, I. (1997). Modélisation du comportement élasto–viscoplastique des tubes de gaine du crayon combustible entre zéro et quatre cycles de fonctionnement en réacteur à eau pressurisée. Ph.D. thesis, U.F.R. des sciences et techniques de l'université de Franche-Comté, France.

Schäffler, I., Geyer, P., Bouffioux, P., Delobelle, P. (2000). Thermomechanical behavior and modeling between 350 °C and 400 °C of Zircaloy–4 cladding tubes from an unirradiated state to high fluence (0 to 85.10^{24} n.m^{-2}, E>1 MeV. *Journal of Engineering Materials and Technology* 122, 168–176.

Schmitz, F., Papin, J. (1999). High burnup effects on fuel behaviour under accident conditions : the tests CABRI REP-Na. *Journal of Nuclear Materials* 270, 55–64.

Seok, C., Bae, B., Koo, J., Murty, K. (2006). The properties of the ring and burst creep of ZIRLO cladding. *Engineering Failure Analysis* 13, 389–397.

Serres, A. (2008). Corrosion sous contrainte par l'iode du Zircaloy–4 : cinétiques de fissuration et influence de l'irradiation sur l'amorçage. Ph.D. thesis, Institut National des Sciences Appliquées de Lyon, France.

Shi, S., Puls, M. (1999). Fracture strength of hydride precipitates in Zr–2.5Nb alloys. *Journal of Nuclear Materials* 275, 312–317.

Simonot, C. (1995). Evolutions microstructrales des alliages de zirconium sous irradiation. Liens avec le phénomène de croissance. Ph.D. thesis, Université Paris XI Orsay, France.

Simpson, L. (1981). Criteria for fracture initiation at hydrides in zirconium–2.5 pct niobium alloy. *Metallurgical Transactions A* 12A, 2113–2124.

Singh, R., Kishore, R., Singh, S., Sinha, T., Kashyap, B. (2004). Stress–reorientation of hydrides and hydride embrittlement of Zr–2.5 wt% Nb pressure tube alloy. *Metallurgical Transactions A* 325, 26–33.

Siruguet, K., Leblond, J. (2004a). Effect of void locking by inclusions upon the plastic behavior of porous ductile solids – I : theoretical modeling and numerical study of void growth. *International Journal of Plasticity* 20(2), 225–254.

Siruguet, K., Leblond, J. (2004b). Effect of void locking by inclusions upon the plastic behavior of porous ductile solids – part II : theoretical modeling and numerical study of void coalescence. *International Journal of Plasticity* 20(2), 255–268.

Sugiyama, T., Fuketa, T. (2001). Effect of cladding pre-oxidation on rod coolability during reactivity accident conditions. In : *Technical Committee Meeting on Fuel Behaviour Under Transient and LOCA Conditions, IAEA-TECDOC-1320*, pp. 102–110. Halden, Norway.

Sugiyama, T., Nagase, N., Fuketa, T. (2005). Modification of ring tensile test for LWR fuel cladding. In : *International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance*, pp. 912–932. Kyoto, Japan.

Suzuki, M., Saito, H., Fuketa, T. (2006a). Analysis on split failure of cladding of high burnup BWR rods in reactivity–initiated accident conditions by RANNS code. *Nuclear Engineering and Design* 236, 128–139.

Suzuki, M., Saitou, H., Fuketa, T. (2006b). RANNS code analysis on the local mechanical conditions of cladding of high burnup fuel rods under PCMI in RIA–simulated experiments in NSRR. *Journal of Nuclear Science and Technology* 43(9), 1097–1104.

Taylor, G., Quinney, H. (1937). The latent heat remaining in a metal after cold working. In : *Proceedings of the Royal Society of London A*, volume 163, pp. 157–181.

Tenckhoff, E. (1988). Deformation mechanisms, texture, and anisotropy in zirconium and Zircaloy. *ASTM STP 966* pp. 1–77.

Tenckhoff, E. (2005). Review of deformation mechanisms, texture, and mechanical anisotropy in Zirconium and Zirconium base alloys. In : *14th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1467*, volume 2, pp. 25–50. Stockholm, Sweden.

Thomason, P. (1985). Three–dimensional models for the plastic limit–load at incipient failure of the intervoid matrix in ductile porous solids. *Acta Metallurgica* 33(6), 1079–1085.

Thorpe, W., Smith, I. (1978). Tensile properties of Zr1%Nb alloy. *Journal of Nuclear Materials* 78, 49–57.

Toffolon-Masclet, C., Guilbert, T., Brachet, J. (2008). Study of secondary intermetallic phase precipitation/dissolution in Zr alloys by high temperature–high sensitivity calorimetry. *Journal of Nuclear Materials* 372, 367–378.

Tomimura, T., Yasuda, T., Nakatsuka, M. (1996). Changes in mechanical properties of irradiated Zircaloy–2 fuel cladding due to short term annealing. *Journal of Nuclear Materials* 238, 169–174.

Tvergaard, V. (1981). Influence of voids on shear band instabilities under plane strain conditions. *International Journal of Fracture* 17(4), 389–407.

Tvergaard, V. (1990). Material failure by void growth to coalescence. *Advances in Applied Mechanics* 27, 83–151.

Tvergaard, V., Needleman, A. (1984). Analysis of cup–cone fracture in a round tensile bar. *Acta Metallurgica* 32, 157–169.

Une, K., Ishimoto, S. (2006). EBSP measurements of hydrogenated Zircaloy–2 claddings with stress–relieved and recrystallized annealing conditions. *Journal of Nuclear Materials* 357(1-3), 147–155.

Veevers, K., Rotsey, W. (1968). Effect of irradiation on strain ageing in annealed Zircaloy–2. *Journal of Nuclear Materials* 27, 108–111.

Veleva, M., Arsène, S., Record, M., Béchade, J., Bai, J. (2003). Hydride embrittlement and irradiation effects on the hoop mechanical properties of Pressurized Water Reactor (PWR) and Boiling–Water Reactor (BWR) ZIRCALOY cladding tubes : Part II. Morphology of hydrides investigated at different magnifications and their interaction with the processes of plastic deformation. *Metallurgical and Materials Transactions A* 34A, 567–578.

Viswanathan, U., Singh, R., Basak, C., Anantharaman, S., Sahoo, K. (2006). Evaluation of effect of hydrogen on toughness of Zircaloy–2 by instrumented drop weight impact testing. *Journal of Nuclear Materials* 350(3), 310–319.

Vitanza, C. (2006). RIA failure threshold and LOCA limit at high burn–up. *Journal of Nuclear Science and Technology* 43(9), 1074–1079.

Vizcaíno, P., Banchik, A., Abriata, J. (2002). Solubility of hydrogen in Zircaloy–4 : irradiation induced increase and thermal recovery. *Journal of Nuclear Materials* 304, 96–106.

Vizcaíno, P., Banchik, A., Abriata, J. (2007). Hydrogen in Zircaloy–4 : effects of the neutron irradiation on the hydride formation. *Journal of Nuclear Materials* 42, 6633–6637.

Vizcaíno, P., Banchik, A., Abriata, J. (2008). Synchrotron X–ray diffraction evidences of the amorphization/dissolution of the second phase particles (SPPs) in neutron irradiated Zircaloy–4. *Materials Letters* 62(3), 491–493.

Wang, D., Pan, J., Liu, S. (2004). An anisotropic Gurson yield criterion for porous ductile sheet metals with planar anisotropy. *International Journal of Damage Mechanics* 13, 7–33.

Weber, I., Schwartz, P. (2001). Monitoring bending fatigue in carbon–fibre/epoxy composite strands : a comparison between mechanical and resistance techniques. *Composites Science and Technology* 61, 849–853.

Wen, J., Huang, Y., Hwang, K., Liu, C., Li, M. (2005). The modified Gurson model accounting for the void size effect. *International Journal of Plasticity* 21, 381–395.

Westlake, D. (1968). The habit planes of zirconium hydride in zirconium and Zircaloy. *Journal of Nuclear Materials* 26, 208–216.

Wisner, S., Adamson, R. (1998). Combined effects of radiation damage and hydrides on the ductility of Zircaloy–2. *Nuclear Engineering and Design* 185(1), 33–49.

Yagnik, S., Hermann, A., Kuo, R. (2005). Ductility of Zircaloy–4 cladding and guide tubes at high fluences. In : *14th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 1467*, volume 2, pp. 604–631. Stockholm, Sweden.

Yagnik, S., Kuo, R.C., Rashid, Y., Machiels, A., Yang, R. (2004). Effect of hydrides on the mechanical properties of Zircaloy–4. In : *International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance*, pp. 191–199. Orlando, Florida.

Yamanaka, S., Kuroda, M., Setoyama, D., Uno, M., Takeda, K. (2002). Analysis of the fracture behavior of a hydrided cladding tube at elevated temperatures by fracture mechanics. *Journal of Alloys and Compounds* 330–332, 330–332.

Yamanaka, S., Setoyama, D., Muta, H., Uno, M., Kuroda, M., Takeda, K., Matsuda, T. (2004). Characteristics of zirconium hydrogen solid solution. *Journal of Alloys and Compounds* 372, 129–135.

Yamanaka, S., Yoshioka, K., Uno, M., Katsura, M., Anada, H., Matsuda, T., Kobayashi, S. (1999). Thermal and mechanical properties of zirconium hydride. *Journal of Alloys and Compounds* 293-295, 23–29.

Yang, R., Montgomery, R., Waeckel, N., Rashid, Y. (2000). Industry strategy and assessment of existing RIA data. In : *International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance*, pp. 383–401. Park City, Utah.

Yasuda, T., Nakatsuka, M., Yamashita, K. (1987). Deformation and fracture properties of neutron–irradiated recrystallized Zircaloy–2 cladding under uniaxial tension. In : *7th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 939*, pp. 734–747. Strasbourg, France.

Yi, J., Park, H., Park, G., Lee, B. (1992). Yielding and dynamic strain aging behavior of Zircaloy–4 tube. *Journal of Nuclear Materials* 189, 353–361.

Yunchang, F., Koss, D. (1985). The influence of multiaxial states of stress on the hydrogen embrittlement of zirconium alloy sheet. *Metallurgical Transactions A* 16, 675–681.

Yvon, P., Sainte Catherine, C., Duguay, C., Hourdequin, N. (2001). Development of new techniques to assess the mechanical behaviour of Zircaloy–4 during an RIA. In : *Technical Committee Meeting on Fuel Behaviour Under Transient and LOCA Conditions, IAEA-TECDOC-1320*, pp. 111–122. Halden, Norway.

Zhang, K., Bai, J., François, D. (2001). Numerical analysis of the influence of the Lode parameter on void growth. *Journal of Solids and Structures* 38, 5847–5856.

Zhang, Z., Thaulow, C., Odegard, J. (2000). A complete Gurson model approach for ductile fracture. *Engineering Fracture Mechanics* 67, 155–168.

Zhao, Z., Blat-Yrieix, M., Morniroli, J., Legris, A., Thuinet, L., Ambard, A., Legras, L., Kihn, Y. (2007). Characterization of zirconium hydrides and phase field approach to a mesoscopic–scale modelling of their precipitation. In : *15th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry*. Sunriver, Oregon.

Comportement et rupture de gaines en Zircaloy–4 détendu vierges, hydrurées et irradiées en situation accidentelle de type RIA

Résumé – L'objectif de cette étude est de caractériser et de modéliser le comportement mécanique, l'endommagement et la rupture en situation accidentelle d'injection de réactivité de gaines de crayons combustibles en Zircaloy-4 détendu vierges, hydrurées ou irradiées en réacteurs nucléaires à eau pressurisée. Un modèle phénoménologique s'appuyant sur les résultats déjà existants de plus de 500 essais mécaniques est proposé pour décrire le comportement viscoplastique anisotrope du matériau en fonction de la température (de 20 °C à 1100 °C), la vitesse de déformation (de $3 \cdot 10^{-4}\,\mathrm{s}^{-1}$ à $5\,\mathrm{s}^{-1}$), la fluence (de 0 à $10^{26}\,\mathrm{n.m}^{-2}$) et des conditions d'irradiation. Le comportement plastique anisotrope et la rupture du matériau non irradié hydruré jusqu'à 1200 ppm (hydrures circonférentiels répartis uniformément) est étudié à l'aide d'essais de traction axiale, traction circonférentielle, expansion due à la compression et traction plane circonférentielle réalisés à 25 °C, 350 °C et 480 °C. La résistance mécanique et l'écrouissage du matériau dépendent de la température et des teneurs en hydrogène en solution solide et en hydrures précipités. L'anisotropie plastique du matériau est peu modifiée par l'hydrogène. A température ambiante le matériau est fragilisé par les hydrures, qui rompent pour des déformations plastiques d'autant plus faibles que la teneur en hydrogène est élevée. La ductilité du matériau, croissante en fonction de la température, n'est pas affectée par l'hydrogène à 350 °C et 480 °C. Les modes de rupture macroscopiques et les mécanismes microscopiques d'endommagement diffèrent selon la géométrie des éprouvettes, la température et la teneur en hydrogène. Un modèle de type Gurson–Tvergaard–Needleman est proposé pour représenter le comportement viscoplastique anisotrope et la rupture ductile du matériau en fonction de la température et de la teneur en hydrogène. Le modèle est exploité pour approfondir l'étude de l'endommagement du matériau et de la rupture des éprouvettes.

Mots clés : Zircaloy–4, accident d'injection de réactivité, irradiation, hydrogène, viscoplasticité, rupture ductile

Behavior and failure of fresh, hydrided and irradiated Zircaloy–4 fuel claddings under RIA conditions

Abstract – The purpose of this study is to characterize and simulate the mechanical behavior, damage and failure of fresh, hydrided and irradiated (in pressurized water reactors) cold-worked stress relieved Zircaloy-4 fuel claddings under Reactivity Initiated Accident conditions. A phenomenological model is proposed on the basis of more than 500 already existing tests results to describe the anisotropic viscoplastic mechanical behavior of the material as a function of temperature (from 20 °C up to 1100 °C), strain rate (from $3 \cdot 10^{-4}\,\mathrm{s}^{-1}$ up to $5\,\mathrm{s}^{-1}$), fluence (from 0 up to $10^{26}\,\mathrm{n.m}^{-2}$) and irradiation conditions. Axial tensile, hoop tensile, expansion due to compression and hoop plane strain tensile tests are performed at 25 °C, 350 °C and 480 °C in order to analyse the anisotropic plastic and failure properties of the non-irradiated material hydrided up to 1200 ppm (hydrides are circumferential and homogeneously distributed). Material strength and strain hardening depend on temperature and hydrogen in solid solution and precipitated hydride contents. Plastic anisotropy is not significantly modified by hydrogen. The material is embrittled by hydrides at room temperature. The plastic strain that leads to hydride cracking decreases with increasing hydrogen content. The material ductility, which increases with increasing temperature, is not deteriorated by hydrogen at 350 °C and 480 °C. Macroscopic fracture modes and microscopic damage mechanisms depend on specimen geometry, temperature and hydrogen content. A Gurson–Tvergaard–Needleman type model is finally proposed to describe both the anisotropic viscoplastic behavior and the ductile fracture of the material as a function of temperature and hydrogen content. The model is used to improve the study of material damage and specimens fracture.

Key words : Zircaloy–4, reactivity initiated accident, irradiation, hydrogen, viscoplasticity, ductile fracture