



Étude du comportement au fluage des gaines en alliage de zirconium pré-oxydées sous sollicitations thermomécaniques représentatives d'un accident de perte de réfrigérant primaire

Ethel-Borel Djeumen Nkwechen

► To cite this version:

Ethel-Borel Djeumen Nkwechen. Étude du comportement au fluage des gaines en alliage de zirconium pré-oxydées sous sollicitations thermomécaniques représentatives d'un accident de perte de réfrigérant primaire. Mécanique [physics.med-ph]. Université de Lyon, 2022. Français. NNT : 2022LYSEI036 . tel-03860745

HAL Id: tel-03860745

<https://theses.hal.science/tel-03860745>

Submitted on 18 Nov 2022

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.



N° d'ordre NNT : 2022LYSEI036

THESE de DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE LYON

opérée au sein de
L'Institut National des Sciences Appliquées de Lyon

Ecole Doctorale N° ED 162
Mécanique, Énergétique, Génie Civil, Acoustique

Spécialité de doctorat :
Mécanique

Soutenue publiquement le 26/04/2022, par :
Ethel-Borel DJEUMEN NKWECHEN

Étude du comportement au fluage des gaines en alliage de zirconium pré-oxydées sous sollicitations thermomécaniques représentatives d'un accident de perte de réfrigérant primaire

Devant le jury composé de :

SAMUEL FOREST	Directeur de Recherche	Mines-ParisTech	Examineur
ANNE-FRANÇOISE GOURGUES-LORENZON	Professeure	Mines-ParisTech	Rapporteuse
JULIEN RÉTHORÉ	Directeur de Recherche	EC Nantes	Rapporteur
SYLVAIN CALLOCH	Professeur	ENSTA Bretagne	Examineur
MARIE-CHRISTINE BAIETTO	Directrice de Recherche	INSA Lyon	Directrice de thèse
GERGELY MOLNÁR	Chargé de Recherche	INSA Lyon	Co-directeur de thèse
NICOLAS TARDIF	Maître de conférences	INSA Lyon	Co-encadrant
JEAN DESQUINES	HDR	IRSN	Co-encadrant
MICHEL CORET	Professeur	EC Nantes	Invité
TATIANA TAURINES	Docteur	IRSN	Invitée

Département FEDORA – INSA Lyon - Ecoles Doctorales

SIGLE	ECOLE DOCTORALE	NOM ET COORDONNEES DU RESPONSABLE
CHIMIE	<u>CHIMIE DE LYON</u> https://www.edchimie-lyon.fr Sec. : Renée EL MELHEM Bât. Blaise PASCAL, 3e étage secretariat@edchimie-lyon.fr	M. Stéphane DANIELE C2P2-CPE LYON-UMR 5265 Bâtiment F308, BP 2077 43 Boulevard du 11 novembre 1918 69616 Villeurbanne directeur@edchimie-lyon.fr
E.E.A.	<u>ÉLECTRONIQUE, ÉLECTROTECHNIQUE, AUTOMATIQUE</u> https://edeea.universite-lyon.fr Sec. : Stéphanie CAUVIN Bâtiment Direction INSA Lyon Tél : 04.72.43.71.70 secretariat.edeea@insa-lyon.fr	M. Philippe DELACHARTRE INSA LYON Laboratoire CREATIS Bâtiment Blaise Pascal, 7 avenue Jean Capelle 69621 Villeurbanne CEDEX Tél : 04.72.43.88.63 philippe.delachartre@insa-lyon.fr
E2M2	<u>ÉVOLUTION, ÉCOSYSTÈME, MICROBIOLOGIE, MODÉLISATION</u> http://e2m2.universite-lyon.fr Sec. : Sylvie ROBERJOT Bât. Atrium, UCB Lyon 1 Tél : 04.72.44.83.62 secretariat.e2m2@univ-lyon1.fr	M. Philippe NORMAND Université Claude Bernard Lyon 1 UMR 5557 Lab. d'Ecologie Microbienne Bâtiment Mendel 43, boulevard du 11 Novembre 1918 69 622 Villeurbanne CEDEX philippe.normand@univ-lyon1.fr
EDISS	<u>INTERDISCIPLINAIRE SCIENCES-SANTÉ</u> http://ediss.universite-lyon.fr Sec. : Sylvie ROBERJOT Bât. Atrium, UCB Lyon 1 Tél : 04.72.44.83.62 secretariat.ediss@univ-lyon1.fr	Mme Sylvie RICARD-BLUM Institut de Chimie et Biochimie Moléculaires et Supramoléculaires (ICBMS) - UMR 5246 CNRS - Université Lyon 1 Bâtiment Raulin - 2ème étage Nord 43 Boulevard du 11 novembre 1918 69622 Villeurbanne Cedex Tél : +33(0)4 72 44 82 32 sylvie.ricard-blum@univ-lyon1.fr
INFOMATHS	<u>INFORMATIQUE ET MATHÉMATIQUES</u> http://edinfomaths.universite-lyon.fr Sec. : Renée EL MELHEM Bât. Blaise PASCAL, 3e étage Tél : 04.72.43.80.46 infomaths@univ-lyon1.fr	M. Hamamache KHEDDOUCI Université Claude Bernard Lyon 1 Bât. Nautibus 43, Boulevard du 11 novembre 1918 69 622 Villeurbanne Cedex France Tél : 04.72.44.83.69 hamamache.kheddouci@univ-lyon1.fr
Matériaux	<u>MATÉRIAUX DE LYON</u> http://ed34.universite-lyon.fr Sec. : Yann DE ORDENANA Tél : 04.72.18.62.44 yann.de-ordenana@ec-lyon.fr	M. Stéphane BENAYOUN Ecole Centrale de Lyon Laboratoire LTDS 36 avenue Guy de Collongue 69134 Ecully CEDEX Tél : 04.72.18.64.37 stephane.benayoun@ec-lyon.fr
MEGA	<u>MÉCANIQUE, ÉNERGÉTIQUE, GÉNIE CIVIL, ACOUSTIQUE</u> http://edmega.universite-lyon.fr Sec. : Stéphanie CAUVIN Tél : 04.72.43.71.70 Bâtiment Direction INSA Lyon mega@insa-lyon.fr	M. Jocelyn BONJOUR INSA Lyon Laboratoire CETHIL Bâtiment Sadi-Carnot 9, rue de la Physique 69621 Villeurbanne CEDEX jocelyn.bonjour@insa-lyon.fr
ScSo	<u>ScSo*</u> https://edsciencessociales.universite-lyon.fr Sec. : Mélina FAVETON INSA : J.Y. TOUSSAINT Tél : 04.78.69.77.79 melina.faveton@univ-lyon2.fr	M. Christian MONTES Université Lumière Lyon 2 86 Rue Pasteur 69365 Lyon CEDEX 07 christian.montes@univ-lyon2.fr

*ScSo : Histoire, Géographie, Aménagement, Urbanisme, Archéologie, Science politique, Sociologie, Anthropologie

Résumé

Ce travail de thèse porte sur l'étude du comportement au fluage des gaines en Zy-4 pré-oxydées dans des conditions simulant un Accident de Perte de Réfrigérant Primaire (APRP). Lors d'un APRP, la température des gaines peut atteindre plus de 1000°C et la différence de pression entre l'intérieur et l'extérieur de la gaine peut dépasser 100bar. En fonctionnement normal du réacteur, les gaines s'oxydent en surface interne lorsque le contact est établi avec le combustible et se corrodent en surface externe au contact avec de l'eau. Ce travail vise à étudier le comportement thermomécanique de la gaine dans de telles conditions, en considérant son état de corrosion. Plusieurs physiques couplées sont susceptibles d'affecter le comportement de la gaine. Il s'agit du couplage entre le fluage du métal, la diffusion de l'oxygène, l'oxydation et de l'endommagement de l'oxyde.

Une plateforme numérique multi-physique basée sur la méthode des éléments finis et permettant de simuler simultanément les phénomènes de fluage, fissuration, diffusion d'oxygène et oxydation a tout d'abord été mise en place. Les outils numériques retenus pour simuler les discontinuités du problème que sont l'oxydation et la fissuration sont basés sur des approches en champ de phase.

Le comportement à l'oxydation des gaines a ensuite été étudié de manière dé耦lée d'un chargement mécanique externe. Un grand nombre de données sur les cinétiques d'oxydation à 750°C et 820°C ont été collectés. Les coefficients de diffusion de l'oxygène dans les couches de Zy-4 et de ZrO_2 ont été identifiés par méthode inverse à l'aide de la plateforme numérique multi-physique mise en place.

Enfin, des essais semi-intégraux de ballonnement de gaine sous chargement thermomécanique imposé ont été réalisés sur le banc d'essai ELLIE. Ces essais ont permis d'étudier l'influence de l'épaisseur du pré-oxyde externe (10, 30, 60µm) et interne (10µm), de l'atmosphère (argon, mélange argon + oxygène) et du chargement mécanique (20, 30, 50bar) sur le ballonnement des gaines autour de 800°C. La fissuration de la couche d'oxyde a également été caractérisée. Les essais ont mis en évidence le rôle prépondérant du pré-oxyde sur le comportement au fluage de la gaine. Cet effet du pré-oxyde apparaît fortement dépendant de son état d'endommagement initial lui même sensible à son épaisseur et aux conditions de pré-oxydation. La plateforme multi-physique mise en place a également été utilisée pour simuler les essais de fluage réalisés. Les simulations reproduisent de manière satisfaisante les résultats d'essais sur des éprouvettes présentant une épaisseur de couche d'oxyde en surface interne et externe d'environ 10µm jusqu'à un niveau de déformation de 2%. Les simulations ont par ailleurs permis de quantifier l'influence de l'épaisseur d'oxyde, de la température et de la densité de fissure dans l'oxyde. La prise en compte de l'état d'endommagement initial de l'oxyde, ainsi qu'une extension du modèle aux grandes déformations est nécessaire pour simuler les essais pour des épaisseurs d'oxyde et des niveaux de déformation plus importants.

Mots clefs : Modélisation multi-physique, Fluage, Oxydation, Diffusion d'oxygène, Fissuration, Champ de phase, Dialogue essai-calcul, Zy-4, ZrO_2

Abstract

This thesis deals with the study of the creep behavior of pre-oxidized Zy-4 cladding under simulated Loss Of Coolant Accident (LOCA) conditions. During a LOCA, the temperature of the cladding can reach more than 1000°C and the pressure difference between the inside and outside of the cladding can exceed 100 bar. During normal operation of the reactor, the claddings oxidize on the inner surface when the contact with the fuel is established and corrode on the outer surface in contact with water. This work aims to study the thermomechanical behavior of the cladding under such loading conditions, considering its corroded state. Several coupled physics are likely to affect the behavior of the cladding. These are the coupling between metal creep, oxygen diffusion, oxidation and oxide damage.

A multi-physics numerical platform based on the finite element method was first set up. It allows the simultaneous simulation of creep, cracking, oxygen diffusion and oxidation. The numerical tools chosen to simulate the discontinuities of the problem, which are oxidation and cracking, are based on phase-field approaches.

The oxidation behavior of the cladding was then studied without external mechanical loading. A large amount of data on the oxidation kinetics at 750°C and 820°C were collected. Oxygen diffusion coefficients in the Zy-4 and ZrO₂ layers were identified by inverse methods using the implemented multi-physics numerical platform.

Finally, semi-integral ballooning tests under imposed thermomechanical loading were performed on the ELLIE test bench. These tests allowed to study the influence of the outer (10, 30, 60µm) and inner (10µm) pre-oxide thickness, of the atmosphere (argon, argon + oxygen mixture) and of the mechanical loading (20, 30, 50bar) on the ballooning of the claddings around 800°C. The cracking of the oxide layer was also characterised. The tests highlighted the preponderant role of the pre-oxide on the macroscopic creep behavior of the cladding. It was also shown that the pre-oxide effect strongly depends on its initial state of damage, which in turn depends on its thickness and the pre-oxidation conditions. The multi-physics platform was also used to simulate the creep tests. The simulations adequately reproduce the test results on specimens with an internal and external surface oxide layer thickness of approximately 10µm up to a strain level of 2%. The simulations also allowed the influence of oxide thickness, temperature and crack density in the oxide to be quantified. Consideration of the initial damage state of the oxide and an extension of the model to large deformations is required to simulate the tests for larger oxide thicknesses and deformation levels.

Keywords: Multi-physics modelling, Creep, Oxidation, Oxygen diffusion, Cracking, Phase-field, Code to data comparison, Zy-4, ZrO₂

Table des matières

Table des matières	i
Table des figures	v
Liste des tableaux	xvii
Introduction générale	1
1 Contexte et bibliographie générale	3
1.1 Contexte de l'étude	5
1.1.1 Le Réacteur à Eau Pressurisée	5
1.1.2 La gaine en fonctionnement normal	6
1.1.3 L'Accident de Perte de Réfrigérant Primaire	7
1.1.4 La phase de ballonnement et d'éclatement de la gaine	7
1.1.5 La phase d'oxydation à Haute Température	8
1.1.6 La phase de renoyage	8
1.1.7 Objectif généraux de l'étude	8
1.2 Le matériau de l'étude : Zy-4	9
1.3 L'oxydation du Zy-4	10
1.3.1 Généralités	10
1.3.2 Corrosion en irradiation de base	12
1.3.3 Corrosion en laboratoire	14
1.3.3.1 Régime pré-transitoire	15
1.3.3.2 Transition cinétique	16
1.3.3.3 Régime post-transitoire	16
1.3.3.4 Microstructure de la couche de ZrO_2	16
1.3.3.5 Les contraintes induites par la corrosion	17
1.3.4 Oxydation haute température	18
1.4 Comportement thermomécanique de la gaine pré-oxydée	21
1.4.1 Généralités sur le fluage des métaux et des oxydes métalliques	21
1.4.2 Le fluage du Zy-4	22
1.4.3 Le fluage de la ZrO_2	24
1.4.4 Le fluage du système Zy-4/ ZrO_2	25
1.5 Endommagement d'une couche de ZrO_2	28
1.5.1 Endommagement de la couche de ZrO_2 lors de l'oxydation	28
1.5.2 Endommagement de la ZrO_2 sous sollicitation thermomécanique	28
1.5.3 Approche théorique de la fissuration des films minces	29

1.6	Approches pour l'étude de la rupture	31
1.6.1	Théorie d'Irwin	32
1.6.2	Approche énergétique	32
1.6.3	Équivalence des deux descriptions	33
1.7	Synthèse et problématique	33
2	Modélisation multi-physique d'un matériau multi-couche par une ap- proche en champ de phase	35
2.1	L'approche champ de phase	37
2.2	Description d'une fissure et d'un changement de phase par la méthode champ de phase	38
2.3	Problème de déformation	40
2.4	Problème de fissuration	43
2.5	Problème de diffusion et d'oxydation	45
2.6	Algorithme d'intégration temporelle étagée	47
2.7	Exemples d'applications	49
2.7.1	Étude de l'oxydation	50
2.7.1.1	Croissance d'une couche d'oxyde	50
2.7.1.2	Dissolution d'une couche d'oxyde	51
2.7.2	Étude du fluage et de la fissuration	54
2.7.2.1	Cas homogène	55
2.7.2.2	Effet de la régularisation de l'interface	56
2.7.2.3	Effet de la fissuration	59
2.7.3	Étude du fluage couplé avec l'oxydation	65
2.7.3.1	Effet de l'environnement oxydant	65
2.7.3.2	Effet de l'enrichissement en oxygène du métal	69
2.8	Synthèse	70
3	Étude expérimentale et modélisation de l'oxydation haute température d'une gaine	73
3.1	Introduction	75
3.2	Protocole des essais d'oxydation HT	75
3.2.1	Pré-oxydation à basse température	76
3.2.2	Préparation des éprouvettes pour l'oxydation HT	76
3.2.3	Dispositif d'essai	77
3.3	Matrice d'essais réalisés	78
3.4	Résultats des essais d'oxydation HT	78
3.4.1	Changement de couleur de l'oxyde	78
3.4.2	Prise d'hydrogène à haute température	81
3.4.3	Cinétique de croissance de la couche d'oxyde HT	81
3.4.4	Cinétique de croissance du $\alpha\text{Zr(O)}$	82
3.4.5	Profils d'oxygène dans la couche de Zy-4	83
3.5	Simulation des essais d'oxydation et identification	85
3.5.1	Mise en place de la méthode FEMU	85
3.5.1.1	Modèle Élément Finis	85
3.5.1.2	La méthode FEMU	86
3.5.1.3	Étude de sensibilité des paramètres	87

3.5.1.4	Application à un cas test virtuel	89
3.5.2	Application aux essais d'oxydation HT	92
3.6	Synthèse et discussion des résultats	96
4	Étude expérimentale et modélisation du fluage d'une gaine pré-oxydée	101
4.1	Introduction	103
4.2	Préparation des éprouvettes	103
4.3	Le dispositif ELLIE	104
4.4	Procédure de chargement	107
4.5	Les moyens de mesure	108
4.5.1	Mesure du champ cinématique	108
4.5.2	Mesure du champ thermique	109
4.6	Matrice d'essais réalisés	109
4.7	Caractérisation de l'état initial des éprouvettes	110
4.7.1	Laminographie	110
4.7.2	Métallographie optique	112
4.8	Résultats des essais	113
4.8.1	Essais sur éprouvette vierge en atmosphère argon	113
4.8.1.1	Analyse des champs cinématiques et thermiques	113
4.8.1.2	Vitesse de déformation sur vierge en atmosphère neutre	116
4.8.2	Effet du pré-oxyde et de l'atmosphère de l'essai	117
4.8.3	Analyse globale des essais	120
4.8.4	Caractérisation de la fissuration de la zircone	123
4.8.5	Bilan des essais de fluage	125
4.9	Simulation du fluage d'une gaine pré-oxydée	129
4.9.1	Géométrie, chargement et conditions aux limites	130
4.9.2	Résultats et analyses	135
4.9.2.1	Étude paramétrique	136
4.9.2.2	Application aux essais réalisés à 30bar	139
4.10	Discussion et synthèse générale	141
	Conclusion générale & perspectives	145
A	Formulation éléments finis du modèle	149
B	Quelques exemples d'application du modèle mis en place	153
B.1	Procédure d'adimensionnement	154
B.2	Stratégie de test du modèle multi-physique mis en place	155
B.3	Compétition entre les phénomènes de fissuration et de viscoplasticité	156
B.3.1	Solution homogène	156
B.3.2	Mode I : Ouverture de fissure en traction	159
B.4	Effet des contraintes résiduelles sur l'interaction entre la rupture et le changement de phase	162
B.4.1	Solution homogène	162
B.4.2	Cas hétérogène	163
B.5	Effet du changement de phase sur la topologie de fissuration	168
B.5.1	Inclusion unique	168

B.5.2	Plusieurs inclusions	170
C	Examen de l'état d'endommagement de l'oxyde au microscope optique	175
D	Analyse du résidu de corrélation d'image	177
E	effet des hypothèses de modélisation des essais	181
F	Données sur la fissuration de la couche de ZrO_2	185
	Bibliographie	189

Table des figures

1	Schéma présentant les travaux de cette thèse.	2
1.1	Schéma de principe d'un réacteur à eau pressurisée [1]	5
1.2	(a) Schéma d'un assemblage combustible; (b) Vue éclatée d'un crayon combustible.	6
1.3	Illustration du transitoire thermomécanique subit par la gaine au cours d'un APRP.	7
1.4	Comparaison de la microstructure du Zy-4 détendu (a) et recristallisé (b) [2].	11
1.5	Diagramme de phase du système binaire Zr-O [3]	11
1.6	Structure cristallographique de la phase monoclinique (a) et de la phase tétragonale (b) [4].	12
1.7	(a) Épaisseur de ZrO_2 le long d'une gaine en Zy-4 irradiée pendant 5 cycles. L'épaisseur de ZrO_2 a été déterminée suivant plusieurs génératrices ($0^\circ - 330^\circ$) de la gaine [5]. (b) Cinétique d'oxydation de la gaine en Zy-4 et M5 [®] irradiée en fonction du taux de combustion (burn-up) [6].	14
1.8	Cinétique de corrosion du Zy-4 mettant en évidence le régime pré-transitoire et post-transitoire.	15
1.9	Cliché MEB de la section transversale du Zy-4 oxydé en eau primaire pendant 180 jours à $360^\circ C$. Les premières fissures circonférentielles formées juste après la transition cinétique sont mises en évidence [7].	15
1.10	Observation au microscope optique de la section transversale d'une gaine en Zy-4 après oxydation sous oxygène à $500^\circ C$ pendant 20 jours [8].	17
1.11	Assemblage de clichés MET (Microscope Electronique à Transmission) montrant les grains de ZrO_2 formé sur Zy-4 à $360^\circ C$ en eau pure, après la transition cinétique [9].	17
1.12	Schéma synthétique du mécanisme de croissance de la ZrO_2 . Les flèches indiquent le sens de croissance dans le temps [10].	18
1.13	Effet de la température sur la cinétique de croissance de la couche de zircone [11].	19
1.14	Métallographie de la section transversale d'une gaine en Zy-4 après oxydation sous vapeur à $1000^\circ C$ pendant 30 minutes [12].	21
1.15	Courbe théorique de la déformation de fluage en fonction du temps.	22
1.16	Évolution temporelle de la vitesse de fluage d'une gaine en Zy-4 sous atmosphère vapeur normalisée par la loi de fluage sous vide identifiée par Fréchet [13]. L'évolution temporelle de l'épaisseur cumulée de ZrO_2 et $\alpha Zr(O)$ est également représentée [14].	26

1.17	(a) Image prise juste après l'éclatement mettant en évidence le réseau de fissures formé en cours d'essai sur gaine pré-oxydée. (b) Comparaison entre les profils de vitesse de fluage mesurés sur gaine vierge par rapport à ceux sur gaine pré-oxydée avec une épaisseur d'oxyde interne et externe de $10\mu\text{m}$ (Pox 10/10) à 26bar et 800°C [15] avant fissuration du pré-oxyde.	26
1.18	Métallographie en lumière polarisée d'un échantillon pré-oxydée après essai de ballonnement à 800°C [15].	27
1.19	Vitesse de fluage du Zy-4 à 850°C sous vide primaire en fonction de la contrainte appliquée. Comparaison de la vitesse de la gaine vierge avec celles des gaines pré-oxydées simple face en externe ($10\mu\text{m}$, $30\mu\text{m}$ et $40\mu\text{m}$ d'épaisseur de ZrO_2) et double face ($10\mu\text{m}/10\mu\text{m}$, $30\mu\text{m}/10\mu\text{m}$, $70\mu\text{m}/10\mu\text{m}$) [16].	27
1.20	Métallographie de la couche de ZrO_2 formée sur gaine en Zy-4 (a) sous irradiation (5 cycles en REP, étage 3) [17] (b) en laboratoire sous oxygène à 500°C pendant 40 jours [8].	28
1.21	(a) Métallographie après essai intégral de type RIA réalisé dans le réacteur expérimental CABRI (essai REP-Na4) [18]. (b) Métallographie d'un échantillon en Zy-4 après essai de fluage par pressurisation interne sous vapeur (20bar, 900°C , 135s) [19]. (c) Métallographie d'un échantillon en Zy-4 pré-oxydé après essai de fluage par pressurisation interne sous argon (30bar, 800°C , jusqu'à rupture) [15].	30
1.22	Taille des fragments de ZrO_2 en fonction de la déformation résiduelle moyenne pour des essais intégraux de type RIA réalisés dans le réacteur expérimental CABRI-Na [18]. Les essais moins intégraux réalisés par Robert-Bérat [20] sont également représentés.	31
1.23	Aspect visuel d'une gaine mettant en évidence la desquamation de la ZrO_2 après un essai de pressurisation interne réalisé dans le cadre du programme PROMETRA [18].	31
1.24	Illustration schématique processus de fissuration d'un film mince sur substrat ductile soumis à une déformation imposée [18].	32
2.1	(a) Illustration schématique du problème physique idéalisé et de sa régularisation correspondante (b). l_c et δ contrôlent respectivement la largeur de la région endommagée et celle de l'interface.	39
2.2	Aperçu des couplages modélisés.	39
2.3	Illustration du schéma étagée utilisé pour la résolution des problèmes de fissuration et de déformation dans les solides hétérogènes élasto-viscoplastiques.	40
2.4	Illustration de la régularisation anisotrope d'une fissure dans le cas d'une symétrie transverse. La topologie de fissure dans le cas isotrope ($\alpha_0 = 0$) est illustré en (a). Les cas anisotropes ($\alpha_0 = 5$) pour différentes orientation de la direction préférentielle de propagation $\mathbf{a}$ sont présentés en : (b) 0° , (c) 45° et (d) 90° . L'orientation est donnée par rapport à l'axe horizontal. Le code couleur correspond à la valeur d . Les cartographies présentées sont purement topologique (sans chargement mécanique) et décrivent la forme de l'endommagement induit par la régularisation autour d'une fissure de taille donnée.	44

2.5	Illustration de la densité d'énergie libre chimique.	46
2.6	Diagramme temporel de l'algorithme étagé utilisé pour résoudre le problème multi-physique dans le code aux éléments finis Abaqus.	48
2.7	Géométrie, conditions initiales et conditions aux limites pour l'étude de la croissance d'une couche d'oxyde. Le profil initial du paramètre d'ordre ϕ (en bleu) et le profil initial de concentration en oxygène c (en rouge) ainsi que le sens de déplacement de l'interface métal/oxyde sont représentés. . .	50
2.8	Évolution du profil de concentration en oxygène à différents instants lors de la croissance d'une couche d'oxyde. Les nombres en regard des courbes sont les durées correspondantes en secondes. Les résultats du modèle développé dans ce travail (traits continus) sont comparés aux résultats du code SHOWBIZ (point).	52
2.9	Évolution de l'épaisseur de la couche d'oxyde lors d'un processus de croissance. Les résultats du modèle développé dans ce travail sont comparés aux résultats du code SHOWBIZ avec les mêmes conditions aux limites	52
2.10	Géométrie, conditions initiales et conditions aux limites pour l'étude de la dissolution d'une couche d'oxyde. Le profil initial du paramètre d'ordre ϕ (en bleu) et le profil initial de concentration en oxygène c (en rouge) ainsi que le sens de déplacement de l'interface métal/oxyde sont représentés. . .	53
2.11	Évolution du profil de concentration en oxygène à différents instants lors de la dissolution d'une couche d'oxyde. Les nombres proches des courbes sont les durées correspondantes en secondes.	54
2.12	Évolution de l'épaisseur d'oxyde lors d'un processus de dissolution.	54
2.13	Procédure de chargement mécanique appliquée pour l'étude du fluage. . . .	55
2.14	Évolution de la déformation en cours de fluage dans le cas homogène ($\phi = 0$). Le modèle mis en place est comparé avec le modèle matériau de base intégré dans Abaqus.	55
2.15	Géométrie et conditions aux limites pour l'étude du fluage d'une structure binaire. Deux cas de figures sont simulés : le cas avec l'interface discontinue est réalisé en maillant explicitement l'interface alors que le cas avec l'interface régularisée est résolu en gérant implicitement la topologie à l'aide du paramètre d'ordre (ϕ).	56
2.16	Effet de l'épaisseur de l'interface métal/oxyde sur la déformation (a) et la vitesse de déformation (b) lors du fluage d'un matériau multi-couche. La solution pour le matériau métallique homogène est également représentée ; La vitesse est normalisée par la solution homogène $\dot{\epsilon}_0$ (cf. Figure 2.14). Les résultats du modèle d'interface diffuse (ce travail) sont comparés aux résultats du modèle d'interface franche (loi de comportement de base intégrée dans Abaqus).	58

2.17	Évolution spatiale (a) et temporelle (b) de la contrainte en cours de fluage d'un matériau multi-couche. Les résultats du modèle d'interface diffuse sont comparés aux résultats du modèle d'interface franche. (c) comparaison des contraintes dans le métal et dans l'oxyde en cours de fluage. La solution analytique donnée par l'Équation 2.49 est également représentée. Tous les résultats sont normalisés par la contrainte moyenne σ_0 du chargement appliquée (cf. Équation 2.47). Pour le modèle d'interface diffuse, l'épaisseur de l'interface a été fixée à $\delta = 1\mu\text{m}$	59
2.18	Géométrie et conditions aux limites pour l'étude du fluage et de la fissuration d'un matériau multi-couche. Un défaut initial ($\bar{d} = 1$) est imposé au milieu de la face supérieure. La direction verticale (perpendiculaire à l'interface métal/oxyde) est choisie comme direction préférentielle de propagation de la fissure dans la couche d'oxyde (a). La zone anticipée de propagation de la fissure (en vert) est maillée finement avec des éléments carrés de coté 0,1 μm tandis que le reste du domaine est maillé de manière plus grossière. La topologie de la structure est définie à l'aide du paramètre d'ordre (ϕ) imposé tout au long du calcul et dont le profil est également illustré.	60
2.19	Effet de la fissuration sur le fluage d'un matériau multi-couche. (a) Évolution temporelle de la déformation. La déformation macroscopique aux bornes du domaine modélisé ($u_x/2h$) est comparée à $ouv/2h$ (ouv étant l'ouverture de la fissure). La déformation dans le cas homogène est également représentée. (b) Évolution temporelle de la vitesse déformation normalisée par celle du matériau métallique homogène. (c) Topologie de la fissuration de la couche d'oxyde en cours de fluage. Un zoom est effectué dans la région proche de la fissure (zone en vert sur la Figure 2.18).	63
2.20	Évolution temporelle du champ de déformation visoplastique dans la couche de métal ($\epsilon_{xx,m}^{vp}$). La couche d'oxyde ($\phi > 0,5$) est représentée en gris. Les éléments fissurés ($d > 0,95$) ont été supprimés. Le domaine n'est pas représenté en entier, seule la région au voisinage de la fissure est représentée.	63
2.21	Évolution temporelle des contraintes lors du fluage d'un matériau multi-couche constitué d'une couche d'oxyde (élastique endommageable) et une couche de métal (viscoplastique non endommageable). Les contraintes dans la couche d'oxyde et la couche de métal ont été extraites aux points de contrôle définis en Figure 2.18. Les contraintes sont normalisées par la contrainte moyenne (σ_0) du chargement appliquée (cf. Équation 2.47). σ_{ox}^c est la contrainte critique induisant la fissuration de la couche d'oxyde.	64
2.22	Évolution du pas de temps en cours de simulation. Le pas de temps est contrôlé sur la base de l'incrément de l'énergie de déformation. Le paramètre de contrôle du pas de temps a été fixée à $\eta = 0,1$ (cf. Équation 2.44).	65

2.23	Géométrie et conditions aux limites pour l'étude du fluage d'un matériau multi-couche sous environnement oxydant. Un défaut initial ($\bar{d} = 1$) est imposé au milieu de la face supérieure. La direction verticale (perpendiculaire à l'interface métal/oxyde) est choisie comme direction préférentielle de propagation de la fissure dans la couche d'oxyde (a). La zone anticipée de propagation de la fissure (en vert) est maillée finement avec des éléments carrés de côté 0,1 μ m tandis que le reste du domaine est maillé de manière plus grossière. Le profil initial de concentration en oxygène est illustré en rouge.	66
2.24	Influence de la concentration en oxygène sur la résistance à la fissuration avec : $g_{c,m} = 500g_{c,ox} = 1$ N/mm (cf. Équation 2.51).	66
2.25	Résultats de la simulation du fluage d'un matériau multi-couche sous environnement oxydant. Les évolutions temporelles de la déformation, de la vitesse de déformation et du champ de concentration en oxygène sont représentées. La vitesse de fluage du matériau multi-couche est normalisée par celle du matériau métallique homogène. Les éléments fissurés ($d > 0,95$) ont été supprimés. Seule la région proche de la fissure est représentée. . . .	67
2.26	Effet de la couche de métal enrichie en oxygène sur la vitesse de fluage d'un matériau multi-couche.	70
2.27	Champ de déformation visco-plastique à $t = 200s$ avec (b) et sans (a) effet renfort de la couche de métal enrichie en oxygène. Les éléments fissurés ($d > 0,95$) ont été supprimés.	70
2.28	Profil de contrainte en cours de fluage d'un matériau multi-couche avant fissuration de la couche d'oxyde avec ($\beta = 2,3$) et sans ($\beta = 0$) effet renfort de la couche de métal enrichie en oxygène.	71
3.1	Protocole des essais d'oxydation. Les éprouvettes sont pré-oxydées à 470°C sous air avant d'être introduit dans le four OHTAVA pour l'oxydation HT dans des conditions (température, atmosphère de l'essai) bien contrôlées. .	75
3.2	Protocole de découpe des éprouvettes pour l'oxydation HT. Les tronçons de 2mm prélevés entre les éprouvettes sont utilisés pour la mesure de la teneur en hydrogène.	76
3.3	Métallographie optique d'un pré-oxyde de 10 μ m d'épaisseur après pré-oxydation sous air à 470°C.	77
3.4	Changement de couleur de l'oxyde après l'oxydation HT à 820°C sous argon pendant 3200s (Échantillon POX11).	78
3.5	Évolution temporelle de l'épaisseur de la couche de $ZrO_{2,HT}$ externe formée durant l'oxydation sur vierge à 750°C et 820°C sous mélange argon+vapeur. .	81
3.6	(a) Métallographie optique de l'échantillon A7 (a) et A8 (b) après oxydation HT sous argon+vapeur à 820°C pendant 3200s.	82
3.7	Évolution temporelle de l'épaisseur de la couche de $\alpha Zr(O)$, les résultats obtenus dans ce travail (symboles carrés et circulaires) sont comparés avec l'extrapolation de la corrélation proposée par Desquines et al [21] (cf. Tableau 1.4).	83

3.8	Profil de teneur en oxygène dans la couche $\alpha\text{Zr(O)}$ pour différentes durées d'oxydation HT sous argon+vapeur à 750°C (a) et 820°C (b). La profondeur est mesurée à partir de l'interface Zy-4/ ZrO_2 .	84
3.9	Comparaison d'une métallographie optique avec le profil de teneur en oxygène correspondant.	85
3.10	Modèle EF utilisé pour simuler l'oxydation HT sur vierge. Le profil de teneur en oxygène est illustré en rouge.	86
3.11	Principe de la méthode FEMU	86
3.12	Étude de sensibilité : (a) sensibilité sur le profil de teneur en oxygène à 3200s ; (b) évolution temporelle de la sensibilité sur l'épaisseur de la couche de ZrO_2 .	89
3.13	Résultats de la FEMU sur le cas test virtuel : (a) Évolution du résidu (Équation 3.4) ; (b) Évolution des coefficients de diffusion en oxygène dans les couches de Zy-4 et ZrO_2 normalisés par les coefficients de diffusion en oxygène de référence.	91
3.14	Résultats de la FEMU sur le cas test virtuel : (a) profil de teneur en oxygène dans la couche de Zy-4 après 3200s, la profondeur est mesurée à partir de l'interface Zy-4/ ZrO_2 ; (b) évolution de l'épaisseur de la couche de ZrO_2 en fonction de la durée d'oxydation HT.	92
3.15	Résultats de la FEMU à 820°C : (a) Évolution du résidu normalisé par sa valeur initiale ; (b) Évolution des coefficients de diffusion dans les couches de Zy-4 et ZrO_2 normalisés par les valeurs initiales.	93
3.16	Résultats de la FEMU appliquée aux essais d'oxydation : Profil de teneur en oxygène dans la couche de Zy-4 à 750°C (a) et 820°C (b), la profondeur est mesurée à partir de l'interface Zy-4/ ZrO_2 ; évolution de l'épaisseur de la couche de ZrO_2 en fonction de la durée d'oxydation HT à 750°C (c) et 820°C (d).	96
3.17	Évolution temporelle de l'épaisseur de la couche de $\alpha\text{Zr(O)}$, les résultats expérimentaux (symboles carrés et circulaires) sont comparés à ceux obtenus par simulation. L'extrapolation de la corrélation proposée par Desquines et al [21] (cf. Tableau 1.4) est également représentée.	97
3.18	Modèle EF utilisé pour simuler l'oxydation HT sur les éprouvettes pré-oxydées. Le profil initial de teneur en oxygène est illustré en rouge.	97
3.19	Résultats des simulations des essais d'oxydation sous argon et argon+vapeur à 820°C réalisés sur des gaines pré-oxydées : (a) Profils de teneurs en oxygène à différents instants ; (b) Évolution temporelle de l'épaisseur de la couche de ZrO_2 .	98
4.1	Éprouvette avec (b) et sans (a) les raccords Swagelock sertis et le mouchetis. La couche de pré-oxyde est localement retirée par sablage pour permettre la soudure des thermocouples.	104
4.2	Photo du dispositif ELLIE	105
4.3	Principe de fonctionnement du dispositif ELLIE : (a) vue de face ; (b) vue de dessus.	106
4.4	Évolution de la teneur en oxygène dans l'enceinte durant un essai sous mélange d'argon (80%)+dioxygène (20%) et sous argon seul	107

4.5	Procédure de chargement	107
4.6	Exemple d'image de la ROI avec positionnement du maillage de corrélation et illustration d'un mouchetis de référence. L'image a été prise à une température de $T = 800^{\circ}\text{C}$	108
4.7	Laminographie de la surface externe pour différentes épaisseurs de la couche de pré-oxyde après pré-oxydation sous air à 470°C	110
4.8	Métallographies optiques pour différentes épaisseurs de la couche de ZrO_2 après pré-oxydation sous air à 470°C . Les examens sont réalisés à la surface externe des échantillons.	113
4.9	Résultats de l'identification du modèle radiométrique pour l'essai V7*. $T_{\text{TC1}}, T_{\text{TC2}}, T_{\text{pyro}}$ sont les températures des thermocouples et du pyromètre. $T_{\text{TC1}}^{\text{PIR}}, T_{\text{TC2}}^{\text{PIR}}, T_{\text{pyro}}^{\text{PIR}}$, sont les températures obtenues par thermographie dans les zones des thermocouples et du pyromètre (cf. Figure 4.6).	114
4.10	Champs cinématique et thermique à $t = 65\text{s}$ pour l'essai V7*.	115
4.11	Évolution de la déformation obtenue par 3D-CIN (cf. Équation 4.5) pour l'essai V7*. La déformation pour tous les noeuds du maillage de corrélation est représentée.	115
4.12	Résultat de l'essai de ballonnement sur l'éprouvette V7*. (a) champ de vitesse de déformation obtenue par 3D-CIN. (b) comparaison du profil axial de vitesse de déformation (2D-CIN et 3D-CIN) avec le profil thermique moyen sur la génératrice centrale de la ROI. Pour la 3D-CIN, le profil de déformation est extrait sur la génératrice centrale. (c) champ de température moyenne.	116
4.13	Évolution de la déformation au centre de la ROI obtenue par 2D-CIN pour l'ensemble des essais réalisés sur des éprouvettes vierges sous atmosphère d'argon. La plage de variation de la température obtenue par thermographie PIR est spécifiée pour chaque essai. Les faisceaux définissent la zone d'incertitude en considérant une incertitude de 6°C sur la base de la loi proposée par Campello (cf. Tableau 4.4).	117
4.14	Évolution temporelle de la vitesse de déformation instantanée ($\dot{\epsilon}$) pour plusieurs essais interrompus à différents instants. La vitesse est normalisée par celle du matériau vierge. Des coupes métallographiques présentant l'état structural de chaque éprouvette sont présentées. Tous les essais ont été réalisés à 30bar. La déformation indiquée sur chaque métallographie représente la déformation macroscopique (obtenue par 2D-CIN, cf. Équation 4.4) à laquelle l'essai en question a été interrompu.	119
4.15	Évolution de la déformation au centre de la ROI. Les figures de gauche présentent l'évolution de la déformation entre 0 et 10% tandis que celles de droite illustrent les mêmes résultats entre 0 et 3%. La température moyenne obtenue par thermographie PIR est spécifiée pour chaque essai. Les couleurs permettent de distinguer les essais en fonction du type d'éprouvette (épaisseur de pré-oxyde en surface externe). Le type de symbole (disque ou croix) permet de distinguer les résultats en fonction de l'atmosphère de l'essai (argon ou argon+oxygène).	121
4.16	Vitesse de déformation moyenne normalisée par celle du matériau vierge de référence en fonction de l'épaisseur de pré-oxyde en surface externe. . .	122

4.17	Évolution de la fissuration du pré-oxyde dans la ROI en fonction de la déformation pour des éprouvettes de type Pox10/30. Les essais présentés ont tous été réalisés à 30bar. L'essai Pox 10/30-6* (e) a été réalisé sous argon et le reste (a)-(d) sous argon+oxygène.	123
4.18	Métallographie après essai de fluage sous argon+oxygène à 20bar (a) et 50bar (b).	124
4.19	Coupe métallographique post-motern de la zone correspondante à la ROI de l'échantillon Pox10/10-7*, ayant subi un essai de fluage à 30bar sous argon+oxygène. Les grandeurs mesurées pour caractériser la fissuration de la couche d'oxyde sont illustrées.	124
4.20	Évolution de la taille moyenne des fragments et de l'ouverture moyenne en fonction de la déformation macroscopique. Les mesures ont été réalisées en surface externe sur la section centrale de la ROI. L'incertitude représente la dispersion sur l'ensemble des données relevées pour chaque échantillon.	126
4.21	Répartition circonférentielle de la taille des fragments (a), de l'ouverture (b) et de la profondeur de pénétration de la fissure (c) en fonction de l'abscisse curviligne (s) dans la ROI pour l'essai Pox10/30-5*.	127
4.22	Comparaison de la déformation obtenue par corrélation d'images à celle déduite des données métallographiques.	128
4.23	Profondeur des fissures dans le métal de base en fonction de la durée après fissuration de la couche de pré-oxyde. Les essais présentés sont ceux réalisés sous argon+oxygène. Les conditions thermomécaniques (Température moyenne durant l'essai et pression interne) sont également spécifiées. t représente le temps et t_d la durée au bout de laquelle l'oxyde se fissure, estimée sur la base de la rupture de pente visible sur l'évolution temporelle de la vitesse de déformation (cf. Figure 4.14).	128
4.24	Géométrie et conditions aux limites utilisées pour simuler les essais sous argon+oxygène. La modélisation se limite à un fragment d'oxyde. Un défaut initial ($\bar{d} = 1$) est imposé au milieu de la surface externe de la couche de ZrO_2 . La direction perpendiculaire à l'interface Zy-4/ ZrO_2 (a) est choisie comme direction préférentielle de propagation des fissures. La zone (en vert) où est attendue la propagation de la fissure est maillée finement avec des éléments carrés de $0,2\mu m$ de coté tandis que le reste du domaine est maillé de manière plus grossière.	131
4.25	Illustration du processus de simulation des essais.	135
4.26	Résultat du cas virtuel : (a) évolution temporelle de la vitesse de déformation normalisée par celle du matériau vierge ; (b) évolution temporelle de la contrainte dans la couche de ZrO_2 ; (c)-(f) évolution du champ de déformation viscoplastique dans la couche de Zy-4. La couche de ZrO_2 est également représentée en gris sans les éléments fissurés ($d > 0,95$).	136
4.27	Résultat de l'étude paramétrique sur l'épaisseur de la couche de ZrO_2 en surface externe pour $\lambda = 200\mu m$, $T = 800^\circ C$, $P_i = 30bar$ et $g_{c,ZrO_2} = 1,3N/mm$: (a) évolution temporelle de la vitesse de déformation normalisée par celle du matériau vierge ; (b) évolution temporelle de la contrainte dans la couche de ZrO_2 extraite au nœud de contrôle défini en Figure 4.24.	137

4.28	Résultat de l'étude paramétrique sur la taille moyenne des fragments de ZrO_2 pour $e_{\text{ZrO}_2, \text{BT}, \text{ext}} = 10\mu\text{m}$, $T = 800^\circ\text{C}$, $P_i = 30\text{bar}$ et $g_{c, \text{ZrO}_2} = 1, 3\text{N/mm}$: (a) évolution temporelle de la vitesse de déformation normalisée par celle du matériau vierge ; (b) évolution temporelle de la contrainte dans la couche de ZrO_2 extraite au nœud de contrôle défini en Figure 4.24	138
4.29	Résultat de l'étude paramétrique sur la consigne de température pour $e_{\text{ZrO}_2, \text{BT}, \text{ext}} = 10\mu\text{m}$, $\lambda = 200\mu\text{m}$, $P_i = 30\text{bar}$ et $g_{c, \text{ZrO}_2} = 1, 3\text{N/mm}$: (a) évolution temporelle de la vitesse de déformation normalisée par celle du matériau vierge ; (b) évolution temporelle de la contrainte dans la couche de ZrO_2 extraite au nœud de contrôle défini en Figure 4.24	139
4.30	Effet de l'incertitude thermique sur la vitesse de déformation normalisée par celle du matériau vierge. $T = 800^\circ\text{C}$, $e_{\text{ZrO}_2, \text{BT}, \text{ext}} = 10\mu\text{m}$, $\lambda = 200\mu\text{m}$, $P_i = 30\text{bar}$ et $g_{c, \text{ZrO}_2} = 1, 3\text{N/mm}$	140
4.31	Comparaison entre essai et calcul : (a) mesures de la pression interne et de la température durant les essais et utilisés en entrée des simulations ; (b) évolution temporelle de la vitesse de déformation de la gaine pré-oxydée normalisée par celle de la gaine vierge ; (c) évolution de la contrainte prédite par simulation dans la couche de ZrO_2 extraite au nœud de contrôle défini en Figure 4.24.	141
B.1	Courbes de contrainte-déformation illustrant une Réponse Fragile (RF) et une Réponse Ductile (RD).	155
B.2	Densité d'énergie de déformation élastique en traction (normalisée) en fonction du ratio $[\dot{\gamma}_{xy}/A]^c$. L'exposant de Norton a été fixé à $n = 1$ pour la comparaison avec la solution analytique donnée par l'Équation B.6.	157
B.3	Transition entre une réponse fragile et ductile en fonction de l'exposant de Norton (n). Dans le cas d'un chargement en cisaillement simple (a), la solution numérique est comparée à la solution analytique donnée par l'Équation B.5. Dans le cas d'un chargement en traction (b), seule la solution numérique est présentée car il n'existe pas de solution analytique explicite.	158
B.4	Ouverture de fissure en traction (mode I) : (a) problème schématique ; (b) modèle éléments finis. Seule la partie horizontale intacte a été bloquée suivant l'axe y sur la surface inférieure. Les faces de la fissure pré-existante sont laissées libres de se déplacer.	159
B.5	Courbes contrainte-déformation pour une réponse fragile (RF) et une réponse ductile (RD) dans le cas d'une ouverture de fissure en traction (mode I). Les simulations ont été effectuées avec $a_0 = l_c$, $n = 3$	160
B.6	Contrainte critique (a) et densité d'énergie jusqu'à rupture (b) en fonction du ratio $[\dot{\varepsilon}_{yy}/A]$. La contrainte critique ($\sigma_{yy}^{el, 0, c}$) et la densité d'énergie jusqu'à la rupture (U_t^{el}) dans le cas d'un matériau élastique fragile sont également représentées. La direction de l'augmentation de la déformation viscoplastique (ε^{vp}) en pointe de fissure est illustrée. Pour toutes les simulations, la longueur de la fissure pré-existante a été fixée à $a_0 = l_c$	160
B.7	Corrélation entre la contrainte critique et la densité d'énergie de déformation à rupture. Les simulations sont effectuées avec $a_0 = l_c$	161

B.8	contrainte critique en fonction de la taille de la fissure pré-existante (a_0) normalisée par l_c ; l'exposant de Norton a été fixé à $n = 3$ pour les cas viscoplastiques.	161
B.9	(a) Énergie de déformation élastique de traction normalisée et (b) contrainte correspondante en fonction de la déformation ε_{yy} . Le cas de référence ($\varepsilon^* = 0$) et le cas élastique ($\varepsilon^* = 0,01$) sont représentés.	162
B.10	Croissance d'une couche d'oxyde rigide dans une matrice souple. Les surfaces supérieure et gauche restent planes. Les simulations sont effectuées en deux étapes. (i) Premièrement, la couche d'oxyde croît sans chargement externe ($F = 0$). (ii) Ensuite, une chargement mécanique est appliquée ($F \neq 0$). La concentration initiale est illustré en rouge.	164
B.11	Profil de contrainte associé à la croissance de la couche d'oxyde à $t = 10^{-4}$ (a) et $t = 0,15$ (b). Les cas de référence ($\varepsilon^* = A_{ox} = A_m = 0$), élastique ($\varepsilon^* = 0,01$; $A_{ox} = A_m = 0$) et viscoplastique ($\varepsilon^* = 0,01$; $A_{ox} = A_m = 1$) sont représentés. L'interface matrice/oxyde est indiquée par la ligne verticale en pointillés noirs.	165
B.12	(a) Cinétique de croissance de la couche d'oxyde. (b) Contrainte résiduelle (σ_{yy}^r) au point de contrôle après l'étape de croissance de la couche d'oxyde pour les cas de référence ($\varepsilon^* = 0$; $A_p = A_m = 0$), élastique ($\varepsilon^* = 0,01$; $A_p = A_m = 0$) et viscoplastique ($\varepsilon^* = 0,01$; $A_p = A_m = 1$). (c) et (d) montrent respectivement la charge critique ($\langle \sigma_{yy}^c \rangle$) et U_t à la rupture de la couche d'oxyde.	166
B.13	Effet d'un chargement mécanique monotone à faible vitesse durant la croissance d'une couche d'oxyde. Courbe contrainte-déformation dans le cas élastique ($\varepsilon^* = 0,01$; $A_{ox} = A_m = 0$) et viscoplastique ($\varepsilon^* = 0,01$; $A_{ox} = A_m = 0,01$).	167
B.14	Volume Élémentaire Représentatif (VER) d'une structure binaire périodique utilisée pour étudier la fissuration durant la croissance d'une inclusion. Nous procédons en deux étapes. Premièrement, l'inclusion saturée ($c(t=0) = c_i$) croît à cause de la sursaturation de la matrice ($c(t=0) = c_m + 0,5$) sans chargement mécanique externe ($\Delta u = 0$) jusqu'à ce que sa fraction atteigne $f = 0,1$. Ensuite, une déformation moyenne verticale macroscopique à vitesse élevée est appliquée ($\Delta u = u_0$) jusqu'à la rupture.	168
B.15	Fracture topology during the growth of a single inclusion for the reference case ($\varepsilon^* = 0$, $A_i = A_m = 0$). In (a) the inclusion is stiffer than the matrix. In (b) the inclusion is softer than the matrix. The arrows indicate the propagation direction from crack initiation.	170
B.16	Volume Élémentaire Représentatif (VER) d'une structure binaire périodique utilisée pour étudier la fissuration induit par un chargement mécanique pendant le processus de mûrissement d'Ostwald. Nous procédons en deux étapes. Premièrement, les inclusions saturées ($c(t=0) = c_i$) croissent à cause de la sursaturation de la matrice ($c(t=0) = c_m + 0,5$) sans chargement mécanique externe ($\Delta u = 0$). Ensuite, une déformation moyenne verticale macroscopique à vitesse élevé est appliquée ($\Delta u = u_0$) jusqu'à la rupture.	171

B.17	Initiation et propagation de la fissure à travers un réseau de matrice-inclusion pour différents stade du processus de mûrissement d'Ostwald. (a)-(c) montrent l'initiation tandis que (d)-(i) décrivent la propagation pendant le processus de mûrissement d'Ostwald.	173
B.18	Topologie des fissures après le processus de maturation d'Ostwald pour le cas de référence ($\varepsilon^* = 0$; $A_m = A_i = 0$), le cas élastique ($\varepsilon^* = 0,01$; $A_m = A_i = 0$) et le cas viscoplastique ($\varepsilon^* = 0,01$; $A_m = A_i = 1$). La durée de l'étape de croissance a été fixée à $t = 0,5$. La charge a été appliquée dans la direction verticale. Les flèches indiquent la direction de la propagation de la fissure. .	173
C.1	Examen au microscope optique d'une éprouvette pré-oxydée de type Pox10/10 après un essai de fluage réalisé à 50bar et 800°C. (a) fissuration de l'oxyde externe; (b) fissuration de l'oxyde interne.	175
D.1	(a) Image de référence; (b) image à l'état déformé; (c) champ de résidu de corrélation dans la configuration de référence	178
D.2	(a) ROI déformée; (b) Identification des fissures dans la ROI par seuillage du résidu de corrélation	179
D.3	(a) Thermographie PIR avec suppression des pixels fissurés; (b) Thermographie PIR sans suppression des pixels fissurés; (c) Ecart de température entre thermographie PIR avec et sans pixels fissurés.	179
D.4	Comparaison de l'évolution temporelle de la déformation au centre de la ROI obtenue par 2D-CIN et 3D-CIN dans le cas d'une gaine pré-oxydée de type Pox10/10.	180
E.1	Simulation du fluage d'une gaine pré-oxydée avec différents modèles : (a) modèle axi-symétrique qui est le modèle le plus représentatif des essais; (b) Modèle avec hypothèse des déformations; (c) modèle avec hypothèse de déformations planes et courbure de la gaine négligées. Le code couleur permet de représenter la température.	183
E.2	Le profil thermique utilisé pour le modèle axi-symétrique (cf. Figure E.1(a)).	183
E.3	(a) Évolution temporelle de la déformation pour les trois modèles étudiés dans le cas d'un gaine vierge.	184
E.4	Évolution temporelle de la vitesse de déformation d'une gaine pré-oxydée de type Pox10/10, normalisée par celle de la gaine vierge correspondante. La fissuration n'est pas prise en compte. Seule la phase où l'oxyde n'est pas fissurée est simulée.	184

Liste des tableaux

1.1	Composition chimique du Zy-4 détendu (%mass)	9
1.2	Principales propriétés thermo-chimio-mécaniques du Zy-4. T est la température en (K), c la concentration d'oxygène en (%mass) et $R = 1,987$ est la constante des gaz parfaits en (cal/mol/K).	10
1.3	Principales propriétés thermo-chimio-mécaniques du ZrO_2 . T représente la température en (K) et $R = 1,987$ est la constante des gaz parfaits en cal/mol/K.	13
1.4	Littérature non exhaustive sur l'oxydation HT du Zy-4 sous vapeur en conditions isothermes. T est la température en (K) et $R = 1,987$ cal/mol/K est la constante des gaz parfaits.	20
1.5	Littérature non exhaustive sur le fluage du Zy-4 en conditions isothermes dans le domaine α à haute température et en atmosphère neutre [22]. La valeur du paramètre $A(MPa^{-n}/s)$ n'est pas spécifiée dans certains travaux.	23
1.6	Effet de l'oxygène sur la vitesse de fluage des alliages de zirconium.	24
1.7	Paramètres de la loi puissance de type Norton pour la ZrO_2 , ajustée sur les résultats de fluage en compression sur zircons dopés, monocliniques et tétragonales [14].	25
2.1	Paramètres du modèle multi-physique mis en place.	49
2.2	Paramètres utilisés pour l'étude de la croissance d'une couche d'oxyde.	51
2.3	Paramètres utilisés pour l'étude de la dissolution d'une couche d'oxyde.	53
2.4	Paramètres utilisés pour l'étude de l'effet de la régularisation de l'interface sur le comportement au fluage effectif d'un matériau multi-couche. L'oxyde est supposé avoir un comportement élastique et le métal un comportement viscoplastique.	57
2.5	Paramètres utilisés pour l'étude du fluage et de la fissuration d'un matériau multi-couche constitué d'une couche de métal (visco-plastique non endommageable) et d'une couche d'oxyde (élastique endommageable). Les paramètres de fluage dans le métal dépendent de la contrainte de von Mises locale.	61
2.6	Paramètres utilisés pour l'étude du fluage sous environnement oxydant d'un matériau multi-couche constitué d'une couche d'oxyde (élastique endommageable) et d'une couche de métal (visco-plastique).	68
3.1	Matrice d'essai d'oxydation HT. T et t sont respectivement la température et la durée de l'oxydation HT. L'épaisseur de la couche de pré-oxyde visée pour l'ensemble des essais sur les éprouvettes pré-oxydées est de 10 μ m.	79

3.2	Principales données collectées pour analyser les essais d'oxydation. Seize mesures azimutales sont utilisées pour déterminer l'écart type des dispersions d'épaisseur des différentes couches ($e_{\text{ZrO}_2, \text{BT}}$, $e_{\text{ZrO}_2, \text{BT}+\text{HT}}$, $e_{\alpha\text{Zr(O)}}$) et trois mesures pour la teneur en hydrogène ($[\text{H}]_{\text{BT}}$, $[\text{H}]_{\text{BT}+\text{HT}}$). Les épaisseurs des couches sont mesurées en surface externe. Les données indiquées sont celles obtenues en métallographie, les données issues des mesures au permascopie ont juste été utilisées à des fins de vérifications. Pour les essais sur vierge, $[\text{H}]_{\text{BT}} = 11\text{wppm}$ (teneur en hydrogène du matériau à l'état de réception).	80
3.3	Paramètres utilisés pour l'étude de sensibilité. $c_{\text{Zy-4}}$ et c_{ZrO_2} sont respectivement les teneurs en oxygène d'équilibre à l'interface $\text{ZrO}_2/\text{Zy-4}$ coté Zy-4 et ZrO_2 . $D_{\text{Zy-4}}$ et D_{ZrO_2} sont les coefficients de diffusion de l'oxygène dans les couches de Zy-4 et ZrO_2 respectivement. Les paramètres de références ont été perturbés de 1 %.	88
3.4	Classification des paramètres en fonction de leur sensibilité aux grandeurs mesurés. Le nombre de "+" indique le niveau sensibilité.	88
3.5	Synthèse des paramètres utilisés dans le processus d'identification. Les paramètres spécifiques à l'approche champ de phase n'ont pas d'influence dans le processus d'identification car l'effet de la mécanique sur l'oxydation est négligé.	90
3.6	Coefficients de diffusion de l'oxygène de référence et perturbés.	90
3.7	Coefficients de diffusion de l'oxygène de référence et finaux.	92
3.8	Valeur des coefficients de diffusion de l'oxygène à l'initialisation et à la fin du processus d'identification. Les coefficients de diffusion de l'oxygène dans Zy-4 et ZrO_2 ont respectivement été initialisés avec les corrélations proposées par Ritchie [23] et Parise [24]. Les résultats de l'identification dans la couche de ZrO_2 sont comparés à la corrélation proposée par Debuigne [25].	94
3.9	Synthèse des paramètres utilisés pour simuler les essais d'oxydation sous argon et sous argon+vapeur à 820°C réalisés sur les gaines pré-oxydées. Le pré-oxyde est supposé être stœchiométrique. Les paramètres spécifiques à l'approche champ de phase n'ont pas d'influence dans le processus d'identification car l'effet de la mécanique sur l'oxydation est négligé.	95
4.1	Matrice d'essais de ballonnement sur des gaines pré-oxydées (* :correspond aux essais qui ont été menés jusqu'à l'éclatement de l'éprouvette). $e_{\text{ZrO}_2, \text{BT}, \text{ext}}$ est l'épaisseur de la couche de pré-oxyde en surface externe. ΔT la variation de température au centre de la ROI entre 0 et 3% de déformation, t_f est la durée de l'essai et P_i la pression interne.	111
4.2	Matrice d'essais de ballonnement sur des gaines vierges (* : correspond aux essais qui ont été menés jusqu'à l'éclatement de l'éprouvette). ΔT la variation de température au centre de la ROI entre 0 et 3% de déformation, t_f est la durée de l'essai et P_i la pression interne.	112

4.3	Vitesse de fluage (s^{-1}) pour les essais sur éprouvettes vierges sous argon et comparaison avec la littérature. Les lois de fluage de la littérature sont données dans le Tableau 1.6. La contrainte appliquée à l'éprouvette nécessaire pour calculer la vitesse de déformation (essais de Campello, Fréchinnet) est déduite de l'équation 4.6. $\Delta T = 6^\circ C$ représente l'incertitude thermique.	118
4.4	Loi de fluage du Zy-4 vierge dans le domaine α sous atmosphère neutre proposée par Campello [26].	118
4.5	Propriétés nécessaires pour la simulation des essais. T représente la température en (K). Les paramètres ou termes en gris choisis de manière arbitraire sont nécessaires pour le modèle mais n'ont pas une influence significative pour les résultats présentés dans la suite.	134
4.6	Données d'essai pour le cas test virtuel.	135
4.7	Épaisseur d'oxyde en surface externe et taille moyenne des fragments pour les essais {Pox10/10-4, Pox10/10-5, Pox10/10-6, Pox10/10-7*}. ε_{max} est la déformation macroscopique maximale de l'essai mesurée par 2D-CIN.	140
B.1	Définitions des paramètres sans dimension.	154
B.2	Paramètres utilisés pour simuler la croissance d'une couche d'oxyde dans une matrice. Les indices ox, m font référence respectivement à la couche d'oxyde ($\phi = 1$) et à la matrice ($\phi = 0$).	164
B.3	Paramètres adimensionnels utilisés pour la simulation de la croissance d'une inclusion. Les indices i, m désignent respectivement l'inclusion ($\phi = 1$) et la matrice ($\phi = 0$).	169
B.4	Densité d'énergie jusqu'à rupture (Ut) et contrainte critique ($\langle \sigma_{yy}^c \rangle$) après la croissance d'une inclusion dans le cas de référence ($\varepsilon^* = 0; A_m = A_i = 0$), le cas élastique ($\varepsilon^* = 0,05; A_m = A_i = 0$) et le cas viscoplastique ($\varepsilon^* = 0,05; A_m = A_i = 100$). Dans tous les cas, l'étape de croissance est arrêtée lorsque la fraction d'inclusion atteint $f = 0,1$. Ensuite, le chargement est appliqué jusqu'à la rupture.	170
B.5	Paramètres adimensionnels utilisés pour la simulation du processus de mûrissement d'Ostwald. Les indices i, m désignent respectivement l'inclusion ($\phi = 1$) et la matrice ($\phi = 0$).	172
F.1	Taille moyenne des fragments de ZrO_2 (λ), ouverture (ouv) et profondeur de pénétration des fissures dans le métal (p). L'écart type représente la dispersion circonférentielle dans la ROI. Pour plus d'informations (durée d'essai, pression interne, température) sur les essais présentés le lecteur pourra consulter la matrice d'essai (cf. Tableau 4.1)	186

Introduction générale

Le nucléaire représente un facteur stratégique important pour assurer la sécurité énergétique de la France, avec environ 70% de la production nationale d'électricité. Dans le contexte actuel d'accroissement rapide des besoins en énergie électrique, la sûreté nucléaire est amenée à évoluer en permanence afin de concilier la maîtrise du risque sans entraver la compétitivité de l'énergie nucléaire qui fait face aujourd'hui à des défis sans précédent en matière de sûreté (mise en service des réacteurs de troisième génération (EPR¹), maîtrise du vieillissement et prolongation de l'activité d'installations qui commence à dépasser leur durée de vie initiale, gestion des déchets, ampleur des démantèlements à venir...). Dans ce cadre, les différents acteurs du nucléaire (EDF², IRSN³, CEA⁴, etc) multiplient des actions de recherches visant à étudier le comportement des différents composants des réacteurs en situations normales et accidentelles.

La gaine en alliage de zirconium en tant que première barrière de confinement au contact direct avec le combustible, représente un enjeu majeur pour la sûreté nucléaire, dans le sens où sa tenue mécanique doit être maîtrisée afin d'assurer le confinement du combustible en toutes circonstances. L'Accident de Perte de Réfrigérant Primaire (APRP) est l'un des accidents hypothétiques étudiés pour dimensionner les composants des réacteurs à eau pressurisée. Du fait des conditions thermomécaniques sévères subies par la gaine lors d'un APRP, elle est susceptible de ballonner, entravant ainsi le passage du réfrigérant lors du renouveau du cœur. Le ballonnement de la gaine peut aussi conduire à son éclatement.

Durant le fonctionnement normal du réacteur, la gaine s'oxyde en surface interne lorsque le contact avec le combustible est établi et se corrode en surface externe au contact avec de l'eau. Les couches d'oxyde qui en résultent peuvent considérablement influencer la tenue mécanique effective de la gaine. L'étude du comportement thermomécanique d'une gaine lors d'un transitoire accidentel de type APRP en considérant son état de corrosion est donc nécessaire pour une meilleure compréhension et évaluation du risque en situations accidentelles. Plusieurs phénomènes physiques couplés sont simultanément activés durant la phase ductile de l'APRP. Il s'agit de l'oxydation du matériau, la diffusion d'oxygène, le fluage du métal et la prise en compte de l'endommagement des couches d'oxyde. Ces nombreux couplages multi-physiques complexifient significativement l'étude du comportement au fluage d'une gaine corrodée, ce qui justifie probablement le peu d'études traitant de ce sujet.

Cette thèse vise à décrire et caractériser ces couplages à l'aide d'une approche expéri-

-
1. EPR : Evolutionary Power Reactor
 2. EDF : Électricité De France
 3. Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire
 4. CEA : Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives

mentale et numérique. On souhaite principalement quantifier les effets de la corrosion et d'un environnement oxydant sur le comportement au fluage des tubes de gainage en Zy-4.

Dans un premier temps, le **Chapitre 1** restitue le contexte bibliographique de cette thèse. Une revue bibliographique des propriétés physiques d'intérêt pour la thèse, sur l'alliage de Zy-4 et sur la ZrO_2 , est présentée. Les couplages entre les phénomènes physiques mis en jeu lors du fluage de la gaine y sont détaillés. La stratégie générale adoptée dans ce travail est schématisée en Figure 1. Elle est basée sur un dialogue fort entre expériences et développements numériques qui semble incontournable compte tenu de la complexité du sujet.

Ainsi, le **Chapitre 2** porte sur le développement d'une plateforme numérique multi-physique permettant de simuler les phénomènes physiques couplés mis en jeu. La fissuration, la viscoplasticité, la diffusion d'oxygène et l'oxydation sont considérées. Des approches en champ de phase sont utilisées pour modéliser les singularités du problème que sont la fissuration et l'oxydation.

Le **Chapitre 3** porte sur l'étude de la cinétique d'oxydation des gaines en Zy-4 vierges et pré-oxydées à 750°C et 820°C . Les différentes étapes depuis la préparation des éprouvettes, jusqu'aux analyses post-essais y sont détaillées. Les résultats d'essais sont analysés et interprétés en lien avec les simulations. Une identification par FEMU⁵ des coefficients de diffusion de l'oxygène dans les couches de Zy-4 et de ZrO_2 est réalisée.

Enfin, le **Chapitre 4** porte sur les essais de fluage et leur modélisation. Les différentes étapes depuis la préparation des éprouvettes, jusqu'aux analyses post-essais sont abordées. Les résultats d'essais sont présentés et analysés. Une modélisation qui tient compte des spécificités de chaque essai est mise en place et validée par comparaison des résultats de simulations avec les résultats expérimentaux.

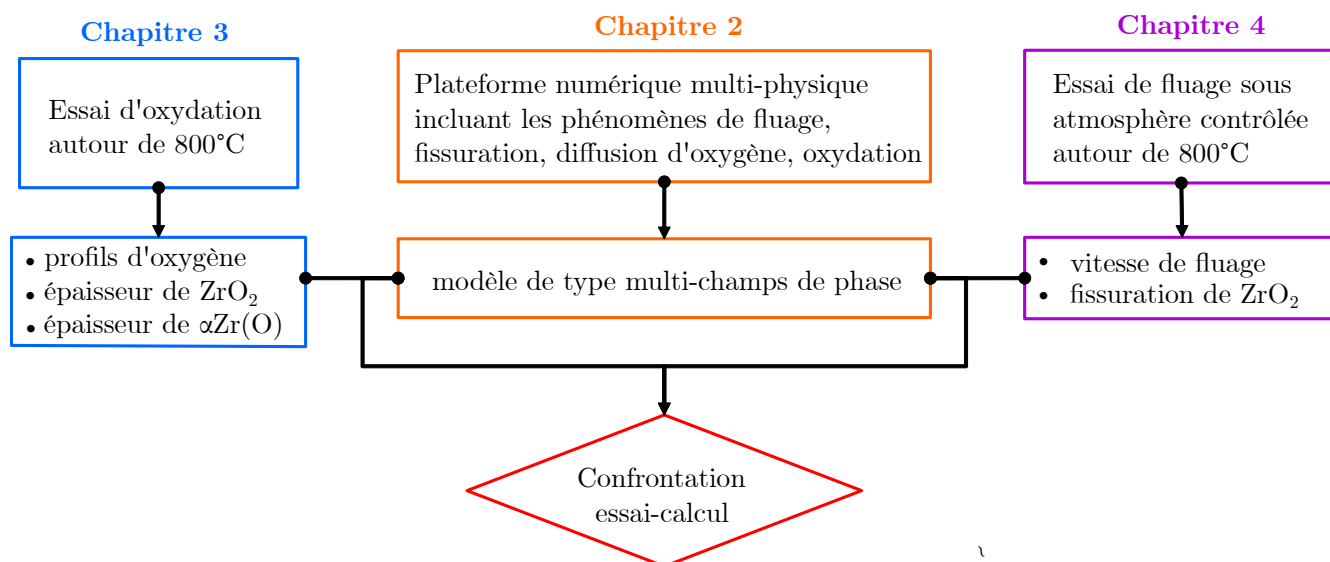


Figure 1 : Schéma présentant les travaux de cette thèse.

5. FEMU : *Finite Element Model Updating*

Chapitre 1

Contexte et bibliographie générale

Ce chapitre restitue le contexte bibliographique de cette thèse. Le déroulement de l'Accident de Perte de Réfrigérant Primaire (APRP) est précisé. Une revue bibliographique des propriétés physiques d'intérêt à haute température, sur l'alliage de Zy-4 et sur la zircone, est présentée. Les couplages physiques constatés lors du fluage de la gaine dans la phase ductile de l'APRP sont abordés. Ces couplages portent sur l'oxydation du Zy-4, la diffusion d'oxygène, le fluage du Zy-4 et de la ZrO_2 et la prise en compte de l'endommagement de la ZrO_2 .

Sommaire

1.1	Contexte de l'étude	5
1.1.1	Le Réacteur à Eau Pressurisée	5
1.1.2	La gaine en fonctionnement normal	6
1.1.3	L'Accident de Perte de Réfrigérant Primaire	7
1.1.4	La phase de ballonnement et d'éclatement de la gaine	7
1.1.5	La phase d'oxydation à Haute Température	8
1.1.6	La phase de renoyage	8
1.1.7	Objectif généraux de l'étude	8
1.2	Le matériau de l'étude : Zy-4	9
1.3	L'oxydation du Zy-4	10
1.3.1	Généralités	10
1.3.2	Corrosion en irradiation de base	12
1.3.3	Corrosion en laboratoire	14

1.3.4	Oxydation haute température	18
1.4	Comportement thermomécanique de la gaine pré-oxydée	21
1.4.1	Généralités sur le fluage des métaux et des oxydes métalliques	21
1.4.2	Le fluage du Zy-4	22
1.4.3	Le fluage de la ZrO_2	24
1.4.4	Le fluage du système Zy-4/ ZrO_2	25
1.5	Endommagement d'une couche de ZrO_2	28
1.5.1	Endommagement de la couche de ZrO_2 lors de l'oxydation	28
1.5.2	Endommagement de la ZrO_2 sous sollicitation thermomécanique	28
1.5.3	Approche théorique de la fissuration des films minces	29
1.6	Approches pour l'étude de la rupture	31
1.6.1	Théorie d'Irwin	32
1.6.2	Approche énergétique	32
1.6.3	Équivalence des deux descriptions	33
1.7	Synthèse et problématique	33

1.1 Contexte de l'étude

1.1.1 Le Réacteur à Eau Pressurisée

La majorité de l'électricité produite en France est d'origine nucléaire. En 2019, la contribution du nucléaire représentait, environ 70% de l'électricité produite. Cette production est assurée par 56 Réacteurs à Eau Pressurisée (REP). Un REP est constitué de deux sous-ensembles : le circuit primaire dont la fonction est de produire de la chaleur et le circuit secondaire qui transforme cette chaleur en énergie électrique. Le principe de fonctionnement normal d'un REP est décrit en Figure 1.1. L'eau en entrée de la cuve du circuit primaire a une température d'environ 290°C et une pression de 155 bars. Cette eau circule ensuite dans la cuve où elle est en contact avec les crayons combustibles, sa température s'élève progressivement jusqu'à 320°C environ. Elle est ensuite acheminée vers le générateur de vapeur. La vapeur générée dans le circuit secondaire est enfin utilisée pour entraîner un ensemble de turbines et d'alternateurs produisant alors de l'électricité.

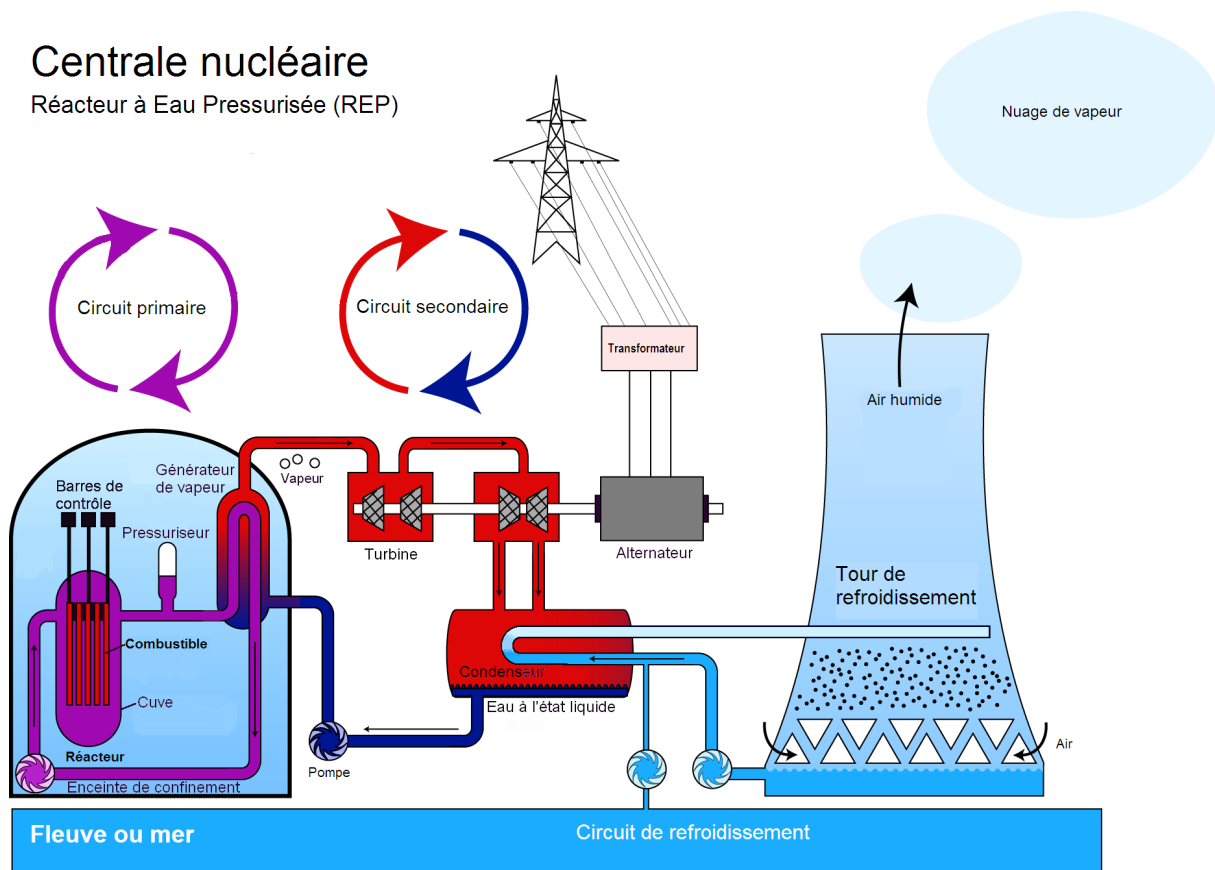


Figure 1.1 : Schéma de principe d'un réacteur à eau pressurisée [1]

Le coeur du réacteur dans lequel l'énergie calorifique est produite est constitué d'assemblages de crayons combustibles. Les REP français utilisent systématiquement des assemblages composés de 264 crayons combustibles insérés dans une succession de grilles métalliques carrées (17×17) ainsi qu'illustré en Figure 1.2(a). Cette disposition permet aussi l'insertion des barres de contrôle, qui régulent la réaction nucléaire (grâce à leur effet fortement neutrophage) selon que les barres de contrôle sont plus ou moins insérées dans

l'assemblage. Un crayon combustible illustré en Figure 1.2(b) est l'association de pastilles de combustible empilées à l'intérieur de tubes de gaine d'environ 4 mètres de hauteur, de diamètre extérieur de 9,5 millimètres et d'épaisseur 0,57 millimètre.

La sûreté d'une installation nucléaire s'établit autour de trois barrières de confinement successives qui séparent les matières radioactives présente dans la gaine de l'environnement extérieur. La gaine, en alliage de zirconium, constitue la première barrière au plus proche des matières radioactives. La seconde barrière est assurée par la cuve en acier et le circuit primaire contenant l'ensemble du cœur. Le tout est enfin entouré de l'enceinte de confinement en béton qui constitue la troisième barrière.

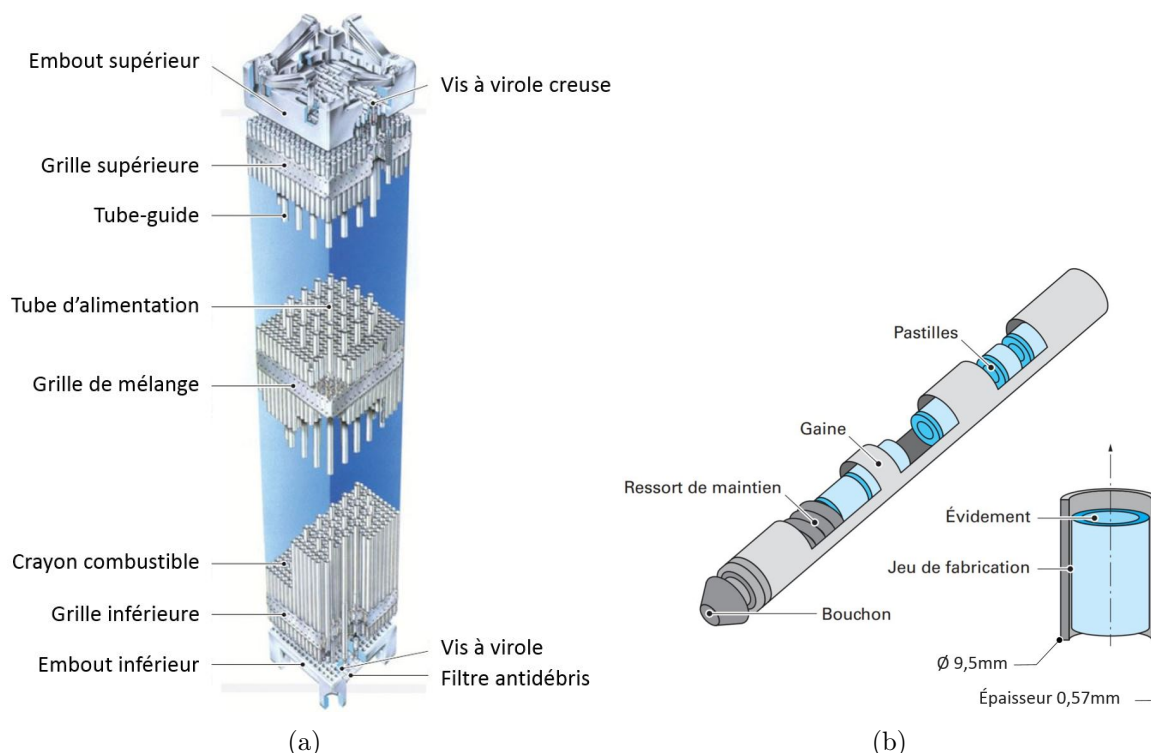


Figure 1.2 : (a) Schéma d'un assemblage ; (b) Vue éclatée d'un crayon combustible combustible [27].

1.1.2 La gaine en fonctionnement normal

En fonctionnement normal, la gaine subit une pression externe de 155 bar. Elle est initialement remplie d'hélium (environ 20 bar à 20°C) afin de compenser en partie la pression externe. D'un point de vue thermique, la température de la gaine est d'environ 360°C en surface interne et comprise entre 280°C et 320°C en surface externe. Dans ces conditions, la gaine se corrode en surface externe par l'eau du primaire et s'oxyde en surface interne lors de la mise en contact avec le combustible. La corrosion en surface externe libère également de l'hydrogène qui diffuse dans la gaine et forme des hydrures susceptibles de fragiliser le matériau [28, 29]. À ces phénomènes, s'ajoutent l'irradiation de la gaine qui induit des défauts dans le réseau cristallin du matériau [30]. Ces défauts d'irradiation sont responsables d'une perte de ductilité et d'un durcissement du matériau.

À haute température, un phénomène de restauration des défauts se produit [31, 32]. Pour plus de détails sur les évolutions structurales de la gaine durant son séjour en réacteur le lecteur pourra se référer à [33].

1.1.3 L'Accident de Perte de Réfrigérant Primaire

L'Accident de Perte de Réfrigérant Primaire (APRP) (en anglais LOCA : *Loss of Coolant Accident*) est l'un des accidents hypothétiques de dimensionnement des réacteurs à eau pressurisée. L'APRP est lié à l'apparition d'une brèche sur le Circuit Primaire Principal (CPP). Cette brèche entraîne la dépressurisation et l'évaporation d'une grande quantité d'eau du CPP. Cette situation déclenche immédiatement l'arrêt du réacteur par la chute des grappes de contrôle et de sécurité dans le cœur du réacteur nucléaire. La réaction de fission nucléaire est alors arrêtée. Cependant, le combustible dispose d'une puissance thermique résiduelle. Pour assurer le refroidissement du cœur nucléaire et éviter sa fusion, l'inventaire en eau dans la cuve est maintenu constant par le Système d'Injection (d'eau) de Sécurité (RIS) et la vidange des accumulateurs. Le transitoire thermomécanique subi par la gaine au cours d'un APRP est illustré en Figure 1.3. Du fait de ces conditions thermomécaniques, la gaine est susceptible de ballonner, éclater et s'oxyder avant d'être refroidie lors du renoyage du cœur.

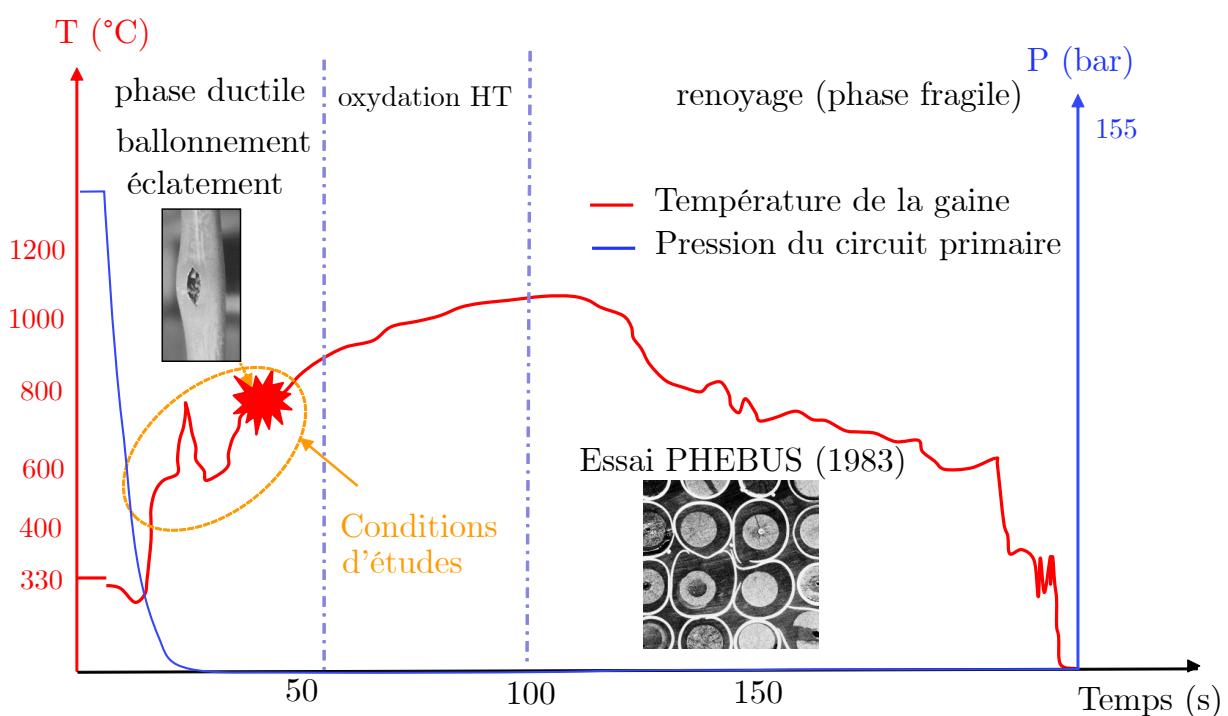


Figure 1.3 : Illustration du transitoire thermomécanique subi par la gaine au cours d'un APRP.

1.1.4 La phase de ballonnement et d'éclatement de la gaine

Suite à la dépressurisation du CPP, la gaine se retrouve soumise à une contrainte circonférentielle de traction résultant de la différence de pression entre l'intérieur et l'ex-

térieur qui peut dépasser 100 bar. Par ailleurs, le défaut de refroidissement limite la possibilité d'évacuer la puissance résiduelle et la température des gaines peut s'élever jusqu'à une température ne devant pas excéder 1200°C. La pression interne combinée à la haute température des gaines provoque leur ballonnement et leur éclatement qui survient généralement autour de 800°C.

1.1.5 La phase d'oxydation à Haute Température

Au cours de la seconde phase, la température de la gaine peut atteindre 1200°C alors que la pression du CPP diminue fortement jusqu'à des valeurs allant de quelques bars à quelques dizaines de bars. L'eau qui entre en contact avec la gaine va donc s'évaporer. Par la suite, les gaines vont s'oxyder au contact avec la vapeur d'eau à haute température. L'oxygène étant fragilisant pour les métaux, cette oxydation haute température va fortement influencer le comportement thermomécanique de l'alliage et peut conduire à une rupture fragile de la gaine lors du refroidissement [21, 34, 35]. Le passage à haute température modifie également la microstructure des gaines. De plus, si la gaine a éclaté au cours de la première phase, elle peut s'oxyder non seulement sur sa surface externe mais aussi sur sa surface interne exposée à la vapeur. Cette oxydation en face interne entraîne la substitution de molécules de vapeur d'eau en H_2 . Lorsque la concentration en hydrogène est importante, elle est l'origine d'une hydruration dite secondaire en face interne [36–38].

1.1.6 La phase de renoyage

La circulation d'eau, assurée par le RIS et la vidange des accumulateurs, va permettre de refroidir le cœur nucléaire. Le refroidissement s'effectue du bas vers le haut de la cuve. Cependant, le ballonnement des gaines et leur éventuel contact peuvent boucher les canaux de refroidissement (cf. Figure 1.3), gênant ainsi la montée de l'eau. La circulation de l'eau se trouve alors affectée par les canaux partiellement bouchés. De plus, la présence de la vapeur d'eau va également perturber le refroidissement des gaines. Lors du refroidissement, les gaines peuvent être soumises à un chargement mécanique de traction dans la direction axiale due à la dilatation thermique différentielle de la gaine et des tubes guides plus froids. De plus un eutectique Zr-Fe ou Zr-Ni est susceptible de souder la gaine aux grilles [39].

1.1.7 Objectif généraux de l'étude

Durant un APRP, il est exigé que la gaine conserve une géométrie refroidissable durant la phase de renoyage [40]. La réduction de la section de passage du réfrigérant lors d'un APRP par le ballonnement des gaines est susceptible de compromettre l'efficacité du renoyage et conduire à une évolution vers un accident grave avec fusion du cœur. Dans ce cadre, de nombreuses études ont été menées tant sur le plan expérimental [13–15, 41–47], que de la modélisation [48–52] afin de comprendre et prédire le comportement mécanique de la gaine combustible en situation accidentelle.

La plupart des études portent sur des gaines vierges (à l'état de fabrication). Cependant, lors du fonctionnement normal les gaines se corrodent en surface externe et s'oxydent en surface interne. De plus, à haute température l'oxydation des gaines est

accélérée par leur élévation en température. Les couches d'oxydes qui se forment sont susceptibles d'influencer le comportement mécanique de la gaine [16, 20, 53, 54]. **L'objectif de cette étude est d'évaluer l'influence des couches de zircon et de l'oxygène sur le comportement de la gaine en situation accidentelle de type APRP.** Dans la suite de ce chapitre, les données bibliographiques sur l'oxydation et le comportement mécanique de la gaine à haute température sont présentées.

1.2 Le matériau de l'étude : Zy-4

Le zirconium est le principal constituant des gaines de combustible dans l'industrie nucléaire. C'est principalement sa transparence aux neutrons qui justifie son choix [55]. Dans la pratique, le zirconium est associé à un certain nombre d'additifs dans le but d'optimiser les performances physico-chimiques de la gaine, notamment la résistance à la corrosion et la tenue mécanique. Il existe de ce fait différents types d'alliages (Zy-2, Zy-4, M5[®], E110, Zirlo[®]) qui sont utilisés dans la fabrication des gaines. Ce travail porte sur le Zy-4 qui est l'alliage historique utilisé dans les réacteurs de type REP, sa composition chimique est donnée dans le Tableau 1.1.

Sn	Fe	O	Cr	C	Zr
1, 29	0, 21	0, 13	0, 11	0, 016	bal

Tableau 1.1 : Composition chimique du Zy-4 détendu (%mass)

Les additifs comme le fer et le chrome ont une limite de solubilité modeste dans le zirconium. Ils précipitent sous forme de phases intermétalliques qui limitent la taille des grains et améliorent la tenue à la corrosion. L'oxygène, est un élément durcissant qui permet, à faible dose, d'augmenter les propriétés mécaniques à froid du matériau notamment la limite élastique [56]. Pour plus de détails sur le rôle des éléments d'addition le lecteur pourra se référer à [56–58].

En fonction des conditions de température et de pression, le zirconium peut exister sous deux formes allotropiques [59]. En conditions isothermes en dessous de 800°C environ et sous pression atmosphérique, le zirconium est stable sous sa phase α qui possède une structure hexagonale compacte (HC). Au dessus de 1000°C environ le matériau présente une structure β cubique centrée [60]. Dans la zone de transition entre 800 et 1000°C, les deux phases coexistent et forment un domaine biphasé. Cependant, en conditions anisothermes, la cinétique thermique influence fortement les bornes du domaine biphasé [61–63]. Le taux d'hydrogène et d'oxygène ont également un impact sur les bornes du domaine biphasé. l'oxygène est un élément alphasène, qui augmente la température de transformation de phase tandis que l'hydrogène est un élément bêtagène qui, au contraire, diminue la température de transformation.

Ce travail se limite au comportement isotherme de la gaine dans le domaine α . Le Tableau 1.2 résume les principales propriétés thermo-chimio-mécaniques du zirconium.

Les tubes de gainages sont mis en forme à l'aide d'un procédé de laminage à froid à pas de pèlerin. Ce procédé écroute fortement le matériau. Un traitement thermique est alors effectué afin de relaxer partiellement les contraintes résiduelles de fabrication. Le

Domaine de validité	Module de Young (MPa) [64]
phase α	$116.10^3 - 59T$
	Coefficient de Poisson [65]
phase α, β	0,35
	Coefficient de dilatation thermique (K^{-1}) [65]
phase α	Axial : $5,41 \cdot 10^{-6} + 6 \cdot 10^{-8}(c - 1,2 \cdot 10^{-3})(1 + 1,5 \cdot 10^{-3}(T - 300))$ Diamétral : $7,10 \cdot 10^{-6}$
	Coefficients de diffusion d'oxygène (cm^2/s) [23]
$290 < T < 650^\circ C$	$0,0661 \exp\left(\frac{-44000}{RT}\right)$
$650 < T < 1500^\circ C$	$16,5 \exp\left(\frac{-54700}{RT}\right)$

Tableau 1.2 : Principales propriétés thermo-chimio-mécaniques du Zy-4. T est la température en (K), c la concentration d'oxygène en (%mass) et $R = 1,987$ est la constante des gaz parfaits en (cal/mol/K).

traitement thermique appliqué diffère selon l'utilisation souhaitée. Un recuit par recristallisation partielle d'une durée d'environ 1 heure à $715^\circ C$ conduit à l'état dit "recristallisé" (RCX ou RXA) caractérisé par des grains équiaxes (cf. Figure 1.4(b)). Le Zy-4 recristallisé a été utilisé comme matériau pour les tubes-guides qui contiennent les barres de contrôle. Un recuit plus long d'environ 4 à 5 heures à $475^\circ C$ donne l'état dit "détendu" caractérisé par des grains très allongés dans la direction de laminage (cf. Figure 1.4(a)). Le Zy-4 détendu utilisé comme matériau pour les tubes de combustibles, constitue le matériau de base de cette étude.

1.3 L'oxydation du Zy-4

1.3.1 Généralités

L'un des principaux facteurs limitant de la durée de vie d'une gaine en réacteur est la corrosion. En fonctionnement normal comme en situation accidentelle, la gaine se trouve en permanence exposée à une atmosphère oxydante (eau, vapeur et combustible). L'oxygène présent dans le milieu primaire réagit avec le Zy-4 pour former une couche d'oxyde, la zircone de formule chimique (ZrO_2). La réaction chimique qui mène à la formation de cette couche de zircone est donnée par :



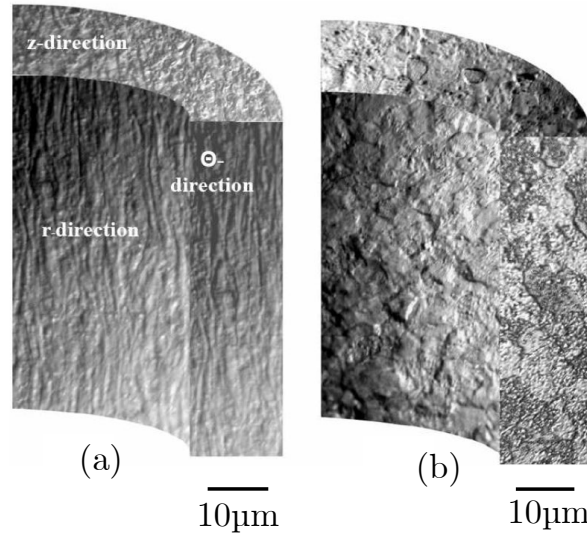


Figure 1.4 : Comparaison de la microstructure du Zy-4 détente (a) et recristallisé (b) [2].

La croissance de la couche de ZrO_2 se fait par diffusion de l'oxygène en phase solide à travers la couche de zircone jusqu'à l'interface Zy-4/ ZrO_2 [66,67]. Lorsque la concentration d'oxygène à l'interface Zy-4/ ZrO_2 est suffisante, la croissance de la couche d'oxyde se poursuit.

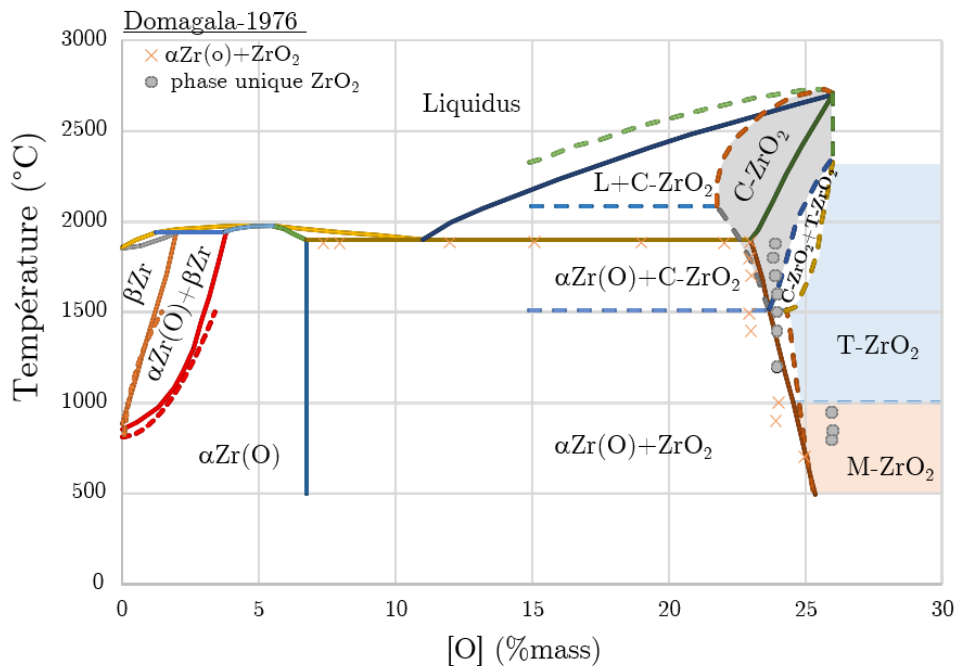


Figure 1.5 : Diagramme de phase du système binaire Zr-O [3]

La diffusion d'oxygène à travers la couche de ZrO_2 peut se faire soit en volume soit le long des joints de grains. On observe toutefois que la diffusion en volume reste relativement lente par rapport à la diffusion s'effectuant aux joints de grains [68,69].

Comme illustré sur le diagramme de phase (cf. Figure 1.5), la zirconite peut exister sous trois formes allotropiques. Pour des températures inférieures à 1000°C environ et sous pression atmosphérique, la zirconite est présente sous sa forme monoclinique. Entre 1000°C et 1500°C, la zirconite est stable sous sa forme tétragonale. Enfin, au delà de 1500°C, c'est la phase cubique qui est présente. La Figure 1.6 illustre l'arrangement des atomes pour la phase monoclinique et la phase tétragonale.

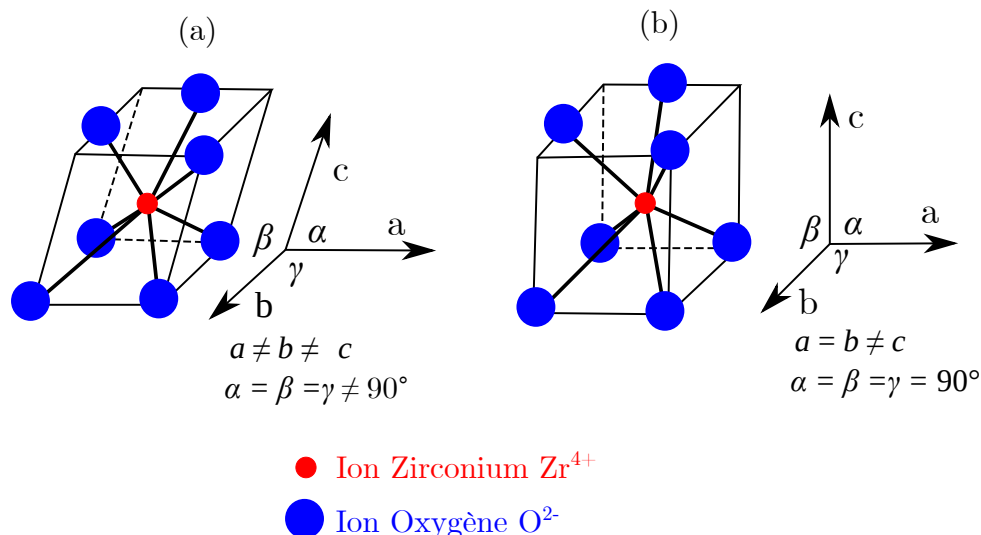


Figure 1.6 : Structure cristallographique de la phase monoclinique (a) et de la phase tétragonale (b) [4].

Toujours d'après le diagramme de phase du système Zr-O, l'oxydation du zirconium à des températures inférieures à 1000°C devrait conduire à la présence exclusive de zirconite monoclinique. Toutefois, la phase tétragonale de la zirconite est observée au niveau de l'interface Zy-4/ ZrO_2 [70–72]. Il existe un certain nombre de facteurs qui contribuent à stabiliser la phase tétragonale jusqu'à la température ambiante. Il s'agit notamment des contraintes de compression et la petite taille des grains à l'interface Zy-4/ ZrO_2 , les lacunes en oxygène et la présence d'additifs [24, 73, 74].

Les propriétés thermo-chimio-mécaniques de la zirconite ne sont pas bien connues de la littérature. Néanmoins, le Tableau 1.3 donne un ordre de grandeur de ses propriétés.

1.3.2 Corrosion en irradiation de base

Durant leur séjour en réacteur, les gaines se corrodent en surface externe au contact avec l'eau du circuit primaire et en surface interne par l'oxygène des pastilles. L'évolution de l'épaisseur de ZrO_2 en surface externe le long d'un crayon est illustrée en Figure 1.7(a). Le gradient thermique entre le bas et le haut de la gaine induit une augmentation progressive de l'épaisseur de la couche de ZrO_2 en fonction de la position axiale le long de la gaine. Un assemblage est constitué de 7 étages délimités par des inter-grilles. Les turbulences que subit l'eau du circuit primaire au niveau des grilles améliorent les échanges thermiques et ralentissent localement l'oxydation. L'évolution de l'épaisseur de ZrO_2 maximale en surface externe de la gaine en fonction du taux de combustion (burn-up en anglais) est illustrée en Figure 1.7(b). Pour une gaine ayant séjourné pendant 5 ans en réacteur (1 an

Domaine de validité	Module de Young (MPa) [65]
phase monoclinique	$203460 - 18,85T - 10,1 \exp\left(-\frac{480}{T}\right)$
	Coefficient de Poisson [65]
phase monoclinique, tétragonale	0,3
	Coefficient de dilatation thermique (K ⁻¹) [65]
phase monoclinique	$\frac{7,8 \cdot 10^{-6}T - 2,34 \cdot 10^{-3}}{T - 300}$
	Coefficients de diffusion d'oxygène (cm ² /s) [25]
$400 < T < 850^{\circ}\text{C}$	$0,105 \cdot 10^{-2} \exp\left(\frac{-29300}{RT}\right)$

Tableau 1.3 : Principales propriétés thermo-chimio-mécaniques du ZrO₂. T représente la température en (K) et $R = 1,987$ est la constante des gaz parfaits en cal/mol/K.

correspond à un taux de combustion d'environ 10GWj/tU), l'épaisseur de ZrO_2 peut atteindre 100-120 μm en surface externe (80 μm correspond à la limite fixée par l'Autorité de Sûreté Nucléaire (ASN) afin d'éviter le phénomène de desquamation de la gaine [75]). Pour une gaine en Zy-4, on observe une accélération de la cinétique au alentours de 40GWj/tU. En surface interne, quel que soit le taux de combustion, l'épaisseur de ZrO_2 ne dépasse pas 10-15 μm [76, 77].

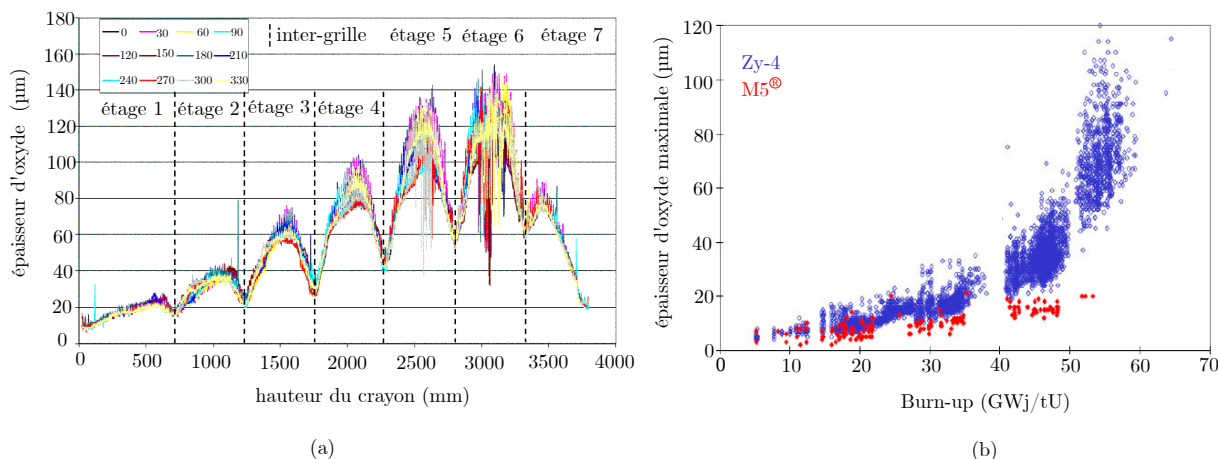


Figure 1.7 : (a) Épaisseur de ZrO_2 le long d'une gaine en Zy-4 irradiée pendant 5 cycles. L'épaisseur de ZrO_2 a été déterminée suivant plusieurs génératrices ($0^\circ - 330^\circ$) de la gaine [5]. (b) Cinétique d'oxydation de la gaine en Zy-4 et M5[®] irradiée en fonction du taux de combustion (burn-up) [6].

1.3.3 Corrosion en laboratoire

Compte tenu des coûts et contraintes associés à l'expérimentation sous irradiation, l'étude de la corrosion du Zy-4 est très souvent réalisée hors irradiation. Elle est généralement étudiée en autoclave en eau stagnante ou sous circulation d'eau dans des conditions représentatives du fonctionnement normal d'un REP [78] (température, pression, chimie de l'eau) et de manière plus alternative sous vapeur [79, 80], sous oxygène [8] ou sous air [5, 81].

Il existe principalement deux méthodes de suivi de la croissance de la couche de ZrO_2 . Il s'agit d'une part de l'analyse thermogravimétrique (ATG) qui permet de suivre *in-situ* l'évolution de la prise de masse [82–85]. Le suivi de la prise de masse permet sous certaines conditions de remonter à l'épaisseur de ZrO_2 (1 μm de ZrO_2 correspond à 15mg/dm² [5, 86]). La corrélation entre prise de masse et épaisseur de ZrO_2 n'est valable que si la surface exposée reste constante et s'il n'y a pas de dissolution d'oxygène dans le Zy-4. Cette dernière hypothèse n'est vraie qu'à Basse Température (BT). À Haute Température (HT), une quantité non négligeable d'oxygène se trouve dissout dans le Zy-4 conduisant à la formation d'une couche enrichie en oxygène ($\alpha\text{Zr(O)}$ cf. Figure 1.14). D'autre part, Il est également possible de suivre l'évolution de couche de ZrO_2 au moyen d'essais interrompus. Dans ce dernier cas, des analyses microscopiques *post-mortem* permettent de mesurer directement l'épaisseur de la couche de ZrO_2 [12, 87–89].

L'allure de l'évolution de la prise de masse illustrée en Figure 1.8 fait apparaître

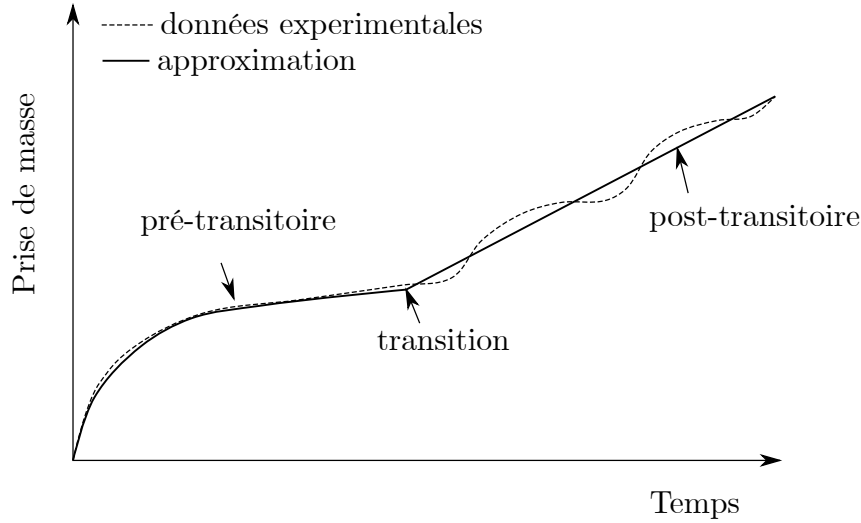


Figure 1.8 : Cinétique de corrosion du Zy-4 mettant en évidence le régime pré-transitoire et post-transitoire.

deux régimes : un régime pré-transitoire et post-transitoire séparés par une transition (breakaway en anglais).

1.3.3.1 Régime pré-transitoire

Le régime pré-transitoire est caractérisé par une couche de ZrO_2 dense (cf. Figure 1.9) et protectrice vis à vis de l'oxydation supplémentaire du Zy-4.

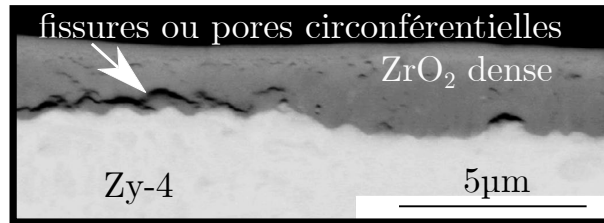


Figure 1.9 : Cliché MEB de la section transversale du Zy-4 oxydé en eau primaire pendant 180 jours à 360°C . Les premières fissures circonférentielles formées juste après la transition cinétique sont mises en évidence [7].

Dans ce régime, l'évolution de la prise de masse est donnée par une loi de puissance de la forme [90, 91] :

$$\left(\frac{\Delta m}{S}\right)^{n_c} = k_c \cdot t \quad (1.2)$$

où Δm est la variation de masse, S la surface exposée au milieu oxydant, n l'exposant cinétique compris entre 2 et 3, k_c la constante cinétique et t le temps. Une cinétique sub-parabolique ($2 < n_c < 3$) est généralement observée pour la corrosion en conditions REP. L'approche diffusionnelle du problème d'oxydation des métaux basée sur la théorie de Wagner [92] conduit systématiquement à une cinétique parabolique. Afin d'expliquer cette déviation au régime parabolique, plusieurs hypothèses sont formulées dans la littérature.

Une hypothèse souvent évoquée est l'évolution de la taille des grains qui conduit à une réduction de la quantité de courts-circuits de diffusion de l'oxygène à travers la couche de ZrO_2 [91, 93]. D'autres auteurs expliquent la cinétique non parabolique par la présence de fortes contraintes de compression dans la couche de ZrO_2 [94–96]. Les modèles basés sur une loi de diffusion d'oxygène qui dépend du gradient des contraintes permettent d'aboutir à une cinétique non parabolique [97]. Eloff *et al.* [98] pensent qu'il y aurait également un effet du champ électrique sur la cinétique de croissance de la couche de ZrO_2 .

1.3.3.2 Transition cinétique

La transition cinétique marque le début de la perte du caractère protecteur de la couche de ZrO_2 . Durant la corrosion à basse température cette transition cinétique survient lorsque l'épaisseur de ZrO_2 atteint environ $2\mu\text{m}$ [5, 86]. L'accélération de la cinétique de croissance après la transition cinétique serait déclenchée par l'apparition de pores ou fissures dans la couche de ZrO_2 [99]. Le milieu oxydant pénétrerait profondément dans la couche d'oxyde à travers un réseau de fissures ou de pores interconnectés [86]. Cependant, l'origine de ces pores ou fissures ne fait pas unanimité dans la littérature. Pour certains, il s'agit simplement d'un moyen pour la couche de ZrO_2 de relaxer les contraintes de croissance induites [100]. Pour d'autres, c'est la transformation de la phase tétragonale en phase monoclinique qui entraîne la formation des porosités [101–104]. Toutefois, cette dernière hypothèse est contestée par plusieurs auteurs qui n'observent pas de diminution brusque de la fraction de phase tétragonale à la transition cinétique [105–107].

1.3.3.3 Régime post-transitoire

Le régime post-transitoire est caractérisé par une couche de ZrO_2 poreuse et une cinétique de croissance de la couche de ZrO_2 cyclique qui s'approche sur le long terme à une cinétique linéaire (cf. Figure 1.8). La morphologie de la couche de ZrO_2 dans le régime post-transitoire est illustrée en Figure 1.10. La couche de ZrO_2 formée pendant ce régime est constituée d'une succession de strates séparées par des pores et /ou fissures circonférentielles susceptibles de faciliter l'accès à l'interface $\text{Zy-4}/\text{ZrO}_2$ au milieu oxydant. La morphologie stratifiée de l'oxyde est cohérente avec la cinétique cyclique observée dans le régime post-transitoire. Le régime post-transitoire serait alors une succession de régimes pré-transitoires interrompus par l'apparition de fissures circonférentielles.

1.3.3.4 Microstructure de la couche de ZrO_2

La couche de ZrO_2 formée avant la transition cinétique lors de la corrosion du Zy-4 a une microstructure stratifiée en grains colonnaires et équiaxes. Les grains colonnaires constitués de zircone monoclinique, font $100\text{--}500\text{nm}$ de longueur et $10\text{--}50\text{nm}$ de diamètre tandis que les grains équiaxes, composés de zircone tétragonale, ont une taille de $5\text{--}20\text{ nm}$ (cf. Figure 1.11). Le processus de croissance de la couche de ZrO_2 proposé par Motta *et al.* [10] est résumé en Figure 1.12. Ce mécanisme suggère que les grains initialement équiaxes composés de ZrO_2 tétragonale se transforment en ZrO_2 monoclinique lorsqu'ils atteignent une taille critique.

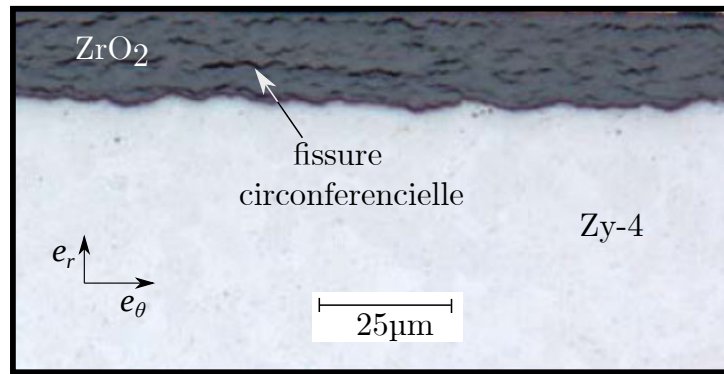


Figure 1.10 : Observation au microscope optique de la section transversale d'une gaine en Zy-4 après oxydation sous oxygène à 500°C pendant 20 jours [8].

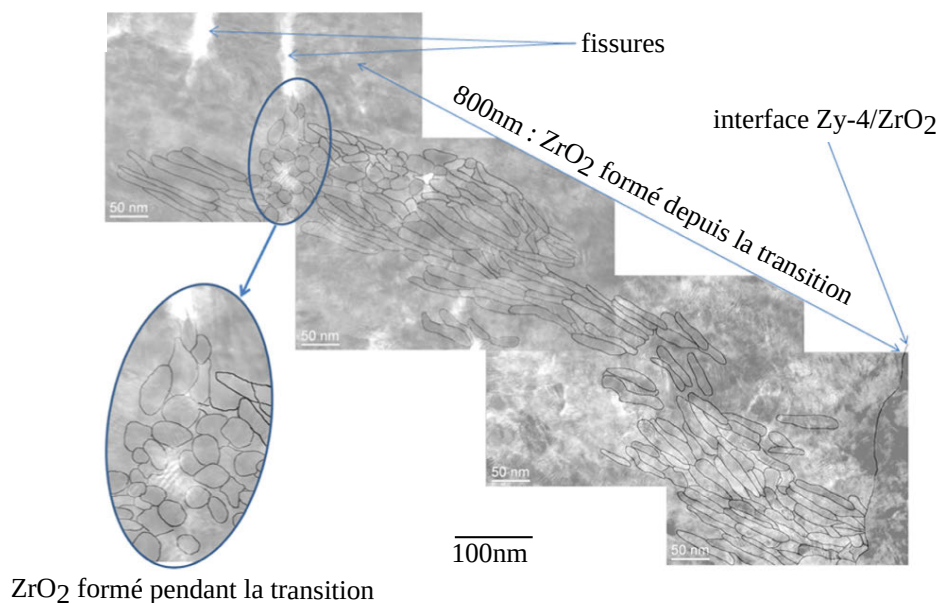


Figure 1.11 : Assemblage de clichés MET (Microscope Electronique à Transmission) montrant les grains de ZrO_2 formé sur Zy-4 à 360°C en eau pure, après la transition cinétique [9].

1.3.3.5 Les contraintes induites par la corrosion

Durant l'oxydation, des contraintes internes sont générées dans le métal et l'oxyde. Ces contraintes sont induites par plusieurs sources de déformations impliquées dans le processus de croissance de la couche de ZrO_2 . On distingue :

- les déformations de croissance principalement dues à l'incompatibilité des volumes molaires du Zy-4 et de la ZrO_2 définie par le rapport de Pilling-Bedworth [108] (qui vaut environ 1,56 dans le cas du système Zy-4/ ZrO_2). Plusieurs auteurs considèrent que la déformation de croissance est anisotrope compte tenue de la microstructure à grains colonnaire de la ZrO_2 (cf. Figure 1.11). Sous cette hypothèse, la modélisation des essais de déflexion [109, 110] conduit à une déformation de croissance de 0,5% dans le plan de l'oxyde et de 54% dans la direction perpendiculaire au plan de l'oxyde [111].

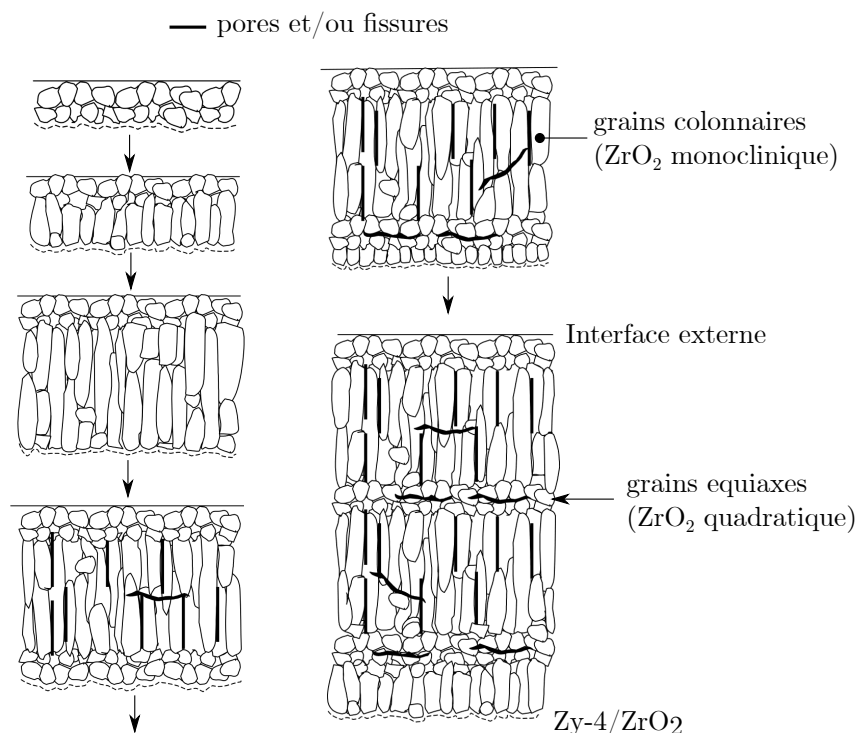


Figure 1.12 : Schéma synthétique du mécanisme de croissance de la ZrO_2 . Les flèches indiquent le sens de croissance dans le temps [10].

- les déformations chimiques engendrées par la diffusion d'oxygène dans le métal [112]. Ces déformations sont en général faibles et du second ordre.
- les déformations thermiques liées à la différence de coefficients de dilatation thermique entre Zy-4 et ZrO_2 .
- les déformations d'épitaxie provenant de l'incompatibilité du réseau cristallin entre Zy-4 et ZrO_2 . Le système Zy-4/ ZrO_2 subit des déformations pour accommoder l'incompatibilité des réseaux cristallins. Toutefois, il s'agit d'un phénomène très local [113].

A ces déformations s'ajoutent les déformations élastiques et viscoplastiques qui sont directement reliées à l'état de contraintes. Les contraintes générées dans la couche de ZrO_2 sont globalement des contraintes de compression, sauf à l'interface Zy-4/ ZrO_2 où l'ondulation de l'interface induit des concentrations de contraintes bi-axiales alternées entre traction et compression [111].

1.3.4 Oxydation haute température

L'oxydation Haute Température (HT) du Zy-4 est très souvent étudiée sous air, vapeur ou oxygène. La cinétique de croissance pré-transitoire obtenue reste globalement la même quelle que soit l'atmosphère oxydante considérée sauf sous air où la formation de nitrures induit une accélération précoce de la croissance de la couche de ZrO_2 pour des températures supérieures à 750°C environ [114, 115]. Un effet accélérateur de la pression partielle du gaz oxydant sur la cinétique de croissance de la couche de ZrO_2 est également souvent observé. En deçà d'une certaine pression partielle d'oxygène la cinétique

d'oxydation dépend de la pression d'oxygène. On parle alors de "starvation" [116]. Inversement, au delà d'une certaine pression partielle en oxygène, la cinétique d'absorption se stabilise [117]. Le temps au bout duquel apparaît la transition cinétique dépend de la température et atteint un minimum situé entre 2000-4000s à 1000°C [118]. Compte tenu de ces durées importantes, les études APRP se limitent généralement au régime pré-transitoire.

L'évolution de l'exposant cinétique n_c (cf. Équation 1.2) en fonction de la température est illustré en Figure 1.13. Pour des températures inférieures à 1000°C, on observe une cinétique sub-parabolique voir cubique ($2 < n_c \leq 3$) tandis qu'une cinétique parabolique ($n_c = 2$) est observée au delà de 1000°C. Nagase *et al.* [11] suggère que ce changement de la cinétique sub-parabolique vers une cinétique parabolique est lié à la transformation de la ZrO_2 monoclinique en ZrO_2 tétragonale à 1000°C.

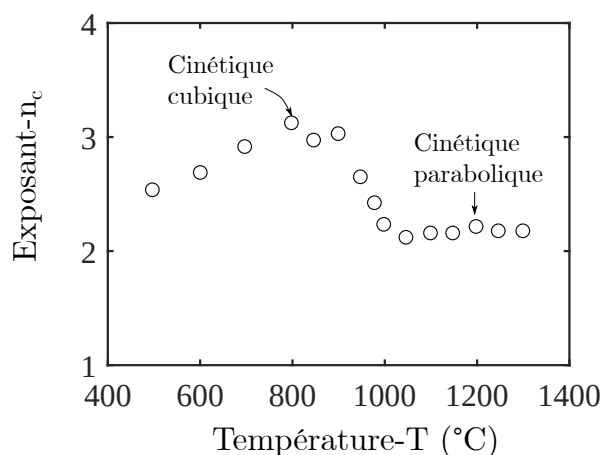


Figure 1.13 : Effet de la température sur la cinétique de croissance de la couche de zircone [11].

Une coupe métallographique de la section transversale d'une gaine en Zy-4 après oxydation sous vapeur à 1000°C pendant 30 minutes est illustrée en Figure 1.14. On observe une couche de ZrO_2 pré-transitoire dense. L'oxydation HT conduit également à la formation d'une couche de métal enrichie en oxygène ($\alpha\text{Zr(O)}$). La dissolution d'oxygène dans le Zy-4 permet de stabiliser la phase αZr dans une gamme de températures (au-delà de 1000°C) pour laquelle seul la phase βZr devrait être présente.

Plusieurs données concernant les cinétiques de croissance des couches de ZrO_2 et de $\alpha\text{Zr(O)}$ pour des températures comprises entre 900°C et 1200°C sont disponibles dans la littérature [12, 87–89, 119]. Les cinétiques de croissance des couches de Zy-4 et de $\alpha\text{Zr(O)}$ ont la même forme que celle de la prise de masse (cf. Équation 1.2). Le Tableau 1.4 résume quelques corrélations existantes permettant d'évaluer l'épaisseur du $\alpha\text{Zr(O)}$ et de la couche de ZrO_2 pour des températures comprises entre 900°C et 1200°C. Peu de données sont disponibles dans la littérature pour des températures moins élevées [11].

L'effet d'une couche de ZrO_2 pré-existante formée à basse température sur l'oxydation HT du Zy-4 a également été étudié [12, 21, 89]. Le pré-oxyde a un effet protecteur sur l'oxydation HT. Il introduit un temps de retard à initiation de l'oxydation HT. Pendant le temps de retard une dissolution du pré-oxyde au profit de la formation du $\alpha\text{Zr(O)}$ peut être observée [89, 120]. Desquines *et al.* [21] a établi une corrélation qui prend en compte

Référence	Corrélations	Validité
Cathcart-Pawel, 1977 [87]	$e_{ZrO_2}(\mu\text{m}) = \sqrt{2252 \cdot 10^3 \exp\left(-\frac{35890}{RT}\right)t(s)}$	1000-1500°C
	$e_{\alpha Zr(O)}(\mu\text{m}) = \sqrt{15230 \cdot 10^4 \exp\left(-\frac{48140}{RT}\right)t(s)}$	900-1500°C
Urbanic, 1978 [119]	$e_{ZrO_2}(\mu\text{m}) = \sqrt{1296 \cdot 10^2 \exp\left(-\frac{26996}{RT}\right)t(s)}$	1050-1580°C
	$e_{\alpha Zr(O)}(\mu\text{m}) = \sqrt{1520 \cdot 10^4 \exp\left(-\frac{39402}{RT}\right)t(s)}$	1050-1580°C
Desquines <i>et al.</i> , 2021 [21]	$e_{\alpha Zr(O)}(\mu\text{m}) = \sqrt{378 \cdot 10^5 \exp\left(-\frac{21557}{T}\right)t(s)}$	900-1200°C

Tableau 1.4 : Littérature non exhaustive sur l'oxydation HT du Zy-4 sous vapeur en conditions isothermes. T est la température en (K) et $R = 1,987\text{cal/mol/K}$ est la constante des gaz parfaits.

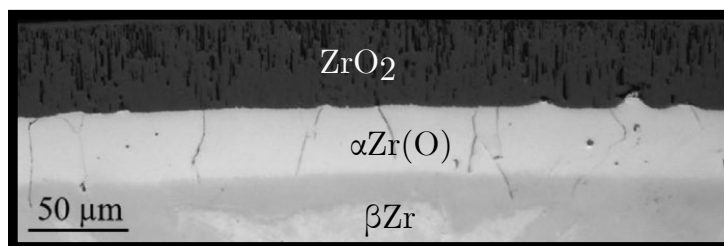


Figure 1.14 : Métallographie de la section transversale d'une gaine en Zy-4 après oxydation sous vapeur à 1000°C pendant 30 minutes [12].

cet effet protecteur du pré-oxyde.

1.4 Comportement thermomécanique de la gaine pré-oxydée

Durant leur séjour en réacteur les gaines se corrodent en surface externe et s'oxydent en surface interne, il est donc important d'étudier le comportement mécanique en APRP de la gaine en prenant en compte son état pré-oxydé. La gaine pré-oxydée se présente comme un matériau multi-couches constitué d'une couche de ZrO_2 (en face interne et externe) et d'une couche de Zy-4. À haute température, une couche sous-jacente supplémentaire constituée par le Zy-4 enrichi en oxygène se forme. Le comportement au fluage effectif de la gaine pré-oxydée dépend alors de celui de ses couches constitutives. Une revue bibliographique sur le comportement au fluage de chaque couche constitutive de la gaine pré-oxydée est abordée dans cette section.

1.4.1 Généralités sur le fluage des métaux et des oxydes métalliques

Le fluage est un phénomène physique se traduisant par une déformation différée (non-instantanée) d'un matériau soumis à une contrainte constante (σ). Lorsque cette déformation est irréversible, on parle de déformation viscoplastique. Il s'agit d'un phénomène thermiquement activé qui devient significatif lorsque la température du matériau dépasse la moitié de sa température de fusion. Ce comportement viscoplastique est généralement observé au-delà d'une certaine contrainte seuil. Dans le cas du Zy-4, ce seuil est négligeable [121]. L'évolution théorique de la déformation de fluage en fonction du temps permet de différencier trois régimes successifs [122] tel qu'illustré en Figure 1.15.

- **Le fluage primaire** se caractérise par une diminution de la vitesse de déformation avec le temps. Peu de fluage primaire est observé pour les alliages de zirconium [123].
- **Le fluage secondaire** se traduit par une vitesse de déformation constante dans le temps.
- **Le fluage tertiaire** se manifeste par une augmentation de la vitesse de déformation jusqu'à la rupture du matériau.

Les études du fluage des métaux et oxydes métalliques à haute température se limitent en général au fluage secondaire généralement modélisé de manière phénoménologique par

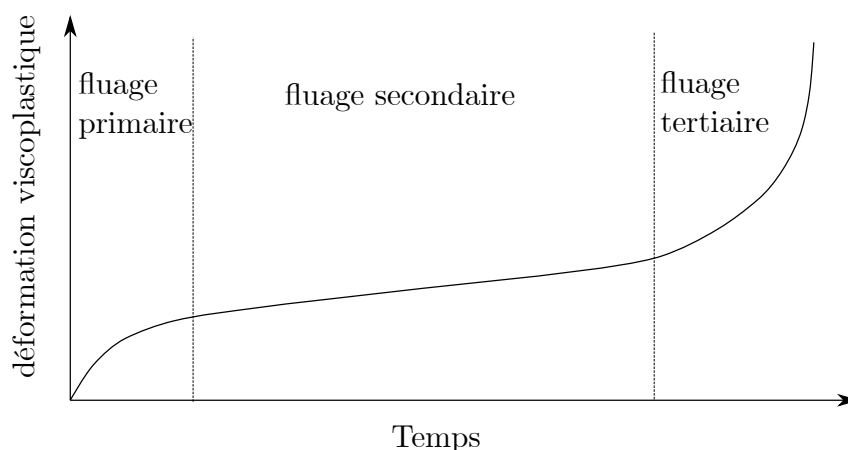


Figure 1.15 : Courbe théorique de la déformation de fluage en fonction du temps.

une loi de puissance de type Norton de la forme :

$$\dot{\epsilon}^{vp} = A\sigma_{vm}^n \exp\left(\frac{-Q}{RT}\right) \quad (1.3)$$

où n est l'exposant de Norton qui dépend du mécanisme de fluage activé, A est un paramètre qui dépend de la microstructure (taille des grains), Q est l'énergie d'activation, R la constante des gaz parfaits, T la température et σ_{vm} la contrainte de von Mises.

À l'équilibre et en condition isotherme, on distingue principalement deux mécanismes responsables du fluage des métaux :

- **Le fluage de type diffusion** pour lequel la déformation est contrôlée par la diffusion des défauts. Ce fluage diffusif est observé en général pour des faibles niveaux de contraintes. La diffusion des défauts peut se faire en volume (fluage de type Nabarro-Herring [124, 125]) ou au niveau des joints des grains (fluage de type Coble [126]). l'exposant de Norton (n) associé à ce mécanisme de fluage a une valeur proche de l'unité et une énergie d'activation (Q) située entre 50 et 150 kJ/mol.
- **Le fluage de type dislocation** est lié aux mouvement des dislocations intragranulaires. Ce mécanisme de fluage est observé en général à haut niveau de contrainte. L'exposant de Norton (n) a une valeur comprise entre 4 et 7 avec une énergie d'activation comprise entre 200 et 300 kJ/mol.

Dans la pratique les deux mécanismes de fluage coexistent bien que l'un ou l'autre soit prédominant selon que l'on soit à basses ou hautes contraintes.

1.4.2 Le fluage du Zy-4

Ce travail porte sur le comportement au fluage du Zy-4 pour des températures voisines de 800°C. À cette température, le Zy-4 est stable sous sa phase α . Jailin [22] a regroupé les données disponibles dans la littérature sur le fluage du Zy-4 dans le domaine α en atmosphère neutre (cf. Tableau 1.6). Aux faibles contraintes, un fluage diffusif est observé alors qu'un fluage de type dislocation est observé aux fortes contraintes. La transition entre les deux mécanismes se situe entre 15-25 MPa [13, 15].

Référence	Type d'essais	Domaine de validité	Résultats
Hunt, 1978 [127]	Pressurisation interne	580 - 800°C 7 - 138 bar	$n = 5,3$ $Q = 288$
Rosinger, 1979 [41]	Traction sur gaine	670 - 800°C 3 - 50 MPa	$n = 5,32$; $A=2 \cdot 10^3$ $Q = 284,6$
Sills, 1979 [128, 129]	Uniaxial et ballonnement	600 - 800°C > 8 MPa	$n = 5,3$; $A=1,9 \cdot 10^4$ $Q = 290$ kJ/mol
Donaldson, 1985 [130]	Traction sur tôles découpées de tubes	700 - 800 15 MPa	$n < 2$ $Q = 120$ kJ/mol
		700 - 800 50 MPa	$n \simeq 5$ $Q = 270$ kJ/mol
Ortlieb, 1987 [131]	Pressurisation interne	600 - 800°C 45 - 160 bar	$n = 4,57$ $Q = 250$ kJ/mol
Fréchinnet, 2001 [13]	Traction sur gaine	700 - 800 < 15 MPa	$n = 1,3$; $A=\frac{10^6}{T}$ $Q = 190$ kJ/mol
Kaddour, 2004 [132, 133]		700 - 800 > 15 MPa	$n = 5$; $A=\frac{1,63 \cdot 10^8}{T}$ $Q = 316$ kJ/mol
Campello, 2016 [26]	Pressurisation interne	750 - 800°C 12 - 26 MPa	$n = 1,66$; $A=e^{2,46}$ $Q = 150$ kJ/mol
		750 - 800°C 26 - 38 MPa	$n = 4,9$; $A=e^{-6,95}$ $Q = 168$ kJ/mol
		780 - 809°C 30 - 47 MPa	$n = 3,92$; $A=e^{12,2}$ $Q = 293$ kJ/mol

Tableau 1.5 : Littérature non exhaustive sur le fluage du Zy-4 en conditions isothermes dans le domaine α à haute température et en atmosphère neutre [22]. La valeur du paramètre $A(\text{MPa}^{-n}/s)$ n'est pas spécifiée dans certains travaux.

En atmosphère oxydante, l'incorporation de l'oxygène dans le Zy-4 à haute température induit un effet renfort exponentiel. La vitesse de fluage secondaire du Zy-4 enrichi en oxygène s'exprime de manière empirique par [134] :

$$\dot{\varepsilon}^{vp} = \dot{\varepsilon}_0 \exp(-\beta c) \quad (1.4)$$

où $\dot{\varepsilon}_0$ est la vitesse de fluage du matériau ne contenant pas d'oxygène, $c(\% \text{mass})$ la concentration locale d'oxygène dissous dans le Zy-4 avec la concentration d'oxygène de fabrication. Le Tableau 7 résume les différentes valeurs du paramètre de renfort $\beta(\% \text{mass}^{-1})$ disponibles dans la littérature. La plage de concentration d'oxygène étudiée reste limi-

Référence	Matériau	Domaine de validité	β ($\% \text{mass}^{-1}$)
Burton, 1979 [134]	Zy-2	700 - 797°C 20 - 60 MPa 0-1,6%mass	3,23 - 3,85
Chow, 1982 [135]	Zy-4	670 - 800°C 30 MPa 0,8-1,2%mass	2,8
Chosson, 2014 [54]	M5 [®]	800 - 1100°C 4 - 13 MPa 0,8 - 3,2%mass	2,3

Tableau 1.6 : Effet de l'oxygène sur la vitesse de fluage des alliages de zirconium.

tée à des faibles teneurs en oxygène $c \leq 3,2\% \text{mass}$. L'extrapolation de ces données de la littérature à la limite de solubilité dans le domaine α (7%mass) conduit en moyenne à un facteur renfort de l'ordre de 10^{10} , ce qui paraît relativement élevée.

1.4.3 Le fluage de la ZrO_2

Le comportement en fluage à haute température de la zircone a été peu étudié dans la littérature. La majorité des études portent sur la zircone utilisée en tant que céramique technique. Cette zircone d'usage industriel est différente de la zircone formée par oxydation du Zy-4 à haute température. La zircone industrielle est dopée (généralement en yttrium, calcium, magnésium) dans le but de stabiliser la zircone tétragonale à basse température [136]. Néanmoins, pour la couche de zircone le mécanisme de fluage prédominant est la diffusion des défauts. Le comportement au fluage de la zircone est souvent modélisé par une loi de puissance avec un exposant de Norton compris entre 1 et 2 et une énergie d'activation comprise entre 350 et 550kJ/mol [137–139]. À partir de plusieurs données recensées dans la littérature, Chosson a identifié une loi de Norton pour décrire le fluage de la zircone (cf. Tableau 1.7). Cependant, l'exploitation de cette loi obtenue sur des zircons techniques pour décrire le comportement de la couche de ZrO_2 formée sur une gaine en Zy-4 semble délicate.

Domaine de validité	$A(\text{MPa}^{-n}\text{s}^{-1})$	n	$Q(\text{kJ/mol})$
T=1000°C 8-200 MPa	4.10 ¹²	1,52	500

Tableau 1.7 : Paramètres de la loi puissance de type Norton pour la ZrO_2 , ajustée sur les résultats de fluage en compression sur zircons dopés, monocliniques et tétraogonales [14].

1.4.4 Le fluage du système Zy-4/ ZrO_2

Grâce à leur résistance élevée au fluage et selon leur intégrité, les couches de ZrO_2 et de métal enrichi en oxygène ($\alpha\text{Zr(O)}$) peuvent induire un renforcement de la gaine. Une diminution significative de l'allongement à rupture *post-mortem* est observée lors d'essais de fluage isothermes sur Zy-4 sous vapeur [140] par rapport aux mêmes essais sous argon [141]. L'analyse unique de la rupture ne permettant pas de comprendre en détail l'effet de l'oxydation, des mesures *in-situ* de la déformation en cours de fluage ont été réalisées. C'est notamment le cas pour les essais sur Zy-4 sous atmosphère vapeur réalisés dans le dispositif EDGAR et présentés dans la thèse de Chosson. L'exploitation des essais EDGAR dans le domaine β a mis en évidence une corrélation entre la cinétique d'oxydation et l'accroissement progressif de la résistance au fluage pouvant aller au delà d'un facteur 100 pour des faibles contraintes (pression interne $\leq 6\text{bar}$) et des températures élevées ($\geq 1000^\circ\text{C}$) (cf. Figure 1.16). Ce renforcement progressif de la gaine croît avec l'épaisseur cumulée de $\text{ZrO}_2 + \alpha\text{Zr(O)}$ formée en cours d'essai. Toutefois, il est difficile de dissocier les contributions spécifiques des couches de ZrO_2 et $\alpha\text{Zr(O)}$. Par ailleurs, l'effet renfort semble croître lorsque la température augmente ou lorsque la contrainte diminue. L'exploitation par Chosson des essais EDGAR sur Zy-4 sous vapeur dans le domaine α semble indiquer un effet négligeable de l'oxydation en dessous de 825°C . Ce dernier résultat est discutable car il repose sur la comparaison d'essais réalisés dans des conditions différentes.

Un effet renfort est également observé par Campello qui a réalisé des essais de ballonnement sous argon à 800°C et 30bar sur des gaines en Zy-4 pré-oxydées à basse température (475°C). La comparaison entre les profils de vitesse fluage mesurés sur gaine vierge par rapport à ceux sur gaine pré-oxydée avec une épaisseur d'oxyde interne et externe de 10 μm (Pox 10/10) à 26bar est illustrée en Figure 1.17. On observe un renfort d'un facteur 10 environ. Les images prises en cours d'essai font état d'un réseau de fissures longitudinales en surface externe (cf. Figure 1.17(a)). La propagation radiale de ces fissures est stoppée à l'interface Zy-4/ ZrO_2 . Une observation "post mortem" des grains en lumière polarisée est présentée en Figure 1.18. Elle permet de visualiser le processus d'écoulement induit par le fluage. Les grains sous les fragments de ZrO_2 sont equiaxes tandis qu'ils sont plus allongés dans les zones où le métal se retrouve à nu. Après la fissuration de la ZrO_2 , on s'attend à une perte significative du renfort initialement apporté par la ZrO_2 non fissurée. Toutefois une part non négligeable de la surface de la gaine reste protégée par les fragments de ZrO_2 non fissurés. Il n'est donc pas exclu qu'un renfort résiduel soit maintenu même après fissuration de l'oxyde. A l'inverse on peut aussi envisager une augmentation de la vitesse de fluage après fissuration par rapport à celle du matériau vierge qui serait induit par des concentrations de contraintes entre les fragments de ZrO_2 .

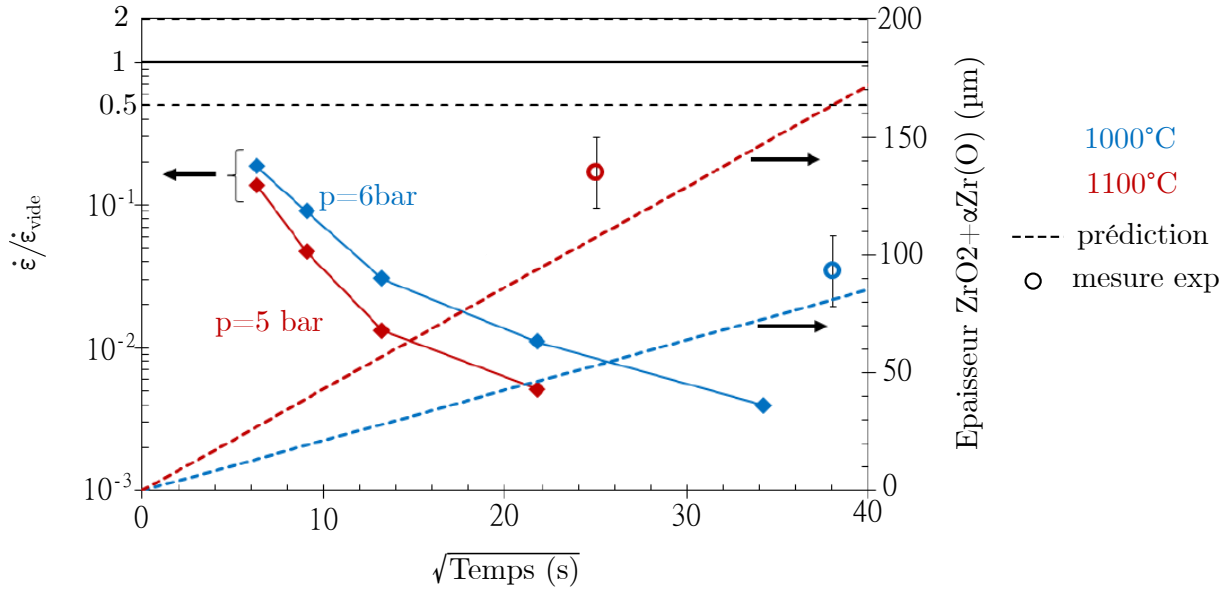


Figure 1.16 : Évolution temporelle de la vitesse de fluage d'une gaine en Zy-4 sous atmosphère vapeur normalisée par la loi de fluage sous vide identifiée par Fréchin et [13]. L'évolution temporelle de l'épaisseur cumulée de ZrO_2 et $\alpha\text{Zr(O)}$ est également représentée [14].

Les résultats précédents mettent bien en évidence le fait qu'il n'est pas possible de traiter une gaine pré-oxydée comme un matériau homogène. En réalité, il s'agit d'un matériau multi-couche ($\text{ZrO}_2/\alpha\text{Zr(O)}/\text{Zy-4}/\alpha\text{Zr(O)}/\text{ZrO}_2$) avec des propriétés et des comportements mécaniques différents selon les couches.

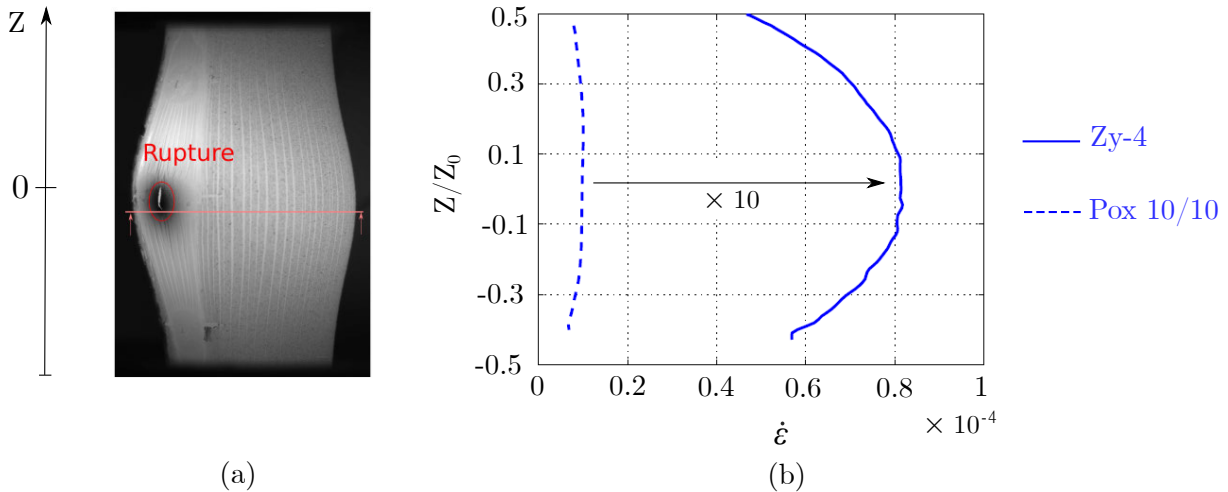


Figure 1.17 : (a) Image prise juste après l'éclatement mettant en évidence le réseau de fissures formé en cours d'essai sur gaine pré-oxydée. (b) Comparaison entre les profils de vitesse de fluage mesurés sur gaine vierge par rapport à ceux sur gaine pré-oxydée avec une épaisseur d'oxyde interne et externe de $10\mu\text{m}$ (Pox 10/10) à 26bar et 800°C [15] avant fissuration du pré-oxyde.

Les résultats de Dominguez [16] pour des essais de fluage en traction uniaxiale sur

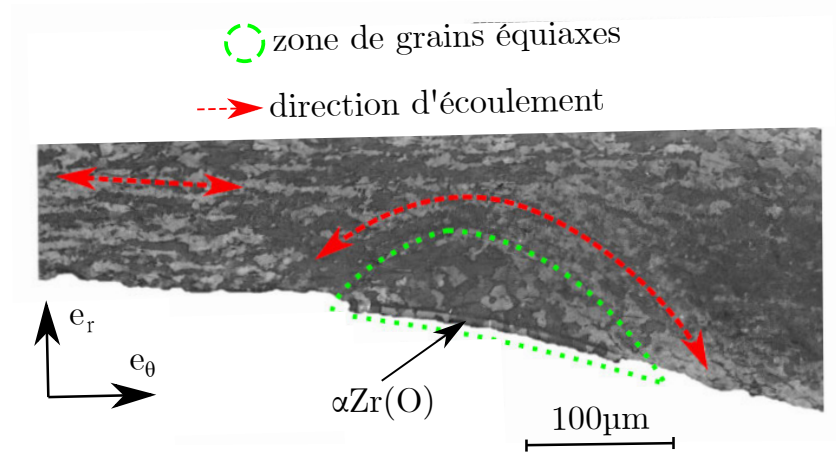


Figure 1.18 : Métallographie en lumière polarisée d'une échantillon pré-oxydée après essai de ballonnement à 800°C [15].

des gaines en Zy-4 vierges et pré-oxydées sous vide primaire à 850°C sont illustrés en Figure 1.19. Ces résultats, cohérents avec ceux de Campello, mettent également en évidence un effet renfort du pré-oxyde peu dépendant de son épaisseur et pouvant atteindre un facteur 10 pour une contrainte de 10MPa.

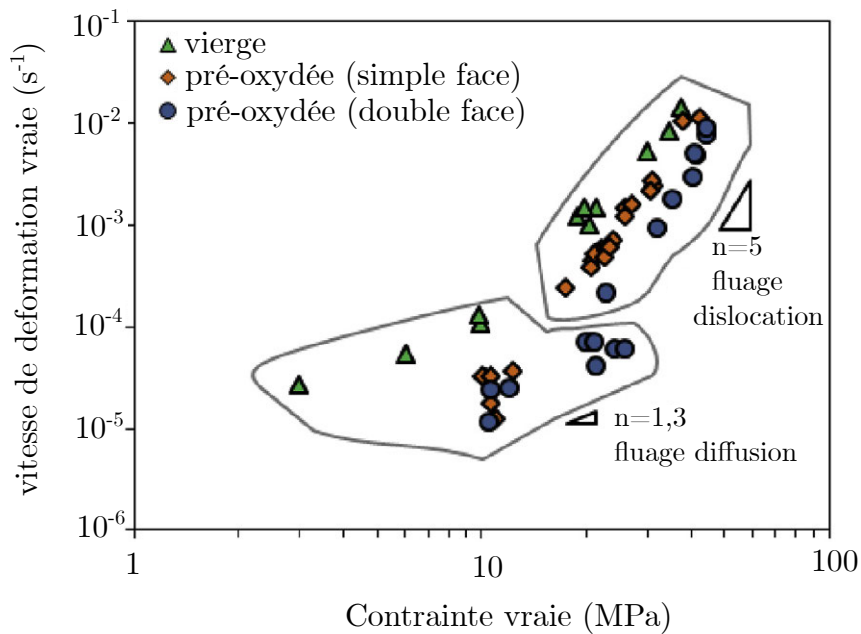


Figure 1.19 : Vitesse de fluage du Zy-4 à 850°C sous vide primaire en fonction de la contrainte appliquée. Comparaison de la vitesse de la gaine vierge avec celles des gaines pré-oxydées simple face en externe (10μm, 30μm et 40μm d'épaisseur de ZrO₂) et double face (10μm/10μm, 30μm/10μm, 70μm/10μm) [16].

1.5 Endommagement d'une couche de ZrO_2

Avec ou sans chargement mécanique extérieur appliqué, les observations métallographiques d'une gaine oxydée relèvent un endommagement significatif de la couche de ZrO_2 . Il est important de caractériser cet endommagement qui peut affecter la contribution mécanique de la ZrO_2 dans la tenue mécanique globale de la gaine.

1.5.1 Endommagement de la couche de ZrO_2 lors de l'oxydation

La ZrO_2 formée sous irradiation ou en laboratoire contient des fissures circonférentielles réparties sur toute son épaisseur. Une observation métallographique de la couche de ZrO_2 formée sous irradiation et en laboratoire est présentée en Figure 1.20. De nombreux pores ou fissures circonférentielles sont observés. Comme mentionné plus haut, l'origine de ces pores ou fissures n'est pas clairement établie dans la littérature. Certains auteurs considèrent qu'il s'agit de pores ou vides induits par la transformation de la ZrO_2 tétragonale en ZrO_2 monoclinique. Pour d'autres, il s'agit de fissures induites par les contraintes générées dans l'oxyde durant sa croissance. L'ondulation de l'interface Zy-4/ ZrO_2 induit localement un état de contrainte alternée entre compression et traction compatible avec la présence de fissures circonférentielles. Pour des fortes épaisseurs de ZrO_2 , des fissures radiales sont également observées (cf. Figure 1.20(b)). Ces fissures radiales suggèrent un état de contrainte de traction en surface externe de la gaine dans la direction circonférentielle. Le fait que les fissures ne traversent pas toute la couche de ZrO_2 semble indiquer un changement de l'état de contrainte au voisinage de l'interface Zy-4/ ZrO_2 . On observe par endroit des veines qui sont des zones denses sans fissures radiales et circonférentielles pouvant permettre à la zircone de conserver une résistance mécanique non négligeable.

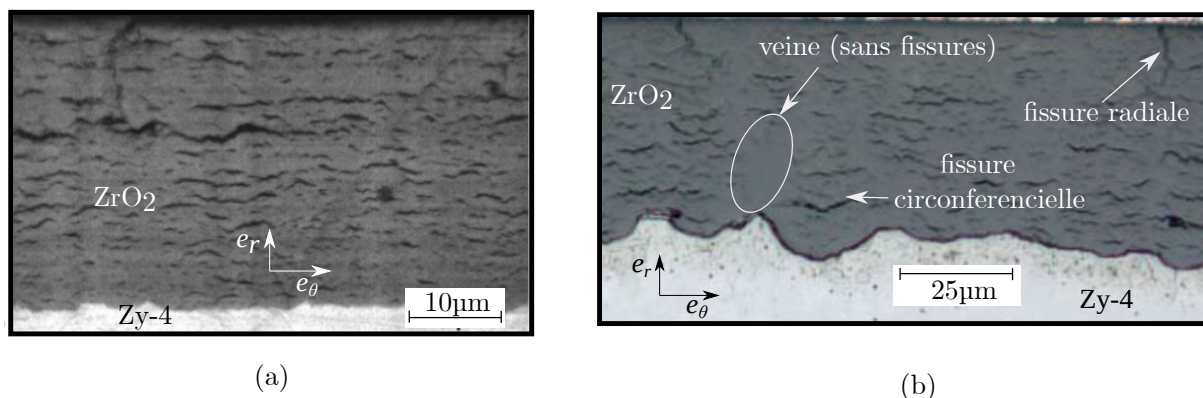


Figure 1.20 : Métallographie de la couche de ZrO_2 formée sur gaine en Zy-4 (a) sous irradiation (5 cycles en REP, étage 3) [17] (b) en laboratoire sous oxygène à 500°C pendant 40 jours [8].

1.5.2 Endommagement de la ZrO_2 sous sollicitation thermomécanique

L'application d'un chargement thermomécanique externe sur une gaine pré-oxydée peut induire un endommagement significatif de la couche de ZrO_2 . La Figure 1.21 présente

des métallographies obtenues après essai mécanique sous irradiation et en laboratoire. On observe en général une multi-fissuration de la ZrO_2 avec une taille de fragment plutôt régulière. Selon les conditions d'essai, deux modes d'endommagement de la gaine peuvent être observés :

- Pour les essais sous atmosphère oxydante avec un chargement modéré, les fissures s'écartent par fluage (laissant le métal entre les fragments à nu), se ré-oxydent et pénètrent dans le métal (cf. Figure 1.21(b)). Ce mode d'endommagement qui met en évidence une compétition entre la cinétique fluage et d'oxydation conduit à une rupture par oxydation sous contrainte.
- Pour des sollicitations mécaniques intenses, aucune pénétration des fissures dans le métal n'est observée (cf. Figure 1.21(c)). Le fluage domine sur l'oxydation, les fissures s'ouvrent rapidement et n'ont pas le temps de se ré-oxyder. Ce mode d'endommagement conduit à une rupture par épuisement de ductilité.

La Figure 1.22 résume les données de la littérature sur la taille moyenne des fragments de ZrO_2 en fonction de la déformation résiduelle. Les données présentées sont issues des essais intégraux de type RIA réalisés dans le cadre du programme expérimental CABRI REP-Na conduit par l'IRSN en collaboration avec EDF et le CEA. Les données issues d'essais moins intégraux réalisés en laboratoire par Berat-Robert [20] sont également représentées. Le bon accord des résultats suggère un effet limité de l'irradiation sur l'endommagement de la ZrO_2 qui semble dépendre principalement de la déformation et dans une moindre mesure, de l'épaisseur de ZrO_2 . On observe une densification de la fissuration avec la déformation suivie d'une saturation. Pour des petites couches de ZrO_2 ($< 20\mu\text{m}$), la taille des fragments à saturation se situe entre $30\text{-}50\mu\text{m}$ et la saturation est obtenue pour une déformation assez faible ($< 1\%$). Pour des couches de ZrO_2 plus épaisses ($> 40\mu\text{m}$), la taille des fragments à saturation est approximativement de $100\mu\text{m}$ et la saturation est obtenue pour une déformation plus importante ($> 2\%$). Toutefois la gamme en déformation pour des essais de type RIA est faible comparée à celles observées dans des essais de type APRP.

Comme illustré en Figure 1.23, un phénomène de desquamation ou d'écaillage est susceptible de se produire, pour des épaisseurs de ZrO_2 élevées ($> 40\mu\text{m}$) [18, 142]. Cette desquamation résulte de l'arrachement suite à une perte d'adhérence des fragments de ZrO_2 sur le substrat métallique. En cas de desquamation, l'effet renfort de la ZrO_2 dans la région concernée est totalement perdu.

1.5.3 Approche théorique de la fissuration des films minces

Une approche théorique du processus de fissuration de films fragiles sur substrat ductile soumis à une déformation imposée a été développée dans la littérature [143, 144]. Une représentation schématique des différentes phases d'endommagement d'un film mince en fonction de la déformation appliquée est schématiquement représentée en Figure 1.24.

Le processus de fissuration comporte quatre phases :

- la densification : lorsque la déformation appliquée atteint un certain seuil, le film mince se fissure et les contraintes se redistribuent dans les fragments. Ce processus de fissuration-redistribution des contraintes se répète, ce qui conduit à chaque fois à une subdivision des fragments en deux parts égales dans le cas idéal.

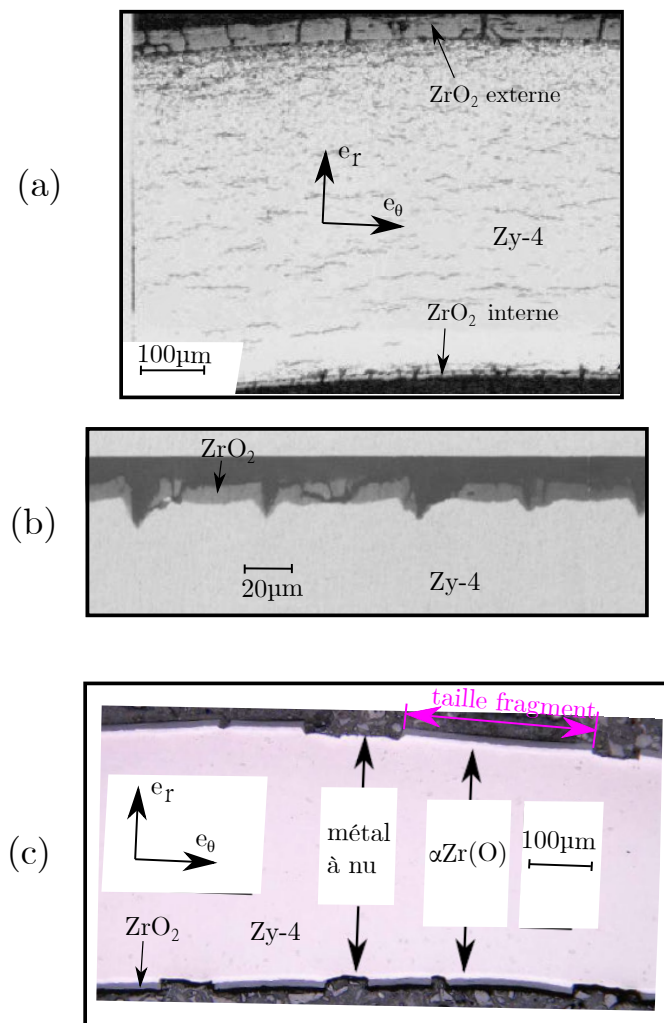


Figure 1.21 : (a) Métallographie après essai intégral de type RIA réalisé dans le réacteur expérimental CABRI (essai REP-Na4) [18]. (b) Métallographie d'un échantillon en Zy-4 après essai de fluage par pressurisation interne sous vapeur (20bar, 900°C, 135s) [19]. (c) Métallographie d'un échantillon en Zy-4 pré-oxydé après essai de fluage par pressurisation interne sous argon (30bar, 800°C, jusqu'à rupture) [15].

- la saturation : au bout d'une certaine taille critique, la contrainte dans les fragments n'évolue plus. Les contraintes supplémentaires générés par la déformation appliquée sont alors complètement supportées par le substrat.
- "cross-linking" : après la saturation des fissures transversales généralement attribués à un effet Poisson peuvent apparaître [145].
- "desquamation" : une fois que les fragments ne peuvent plus être divisés, la propagation des fissures le long de l'interface entraînant un délaminage des fragments peut se produire. La décohésion des fragments dépend des liaisons d'interfaces et de la limite d'élasticité du substrat [146–148].

Des modèles analytiques simplifiés de type "shear-lag" ont été proposés pour décrire et prédire la densité et l'ouverture moyenne de fissures d'un système film fragile/substrat ductile en fonction de la déformation appliquée [149–151]. Toutefois, ces modèles très

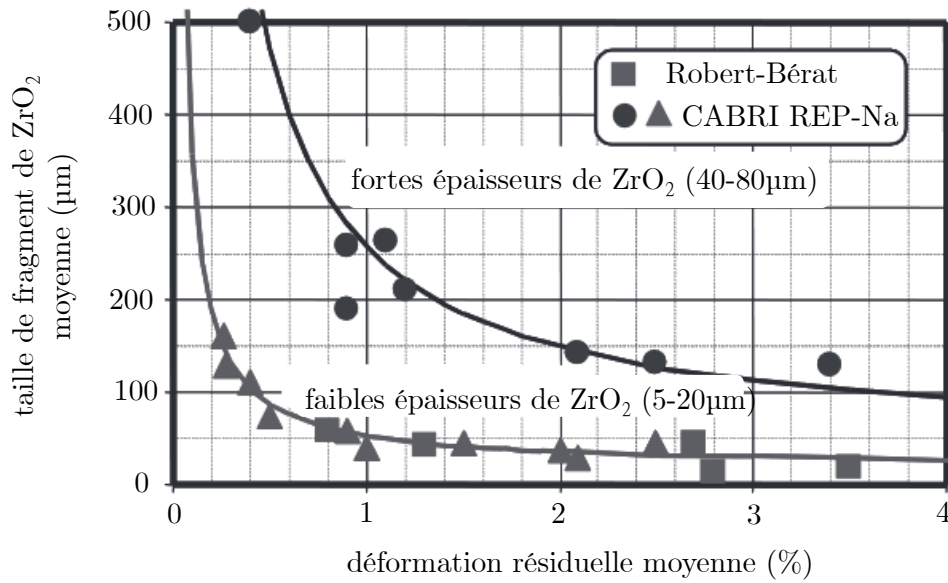


Figure 1.22 : Taille des fragments de ZrO_2 en fonction de la déformation résiduelle moyenne pour des essais intégraux de type RIA réalisés dans le réacteur expérimental CABRI-Na [18]. Les essais moins intégraux réalisés par Robert-Bérat [20] sont également représentés.

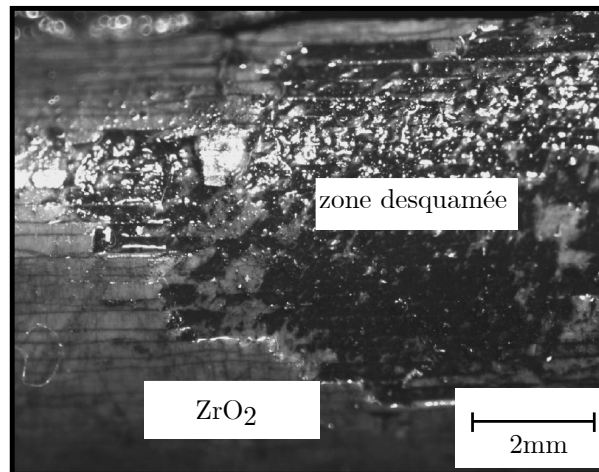


Figure 1.23 : Aspect visuel d'une gaine mettant en évidence la desquamation de la ZrO_2 après un essai de pressurisation interne réalisé dans le cadre du programme PROMETRA [18].

simplifiés ne prennent pas en compte d'éventuels défauts et/ou porosités dans le film qui sont des sites préférentiels d'initiation de la fissuration.

1.6 Approches pour l'étude de la rupture

Historiquement, il existe principalement deux théories fondamentales permettant l'étude du phénomène de rupture. Il s'agit de la théorie de Irwin [152] et l'approche énergétique de Griffith [153].

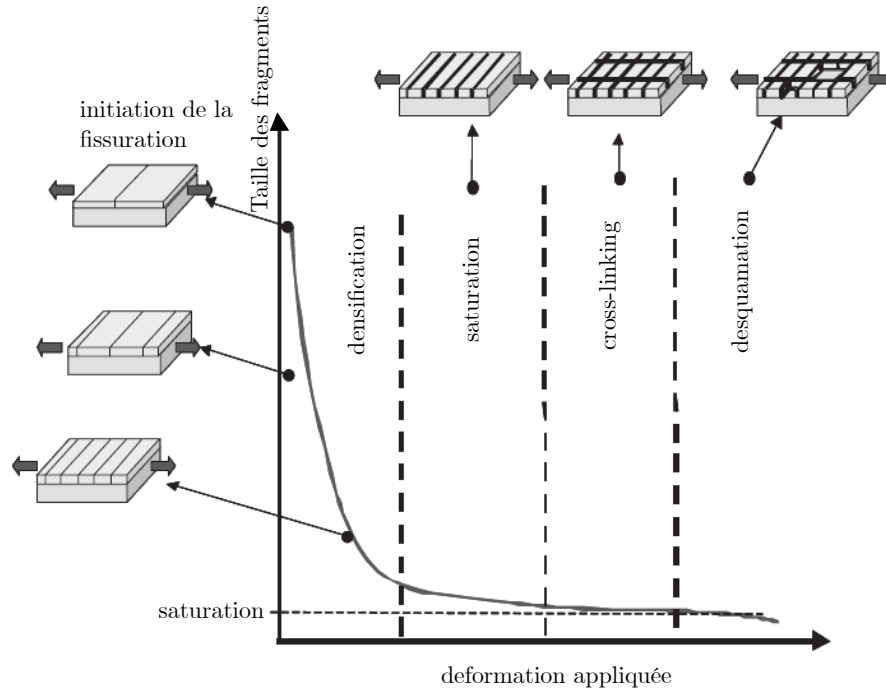


Figure 1.24 : Illustration schématique processus de fissuration d'un film mince sur substrat ductile soumis à une déformation imposée [18].

1.6.1 Théorie d'Irwin

En analysant le champ des déplacements et de contraintes élastiques près de l'extrémité d'une fissure, Irwin [152] a montré que pour un chargement donné, le champ de contrainte en pointe d'une fissure est de la forme :

$$\sigma = \frac{K_{\varphi}}{\sqrt{2\pi r}} f(\theta), \quad (1.5)$$

où f est une fonction de l'angle θ (en coordonnées polaire) et K_{φ} ($\varphi \in \{I, II, III\}$) est le Facteur d'Intensité de Contrainte (FIC) qui dépend de la géométrie et du mode de sollicitation (mode I, mode II, mode III). Cette approche de la mécanique de la rupture basée sur un critère en contrainte stipule que la fissure commence à se propager lorsque le FIC excède une certaine valeur critique. La valeur du FIC à rupture d'un matériau fragile est généralement désignée sous le terme de ténacité, notée K_c . La ténacité est en pratique le FIC critique en sollicitations de déformations planes et on la note K_{Ic} pour l'instabilité en mode I. Cette sollicitation conduit généralement à la valeur minimale du FIC critique. La ténacité à température ambiante de la zircone utilisée en tant que céramique technique se situe autour de $K_{Ic} = [1 - 5] \text{MPa} \cdot \sqrt{\text{m}}$ [154].

1.6.2 Approche énergétique

Griffith [153] fut le premier à proposer une approche basée sur un critère en énergie pour étudier la rupture des matériaux fragiles. Il suggère qu'une fissure pré-existante ne peut se propager que si l'énergie libérée par unité de surface fissurée est supérieure à une

valeur critique (g_c). g_c encore appelée taux critique de restitution d'énergie par unité de surface se situe entre $[3-5]\text{J/m}^2$ à température ambiante pour les zircons industrielles [155].

1.6.3 Équivalence des deux descriptions

Dans le cadre de l'élasticité linéaire en quasi-statique et dans l'hypothèse de petites perturbations, il existe une équivalence entre les démarches précédentes (K_c , g_c). Pour une plaque de dimensions infinies soumise à une contrainte nominale de traction (mode I), on montre que [156] :

$$g_c = \frac{K_{Ic}^2}{E^*}, \quad (1.6)$$

$$E^* = E \quad \text{contraintes planes} \quad (1.7)$$

$$E^* = \frac{E}{1 - \nu^2} \quad \text{déformations planes} \quad (1.8)$$

où E et ν sont respectivement le module de Young et le coefficient de Poisson.

1.7 Synthèse et problématique

Lors d'un APRP, les gaines d'un REP peuvent subir des sollicitations thermomécaniques sévères. La température des gaines peut s'élever à plus de 1000°C et la différence de pression entre l'intérieur et l'extérieur de la gaine peut dépasser 100bar. Initialement lors du fonctionnement normal du réacteur, les gaines se corrodent en face externe par contact avec de l'eau et s'oxydent en face interne par contact avec le combustible. Afin d'assurer le confinement du combustible en toutes circonstances, le comportement thermomécanique de la gaine qui est un matériau multi-couches doit être étudié. Plusieurs physiques couplées sont susceptibles d'influencer le comportement de la gaine pré-oxydée. Il s'agit notamment du fluage du métal et éventuellement de l'oxyde, la diffusion d'oxygène, l'oxydation et la fissuration de l'oxyde. L'effet de l'hydruration n'est pas étudié dans ce travail.

La cinétique d'oxydation pré-transitoire du Zy-4 dépend de la température. Une cinétique parabolique est observée pour des températures supérieures à 1000°C tandis qu'une cinétique sub-parabolique voire cubique est observée pour des températures inférieures à 1000°C . Durant l'oxydation HT du Zy-4, une couche de métal enrichie en oxygène ($\alpha\text{Zr(O)}$) se forme.

Pour déduire le comportement thermomécanique effectif d'une gaine pré-oxydée, il est nécessaire de connaître au préalable celui de ses couches constitutives (Zy-4, ZrO_2 , $\alpha\text{Zr(O)}$). Le comportement au fluage de la couche de Zy-4 vierge a fait l'objet de plusieurs études dans les conditions d'intérêts pour l'APRP. Cependant, les données relatives au comportement du $\alpha\text{Zr(O)}$ sont limitées à des faibles teneurs en oxygène et l'extrapolation à des teneurs plus importantes est discutable. De même le comportement en fluage de la zircone a été peu étudié dans la littérature. Toutefois, il est bien admis que le $\alpha\text{Zr(O)}$ et

la ZrO_2 ont une résistance au fluage relativement élevée par rapport au Zy-4. Selon leur intégrité, les couches ZrO_2 et $\alpha\text{Zr(O)}$ peuvent donc induire un renforcement de la gaine. Cependant, les conditions thermomécaniques subies par la gaine en situation accidentelle peuvent conduire à une fissuration de la couche de ZrO_2 et du $\alpha\text{Zr(O)}$ induisant une perte significative du renfort initialement apporté.

Cette étude bibliographique a permis de souligner l'importance de plusieurs aspects :

- un couplage fort entre mécanique et oxydation : durant l'oxydation, des fortes contraintes sont induites même sans chargement mécanique externe.
- Le fluage de la gaine pré-oxydée est fortement lié à l'état d'endommagement de la couche de ZrO_2 .
- Selon le niveau de sollicitation, une compétition entre la cinétique de fluage et celle d'oxydation peut-être observée.

L'objectif de cette étude est d'évaluer l'effet des couches de pré-oxyde et de $\alpha\text{Zr(O)}$ sur le comportement au ballonnement de la gaine en situation accidentelle de type APRP. Les travaux de cette thèse se déclinent en deux axes, un premier orienté vers l'expérimentation et l'autre consacré à la modélisation.

Pour ce qui est de la partie expérimentale, une approche par effets séparés est adoptée. D'une part des essais d'oxydation HT visant à caractériser l'oxydation de la gaine en Zy-4 de manière découplée d'un chargement mécanique externe sont réalisés. On s'intéresse aux cinétiques d'oxydation pour des températures de l'ordre de 800°C . À cette température, peu de données sont disponibles dans la littérature. D'autre part, des essais semi-intégraux de ballonnement mettant en jeu le couplage entre la mécanique et l'oxydation sont réalisés. L'étude est limitée à des chargements de l'ordre de 800°C et des pressions internes de 20 à 50 bars. Ces essais sont réalisés sous atmosphère contrôlée (inerte [argon] et oxydante [argon+oxygène]) sur des gaines pré-oxydées en laboratoire avec différentes épaisseurs d'oxyde. Ils permettent, par analyse paramétrique, d'étudier l'influence de l'épaisseur du pré-oxyde, de l'atmosphère et du chargement sur le ballonnement et l'éclatement des gaines.

En parallèle, un outil de prédiction du comportement structural d'une gaine pré-oxydée est mis en place. Cet outil basé sur la méthode des éléments finis, intègre les couplages les plus pertinents entre les phénomènes de fluage, fissuration, diffusion et oxydation. Une approche en champ de phase est utilisée pour traiter les discontinuités telles que la fissuration et l'oxydation. La modélisation est réalisée à l'échelle de l'oxyde afin de prendre en compte son effet sur le comportement macroscopique. Cet outil vise premièrement à quantifier et hiérarchiser les paramètres influents (épaisseur de ZrO_2 , épaisseur $\alpha\text{Zr(O)}$, fissuration de la couche de ZrO_2) sur le comportement au ballonnement de la gaine. Il fournit également des éléments de compréhension sur le déroulement et le mode de ruine de la structure lors d'un essai de fluage sous atmosphère neutre ou oxydante. Cet outil offre également la possibilité d'identifier par méthode inverse les propriétés d'oxydation et de fissuration par un dialogue essai-calcul.

Chapitre 2

Modélisation multi-physique d'un matériau multi-couche par une approche en champ de phase

Ce chapitre porte sur le développement d'une plateforme numérique multi-physique permettant de simuler des phénomènes couplés. La fissuration, la viscoplasticité et les changements de phase diffusifs seront considérés. L'approche champ de phase est utilisée pour modéliser la fissuration et le changement de phase. La formulation éléments finis du modèle est présentée et son implémentation validée à travers plusieurs exemples.

Sommaire

2.1	L'approche champ de phase	37
2.2	Description d'une fissure et d'un changement de phase par la méthode champ de phase	38
2.3	Problème de déformation	40
2.4	Problème de fissuration	43
2.5	Problème de diffusion et d'oxydation	45
2.6	Algorithme d'intégration temporelle étagée	47
2.7	Exemples d'applications	49
2.7.1	Étude de l'oxydation	50
2.7.2	Étude du fluage et de la fissuration	54
2.7.3	Étude du fluage couplé avec l'oxydation	65

2.8 Synthèse 70

2.1 L'approche champ de phase

Ce chapitre porte sur le développement d'une plateforme numérique multi-physique permettant de simuler le comportement visco-plastique couplé à des changements de phase de type diffusif et à la fissuration. L'approche champ de phase est utilisée pour représenter la fissuration et le changement de phase. Cette approche basée sur la minimisation d'énergies, se prête bien à une mise en œuvre numérique et semble à l'heure actuelle être l'outil le plus simple pour modéliser des problèmes multi-physiques en utilisant un cadre unique [157]. L'approche champ de phase est bien adaptée pour décrire le changement de phase et permet facilement de prendre en compte la diffusion d'espèces chimiques. En ce qui concerne la fissuration, l'approche champ de phase est adaptée pour décrire la rupture fragile. Dans le modèle proposé, les phénomènes de fissuration et de visco-plasticité sont pris en compte de manière indépendante. Cette gestion découplée de la fissuration et de la visco-plasticité n'est pas suffisante pour décrire tous les mécanismes liés à la rupture ductile. Cependant, elle est suffisante pour l'application envisagée dans ce travail qui vise à décrire la fissuration de la couche de ZrO_2 dont la rupture est supposée fragile. L'idée de base de l'approche par champ de phase est de régulariser les singularités afin de les décrire avec des champs scalaires auxiliaires. Par exemple, pour le changement de phase, l'interface franche est remplacée par une interface diffuse d'épaisseur non nulle. Cette régularisation permet de décrire les phases par un champ scalaire continu qui régit la cinétique locale de l'interface. Cette approche peut-être utilisée pour modéliser des évolutions morphologiques complexes aussi bien à l'échelle microscopique (croissance des grains [158–160]) que macroscopique (problèmes de solidification [161, 162], oxydation [163]). Elle peut également être couplée à d'autres physiques telles que l'élasticité [164, 165], la plasticité [166, 167] et la visco-plasticité [168, 169]. Cette approche champ de phase présente un avantage décisif par rapport aux modèles d'interface franche car le suivi explicite de l'interface n'est pas nécessaire. Les modèles d'interface franche ne sont pas adaptés aux évolutions morphologiques complexes pour lesquelles le suivi de l'interface à chaque pas de temps peut devenir irréalisable d'un point de vue numérique.

De même, pour la fissuration, la fissure nette est remplacée par une fissure diffuse. Une longueur caractéristique (l_c) est introduite pour contrôler l'épaisseur endommagée dans le matériau de part et d'autre de la fissure. Un champ scalaire continu permet de relier les régions fissurées et non fissurées. L'approche champ de phase pour la fissuration est basée sur la description de Griffith initialement développée pour les matériaux fragiles [153, 170]. Griffith a suggéré qu'une fissure pré-existante ne pouvait se propager que si l'énergie potentielle libérée par unité de surface est supérieure à une valeur critique. Cette valeur critique (g_c) est considérée comme un paramètre matériau qui traduit sa résistance à la fissuration. Le principal avantage de l'approche champ de phase pour la fissuration est sa simplicité. Par rapport aux méthodes discrètes telles les zones cohésives [171, 172], la méthode dite de discontinuité forte [173] ou la méthode des éléments finis étendus [174–177], les méthodes diffuses comme l'approche par champ de phase ou l'approche "Thick Level Set" [178] fournissent un cadre approprié pour résoudre le problème de fissuration avec des outils numériques classiques sans nécessiter de critères ou astuces numériques particuliers. Pour plus de détails sur les modèles champ de phase pour la fissuration le lecteur pourra se référer à [157, 179]. L'approche champ de phase pour la fissuration fournit un cadre numérique adéquat pour décrire l'initiation (avec pré-fissure)

et la propagation des fissures, les chemins de fissures complexes et la bifurcation ou la coalescence de fissures. L'effet de la plasticité [180–183], de la visco-plasticité [184], de l'hyperélasticité [185–187], de la fatigue [188, 189], de la diffusion chimique [190–192] et du changement de phase [193] peuvent aussi être inclus. Cependant, l'un des points faibles de cette méthode porte sur la calibration des paramètres g_c et l_c . g_c est un paramètre très difficile à mesurer directement. Il est donc généralement identifié par méthode inverse [194–196]. De plus, en raison de son coût numérique, l'approche champ de phase pour la fissuration est difficilement implémentable dans des codes de calculs industriels.

Dans ce travail, nous combinons l'approche champ de phase pour la fissuration avec l'approche champ de phase pour le changement de phase, afin de résoudre simultanément à l'aide d'un code unique, le problème de fissuration et celui du changement de phase lié à l'oxydation. Ce couplage entre les phénomènes de fissuration et de changement de phase est nécessaire pour simuler le comportement mécanique et l'oxydation d'une gaine en situation accidentelle de type APRP. Quatre phénomènes physiques sont considérés. Il s'agit de la visco-plasticité, l'oxydation, la diffusion d'oxygène et la fissuration. Dans la suite de ce chapitre la formulation du modèle est présentée. Le contexte théorique et les couplages modélisés sont précisés. L'implémentation du modèle proposé dans le code aux éléments finis Abaqus est également abordée. Plusieurs exemples permettant de valider l'implémentation sont enfin présentés.

2.2 Description d'une fissure et d'un changement de phase par la méthode champ de phase

L'approche champ de phase pour la fissuration et pour le changement de phase sont basées sur une représentation diffuse de la discontinuité dans le volume comme illustré en Figure 2.1. Pour la fissuration, on définit une variable d'endommagement diffuse d qui relie la région fissurée ($d = 1$) et la région non fissurée ($d = 0$). Une longueur caractéristique (l_c) permet de contrôler l'épaisseur de la zone endommagée de part et d'autre des lèvres de la fissure. De la même manière, un paramètre d'ordre (ϕ) est utilisé pour décrire la phase a ($\phi = 1$) et la phase b ($\phi = 0$) d'un matériau binaire. δ permet de contrôler l'épaisseur de l'interface régularisée.

Le modèle développé dans ce travail permet de résoudre simultanément les problèmes de déformation (intégrant le comportement viscoplastique des phases), de diffusion, de changement de phase et de fissuration. Dans le cas général, l'énergie totale du problème multi-physique composé des contributions de la mécanique, de la chimie et la fissuration peut-être formulé de la manière suivante :

$$\mathcal{L}(\nabla \mathbf{u}, \phi, c, d) = \mathcal{L}^u(\nabla \mathbf{u}, \phi, c, d) + \mathcal{L}^{ch}(\nabla \mathbf{u}, \phi, c, d) + \mathcal{L}^d(\nabla \mathbf{u}, \phi, c, d), \quad (2.1)$$

où $\mathbf{u}$, ϕ , c , d sont respectivement le vecteur de déplacements, le paramètre d'ordre, la concentration de l'espèce chimique diffusante et la variable d'endommagement. L'Équation 2.1 est écrite dans le cas général en considérant toutes les interactions possibles entre les physiques modélisées. Dans ce qui suit, seuls les couplages résumés en Figure 2.2 sont considérés. L'endommagement réduit la rigidité du matériau, tandis que l'énergie de déformation élastique stockée contribue à l'évolution de la fissuration. Le changement de phase est piloté par l'énergie libre composée de l'énergie de déformation élastique stockée

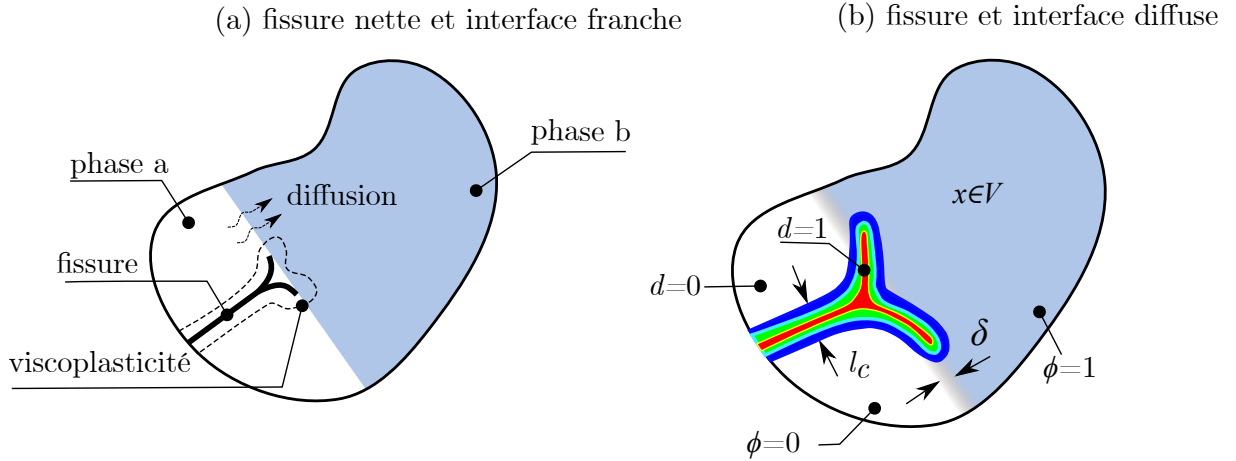


Figure 2.1 : (a) Illustration schématique du problème physique idéalisé et de sa régularisation correspondante (b). l_c et δ contrôlent respectivement la largeur de la région endommagée et celle de l'interface.

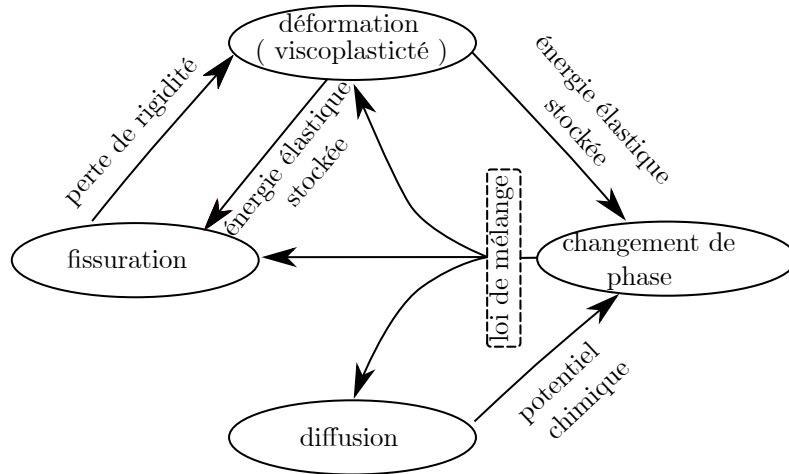


Figure 2.2 : Aperçu des couplages modélisés.

et du potentiel chimique. Dans l'interface où les deux phases coexistent, une loi de mélange est utilisée pour prendre en compte les contributions énergétiques des deux phases. Plusieurs couplages sont pris en compte mais la liste n'est pas exhaustive. On peut citer par exemple le couplage entre diffusion et viscoplasticité [197–199] qui n'est pas pris en compte. Cependant, la formulation est proposée dans un cadre qui permet d'introduire de nouveaux couplages de manière relativement aisée. Tout éventuel couplage explicite entre les phénomènes de changement de phase et de fissuration est négligé. Ainsi, les équations constitutives des problèmes de fissuration et de changement de phase peuvent être formulées séparément. La théorie de Griffith [170] est utilisée pour modéliser la fissuration tandis que l'approche d'Allen-Cahn [200] est utilisée pour le changement de phase. Concernant la fissuration, l'énergie de déformation élastique stockée est utilisée pour contrôler l'évolution de la fissuration. On suppose que la viscoplasticité constitue une source de dissipation indépendante. Pour le changement de phase, l'énergie libre qui contient l'énergie de déformation élastique stockée et le potentiel chimique est utilisée pour gouverner

le changement de phase. L'ajout d'un effet mécanique dans le problème de changement de phase provient de l'idée que le matériau peut adapter sa microstructure pour mieux accommoder les déformations [201].

Dans le cas d'une fissure instable, l'algorithme de résolution monolithique [202] du couplage entre le problème de déplacement et le problème de fissuration devient instable [203, 204]. Par conséquent, le problème du déplacement est faiblement couplé à celui de la fissuration en utilisant le schéma étagé proposé par Miehe *et al* [203]. Comme illustré en Figure 2.3, à chaque incrément, le problème de déplacement est résolu sur la base de la dernière topologie convergée de la fissure et vice-versa.

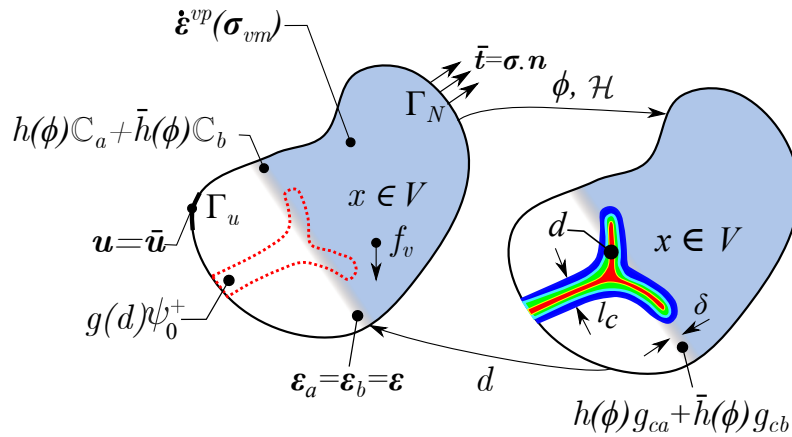


Figure 2.3 : Illustration du schéma étagé utilisé pour la résolution des problèmes de fissuration et de déformation dans les solides hétérogènes élasto-viscoplastiques.

2.3 Problème de déformation

Le problème de déformation est formulé moyennant un certain nombre d'hypothèses détaillées ci-après :

- l'endommagement dégrade uniquement la rigidité en traction, la rigidité à la compression n'est pas affectée,
- Il n'y a pas de seuil élastique associé au comportement visco-plastique,
- le problème est limité aux petites déformations.

L'énergie du problème de déplacement est formulée de la façon suivante :

$$\mathcal{L}^u(\nabla \mathbf{u}, \phi, d) = E^{ext} - E^{el}(\nabla \mathbf{u}, \phi, d) - \Omega^u(\mathbf{u}, \phi, d), \quad (2.2)$$

où $\mathbf{u}$ est le champ de déplacements, ϕ le paramètre d'ordre et d la variable d'endommagement. E^{ext} , E^{el} et Ω^u sont respectivement le travail externe, l'énergie de déformation élastique stockée et l'énergie de déformation visco-plastique. Le travail externe effectué par les forces de volumes ($\mathbf{f}_v$) et les conditions aux limites en efforts ($\mathbf{t}$) illustrées en Figure 2.2(b) sont donnés par :

$$E^{ext} = \int_V (\mathbf{f}_v \cdot \mathbf{u}) dV + \int_{\partial V} (\bar{\mathbf{t}} \cdot \mathbf{u}) dS. \quad (2.3)$$

L'énergie élastique stockée est divisée en composantes de traction (ψ_+^0) et de compression (ψ_-^0) [205] :

$$E^{el}(\nabla \mathbf{u}, \phi, d) = \int_V \psi^{el}(\nabla \mathbf{u}, \phi, d) dV, \quad (2.4)$$

$$\psi^{el}(\nabla \mathbf{u}, \phi, d) = g(d) \psi_0^+(\boldsymbol{\varepsilon}^{el}(\nabla \mathbf{u}, \phi)) + \psi_0^-(\boldsymbol{\varepsilon}^{el}(\nabla \mathbf{u}, \phi)). \quad (2.5)$$

La décomposition de l'énergie de déformation élastique permet d'avoir une dégradation uniquement en traction. $g(d)$ est la fonction de dégradation :

$$g(d) = (1 - d)^2 + p, \quad (2.6)$$

où p est un petit nombre assurant la stabilité numérique. Le tenseur des contraintes de Cauchy dégradé est alors donné par :

$$\boldsymbol{\sigma} = g(d) \frac{\partial \psi_0^+}{\partial \boldsymbol{\varepsilon}^{el}} + \frac{\partial \psi_0^-}{\partial \boldsymbol{\varepsilon}^{el}}, \quad (2.7)$$

où $\boldsymbol{\varepsilon}^{el}$ est le tenseur des déformations élastiques. La fonction de dégradation agit directement sur la composante de traction du tenseur des contraintes.

Le champ de déformation total ($\boldsymbol{\varepsilon}$) est divisé en composantes élastique ($\boldsymbol{\varepsilon}^{el}$), visco-plastique ($\boldsymbol{\varepsilon}^{vp}$) et déformation propre ($\boldsymbol{\varepsilon}^*$) :

$$\boldsymbol{\varepsilon} = \boldsymbol{\varepsilon}^{el} + \boldsymbol{\varepsilon}^{vp} + \boldsymbol{\varepsilon}^*. \quad (2.8)$$

$\boldsymbol{\varepsilon}^*$ contient la déformation thermique et la déformation de changement de phase. Dans l'hypothèse de petites déformations, le tenseur des contraintes est défini par la partie symétrique du gradient du champ de déplacement :

$$\boldsymbol{\varepsilon} = \nabla^s \mathbf{u}. \quad (2.9)$$

Une loi de mélange est appliquée pour déterminer le comportement effectif de l'interface diffuse. Il existe plusieurs lois de mélange dans la littérature [206–211]. Les lois de Voigt, de Reuss et de Khachaturyan sont les plus utilisées. Pour les lois de Voigt et de Reuss, la déformation élastique équivalente est calculée à partir du tenseur de souplesse équivalent. Dans une région endommagée ($d = 1$), ce tenseur de souplesse n'est pas bien défini et tend vers l'infini ce qui peut induire des problèmes de convergence numérique. La loi de Khachaturyan, qui ne nécessite pas le tenseur souplesse pour calculer la déformation élastique équivalente, est retenue ici. Par conséquent, la déformation totale est supposée être identique dans les deux phases coexistantes tandis que la loi de mélange est appliquée au tenseur de déformations visco-plastiques, au tenseur de déformations propres et aux paramètres de Lamé (λ, μ) :

$$\boldsymbol{\varepsilon} = \boldsymbol{\varepsilon}_a = \boldsymbol{\varepsilon}_b, \quad (2.10)$$

$$\boldsymbol{\varepsilon}^{vp}(\mathbf{u}, \phi) = h(\phi) \boldsymbol{\varepsilon}_a^{vp}(\mathbf{u}) + \bar{h}(\phi) \boldsymbol{\varepsilon}_b^{vp}(\mathbf{u}), \quad (2.11)$$

$$\boldsymbol{\varepsilon}^*(\phi) = h(\phi)\boldsymbol{\varepsilon}_a^* + \bar{h}(\phi)\boldsymbol{\varepsilon}_b^*, \quad (2.12)$$

$$\lambda(\phi) = h(\phi)\lambda_a + \bar{h}(\phi)\lambda_b \quad \mu(\phi) = h(\phi)\mu_a + \bar{h}(\phi)\mu_b. \quad (2.13)$$

Les indices a et b indiquent les deux phases coexistantes. Le choix standard de la fonction d'homogénéisation $h(\phi) = 1 - \bar{h}(\phi)$ est [212] :

$$h(\phi) = \phi^2(3 - 2\phi). \quad (2.14)$$

Cette loi de mélange suppose que la phase qui se forme hérite de la déformation viscoplastique de la phase mère, contrairement aux lois de mélange de Voigt et Reuss pour lesquelles il n'y a pas d'héritage entre les phases [213].

La décomposition de l'énergie élastique est donnée par [205] :

$$\psi^{el}(\boldsymbol{\varepsilon}^{el}, \phi, d) = \mu(\phi) \sum_{i=1}^3 [\langle \boldsymbol{\varepsilon}_i \rangle_-^2 + g(d)\langle \boldsymbol{\varepsilon}_i \rangle_+^2] + \frac{\lambda(\phi)}{2} [g(d)\langle tr(\boldsymbol{\varepsilon}) \rangle_+^2 + \langle tr(\boldsymbol{\varepsilon}) \rangle_-^2] \quad (2.15)$$

Pour la mise en œuvre pratique de cette décomposition, le lecteur est invité à se reporter aux travaux de Molnár *et al* [182].

Comme pour l'énergie de déformation élastique, l'énergie de déformation visco-plastique est exprimée comme suit :

$$\Omega^u(\mathbf{u}, \phi, d) = \int_V \int_t \left(\dot{\psi}^{vp}(\mathbf{u}, \phi, d) \right) dt dV, \quad (2.16)$$

$$\dot{\psi}^{vp}(\mathbf{u}, \phi, d) = \boldsymbol{\sigma}(\mathbf{u}, \phi, d) : \dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^{vp}(\mathbf{u}, \phi) \quad (2.17)$$

La dissipation viscoplastique est calculée à partir du tenseur des contraintes endommagées (voir Équation 2.7). Comme la déformation viscoplastique n'induit pas de variation de volume, la densité d'énergie viscoplastique peut être simplifiée par :

$$\dot{\psi}^{vp}(\mathbf{u}, \phi) = \sigma_{vm}(d)\dot{\varepsilon}_{vm}^{vp}(\mathbf{u}, \phi), \quad (2.18)$$

où σ_{vm} et $\dot{\varepsilon}_{vm}^{vp}$ sont respectivement la contrainte de von Mises et la vitesse de déformation viscoplastique équivalente. On suppose que le seuil élastique associé à la viscoplasticité est négligeable. La vitesse de déformation de von Mises dans chaque phase a et b est décrite par la loi de Norton :

$$\dot{\varepsilon}_{vm,i}^{vp} = A_i \boldsymbol{\sigma}_{vm}^{n_i}, \quad (2.19)$$

où A_i et n_i sont les paramètres matériels des lois de Norton associées à chacune des phases a ou b . Notons que dans l'Équation 2.19 la vitesse de déformation visco-plastique dans chacune des phases est calculée à partir de la contrainte de von Mises équivalente. La loi de mélange utilisée ne donne pas accès au tenseur des contraintes de chaque phase.

En différenciant l'Équation 2.2, la forme forte correspondante du problème de déplacement est obtenue :

$$\begin{aligned} \delta L^u = 0 \quad \forall \delta \mathbf{u} &\rightarrow \quad \nabla \cdot \boldsymbol{\sigma} - \mathbf{f}_v = 0 && \text{dans} \quad V, \\ \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n} = \bar{\mathbf{t}} &&& \text{sur} \quad \Gamma_N, \\ \mathbf{u} = \bar{\mathbf{u}} &&& \text{sur} \quad \Gamma_u. \end{aligned} \quad (2.20)$$

2.4 Problème de fissuration

Le problème de fissuration est formulé avec les hypothèses principales suivantes :

- la propagation de la fissure est pilotée par l'énergie de déformation élastique de traction (non endommagée),
- la longueur caractéristique de la fissure (l_c voir 2.1(b)) est constante dans tout le domaine,
- tel que suggéré par Griffith, l'énergie dissipée par unité de surface lors de la propagation de la fissure est supposée être un paramètre matériau (g_c),
- l'endommagement est irréversible.

La fonctionnelle d'énergie utilisée pour déterminer la topologie de la fissure est formulée comme suit :

$$\mathcal{L}^d(\mathbf{u}, \phi, d) = \Omega^d(\phi, d, \nabla d) + T(\phi, d) - E^{el}(\mathbf{u}, \phi, d), \quad (2.21)$$

où Ω^d est l'énergie dissipée par la fissure et T est l'énergie seuil de fissuration. L'énergie dissipée par la fissure régularisée peut être exprimée comme suit [214] :

$$\Omega^d(\phi, d) = \int_{\Gamma} g_c(\phi) d\Gamma \approx \int_V g_c(\phi) \gamma(d) dV, \quad (2.22)$$

$$\gamma(d, \nabla d) = \frac{1}{2l_c} d^2 + \frac{l_c}{2} |\nabla d|^2, \quad (2.23)$$

où γ est la densité d'énergie dissipée par la fissure, g_c l'énergie par unité de surface nécessaire pour faire avancer la fissure et l_c est la longueur caractéristique de la fissure qui contrôle l'épaisseur endommagée de part et d'autre des lèvres de la fissure. Pour plus de détails sur cette approximation, le lecteur peut se référer à [215, 216].

De l'anisotropie peut également être introduite dans le problème de fissuration. Dans la littérature, il existe deux méthodes pour tenir compte de l'anisotropie. La première consiste à décrire la fissuration à travers plusieurs variables d'endommagement distinctes qui dépendent de l'orientation [217]. La deuxième méthode, retenue dans ce travail, est une méthode purement géométrique qui consiste à introduire l'effet de l'orientation dans l'expression de la densité de la surface de fissure (γ). Concrètement, dans le cas d'une symétrie transverse par exemple, l'Équation 2.23 est alors modifiée de la manière suivante :

$$\gamma(d, \nabla d) = \frac{1}{2l_c} d^2 + \frac{l_c}{2} \nabla d \cdot (\mathbf{I} + \alpha_0 \mathbf{M}) \cdot \nabla d, \quad (2.24)$$

$$\mathbf{M} = \mathbf{a} \otimes \mathbf{a} \quad (2.25)$$

où $\mathbf{a}$ est la direction préférentielle de propagation de la fissure et $\mathbf{I}$ est le tenseur identité. L'anisotropie est contrôlée par le paramètre α_0 qui affecte la pénétration de la fissure dans la direction préférentielle $\mathbf{a}$. À noter que $\alpha_0 = 0$ permet de retrouver le cas isotrope. L'effet du paramètre d'anisotropie (α_0) sur la topologie de fissure est illustré en Figure 2.4.

Il est important de souligner que cette manière de traiter l'anisotropie de la propagation de fissure repose sur des considérations purement géométriques et ne prend pas en compte

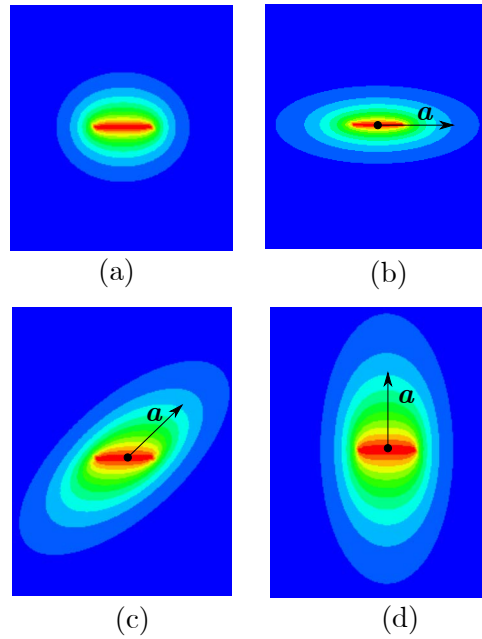


Figure 2.4 : Illustration de la régularisation anisotrope d'une fissure dans le cas d'une symétrie transverse. La topologie de fissure dans le cas isotrope ($\alpha_0 = 0$) est illustré en (a). Les cas anisotropes ($\alpha_0 = 5$) pour différentes orientation de la direction préférentielle de propagation $\mathbf{a}$ sont présentés en : (b) 0° , (c) 45° et (d) 90° . L'orientation est donnée par rapport à l'axe horizontal. Le code couleur correspond à la valeur d . Les cartographies présentées sont purement topologique (sans chargement mécanique) et décrivent la forme de l'endommagement induit par la régularisation autour d'une fissure de taille donnée.

tous les phénomènes complexes associés à la propagation de fissures dans les matériaux anisotropes. Toutefois, cette approche présente l'avantage d'être simple et suffisante pour représenter géométriquement, les caractéristiques spécifiques de la propagation anisotrope de fissures. Pour plus de détails sur cette manière de régulariser des fissures anisotropes, le lecteur peut se référer à [185, 218].

Les travaux de Molnár *et al* [219] ont mis en évidence une corrélation entre l_c et la résistance du matériau. Cette corrélation basée sur la contrainte maximale et la topologie de la fissure permet de donner un sens physique à l_c . Cependant, initialement l_c , entre dans la formulation comme un paramètre numérique. Par conséquent, la loi de mélange est appliquée uniquement à g_c mais pas à l_c :

$$g_c(\phi) = h(\phi)g_{ca} + \bar{h}(\phi)g_{cb}. \quad (2.26)$$

L'énergie seuil de fissuration dans l'Équation 2.21 est définie par [190, 219] :

$$T(d) = \int_V [(1 - g(d)) \psi_c(\phi)] dV, \quad (2.27)$$

avec $\psi_c(\phi) = \frac{g_c(\phi)}{2l_c}$.

En pratique, pour calculer la topologie de la fissure, l'énergie de déformation élastique est remplacée par une variable d'histoire $\mathcal{H}$ afin d'assurer l'irréversibilité de la fissuration

[215] :

$$\mathcal{H}_{n+1} = \max \begin{cases} \psi_0^+(\mathbf{u}, \phi) - \psi_c(\phi) \\ \mathcal{H}_n \end{cases} \quad \mathcal{H}_0 = 0. \quad (2.28)$$

Cette variable d'histoire ($\mathcal{H}$) permet de satisfaire les conditions de Karush-Kuhn-Tucker [204]. En plus de l'introduction de la variable d'histoire, l'irréversibilité de l'endommagement est explicitement imposée dans le problème de déplacement ($\dot{d} \geq 0$) car il n'existe aucune preuve mathématique garantissant que la variable d'histoire seule suffit pour assurer l'irréversibilité de l'endommagement. Par conséquent, la fonction d'énergie pour résoudre la topologie de la fissure peut être re-écrite comme suit :

$$\mathcal{L}^d(\mathbf{u}, \phi, d) = \Omega^d - \int_V [g(d) \mathcal{H}(\mathbf{u}, \phi) - \psi_c(\phi)] dV. \quad (2.29)$$

Comme pour le problème du déplacement, la forme forte du problème de fissuration est déduit comme suit :

$$\begin{aligned} \delta \mathcal{L}^d &= 0 \quad \forall \delta d \rightarrow \frac{g_c}{l_c}(d - l_c^2 \Delta d) = 2(1 - d)\mathcal{H} & \text{dans } V \\ \nabla d \cdot \mathbf{n} &= 0 & \text{sur } \Gamma \end{aligned} \quad (2.30)$$

2.5 Problème de diffusion et d'oxydation

La formulation du problème de diffusion et d'oxydation s'appuie sur les récents développements de la méthode champ de phase appliquée aux évolutions morphologiques, notamment son extension au couplage multi-physique, permettant de tenir compte de l'aspect mécanique dans les problèmes de changement de phase [166,213,220,221]. Le point de départ pour dériver les lois d'évolution du problème de diffusion et de changement de phase est la fonctionnelle d'énergie libre totale définie par :

$$\mathcal{L}^{ch}(\nabla \mathbf{u}, c, \phi, d) = \int_V \psi(\mathbf{u}, c, \phi, d) dV, \quad (2.31)$$

où ψ est la densité d'énergie libre de Helmholtz composée de l'énergie de déformation élastique stockée (ψ^{el}), de l'énergie chimique (ψ^{ch}) et d'une énergie d'interface ($\psi^{interface}$) :

$$\psi(\mathbf{u}, c, \phi, d) = \psi^{el}(\mathbf{u}, \phi, d) + \psi^{ch}(c, \phi) + \psi^{interface}(\phi, \nabla \phi). \quad (2.32)$$

Les effets de la fissuration et de la visco-plasticité n'apparaissent pas explicitement dans l'Équation 2.32 mais ont un effet indirect à travers la dissipation de l'énergie de déformation élastique. La densité d'énergie libre chimique équivalente (ψ^{ch}) est obtenue par une loi de mélange sur les densités d'énergie libre chimique homogènes des deux phases (ψ_i^{ch}) [222] :

$$\psi^{ch}(c, \phi) = h(\phi)\psi_a^{ch}(c) + \bar{h}(\phi)\psi_b^{ch}. \quad (2.33)$$

Pour des raisons de simplicité, la densité d'énergie libre chimique ψ_i^{ch} de chaque phase $i = \{a, b\}$ est choisie comme une fonction parabolique de la concentration c [223] :

$$\psi_i^{ch}(c) = \frac{1}{2}k_i(c - c_i)^2, \quad (2.34)$$

k_i , c_i sont respectivement la courbure de la densité d'énergie libre et la concentration d'équilibre de chaque phase. La contribution de l'interface $\psi^{interface}$ est donnée par [222] :

$$\psi^{interface}(\phi, \nabla\phi) = Wg_{ch}(\phi) + \frac{\alpha}{2}\nabla\phi \cdot \nabla\phi, \quad (2.35)$$

où W est la hauteur de la barrière d'énergie de l'interface et α est le coefficient du terme en gradient de l'énergie d'interface. Dans l'Équation 2.35 $g_{ch}(\phi)$ est le potentiel "double puits" [224] :

$$g_{ch}(\phi) = \phi^2(1 - \phi)^2. \quad (2.36)$$

cette densité d'énergie libre de Helmholtz est illustrée sans la partie élastique en Figure 2.5. Il existe deux minima locaux à $c = c_a$ et $c = c_b$ qui correspondent aux concentrations d'équilibre de chaque phase. La Figure 2.5(b) montre la projection 2D dans le plan $(\psi - c)$ de la représentation 3D présentée en Figure 2.5(a). La courbe noire représente la densité d'énergie libre chimique de la phase b ($\phi = 0$) et la courbe rouge correspond à la densité d'énergie libre de la phase a ($\phi = 1$).

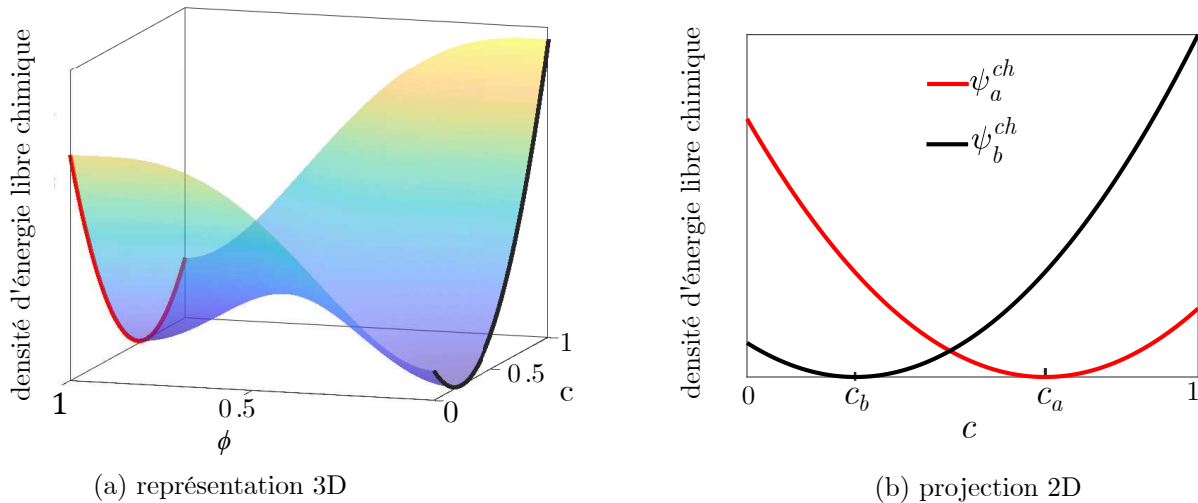


Figure 2.5 : Illustration de la densité d'énergie libre chimique.

Les forces motrices des problèmes de diffusion et de changement de phase sont respectivement obtenues en dérivant la fonctionnelle d'énergie libre totale par rapport à c et ϕ . Nous obtenons l'équation de Cahn-Hilliard en dérivant l'énergie totale par rapport à c :

$$\frac{\partial c(\mathbf{x}, t)}{\partial t} = \nabla \cdot \left(-L(\phi) \nabla \cdot \left(\frac{\delta F}{\delta c} \right) \right) = \nabla \cdot \left(-L(\phi) \nabla \left(\frac{\partial \psi}{\partial c} \right) \right). \quad (2.37)$$

La concentration (c) est un champ conservé, sa moyenne spatiale est donc constante dans le temps. Des conditions aux limites peuvent étre utilisées pour prendre en compte les échanges sur les bords. De la même manière, l'équation d'Allen-Cahn est obtenue en

dérivant l'énergie totale par rapport à ϕ . Cependant, le paramètre d'ordre (ϕ) n'est pas un champ conservé :

$$\frac{\partial \phi(\mathbf{x}, t)}{\partial t} = M \frac{\delta F}{\delta \phi} = M \frac{\partial \psi}{\partial \phi} - \nabla \cdot \frac{\partial \psi}{\partial \nabla \phi}, \quad (2.38)$$

où M est la mobilité de l'interface qui doit être la plus grande possible dans le cas d'un changement de phase contrôlée par la diffusion [220]. $L(\phi)$ est le coefficient de diffusion homogénéisé (coefficient d'Onsager) donné par [166] :

$$L(\phi) = h(\phi) \frac{D_a}{k_a} + \bar{h}(\phi) \frac{D_b}{k_b}, \quad (2.39)$$

où D_i est le coefficient de diffusion dans chaque phase. $L(\phi)$ est choisi de manière à retrouver la loi de Fick dans un cas homogène. Pour un matériau homogène ($\phi = 0$), l'Équation 2.37 est équivalent à la loi de Fick :

$$\begin{aligned} \frac{\partial c}{\partial t} &= \nabla \cdot \left(-L(0) \nabla \left(\frac{\partial \psi}{\partial c}(0) \right) \right) \\ &= \nabla \cdot \left(-\frac{D_b}{k_b} \nabla (k_b(c - c_b)) \right) \\ &= -D_b \Delta c. \end{aligned} \quad (2.40)$$

L'énergie d'interface (ω) et l'épaisseur de l'interface (δ) (voir Figure 2.1) peuvent être déduites de α et W par [166, 222] :

$$\omega = \frac{\sqrt{\alpha W}}{3\sqrt{2}}, \quad (2.41)$$

$$\delta = \theta \sqrt{\frac{2\alpha}{W}} \quad \theta = \ln \left(\frac{1 - \kappa}{\kappa} \right). \quad (2.42)$$

L'Équation 2.42 est établie en supposant que l'interface est définie par $\phi \in [\kappa, 1 - \kappa]$. $\kappa = 0,05$ a été choisi dans ce travail.

2.6 Algorithme d'intégration temporelle étagée

Le modèle proposé a été implémenté dans le code commercial aux éléments finis Abaqus par le biais d'une routine UEL. Le diagramme temporel en Figure 2.6 illustre le processus d'incrément de base. À chaque incrément, le problème de déplacement, le problème de diffusion et le problème de changement de phase sont résolus simultanément sur la base de la dernière topologie de fissure convergée et vice versa.

Un algorithme de type Newton-Raphson est utilisé pour résoudre le problème global de manière itérative :

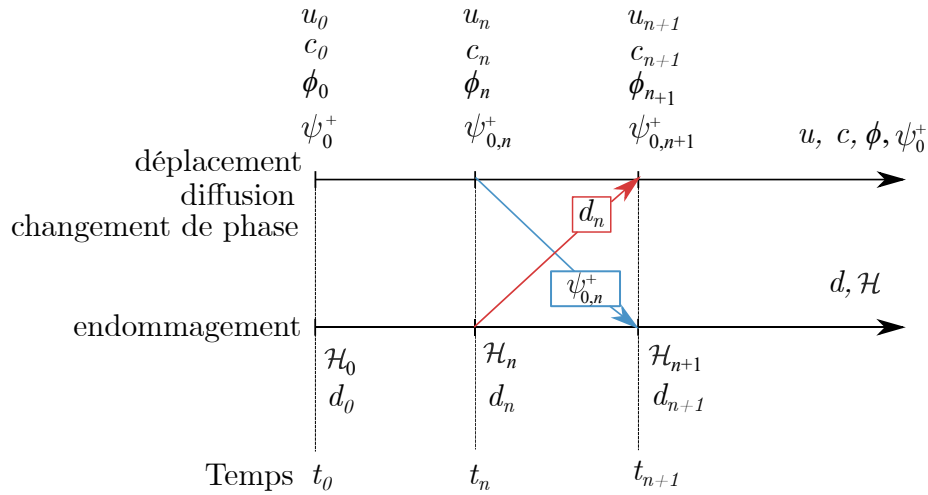


Figure 2.6 : Diagramme temporel de l'algorithme étagé utilisé pour résoudre le problème multi-physique dans le code aux éléments finis Abaqus.

$$\begin{bmatrix} \mathbf{K}_{uu} & \mathbf{K}_{u\phi} & \mathbf{0} & \mathbf{0} \\ \mathbf{K}_{\phi u} & \mathbf{K}_{\phi\phi} & \mathbf{K}_{\phi c} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{K}_{c\phi} & \mathbf{K}_{cc} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{0} & \mathbf{0} & \mathbf{K}_{dd} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \Delta u_n \\ \Delta \phi_n \\ \Delta c_n \\ \Delta d_n \end{bmatrix} = - \begin{bmatrix} r_n^u \\ r_n^\phi \\ r_n^c \\ r_n^d \end{bmatrix}, \quad (2.43)$$

où $\mathbf{K}_{ij}$ sont les matrices de rigidité élémentaires, Δu_n , Δc_n , $\Delta \phi_n$ et Δd_n sont les incréments des degrés de liberté nodaux à l'instant t_n . r_n^u , r_n^c , r_n^ϕ et r_n^d sont les résidus. La formulation par éléments finis du présent modèle est détaillée en Annexe A.

Les phénomènes de fissuration et de viscoplasticité ne se produisent pas à la même échelle de temps. Par conséquent, un contrôle adaptatif du pas de temps est nécessaire pour rendre la simulation réalisable d'un point de vue informatique. Le pas de temps est contrôlé automatiquement par l'incrément de variable d'histoire :

$$d\mathcal{H} \leq \eta \frac{g_c}{2l_c}. \quad (2.44)$$

η est un paramètre numérique utilisé pour rétrécir ou élargir le critère d'évolution du pas de temps en fonction de la précision recherchée. Cette gestion du pas de temps basée sur l'incrément de la variable d'histoire permet d'augmenter le pas de temps avant l'initiation de la fissuration. Après initiation de la fissuration dans le cas d'une propagation instable, la densité d'énergie de déformation élastique en pointe de la fissure devient indépendante du pas de temps. Celui-ci est alors réduit à une valeur minimale de $dt = 10^{-9}s$. De cette façon, la propagation instable de la fissure est détectée avec précision. Pour plus de détails sur cette gestion automatique du pas de temps le lecteur peut se référer à [182]. La condition $\dot{d} > 0$ permettant d'identifier si une fissure se propage ou non est associée au critère sur l'incrément de la variable d'histoire (cf. Équation 2.44) afin de pouvoir ré-augmenter le pas temps dans le cas où la propagation de la fissure est stoppée.

Le Tableau 2.1 résume l'ensemble des paramètres du modèle multi-physique mis en place.

Paramètre	symbole et unité
Élasticité	
Module de Young :	$E[\text{Pa}]$
Coefficient de Poisson :	ν
Déformation propre (dilatation thermique, changement de phase) :	ϵ^*
Viscoplasticité	
Exposant de Norton :	n
Constante de Norton :	$A[\text{Pa}^{-n}/\text{s}]$
Fissuration	
Énergie de surface :	$g_c[\text{N/m}]$
Longueur caractéristique :	$l_c[\text{m}]$
paramètre d'anisotropie :	α_0
Chimie	
Coefficient de diffusion :	$D [\text{m}^2/\text{s}]$
Concentration d'équilibre :	$c_{a,b}$
Épaisseur de l'interface :	$\delta [\text{m}]$
Énergie de l'interface :	$\omega [\text{J}/\text{m}^2]$
Courbure de la densité d'énergie :	$k [\text{J}/\text{m}^3]$
Mobilité de l'interface :	$M [\text{m}^3/\text{J}/\text{s}]$
Algorithme de résolution	
Critère sur le pas de temps :	η

Tableau 2.1 : Paramètres du modèle multi-physique mis en place.

2.7 Exemples d'applications

Dans la suite, plusieurs exemples d'applications sont étudiés afin de valider l'implémentation du modèle multi-physique mis en place. Dans un premier temps la partie chimique et la partie mécanique du modèle sont testées séparément. La partie chimique est testée à travers l'étude de l'oxydation tandis que la partie mécanique est testée avec l'étude du fluage et de la fissuration. Le modèle est ensuite testé sur des exemples plus complexes faisant intervenir simultanément toutes les physiques modélisées. Pour tous les exemples présentés, les valeurs de la mobilité de l'interface, de la courbure de la densité d'énergie et de l'énergie de l'interface sont les mêmes. La mobilité de l'interface est choisie suffisamment élevée $M=10^6\text{mm}^3/\text{J}/\text{s}$ (ce qui revient à supposer que la réaction chimique à l'interface est instantanée). La courbure de la densité d'énergie chimique est choisie identique pour les deux phases est fixée à $k = 1\text{J}/\text{mm}^3$ et l'énergie de l'interface pour le problème de changement de phase à $\omega = 0,1\text{J}/\text{mm}^2$. Le choix de ces deux derniers para-

mètres (spécifique à l'approche champ de phase) n'a pas d'importance dans les exemples présentés car l'effet de la mécanique sur le changement de phase est négligé. Les simulations sont toutes effectuées dans des conditions de déformation plane. La plupart des paramètres matériaux utilisés ont été choisis suffisamment proche des propriétés physiques du système Zy-4/ZrO₂ (cf. Tableau 4.5).

2.7.1 Étude de l'oxydation

Les exemples présentés ici qui portent sur l'étude de l'oxydation, visent à valider la partie chimique du modèle de manière découplée de la partie mécanique. Les degrés de liberté liés à l'aspect mécanique (déplacement u et fissuration d) sont inactifs dans cette partie. Le problème d'oxydation est traité dans deux configurations : croissance et dissolution d'une couche d'oxyde. Les résultats obtenus avec le modèle développé dans ce travail basé sur une approche diffuse (interface métal/oxyde continue) sont comparés avec les résultats obtenus avec le code SHOWBIZ¹ de l'IRSN utilisant une approche discontinue (interface métal/oxyde discontinue).

2.7.1.1 Croissance d'une couche d'oxyde

Ce premier exemple porte sur la croissance d'une couche d'oxyde à la surface d'une plaque semi-infinie. Le problème correspondant est illustré en Figure 2.7. Le paramètre

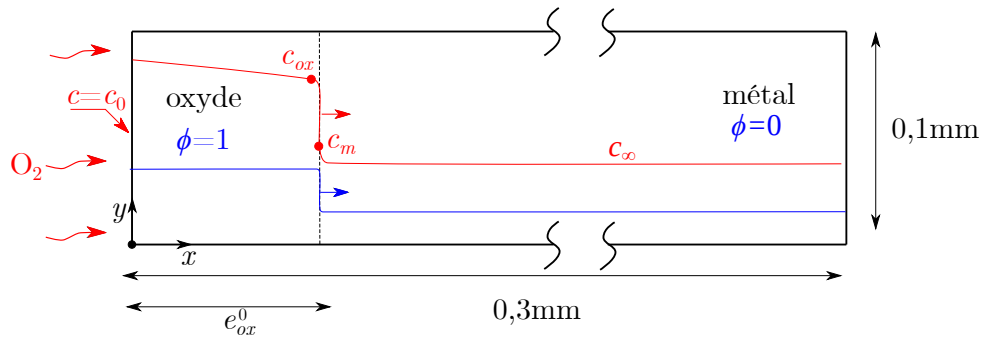


Figure 2.7 : Géométrie, conditions initiales et conditions aux limites pour l'étude de la croissance d'une couche d'oxyde. Le profil initial du paramètre d'ordre ϕ (en bleu) et le profil initial de concentration en oxygène c (en rouge) ainsi que le sens de déplacement de l'interface métal/oxyde sont représentés.

d'ordre (ϕ) est initialisé à l'aide d'une fonction de type tangente hyperbolique :

$$\phi(x, t = 0) = \frac{1}{2} \left[1 - \tanh \left(\frac{\theta(x - e_{ox}^0)}{\delta} \right) \right], \quad (2.45)$$

$\theta \approx 2,94$ est donné par l'Équation 2.42, $\delta = 1\mu\text{m}$ représente l'épaisseur de l'interface ($\phi \in [0,05 - 0,95]$) et $e_{ox}^0 = 1\mu\text{m}$ est l'épaisseur initiale de la couche d'oxyde ($\phi = 1$).

1. SHOWBIZ est un code de calcul développé au sein de L'IRSN pour étudier l'effet de l'oxygène et de l'hydrogène sur le comportement thermomécanique et thermochimique local de tronçons de gaines de crayons combustible en fonctionnement normal, incidentel ou accidentel en réacteur, en transport ou en entreposage.

Une couche d'oxyde d'épaisseur initiale non nulle est nécessaire pour initier la simulation ($e_{ox}^0 \geq \delta$ est suffisant pour l'initialisation du calcul). Initialement, la concentration dans le métal ($\phi = 0$) est homogène ($c_\infty = 0,13$ %mass), tandis qu'un gradient linéaire est imposé dans l'oxyde. ($c_0 = 25,97$ %mass, $c_{ox}=23,1$ %mass). Une condition au limite de type Dirichlet, est imposée sur la surface de gauche ($\bar{c} = c_0 = 25,97$ %mass). Cette condition aux limites traduit l'échange avec l'environnement externe responsable de la croissance de la couche d'oxyde. Les concentrations d'équilibre à l'interface oxide/métal et les coefficients de diffusion de l'oxygène dans l'oxyde et le métal sont donnés dans le Tableau 3.5 ci-dessous.

Propriétés	métal	oxyde
concentration d'équilibre c (%mass)	7	23,1
coefficient de diffusion D (cm ² /s)	$1,19 \cdot 10^{-10}$	$1,92 \cdot 10^{-9}$
Courbure de la densité d'énergie k (J/mm ³)	1	
épaisseur de l'interface δ (μm)	1	
énergie de l'interface ω (J/mm ²)	0,1	
mobilité de l'interface M (mm ³ /J/s)	10^6	

Tableau 2.2 : Paramètres utilisés pour l'étude de la croissance d'une couche d'oxyde.

Le domaine est maillé avec 1000 éléments quadrangles à interpolation linéaire dans la direction x et 1 élément dans la direction y . Dix éléments dans l'interface sont nécessaires pour garantir la bonne convergence de la simulation [220].

La Figure 2.8 présente les profils de concentration en oxygène à différents instants. Les résultats du modèle champ de phase développé dans ce travail sont comparés aux résultats du code SHOWBIZ utilisant une approche discontinue. La bonne cohérence entre les résultats démontre que la régularisation du problème d'oxydation introduite dans l'approche champ de phase n'altère pas la qualité de la solution. L'équilibre à l'interface métal/oxyde est atteint assez rapidement durant le processus de croissance. Les concentrations locales à l'interface (coté oxyde et métal) atteignent les valeurs d'équilibre prescrites (lignes interrompues noires) et la croissance se poursuit dans ces conditions d'équilibre à l'interface.

L'évolution temporelle de l'épaisseur de la couche d'oxyde est illustrée en Figure 2.9. L'épaisseur de la couche d'oxyde est déterminée en suivant la position de l'interface ($\phi = 0,5$). On observe là également une bonne cohérence avec les résultats du code SHOWBIZ. Une cinétique de croissance parabolique ($e_{ox} = \sqrt{k_c t}$), est observé. $k_c = 4,16 \cdot 10^{-10}$ cm²/s à été identifié par la méthode des moindre carrée.

2.7.1.2 Dissolution d'une couche d'oxyde

Le problème correspondant à l'étude de la dissolution d'une couche d'oxyde similaire au cas précédent de croissance d'une couche d'oxyde est illustré en Figure 2.10.

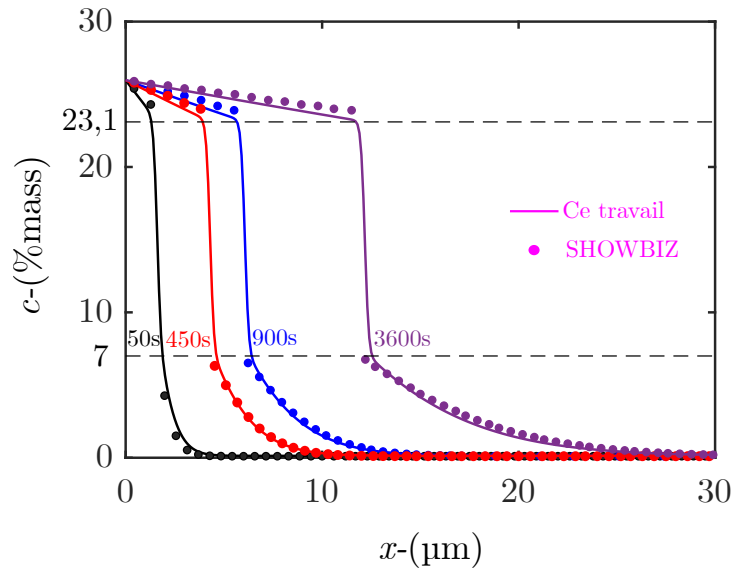


Figure 2.8 : Évolution du profil de concentration en oxygène à différents instants lors de la croissance d'une couche d'oxyde. Les nombres en regard des courbes sont les durées correspondantes en secondes. Les résultats du modèle développé dans ce travail (traits continus) sont comparés aux résultats du code SHOWBIZ (point).

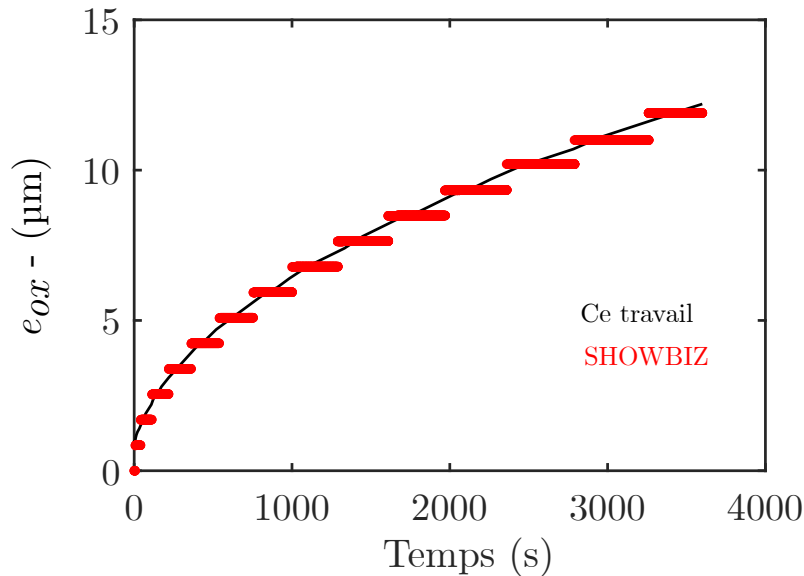


Figure 2.9 : Évolution de l'épaisseur de la couche d'oxyde lors d'un processus de croissance. Les résultats du modèle développé dans ce travail sont comparés aux résultats du code SHOWBIZ avec les mêmes conditions aux limites

L'épaisseur initiale de la couche d'oxyde est fixée à $e_{ox}^0 = 10\mu\text{m}$ (voir Équation 2.46). A l'instant initial, la concentration dans le métal ($c_\infty = 0,13\%\text{mass}$) et celle dans l'oxyde ($c_{ox} = 25,97\%\text{mass}$) sont homogènes. Par rapport au cas précédent, la condition au limite de type Dirichlet sur la surface de gauche est supprimée. Ce qui traduit l'absence d'échange avec l'environnement externe. Les paramètres utilisés sont résumés dans le Tableau 2.3

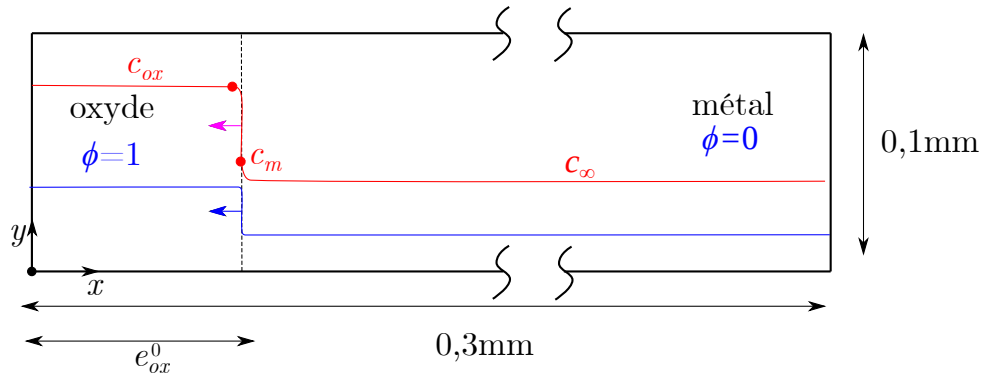


Figure 2.10 : Géométrie, conditions initiales et conditions aux limites pour l'étude de la dissolution d'une couche d'oxyde. Le profil initial du paramètre d'ordre ϕ (en bleu) et le profil initial de concentration en oxygène c (en rouge) ainsi que le sens de déplacement de l'interface métal/oxyde sont représentés.

ci-dessous.

Propriétés	métal	oxyde
concentration d'équilibre c (%mass)	7	25,97
coefficient de diffusion D (cm ² /s)	$1,19 \cdot 10^{-10}$	$1,92 \cdot 10^{-9}$
Courbure de la densité d'énergie k (J/mm ³)	1	
épaisseur de l'interface δ (μm)	1	
énergie de l'interface ω (J/mm ²)	0,1	
mobilité de l'interface M (mm ³ /J/s)	10^6	

Tableau 2.3 : Paramètres utilisés pour l'étude de la dissolution d'une couche d'oxyde.

Les profils de concentration en oxygène à différents instants sont illustrés en Figure 2.11. Le métal présente initialement une plus faible concentration en oxygène comparativement à la couche d'oxyde et bien en dessous de la limite de solubilité dans le métal. Ainsi, de l'oxygène contenu dans l'oxyde diffuse vers le métal ce qui induit la formation d'une couche de métal enrichie en oxygène. Cette diffusion d'oxygène s'accompagne également d'une dissolution partielle de la couche d'oxyde. La Figure 2.12 permet de visualiser l'évolution temporelle de l'épaisseur de la couche d'oxyde. La cinétique de dissolution est largement plus lente que celle de croissance. l'épaisseur d'oxyde dissout est de 2,5μm après 3600s tandis que pour la même durée lors d'un processus de croissance, une couche d'oxyde d'épaisseur 12,2μm se forme (voir Figure 2.9).

Cet exemple met en évidence le caractère général de l'approche champ de phase utilisée qui permet de simuler la croissance et la dissolution d'une couche d'oxyde en utilisant un modèle unique et sans avoir recours à des astuces numériques spécifiques pour gérer la croissance et la dissolution.

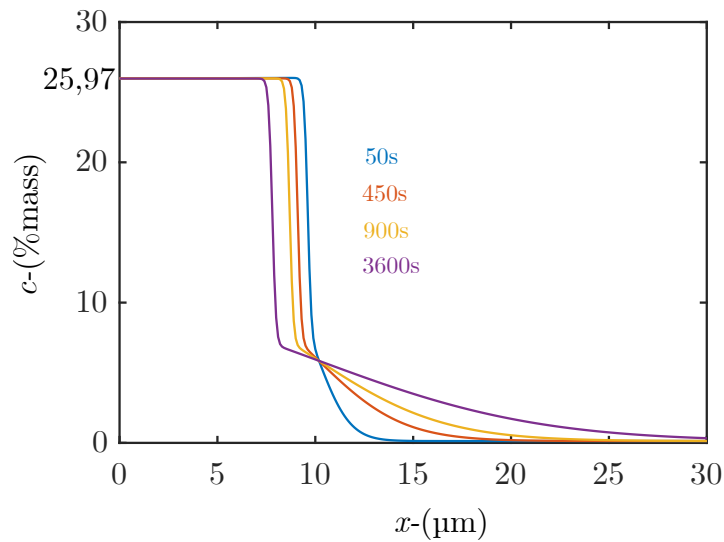


Figure 2.11 : Évolution du profil de concentration en oxygène à différents instants lors de la dissolution d'une couche d'oxyde. Les nombres proches des courbes sont les durées correspondantes en secondes.

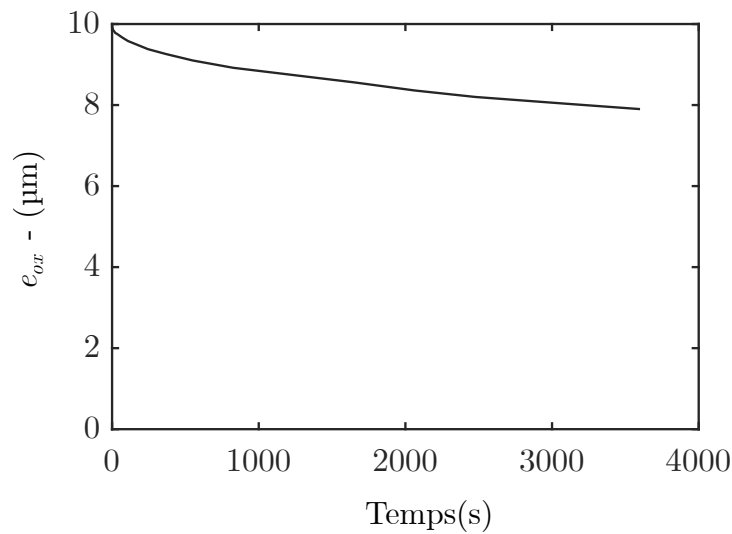


Figure 2.12 : Évolution de l'épaisseur d'oxyde lors d'un processus de dissolution.

2.7.2 Étude du fluage et de la fissuration

Les exemples présentés dans cette partie qui portent sur les phénomènes de fluage et fissuration visent à valider la partie mécanique du modèle de manière découplée de la partie chimique. Les degrés de libertés liés à la partie chimique (teneur en oxygène c et paramètre d'ordre ϕ) sont soit inactifs soit imposés. Le modèle est tout d'abord validé sur un cas homogène. Ensuite l'effet de la régularisation de l'interface sur le comportement au fluage d'un matériau multi-couche constitué d'une couche d'oxyde et d'une couche de métal est étudiée. Enfin, l'effet de la fissuration de la couche d'oxyde sur le comportement macroscopique du matériau multi-couche est abordé.

2.7.2.1 Cas homogène

Dans un premier temps afin de valider l'implémentation de la loi de fluage, il convient d'étudier le cas d'un élément 2D homogène ($\phi = 0$). Une plaque métallique carrée de dimensions $0,3\text{mm} \times 0,3\text{mm}$ (cf. Figure 2.14) est soumise à une contrainte de traction constante sur son côté supérieur dans la direction y tandis que le déplacement de son côté inférieur est bloqué dans la direction y . La procédure de chargement est illustrée en Figure 4.5. Une contrainte de $\sigma_0 = 22 \text{ MPa}$ est appliquée en 15 secondes puis maintenue pendant 800s. On rappelle que les calculs sont réalisés sous l'hypothèse des petites déformations et l'hypothèse des déformations planes.

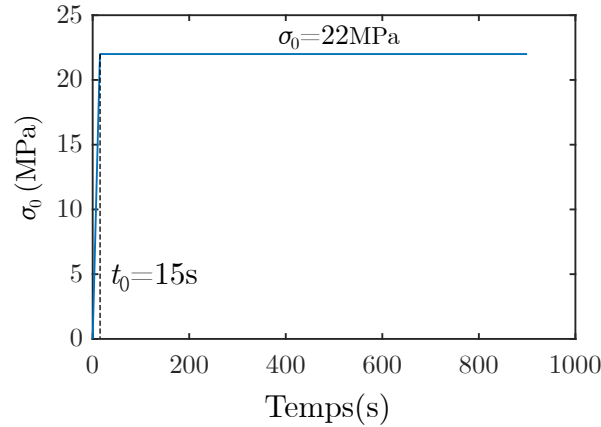


Figure 2.13 : Procédure de chargement mécanique appliquée pour l'étude du fluage.

Le module d'Young est fixé à $E = 53.10^3 \text{ MPa}$ avec $\nu = 0,35$. Les paramètres de la loi Norton (cf. Équation 2.19) sont fixés à $A = 5,85.10^{-7} \text{ MPa}^{-n}/\text{s}$, $n = 1,66$. On considère uniquement la visco-plasticité dans cet exemple.

La Figure 2.14 montre l'évolution de la déformation en fonction du temps. Le résultat

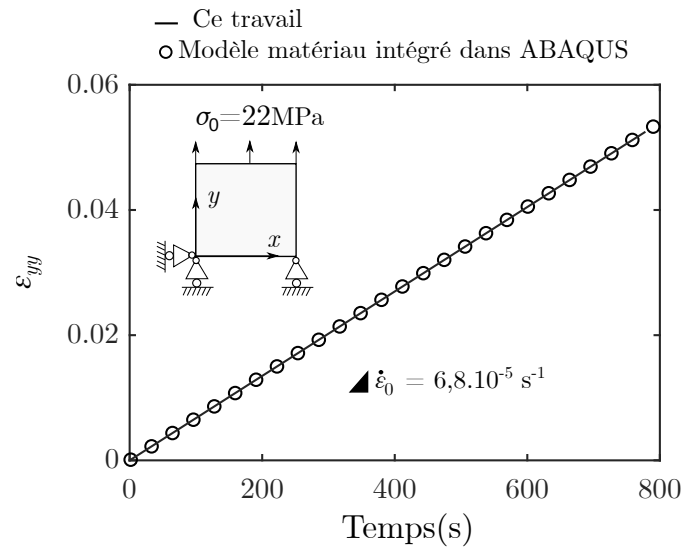


Figure 2.14 : Évolution de la déformation en cours de fluage dans le cas homogène ($\phi = 0$). Le modèle mis en place est comparé avec le modèle matériau de base intégré dans Abaqus.

obtenu avec le modèle mis en place est cohérent avec celui obtenu en utilisant le modèle matériau de base intégré dans Abaqus. La vitesse de fluage définie par la pente de la courbe vaut $\dot{\varepsilon}_0 \approx 6,8.10^{-5} s^{-1}$. Ce cas homogène simple servira de base pour l'analyse des exemples plus complexes étudiés dans la suite.

2.7.2.2 Effet de la régularisation de l'interface

Cette section porte sur l'étude du comportement au fluage d'un matériau multi-couche constitué d'une couche métallique et d'une couche d'oxyde. Le paramètre d'ordre (ϕ) est utilisé pour décrire la couche métallique ($\phi = 0$) et la couche d'oxyde ($\phi = 1$) du matériau multi-couche. Le comportement effectif de l'interface métal/oxyde régularisée est décrit par une loi de mélange. Il est donc important d'étudier l'effet de cette régularisation sur le comportement au fluage macroscopique du matériau multi-couche. Deux modèles sont alors considérés :

- modèle d'interface franche : le matériau multi-couche est modélisé avec une approche discontinue en maillant explicitement l'interface métal/oxyde. La simulation est effectuée en utilisant les lois de comportement de base intégrées dans le code de calcul Abaqus.
- modèle d'interface diffuse : le matériau multi-couche est modélisé avec une interface métal/oxyde régularisée en utilisant le modèle mis en place dans ce travail. La topologie de la structure est alors gérée implicitement par le paramètre d'ordre (ϕ).

Le problème étudié est illustré en Figure 2.15. Seule la viscoplasticité est considérée dans

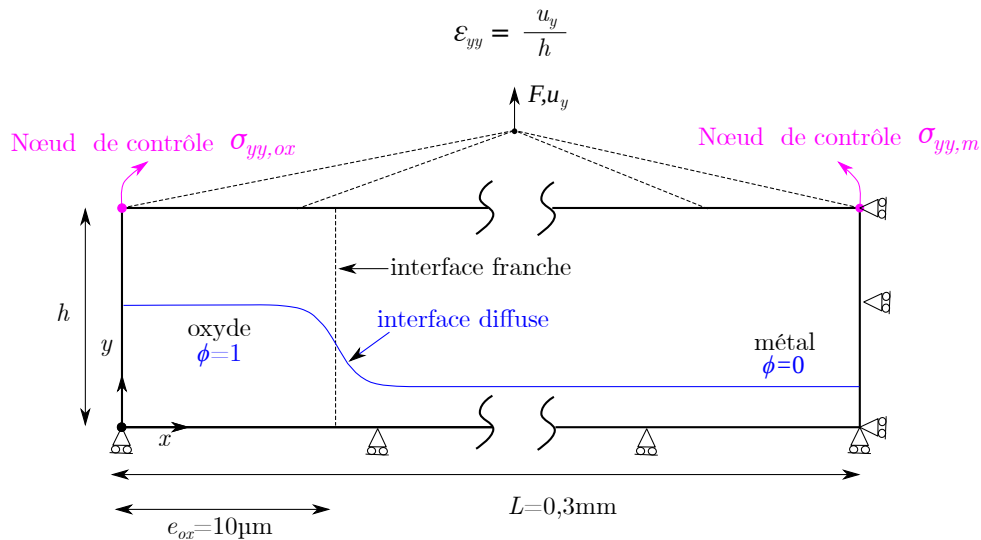


Figure 2.15 : Géométrie et conditions aux limites pour l'étude du fluage d'une structure binaire. Deux cas de figures sont simulés : le cas avec l'interface discontinue est réalisé en maillant explicitement l'interface alors que le cas avec l'interface régularisée est résolu en gérant implicitement la topologie à l'aide du paramètre d'ordre (ϕ).

cet exemple. Pour le modèle d'interface diffuse, une fonction de type tangente hyperbolique

est utilisée pour définir le paramètre d'ordre (ϕ) :

$$\phi(x) = \frac{1}{2} \left[1 - \tanh \left(\frac{2,94(x - e_{ox})}{\delta} \right) \right], \quad (2.46)$$

δ représente l'épaisseur de l'interface ($\phi \in [0,05 - 0,95]$) et $e_{ox} = 10\mu\text{m}$ est l'épaisseur de la couche d'oxyde ($\phi = 1$). En ce qui concerne les conditions aux limites mécaniques, la surface inférieure est bloquée dans la direction y tandis que celle de droite est bloquée selon la direction x . Une condition aux limites de type "Multi-Point Constraint" (MPC) est appliquée sur la surface supérieure afin garantir qu'elle reste plane. Cette condition aux limites permet également d'appliquer un effort de fluage de résultante F suivant l'axe y . Pour des raisons de commodité, le chargement (F) appliqué est défini à travers la contrainte moyenne correspondante donnée par :

$$\sigma_0 = \frac{F}{L \times e}, \quad (2.47)$$

où $e = 1\text{mm}$ est l'épaisseur hors plan nécessaire pour résoudre le problème sous l'hypothèse de déformation plane. La même procédure de chargement que dans le cas homogène précédent (cf. Figure 4.5) est utilisée ici. La déformation macroscopique de fluage est définie à partir du déplacement vertical (u_y) de la surface supérieure (cf. Figure 2.15) :

$$\varepsilon_{yy} = \frac{u_y}{h}. \quad (2.48)$$

Les paramètres utilisés sont résumés dans le Tableau 2.4. L'oxyde ($\phi = 1$) est sup-

Propriétés	métal ($\phi = 0$)	oxyde ($\phi = 1$)
Élasticité		
Module d'Young : E (MPa)	53.10^3	180.10^3
Coefficient de Poisson : ν	0,35	0,3
Visco-plasticité		
Constante de Norton : A (MPa^{-n}/s)	$5,85.10^{-7}$	-
Exposant Norton : n	1,66	-

Tableau 2.4 : Paramètres utilisés pour l'étude de l'effet de la régularisation de l'interface sur le comportement au fluage effectif d'un matériau multi-couche. L'oxyde est supposé avoir un comportement élastique et le métal un comportement viscoplastique.

posé avoir un comportement élastique tandis que le métal ($\phi = 0$) a un comportement visco-plastique. Le domaine est maillé avec 3000 éléments quadrangulaires à interpolation linéaire dans la direction x et 1 élément dans la direction y . La gestion adaptative du pas de temps, implémentée dans Abaqus comme option par défaut, a été utilisée pour les

calculs. Un pas de temps très réduit, de l'ordre de $10^{-3}s$, est nécessaire en début de calcul pour assurer une bonne convergence, alors que de grands pas de temps, de l'ordre de $10s$, sont atteints en fin de calcul.

Les évolutions de la déformation et de la vitesse de déformation macroscopique du matériau multi-couche sont présentées en Figure 2.16. Tout d'abord, on note que lorsque

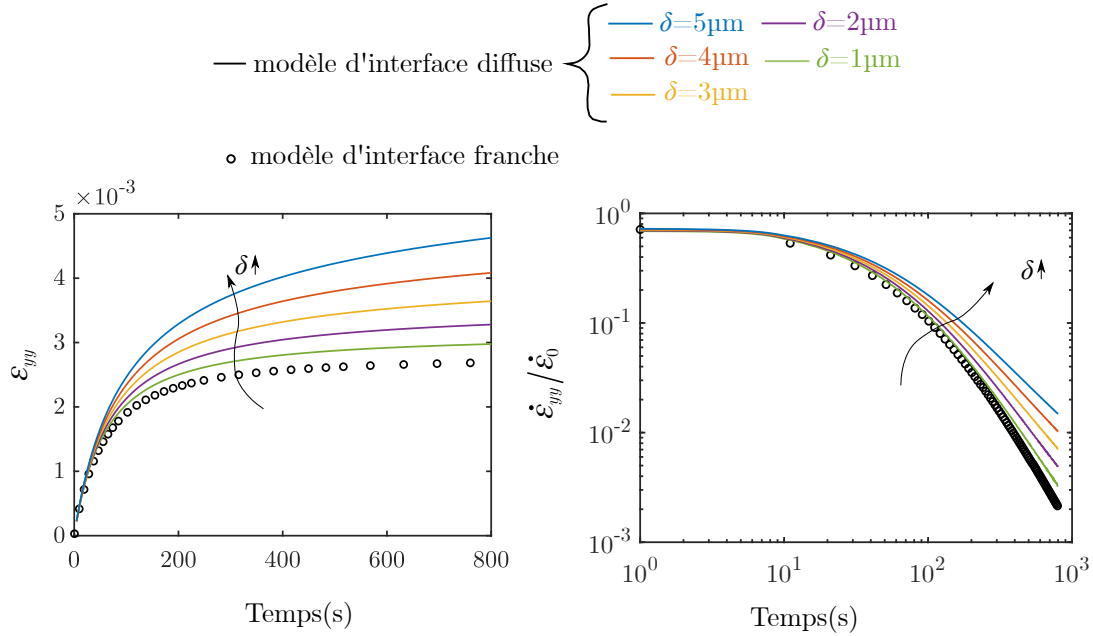


Figure 2.16 : Effet de l'épaisseur de l'interface métal/oxyde sur la déformation (a) et la vitesse de déformation (b) lors du fluage d'un matériau multi-couche. La solution pour le matériau métallique homogène est également représentée ; La vitesse est normalisée par la solution homogène $\dot{\epsilon}_0$ (cf. Figure 2.14). Les résultats du modèle d'interface diffuse (ce travail) sont comparés aux résultats du modèle d'interface franche (loi de comportement de base intégrée dans Abaqus).

l'épaisseur de l'interface diminue, les résultats du modèle d'interface diffuse convergent vers les résultats du modèle d'interface discontinue. Ce résultat démontre que la régularisation de l'interface introduite dans l'approche champ de phase n'altère pas la qualité de la solution du problème mécanique de base à condition que l'épaisseur de l'interface soit très petite. Cependant, réduire l'épaisseur de l'interface implique également de réduire la taille des éléments (pour décrire convenablement le fort gradient de ϕ dans l'interface) ce qui augmente le coût numérique des simulations. Dans la suite, l'épaisseur de l'interface est fixée à $\delta = 1\mu m$.

La Figure 2.16 montre que la vitesse de fluage du matériau homogène ($\dot{\epsilon}_0$) est supérieure à celle du matériau multi-couche ($\dot{\epsilon}_{yy} < \dot{\epsilon}_0$). La présence de la couche d'oxyde rigidifie la structure. Par rapport au cas homogène pour lequel la vitesse de fluage est constante, une diminution progressive de la vitesse de fluage macroscopique est observée dans le cas du matériau multi-couche alors que l'effort appliqué reste constant. Pour mieux comprendre cette diminution de la vitesse de fluage, l'évolution temporelle et spatiale de la contrainte de traction dans le matériau est présentée en Figure 2.17. En cours de fluage, la différence de comportement entre le métal (viscoplastique) et l'oxyde (élastique) induit une relaxation de contraintes dans le métal compensée par une augmentation de contraintes

dans l'oxyde. Comme le montre la Figure 2.17(c), la redistribution de contrainte dans le matériau s'effectue suivant un chemin d'équilibre donnée par la relation suivante :

$$\sigma_0 \cdot L = \sigma_{yy,ox} \cdot e_{ox} + \sigma_{yy,m} \cdot (L - e_{ox}), \quad (2.49)$$

l'équation 2.49 traduit l'équilibre mécanique sur la surface supérieure (cf. Figure 2.16). La relaxation de la contrainte dans la couche de métal est à l'origine de la diminution progressive de la vitesse de fluage (cf. Figure 2.16).

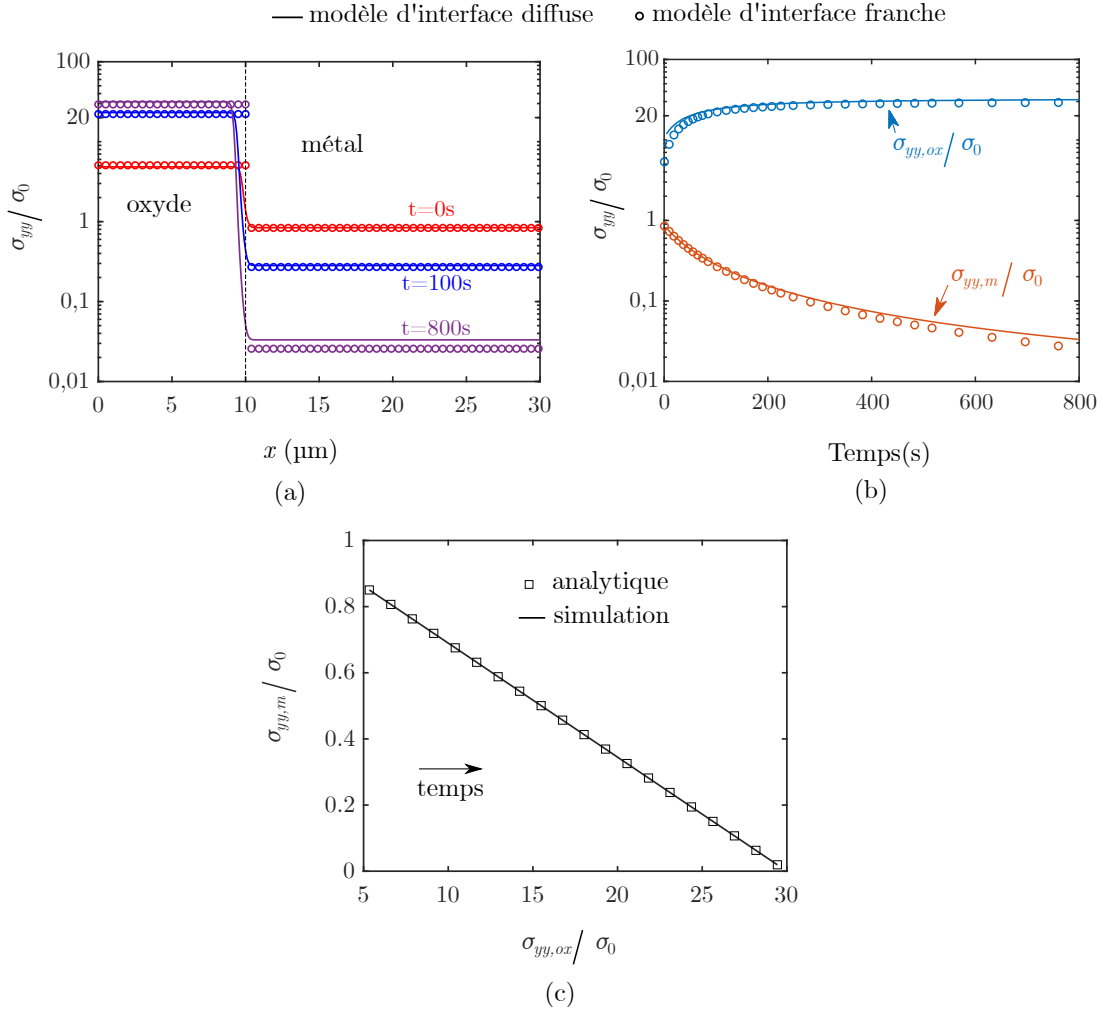


Figure 2.17 : Évolution spatiale (a) et temporelle (b) de la contrainte en cours de fluage d'un matériau multi-couche. Les résultats du modèle d'interface diffuse sont comparés aux résultats du modèle d'interface franche. (c) comparaison des contraintes dans le métal et dans l'oxyde en cours de fluage. La solution analytique donnée par l'Équation 2.49 est également représentée. Tous les résultats sont normalisés par la contrainte moyenne σ_0 du chargement appliquée (cf. Équation 2.47). Pour le modèle d'interface diffuse, l'épaisseur de l'interface a été fixée à $\delta = 1\mu\text{m}$.

2.7.2.3 Effet de la fissuration

L'exemple précédent a mis en évidence le fait que lors du fluage d'un matériau multi-couche constitué d'une couche d'oxyde (élastique) et d'une couche de métal (viscoplas-

tique), la contrainte dans le métal se relaxe tandis que celle dans le l'oxyde augmente. Cette augmentation de contrainte dans la couche d'oxyde peut conduire à sa fissuration. L'objectif de cet exemple est de mettre en évidence l'effet de la fissuration de la couche d'oxyde sur le comportement au fluage macroscopique du matériau multi-couche. Le problème étudié est illustré en Figure 2.18.

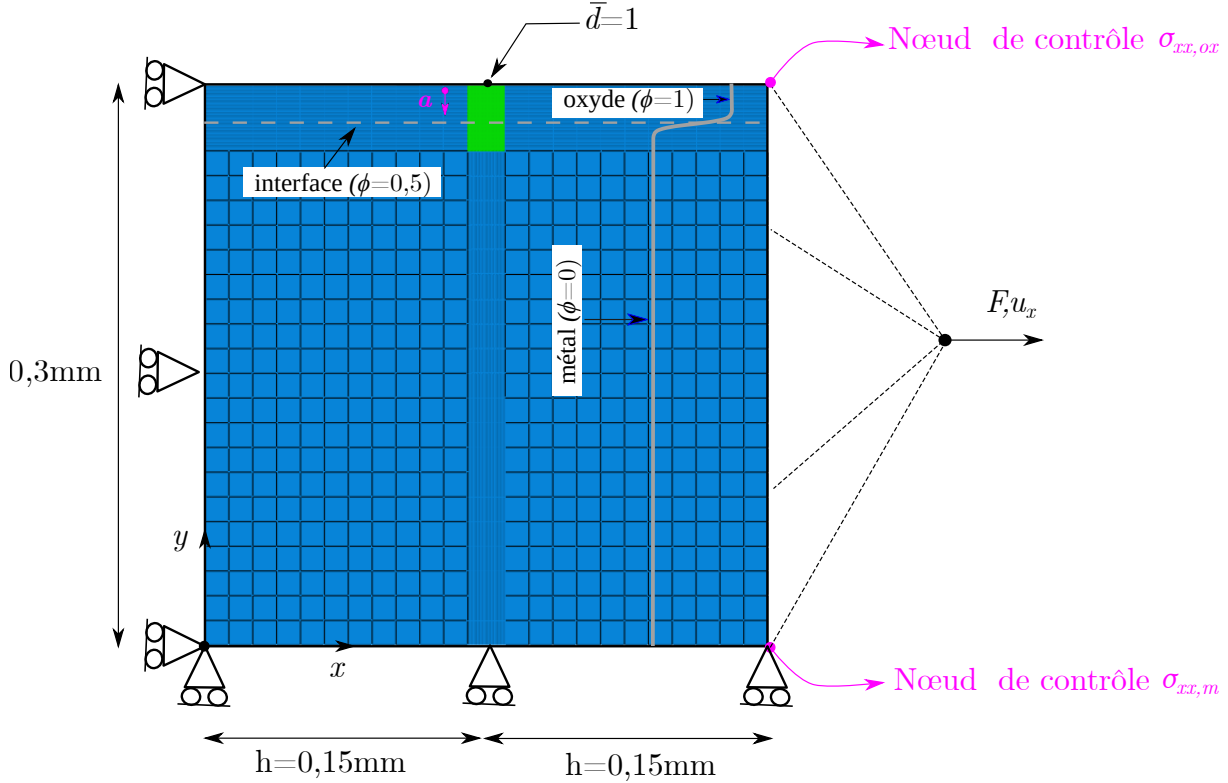


Figure 2.18 : Géométrie et conditions aux limites pour l'étude du fluage et de la fissuration d'un matériau multi-couche. Un défaut initial ($\bar{d} = 1$) est imposé au milieu de la face supérieure. La direction verticale (perpendiculaire à l'interface métal/oxyde) est choisie comme direction préférentielle de propagation de la fissure dans la couche d'oxyde (a). La zone anticipée de propagation de la fissure (en vert) est maillée finement avec des éléments carrés de côté $0,1 \mu\text{m}$ tandis que le reste du domaine est maillé de manière plus grossière. La topologie de la structure est définie à l'aide du paramètre d'ordre (ϕ) imposé tout au long du calcul et dont le profil est également illustré.

Un défaut unique ($\bar{d} = 1$) est imposé au milieu de la surface supérieure pour initialiser la fissuration dans la couche d'oxyde. Les conditions aux limites sont semblables au problème précédent. La surface inférieure est bloquée suivant l'axe y tandis que celle de gauche est fixée suivant l'axe x . Un effort imposé constant (F) est appliqué sur la surface de droite à travers une condition aux limites de type MPC. La même procédure de chargement que précédemment est utilisée (cf. Figure 4.5). Seule la viscoplasticité et la fissuration sont considérées dans cet exemple. Dans l'hypothèse d'une fissuration isotrope de l'oxyde, un phénomène de délaminage total de l'oxyde se produit. De plus, on ne constate pas de fluage significatif de la couche de métal avant la desquamation ou le délaminage total de l'oxyde. Pour cette raison, on suppose que la fissuration de la couche d'oxyde est anisotrope. La direction perpendiculaire à l'interface métal/oxyde est choisie comme direc-

tion préférentielle de propagation des fissures. L'anisotropie de la fissuration dans l'oxyde permet d'éviter la propagation de la fissure parallèlement à l'interface métal/oxyde responsable du phénomène de desquamation. Le paramètre d'anisotropie $\alpha_0 = 100$ est utilisé (cf. Équation 2.24).

La topologie de la structure est définie à l'aide d'une fonction de type tangente hyperbolique fonction du paramètre d'ordre (cf. Équation 2.46). L'épaisseur de la couche d'oxyde est fixée à $e_{ox}=10\mu\text{m}$. Les paramètres utilisés sont résumés dans le Tableau 2.5. La couche d'oxyde ($\phi = 1$) est supposée avoir un comportement élastique endommageable

Propriétés	métal		oxyde
Élasticité			
Module d'Young : E (MPa)	53.10 ³		180.10 ³
Coefficient de Poisson : ν	0,35		0,3
Visco-plasticité			
	$\sigma_{vm}<26\text{MPa}$	$\sigma_{vm}>26\text{MPa}$	
Constante de Norton : A (MPa ^{-n} /s)	5,85.10 ⁻⁷	1,09.10 ⁻⁹	-
Exposant Norton : n	1,66	3,92	-
Fissuration			
Énergie de surface de la fissure : g_c (N/mm)	-		2.10 ⁻³
Longueur caractéristique de la fissure : l_c (mm)	-		10 ⁻³
Paramètre d'anisotropie : α_0	-		100
Algorithme de résolution			
Critère sur le pas de temps : η	0,1		

Tableau 2.5 : Paramètres utilisés pour l'étude du fluage et de la fissuration d'un matériau multi-couche constitué d'une couche de métal (visco-plastique non endommageable) et d'une couche d'oxyde (élastique endommageable). Les paramètres de fluage dans le métal dépendent de la contrainte de von Mises locale.

tandis que le métal ($\phi = 0$) a un comportement viscoplastique non endommageable. La résistance à la fissuration du métal est donc choisie largement au dessus de celle de l'oxyde. La fissuration de la couche d'oxyde induit un état de contrainte hétérogène dans la couche de métal. L'effet de la contrainte sur les propriétés de fluage est pris en compte (fluage de type diffusif à faible niveau de contrainte et fluage de type dislocation pour des contraintes élevées). La zone anticipée de propagation de la fissure (en vert) est maillée finement avec des éléments carrés à interpolation linéaire de côté 0,1 μm alors que le reste du domaine

est maillé de manière plus grossière. De manière générale, la zone anticipée de propagation de la fissure doit être maillée finement avec une taille d'élément maximale de $h = l_c/2$ pour garantir une bonne précision des simulations et réduire l'effet du maillage sur les résultats [203].

La gestion de pas de temps basée sur l'incrément de l'énergie de déformation est utilisée. Le paramètre de contrôle de pas de temps est fixé à $\eta = 0,1$ (cf. Équation 2.44). La déformation macroscopique de fluage dans ce cas est définie à partir du déplacement horizontal (u_x) de la surface de droite (cf. Figure 2.18) :

$$\varepsilon_{xx} = \frac{u_x}{2h}. \quad (2.50)$$

La Figure 2.19(a) illustre l'évolution de la déformation macroscopique (ε_{xx}) du matériau multi-couche en cours de fluage. L'évolution de la déformation du matériau homogène correspondant est également représentée. La vitesse de déformation du matériau multi-couche normalisée par la vitesse dans le cas du matériau métallique homogène ($\dot{\varepsilon}_0$ cf. Figure 2.14) est également illustrée en Figure 2.19(b). Deux régimes de fluage sont observés pour le matériau multi-couche. Avant fissuration de la couche d'oxyde, on observe une diminution de la vitesse de fluage macroscopique induit par l'effet renfort de la couche d'oxyde. Après fissuration de la couche d'oxyde, la vitesse ré-augmente et tend à se stabiliser. La vitesse du matériau multi-couche avant comme après fissuration de la couche d'oxyde reste toujours inférieure à la vitesse du matériau métallique homogène ($\dot{\varepsilon}_{xx} < \dot{\varepsilon}_0$). Ceci est dû à la contribution mécanique des fragments d'oxyde (cf. Figure 2.19(c)) qui permettent de maintenir un effet renfort résiduel même après fissuration de la couche d'oxyde. La topologie de fissure juste après la fissuration ($t = t_d = 83s$) et à la fin de la simulation ($t = 800s$) dans la couche d'oxyde, est illustré en Figure 2.19(c). La fissure se propage (de manière instable) jusqu'à l'interface métal/oxyde où elle est stoppée et n'évolue plus jusqu'à la fin de la simulation. L'anisotropie de la fissuration dans la couche d'oxyde permet d'éviter la propagation de la fissure parallèlement à l'interface métal/oxyde ce qui aurait conduit à la desquamation totale de la couche d'oxyde. Il est important de préciser que toute la simulation est effectuée sur le maillage initial. Après la fissuration de l'oxyde, les éléments en pointe de fissure se déforment très sévèrement. La distorsion excessive des éléments en pointe de fissure induit une légère réduction de la vitesse de fluage après fissuration de la couche d'oxyde (cf. Figure 2.19(b)). Il peut être envisagé de remailler le domaine après fissuration pour éviter cet effet numérique indésirable.

La Figure 2.20 présente l'évolution du champ de déformation visco-plastique dans la couche de métal. La couche d'oxyde ($\phi > 0,5$) est également représentée (en gris) sans les éléments fissurés ($d > 0,95$). Avant la fissuration de la couche d'oxyde, la déformation visco-plastique du métal dans la direction horizontale (ε_{xx}^{vp}) est homogène et négligeable ($\varepsilon_{xx,m}^{vp} < 2.10^{-3}$ cf. Figure 2.20(a)). Après fissuration de la couche d'oxyde, on observe une localisation progressive de la déformation entre les fragments d'oxyde où le métal se retrouve à nu (cf. Figure 2.20(b) et Figure 2.20(c)). La cinétique de fluage macroscopique est alors contrôlée par l'ouverture de la fissure, elle même induite par le fluage du métal mis à nu. Comme illustré en Figure 2.19, la déformation macroscopique $u_x/2h$ (aux bornes du domaine modélisé) se compare bien à $ouv/2h$ (ouv étant l'ouverture de la fissure). Cela permet de valider pleinement l'hypothèse d'une cinétique de fluage macroscopique contrôlée par l'ouverture de la fissure. Les fragments d'oxyde se comportent quasiment comme des corps rigides.

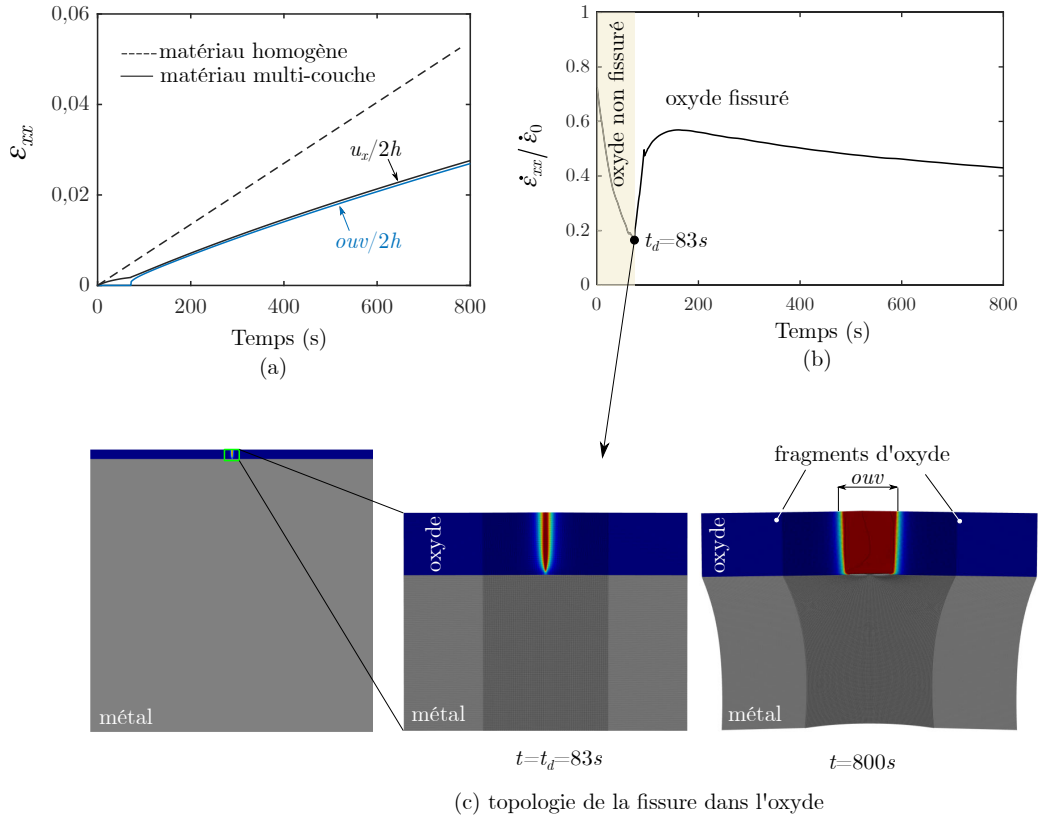


Figure 2.19 : Effet de la fissuration sur le fluage d'un matériau multi-couche. (a) Évolution temporelle de la déformation. La déformation macroscopique aux bornes du domaine modélisé ($u_x/2h$) est comparée à $ouv/2h$ (ouv étant l'ouverture de la fissure). La déformation dans le cas homogène est également représentée. (b) Évolution temporelle de la vitesse déformation normalisée par celle du matériau métallique homogène. (c) Topologie de la fissuration de la couche d'oxyde en cours de fluage. Un zoom est effectué dans la région proche de la fissure (zone en vert sur la Figure 2.18).

Les flèches sur la Figure 2.20(c) indiquent le mode de déformation de la structure. Ce mode de ruine de la structure conduit à une fissure sous la forme d'un "U".

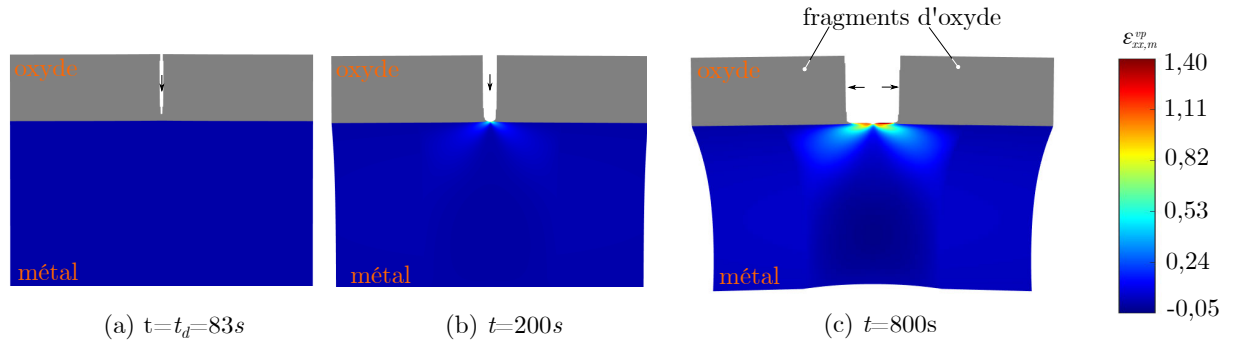


Figure 2.20 : Évolution temporelle du champ de déformation visoplastique dans la couche de métal ($\varepsilon_{xx,m}^{vp}$). La couche d'oxyde ($\phi > 0,5$) est représentée en gris. Les éléments fissurés ($d > 0,95$) ont été supprimés. Le domaine n'est pas représenté en entier, seule la région au voisinage de la fissure est représentée.

Les contraintes sont évaluées, compte tenu des symétries, au milieu du réseau périodique de fragments représenté par le modèle (points de contrôle définis en Figure 2.18). Les évolutions temporelles des contraintes dans l'oxyde et le métal sont illustrés en Figure 2.21. Les contraintes ont été extraites aux points de contrôle définis en Figure 2.18. En début de fluage avant fissuration de la couche d'oxyde, la contrainte dans l'oxyde augmente tandis que celle dans le métal se relaxe. Lorsque la contrainte dans l'oxyde atteint une valeur critique ($\sigma_{ox}^c \approx 22\sigma_0$), elle se fissure. On rappelle que $\sigma_0=22\text{MPa}$. Cette fissuration induit aussitôt une redistribution des contraintes dans la structure. La contrainte dans les fragments d'oxyde formés se relaxe partiellement tandis que celle dans le métal augmente. Par la suite, la couche de métal poursuit sa relaxation de contrainte alors que la contrainte dans les fragments d'oxyde repart à la hausse.

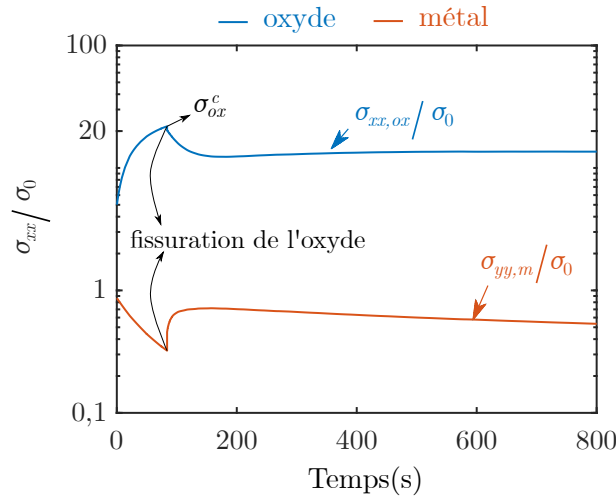


Figure 2.21 : Évolution temporelle des contraintes lors du fluage d'un matériau multi-couche constitué d'une couche d'oxyde (élastique endommageable) et une couche de métal (viscoplastique non endommageable). Les contraintes dans la couche d'oxyde et la couche de métal ont été extraites aux points de contrôle définis en Figure 2.18. Les contraintes sont normalisées par la contrainte moyenne (σ_0) du chargement appliquée (cf. Équation 2.47). σ_{ox}^c est la contrainte critique induisant la fissuration de la couche d'oxyde.

La Figure 2.22 illustre la variation du pas de temps en cours de la simulation. Des pas de temps de l'ordre de 10s sont atteints avant la fissuration de la couche d'oxyde. Les fluctuations sont dues au fait que l'algorithme d'intégration temporelle d'Abaqus tente continuellement d'augmenter le pas de temps pour accélérer le calcul. Cependant l'augmentation du pas de temps n'est acceptée que si le critère sur l'incrément de l'énergie de déformation est respecté. Au moment de l'initiation de la fissuration instable de l'oxyde, le pas de temps est réduit presque à zéro ($dt = 10^{-9}\text{s}$) pour calculer la topologie de la fissure de manière précise. Après l'arrêt de propagation de la fissure, le pas de temps ré-augmente et se stabilise entre 0,1s et 0,5s. Cette gestion robuste du pas de temps permet de considérablement réduire la durée des simulations sans pour autant perdre en précision.

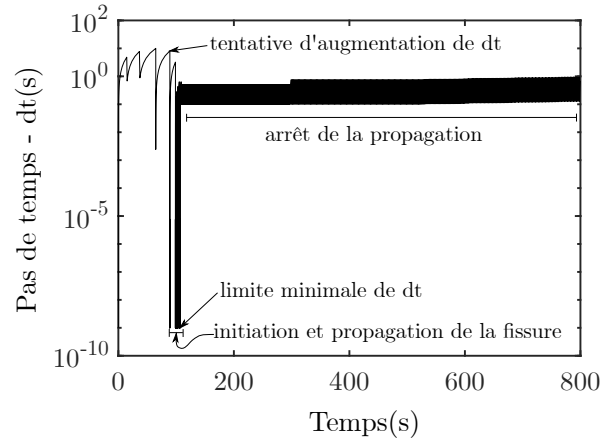


Figure 2.22 : Évolution du pas de temps en cours de simulation. Le pas de temps est contrôlé sur la base de l'incrément de l'énergie de déformation. Le paramètre de contrôle du pas de temps a été fixée à $\eta = 0,1$ (cf. Équation 2.44).

2.7.3 Étude du fluage couplé avec l'oxydation

Dans cette section, le modèle mis en place est testé sur des exemples où les phénomènes de fluage et d'oxydation sont mis en jeu simultanément faisant de ce fait intervenir toutes les physiques modélisées (diffusion d'oxygène, oxydation, fluage, fissuration). Les exemples présentés dans la suite portent toujours sur le fluage d'un matériau multi-couche. L'objectif est de mettre en évidence l'effet de l'environnement oxydant ainsi que l'effet de l'enrichissement du métal en oxygène.

2.7.3.1 Effet de l'environnement oxydant

Cette partie porte sur l'étude du fluage d'un matériau multi-couche sous environnement oxydant. Le problème correspondant est illustré en Figure 2.23. A l'instant initial, la concentration en oxygène dans le métal ($c_\infty = 0,13\%$ mass) et celle dans l'oxyde ($c_{ox} = 25,97\%$ mass) sont homogènes. Les échanges avec l'environnement oxydant se traduisent par une condition aux limites de type Dirichlet en face supérieure ($\bar{c} = 25,97\%$ mass). L'épaisseur initiale de la couche d'oxyde est fixée à $e_{ox}^0 = 10\mu\text{m}$ et l'épaisseur de l'interface à $\delta = 1\mu\text{m}$ (cf. Équation 2.46). Concernant l'aspect mécanique, les conditions aux limites sont les mêmes que précédemment (cf. Section 2.7.2.3). La surface inférieure est bloquée suivant l'axe y alors que celle de gauche est bloquée suivant l'axe x . Un effort constant (F) est appliqué sur la surface de droite à l'aide d'une condition aux limites de type MPC. La procédure de chargement est aussi identique au cas précédent (cf. Figure 4.5). Pour des raisons de simplicité, l'effet de la mécanique sur l'oxydation est négligé. Des exemples faisant intervenir un couplage entre oxydation et mécanique sont présentés en Annexe B. Pour tenir compte du caractère fragilisant de l'oxygène [54], la résistance à la fissuration est indexée sur la concentration en oxygène. La loi de mélange sur g_c (cf. Équation 2.26) est donc remplacée par :

$$g_c = g_{c,ox} + (g_{c,m} - g_{c,ox}) \exp(-qc). \quad (2.51)$$

La fonction donnée par l'Équation 2.51 est illustrée en Figure 2.24. L'augmentation de

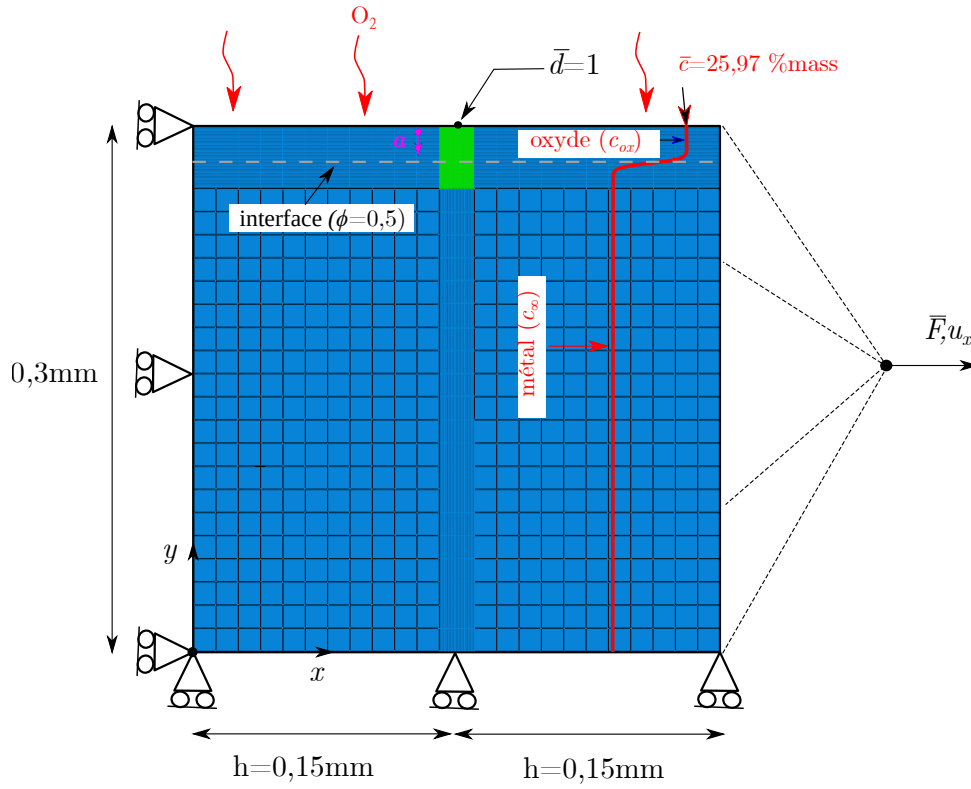


Figure 2.23 : Géométrie et conditions aux limites pour l'étude du fluage d'un matériau multi-couche sous environnement oxydant. Un défaut initial ($\bar{d} = 1$) est imposé au milieu de la face supérieure. La direction verticale (perpendiculaire à l'interface métal/oxyde) est choisie comme direction préférentielle de propagation de la fissure dans la couche d'oxyde (a). La zone anticipée de propagation de la fissure (en vert) est maillée finement avec des éléments carrés de côté $0,1\mu\text{m}$ tandis que le reste du domaine est maillé de manière plus grossière. Le profil initial de concentration en oxygène est illustré en rouge.

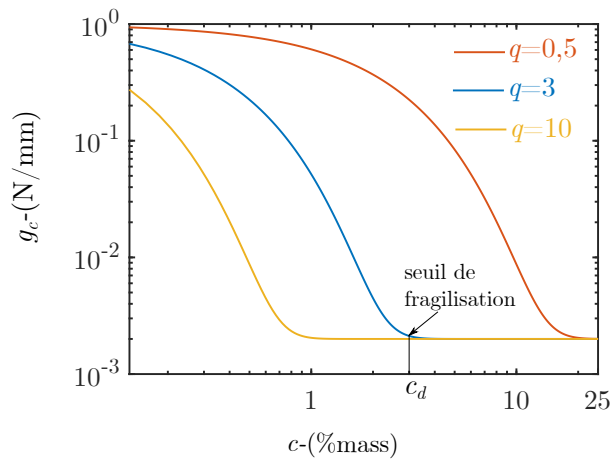


Figure 2.24 : Influence de la concentration en oxygène sur la résistance à la fissuration avec : $g_{c,m} = 500g_{c,ox} = 1 \text{ N/mm}$ (cf. Équation 2.51).

c induit la diminution de g_c . Dans la pratique $g_{c,m}$ est choisie suffisamment élevée pour

éviter la propagation de la fissure dans le métal de base. Un plateau est observé à partir d'une teneur en oxygène seuil (c_d). Un ajustement de la loi de diffusion de l'oxygène dans les régions fissurées ($d > 0,95$) est également nécessaire pour tenir compte de l'effet de l'environnement. Lorsque que la couche d'oxyde se fissure, le gaz environnant pénètre dans la fissure. Cette pénétration du gaz environnant, est prise en compte en augmentant le coefficient de diffusion de l'oxygène dans la région fissurée. L'augmentation du coefficient de diffusion de l'oxygène d'un facteur 1000 dans la région fissurée ($d > 0,95$) est largement suffisant. Un facteur trop élevée peut induire des problèmes de convergence numérique. Les paramètres utilisés sont résumés dans le Tableau 2.6. La fonction donnant g_c en fonction de c (cf. Équation 2.51) est choisie de manière à avoir un seuil de fragilisation de $c_d = 2$ %mass (cf. Figure 2.24). On retiendra donc $q = 3$.

La Figure 2.25(a) illustre l'évolution temporelle de la déformation macroscopique (ε_{xx}) en cours de fluage. L'évolution de la déformation du matériau métallique homogène correspondant est également représentée. La vitesse de déformation du matériau multi-couche normalisée par la vitesse dans le cas du matériau métallique homogène ($\dot{\varepsilon}_0$, cf. Figure 2.14) est également illustrée en Figure 2.25(b). L'évolution temporelle du champ de concentra-

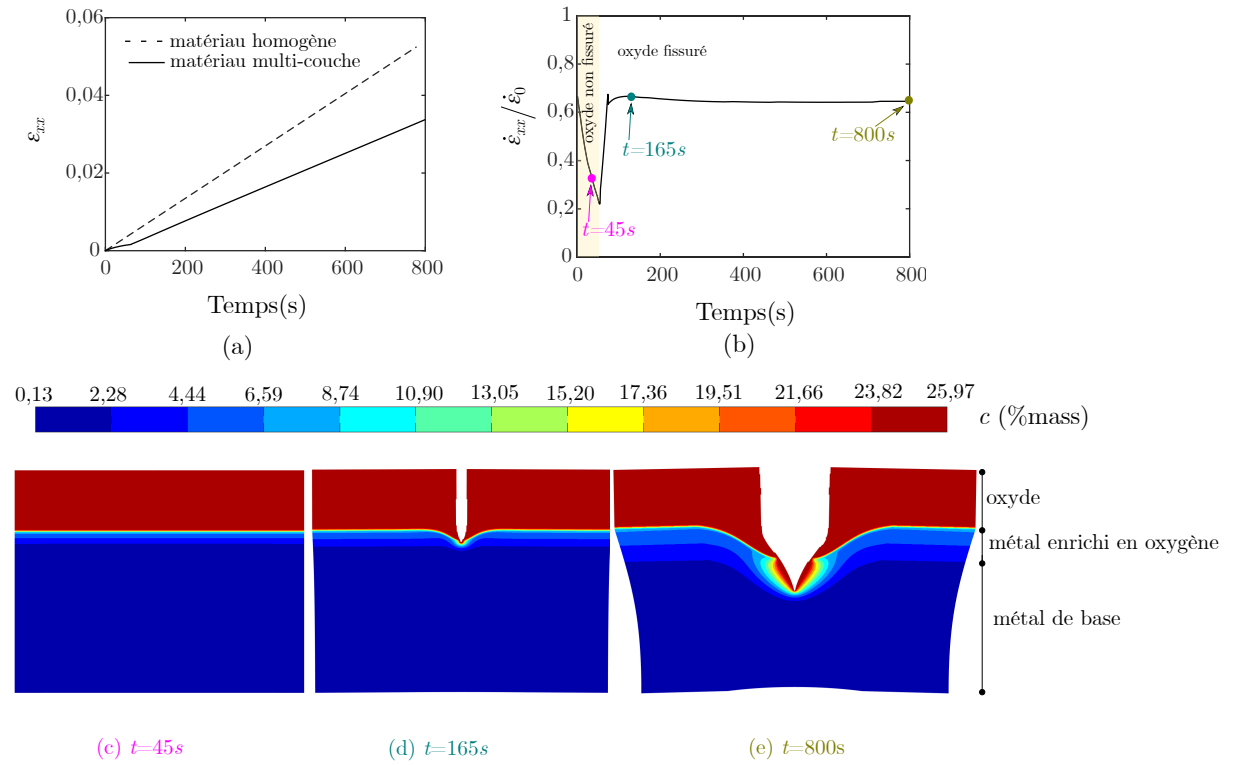


Figure 2.25 : Résultats de la simulation du fluage d'un matériau multi-couche sous environnement oxydant. Les évolutions temporelles de la déformation, de la vitesse de déformation et du champ de concentration en oxygène sont représentées. La vitesse de fluage du matériau multi-couche est normalisée par celle du matériau métallique homogène. Les éléments fissurés ($d > 0,95$) ont été supprimés. Seule la région proche de la fissure est représentée.

tion en oxygène est présentée en Figure 2.25(c)-(e) sans les éléments fissurés ($d > 0,95$) ce qui permet également de visualiser le mécanisme de ruine de la structure. Avant l'ini-

Propriétés	métal		oxyde
Élasticité			
Module d'Young : E (MPa)	53.10 ³		180.10 ³
Coefficient de Poisson : ν	0,35		0,3
Visco-plasticité			
	$\sigma_{vm} < 26\text{MPa}$	$\sigma_{vm} > 26\text{MPa}$	
Constante de Norton : A (MPa ^{-n} /s)	5,85.10 ⁻⁷	1,09.10 ⁻⁹	-
Exposant Norton : n	1,66	3,92	-
Fissuration			
Énergie de surface de la fissure : g_c (N/mm)	$g_{c,m} = 500g_{c,ox} = 1$, $q = 3$ (cf. Équation 2.51)		
longueur caractéristique de la fissure : l_c (mm)	-		10 ⁻³
Paramètre d'anisotropie : α_0	-		100
Chimie			
concentration d'équilibre : c (%mass)	7		25,97
Coefficient de diffusion : D (cm ² /s)	1,19.10 ⁻¹⁰		1,92.10 ⁻⁹
Courbure de la densité d'énergie k (J/mm ³)	1		
épaisseur de l'interface δ (µm)	1		
énergie de l'interface ω (J/mm ²)	0,1		
mobilité de l'interface M (mm ³ /J/s)	10 ⁶		
Algorithme de résolution			
Critère sur le pas de temps : η	0,1		

Tableau 2.6 : Paramètres utilisés pour l'étude du fluage sous environnement oxydant d'un matériau multi-couche constitué d'une couche d'oxyde (élastique endommageable) et d'une couche de métal (visco-plastique).

tiation de la fissuration ($t < 45s$), l'oxygène diffuse de la couche d'oxyde vers la couche de métal ce qui conduit à la formation d'une couche de métal enrichie en oxygène. Ensuite, la fissure s'initie et se propage jusque dans la couche de métal enrichie en oxygène (cf. Figure 2.25(b)). Après fissuration, le métal à nu se fragilise par la prise d'oxygène provenant de l'environnement oxydant ce qui permet une pénétration périodique de la fissure dans le métal de base (prise d'oxygène-propagation de la fissure-prise d'oxygène). La cinétique de propagation de la fissure est alors contrôlée par la cinétique de prise d'oxygène en pointe de fissure. Ce mécanisme de ruine qui conduit à une fissure en forme de "V" (cf. Figure 2.25(c)) s'apparente au phénomène de corrosion sous contrainte. Différents mécanismes sont proposés dans la littérature pour le phénomène de corrosion sous contrainte. On peut citer par exemple le modèle de rupture de film, le modèle de chemin actif pré-existant ou encore le modèle de fragilisation [225]. Le mécanisme de ruine reproduit par le modèle présenté dans ce travail correspond à un mécanisme de type fragilisation (prise d'oxygène-propagation de la fissure-prise d'oxygène).

Par rapport à l'exemple précédent, l'effet numérique indésirable lié à la distorsion excessive des éléments induisant une diminution de la vitesse de fluage après fissuration (cf. Figure 2.19(c)) n'est plus présent. Tel qu'illustré en Figure 2.25(b), la vitesse de fluage après fissuration est constante. La pénétration de la fissure dans le métal limite la distorsion des éléments en pointe de fissure à un niveau acceptable (cf. Figure 2.27).

2.7.3.2 Effet de l'enrichissement en oxygène du métal

On s'intéresse dans cette sous partie à l'effet de l'enrichissement en oxygène du métal (cf. Figure 2.25) sur le fluage d'un matériau multi-couche. La loi de fluage (cf. Équation 2.19) est ajustée de la manière suivante pour tenir compte de l'effet de l'oxygène sur le fluage [54, 135] :

$$\dot{\varepsilon}_{vm}^{vp} = A_0 \exp[-\beta(c(\% \text{mass}) - 0,13)] \sigma_{vm}^n, \quad (2.52)$$

β étant le paramètre traduisant l'effet renfort de l'oxygène vis-à-vis du fluage. La géométrie, les conditions aux limites, le maillage et la gestion du pas de temps sont identiques à ce qui a été fait plus haut (cf. Section 2.7.2.3). Les paramètres utilisés sont les mêmes que précédemment (cf. Tableau 2.6).

La Figure 2.26 illustre l'évolution temporelle de la vitesse de déformation pour $\beta = 0$ et $\beta = 2, 3$. La vitesse est normalisée par celle du matériau métallique homogène ($\dot{\varepsilon}_0$, cf. Figure 2.14). L'enrichissement en oxygène du métal apporte un léger renfort supplémentaire qui s'ajoute à celui apporté par la couche d'oxyde. On note tout de même que le renfort induit par la couche de métal enrichie en oxygène est négligeable devant celui de la couche d'oxyde. À titre illustratif la cartographie du champ de déformation visco-plastique à $t = 200s$ est illustrée en Figure 2.27 pour $\beta = 0$ et $\beta = 2, 3$. En pointe de fissure, on observe un effet renfort relativement important de la couche de métal enrichie en oxygène. La déformation maximale au voisinage de la pointe de fissure est trois fois plus élevée pour $\beta = 0$ ($\varepsilon_{\max}^{vp} = 0,15$) par rapport au cas où $\beta = 2, 3$ ($\varepsilon_{\max}^{vp} = 0,05$). Cependant, cet effet renfort local n'a pas d'influence significative sur la vitesse de déformation macroscopique (cf. Figure 2.26).

La couche de métal enrichie en oxygène a également un rôle protecteur vis-à-vis de la fissuration de l'oxyde. Comme le montre la Figure 2.26, la fissuration de l'oxyde intervient

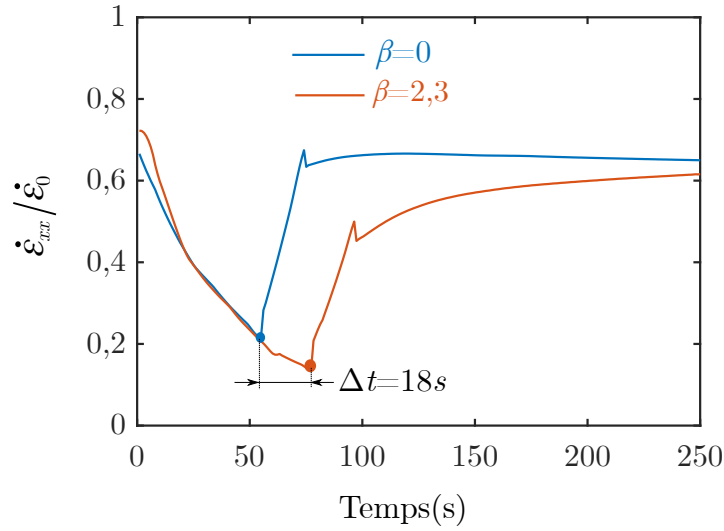


Figure 2.26 : Effet de la couche de métal enrichie en oxygène sur la vitesse de fluage d'un matériau multi-couche.

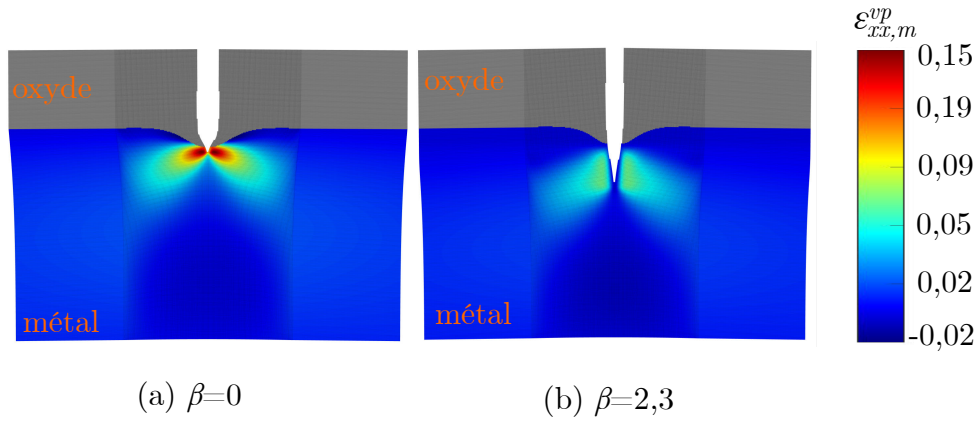


Figure 2.27 : Champ de déformation visco-plastique à $t = 200s$ avec (b) et sans (a) effet renfort de la couche de métal enrichie en oxygène. Les éléments fissurés ($d > 0,95$) ont été supprimés.

environ 18s plus tard pour $\beta = 2,3$ par rapport au cas où $\beta = 0$. Pour comprendre ce retard de la fissuration induit par la couche de métal enrichie en oxygène, le profil de contrainte avant fissuration de la couche d'oxyde est présenté en Figure 2.28.

La contrainte relaxée par le métal de base n'est pas entièrement transmise à la couche d'oxyde. Une partie est supportée par la couche de métal enrichie en oxygène raison pour laquelle la fissuration de l'oxyde intervient légèrement plus tard.

2.8 Synthèse

Le modèle numérique multi-physique développé pendant cette thèse pour étudier le comportement au fluage et l'oxydation d'un matériau multi-couche a été présenté dans ce chapitre. Le modèle permet de simuler simultanément les phénomènes de fluage, fissuration, diffusion d'oxygène et oxydation. Les discontinuités du problème (fissuration

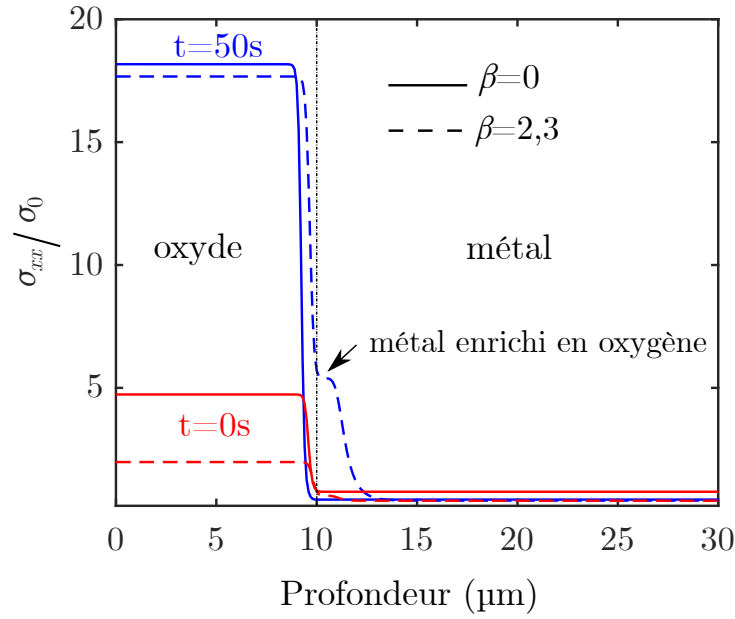


Figure 2.28 : Profil de contrainte en cours de fluage d'un matériau multi-couche avant fissuration de la couche d'oxyde avec ($\beta = 2,3$) et sans ($\beta = 0$) effet renfort de la couche de métal enrichie en oxygène.

et oxydation) sont traitées avec des méthodes de champ de phase. L'implémentation du modèle dans le code de calcul Abaqus a été validée à travers plusieurs exemples.

Il a été démontré que la régularisation du problème avec l'approche champ de phase n'altère pas la qualité de la solution que ce soit pour le problème chimique ou mécanique. En réduisant l'épaisseur de l'interface régularisée, la solution obtenue avec la méthode champ de phase converge vers la solution du problème discontinu de base.

Le modèle développé a été utilisé dans un premier temps pour simuler le fluage sous chargement macroscopique constant d'un matériau multi-couche constitué d'une couche d'oxyde élastique endommageable et d'une couche de métal viscoplastique. Cette simulation qui a été effectuée de manière découplée de l'aspect chimique a mis en évidence deux régimes de fluage à l'échelle de la structure :

- En début de fluage, l'oxyde joue un rôle renfort vis-à-vis du fluage. La vitesse de fluage diminue progressivement au cours du temps. Bien que le chargement macroscopique reste constant, les contraintes locales dans la couche d'oxyde et la couche de métal évoluent. La nette différence de comportement entre l'oxyde et le métal induit une relaxation des contraintes dans la couche de métal et une augmentation des contraintes dans l'oxyde. L'augmentation des contraintes dans la couche d'oxyde conduit à sa fissuration.
- Après fissuration de la couche d'oxyde un second régime de fluage est observé. La vitesse de fluage augmente puis tend à se stabiliser. La déformation se localise entre les fragments d'oxyde formés. La fissure s'ouvre avec une cinétique contrôlée par le fluage du métal mis à nu, ce qui conduit à une fissure en forme de "U". Un effet renfort résiduel est maintenu même après fissuration de l'oxyde. La vitesse de fluage du matériau multi-couche reste inférieure à celle du matériau métallique homogène correspondant.

Par la suite, des simulations ont été effectuées en tenant compte simultanément des phénomènes de fluage et d'oxydation. L'action conjuguée des phénomènes de fluage et d'oxydation conduit (pour des chargements mécaniques modérés pour lesquels la cinétique de fluage est du même ordre de grandeur que la cinétique d'oxydation) à un mode de ruine par pénétration périodique (prise d'oxygène-propagation de la fissure-prise d'oxygène) de la fissure dans le métal de base. Ce mode de ruine s'apparente au mécanisme de corrosion sous contrainte de type fragilisation et conduit à une fissure en forme de "V".

L'effet renfort de la couche de métal enrichie en oxygène sur le comportement au fluage du matériau multi-couche a aussi été étudié. Cet effet renfort de la couche de métal enrichie en oxygène s'ajoute à celui de la couche d'oxyde. On note tout de même que c'est l'oxyde qui contribue majoritairement à l'effet renfort global. La couche de métal enrichie en oxygène joue également un rôle renfort vis-à-vis de la fissuration de l'oxyde. Lorsque la couche de métal enrichie en oxygène est présente, l'oxyde ne supporte pas seul les contraintes relaxées par le métal de base. Une partie des contraintes relaxées par le métal de base sont reprises par la couche de métal enrichie en oxygène ce qui permet de retarder la fissuration de l'oxyde.

Les phénomènes de fluage et fissuration ne se manifestant pas aux mêmes échelles de temps, une gestion multi-échelle du pas de temps s'est avérée indispensable. Un contrôle adaptatif du pas de temps basé sur un critère lié à l'incrément d'énergie a été utilisé pour gérer les deux échelles de temps. Avant fissuration de l'oxyde de grands pas de temps sont utilisés (de l'ordre de 10s). Une fois l'initiation de la fissuration de l'oxyde détectée, le pas de temps est réduit à une valeur minimale très faible ($10^{-9}s$) pour calculer la topologie de la fissure. Enfin, le pas de temps ré-augmente automatiquement lorsque la propagation de la fissure est interrompue.

Les calculs étant effectués sur le maillage initial, il a été constaté une déformation très sévère des éléments en pointe de fissure (surtout pour le mode de ruine par ouverture de la fissure en forme de "U"). La distorsion excessive des éléments en pointe de fissure affecte la qualité de la solution. L'hypothèse de petite déformation utilisée dans la formulation, peut donc être remise en question. Notamment en pointe de fissure où des déformations importantes sont localisées. Un algorithme de remaillage permettrait de résoudre le problème de distorsion sévère des éléments en pointe de fissure. Une extension de la formulation en grande déformation permettrait également d'améliorer la qualité de la solution.

Plusieurs autres applications du modèle sont présentées en Annexe B. Les exemples présentés en annexe illustrent davantage la robustesse et les possibilités qu'offrent l'outil numérique multi-physique développé dans ce travail. Cet outil sera utilisé au Chapitre 3 pour simuler les essais d'oxydation et au Chapitre 4 pour simuler les essais de ballonnement.

Chapitre 3

Étude expérimentale et modélisation de l'oxydation haute température d'une gaine

Ce chapitre porte sur l'étude de la cinétique d'oxydation des gaines en Zy-4 vierges et pré-oxydées à 750 °C et 820 °C. Des essais d'oxydation ont été réalisés et simulés. Les différentes étapes depuis la préparation des éprouvettes, jusqu'aux analyses post-essais y sont détaillées. Les coefficients de diffusion d'oxygène dans les couches de Zy-4 et ZrO_2 pour les températures étudiées sont identifiés.

Sommaire

3.1	Introduction	75
3.2	Protocole des essais d'oxydation HT	75
3.2.1	Pré-oxydation à basse température	76
3.2.2	Préparation des éprouvettes pour l'oxydation HT	76
3.2.3	Dispositif d'essai	77
3.3	Matrice d'essais réalisés	78
3.4	Résultats des essais d'oxydation HT	78
3.4.1	Changement de couleur de l'oxyde	78
3.4.2	Prise d'hydrogène à haute température	81
3.4.3	Cinétique de croissance de la couche d'oxyde HT	81
3.4.4	Cinétique de croissance du $\alpha\text{Zr(O)}$	82

3.4.5	Profils d'oxygène dans la couche de Zy-4	83
3.5	Simulation des essais d'oxydation et identification	85
3.5.1	Mise en place de la méthode FEMU	85
3.5.2	Application aux essais d'oxydation HT	92
3.6	Synthèse et discussion des résultats	96

3.1 Introduction

L'oxydation HT du Zy-4 a fait l'objet de beaucoup d'études. Un volume conséquent de données concernant les cinétiques d'oxydation HT du Zy-4 pour des températures comprises entre 900°C et 1200°C sont disponibles dans la littérature [12, 87–89]. Dans cette étude, on s'intéresse aux cinétiques d'oxydation à des températures moins élevées, de l'ordre de 800°C. À cette température, la littérature est plus lacunaire [11]. Des essais d'oxydation HT sont donc réalisés dans ce travail pour déterminer les cinétiques d'oxydation autour de 800°C. La simulation de ces essais d'oxydation à partir du modèle numérique présentée au chapitre précédent permettra d'identifier le coefficient de diffusion de l'oxygène dans la couche de Zy-4 et la couche ZrO_2 aux alentours de 800°C. Ces essais d'oxydation sans chargement mécanique externe sont importants pour l'interprétation des essais de ballonnement (cf. Chapitre 4) pour lesquelles l'oxydation est couplée à un chargement mécanique externe.

3.2 Protocole des essais d'oxydation HT

Le protocole adopté pour les essais d'oxydation HT est illustré en Figure 3.1.

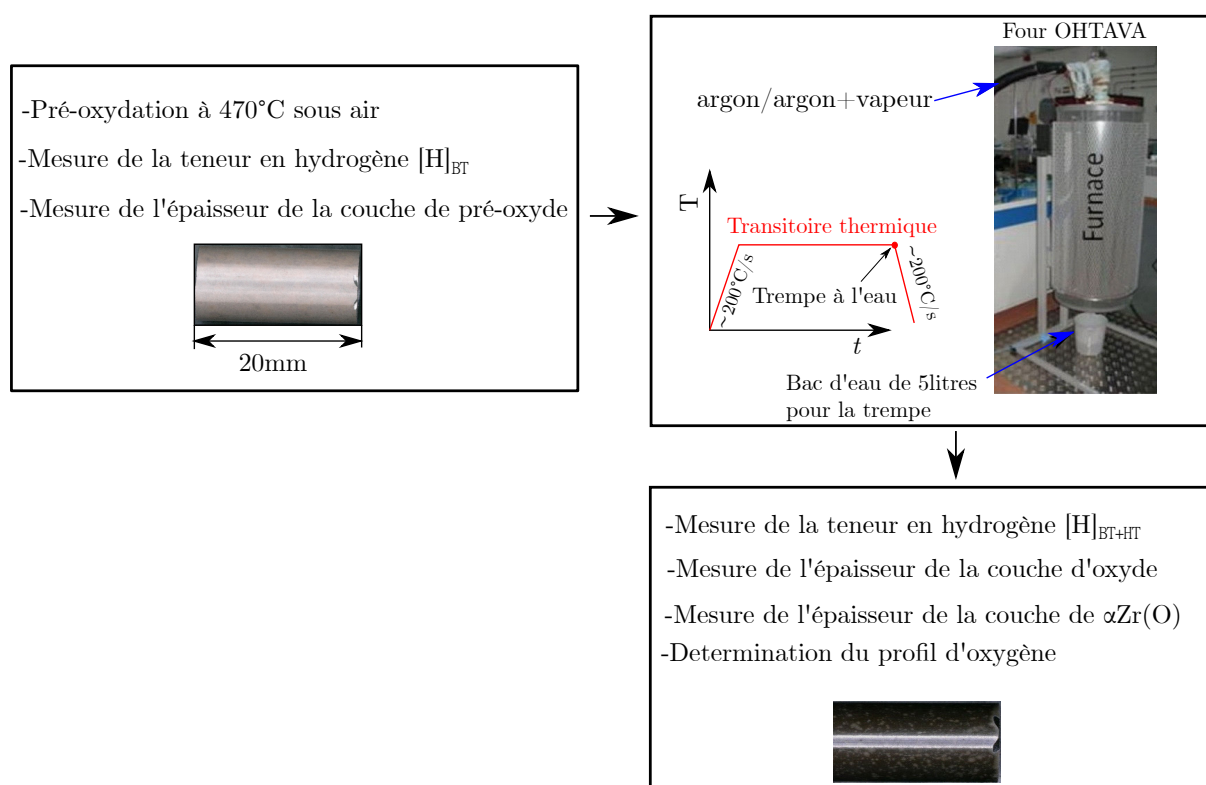


Figure 3.1 : Protocole des essais d'oxydation. Les éprouvettes sont pré-oxydées à 470°C sous air avant d'être introduit dans le four OHTAVA pour l'oxydation HT dans des conditions (température, atmosphère de l'essai) bien contrôlées.

Les principales étapes sont les suivantes :

- Les éprouvettes sont tout d'abord pré-oxydées à Basse Température (BT) pour simuler la couche de corrosion formée lors du fonctionnement normal du réacteur.
- L'épaisseur de la couche de pré-oxyde ($e_{\text{ZrO}_2, \text{BT}}$) ainsi que la teneur en hydrogène ($[\text{H}]_{\text{BT}}$) sont mesurées à l'issue de la phase de pré-oxydation. Par analogie à la phase α du Zy-4 stabilisée lors de l'oxydation à des températures supérieures à 900°C , la couche de métal enrichie en oxygène est désignée par $\alpha\text{Zr}(\text{O})$.
- L'éprouvette est ensuite oxydée à haute température pendant une durée donnée dans des conditions (température, environnement de l'essai) bien contrôlées.
- L'épaisseur de la couche d'oxyde ($e_{\text{ZrO}_2, \text{BT}+\text{HT}}$), l'épaisseur de la couche de Zy-4 enrichie en oxygène ($e_{\alpha\text{Zr}(\text{O})}$), le profil d'oxygène dans la couche de Zy-4 et la teneur en hydrogène ($[\text{H}]_{\text{BT}+\text{HT}}$) sont mesurés après l'oxydation HT.

3.2.1 Pré-oxydation à basse température

Les corrosions les plus représentatives sont celles en autoclave mais elles nécessitent des durées de l'ordre de cinq ans pour obtenir un oxyde d'épaisseur comparable à celle formée en irradiation. La durée des programmes expérimentaux, ne permet que rarement l'utilisation de tels matériaux corrodés. Les conditions de pré-oxydation proposées par Busser [5] qui offrent un bon compromis entre représentativité de l'oxyde et durée de pré-oxydation sont utilisées dans ce travail. Des tronçons de gaines vierges en Zy-4 "détendu" de 90mm de long sont pré-oxydés sous air à 470°C . La pré-oxydation BT dure environ 20 jours et conduit à des couches de $\text{ZrO}_{2, \text{BT}}$ d'épaisseur $10\mu\text{m}$ environ sur les faces interne et externe. Dans ces conditions de pré-oxydation, la prise d'azote est négligeable. Aucune formation de nitrures n'a été observée sur les coupes métallographiques réalisées sur l'ensemble des éprouvettes à l'issue de la phase de pré-oxydation.

3.2.2 Préparation des éprouvettes pour l'oxydation HT

Après l'étape de pré-oxydation BT, les éprouvettes de 90mm de long sont découpées en plusieurs tronçons de 20mm. La Figure 3.2 ci-dessous illustre le processus de découpe des éprouvettes.

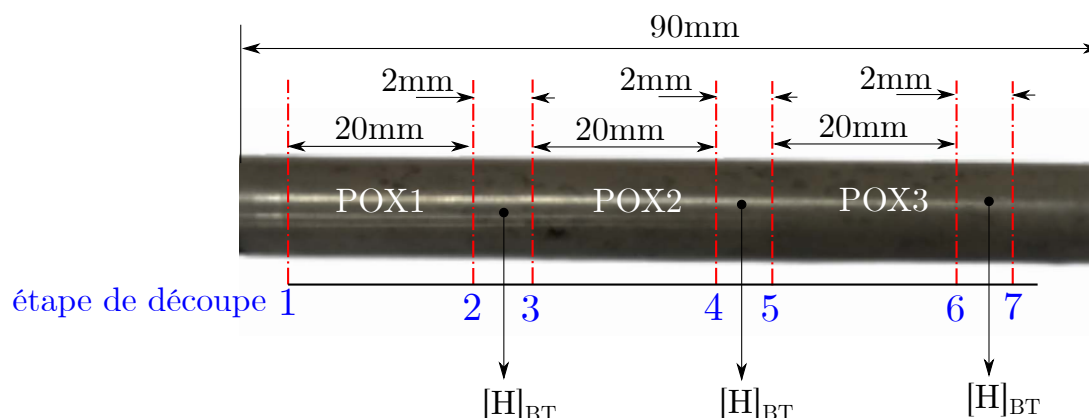


Figure 3.2 : Protocole de découpe des éprouvettes pour l'oxydation HT. Les tronçons de 2mm prélevés entre les éprouvettes sont utilisés pour la mesure de la teneur en hydrogène.

La découpe se fait de manière systématique avec une scie à fil diamanté. Une mauvaise découpe des éprouvettes peut conduire à une oxydation accélérée sur les bords à haute température. Des petits tronçons de 2mm de long sont également prélevés avant et après chaque essai afin d'évaluer la prise d'hydrogène. La mesure de la teneur en hydrogène ([H]) est réalisée à l'aide d'un analyseur de gaz LECO modèle 836. Le principe de mesure consiste à faire fondre de petits tronçons de gaine (sous gaz inerte) et analyser les gaz de fusion à l'aide de cellules infrarouges non dispersives pour en extraire la teneur en hydrogène.

Avant chaque essai, des métallographies optiques sont réalisées afin d'évaluer l'épaisseur de la couche de $\text{ZrO}_{2,\text{BT}}$. Elles sont effectuées avec un microscope optique Keyence VHX 5000 ayant une résolution d'environ $1\mu\text{m}$ à $2\mu\text{m}$. La Figure 3.3 illustre la morphologie de la couche de $\text{ZrO}_{2,\text{BT}}$ externe d'épaisseur $10\mu\text{m}$ environ formée à l'issue de la phase de pré-oxydation. La couche de $\text{ZrO}_{2,\text{BT}}$ interne présente une morphologie comparable. On n'observe pas de couche de $\alpha\text{Zr}(\text{O})$ à l'issue de la phase de pré-oxydation.

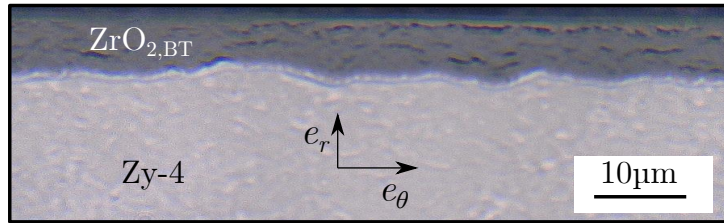


Figure 3.3 : Métallographie optique d'un pré-oxyde de $10\mu\text{m}$ d'épaisseur après pré-oxydation sous air à 470°C .

Une bonne estimation de l'épaisseur de la couche de $\text{ZrO}_{2,\text{BT}}$ (avec une incertitude de l'ordre de $1\mu\text{m}$ à $2\mu\text{m}$) peut aussi être obtenue au permascopie [21]. Le permascopie utilisé est une jauge magnétique Wolpert WCG-310. Il s'agit d'un dispositif permettant de mesurer l'épaisseur de revêtements non métalliques sur un substrat métallique. C'est un moyen de mesure très efficace compte tenu de sa rapidité de mise en oeuvre, de sa précision et de son caractère non destructif. Le permascopie a été utilisé en complément des coupes métallographiques afin d'obtenir des mesures (épaisseur de la couche de $\text{ZrO}_{2,\text{BT}}$ et épaisseur cumulée des couches de $\text{ZrO}_{2,\text{BT}} + \text{HT} + \alpha\text{Zr}(\text{O})$) aussi fiables que possibles.

3.2.3 Dispositif d'essai

Les essais d'oxydation sont réalisés dans le four vertical OHTAVA (cf. Figure 3.1) situé au Laboratoire d'Expérimentation en Mécanique et Matériau (LE2M) de l'IRSN au Centre de Cadarache. Afin de s'assurer d'avoir une température homogène sur l'éprouvette, une cartographie thermique du four est réalisée au début de chaque campagne d'essais. Cette cartographie permet d'identifier une zone thermiquement homogène où est insérée l'éprouvette par le bas du four pour son oxydation. Les vitesses de chauffe et de refroidissement sont de l'ordre de $200^\circ\text{C}/\text{s}$. A la fin de l'essai, l'éprouvette est refroidie par une trempe à l'eau. Deux types d'environnements sont étudiés. Certains essais sont réalisés dans un environnement inerte (avec une circulation d'argon d'un débit de $2\text{nL}/\text{minute}$) et d'autres dans un environnement oxydant (argon + vapeur avec des débits respectifs de $2\text{nL}/\text{min}$ et $100\text{g}/\text{h}$). Le débit de vapeur est choisi de manière à éviter le phénomène de "starvation" [226].

3.3 Matrice d'essais réalisés

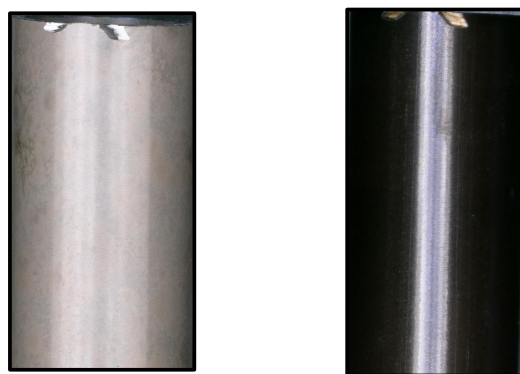
La matrice des essais réalisés est donnée dans le Tableau 3.1. Dix neuf essais ont été réalisés, six à 750°C et treize à 820°C. Les essais sont réalisés sur des éprouvettes vierges et pré-oxydées. Pour les éprouvettes pré-oxydées, l'épaisseur de la couche de ZrO_2 visée est de 10µm. Un essai a été réalisé sur une éprouvette peinte (A8) à l'aide d'une peinture à tenue haute température Ulfalux®. Cet essai sur éprouvette peinte a été réalisé afin de vérifier que la peinture utilisée pour les essais de ballonnement (cf. Chapitre 4) n'a pas d'effet intrusif significatif sur l'oxydation. Les températures (750°C et 820°C) ont été choisies de manière à encadrer les températures des essais de ballonnement. Quatre durées d'oxydation HT ont été étudiées : 400, 800, 1600 et 3200s. Ces durées ont été choisies suffisamment grandes pour avoir une couche de $\alpha\text{Zr(O)}$ d'épaisseur non négligeable et ainsi détectable par les moyens de mesures mais pas trop grandes non plus pour être comparables aux durées des essais de ballonnement.

3.4 Résultats des essais d'oxydation HT

Les principales données collectées avant et après les essais d'oxydation sont présentées dans le Tableau 3.2. Les valeurs d'épaisseurs de couches ($e_{\text{ZrO}_2, \text{BT}}$, $e_{\text{ZrO}_2, \text{BT}+\text{HT}}$, $e_{\alpha\text{Zr(O)}}$) mentionnées ont été mesurées en surface externe des éprouvettes. Seize mesures azimutales sont utilisées pour déterminer l'écart type sur l'épaisseur des différentes couches et trois mesures pour la teneur en hydrogène. Ces données sont exploitées dans la suite pour analyser le comportement à l'oxydation de la gaine.

3.4.1 Changement de couleur de l'oxyde

La Figure 3.4 montre l'aspect visuel au microscope optique de l'échantillon POX11 avant et après l'oxydation HT à 820°C sous argon pendant 3200s.



(a) avant oxydation HT (b) après oxydation HT

Figure 3.4 : Changement de couleur de l'oxyde après l'oxydation HT à 820°C sous argon pendant 3200s (Échantillon POX11).

L'oxyde initialement beige devient noir après l'oxydation HT. Ce changement de couleur semble être lié à la stoechiométrie (en oxygène) de la couche de ZrO_2 . En effet, durant

ID. Ech	Type d'éprouvette	T (°C)	t (s)	Environnement
A1	vierge	750	800	argon+vapeur
A2		750	1600	
A3		750	3200	
A4		820	400	
A5		820	800	
A6		820	1600	
A7		820	3200	
A8 (peint)		820	3200	
POX1	pré-oxydé	750	800	argon+vapeur
POX2		750	1600	
POX3		750	3200	
POX4		820	400	
POX5		820	800	
POX6		820	1600	
POX7		820	3200	
POX8	pré-oxydé	820	400	argon
POX9		820	800	
POX10		820	1600	
POX11		820	3200	

Tableau 3.1 : Matrice d'essai d'oxydation HT. T et t sont respectivement la température et la durée de l'oxydation HT. L'épaisseur de la couche de pré-oxyde visée pour l'ensemble des essais sur les éprouvettes pré-oxydées est de 10 μ m.

ID. Ech	$e_{\text{ZrO}_{2,\text{BT}}}$ (μm)	$[\text{H}]_{\text{BT}}$ (wppm)	$e_{\text{ZrO}_{2,\text{BT}+\text{HT}}}$ (μm)	$e_{\alpha\text{Zr}(\text{O})}$ (μm)	$[\text{H}]_{\text{BT}+\text{HT}}$ (wppm)
A1	vierge		4,3 $\pm$ 0,4	4,0 $\pm$ 0,5	16 $\pm$ 6,5
A2			4,9 $\pm$ 0,5	5,3 $\pm$ 1,8	-
A3			5,9 $\pm$ 1,0	6,4 $\pm$ 1,1	25 $\pm$ 2,5
A4			3,7 $\pm$ 0,7	4,7 $\pm$ 1,0	18 $\pm$ 1,5
A5			5,2 $\pm$ 0,8	5,8 $\pm$ 1,1	17 $\pm$ 2,5
A6			8,3 $\pm$ 0,5	8,4 $\pm$ 0,5	20 $\pm$ 3,5
A7			9,1 $\pm$ 0,7	10,2 $\pm$ 0,8	23 $\pm$ 1,2
A8 (peint)			10,9 $\pm$ 2,3	9,5 $\pm$ 0,9	29 $\pm$ 2,1
POX1	8,7 $\pm$ 1,3	67 $\pm$ 1,7	7,2 $\pm$ 1,1	4,1 $\pm$ 0,6	77 $\pm$ 2,0
POX2	8,8 $\pm$ 0,8	70 $\pm$ 1,2	7,3 $\pm$ 1,0	5,4 $\pm$ 1,3	73 $\pm$ 1,2
POX3	-	69 $\pm$ 0,8	8,4 $\pm$ 1,4	7,8 $\pm$ 1,7	126 $\pm$ 2,6
POX4	9,5 $\pm$ 0,6	70 $\pm$ 2,6	8,4 $\pm$ 0,9	6,6 $\pm$ 1,1	73 $\pm$ 1,2
POX5	10,7 $\pm$ 0,3	77 $\pm$ 2,6	7,8 $\pm$ 0,9	7,0 $\pm$ 0,6	86 $\pm$ 2,5
POX6	10,1 $\pm$ 0,4	63 $\pm$ 2,4	8,6 $\pm$ 0,9	9,1 $\pm$ 1,0	-
POX7	10,2 $\pm$ 0,5	66 $\pm$ 0,1	9,0 $\pm$ 1,2	12,8 $\pm$ 1,0	181 $\pm$ 11,7
POX8	9,9 $\pm$ 0,7	62 $\pm$ 1,5	7,6 $\pm$ 1,0	5,2 $\pm$ 0,8	60 $\pm$ 2,8
POX9	10,0 $\pm$ 1,0	62 $\pm$ 0,5	8,0 $\pm$ 1,4	7,0 $\pm$ 0,5	61 $\pm$ 3,5
POX10	10,2 $\pm$ 0,8	63 $\pm$ 1,2	7,9 $\pm$ 0,7	10,9 $\pm$ 0,9	57 $\pm$ 1,2
POX11	10,0 $\pm$ 0,5	63 $\pm$ 1,5	7,1 $\pm$ 0,9	12,4 $\pm$ 0,5	67 $\pm$ 4,6

Tableau 3.2 : Principales données collectées pour analyser les essais d'oxydation. Seize mesures azimutales sont utilisées pour déterminer l'écart type des dispersions d'épaisseur des différentes couches ($e_{\text{ZrO}_{2,\text{BT}}}$, $e_{\text{ZrO}_{2,\text{BT}+\text{HT}}}$, $e_{\alpha\text{Zr}(\text{O})}$) et trois mesures pour la teneur en hydrogène ($[\text{H}]_{\text{BT}}$, $[\text{H}]_{\text{BT}+\text{HT}}$). Les épaisseurs des couches sont mesurées en surface externe. Les données indiquées sont celles obtenues en métallographie, les données issues des mesures au permascopie ont juste été utilisées à des fins de vérifications. Pour les essais sur vierge, $[\text{H}]_{\text{BT}} = 11\text{wppm}$ (teneur en hydrogène du matériau à l'état de réception).

l'oxydation HT, une partie de l'oxygène initialement contenu dans la couche de $\text{ZrO}_{2,\text{BT}}$ diffuse vers le métal ce qui conduit à une couche d'oxyde sous-stœchiométrique (ZrO_{2-x}) de couleur noir. Ce changement de couleur se produit très rapidement et a été observé sur tous les essais effectués sur des éprouvettes pré-oxydées.

3.4.2 Prise d'hydrogène à haute température

Des mesures systématiques de la teneur en hydrogène avant et après l'oxydation HT (cf. Tableau 3.2) ont été réalisées. Elles permettent d'en déduire la prise d'hydrogène lors du transitoire à haute température. La prise d'hydrogène HT maximale pour l'ensemble des essais réalisés est de 115wppm (POX7). Dans ces proportions aucun effet significatif de la prise d'hydrogène sur la cinétique d'oxydation n'est attendu [227].

3.4.3 Cinétique de croissance de la couche d'oxyde HT

Comme le montre le Tableau 3.2, les essais réalisés sur les échantillons pré-oxydés n'ont pas révélé de variation significative de l'épaisseur de la couche de ZrO_2 . Le pré-oxyde a un rôle protecteur, limitant l'oxydation HT pour les températures et durées étudiées. On observe tout de même une tendance à la baisse de l'épaisseur d'oxyde après l'oxydation HT. Cette dissolution partielle (très légère) bien connue dans la littérature [89, 228] est une conséquence de la diffusion d'oxygène de la couche de ZrO_2 vers la couche de Zy-4. La formation d'une couche de $\text{ZrO}_{2,\text{HT}}$ d'épaisseur significative a été observée uniquement sur les éprouvettes initialement vierges. L'évolution temporelle de l'épaisseur de la couche $\text{ZrO}_{2,\text{HT}}$ formée sur des éprouvettes initialement vierges est représentée en Figure 3.5 :

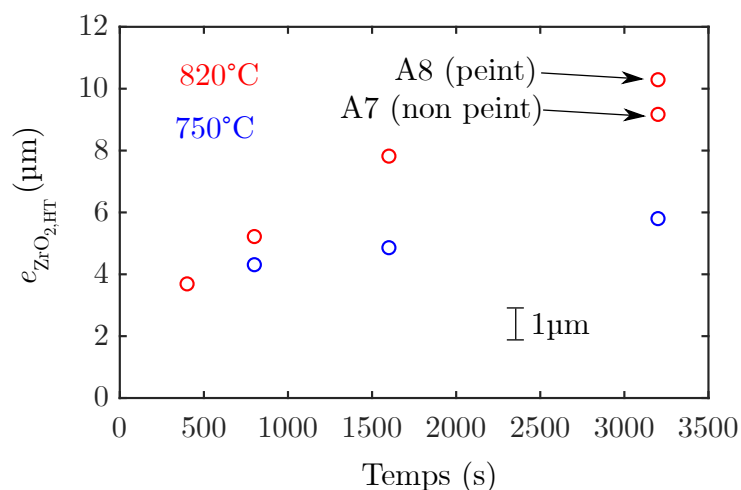


Figure 3.5 : Évolution temporelle de l'épaisseur de la couche de $\text{ZrO}_{2,\text{HT}}$ externe formée durant l'oxydation sur vierge à 750°C et 820°C sous mélange argon+vapeur.

Avec le peu de données disponibles, il est difficile de conclure sur le régime cinétique. Toutefois, d'après la littérature [11] on s'attend à une cinétique cubique à ces températures (750°C, 820°C). On constate par ailleurs que la peinture n'a pas d'influence significative sur la cinétique de croissance de la couche de $\text{ZrO}_{2,\text{HT}}$. La différence d'épaisseur de la couche de $\text{ZrO}_{2,\text{HT}}$ entre l'essai sur l'éprouvette peinte (A8) et non peinte (A7) est proche

de l'incertitude de mesure ($\sim 1\mu\text{m}$). Les coupes métallographiques des éprouvettes A7 (non peinte) et A8 (peinte) après l'oxydation HT sont présentées en Figure 3.6. La couche de peinture apparaît distinctement sur les coupes métallographiques (cf. Figure 3.6b). Contrairement au pré-oxyde qui est poreux (cf. Figure 3.3), la couche de $\text{ZrO}_{2,\text{HT}}$ est dense.

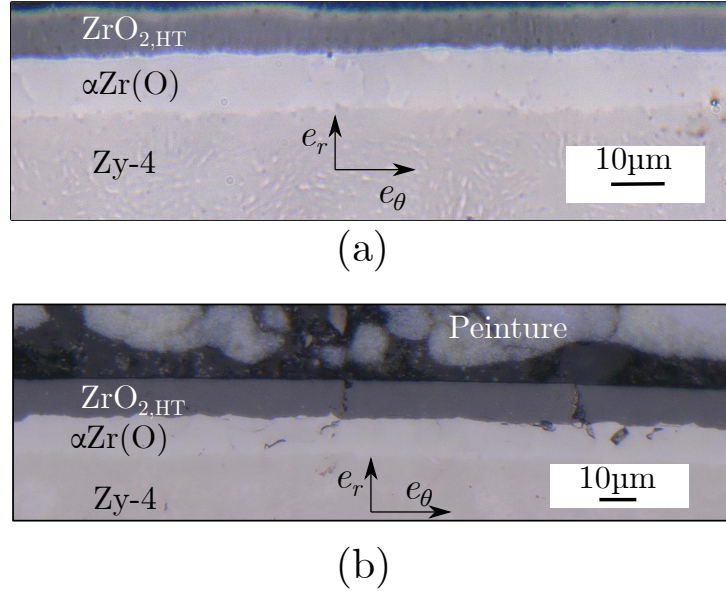


Figure 3.6 : (a) Métallographie optique de l'échantillon A7 (a) et A8 (b) après oxydation HT sous argon+vapeur à 820°C pendant 3200s.

3.4.4 Cinétique de croissance du $\alpha\text{Zr(O)}$

Pendant l'oxydation HT, la diffusion d'oxygène dans le Zy-4 conduit à la formation d'une couche enrichie en oxygène ($\alpha\text{Zr(O)}$). Comme illustré en Figure 3.6, cette couche apparaît plus claire que le reste du métal sur les métallographies optiques. La Figure 3.7 montre l'évolution temporelle de l'épaisseur de cette couche de $\alpha\text{Zr(O)}$ mesurée à l'aide des métallographies optiques. Ces résultats sont comparés à l'extrapolation de la loi proposée par Desquines et al [21] donnée par :

$$e_{\alpha\text{Zr(O)}}(\mu\text{m}) = \sqrt{378 \cdot 10^5 \exp\left(-\frac{21557}{T(\text{K})}\right) t(\text{s})} \quad (3.1)$$

où $T(\text{K})$, $t(\text{s})$ sont respectivement la température et la durée de l'oxydation HT. Cette corrélation a été établie à partir d'essais réalisés à des températures plus élevées ($900^\circ\text{C} < T < 1200^\circ\text{C}$) que celles étudiées dans ce travail ($750, 820^\circ\text{C}$). Toutefois, les résultats obtenus dans cette étude sont cohérents avec l'extrapolation de la loi de Desquines et al [21] établie à plus haute température. La Figure 3.7 permet de faire les constats suivants :

- L'influence du pré-oxyde sur l'épaisseur de la couche de $\alpha\text{Zr(O)}$ formée pendant l'oxydation HT semble négligeable. L'épaisseur de la couche de $\alpha\text{Zr(O)}$ sur les éprouvettes vierges et sur les éprouvettes pré-oxydés sont comparables, même si l'épaisseur

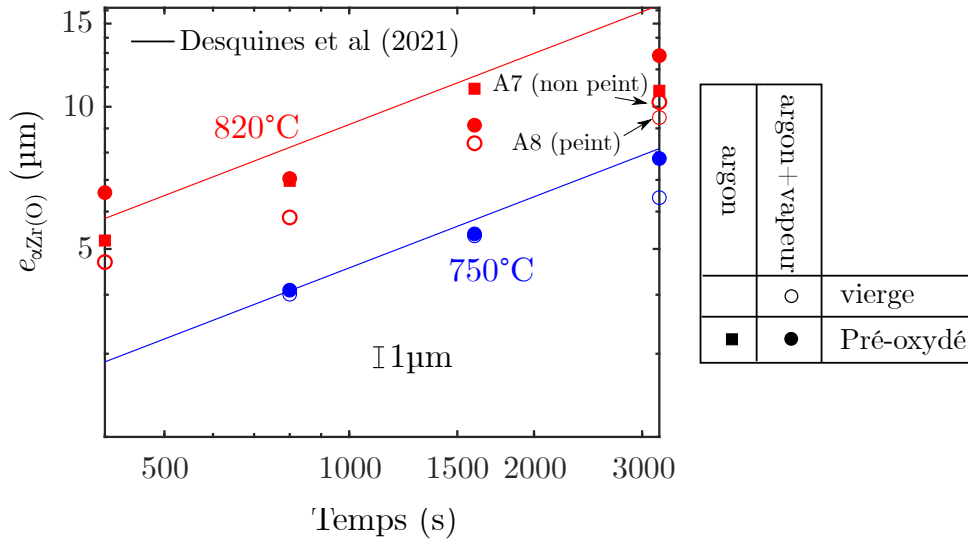


Figure 3.7 : Évolution temporelle de l'épaisseur de la couche de $\alpha\text{Zr(O)}$, les résultats obtenus dans ce travail (symboles carrés et circulaires) sont comparés avec l'extrapolation de la corrélation proposée par Desquines et al [21] (cf. Tableau 1.4).

de la couche de $\alpha\text{Zr(O)}$ sur les éprouvettes vierges tend toujours à être inférieure à celle sur les éprouvettes pré-oxydées.

- Pour les essais sur les éprouvettes pré-oxydées, l'environnement n'a presque pas d'influence sur l'épaisseur de la couche de $\alpha\text{Zr(O)}$. En effet, les essais à 820°C sous argon+vapeur conduisent à la même épaisseur de la couche de $\alpha\text{Zr(O)}$ que les essais sous argon seul pour la même durée. La couche de $\text{ZrO}_{2,\text{BT}}$ constitue un réservoir d'oxygène suffisamment important pour le métal pour les durées investiguées.
- La peinture n'a également aucune influence sur la cinétique de croissance du $\alpha\text{Zr(O)}$.

Aux températures étudiées (750°C, 820°C), la teneur en oxygène à l'interface fictive $\alpha\text{Zr(O)}/\text{Zy-4}$ (cf. Figure 3.6) qui permet de distinguer la couche de $\alpha\text{Zr(O)}$ sur une métallographie optique n'est pas connue. L'expression interface fictive est utilisée car aux températures étudiées, il n'y a pas de saut de teneur en oxygène entre la couche de $\alpha\text{Zr(O)}$ et la couche de Zy-4. L'interface visible sur les coupes métallographiques est un effet de seuil associé à ce moyen de mesure. Ce seuil définit la teneur en oxygène à partir de laquelle le métal enrichi en oxygène devient observable par contraste en métallographie optique. Pour rendre exploitables les mesures d'épaisseurs de la couche $\alpha\text{Zr(O)}$ sur les coupes métallographiques, il est donc indispensable de connaître la teneur en oxygène à l'interface fictive $\alpha\text{Zr(O)}/\text{Zy-4}$. Pour cela, il est nécessaire de mesurer directement le profil de teneur en oxygène.

3.4.5 Profils d'oxygène dans la couche de Zy-4

Le profil d'oxygène dans la couche de Zy-4 pour les essais réalisés sous environnement argon+vapeur a également été mesuré. Les profils de teneur en oxygène sont mesurés à l'aide d'analyses à la microsonde de Castaing CAMECA-SX100. Ce moyen de mesure permet de déterminer directement les profils de teneur en oxygène avec une résolution

spatiale inférieure au micromètre. À noter que la contamination de surface en oxygène lors de la préparation des échantillons est corrigée. Quatre profils azimuthaux sont mesurés puis moyennés. L'écart moyen entre les différentes mesures a été estimé à 0,4%mass. Cette valeur est prise comme incertitude de mesure dans la suite. La Figure 3.8 illustre les profils d'oxygène moyennés dans la couche de Zy-4 pour les températures et durées d'oxydation étudiées.

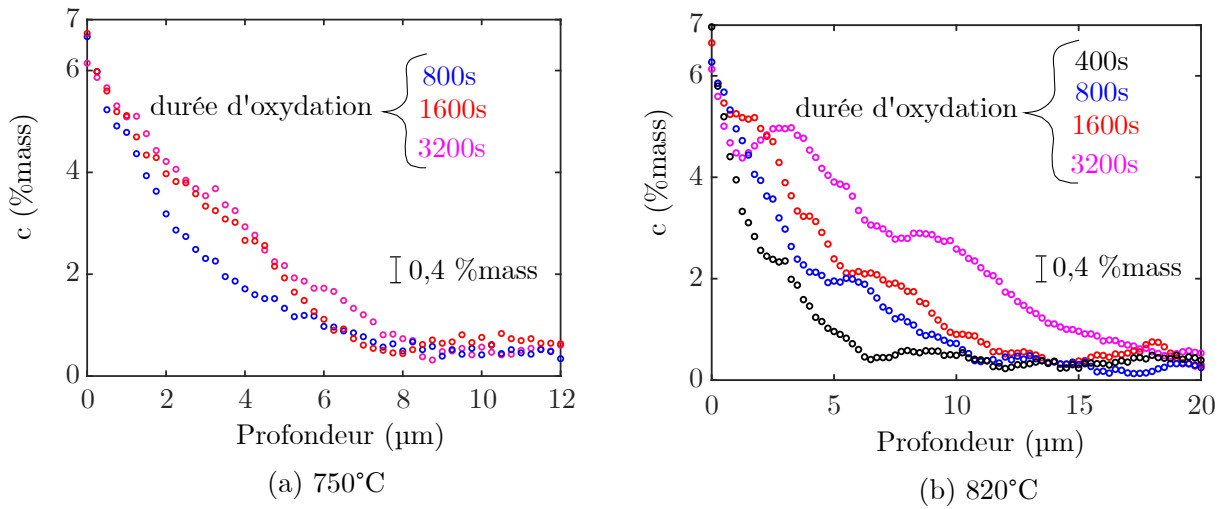


Figure 3.8 : Profil de teneur en oxygène dans la couche $\alpha\text{Zr}(\text{O})$ pour différentes durées d'oxydation HT sous argon+vapeur à 750°C (a) et 820°C (b). La profondeur est mesurée à partir de l'interface Zy-4/ ZrO_2 .

Tel qu'illustré en Figure 3.9, en comparant les profils de teneur en oxygène obtenus avec les analyses à la microsonde aux épaisseurs de la couche de $\alpha\text{Zr}^{\text{me}}(\text{O})$ mesurés sur les métallographies optiques, on peut déduire la teneur en oxygène à l'interface fictive $\alpha\text{Zr}^{\text{me}}(\text{O})/\text{Zy-4}$. Supposons que c_s représente la teneur en oxygène permettant de définir l'interface fictive $\alpha\text{Zr}^{\text{p}}(\text{O})/\text{Zy-4}$ à partir d'un profil de teneur en oxygène obtenu à la microsonde. L'épaisseur de la couche de $\alpha\text{Zr}^{\text{p}}(\text{O})$ peut alors être déterminée à partir du profil de teneur en oxygène en déterminant la distance entre l'interface $\text{ZrO}_2/\alpha\text{Zr}^{\text{p}}(\text{O})$ et l'interface fictive $\alpha\text{Zr}^{\text{p}}(\text{O})/\text{Zy-4}$ localisé à c_s :

$$e_{\alpha\text{Zr}^{\text{p}}(\text{O})}(c_s) = P_{\text{Zy-4}/\alpha\text{Zr}^{\text{p}}(\text{O})}(c_s) - P_{\alpha\text{Zr}^{\text{p}}(\text{O})/\text{ZrO}_2} \quad (3.2)$$

- $P_{\text{Zy-4}/\alpha\text{Zr}^{\text{p}}(\text{O})}$: est la position de l'interface Zy-4/ $\alpha\text{Zr}^{\text{p}}(\text{O})$ défini par $c = c_s$;
- $P_{\alpha\text{Zr}^{\text{p}}(\text{O})/\text{ZrO}_2}$: est la position de l'interface $\alpha\text{Zr}^{\text{p}}(\text{O})/\text{ZrO}_2$ défini par $c = 7\%\text{mass}$;
- $e_{\alpha\text{Zr}^{\text{p}}(\text{O})}$: épaisseur de la couche de $\alpha\text{Zr}^{\text{p}}(\text{O})$ déterminée à l'aide du profil d'oxygène obtenu à la microsonde.

La différence entre la métallographie et la microsonde est alors donnée par :

$$er(c_s) = e_{\alpha\text{Zr}^{\text{p}}(\text{O})}(c_s) - e_{\alpha\text{Zr}^{\text{me}}(\text{O})} \quad (3.3)$$

La minimisation par les moindres carrés de la fonctionnelle $er(c_s)$ sur la totalité des essais (sous argon+vapeur) conduit à une teneur de $c_s = 1,2\%\text{mass}$. Cette valeur représente la teneur minimale à partir de laquelle la couche $\alpha\text{Zr}(\text{O})$ devient observable par contraste métallographique lors d'un examen optique pour des températures comprises entre 750°C et 820°C.

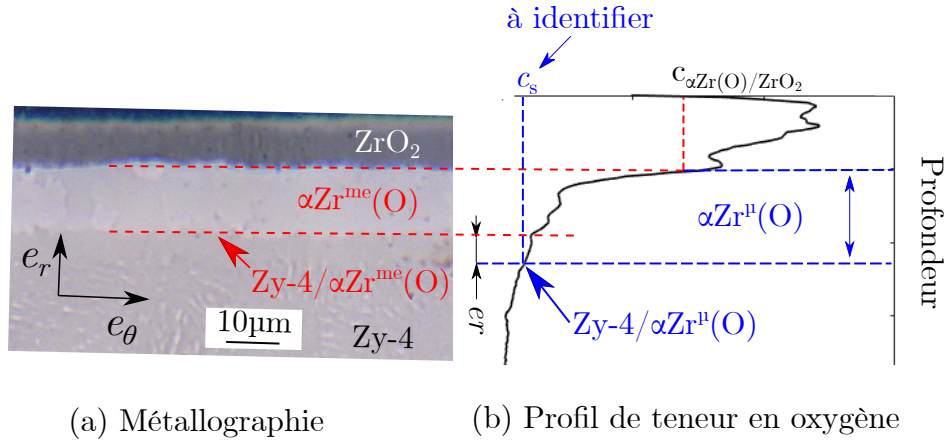


Figure 3.9 : Comparaison d'une métallographie optique avec le profil de teneur en oxygène correspondant.

3.5 Simulation des essais d'oxydation et identification

L'objectif de cette partie est d'identifier les coefficients de diffusion d'oxygène dans les couches de Zy-4 et de ZrO_2 pour les températures étudiées. Cette identification est effectuée par la méthode de recalage par élément finis, plus communément appelée FEMU¹.

3.5.1 Mise en place de la méthode FEMU

3.5.1.1 Modèle Élément Finis

Le modèle présenté au Chapitre 2 est utilisé ici pour simuler les essais d'oxydation. Les simulations sont limitées au cas d'un matériau vierge car les résultats d'essais présentés plus haut ont mis en évidence le fait que le pré-oxyde ($\text{ZrO}_{2,\text{BT}}$) a très peu d'influence sur la cinétique de diffusion d'oxygène dans la couche métallique (Zy-4). Par symétrie, seule la moitié de l'épaisseur de la gaine est modélisée sans prendre en compte la courbure (cf. Figure 3.10). La géométrie et les conditions aux limites similaires au problème de croissance d'une couche d'oxyde présentées au chapitre précédent (cf. Section 2.7.1.1) sont utilisées ici. L'épaisseur de l'interface Zy-4/ ZrO_2 est fixé à $1\mu\text{m}$. Une illustration du profil de teneur en oxygène est représentée en rouge. La teneur en oxygène de fabrication dans la couche de Zy-4 vaut $c = c_\infty = 0,13\%\text{mass}$ (cf. Tableau 1.1). Un gradient linéaire est imposé dans la couche de ZrO_2 initiale d'épaisseur $e_{\text{ZrO}_2}^0 = 1\mu\text{m}$. Cette couche de ZrO_2 initiale, nécessaire en début de simulation est choisie très petite (de l'ordre de l'incertitude de mesure) pour être représentative de l'oxydation d'un matériau vierge. On suppose que la couche de ZrO_2 reste stœchiométrique à l'interface avec l'environnement argon+vapeur. Ceci est assuré par une condition aux limites de type Dirichlet imposée sur la surface de gauche avec une teneur de $\bar{c} = 25,97\%\text{mass}$. Le domaine est maillé de manière uniforme avec 2850 éléments quadrangles à interpolations linéaires dans la direction x et 1 élément dans la direction y de manière à avoir 10 éléments dans l'interface Zy-4/ ZrO_2 . La mobilité de l'interface Zy-4/ ZrO_2 est choisie suffisamment élevée $M = 10^6\text{mm}^3/\text{J/s}$ (ce qui revient à supposer que la réaction chimique à l'interface est instantanée). La courbure de la densité

1. FEMU : Finite Element Model Updating

d'énergie chimique identique dans les deux phases (ZrO_2 et Zy-4) est fixée à $k = 1\text{J/mm}^3$ et l'énergie de l'interface Zy-4/ ZrO_2 à $\omega = 0,1\text{J/mm}^2$. Le choix de ces deux derniers paramètres (spécifique à l'approche champ de phase) n'a pas d'importance car l'effet de la mécanique sur l'oxydation est négligé.

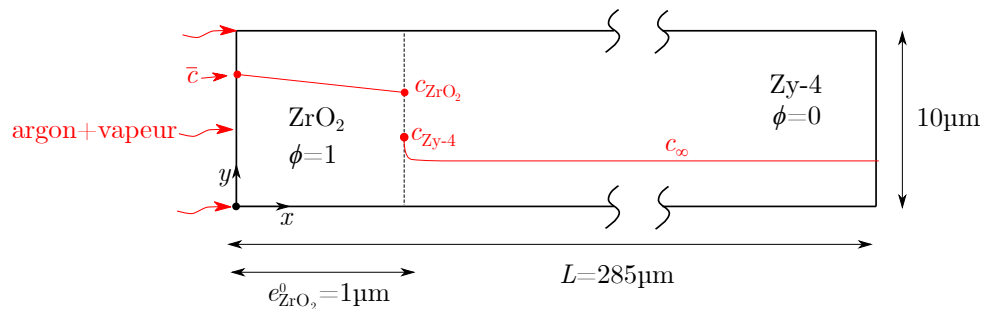


Figure 3.10 : Modèle EF utilisé pour simuler l'oxydation HT sur vierge. Le profil de teneur en oxygène est illustré en rouge.

3.5.1.2 La méthode FEMU

Le principe de la méthode FEMU mise en place, est illustré en Figure 3.11. Un algorithme de minimisation itératif [22] permet d'identifier le jeu de paramètres (λ) afin de faire concorder les résultats (profil de teneur en oxygène dans la couche de Zy-4 et épaisseur de la couche de ZrO_2) expérimentaux et calculés. Un jeu de paramètre initial (λ_0) est utilisé pour initialiser le processus d'identification.

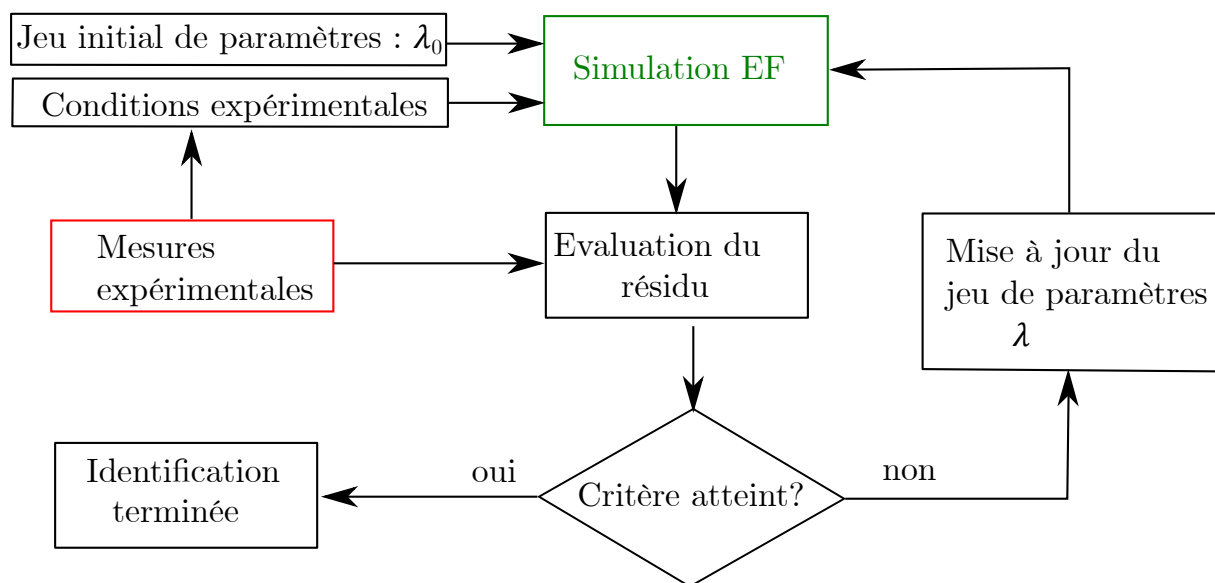


Figure 3.11 : Principe de la méthode FEMU

Le processus d'identification est basé sur la minimisation du résidu défini comme suit :

$$er^2(\lambda) = \frac{1}{2N_c\Delta_c^2} [\mathbf{c}^{\text{exp}} - \mathbf{c}^{\text{num}}(\lambda)]^T \cdot [\mathbf{c}^{\text{exp}} - \mathbf{c}^{\text{num}}(\lambda)] + \frac{1}{2N_{e_{\text{ZrO}_2}}\Delta_{e_{\text{ZrO}_2}}^2} [e_{\text{ZrO}_2}^{\text{exp}} - e_{\text{ZrO}_2}^{\text{num}}(\lambda)]^T \cdot [e_{\text{ZrO}_2}^{\text{exp}} - e_{\text{ZrO}_2}^{\text{num}}(\lambda)] \quad (3.4)$$

où λ est le jeu de paramètres à identifier. $\mathbf{c}^{\text{exp}}$ et $\mathbf{c}^{\text{num}}$ sont les profils de teneur en oxygène mesurés et calculés. $\Delta_c = 0,4\%$ mass est l'incertitude de mesure sur la teneur en oxygène et N_c est la taille des vecteurs $\mathbf{c}^{\text{exp}}$ et $\mathbf{c}^{\text{num}}$. De même $e_{\text{ZrO}_2}^{\text{exp}}$ et $e_{\text{ZrO}_2}^{\text{num}}$ sont les épaisseurs de la couche de ZrO_2 mesurées et calculées. $\Delta_{e_{\text{ZrO}_2}} = 1\mu\text{m}$ est l'incertitude de mesure sur l'épaisseur de la couche de ZrO_2 et $N_{e_{\text{ZrO}_2}}$ est la taille des vecteurs $e_{\text{ZrO}_2}^{\text{exp}}$, $e_{\text{ZrO}_2}^{\text{num}}$. Cette écriture du résidu permet d'avoir une erreur proche de l'unité si l'écart entre les essais et les calculs est uniquement dû à l'incertitude de mesure. Le fait que le résidu combine les deux quantités (profil de teneur en oxygène et épaisseur la couche de ZrO_2) permet d'améliorer la robustesse de l'algorithme et de ne pas pénaliser une mesure par rapport à l'autre [229, 230]. La minimisation du résidu est réalisée de manière itérative à l'aide d'un algorithme de type Gauss-Newton [231, 232].

3.5.1.3 Étude de sensibilité des paramètres

Pour identifier un paramètre par FEMU, il faut que celui-ci soit suffisamment sensible sur les grandeurs mesurées. L'étude de sensibilité permet alors de déterminer les paramètres ayant une influence significative sur les grandeurs mesurées. Les paramètres susceptibles d'influencer les grandeurs mesurées (profil d'oxygène et épaisseur de la couche de ZrO_2) sont :

- les teneurs en oxygène d'équilibre à l'interface Zy-4/ ZrO_2 coté Zy-4 ($c_{\text{Zy-4}}$) et coté ZrO_2 (c_{ZrO_2}) illustrés en Figure 3.10 ;
- les coefficients de diffusion dans les couches de Zy-4 ($D_{\text{Zy-4}}$) et de ZrO_2 (D_{ZrO_2}).

La sensibilité d'un paramètre λ_i est défini par :

$$S_{\lambda_i}^c = \frac{c(\lambda) - c(\lambda + \delta\lambda_i)}{c(\lambda)}, \quad (3.5)$$

$$S_{\lambda_i}^{e_{\text{ZrO}_2}} = \frac{e_{\text{ZrO}_2}(\lambda) - e_{\text{ZrO}_2}(\lambda + \delta\lambda_i)}{e_{\text{ZrO}_2}(\lambda)}, \quad (3.6)$$

$S_{\lambda_i}^c$ et $S_{\lambda_i}^{e_{\text{ZrO}_2}}$ sont respectivement les sensibilités sur la teneur en oxygène et l'épaisseur de la couche de ZrO_2 (e_{ZrO_2}). $\delta\lambda_i$ est une perturbation appliquée au paramètre λ_i . Le Tableau 3.3 résume les paramètres utilisés pour l'étude de sensibilité.

La sensibilité des différents paramètres sur le profil d'oxygène et l'épaisseur de la couche de ZrO_2 sont présentés en Figure 3.12 pour une perturbation des paramètres de 1%. On constate que pour le profil d'oxygène le paramètre le plus sensible est le coefficient de diffusion dans la couche de Zy-4 ($D_{\text{Zy-4}}$) tandis que pour l'épaisseur d'oxyde, c'est la teneur en oxygène à l'interface Zy-4/ ZrO_2 coté ZrO_2 (c_{ZrO_2}) qui est le paramètre le plus sensible. Le Tableau 3.4 classe les différents paramètres par ordre de sensibilité suivant les grandeurs mesurées.

Paramètres	référence	perturbés
c_{Zy-4} (%mass) :	7	7,07
c_{ZrO_2} (%mass) :	24	24,24
D_{Zy-4} (cm ² /s) :	$1 \cdot 10^{-10}$	$1,01 \cdot 10^{-10}$
D_{ZrO_2} (cm ² /s) :	$2 \cdot 10^{-9}$	$2,02 \cdot 10^{-9}$

Tableau 3.3 : Paramètres utilisés pour l'étude de sensibilité. c_{Zy-4} et c_{ZrO_2} sont respectivement les teneurs en oxygène d'équilibre à l'interface $ZrO_2/Zy-4$ coté Zy-4 et ZrO_2 . D_{Zy-4} et D_{ZrO_2} sont les coefficients de diffusion de l'oxygène dans les couches de Zy-4 et ZrO_2 respectivement. Les paramètres de références ont été perturbés de 1 %.

Paramètres	Profil de teneur en oxygène (c)	épaisseur de la couche de ZrO_2 (e_{ZrO_2})
c_{Zy-4} :	+	++
c_{ZrO_2} :	++ +	++ ++
D_{Zy-4} :	++ ++	+
D_{ZrO_2} :	++	++ ++

Tableau 3.4 : Classification des paramètres en fonction de leur sensibilité aux grandeurs mesurés. Le nombre de "+" indique le niveau sensibilité.

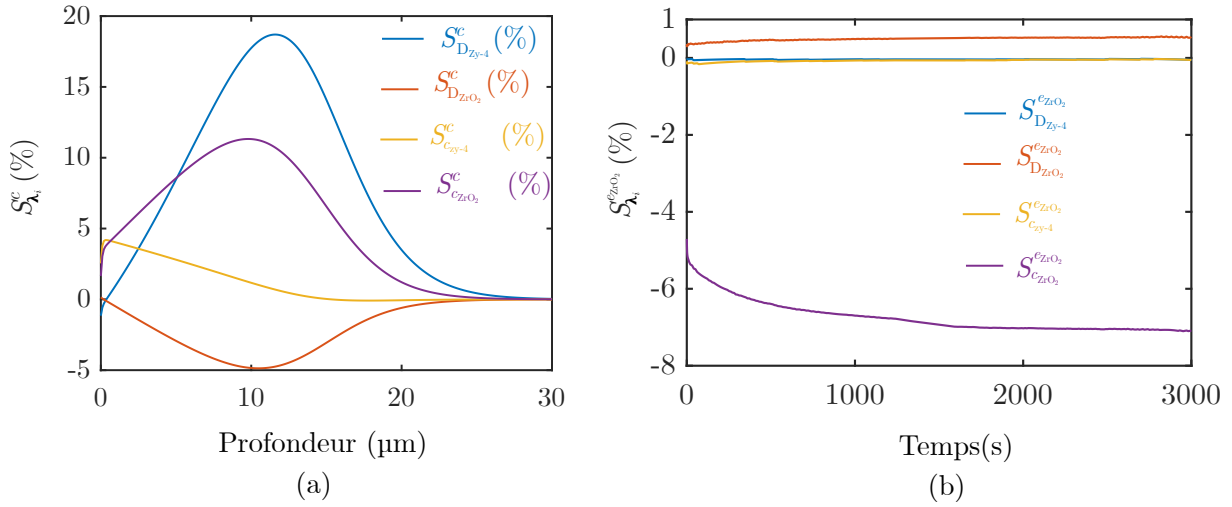


Figure 3.12 : Étude de sensibilité : (a) sensibilité sur le profil de teneur en oxygène à 3200s; (b) évolution temporelle de la sensibilité sur l'épaisseur de la couche de ZrO_2 .

Compte tenu du nombre limité de données disponibles (surtout en terme d'épaisseur de la couche de ZrO_2), il a été fait le choix d'identifier uniquement les coefficients de diffusion ($D_{Zy-4}, D_{\text{ZrO}_2}$) et non pas les teneurs à interface ($c_{Zy-4}, c_{\text{ZrO}_2}$). Ceci permet d'exploiter au mieux la sensibilité des coefficients de diffusion dans le processus d'identification. La mesure de la teneur en oxygène dans l'oxyde étant très complexe, les teneurs en oxygène d'équilibre à l'interface Zy-4/ ZrO_2 sont déduites du diagramme de phase Zr-O. La teneur en oxygène à l'interface coté Zy-4 est fixée à $c_{Zy-4} = 7\%\text{mass}$ et celle coté ZrO_2 à $c_{Zy-4} = 24\%\text{mass}$ (cf. Figure 1.5). Il est très important de disposer des teneurs d'équilibre à l'interface Zy-4/ ZrO_2 avec la plus grande précision possible car comme l'a montré l'étude de sensibilité, ces paramètres ont une influence significative sur les grandeurs mesurées (surtout la teneur en oxygène à l'interface coté ZrO_2).

Le Tableau 3.6 résume tous les paramètres du modèle utilisés dans le processus d'identification.

3.5.1.4 Application à un cas test virtuel

La convergence de la procédure d'identification est tout d'abord validée sur un cas virtuel représentatif des essais. Un calcul initial est effectué avec des coefficients de diffusion de référence. Le profil d'oxygène dans la couche de Zy-4 et l'épaisseur de la couche de ZrO_2 à 400s, 800s, 1600s et 3200s sont extraits pour faire office de résultats expérimentaux dans le processus d'identification. Un bruit blanc Gaussien avec un rapport signal sur bruit de 10dB est ajouté aux profils de teneur en oxygène pour être représentatif des mesures réelles². Les coefficients de diffusion sont ensuite perturbés d'un facteur 6 comme mentionné dans Tableau 3.7 ci-dessous. Une identification est enfin réalisée afin de vérifier que l'on retrouve bien les coefficients de diffusion de référence. Pour accélérer la convergence de l'algorithme de minimisation, il est préférable d'identifier $\ln(D_{Zy-4})$ et $\ln(D_{\text{ZrO}_2})$. La Figure 3.13 présente les résultats du processus d'identification exécuté sur le cas test virtuel. Les coefficients de diffusion sont retrouvés à 88% de la valeur de référence

2. L'ajout du bruit blanc Gaussien a été effectué à l'aide de la fonction Matlab **awgn**

teneur en oxygène d'équilibre à l'interface Zy-4/ ZrO_2 :	$c_{\text{Zy-4}}$	7%mass
	c_{ZrO_2}	24%mass
teneur en oxygène à l'interface avec l'environnement :	$\bar{c}$	25,97%mass
teneur en oxygène de fabrication dans la couche de Zy-4 :	c_∞	0,13%mass
coefficient de diffusion :	$D_{\text{Zy-4}}$	à identifier
	D_{ZrO_2}	à identifier
paramètres associés à l'approche champ de phase		
mobilité de l'interface :	M	$10^6 \text{mm}^3/\text{J/s}$
Courbure de la densité d'énergie chimique :	k	1J/mm^3
énergie de l'interface Zy-4/ ZrO_2 :	ω	$0,1 \text{J/mm}^3$

Tableau 3.5 : Synthèse des paramètres utilisés dans le processus d'identification. Les paramètres spécifiques à l'approche champ de phase n'ont pas d'influence dans le processus d'identification car l'effet de la mécanique sur l'oxydation est négligé.

	$D_{\text{Zy-4}} \text{ (cm}^2/\text{s)}$	$D_{\text{ZrO}_2} \text{ (cm}^2/\text{s)}$
Coefficient de diffusion de référence :	1.10^{-10}	2.10^{-9}
Coefficient de diffusion de perturbé :	6.10^{-10}	$1,2.10^{-8}$

Tableau 3.6 : Coefficients de diffusion de l'oxygène de référence et perturbés.

juste après la première itération et à 96% à la cinquième itération.

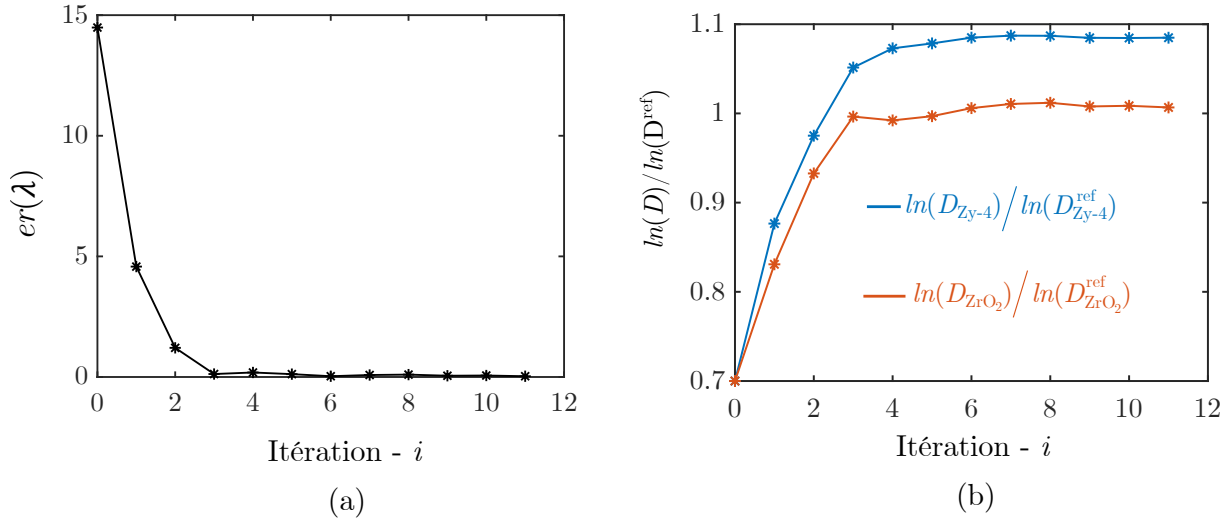


Figure 3.13 : Résultats de la FEMU sur le cas test virtuel : (a) Évolution du résidu (Équation 3.4) ; (b) Évolution des coefficients de diffusion en oxygène dans les couches de Zy-4 et ZrO_2 normalisés par les coefficients de diffusion en oxygène de référence.

Le Tableau 3.7 présente le résultat final de l'identification. L'erreur d'identification est définie par :

$$er(\lambda_i) = \frac{\ln(\lambda_i) - \ln(\lambda_{ref})}{\ln(\lambda_{ref})} \quad (3.7)$$

$er(\lambda_i)$ est l'erreur d'identification sur le paramètre λ_i , λ_{ref} étant le paramètre de référence correspondant. L'erreur d'identification est évaluée sur une base logarithmique puisque l'identification a été effectuée sur le logarithme des coefficients de diffusion de l'oxygène. L'erreur d'identification sur le coefficient de diffusion de l'oxygène dans la couche de Zy-4 est de 8,7% tandis qu'elle est seulement de 0,67% sur l'épaisseur de la couche de ZrO_2 . À titre d'exemple, le profil de teneur en oxygène (à 3200s) de référence et convergé sont présentés en Figure 3.14(a) et l'évolution temporelle de l'épaisseur de la couche de ZrO_2 en Figure 3.14(b). On constate que malgré l'erreur d'identification non négligeable sur le coefficient de diffusion dans la couche de Zy-4, les résultats expérimentaux et numériques coïncident de manière satisfaisante. Ceci traduit une sensibilité limitée des paramètres sur les grandeurs utilisées pour l'identification, d'où l'importance de disposer d'un nombre important d'essais pour identifier les coefficients de diffusion de manière la plus précise possible.

En tant qu'algorithme de recherche locale, la méthode de Gauss-Newton peut se retrouver piégée dans un éventuel minimum local. L'approche *multistart* [233] a été utilisée pour détecter d'éventuels minimums locaux. Cette approche consiste à exécuter l'algorithme de minimisation à plusieurs reprises avec des jeux de paramètres initiaux générés de manière aléatoire. L'application de l'approche *multistart* au cas test virtuel a mis en évidence le fait que le résultat du processus d'identification est indépendant du choix du jeu de paramètres initial. L'algorithme converge toujours vers le jeu paramètres de référence quelque soit le jeu de paramètres initial admissible choisi. Un jeu de paramètres

	$\ln(D_{Zy-4})$	$\ln(D_{ZrO_2})$
Coefficient de diffusion de référence :	-18,42	-15,42
Coefficient de diffusion de final :	-19,98	-15,53
erreur d'identification (cf. Équation 3.7) :	8,5 %	0,67 %

Tableau 3.7 : Coefficients de diffusion de l'oxygène de référence et finaux.

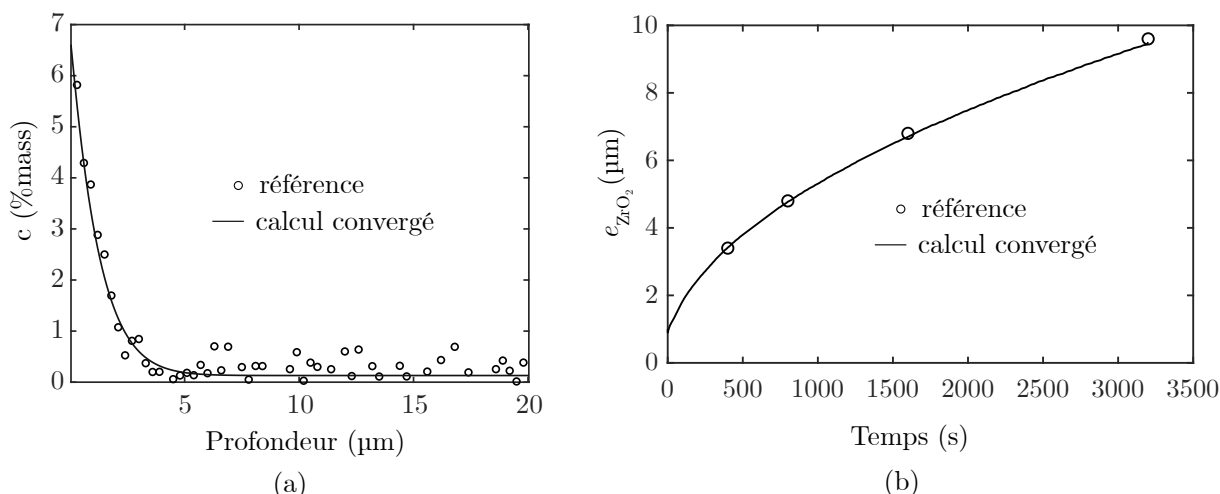


Figure 3.14 : Résultats de la FEMU sur le cas test virtuel : (a) profil de teneur en oxygène dans la couche de Zy-4 après 3200s, la profondeur est mesurée à partir de l'interface Zy-4/ ZrO_2 ; (b) évolution de l'épaisseur de la couche de ZrO_2 en fonction de la durée d'oxydation HT.

admissible est un jeu de paramètres réaliste qui peut être utilisé pour la simulation numérique sans induire des problèmes de convergence.

3.5.2 Application aux essais d'oxydation HT

Le processus d'identification décrit ci-dessus a été appliqué aux essais d'oxydation HT afin d'identifier les coefficients de diffusion (dans la couche de Zy-4 et de ZrO_2) à 750°C et 820°C. Pour limiter le nombre d'itération, le jeu de paramètres initial ne doit pas être trop éloigné du jeu de paramètres recherché. Les coefficients de diffusion disponibles dans la littérature (cf. Tableau 1.2 pour D_{Zy-4} et Tableau 1.3 pour D_{ZrO_2}) sont utilisés pour initialiser le processus d'identification. Dans la littérature les données sur le coefficient de diffusion de l'oxygène dans la couche de ZrO_2 sont très dispersées. L'écart d'une source à l'autre pouvant dépasser un facteur 1000 [234]. Le coefficient de diffusion proposé par Parise [24] déduit par régression des données de plusieurs auteurs a été retenu pour l'initialisation du processus d'identification. Les résultats de l'identification à 820°C sont présentés en Figure 3.15. Après la deuxième itération un plateau est atteint, le résidu et les coefficients de diffusion n'évoluent plus de manière significative. Le coefficient de diffusion dans la couche de Zy-4 évolue très peu ce qui signifie que sa valeur initiale tirée de la littérature [23] est très proche de sa valeur recherchée. Par contre, le coefficient de

diffusion dans la couche de ZrO_2 évolue d'un facteur 6 par rapport à la valeur initiale tirée de la thèse de Parise [24]. Ce qui traduit le fait que le coefficient de diffusion dans la couche de ZrO_2 proposé par Parise n'est pas adapté pour décrire les essais d'oxydation HT réalisés dans ce travail.

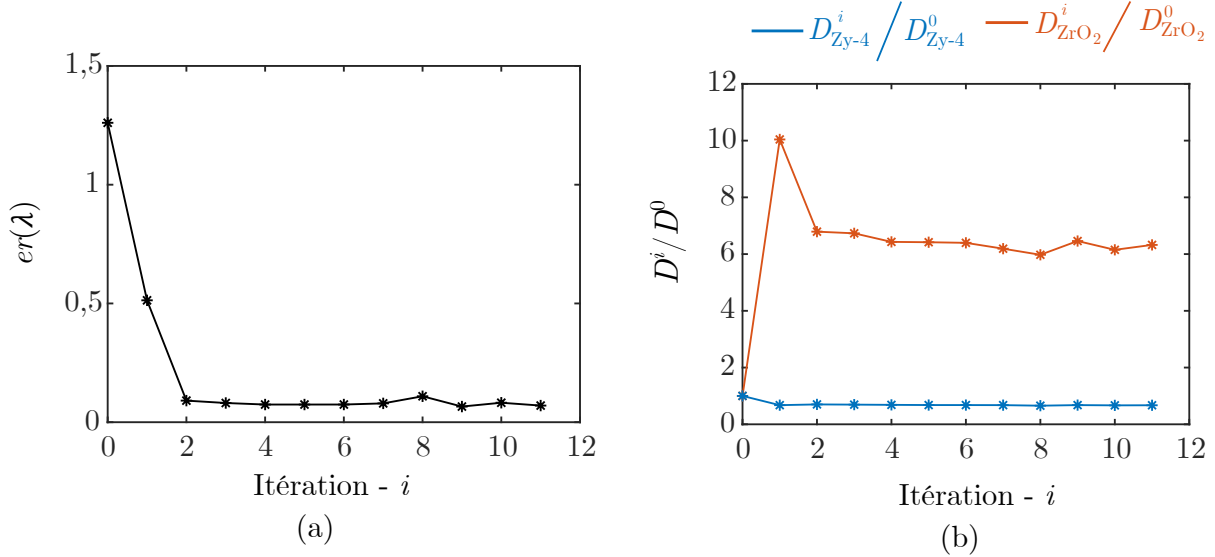


Figure 3.15 : Résultats de la FEMU à 820°C : (a) Évolution du résidu normalisé par sa valeur initiale ; (b) Évolution des coefficients de diffusion dans les couches de ZrO_2 et ZrO_2 normalisés par les valeurs initiales.

Les valeurs des coefficients de diffusion initiaux et finaux sont donnés dans le Tableau 3.8. Les résultats de l'identification dans la couche de ZrO_2 sont comparés à la loi d'Arrhenius proposée par Debuigne [25] définie par :

$$D_{\text{ZrO}_2}(\text{cm}^2/\text{s}) = 0,105 \cdot 10^{-2} \exp\left(\frac{-29300}{RT}\right) \quad (3.8)$$

pour rappel $R = 1,987 \text{ cal/mol/K}$ est la constante des gaz parfaits et $T(\text{K})$ la température. Les coefficients de diffusion prédits par cette corrélation sont cohérents avec ceux identifiés. Elle représente donc parmi les données très dispersées de la littérature, la corrélation qui décrit le mieux nos essais.

La Figure 3.16 compare les résultats expérimentaux avec ceux obtenus par calculs à la fin du processus d'identification pour lequel les coefficients de diffusion correspondant sont donnés dans le Tableau 3.8. Les résultats expérimentaux et numériques se comparent de manière satisfaisante.

À titre de vérification, des simulations sont effectuées avec les coefficients identifiés dans le but de comparer la cinétique de croissance de la couche de $\alpha\text{Zr(O)}$ déterminée à l'aide des métallographies à celle prédite par simulation. L'épaisseur de la couche de $\alpha\text{Zr(O)}$ issue de la simulation est déterminée en utilisant le seuil d'oxygène à partir duquel la couche de $\alpha\text{Zr(O)}$ devient visible en métallographie ($c_s = 1,2\%$ mass) déterminé plus haut (cf. Section 3.4.5). Comme le montre la Figure 3.17, la cinétique de croissance de la couche de $\alpha\text{Zr(O)}$ prédite par simulation est en accord avec les mesures métallographiques.

		750°C	820°C
$D_{Zy-4}(\text{cm}^2/\text{s})$	initial/Ritchie [23]	$9,01.10^{-11}$	$3,87.10^{-10}$
	final	$1,06.10^{-10}$	$2,60.10^{-10}$
$D_{ZrO_2}(\text{cm}^2/\text{s})$	initial/Parise [24]	$1,32.10^{-10}$	$3,96.10^{-10}$
	final	$9,51.10^{-10}$	$2,5.10^{-9}$
	Debuigne [25]	$5,78.10^{-10}$	$1,45.10^{-9}$
Résidu : $er(\lambda)$	initial	1,008	0,2264
	final	1,2606	0,07

Tableau 3.8 : Valeur des coefficients de diffusion de l'oxygène à l'initialisation et à la fin du processus d'identification. Les coefficients de diffusion de l'oxygène dans Zy-4 et ZrO_2 ont respectivement été initialisés avec les corrélations proposées par Ritchie [23] et Parise [24]. Les résultats de l'identification dans la couche de ZrO_2 sont comparés à la corrélation proposée par Debuigne [25].

Les essais sous argon et argon+vapeur à 820°C réalisés sur les éprouvettes pré-oxydées ont également été simulés avec les coefficients de diffusion identifiés. La géométrie, les conditions initiales et les conditions aux limites utilisées sont illustrées en Figure 3.18. Le pré-oxyde d'épaisseur 10 μm est supposé stœchiométrique ($c_{Zy-4/ZrO_2} = 25,97\%\text{mass}$). Comme la pré-oxydation n'induit pas de formation de $\alpha Zr(O)$, la teneur en oxygène initial dans le métal ($c_\infty = 0,13\%\text{mass}$) est homogène. L'atmosphère argon+vapeur est représentée par une condition aux limites de type Dirichlet, imposée sur la surface de gauche ($\bar{c} = 25,97\%\text{mass}$). Dans ces conditions, le pré-oxyde demeure stœchiométrique durant toute la simulation. Pour simuler les essais sous argon, cette condition aux limites sur la surface de gauche est supprimée. Le Tableau 3.9 résume les paramètres utilisés pour simuler les essais sous argon et argon+vapeur à 820°C réalisés sur les gaines pré-oxydées.

La Figure 3.19 présente les résultats des simulations des essais réalisés sur les éprouvettes pré-oxydées. On observe une légère réduction de l'épaisseur de la couche de ZrO_2 au profit de la formation d'une couche de $\alpha Zr(O)$. Les simulations prédisent une réduction d'environ 3 μm après 3200s ce qui est cohérent avec le fait qu'expérimentalement on n'observe pas de variation significative de la couche de ZrO_2 . Une telle réduction (comparable à l'incertitude de mesure) est très difficilement détectable en métallographie. Comme constaté expérimentalement les simulations montrent également que pour les températures et durées d'oxydation étudiées, l'environnement de l'essai n'a pas d'influence pour les essais réalisés sur les gaines pré-oxydées. Les profils de teneur en oxygène et l'épaisseur de couche de ZrO_2 dissout pour les simulations des essais sous argon et ceux sous argon+vapeur coïncident.

teneur en oxygène d'équilibre à l'interface Zy-4/ZrO ₂ :	$c_{\text{Zy-4}}$	7%mass
	c_{ZrO_2}	25,97%mass
teneur en oxygène à l'interface avec l'environnement :	$\bar{c}$	25,97%mass
teneur en oxygène de fabrication dans la couche de Zy-4 :	c_∞	0,13%mass
coefficient de diffusion :	$D_{\text{Zy-4}}$	2,60.10 ⁻¹⁰ cm ² /s
	D_{ZrO_2}	2,50.10 ⁻⁹ cm ² /s
paramètres associés à l'approche champ de phase		
mobilité de l'interface :	M	10 ⁶ mm ³ /J/s
Courbure de la densité d'énergie chimique :	k	1J/mm ³
énergie de l'interface Zy-4/ZrO ₂ :	ω	0,1J/mm ³

Tableau 3.9 : Synthèse des paramètres utilisés pour simuler les essais d'oxydation sous argon et sous argon+vapeur à 820°C réalisés sur les gaines pré-oxydées. Le pré-oxyde est supposé être stœchiométrique. Les paramètres spécifiques à l'approche champ de phase n'ont pas d'influence dans le processus d'identification car l'effet de la mécanique sur l'oxydation est négligé.

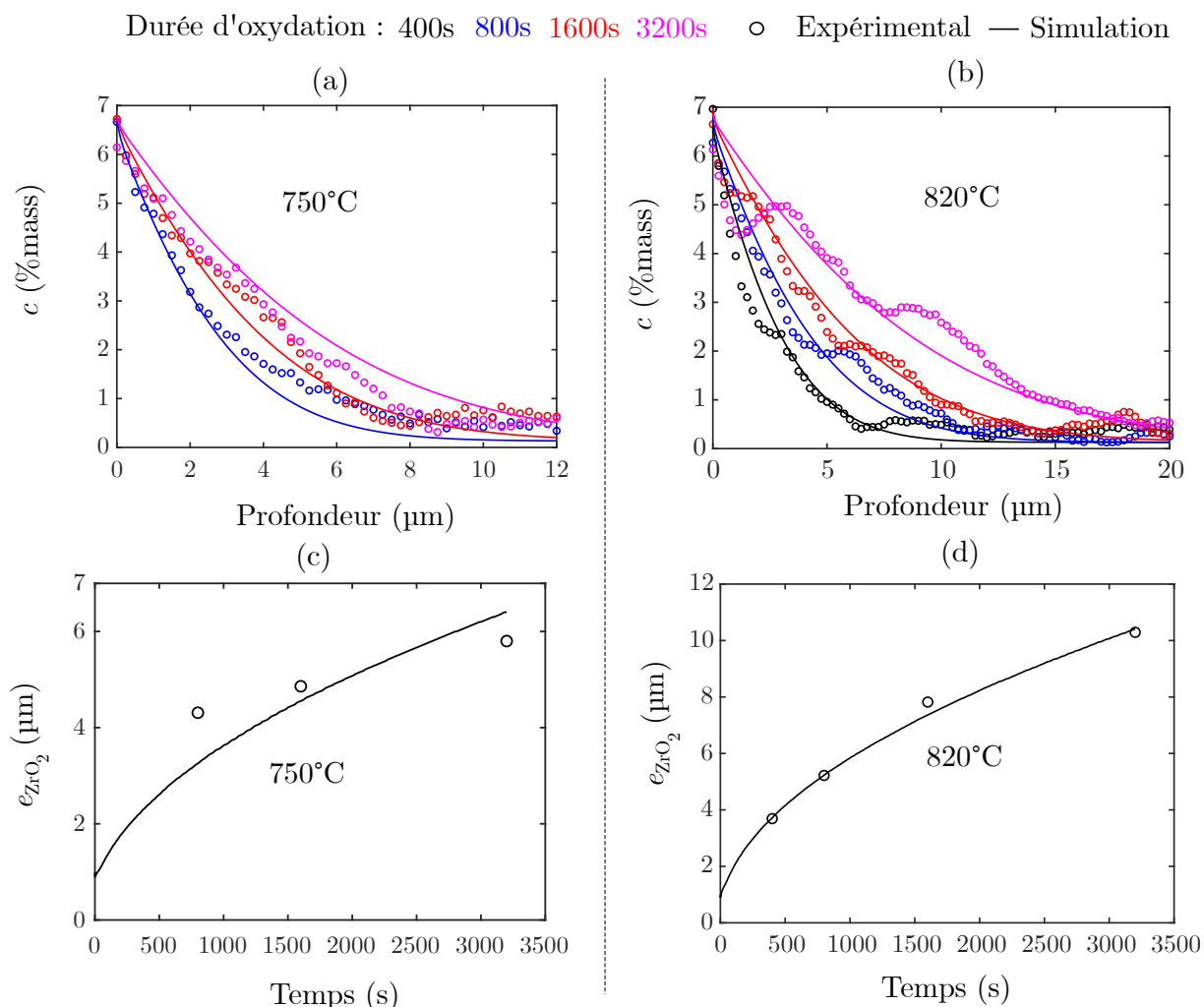


Figure 3.16 : Résultats de la FEMU appliquée aux essais d'oxydation : Profil de teneur en oxygène dans la couche de Zy-4 à 750°C (a) et 820°C (b), la profondeur est mesurée à partir de l'interface Zy-4/ ZrO_2 ; évolution de l'épaisseur de la couche de ZrO_2 en fonction de la durée d'oxydation HT à 750°C (c) et 820°C (d).

3.6 Synthèse et discussion des résultats

Afin d'étudier l'oxydation de manière découplée du chargement mécanique, des essais d'oxydation HT sur des gaines en Zy-4 vierges et pré-oxydées ont été réalisés. Ces essais ont permis de collecter un grand nombre de données sur les cinétiques d'oxydation à 750°C et 820°C. Plusieurs moyens de mesure (métallographie, permascopie, microsonde, analyseur de la teneur en hydrogène) ont été utilisés pour caractériser le comportement sous oxydation des gaines dans la gamme de températures étudiée. Les principaux résultats obtenus sont résumés et discutés ci-dessous.

Tout d'abord, une teneur en oxygène de 1,2%mass semble représenter le seuil de détection de la couche de $\alpha\text{Zr(O)}$ en métallographie dans la gamme de température étudiée. Ce seuil a été déterminé en croisant les mesures métallographiques et les profils de teneur en oxygène obtenus par la microsonde. La connaissance de ce seuil est d'une grande importance car il permet de réduire le nombre d'analyses microsonde (très coûteuses en

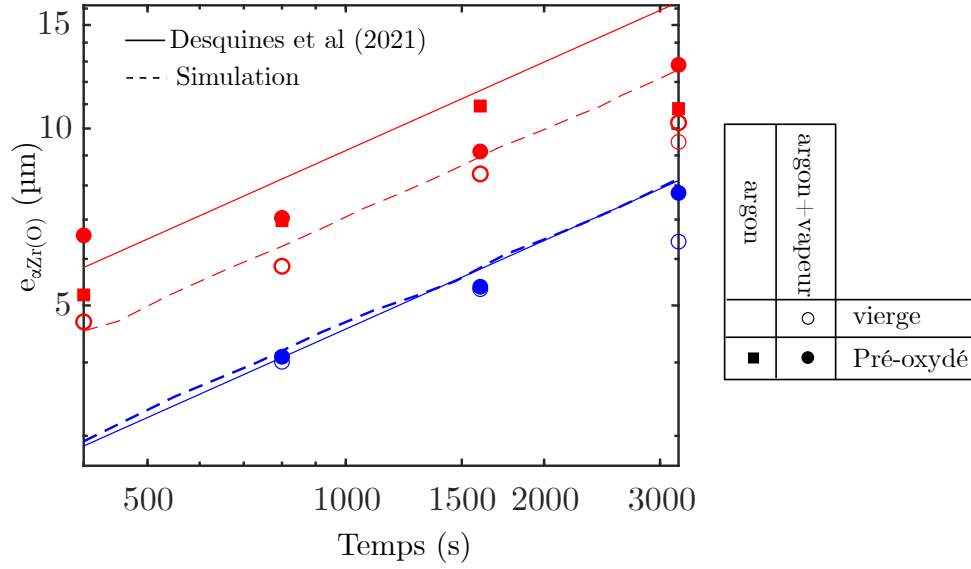


Figure 3.17 : Évolution temporelle de l'épaisseur de la couche de $\alpha\text{Zr(O)}$, les résultats expérimentaux (symboles carrés et circulaires) sont comparés à ceux obtenus par simulation. L'extrapolation de la corrélation proposée par Desquines et al [21] (cf. Tableau 1.4) est également représentée.

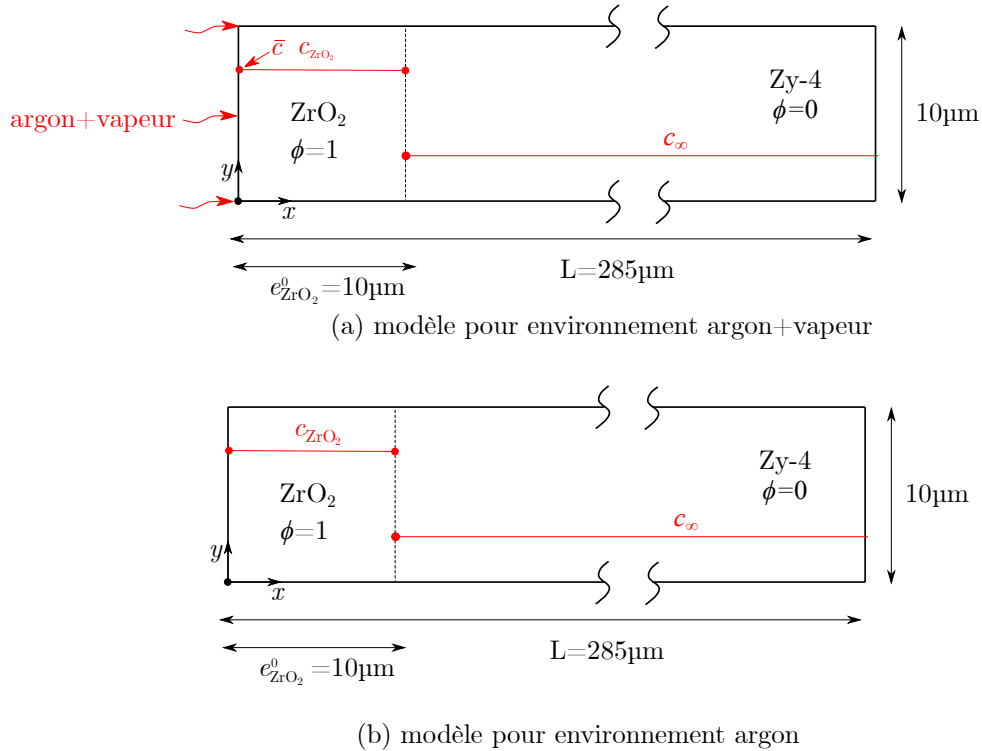


Figure 3.18 : Modèle EF utilisé pour simuler l'oxydation HT sur les éprouvettes pré-oxydées. Le profil initial de teneur en oxygène est illustré en rouge.

temps) nécessaires pour caractériser le comportement sous oxydation de la gaine. Celles-ci pouvant être substituées par des analyses de métallographies optiques moins coûteuses

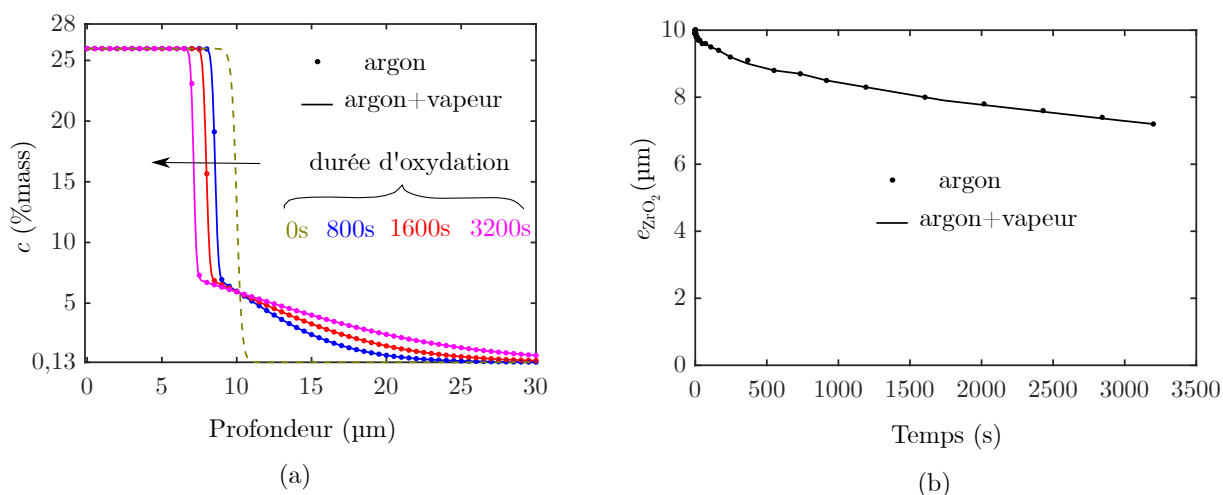


Figure 3.19 : Résultats des simulations des essais d'oxydation sous argon et argon+vapeur à 820°C réalisés sur des gaines pré-oxydées : (a) Profils de teneurs en oxygène à différents instants ; (b) Évolution temporelle de l'épaisseur de la couche de ZrO_2 .

en temps. Il peut par exemple être envisagé d'identifier le coefficient de diffusion dans la couche Zy-4 sur la base de l'épaisseur de la couche de $\alpha\text{Zr(O)}$ plutôt que de le faire à partir des profils de teneur en oxygène. Il n'est cependant pas exclu que ce seuil soit sensible à la préparation des échantillons, notamment à la procédure de polissage.

Il a été observé que la couche de pré-oxyde joue un rôle protecteur vis-vis de l'oxydation pour les températures et durées d'oxydation étudiées ($T \in [750-820^\circ\text{C}]$ et $t < 3200\text{s}$). Aucune variation significative de l'épaisseur du pré-oxyde n'a été observée après le transitoire à haute température. Il a également été observé que l'environnement de l'essai (oxydant ou neutre) n'a pas d'influence dans les conditions d'étude. Ces constats expérimentaux ont été confirmés par les simulations. Les calculs prédisent une diminution maximale de 3 μm de l'épaisseur de la couche d'oxyde dans les conditions d'étude. Une telle variation d'épaisseur de la couche d'oxyde (proche de l'incertitude de mesure) est très difficilement détectable avec les moyens expérimentaux utilisés. Les simulations ont également montré que l'atmosphère de l'essai (oxydant ou neutre) n'a pas d'influence sur les résultats (profil de teneur en oxygène et épaisseur de la couche de ZrO_2). Les essais d'oxydation HT ont par ailleurs montré que la peinture utilisée pour les essais de ballonnement (cf. Chapitre 4) n'influence pas l'oxydation HT.

Une identification des coefficients de diffusion dans les couches de Zy-4 et ZrO_2 à 750°C et 820°C a également été réalisée. L'identification a été faite par FEMU sur la base du code de calcul développé dans ce travail et présenté au Chapitre 2. Il est important de prendre des précautions sur l'analyse du coefficient de diffusion identifié dans la couche de ZrO_2 car dans la gamme de température étudiée (750°C et 820°C), on s'attend à une cinétique cubique pour la croissance de la couche de ZrO_2 . Or, la plupart des modèles y compris celui utilisé dans ce travail (basé sur une approche diffusionnelle) conduisent systématiquement à une cinétique parabolique. Le coefficient de diffusion identifié dans la couche de ZrO_2 doit donc être vu comme un coefficient de diffusion apparent plus mathématique que physique. Il est aussi important de préciser que les coefficients de diffusion identifiés surtout celui dans la couche de ZrO_2 dépend fortement du choix de la teneur en oxygène à l'interface Zy-4/ ZrO_2 coté ZrO_2 qui est très difficile à mesurer de manière

précise. Bien que le modèle proposé offre la possibilité de prendre en compte l'aspect mécanique, celui-ci a été négligé dans le processus d'identification. Ce choix s'explique par le manque de données sur le comportement mécanique du matériau en cours d'oxydation. Les grandeurs mesurées lors des essais d'oxydation HT ne permettent pas de caractériser un potentiel effet de la mécanique dans les conditions de l'étude. L'effet de la mécanique s'il existe est donc directement inclus dans les coefficients de diffusion identifiés. Avec seulement deux températures étudiées, il n'était pas possible d'envisager d'identifier des lois d'Arrhénius pour les coefficients de diffusion de l'oxygène dans les couches de Zy-4 et de ZrO_2 . L'identification a été menée de manière indépendante à 750°C et 820°C . Les résultats des identifications ont toutefois permis de choisir dans la littérature, les corrélations les plus pertinentes permettant de décrire les essais d'oxydation réalisés. Ainsi dans la couche de Zy-4, la corrélation de la littérature retenue est celle proposée par Ritchie [23] donnée par :

$$D_{\text{Zy-4}}(\text{cm}^2/\text{s}) = 16,5 \exp\left(\frac{-54700}{RT}\right) \quad 650^\circ\text{C} < T < 1500^\circ\text{C}, \quad (3.9)$$

tandis que dans la couche de ZrO_2 , la corrélation retenue est celle proposée par Debuigne [25] :

$$D_{\text{ZrO}_2}(\text{cm}^2/\text{s}) = 0,105 \cdot 10^{-2} \exp\left(\frac{-29300}{RT}\right) \quad 400^\circ\text{C} < T < 850^\circ\text{C}, \quad (3.10)$$

Ces corrélations seront nécessaires dans la suite pour simuler le comportement à l'oxydation de la gaine durant le transitoire thermique appliqué lors des essais de fluage présentés au Chapitre 4.

Chapitre 4

Étude expérimentale et modélisation du fluage d'une gaine pré-oxydée

Ce chapitre porte sur les essais de fluage et leur modélisation. Les différentes étapes depuis la préparation des éprouvettes, jusqu'aux analyses post-essais sont d'abord détaillées. Les résultats d'essais sont ensuite présentés et analysés. Enfin, une modélisation des essais est mise en place et validée par comparaison des résultats de simulations avec les résultats expérimentaux.

Sommaire

4.1	Introduction	103
4.2	Préparation des éprouvettes	103
4.3	Le dispositif ELLIE	104
4.4	Procédure de chargement	107
4.5	Les moyens de mesure	108
4.5.1	Mesure du champ cinématique	108
4.5.2	Mesure du champ thermique	109
4.6	Matrice d'essais réalisés	109
4.7	Caractérisation de l'état initial des éprouvettes	110
4.7.1	Laminographie	110
4.7.2	Métallographie optique	112
4.8	Résultats des essais	113
4.8.1	Essais sur éprouvette vierge en atmosphère argon	113

4.8.2	Effet du pré-oxyde et de l'atmosphère de l'essai	117
4.8.3	Analyse globale des essais	120
4.8.4	Caractérisation de la fissuration de la zircone	123
4.8.5	Bilan des essais de fluage	125
4.9	Simulation du fluage d'une gaine pré-oxydée	129
4.9.1	Géométrie, chargement et conditions aux limites	130
4.9.2	Résultats et analyses	135
4.10	Discussion et synthèse générale	141

4.1 Introduction

Ce chapitre porte sur l'étude expérimentale et la modélisation du comportement au fluage des gaines en alliage de Zy-4 pré-oxydées. Le but principal est de caractériser et décrire l'effet de la couche de pré-oxyde sur le comportement au fluage macroscopique de la gaine.

D'une part, des essais semi-intégraux de fluage, sous conditions APRP (pressurisation interne à haute température), sont réalisés sur la plateforme expérimentale ELLIE¹. Celle-ci a été initialement développée par Tardif [235], puis modifiée par Campello [15, 26, 236] pour simuler des conditions d'APRP, et enfin améliorée par Jailin [22, 237, 238], pour simuler des conditions RIA. Ce chapitre présente dans un premier temps le protocole expérimental adopté. Les différentes étapes depuis la préparation des éprouvettes, jusqu'aux analyses post-essais y sont détaillées. Les résultats d'essais en terme de vitesse de fluage sont ensuite présentés et analysés en lien avec les analyses métallographiques post-essais, ce qui permet de mettre en évidence les mécanismes structuraux responsables de l'évolution complexe de la déformation d'une gaine pré-oxydée.

D'autre part, une modélisation numérique des essais sur la base de la plateforme numérique mise en place dans cette thèse est réalisée. Le protocole de simulation des essais est conçu de manière à tenir compte des spécificités de chaque essai pour être le plus représentatif possible. Les hypothèses de modélisation sont clairement précisées. Le comportement au fluage de la couche de Zy-4 est modélisé avec une loi de Norton issue de la littérature et décrivant le mieux les essais réalisés. Dans la même logique, les propriétés de diffusion retenues sont celles qui décrivent le mieux les essais d'oxydation réalisés et présentés au Chapitre 3. Une étude paramétrique sur la température, l'épaisseur de la couche de pré-oxyde ainsi que sur la densité de fissure dans le pré-oxyde a d'abord été réalisée. Les résultats de simulation de quelques essais sont enfin comparés aux résultats expérimentaux. Ces premières simulations montrent la nécessité de prendre en compte l'état d'endommagement initial des couches d'oxyde, lui même fortement dépendant de l'épaisseur d'oxyde.

4.2 Préparation des éprouvettes

Le matériau de base de l'étude est le Zy-4 à l'état "détendu". Des tronçons de gaines vierges en Zy-4 "détendu" de 90mm de long sont pré-oxydés pour simuler la couche de corrosion formée en irradiation de base. La pré-oxydation se déroule dans les mêmes conditions que celles des essais d'oxydation, c'est-à-dire sous air à 470°C (cf. Chapitre 3). Il a été vérifié, dans le cadre de la thèse de Busser [5], qu'à cette température il n'y a pas d'effets spécifiques de l'air comme de la nitruration de la gaine qui intervient à partir de 700°C environ. En fonctionnement normal du réacteur, la couche de corrosion formée par interaction avec le combustible en surface interne, lorsque le jeu gaine-combustible se referme sous l'effet de la pression du circuit primaire peut atteindre 10 μm [76, 77], tandis que la couche de corrosion en surface externe en contact avec l'eau de refroidissement, peut atteindre et parfois dépasser 100 μm [5, 6]. Il a été décidé de limiter la profondeur maximale d'oxydation en surface externe à 60 μm au maximum. A l'inverse, l'épaisseur de

1. ELLIE : thErmomécanique muLti-axiale et muLti-modalE.

la couche de pré-oxyde en surface interne est fixée à 10 μ m. La pré-oxydation est effectuée en deux étapes pour obtenir une éprouvette avec des épaisseurs d'oxyde interne (e_{int}) et externe (e_{ext}) différentes. L'éprouvette est tout d'abord pré-oxydée avec des bouchons soudés aux extrémités jusqu'à l'obtention d'une première couche de pré-oxyde en surface externe d'épaisseur $e_{\text{ext}} - e_{\text{int}}$. Les bouchons permettent d'éviter la corrosion de l'éprouvette en surface interne durant cette première phase de pré-oxydation. Ensuite, les bouchons sont découpés puis l'éprouvette est remise en four jusqu'à l'obtention d'une couche de pré-oxyde d'épaisseur e_{int} en surface interne et une couche d'oxyde supplémentaire d'épaisseur e_{int} en surface externe.

À l'issue de la pré-oxydation, un sablage localisé est nécessaire afin de retirer localement la couche de pré-oxyde en surface externe et permettre ainsi le soudage des thermocouples (cf. Figure 4.1a). Comme le montre la Figure 4.1b, des raccords Swagelock sont sertis aux extrémités de l'éprouvette pour garantir son maintien aux mors et l'étanchéité requise pour sa mise en pression interne. La longueur utile entre les mors est donc réduite à 58mm environ. Un mouchetis est déposé en surface externe de l'éprouvette à l'aide de particules (de peinture) de couleur blanche sur un fond de couleur noire (cf. Figure 4.1b). Ce mouchetis est réalisé à l'aide de la peinture à tenue haute température Ulfalux[®]. Cela permet d'effectuer des mesures par corrélation d'images numériques. De plus, le fond noir permet de stabiliser l'émissivité de la surface de l'éprouvette en fonction de la température, ce qui est nécessaire pour la mesure par thermographie proche infra-rouge. Le mouchetis est déposé uniquement dans la région de l'éprouvette où est mise en oeuvre les mesures des champs cinématiques et thermique.

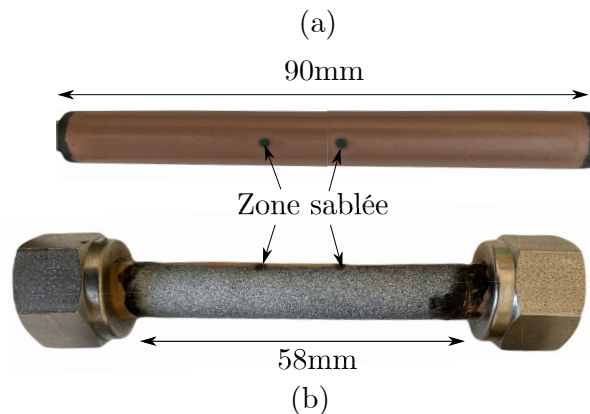


Figure 4.1 : Éprouvette avec (b) et sans (a) les raccords Swagelock sertis et le mouchetis. La couche de pré-oxyde est localement retirée par sablage pour permettre la soudure des thermocouples.

4.3 Le dispositif ELLIE

Les essais de ballonnement sont réalisés sur le dispositif ELLIE situé au Laboratoire de Mécanique des Contacts et des Structures (LaMCoS) de l'Insa de Lyon. Une vue d'ensemble du dispositif ELLIE est présentée sur la Figure 4.2. Un schéma de principe du dispositif et des moyens de mesure est également présenté en Figure 4.3. Une pression interne comprise entre 1 et 100 bar peut être imposée en utilisant de l'argon seul ou un mélange d'argon

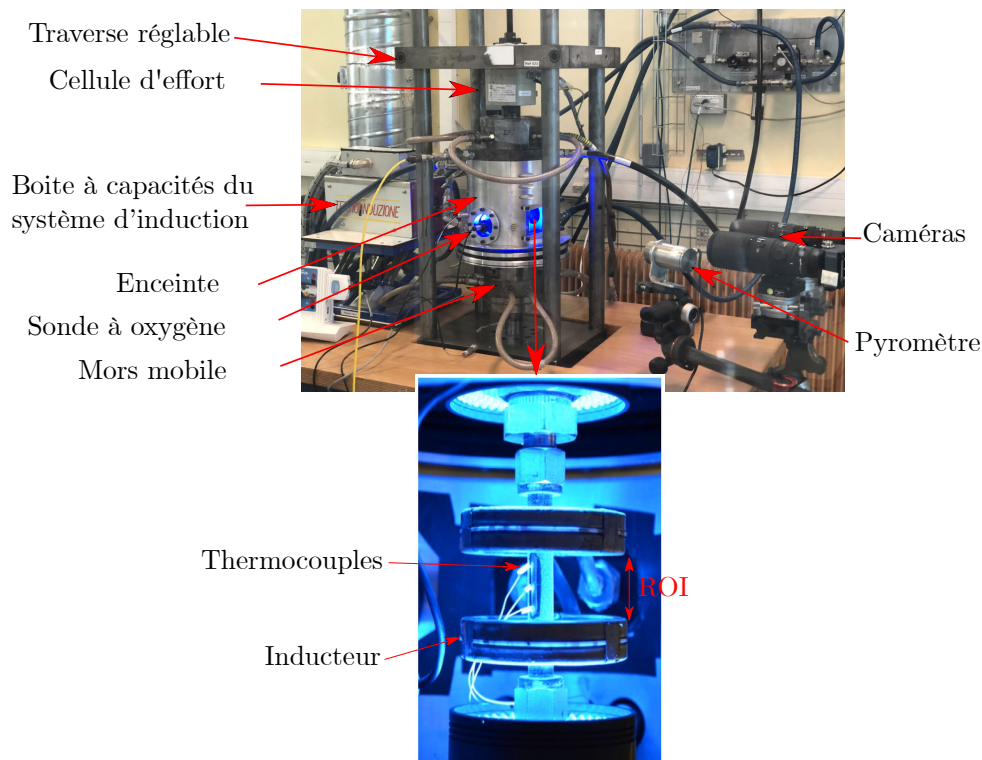


Figure 4.2 : Photo du dispositif ELLIE

(80%)+oxygène (20%) selon l'environnement d'essai souhaité. La pression est régulée par un capteur IMF-D386. Un capteur supplémentaire HBM-P8AP mesure la pression au niveau du mors inférieur. L'éprouvette est montée sur une machine de traction hydraulique Schenck 10kN munie d'un capteur de force et d'un capteur de position LVDT permettant de mesurer l'effort axial et le déplacement du mors inférieur pendant les essais.

Un système de chauffage par induction, composé d'un inducteur (2x2) spires relié à un générateur de puissance ThermoInduzione de 30kW, permet de chauffer les éprouvettes jusqu'à des températures de 1100°C et des vitesses de 1500°C/s. La géométrie de l'inducteur positionne la température maximale au centre de la zone d'intérêt (en anglais Region Of Interest : ROI). La hauteur de la ROI est limitée par l'espacement entre les spires supérieures et inférieures et est d'environ 20mm. Le contrôle de la température pendant l'essai est réalisé à l'aide d'un des thermocouples soudé sur l'échantillon. Un pyromètre CTLM-2HCF4-C3 de longueur d'onde $\lambda = 1,6\mu\text{m}$ permet une mesure supplémentaire de la température au centre de la ROI avec une précision d'environ 0,7%. Les mors sont refroidis à l'eau ce qui limite la température de l'éprouvette au niveau des mors à 500°C pendant les essais [22]. Des images sont prises périodiquement pendant toute la durée des essais à l'aide de deux caméras CMOS 12MPx(VC-12MC-M65E0-FM), espacées de 18°, à travers une fenêtre optique en saphir (BK7). Ces caméras sont équipées d'optiques 200mm sur lesquelles sont montés des filtres passe bande dans le proche infrarouge (longueur d'onde $\lambda = 860 \pm 10\text{nm}$), afin de mesurer uniquement le rayonnement induit par l'incandescence de l'éprouvette aux hautes températures. Pour éviter des problèmes d'aberrations chromatiques aux hautes températures, la mise au point des caméras (à froid) est réalisée en éclairant l'éprouvette dans le proche infrarouge à l'aide d'un anneau LED ayant une lon-

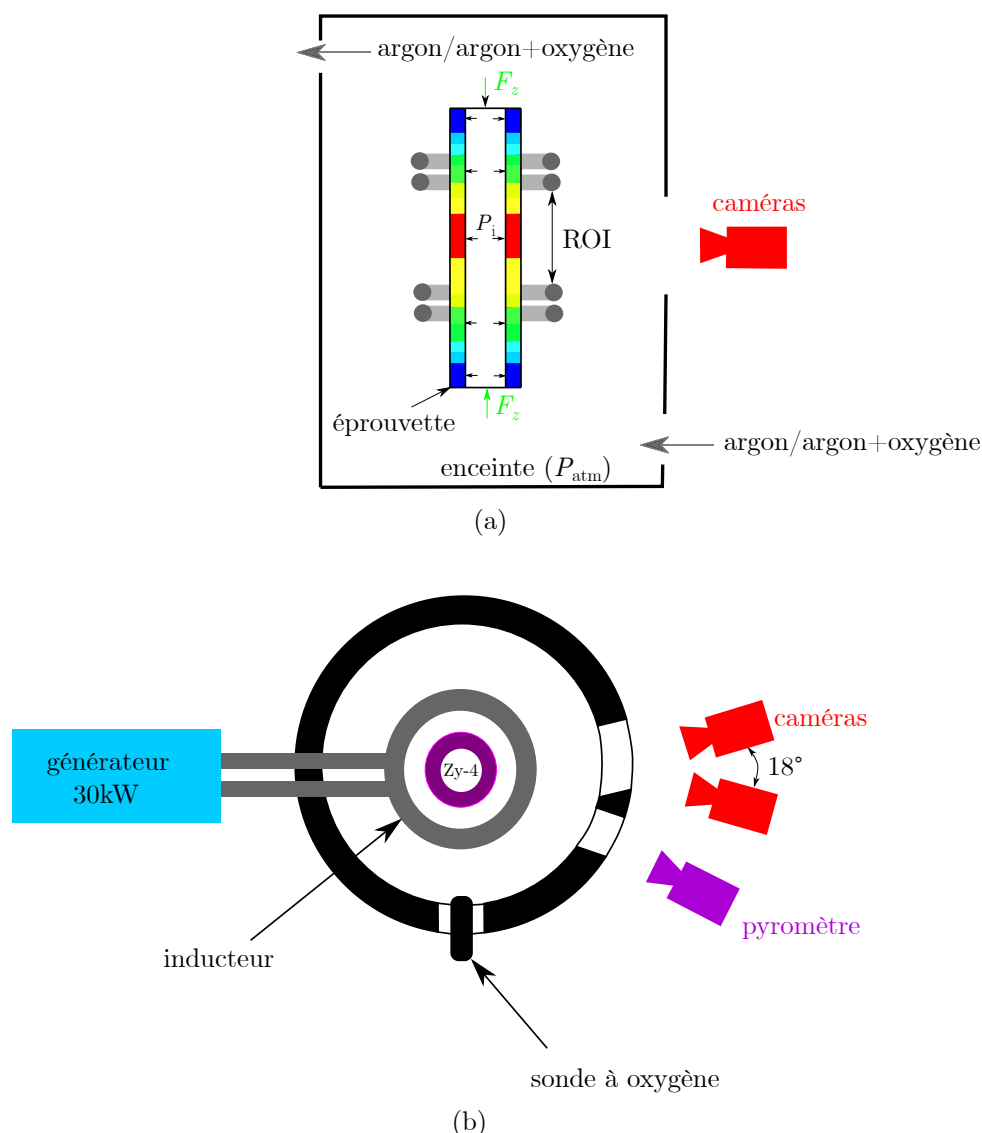


Figure 4.3 : Principe de fonctionnement du dispositif ELLIE : (a) vue de face ; (b) vue de dessus.

gueur d'onde identique à celle des filtres ($\lambda = 860\text{nm}$). Les caméras sont réglées avec une ouverture f11 pour avoir un bon compromis entre la profondeur de champ et un signal suffisamment fort à haute température. Le temps d'exposition des caméras est fixée à 35ms, de façon à pouvoir observer une plage de température de $[750-850^\circ\text{C}]$ sans saturation. Afin de contrôler l'environnement, les essais se déroulent à l'intérieur d'une enceinte sous balayage d'argon ou mélange d'argon (80%)+dioxygène (20%). Une sonde optique à oxygène ES16634 est installée dans l'enceinte pour contrôler l'environnement de l'essai. Elle permet de vérifier l'étanchéité de l'enceinte et d'ajuster au besoin le débit de balayage. La Figure 4.4 présente l'évolution typique de la teneur en oxygène dans l'enceinte durant un essai sous argon et sous mélange d'argon (80%)+dioxygène (20%). Le niveau d'étanchéité de l'enceinte ne permet pas d'atteindre des teneurs en oxygène en deçà de 2% pour les essais sous argon seul.

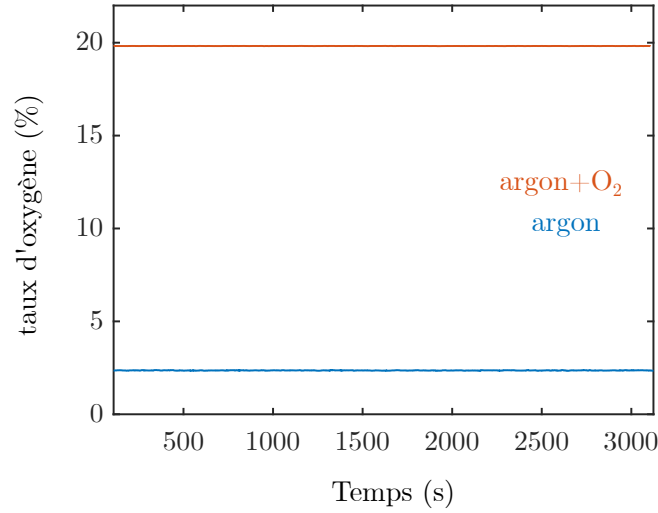


Figure 4.4 : Évolution de la teneur en oxygène dans l'enceinte durant un essai sous mélange d'argon (80%)+dioxygène (20%) et sous argon seul

4.4 Procédure de chargement

La procédure de chargement suivie pour l'ensemble des essais réalisés est présentée en Figure 4.5. Le chargement thermique est tout d'abord appliqué avec une régulation en

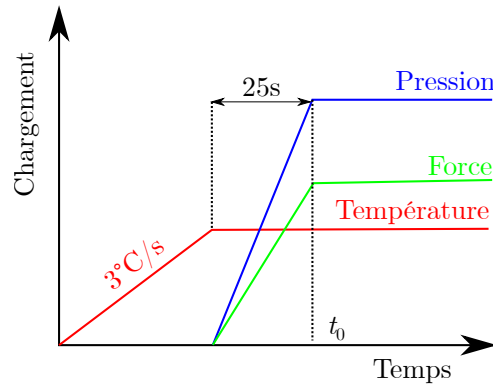


Figure 4.5 : Procédure de chargement

boucle fermée. Le régulation se fait à partir du thermocouple inférieur moins soumis au ballonnement de l'éprouvette (cf. Figure 4.6). Une consigne de température de 800°C est appliquée avec une vitesse de chauffe de 3°C/s. Le chargement mécanique de pressurisation interne et de compression axiale est ensuite imposé puis maintenu pour observer le comportement en fluage de la gaine. La force de compression est calculée de manière à compenser l'effet de fond induit par la pression interne au niveau des mors :

$$F_z = P_i \cdot \pi \cdot R_i^2, \quad (4.1)$$

où R_i est le rayon interne de l'éprouvette. Il s'agit donc d'un essai initialement uniaxial conduit sous contrainte circonférentielle. Notons qu'en conditions réelles d'APRP, la pression interne ainsi que l'effort de compression axiale due à la dilatation thermique de la

gaine gênée par la liaison au niveau des grilles, sont mal connus. L'influence du taux de biaxialité qui est un paramètre important mais mal maîtrisé ne sera pas étudiée ici.

4.5 Les moyens de mesure

Les deux caméras CMOS permettent l'acquisition d'images de la ROI pendant toute la durée de l'essai jusqu'à des fréquences d'acquisition de 55Hz. Ces images sont utilisées pour réaliser simultanément la mesure du champ de déplacements par corrélation d'images et du champ de température par thermographie proche infrarouge. Cela permet d'avoir aux mêmes endroits et aux mêmes instants les mesures thermiques et cinématiques. Notons tout de même que peu importe le réglage des caméras, aucune mesure n'est possible en dessous de 700°C environ car le rayonnement de l'éprouvette n'est pas encore assez important.

4.5.1 Mesure du champ cinématique

Le logiciel de stéréo-corrélation globale UFreckles, développé par Réthoré [239], est utilisé pour réaliser l'analyse d'images et reconstruire le champ de déplacements en surface externe de l'éprouvette. L'utilisation de deux caméras permet la détermination du champ de déplacements 3D. Une calibration est cependant nécessaire pour reconstruire la géométrie 3D de l'éprouvette à partir des images prises par chacune des caméras. Pour plus de détails sur cette calibration le lecteur peut se référer à [22]. Le bruit de mesure correspond à un déplacement hors plan d'environ 5µm et d'environ 1µm dans le plan de l'image [22]. Des éléments quadrangles à interpolation linéaire de 30x30px² sont utilisés pour cette analyse (1px~9µm). Le maillage de corrélation est illustré en Figure 4.6.

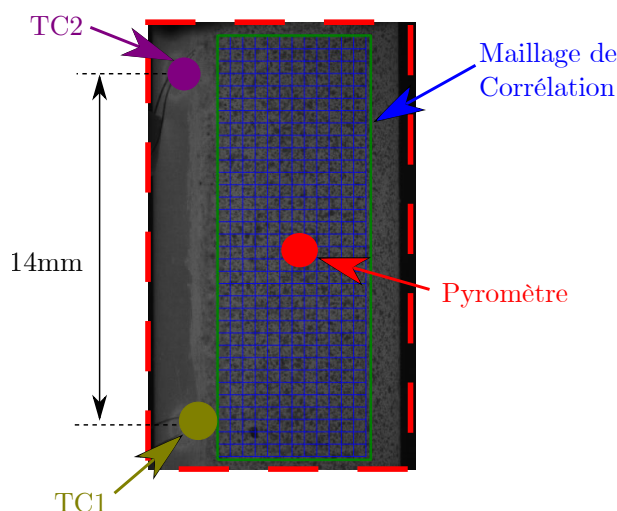


Figure 4.6 : Exemple d'image de la ROI avec positionnement du maillage de corrélation et illustration d'un mouchetis de référence. L'image a été prise à une température de $T = 800^{\circ}\text{C}$.

Le flot optique n'étant pas conservé durant l'essai, une correction du niveau de gris est réalisée localement dans chaque élément [240].

4.5.2 Mesure du champ thermique

Le champ thermique en surface de la gaine est déterminé par thermographie proche infrarouge (PIR). Cette technique lie l'intensité lumineuse I de chaque pixel de l'image à sa température, T , à travers un modèle radiométrique basé sur la loi de Planck et l'approximation de Wien [236] :

$$T = \frac{K_1}{\ln\left(\frac{K_2}{I} + 1\right)}, \quad (4.2)$$

où K_1 et K_2 sont des constantes identifiées pour chaque essai à partir des données des thermocouples pendant le transitoire thermique. Le processus d'identification des deux constantes du modèle radiométrique (cf. Équation 4.2) est basé sur la minimisation de la fonction erreur définie comme suit :

$$er^2 = \frac{K_1}{\ln\left(\frac{K_2}{I_{TC}} + 1\right)} - T_{TC}, \quad (4.3)$$

avec T_{TC} les températures mesurées par les thermocouples lors du transitoire et I_{TC} l'intensité lumineuse au niveau des thermocouples (cf. Figure 4.6). A noter que les zones retenues doivent être situées dans le mouchetis à côté des thermocouples. Seuls les pixels correspondant à la peinture noire ayant une émissivité plus stable que la peinture blanche sont utilisés dans le processus d'identification. Notons que les pixels correspondant à la peinture noire qui ont une émissivité supérieure à celle de la peinture blanche apparaissent plus claire que les pixels correspondant à la peinture blanche. Ces pixels liés à la peinture noire sont estimés à 30% des pixels les plus clairs dans les zones des thermocouples [15]. Il est possible d'inclure ce seuil dans l'ensemble des paramètres à identifier. Toutefois, celui-ci reste relativement stable d'un essai à l'autre [22].

La précision de la mesure obtenue par PIR est comparable à celle des thermocouples (0,7%) utilisés pour identifier le modèle radiométrique [241], soit 6°C pour une température de 820°C.

4.6 Matrice d'essais réalisés

La matrice des essais de ballonnement réalisés sur des éprouvettes pré-oxydées est donnée dans le Tableau 4.1. Trois types d'éprouvettes qui diffèrent par l'épaisseur de la couche de pré-oxyde en surface externe (10, 30, 60µm) ont été testés. Cinq mesures azimutales au permascope sont réalisés en surface externe à l'issue de la phase de pré-oxydation pour déterminer l'épaisseur d'oxyde réelles ainsi que son écart type. L'épaisseur de la couche de pré-oxyde interne pour l'ensemble des éprouvettes pré-oxydées se situe autour de 10µm. Les éprouvettes pré-oxydées sont désignées par $Pox_{a/b}$ où a et b sont respectivement les épaisseurs (en µm) des couches de $ZrO_{2,BT}$ visées en surface interne et externe. Ainsi, $Pox_{10/30}$ est une éprouvette pré-oxydée avec une couche de $ZrO_{2,BT}$ d'épaisseur 10µm environ en surface interne et 30µm environ en surface externe. Trois niveaux de pression interne (20, 30, 50 bar) ont été testés sur ces éprouvettes. La majorité

des essais est réalisée en environnement oxydant (argon(80%)+oxygène(20%)). Quelques-uns sont également conduits en environnement neutre (argon seul) afin d'étudier l'impact de l'atmosphère de l'essai. Quelques gaines vierges ont aussi été testées afin de mettre clairement en évidence l'effet de la couche de pré-oxyde. La matrice des essais réalisés sur les gaines vierges est donnée dans le Tableau 4.2

4.7 Caractérisation de l'état initial des éprouvettes

Deux moyens de mesure complémentaires ont été utilisés afin de caractériser l'état initial de la couche de $ZrO_{2,BT}$ après la phase de pré-oxydation et avant l'essai de fluage. Il s'agit des métallographies optiques et la laminographie. La laminographie a été utilisée pour caractériser l'état d'endommagement dans le plan $r - z$ direction axiale tandis que les métallographies ont permis de caractériser l'état d'endommagement dans le plan $r - \theta$.

4.7.1 Laminographie

La laminographie est une technique d'imagerie tridimensionnelle non destructive permettant de reconstituer le volume 3D d'un objet par tranche [242,243]. Il s'agit d'un type particulier de tomographie à rayons X qui permet l'examen d'échantillons de "grandes" dimensions comparées aux "petits" échantillons de tomographie habituels. L'analyse en laminographie est effectuée avec un tomographe à rayons X EasyTom Nano situé au laboratoire Mateis de l'Insa de Lyon ayant une résolution de l'ordre du micromètre. La Figure 4.7 montre des images de la surface externe pour des éprouvettes de différentes épaisseurs de couche de pré-oxyde. On met en évidence la présence d'un réseau de fissures axiales sur l'éprouvette de plus grande épaisseur d'oxyde externe (Pox/10/60 cf. Figure 4.7c) tandis que ce réseau de fissures n'est pas observé pour les éprouvettes avec faibles épaisseurs de pré-oxyde (Pox 10/10 cf. Figure 4.7a et Pox 10/30 cf. Figure 4.7b).

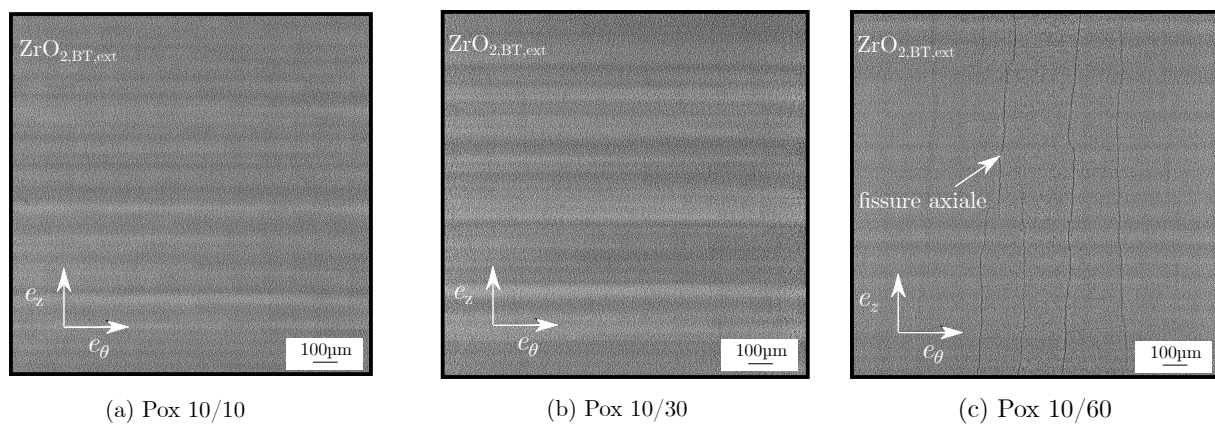


Figure 4.7 : Laminographie de la surface externe pour différentes épaisseurs de la couche de pré-oxyde après pré-oxydation sous air à 470°C.

ID. Ech	$e_{\text{ZrO}_2, \text{BT}, \text{ext}}$	ΔT	t_f (s)	P_i (bar)	Environnement
Pox10/10-1	11,2±0,5	772-807	2290	20	argon(80%)+oxygène(20%)
Pox10/10-2	9,3±0,4	797-818	3599		
Pox10/30-1*	32,6±0,3	783-802	3316		
Pox10/60-1*	32,6±0,3	777-802	860		
Pox10/10-3	9,6±0,5	796-813	15	30	argon(80%)+oxygène(20%)
Pox10/10-4	9,7±0,6	802-813	105		
Pox10/10-5	10,5±0,3	801-809	236		
Pox10/10-6	9,4±0,2	803-814	405		
Pox10/10-7*	10,1±0,6	793-802	1131		
Pox10/30-2	25,7±0,7	805-813	322		
Pox10/30-3	29,9±1,2	790-804	665		
Pox10/30-4	24,4±1,5	801-808	721		
Pox10/30-5*	30,6±0,7	796-805	1301	50	argon(80%)+oxygène(20%)
Pox10/60-2*	63,6±2,7	802-812	409		
Pox10/10-8*	10,0±0,6	793-803	84	50	argon(80%)+oxygène(20%)
Pox10/60-3*	51,5±3,9	795-802	56		
Pox10/10-9*	9,9±0,4	809-814	739	30	argon
Pox10/30-6*	29,9±1,3	799-812	908		
Pox10/60-4*	70,4±1,3	805-810	236		
Pox10/10-10	9,4	808-813	16	50	argon
Pox10/10-11	9,8	801-808	48		
Pox10/10-12	9,8	799-807	72		
Pox10/10-13*	9,0	804-813	65		
Pox10/30-7*	33,5±2,4	802-812	75		
Pox10/30-8*	29,4±1,0	800-804	96		

Tableau 4.1 : Matrice d'essais de ballonnement sur des gaines pré-oxydées (* :correspond aux essais qui ont été menés jusqu'à l'éclatement de l'éprouvette). $e_{\text{ZrO}_2, \text{BT}, \text{ext}}$ est l'épaisseur de la couche de pré-oxyde en surface externe. ΔT la variation de température au centre de la ROI entre 0 et 3% de déformation, t_f est la durée de l'essai et P_i la pression interne.

ID. Ech	$\Delta T(^{\circ}\text{C})$	t_f (s)	P_i (bar)	Environnement
V1	797-803	2902	20	argon+oxygène
V2	797-804	1175	30	argon+oxygène
V3	796-817	2923	20	argon
V4*	816-820	559	30	argon
V5*	810-817	469		
V6*	791-794	90	50	argon
V7*	801-808	74		

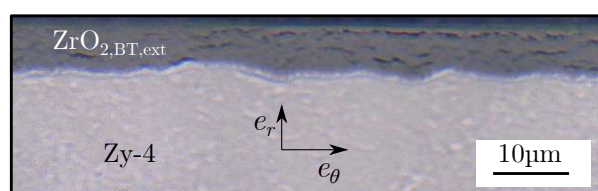
Tableau 4.2 : Matrice d'essais de ballonnement sur des gaines vierges (* : correspond aux essais qui ont été menés jusqu'à l'éclatement de l'éprouvette). ΔT la variation de température au centre de la ROI entre 0 et 3% de déformation, t_f est la durée de l'essai et P_i la pression interne.

4.7.2 Métallographie optique

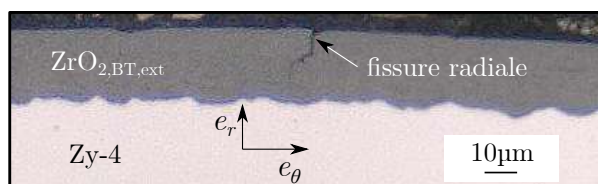
Des métallographies optiques effectuées au microscope optique Keyence VHX 5000 (cf. Chapitre 3) permettent l'examen de l'état initial de la couche de pré-oxyde dans son épaisseur. La Figure 4.8 illustre la morphologie de la couche de $\text{ZrO}_{2,\text{BT}}$ en surface externe pour différentes épaisseurs. Ces métallographies optiques permettent les constats suivants :

- Pour le pré-oxyde d'épaisseur $10\mu\text{m}$ (Pox10/10 cf. Figure 4.8a), on observe des porosités/fissures circonférentielles mais pas de fissures radiales.
- Pour le pré-oxyde d'épaisseur $30\mu\text{m}$ (Pox 10/30 cf. Figure 4.8b), on observe quelques fissures radiales mais celles-ci sont très espacées et n'atteignent pas l'interface Zy-4/ ZrO_2 . Les porosités/fissures sont également présentes mais moins bien résolues optiquement car l'image a été prise avec un grossissement moins important.
- Enfin pour le pré-oxyde d'épaisseur $60\mu\text{m}$ (Pox10/60 cf. Figure 4.8c), on observe une dégradation plus importante de la couche de pré-oxyde avec notamment une densité élevée de fissures circonférentielles au voisinage de l'interface Zy-4/ ZrO_2 . Ces fissures circonférentielles tendent à délaminer la couche de ZrO_2 .

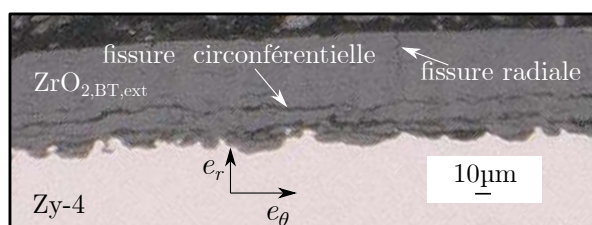
La couche de pré-oxyde se dégrade progressivement durant la phase de pré-oxydation. Notons tout de même qu'il n'est pas exclu que des biais spécifiques liés à la métallographie (notamment la phase de polissage mécano-chimique), modifient la structure des couches de pré-oxyde. Ces résultats sont cohérents avec ceux de Busser [5] et Dominguez [16] qui observent l'apparition de fissures radiales entre $[30-40]\mu\text{m}$. Cependant, il est important de préciser qu'en réacteur ces fissures radiales apparaissent à partir d'épaisseurs de couche d'oxyde bien plus élevées (supérieure à $80\mu\text{m}$ à l'issue de l'examen d'un crayon soumis à 6 cycles d'irradiation en REP [17]). L'apparition précoce des fissures radiales est une conséquence des conditions de pré-oxydation (sous air à 470°C). On souligne aussi qu'en irradiation de base, la pression du circuit primaire qui est supérieure à la pression de remplissage retarde cette fissuration.



(a) Pox 10/10



(b) Pox 10/30



(c) Pox 10/60

Figure 4.8 : Métallographies optiques pour différentes épaisseurs de la couche de ZrO_2 après pré-oxydation sous air à 470°C . Les examens sont réalisés à la surface externe des échantillons.

4.8 Résultats des essais

4.8.1 Essais sur éprouvette vierge en atmosphère argon

Les essais réalisés dans cette thèse prolongent les travaux de Campello [15] et de Jailin [22]. Afin de s'assurer du bon fonctionnement du banc, l'essai V7* réalisé sur une gaine vierge en atmosphère neutre est analysé de manière détaillée. Cela permet aussi d'illustrer la méthode de post-traitement des essais. La figure illustre l'évolution temporelle de la teneur en oxygène dans l'enceinte pour l'essai V7*

4.8.1.1 Analyse des champs cinématiques et thermiques

La Figure 4.9 illustre le résultat de l'identification du modèle radiométrique pour l'essai V7* selon le processus présenté en section 4.5.2. Une comparaison entre les températures des thermocouples, du pyromètre et le modèle radiométrique est présentée. La thermographie est en très bon accord avec les thermocouples et le pyromètre.

Pour l'analyse cinématique, les essais peuvent être post-traités en 2D en utilisant les images prises par l'une des deux caméras (2D-CIN) [15] ou en 3D en combinant les images des deux caméras (3D-CIN) [22]. La 2D-CIN donne uniquement accès aux déplacements dans le plan de l'image tandis que la 3D-CIN donne également accès au déplacement hors plan de l'image. On peut déduire la déformation de l'éprouvette des champs de

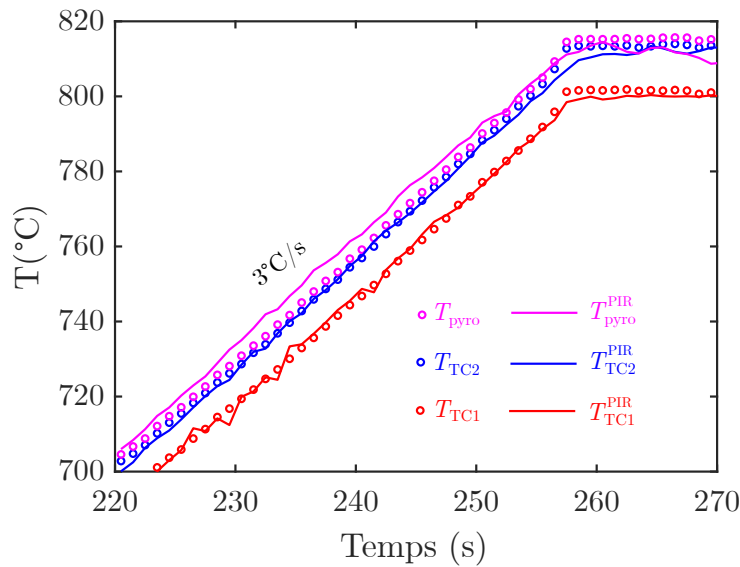


Figure 4.9 : Résultats de l'identification du modèle radiométrique pour l'essai V7*. T_{TC1} , T_{TC2} , T_{pyro} sont les températures des thermocouples et du pyromètre. T_{TC1}^{PIR} , T_{TC2}^{PIR} , T_{pyro}^{PIR} sont les températures obtenues par thermographie dans les zones des thermocouples et du pyromètre (cf. Figure 4.6).

déplacement mesurés. Pour la 2D-CIN la déformation est définie par :

$$\varepsilon = \frac{\Delta l}{l_0}, \quad (4.4)$$

avec l la largeur de la ROI (cf. Figure 4.10(a)). Pour la 3D-CIN qui donne accès au déplacement radial (u_r), la déformation est définie par :

$$\varepsilon = \frac{u_r}{R_e}, \quad (4.5)$$

avec R_e le rayon externe initial. Sous l'hypothèse d'une déformation axisymétrique de l'éprouvette, les deux définitions précédentes de la déformation pour l'évaluation de la déformation circonférentielle sont équivalentes. Le champ de déformation à $t = 65s$ pour l'essai V7* obtenu par 3D-CIN est illustré en Figure 4.10(a). Le champ thermique correspondant est présenté en Figure 4.10(b). La température est supposée constante dans chaque élément et calculée à partir du niveau de gris moyen des pixels correspondant à la peinture noire de l'élément (on estime à 30%, le pourcentage de pixels noirs dans chaque élément). On constate une bonne cohérence entre les champs cinématiques et thermiques. Ce qui est attendu à cette température (domaine α). Il résulte de la géométrie de l'inducteur un gradient axial de température avec un maximum positionné au centre la ROI (cf. Figure 4.10b).

La Figure 4.11 présente l'évolution temporelle de la déformation obtenue par 3D-CIN pour tous les noeuds du maillage de corrélation. La température obtenue par thermographie PIR est également illustrée. Cette représentation des champs thermiques et cinématiques sur un même graphe met en évidence une amplification de l'hétérogénéité thermique qui augmente avec la déformation de l'éprouvette, lorsqu'une zone de l'éprouvette se rapproche de l'inducteur en ballonnant. Ainsi, bien que la consigne de température de l'essai

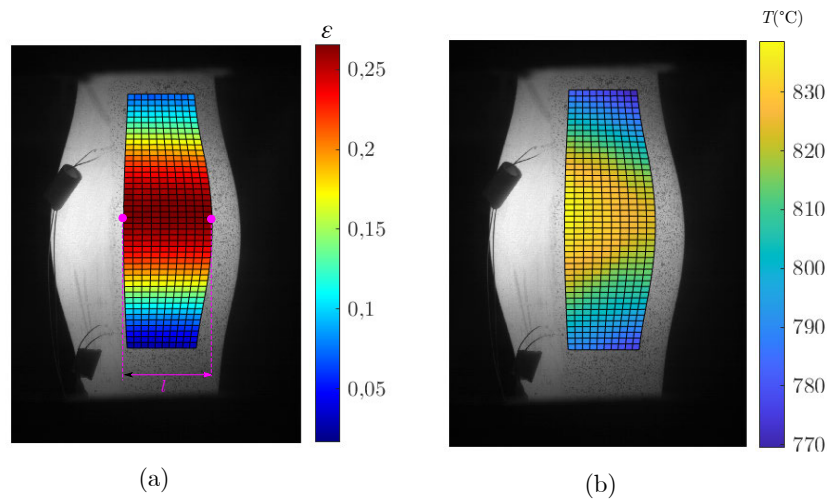


Figure 4.10 : Champs cinématique et thermique à $t = 65s$ pour l'essai V7*.

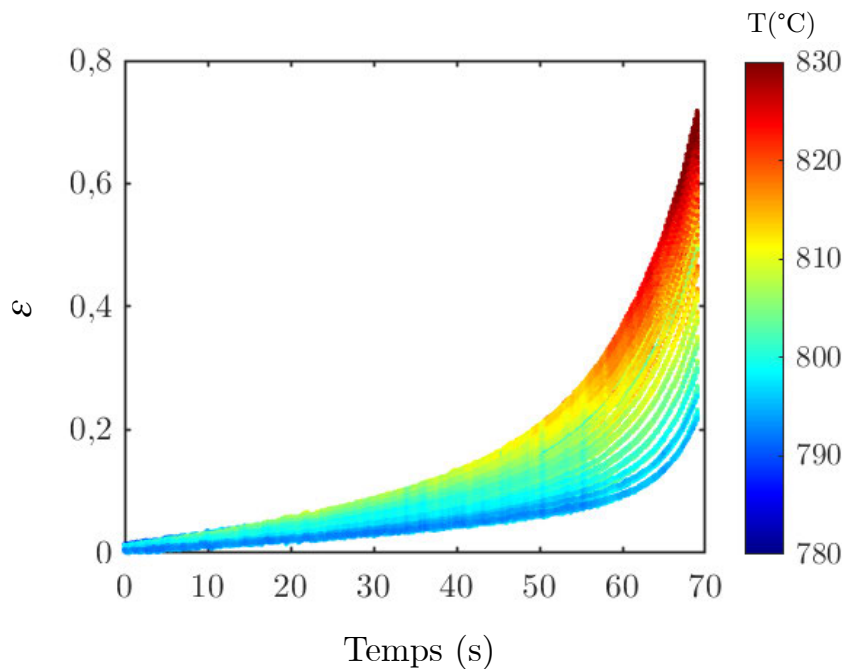


Figure 4.11 : Évolution de la déformation obtenue par 3D-CIN (cf. Équation 4.5) pour l'essai V7*. La déformation pour tous les noeuds du maillage de corrélation est représentée.

ait été fixée à 800°C , la température du point le plus chaud atteint environ 830°C juste avant l'éclatement de l'éprouvette. Nous rappelons que l'asservissement est réalisé sur le thermocouple du bas moins sensible au ballonnement de l'éprouvette car situé dans une zone plus froide.

La vitesse de déformation est déduite par linéarisation des données cinématiques dans le régime de fluage secondaire. Entre 0 et 3% de déformation, l'éprouvette se déforme en régime secondaire. La température maximale étant inférieure à 820°C , le matériau est exclusivement présent sous sa forme α . Cette plage de déformation a donc été retenue pour évaluer la vitesse de déformation.

La Figure 4.12 compare les profils de vitesse de déformation obtenue par 2D-CIN et

3D-CIN pour l'essai V7*. Le champ de vitesse de déformation obtenu par 3D-CIN (cf. Figure 4.12(a)) ainsi que le champ de température moyenné entre 0 et 3% de déformation (cf. Figure 4.12(c)) sont représentés. Les profils de vitesse de déformation obtenu par 2D-

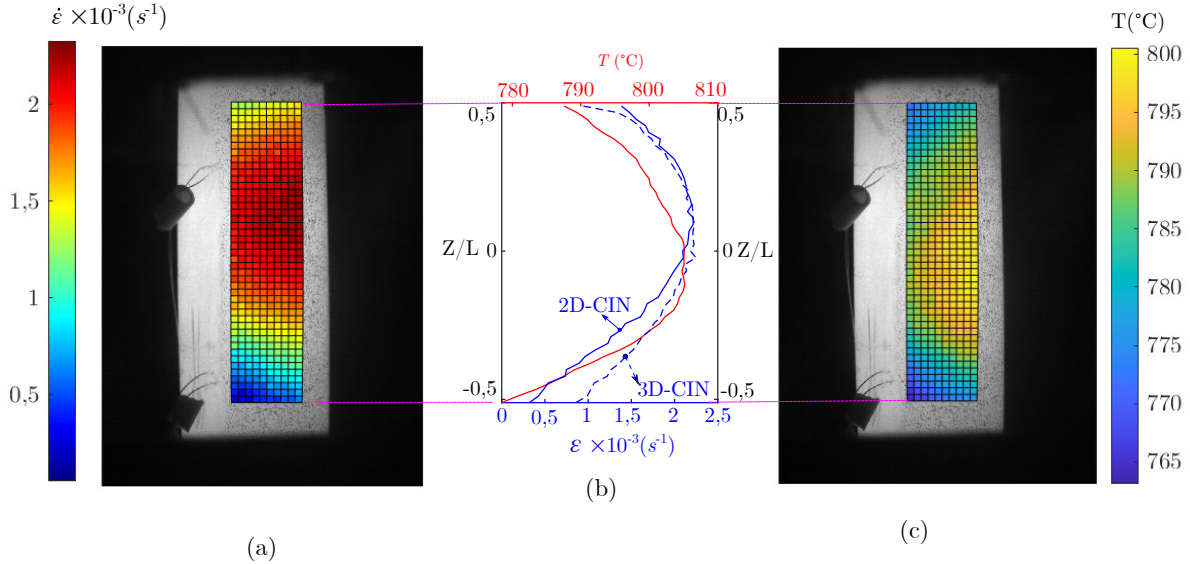


Figure 4.12 : Résultat de l'essai de ballonnement sur l'éprouvette V7*. (a) champ de vitesse de déformation obtenue par 3D-CIN. (b) comparaison du profil axial de vitesse de déformation (2D-CIN et 3D-CIN) avec le profil thermique moyen sur la génératrice centrale de la ROI. Pour la 3D-CIN, le profil de déformation est extrait sur la génératrice centrale. (c) champ de température moyenné.

CIN et par 3D-CIN sont comparables, ce qui traduit le caractère quasi-axisymétrique de l'essai. Dans la suite, les essais sont tous post-traités en 2D-CIN. La 3D-CIN induit un bruit plus important que la 2D-CIN (cf. Annexe D).

4.8.1.2 Vitesse de déformation sur vierge en atmosphère neutre

L'évolution de la déformation en régime de fluage secondaire au centre de la ROI pour l'ensemble des essais réalisés sur des éprouvettes vierges en atmosphère argon est présentée en Figure 4.13. Les vitesses de déformations correspondantes sont résumées dans le Tableau 4.3. Les résultats obtenus dans ce travail sont comparés avec les lois de fluage de la littérature (cf. Tableau 1.6). La contrainte dans l'éprouvette nécessaire pour calculer la vitesse de déformation est donnée par [22] :

$$\sigma = \frac{P_i \cdot R_i}{e} \quad (4.6)$$

où σ est la contrainte circonférentielle induite par la pression interne P_i , $R_i = 4,18\text{mm}$ est le rayon interne initial et $e = 0,57\text{mm}$ est l'épaisseur initiale de la gaine vierge. L'équation 4.6 est établie sous l'hypothèse des petites déformations en assimilant l'éprouvette à un cylindre à paroi mince sous pression.

L'écart maximal entre les vitesses de fluage obtenues dans ce travail et celles prédites par la loi proposée par Campello [26] est d'environ 60%, ce qui est considéré comme acceptable pour ce type d'essais. On peut estimer en première approximation l'incertitude

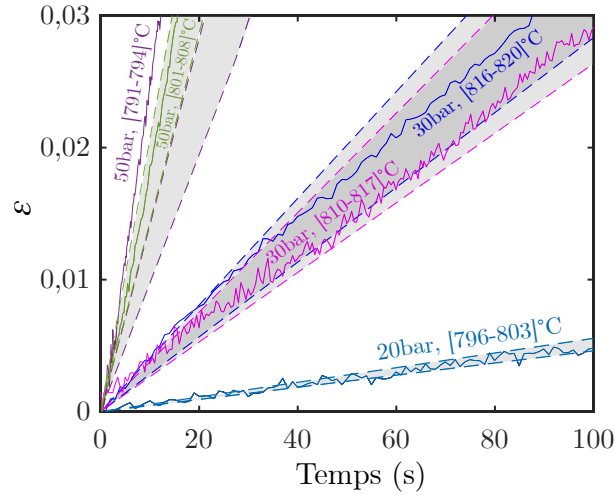


Figure 4.13 : Évolution de la déformation au centre de la ROI obtenue par 2D-CIN pour l'ensemble des essais réalisés sur des éprouvettes vierges sous atmosphère d'argon. La plage de variation de la température obtenue par thermographie PIR est spécifiée pour chaque essai. Les faisceaux définissent la zone d'incertitude en considérant une incertitude de 6°C sur la base de la loi proposée par Campello (cf. Tableau 4.4).

sur la vitesse de déformation en considérant uniquement l'incertitude thermique (6°C) de la manière suivante :

$$\frac{\dot{\varepsilon}(T + \Delta T) - \dot{\varepsilon}(T)}{\dot{\varepsilon}(T)} = \exp \left[\frac{-Q}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T + \Delta T} \right) \right]. \quad (4.7)$$

Dans l'Équation 4.7, pour $\Delta T = 6^\circ\text{C}$, $R = 8,314 \text{ J/mol/K}$ et $Q = 293 \text{ kJ/mol}$ (énergie d'activation du régime dislocation, cf. Tableau 4.4), on aboutit à une incertitude d'environ 20% sur la vitesse de fluage, sachant qu'à cela s'ajoute l'effet de la température sur les propriétés mécaniques et d'éventuels effets structurels.

Un écart maximal plus important de l'ordre 158%, est constaté entre les vitesses de fluage obtenues dans ce travail celles prédites par la loi proposée par Fréchinnet [13]. Plusieurs éléments comme le type de chargement et les moyens de mesures peuvent expliquer cet écart plus important par rapport à la loi de fluage proposée par Fréchinnet [13]. Dans la suite, la loi proposée par Campello [26] servira de référence pour l'analyse des essais sur les éprouvettes pré-oxydées. Les paramètres de la loi de Norton proposée par Campello [26], utilisée dans la suite sont rappelés dans le Tableau 4.4. La loi de fluage du régime diffusionnel ($n = 1,66$) est utilisée pour décrire les essais à 20bar tandis que la loi de fluage du régime dislocation ($n = 3,92$) est utilisée pour les essais à 30 et 50bar. Notons que les essais à 30bar induisant une contrainte de 22MPa, sortent du domaine de validité du régime dislocation (30-47MPa) mais permettent de mieux représenter les essais sur éprouvettes vierges réalisés dans ce travail par rapport à la loi du régime diffusionnel.

4.8.2 Effet du pré-oxyde et de l'atmosphère de l'essai

Plusieurs essais interrompus à différents instants ont été analysés de manière détaillée afin de lier l'état structurel de la gaine à l'évolution de sa déformation pendant les essais.

ID. Ech	Ce travail	Campello [15]			Fréchinnet [13]		
		$T_{\text{moy}} - \Delta T$	T_{moy}	$T_{\text{moy}} + \Delta T$	$T_{\text{moy}} - \Delta T$	T_{moy}	$T_{\text{moy}} + \Delta T$
V3	$4,8.10^{-5}$	$4,6.10^{-5}$	$5,1.10^{-5}$	$5,6.10^{-5}$	$1,5.10^{-5}$	$1,7.10^{-5}$	$1,9.10^{-5}$
V4*	$2,8.10^{-4}$	$2,8.10^{-4}$	$3,4.10^{-4}$	$4,0.10^{-4}$	$4,7.10^{-4}$	$5,8.10^{-4}$	$6,1.10^{-4}$
V5*	$2,7.10^{-4}$	$2,6.10^{-4}$	$3,2.10^{-4}$	$3,8.10^{-4}$	$4,4.10^{-4}$	$5,3.10^{-4}$	$6,3.10^{-4}$
V6*	$2,7.10^{-3}$	$9,7.10^{-4}$	$1,2.10^{-3}$	$1,4.10^{-3}$	$2,7.10^{-3}$	$3,3.10^{-3}$	4.10^{-3}
V7*	$1,9.10^{-3}$	$1,4.10^{-3}$	$1,7.10^{-3}$	$2,1.10^{-3}$	$4,1.10^{-3}$	$4,9.10^{-3}$	$5,9.10^{-3}$

Tableau 4.3 : Vitesse de fluage (s^{-1}) pour les essais sur éprouvettes vierges sous argon et comparaison avec la littérature. Les lois de fluage de la littérature sont données dans le Tableau 1.6. La contrainte appliquée à l'éprouvette nécessaire pour calculer la vitesse de déformation (essais de Campello, Fréchinnet) est déduite de l'équation 4.6. $\Delta T = 6^\circ\text{C}$ représente l'incertitude thermique.

Domaine de validité	Paramètre de fluage	Mécanisme de fluage
750 - 800°C	$n = 1,66$; $A = 11,70 \text{ MPa}^{-n} \cdot s^{-1}$	régime diffusionnel
12 - 26 MPa	$Q = 150 \text{ kJ/mol}$	
780 - 809°C	$n = 3,92$; $A = 1,99.10^5 \text{ MPa}^{-n} \cdot s^{-1}$	régime dislocation
30 - 47 MPa	$Q = 293 \text{ kJ/mol}$	

Tableau 4.4 : Loi de fluage du Zy-4 vierge dans le domaine α sous atmosphère neutre proposée par Campello [26].

La Figure 4.14 présente l'évolution temporelle de la vitesse de déformation instantanée ($\dot{\varepsilon}$). Compte tenu du bruit de mesure, un filtrage de la déformation est indispensable pour évaluer la vitesse de déformation instantanée. Un filtre de type Butterworth [244] d'ordre 2 a été utilisé². La vitesse de déformation instantanée est normalisée par celle du

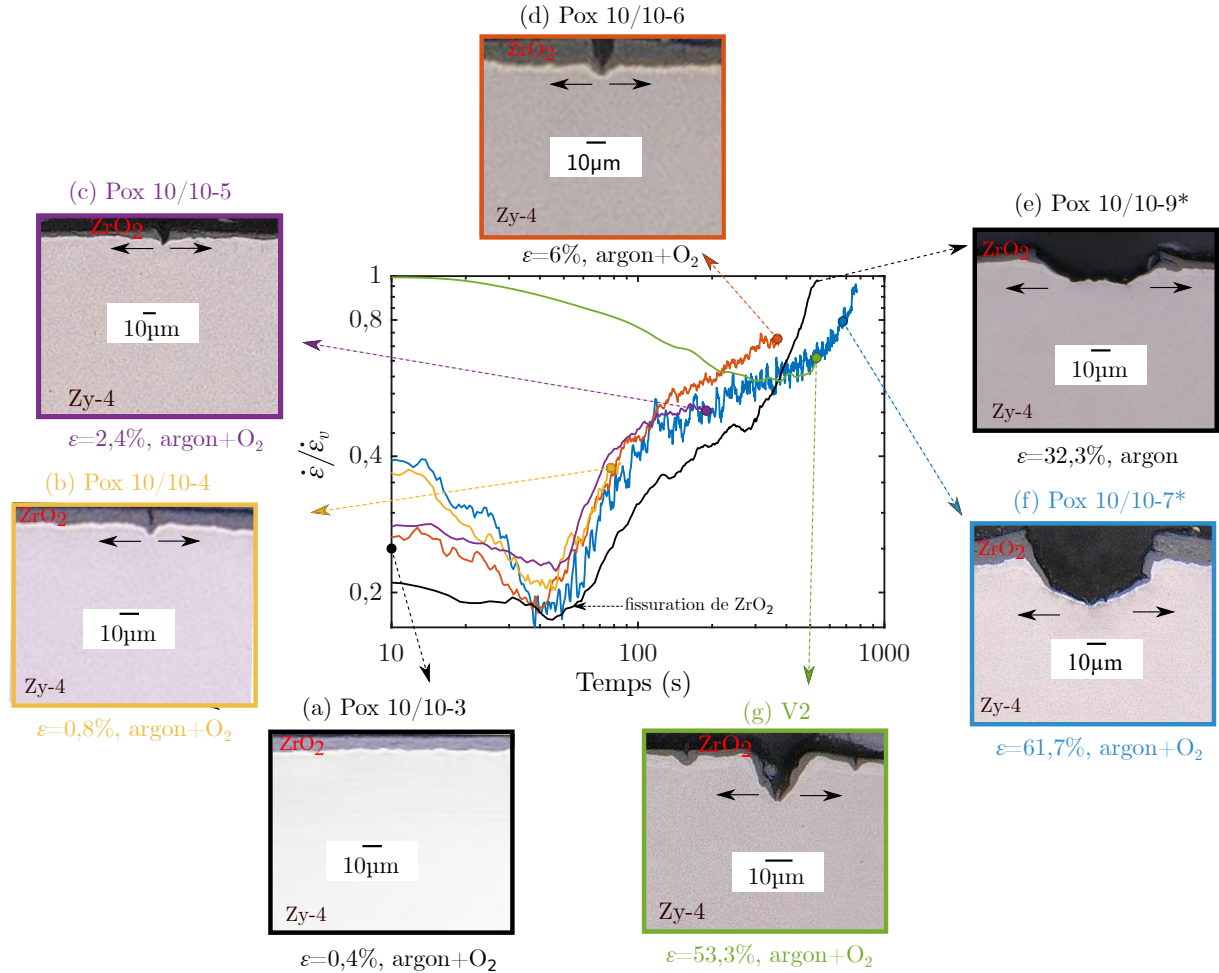


Figure 4.14 : Évolution temporelle de la vitesse de déformation instantanée ($\dot{\varepsilon}$) pour plusieurs essais interrompus à différents instants. La vitesse est normalisée par celle du matériau vierge. Des coupes métallographiques présentant l'état structural de chaque éprouvette sont présentées. Tous les essais ont été réalisés à 30bar. La déformation indiquée sur chaque métallographie représente la déformation macroscopique (obtenue par 2D-CIN, cf. Équation 4.4) à laquelle l'essai en question a été interrompu.

matériau vierge ($\dot{\varepsilon}_v$), calculée à partir de la loi proposée par Campello (cf. Tableau 4.4). La vitesse du matériau vierge d'un essai, est celle qu'aurait une éprouvette vierge dans les mêmes conditions (pression, température) que l'essai en question. Des métallographies optiques ont été effectuées à la fin de chaque essai afin de corréler la vitesse de déformation normalisée à l'état de la couche d'oxyde. La Figure 4.14 permet de faire les constats suivants :

— En début de fluage, le pré-oxyde joue un rôle renfort vis-à-vis du fluage. Tant qu'il

2. Le filtre de type Butterworth implémenté dans Matlab à travers la fonction "**butter**" a été utilisé.

n'est pas fissuré (cf. Figure 4.14(a), on observe une diminution de la vitesse de fluage jusqu'à environ $t_d = 42s$, durée au bout de laquelle le pré-oxyde se fissure.

- Après fissuration de la couche de pré-oxyde Figure 4.14(b)-(g), la vitesse de fluage ré-augmente mais reste inférieure à la vitesse de fluage du matériau vierge.
- Aucune influence claire de l'environnement oxydant n'est observée. La vitesse pour l'essai sous argon Figure 4.14(e) est comparable à la vitesse pour les essais sous argon+oxygène Figure 4.14(f). Soulignons tout de même que la présence de l'environnement oxydant modifie la morphologie de la fissure. Pour l'essai sous argon on observe une fissuration en forme de "U" tandis que sous argon+oxygène les fissures se ré-oxydent et pénètrent dans le métal de base, conduisant à des fissures en forme de "V". La ré-oxydation modifie la morphologie des fissures mais cela ne semble pas avoir d'influence sur la vitesse de déformation macroscopique de la structure.
- Pour l'essai sur l'éprouvette vierge sous atmosphère argon+oxygène Figure 4.14(g), on observe initialement une diminution de la vitesse de fluage au cours du temps induit par l'oxyde HT formée pendant l'essai. Ensuite, la couche d'oxyde HT se fissure et la vitesse ré-augmente à un rythme comparable à celui observé dans le cas d'une gaine pré-oxydée.

Les simulations réalisées au chapitre précédent ont permis de comprendre l'origine de la fissuration de l'oxyde en cours de fluage. Bien que le chargement mécanique appliqué reste constant, la différence de comportement entre l'oxyde (plutôt élastique) et le métal de base (viscoplastique) induit une relaxation des contraintes dans le métal qui est compensée par une augmentation des contraintes dans l'oxyde. L'augmentation des contraintes dans l'oxyde conduit à sa fissuration, laissant le métal à nu libre de se déformer, d'où l'augmentation de la vitesse de déformation macroscopique. La ré-oxydation modifie la morphologie des fissures mais cela n'a pas d'influence forte sur la vitesse de déformation macroscopique de la structure.

4.8.3 Analyse globale des essais

La Figure 4.15 illustre l'évolution de la déformation au centre de la ROI pour l'ensemble des essais réalisés dans ce travail. La déformation présentée est celle définie par l'Équation 4.4 et illustrée en Figure 4.10(a). Une bonne reproductibilité est observée entre les essais réalisés à des températures voisines. À un instant donné et dans des conditions de chargement thermomécanique voisines, la déformation diminue lorsque l'épaisseur d'oxyde en surface externe augmente sauf sur les éprouvettes de type Pox 10/60 pour lesquelles une accélération précoce de la déformation est observée. La fissuration de l'oxyde en cours d'essai induit une forte dégradation du mouchetis pouvant conduire à une divergence de l'algorithme de corrélation d'images pour des niveaux de déformation élevés. De plus en ballonnant l'éprouvette s'échauffe localement en s'approchant des spires et elle peut sortir du domaine α si sa température dépasse 820°C . Dans la suite, l'analyse des essais est donc limitée à des niveaux de déformations modérés. Cela permet également d'exploiter le maximum d'essais en incluant ceux ayant été interrompus à des faibles niveaux de déformations.

La Figure 4.16 présente les vitesses de déformation moyennes en fonction de l'épaisseur de la couche de pré-oxyde en surface externe. Ces vitesses moyennes ont été obtenues

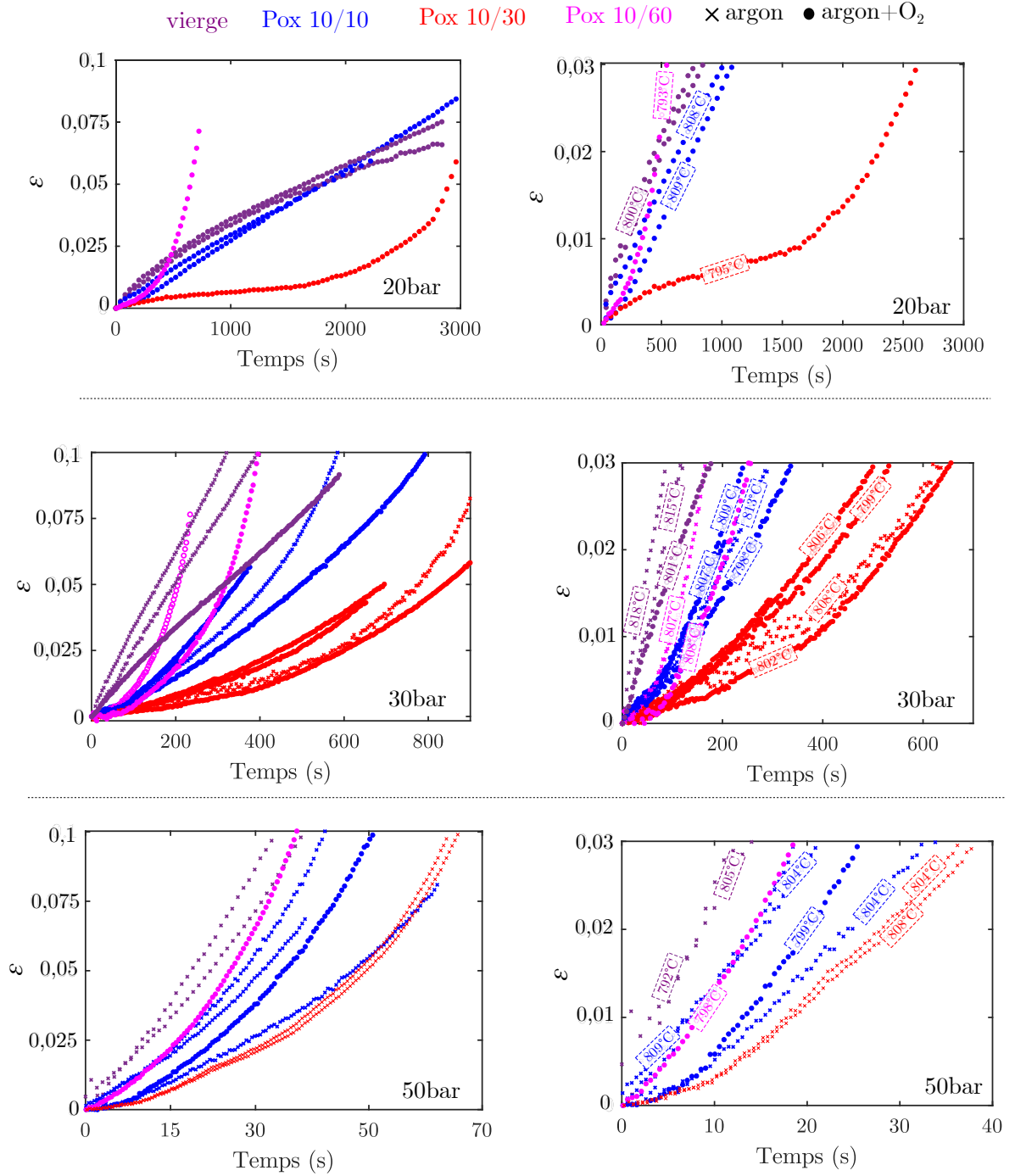


Figure 4.15 : Évolution de la déformation au centre de la ROI. Les figures de gauche présentent l'évolution de la déformation entre 0 et 10% tandis que celles de droite illustrent les mêmes résultats entre 0 et 3%. La température moyenne obtenue par thermographie PIR est spécifiée pour chaque essai. Les couleurs permettent de distinguer les essais en fonction du type d'éprouvette (épaisseur de pré-oxyde en surface externe). Le type de symbole (disque ou croix) permet de distinguer les résultats en fonction de l'atmosphère de l'essai (argon ou argon+oxygène).

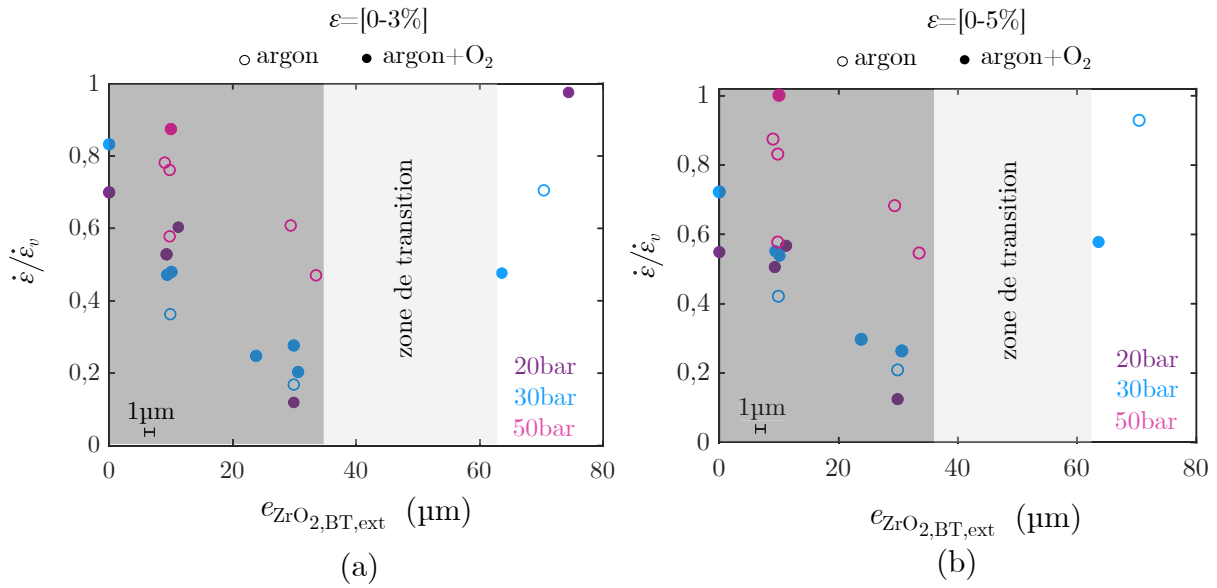


Figure 4.16 : Vitesse de déformation moyenne normalisée par celle du matériau vierge de référence en fonction de l'épaisseur de pré-oxyde en surface externe.

en linéarisant la déformation dans la plage $[0-3\%]$ pour les résultats de la Figure 4.16(a) et $[0-5\%]$ pour les résultats de la Figure 4.16(b). La vitesse de déformation moyenne est normalisée par la vitesse du matériau vierge correspondant qui est déterminée à partir de la loi proposée par Campello (cf Tableau 4.4). La température moyenne dans la plage de déformation considérée est utilisée pour évaluer la vitesse du matériau vierge correspondant. On note tout d'abord que la plage de déformation utilisée pour le calcul de la vitesse de déformation moyenne a très peu d'influence sur les résultats. Deux domaines de comportement au fluage peuvent être identifiés sur la Figure 4.16 en fonction de l'épaisseur de la couche de pré-oxyde.

- Pour des couches de pré-oxyde d'épaisseurs comprises entre 0 et 35 μm , la vitesse de déformation moyenne diminue lorsque l'épaisseur d'oxyde augmente. Elle peut être jusqu'à 10 fois inférieure à celle du matériau vierge correspondant. Cet effet renfort de l'oxyde semble dépendre de la contrainte appliquée. À 50 bar, l'effet renfort semble moins important qu'à 20 et 30 bar. Ce résultat est cohérent avec ceux de Dominguez [16] et de Chosson [14] qui constatent également que l'effet renfort s'estompe lorsque la contrainte augmente.
- Au delà de 60 μm , la vitesse de déformation ré-augmente. Cette transition est compatible avec l'état initial du pré-oxyde. Comme montré en section 4.7, les couches de pré-oxyde d'épaisseurs supérieures à 60 μm sont dans un état initial présentant plus de fissures que les couches de faibles épaisseurs (inférieure à 30 μm). La transition observée induisant une perte significative de l'effet renfort est donc une conséquence de la dégradation du pré-oxyde durant la phase de pré-oxydation.

Notons également qu'aucun effet significatif de l'environnement de l'essai (argon ou argon+oxygène) n'est observé. La ré-oxydation des fissures semble jouer un rôle au second ordre sur les vitesses de déformation macroscopiques par rapport à l'effet prépondérant de la pré-oxydation. L'état initial du pré-oxyde qui dépend de son épaisseur et de ses condi-

tions de formation agit au premier ordre sur le caractère renfort de l'oxyde. Les conclusions précédentes sont uniquement valables pour des niveaux de déformations inférieurs à 5%.

4.8.4 Caractérisation de la fissuration de la zircone

Des analyses post-mortem au microscope optique ont été réalisées sur la plupart des éprouvettes. La Figure 4.17 illustre l'aspect visuel de la ROI pour des essais interrompus à différents niveaux de déformation, ce qui permet de visualiser l'évolution de la fissuration axiale de la couche d'oxyde en cours d'essai. Lorsque la déformation augmente, de nouvelles fissures se forment dans les régions situées entre deux fissures, augmentant ainsi la densité de fissures. Des fissures transversales sont également observées proche de la zone d'éclatement où la déformation est plus importante (Annexe C).

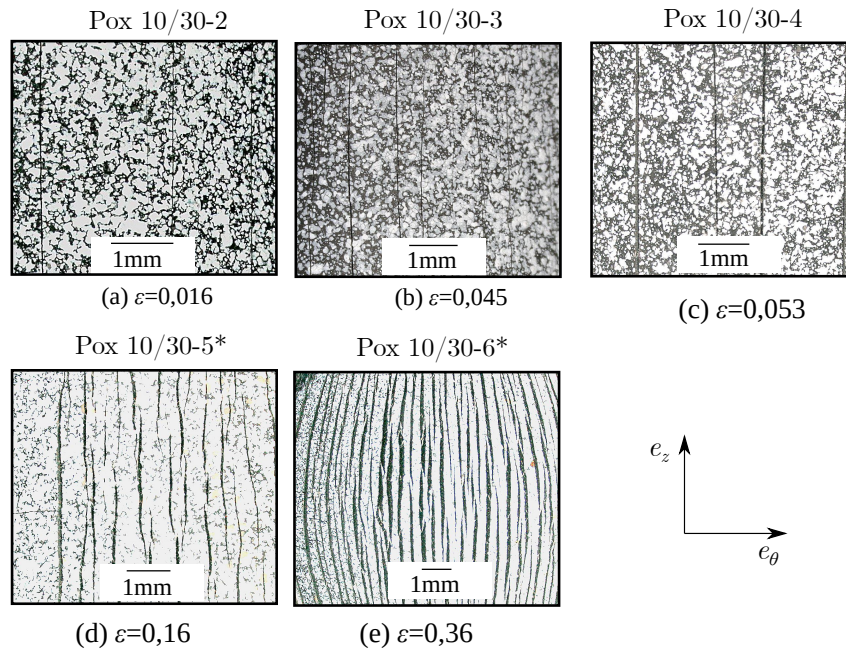
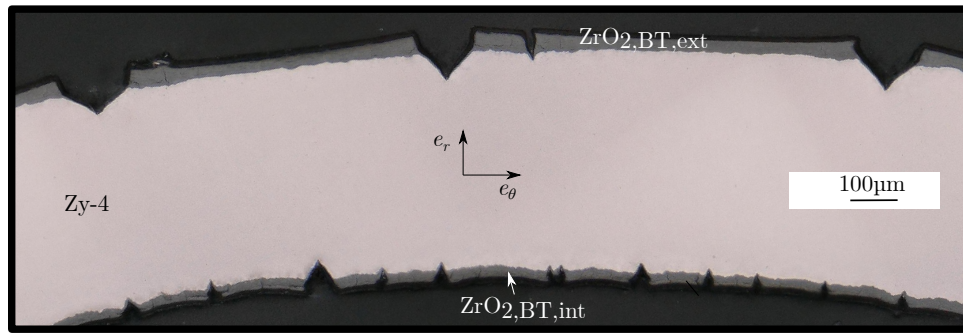


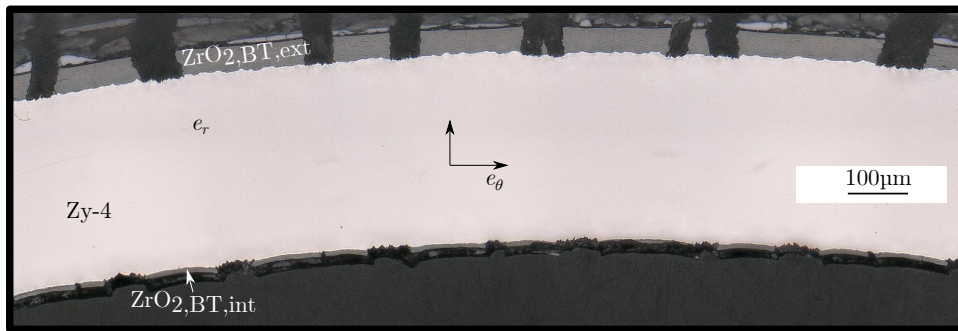
Figure 4.17 : Évolution de la fissuration du pré-oxyde dans la ROI en fonction de la déformation pour des éprouvettes de type Pox10/30. Les essais présentés ont tous été réalisés à 30bar. L'essai Pox 10/30-6* (e) a été réalisé sous argon et le reste (a)-(d) sous argon+oxygène.

La Figure 4.18 présente les deux modes de ruine observés durant la campagne expérimentale. De manière globale à l'issue des essais réalisés à 20 et 30bar sous argon+oxygène on observe principalement des fissures en forme de "V". La présence d'un environnement oxydant induit une pénétration significative de la fissure dans le métal de base. Ce mode de ruine met en évidence une compétition entre la cinétique fluage et d'oxydation. À 50bar, Les fissures n'ont pas de temps de se ré-oxyder ce qui conduit à des fissures en forme de "U". La cinétique de fluage domine sur la cinétique d'oxydation.

Afin de quantifier la fissuration de l'oxyde, des coupes métallographiques de la section centrale de la ROI ont été effectuées. La Figure 4.19 présente la coupe métallographique réalisée sur l'éprouvette "Pox10/10-7*". Trois grandeurs illustrées sur la Figure 4.19 sont utilisées pour quantifier la fissuration de la couche d'oxyde. Il s'agit de la taille de fragments (λ), l'ouverture des fissures (ouv) et la profondeur de pénétration de la fissure dans



(a) Pox10/30-1*



(b) Pox10/60-3*

Figure 4.18 : Métallographie après essai de fluage sous argon+oxygène à 20bar (a) et 50bar (b).

le métal de base (p). Les données ont été relevées dans la totalité de la zone correspondante à la section centrale de la ROI, ce qui représente environ 60 mesures pour chaque grandeur (λ , ouv , p) par échantillon. Nous rappelons que l'incertitude sur les mesures réalisées au moyen des coupes métallographiques est de l'ordre de 1µm.

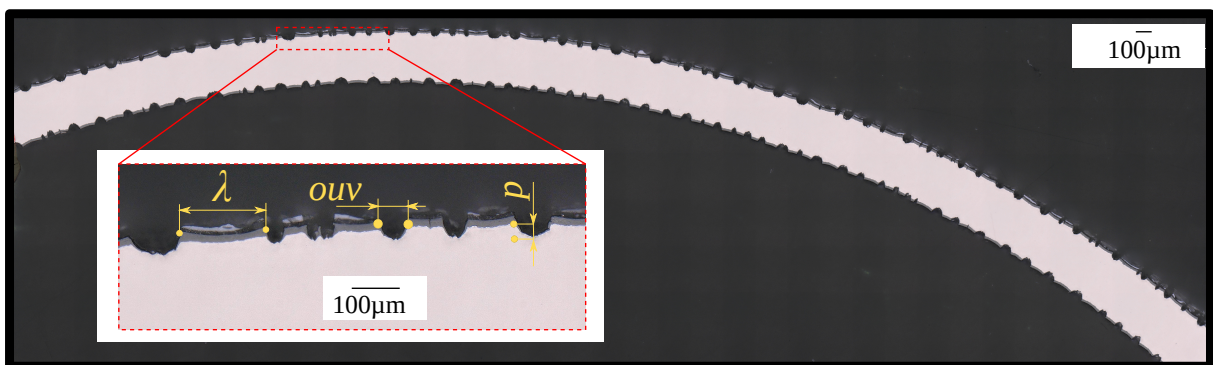


Figure 4.19 : Coupe métallographique post-mortem de la zone correspondante à la ROI de l'échantillon Pox10/10-7*, ayant subi un essai de fluage à 30bar sous argon+oxygène. Les grandeurs mesurées pour caractériser la fissuration de la couche d'oxyde sont illustrées.

La Figure 4.20(a) présente l'évolution de la taille moyenne des fragments de ZrO_2 dans la ROI en fonction de la déformation. Pour les éprouvettes dont l'épaisseur d'oxyde se situe autour de 30µm en surface externe, on observe une densification de la fissuration avec la déformation, suivie d'une saturation pour $\varepsilon = 0,1$ environ. On n'observe pas

cette phase de densification pour les éprouvettes de type Pox10/10 ayant une plus faible épaisseur de ZrO_2 en surface externe, ce qui pourrait vouloir dire qu'elle se produit pour des déformations très faibles ($\varepsilon < 0,008$). La taille moyenne des fragments à saturation est de l'ordre de $200\mu\text{m}$ et semble très peu sensible à l'épaisseur de la couche de pré-oxyde dans la plage $[10-60\mu\text{m}]$ investiguée. Ce dernier résultat va dans le sens de celui de Jiang *et al* [150] qui a étudié le comportement en traction d'une gaine en Zy-4 revêtu de chrome et montré que la densité de fissuration à saturation dépend peu de l'épaisseur du revêtement. Les essais de type RIA présentés au Chapitre 1 semblent au contraire indiquer un effet de l'épaisseur d'oxyde sur la taille des fragments à saturation (cf. section 1.5.2). Cette différence provient certainement des faibles gammes de déformation observées pour les essais de types RIA par rapport aux essais de type APRP réalisés dans ce travail.

L'évolution de l'ouverture moyenne des fissures en fonction de la déformation est illustrée en Figure 4.20(b). Comme on pouvait s'y attendre, l'ouverture augmente avec la déformation. Cependant aucun effet de l'épaisseur de la couche d'oxyde en surface externe sur l'ouverture n'est décelable. Que ce soit pour la taille des fragments ou pour l'ouverture, aucun effet significatif de la contrainte ou de l'environnement de l'essai n'est observé. Les incertitudes importantes traduisent le caractère stochastique de la multi-fissuration de la couche de ZrO_2 dans la direction circonférentielle.

À titre illustratif la répartition circonférentielle des grandeurs $\{\lambda, ouv, p\}$ en fonction de l'abscisse curviligne dans la ROI pour l'essai Pox10/30-5* est présenté en Figure 4.21. Les données relatives aux autres essais sont fournies en Annexe F.

À partir des données métallographiques, sous l'hypothèse d'une déformation négligeable de l'oxyde, on peut en déduire la déformation par :

$$\varepsilon_{\text{CIN}} = \frac{\Delta l}{l_0} \approx \frac{\sum ouv_i}{\sum \lambda_i} = \varepsilon_{\text{métallo}} \quad (4.8)$$

où l est la largeur de la ROI (cf. Figure 4.10), λ_i et ouv_i représentent respectivement les tailles des fragments et ouvertures dans la ROI. La Figure 4.22 compare la déformation obtenue par corrélation d'image (ε_{CIN}) à celle déduite des mesures métallographiques ($\varepsilon_{\text{métallo}}$). On constate que les résultats se comparent assez bien. On note toutefois que la déformation obtenue en métallographie semble légèrement supérieure à celle obtenue par CIN. L'identification du centre de la ROI pour la découpe, la délimitation de la largeur (l) de la ROI sur les coupes métallographiques, l'arrachement de certains fragments d'oxyde durant le polissage... sont autant d'éléments qui peuvent expliquer les écarts observés.

L'évolution temporelle de la profondeur de pénétration de la fissure dans le métal de base pour les essais sous argon+oxygène est présentée en Figure 4.23. Seuls les essais les plus longs induisant une pénétration significative de la fissure dans le métal de base sont représentés. On constate que la pénétration de la fissure dans le métal de base qui s'apparente au phénomène de corrosion sous contrainte (CSC) semble évoluer suivant une cinétique linéaire comme c'est souvent le cas pour les phénomènes de CSC [245, 246]. Compte tenu du nombre limité de données, ce constat sur la linéarité de la cinétique de pénétration de la fissure dans la métal de base reste toutefois à l'état d'hypothèse.

4.8.5 Bilan des essais de fluage

Une trentaine d'essais de fluage sous environnement neutre et oxydant ont été réalisés sur des tronçons de gaine en Zy-4 vierges et pré-oxydés. Les essais ont tous été réalisés à

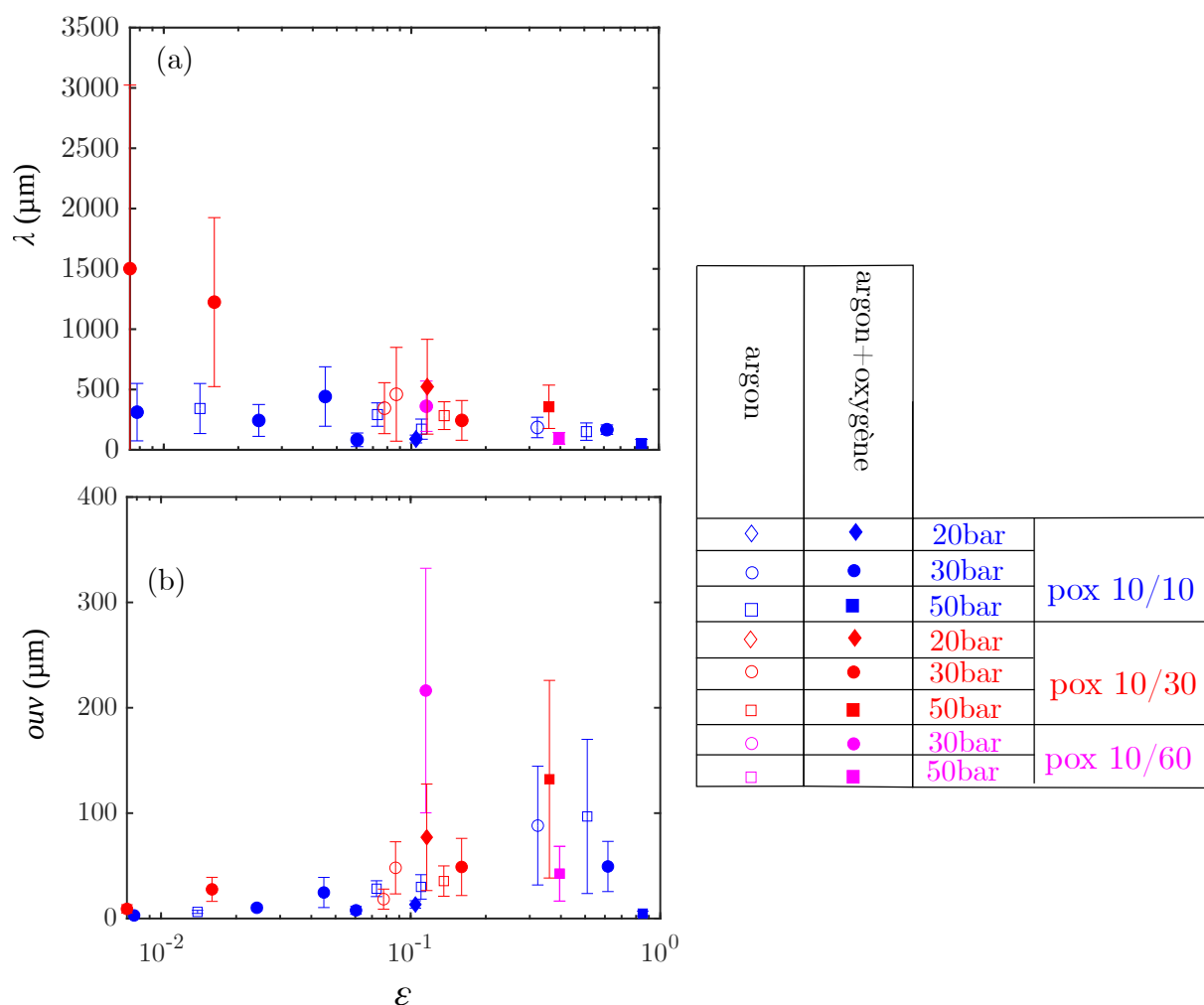


Figure 4.20 : Évolution de la taille moyenne des fragments et de l'ouverture moyenne en fonction de la déformation macroscopique. Les mesures ont été réalisées en surface externe sur la section centrale de la ROI. L'incertitude représente la dispersion sur l'ensemble des données relevées pour chaque échantillon.

une température voisine de 800°C , afin de limiter l'étude au domaine α . Trois niveaux de pression interne (20, 30 et 50bar) ont été testés.

Les essais réalisés sur les gaines vierges ont principalement permis de valider le bon réglage du dispositif expérimental par comparaison des vitesses obtenues avec celles prédites par les lois de fluage sur gaines vierges disponibles dans la littérature. Cette étape a également permis de choisir la loi de fluage décrivant le mieux nos essais sur matériau vierge afin de servir de référence pour l'analyse des essais sur les gaines pré-oxydées.

Les essais réalisés sur les gaines pré-oxydées ont été analysés en exploitant simultanément les mesures cinématiques et thermiques effectuées en cours d'essai, ainsi que les coupes métallographiques réalisées post-mortem. Cette analyse a permis de faire les constats suivants :

- Il existe une corrélation forte entre l'état d'endommagement de la couche de pré-oxyde et la vitesse macroscopique de fluage. Tant qu'il n'est pas fissuré, le pré-oxyde joue un rôle renfort vis-à-vis du fluage. La vitesse de fluage sur la gaine pré-

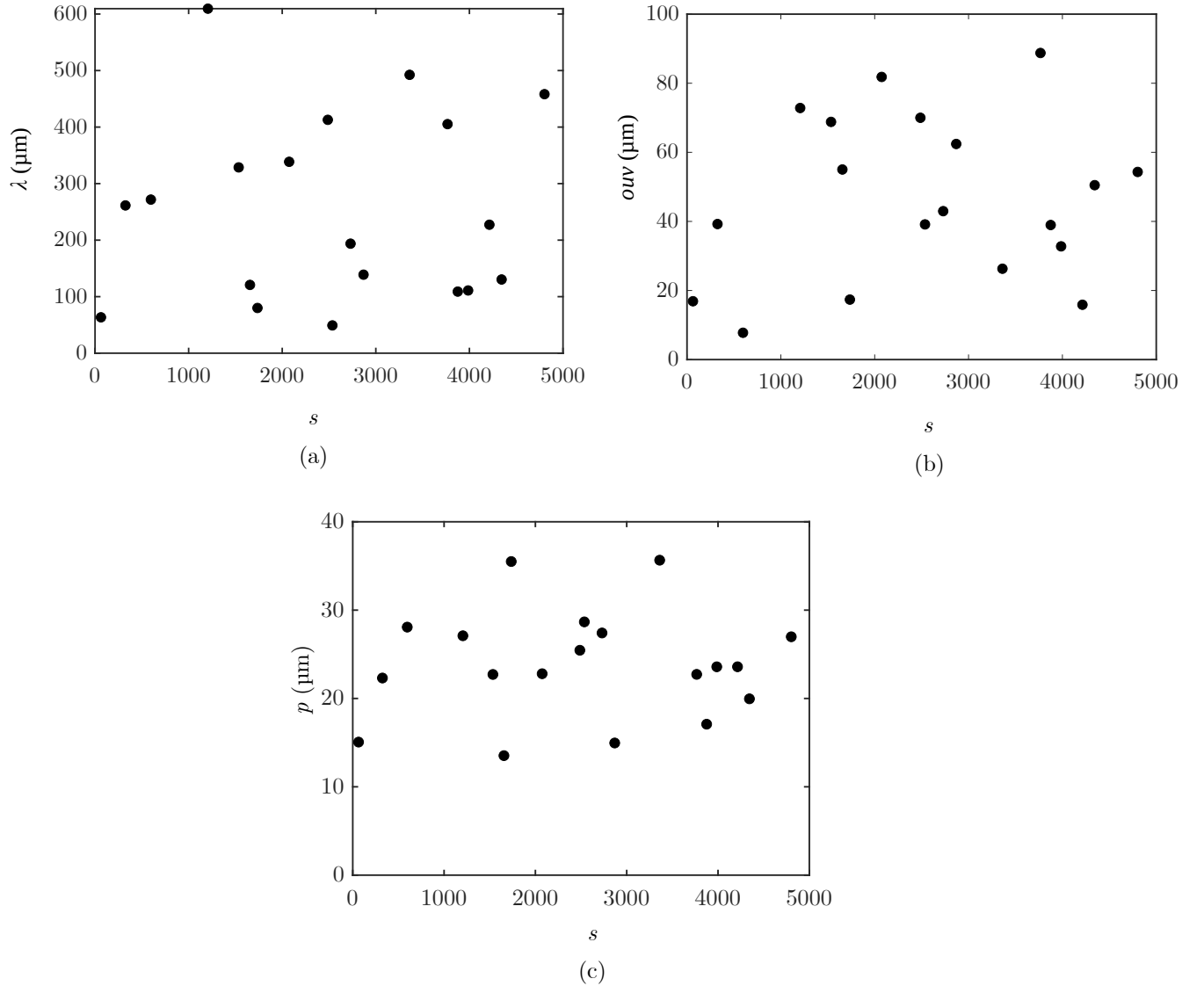


Figure 4.21 : Répartition circonférentielle de la taille des fragments (a), de l'ouverture (b) et de la profondeur de pénétration de la fissure (c) en fonction de l'abscisse curviligne (s) dans la ROI pour l'essai Pox10/30-5*.

oxydée peut-être jusqu'à 10 fois inférieure à celle prédite pour le matériau vierge dans les mêmes conditions. Après fissuration de la couche de pré-oxyde, une perte significative de l'effet renfort initialement apporté par le pré-oxyde est observée. Toutefois un renfort résiduel est constaté. La vitesse de fluage de la gaine pré-oxydée reste inférieure à celle prédite pour le matériau vierge dans les mêmes conditions pour des déformations inférieures à 5%. Cet effet renfort s'estompe lorsque la contrainte augmente. À 50bar, l'effet renfort semble moins important qu'à 20 et 30bar. Aucun effet significatif de l'environnement oxydant sur la vitesse de fluage macroscopique n'a été observé dans les conditions d'étude.

- Selon l'état initial de la couche de pré-oxyde, deux domaines de comportement au fluage sont identifiés en fonction de l'épaisseur de la couche de pré-oxyde. Pour des

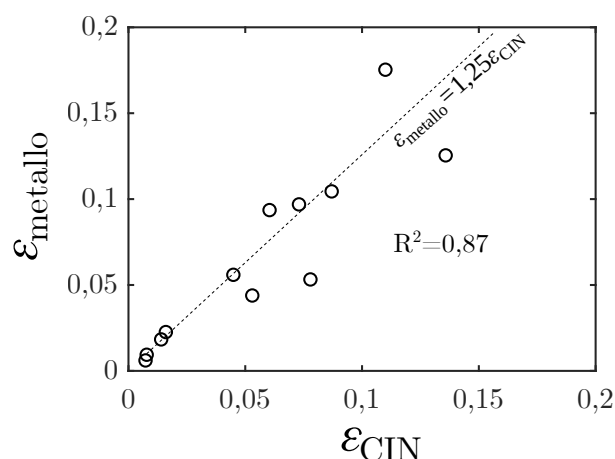


Figure 4.22 : Comparaison de la déformation obtenue par corrélation d'images à celle déduite des données métallographiques.

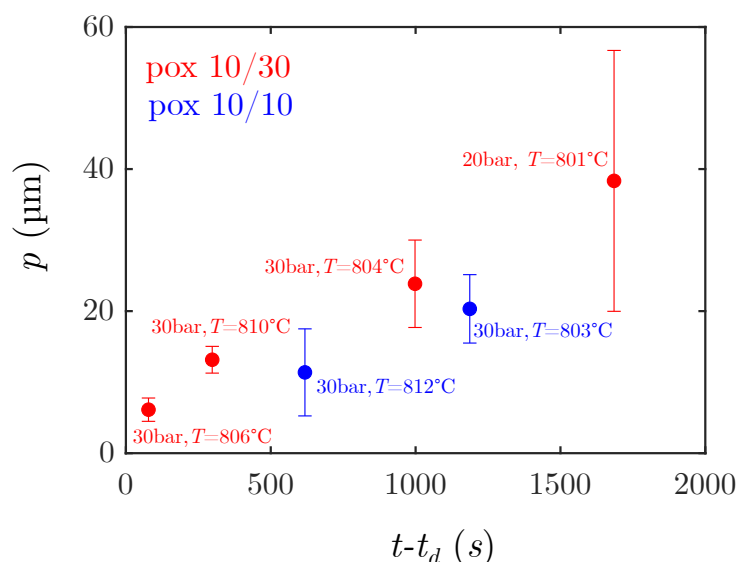


Figure 4.23 : Profondeur des fissures dans le métal de base en fonction de la durée après fissuration de la couche de pré-oxyde. Les essais présentés sont ceux réalisés sous argon+oxygène. Les conditions thermomécaniques (Température moyenne durant l'essai et pression interne) sont également spécifiées. t représente le temps et t_d la durée au bout de laquelle l'oxyde se fissure, estimée sur la base de la rupture de pente visible sur l'évolution temporelle de la vitesse de déformation (cf. Figure 4.14).

couches de pré-oxyde d'épaisseurs comprises entre 0 et 35 μm , le pré-oxyde présente une structure initiale avec peu de fissures radiales et des porosités principalement circonférentielles. Dans ce cas, l'effet renfort augmente lorsque l'épaisseur d'oxyde augmente. À 60 μm , le pré-oxyde présente une structure avec de nombreuses fissures circonférentielles et radiales, ce qui induit à l'inverse une perte significative de l'effet renfort lorsque l'épaisseur d'oxyde augmente. La transition entre ces deux domaines de comportement dépend toutefois des conditions de pré-oxydation. Celles utilisées dans ce travail (sous air à 470°C) induisent une dégradation précoce de l'oxyde

par rapport à l'oxyde formé sous irradiation. Il peut être intéressant de réaliser la même étude avec un matériau pré-oxydé sous vapeur à 425°C qui est a priori plus représentatif [12]. Il est donc prépondérant de prendre en compte l'état initial de l'oxyde pour prédire les cinétiques de fluage macroscopiques des gaines.

- En fonction du chargement mécanique appliqué pour les essais réalisés sous environnement oxydant, deux modes de ruine ont été constatés. Pour les essais à 20 et 30bar, on observe des fissures en forme de "V". L'environnement oxydant induit une pénétration de la fissure dans le métal de base. À 50bar, les fissures n'ont pas le temps de se ré-oxyder ce qui conduit à des fissures en forme de "U". Les niveaux de pressions internes étudiés ne permettent pas de clairement identifier la transition entre les deux modes de ruine. Il peut être intéressant d'étudier d'autres niveaux de chargement pour identifier précisément la transition entre ces deux modes de ruine. L'endommagement de la couche d'oxyde en cours d'essai a également été quantifié à travers l'évolution de la taille des fragments, de l'ouverture des fissures et de la profondeur de pénétration des fissures dans le métal de base. Ces données recueillies à l'aide des analyses métallographiques ont mis en évidence le caractère irrégulier de la multi-fissuration du pré-oxyde dans la direction circonférentielle.
- Dans les conditions étudiées, bien que l'environnement oxydant de l'essai joue localement un rôle sur le mode de ruine, la comparaison à des essais sous atmosphère inerte montre qu'il ne semble ne pas avoir d'impact sur la cinétique macroscopique de fluage de la gaine.

4.9 Simulation du fluage d'une gaine pré-oxydée

L'objectif de cette section est de simuler les essais de fluage réalisés, en vue de prédire les vitesses de déformation mesurées en surface externe des éprouvettes. Plus exactement, on souhaite prédire par simulation, l'effet renfort du pré-oxyde avant sa fissuration ainsi que la diminution de cet effet renfort après fissuration. Cela implique donc d'être capable de simuler les essais avant et après fissuration de la couche de ZrO_2 . Le coût numérique des simulations faisant intervenir le phénomène de fissuration, ne permet pas d'envisager une modélisation en 3D, du moins avec les ressources numériques à notre disposition. Les simulations sont réalisées à partir de la plateforme numérique développée dans ce travail rendant compte simultanément des phénomènes de diffusion d'oxygène, d'oxydation, de fluage et de fissuration. Cet outil de simulation a été implémenté en 2D sous l'hypothèse des déformations planes et l'hypothèse des petites déformations, ce qui limite sa validité au début des essais, lorsque le niveau de déformation est encore relativement faible. L'hypothèse des déformations planes n'est pas rigoureusement respectée dans les conditions d'essais. Ce point est abordé plus en détails en Annexe E. Seuls les essais sous argon+oxygène sont modélisés. Comme précisé au Chapitre 2, le modèle numérique mis en place n'est pas adapté à la description d'essais sous argon. Le mode de ruine avec des fissures en forme de "U", systématiquement observé pour les essais sous argon, induit des déformations localement très importantes du métal à nu, ce qui est peu compatible avec l'hypothèse des petites déformations utilisée dans la formulation du modèle. En plus des hypothèses générales liées à la formulation du modèle numérique (cf. Chapitre 2), les hypothèses supplémentaires suivantes, spécifiques à la modélisation des essais sont

réalisées :

- Les essais sont modélisés avec une approche homogénéisée à l'échelle de la couche de ZrO_2 . Par conséquent, les évolutions de la microstructure (croissance des grains, transformation de phase) ainsi que les fissures/porosités observées dans la couche de ZrO_2 après la phase de pré-oxydation ne sont pas prises en compte.
- La phase de pré-oxydation n'est pas simulée, ce qui implique que les contraintes internes générées durant cette phase ne sont pas considérées.
- La densification de la fissuration de la couche de ZrO_2 n'est pas simulée, on suppose que toutes les fissures apparaissent au même instant. L'irrégularité de la répartition des fissures le long de la circonférence de la gaine est négligée. Le réseau de fissure qui se forme en cours d'essai dans la couche de ZrO_2 est supposé périodique. Le modèle est capable de représenter cette densification mais ce point n'est pas abordé dans le manuscrit.
- L'adhérence entre les couches de Zy-4 et ZrO_2 est supposée parfaite.

4.9.1 Géométrie, chargement et conditions aux limites

Comme mentionné plus haut, les simulations sont effectuées en 2D sous l'hypothèse des déformations planes. De plus, la courbure de la gaine est négligée, ce qui permet de réduire le modèle par symétrie tel qu'illustré en Figure 4.24. Il s'agit d'une hypothèse simplificatrice assez forte, puisqu'elle ne tient pas compte de la dissymétrie d'épaisseur de couche de ZrO_2 entre la surface interne et externe pour certaines éprouvettes. Elle suppose aussi une parfaite symétrie de la fissuration entre les surfaces interne et externe, ce qui ne correspond pas aux observations expérimentales. Cette hypothèse est abordée en Annexe E. La modélisation se limite à un fragment de ZrO_2 . La non prise en compte de la courbure n'a pas d'effet significatif à l'échelle d'un fragment de ZrO_2 (Annexe E). Le coût numérique élevée de ce type de simulation ne permet pas d'envisager de modéliser toute la circonférence de la gaine. Le domaine est maillé avec des éléments à interpolation linéaire. La gestion du pas de temps basée sur l'incrément de l'énergie de déformation est utilisée. Le paramètre de contrôle de pas de temps est fixé à $\eta = 0,1$ (cf. Équation 2.44).

Durant la phase de pré-oxydation, une partie du métal est consommée au profit de la formation de l'oxyde. L'épaisseur de Zy-4 restante à l'issue de la phase de pré-oxydation est donnée par [20] :

$$e_{\text{Zy-4}}(\text{mm}) = 0,57 - 0,65(e_{\text{ZrO}_2,\text{BT},\text{in}} + e_{\text{ZrO}_2,\text{BT},\text{ext}}), \quad (4.9)$$

où $e_{\text{ZrO}_2,\text{BT},\text{in}}$, $e_{\text{ZrO}_2,\text{BT},\text{ext}}$ sont respectivement les épaisseurs des couches de ZrO_2 en surface interne et externe en millimètre. L'épaisseur de la couche de pré-oxyde en surface externe ($e_{\text{ZrO}_2,\text{BT},\text{ext}}$) a été mesurée pour chaque essai tandis que celle en surface interne est estimée à $e_{\text{ZrO}_2,\text{BT},\text{in}} = 10\mu\text{m}$ pour l'ensemble des essais. La hauteur du motif périodique considéré est définie par la taille moyenne des fragments (λ) mesurée post-mosterm sur les coupes métallographiques. La déformation macroscopique du fragment modélisé est définie à partir du déplacement vertical (u_y) de la surface supérieure :

$$\varepsilon = \frac{u_y}{\lambda}. \quad (4.10)$$

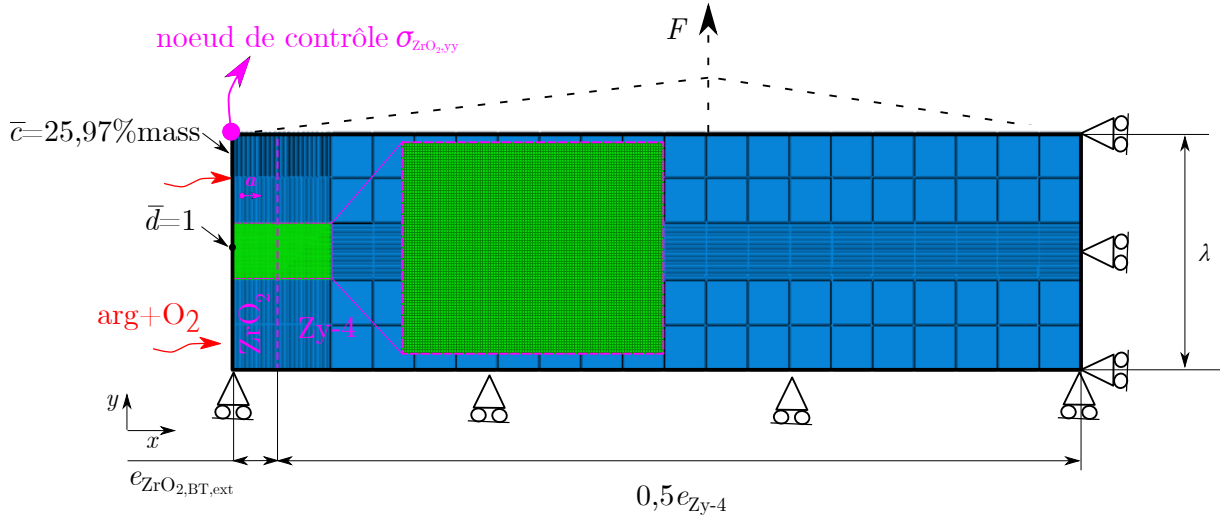


Figure 4.24 : Géométrie et conditions aux limites utilisées pour simuler les essais sous argon+oxygène. La modélisation se limite à un fragment d'oxyde. Un défaut initial ($\bar{d} = 1$) est imposé au milieu de la surface externe de la couche de ZrO_2 . La direction perpendiculaire à l'interface Zy-4/ ZrO_2 ($\mathbf{a}$) est choisie comme direction préférentielle de propagation des fissures. La zone (en vert) où est attendue la propagation de la fissure est maillée finement avec des éléments carrés de $0,2\mu\text{m}$ de côté tandis que le reste du domaine est maillé de manière plus grossière.

La surface inférieure est bloquée dans la direction y tandis que celle de droite est bloquée selon la direction x . Une condition aux limites de type MPC est appliquée sur la surface supérieure pour garantir sa planéité au cours de la déformation. L'effort de traction appliqué sur cette même surface correspond à la résultante des efforts de pression définie par :

$$F = \frac{P_i R_i L_u}{2}, \quad (4.11)$$

où P_i est la pression interne appliquée, R_i le rayon interne initial et $L_u = 58\text{mm}$, la longueur utile de l'éprouvette entre les mors. Le rayon interne est donnée par :

$$R_i = R_{\text{ext}} - (e_{\text{Zy-4}} + e_{\text{ZrO}_2,\text{BT,ext}} + e_{\text{ZrO}_2,\text{BT,in}}), \quad (4.12)$$

R_{ext} étant le rayon externe défini par [5] :

$$R_{\text{ext}} = R_v + 0,35e_{\text{ZrO}_2,\text{BT,ext}}. \quad (4.13)$$

$R_v = 4,75\text{mm}$ est le rayon externe initial dans le cas d'une gaine vierge.

À l'issue de la phase de pré-oxydation, la teneur en oxygène dans la couche de Zy-4 est toujours égale à la teneur de fabrication $c_{\text{Zy-4}}(t = 0) = 0,13\%\text{mass}$ (cf. Tableau 1.1), alors que la couche de ZrO_2 est stoechiométrique $c_{\text{ZrO}_2}(t = 0) = 25,97\%\text{mass}$. La limite de solubilité de l'oxygène dans la couche de Zy-4 vaut $c_{\text{Zy-4}} = 7\%\text{mass}$ et celle dans la couche de ZrO_2 vaut $c_{\text{ZrO}_2} = 25,97\%\text{mass}$. Les échanges avec l'environnement oxydant se traduisent par une condition aux limites $\bar{c} = 25,97\%\text{mass}$ sur la surface exposée. Dans ces conditions, le pré-oxyde initialement stoechiométrique, le demeure durant toute la simulation.

Un défaut unique ($\bar{d} = 1$) est imposé au milieu de la surface externe de la couche de ZrO_2 pour initialiser sa fissuration. La fissuration de la couche de ZrO_2 est supposée anisotrope, avec la direction perpendiculaire à l'interface Zy-4/ ZrO_2 comme direction préférentielle de propagation des fissures. Le paramètre d'anisotropie est fixée $\alpha_0 = 100$ (cf.Équation 2.24). Comme illustré au chapitre 2, la résistance à la fissuration est donnée par :

$$g_c = g_{c,\text{ZrO}_2} + (g_{c,\text{Zy-4}} - g_{c,\text{ZrO}_2}) \exp(-qc), \quad (4.14)$$

$g_{c,\text{Zy-4}} = 1\text{N/mm}$ est choisie arbitrairement, mais suffisamment élevée pour éviter la fissuration de la couche de Zy-4. g_{c,ZrO_2} représente la résistance à la fissuration de l'oxyde dont la valeur sera précisée dans la suite. Dans la plage de température étudiée, la transition entre le comportement ductile et fragile du Zy-4 a lieu pour une teneur en oxygène seuil située dans l'intervalle $c_d=[2-3]\%\text{mass}$ [54]. Une valeur de $q = 3$ qui permet d'avoir la transition ductile/fragile autour de $c_d=2\%\text{mass}$ est retenue.

Le pré-oxyde est supposé élastique et le métal viscoplastique. Les propriétés élastiques des couches de Zy-4 et ZrO_2 sont données par [64, 65] :

$$E_{\text{Zy-4}}(\text{MPa}) = 116.10^3 - 59T(\text{K}) \quad (4.15)$$

$$\nu_{\text{Zy-4}} = 0,35 \quad (4.16)$$

$$E_{\text{ZrO}_2}(\text{MPa}) = 203450 - 18,85T - 10,1 \exp\left(-\frac{480}{T}\right) \quad (4.17)$$

$$\nu_{\text{Zy-4}} = 0,3 \quad (4.18)$$

L'effet de l'oxygène sur les propriétés élastiques, ainsi que la dilatation thermique n'est pas pris en compte. L'hypothèse des déformations planes combinée à la dilatation thermique génèreraient des contraintes mécaniques supplémentaires non représentatives des essais.

En ce qui concerne les coefficients de diffusion de l'oxygène dans les couches de Zy-4 et de ZrO_2 , les corrélations identifiées au Chapitre 3, comme celles décrivant le mieux les essais d'oxydation sont retenues [23, 25] :

$$D_{\text{Zy-4}}(\text{cm}^2/\text{s}) = 16,5 \exp\left(\frac{-54700}{RT}\right), \quad (4.19)$$

$$D_{\text{ZrO}_2}(\text{cm}^2/\text{s}) = 0,105.10^{-2} \exp\left(\frac{-29300}{RT}\right), \quad (4.20)$$

$R = 1,987\text{cal/mol/K}$ est la constante des gaz parfaits et $T(\text{K})$ la température. Dans les régions fissurées ($d > 0,95$), le coefficient de diffusion de l'oxygène dans la couche de ZrO_2 est multiplié par un facteur 1000 pour tenir compte de la pénétration de l'environnement oxydant dans les fissures (le facteur 1000 permet à l'oxygène de diffuser à travers la couche d'oxyde en moins d'une seconde) et la limite de solubilité est mise à zéro ($c_{\text{ZrO}_2} = 0$).

La loi de Norton proposée par Campello [15] est utilisée pour décrire le comportement viscoplastique de la couche de Zy-4 :

$$\dot{\varepsilon}^{vp} = \begin{cases} \exp(2, 46) \sigma_{vm}^{1,66} \exp\left(\frac{-150000}{RT}\right) & \sigma_{vm} \leq 15(\text{MPa}) \text{ régime diffusionnel} \\ \exp(12, 2) \sigma_{vm}^{3,96} \exp\left(\frac{-293000}{RT}\right) & \sigma_{vm} > 15(\text{MPa}) \text{ régime dislocation} \end{cases} \quad (4.21)$$

$R = 8,314 \text{ J/mol/K}$ est la constante des gaz parfaits. Rappelons que la transition entre le régime diffusionnel et le régime dislocation proposée par Campello [15] a été ajustée de manière à inclure les essais à 30bar dans le régime dislocation. L'ajustement correspond à la transition proposée par Fréchet [13].

Il a été démontré au Chapitre 2 que l'effet renfort provient principalement du pré-oxyde. La prise en compte de l'effet renfort de l'oxygène augmente considérablement la durée des simulations, car elle ajoute un couplage supplémentaire qui accentue la non linéarité du modèle, nécessitant alors beaucoup plus d'itérations pour converger. Pour ces raisons, l'effet renfort de l'oxygène sur le fluage est négligé, bien que le modèle numérique offre la possibilité d'en rendre compte.

La Figure 4.25 résume le processus de simulation d'un essai réalisé sur un gaine pré-oxydée :

- Les caractéristiques spécifiques à l'éprouvette en terme d'épaisseur d'oxyde en surface externe ($e_{\text{ZrO}_2, \text{BT}, \text{ext}}$) et de taille moyenne des fragments d'oxyde (λ) obtenue par mesure métallographique sont utilisées pour générer automatiquement la géométrie correspondante à l'aide d'un script python.
- La température mesurée par thermographie PIR en surface externe et la pression interne mesurée par la sonde montée sur le mors inférieur sont imposées durant les simulations. La température est supposée homogène dans la section modélisée.
- Les simulations sont réalisées par paire avec les mêmes conditions de chargements thermomécaniques, l'une sur le modèle EF décrivant un essai sur gaine pré-oxydée et l'autre sur le modèle EF associé à une gaine vierge en atmosphère neutre.
- Les résultats des simulations en termes de vitesse de déformation de la gaine pré-oxydée normalisée par celle de la gaine vierge sont confrontés aux mesures expérimentales obtenues par CIN. La vitesse de déformation normalisée est peu sensible au taux de biaxialité et permet donc de comparer les essais aux calculs malgré un écart sur ce paramètre entre les essais et les hypothèses de modélisation (cf. Annexe E)

L'ensemble des paramètres entrant dans la modélisation sont résumés dans le Tableau 4.5. Les paramètres de régularisation (longueur caractéristique de la fissure (l_c), épaisseur de l'interface (δ)) spécifiques aux approches champ de phase utilisées ont été choisies aussi petites que possible. Le paramètre d'anisotropie pour la fissuration a été choisie de manière à garantir que la fissure ne se propage que dans la direction perpendiculaire à l'interface Zy-4/ZrO₂ pour toutes les simulations. Le choix pour la courbure de la densité d'énergie chimique n'a pas d'influence sur les résultats des simulations car l'effet de la mécanique sur l'oxydation est négligé. La résistance à la fissuration de la couche de ZrO₂ (g_{c, ZrO_2}) qui sera précisée dans la suite est déterminée à partir de la durée de fluage au bout de laquelle le pré-oxyde se fissure.

Élasticité		
Module de Young :	$E_{Zy-4}(\text{MPa}) = 116.10^3 - 59T$	[64]
	$E_{ZrO_2}(\text{MPa}) = 203460 - 18,85T - 10,1 \exp\left(-\frac{480}{T}\right)$	[65]
Coefficient de Poisson :	$\nu_{Zy-4} = 0,35$	[65]
	$\nu_{ZrO_2} = 0,3$	[65]
Viscoplasticité (uniquement pour Zy-4)		
Loi de fluage :	$\dot{\varepsilon}^{vp} = \exp(2,46)\sigma_{vm}^{1,66} \exp\left(\frac{-150000}{RT}\right) \quad \sigma_{vm} \leq 15\text{MPa}$	[15]
	$\dot{\varepsilon}^{vp} = \exp(12,2)\sigma_{vm}^{3,96} \exp\left(\frac{-293000}{RT}\right) \quad \sigma_{vm} > 15\text{MPa}$	
	$R = 8,314\text{J/mol/K}$	
Fissuration (uniquement pour ZrO ₂)		
Énergie de surface :	$g_c(\text{N/mm}) = g_{c,ZrO_2} + (1 - g_{c,ZrO_2}) \exp(-3c)$	
Longueur caractéristique :	$l_c=1\mu\text{m}$	
paramètre d'anisotropie :	$\alpha_0=100$	
Chimie		
Diffusivité de l'oxygène :	$D_{Zy-4}(\text{cm}^2/\text{s}) = 16,5 \exp\left(\frac{-54700}{RT}\right)$	[23]
	$D_{ZrO_2}(\text{cm}^2/\text{s}) = 0,105.10^{-2} \exp\left(\frac{-29300}{RT}\right)$	[25]
Limite de solubilité :	$c_{Zy-4} = 7\%\text{mass}$	
	$c_{Zy-4} = 25,97\%\text{mass}$	
Épaisseur de l'interface :	$\delta = 1\mu\text{m}$	
Courbure de la densité d'énergie :	$k_{Zy-4} = k_{ZrO_2} = 1\text{J/mm}^2$	
	$R = 1,987\text{cal/mol/K}$	
Algorithme de résolution		
Critère sur le pas de temps :	$\eta = 0,1$ (cf. Équation 2.44)	

Tableau 4.5 : Propriétés nécessaires pour la simulation des essais. T représente la température en (K). Les paramètres ou termes en gris choisis de manière arbitraire sont nécessaires pour le modèle mais n'ont pas une influence significative pour les résultats présentés dans la suite.

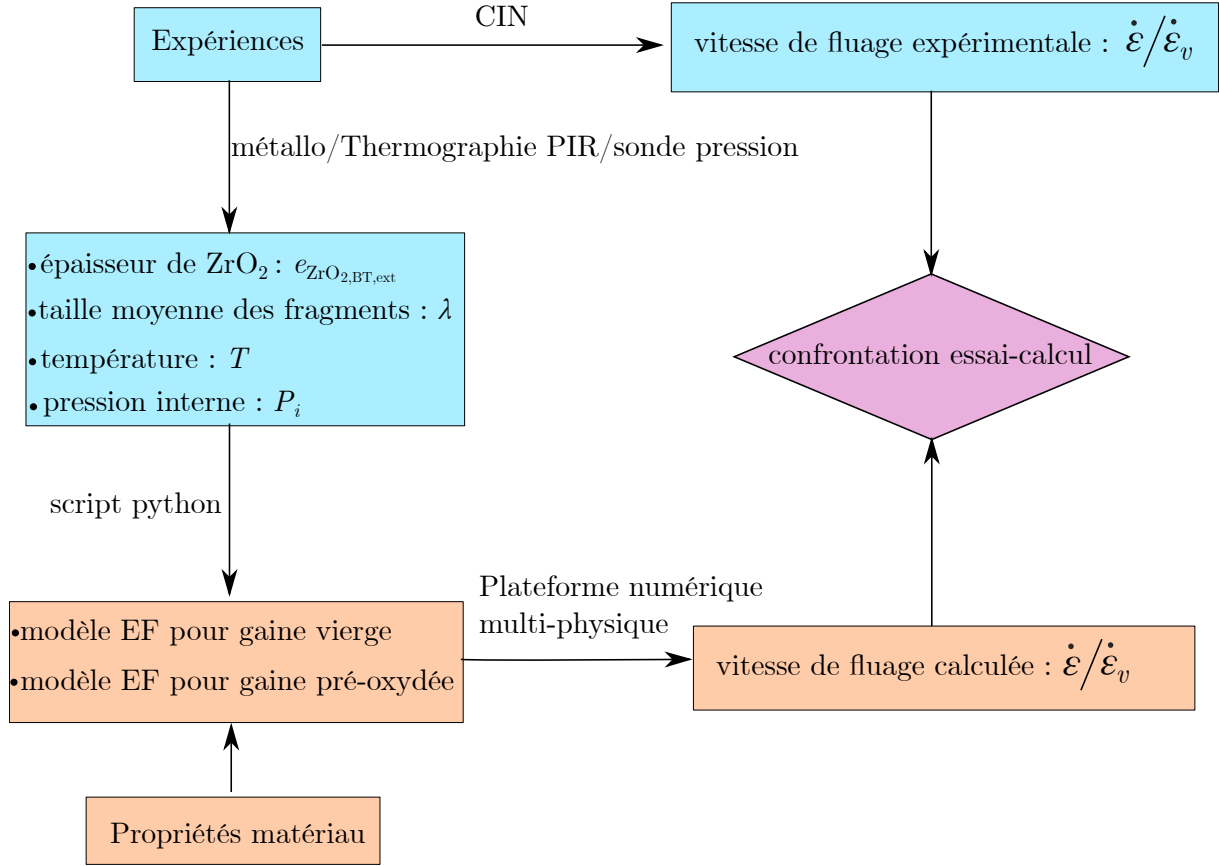


Figure 4.25 : Illustration du processus de simulation des essais.

4.9.2 Résultats et analyses

Le processus de simulation des essais a été testé sur un cas virtuel. Les données d'essai pour ce cas virtuel sont résumées dans le Tableau 4.6. Le chargement thermoméca-

$e_{ZrO_2,BT,ext}$ (μm)	λ (μm)	$T(^{\circ}\text{C})$	P_i (bar)
20	200	800	30

Tableau 4.6 : Données d'essai pour le cas test virtuel.

nique est imposé de manière à reproduire la procédure expérimentale (cf. Figure 4.5). La consigne de température T est appliquée avec une vitesse de chauffe de 3°C/s . 10s après la stabilisation de la température, un chargement mécanique (F) correspondant à une pression de $P_i = 30\text{bar}$ est imposé. La résistance à la fissuration de l'oxyde a été fixée à $g_{c,ZrO_2} = 1,3\text{N/mm}$. Cette valeur a été identifiée par méthode inverse sur la base de la durée de fluage au bout de laquelle le pré-oxyde se fissure. Cette valeur sera la même pour tout les exemples présentés dans la suite.

La Figure 4.26 présente les résultats du cas virtuel. Ces résultats mettent clairement en évidence la corrélation forte entre la vitesse de déformation et l'état structural de la gaine pré-oxydée. Notamment le caractère renfort du pré-oxyde avant sa fissuration et

la perte significative de ce renfort par localisation des déformations au niveau du métal à nu après fissuration de la couche de ZrO_2 . Notons toute de même que localement des déformations de l'ordre de 21% sont atteintes après environ 700s de fluage, ce qui dépasse significativement les conditions de petites déformations supposées dans la formulation du modèle.

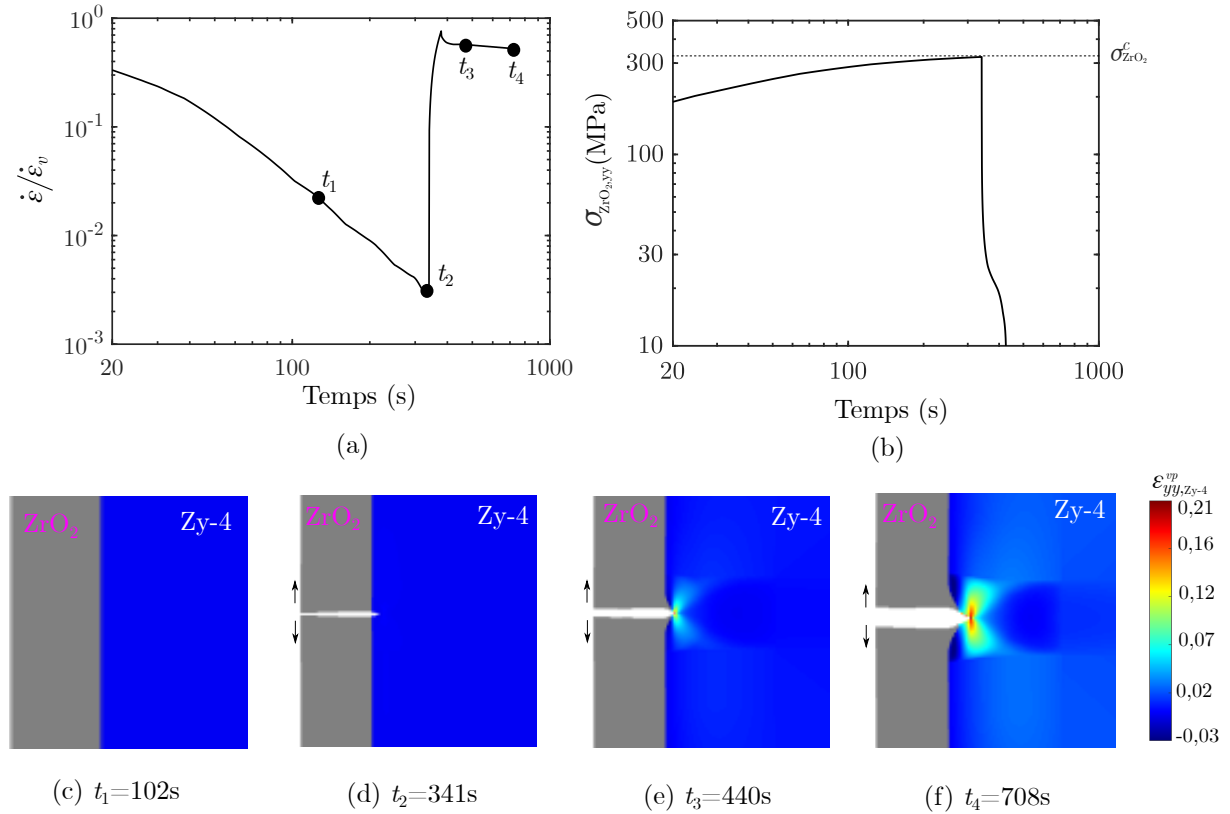


Figure 4.26 : Résultat du cas virtuel : (a) évolution temporelle de la vitesse de déformation normalisée par celle du matériau vierge ; (b) évolution temporelle de la contrainte dans la couche de ZrO_2 ; (c)-(f) évolution du champ de déformation viscoplastique dans la couche de Zy-4. La couche de ZrO_2 est également représentée en gris sans les éléments fissurés ($d > 0,95$).

4.9.2.1 Étude paramétrique

Une étude paramétrique a été menée sur l'épaisseur de la couche de ZrO_2 en surface externe ($e_{\text{ZrO}_2, \text{BT}, \text{ext}}$), la taille moyenne des fragments (λ) et la température qui représentent des paramètres d'entrée pour les simulations, susceptibles de varier d'un essai à l'autre.

4.9.2.1.1 Effet de l'épaisseur de la couche de ZrO_2

La Figure 4.27 présente les résultats de l'étude paramétrique sur l'influence de l'épaisseur de la couche de ZrO_2 en surface externe dans l'intervalle $[5 - 35]\mu\text{m}$. La consigne de température a été fixé à $T = 800^\circ\text{C}$ et la taille de fragment à $\lambda = 200\mu\text{m}$. On constate que

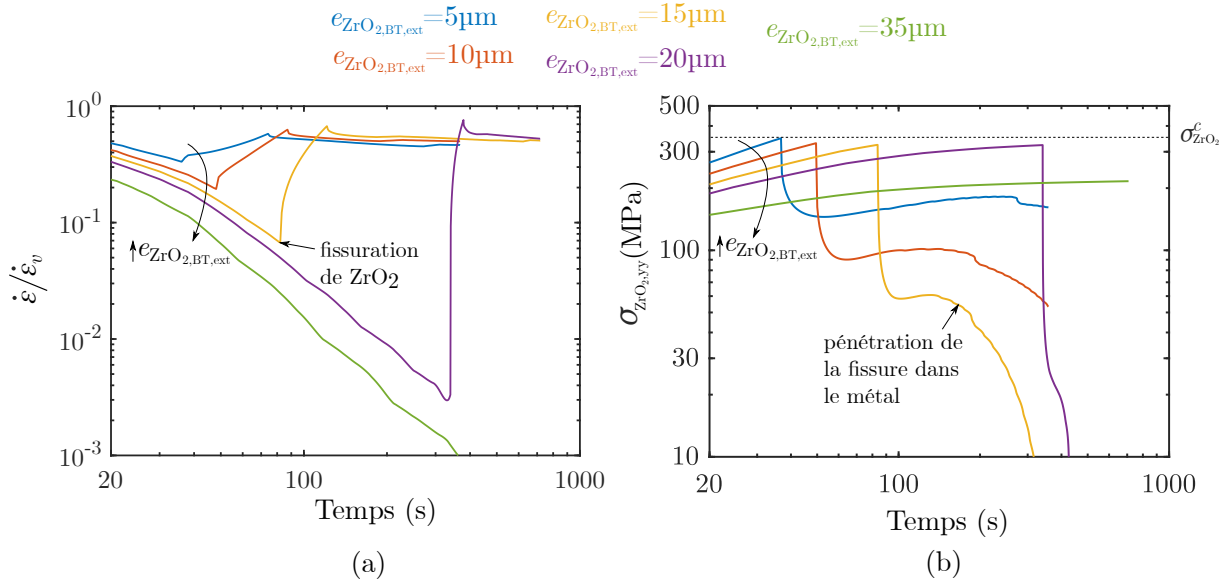


Figure 4.27 : Résultat de l'étude paramétrique sur l'épaisseur de la couche de ZrO₂ en surface externe pour $\lambda = 200 \mu\text{m}$, $T = 800^\circ\text{C}$, $P_i = 30 \text{ bar}$ et $g_{c, \text{ZrO}_2} = 1,3 \text{ N/mm}$: (a) évolution temporelle de la vitesse de déformation normalisée par celle du matériau vierge ; (b) évolution temporelle de la contrainte dans la couche de ZrO₂ extraite au nœud de contrôle défini en Figure 4.24.

lorsque l'épaisseur de la couche de ZrO₂ augmente, son effet renfort augmente également. Après fissuration, la vitesse ne dépend presque plus de l'épaisseur de la couche de ZrO₂. Ce dernier résultat était prévisible étant donné qu'après fissuration, la déformation est presque totalement contrôlée par le fluage de la couche de Zy-4 mise à nu. La Figure 4.27(b) illustre l'évolution temporelle de la contrainte dans la couche de ZrO₂. Elle est évaluée, compte tenu des symétries, au milieu du réseau périodique de fragments représenté par le modèle (voir nœud de contrôle défini en Figure 4.24). La fissuration induit une relaxation de la contrainte dans les fragments de ZrO₂. Indépendamment de son épaisseur, la couche de ZrO₂ se fissure lorsqu'une contrainte critique d'environ $\sigma_{\text{ZrO}_2}^c = 345 \text{ MPa}$ est atteinte. Cependant la durée nécessaire pour atteindre $\sigma_{\text{ZrO}_2}^c$ par fluage du métal augmente avec l'épaisseur de la couche de ZrO₂. Ceci s'explique tout simplement par le fait que la part d'effort supportée par la couche de ZrO₂ est répartie sur une section plus importante lorsque son épaisseur augmente. La légère variation de cette contrainte critique constatée d'un calcul à l'autre est un effet du critère sur le pas de temps. Pour $e_{\text{ZrO}_2, \text{BT}, \text{ext}} = 35 \mu\text{m}$, la vitesse normalisée ($\dot{\epsilon}/\dot{\epsilon}_0$) tend vers zéro, ce qui marque l'arrêt du fluage. La contrainte dans la couche d'oxyde sature en dessous de $\sigma_{\text{ZrO}_2}^c$ et la fissuration de la couche de ZrO₂ n'est donc plus observée quelque soit la durée de fluage simulée. Ce résultat est en désaccord avec les essais. La fissuration de la couche de ZrO₂ a été observée pour tous les essais réalisés dans les conditions de chargement comparables à celles appliquées pour ces simulations. Plusieurs hypothèses peuvent être formulées pour expliquer ce désaccord. On peut citer par exemple l'état initial de la couche de ZrO₂ ou encore l'asymétrie d'épaisseur de ZrO₂ entre la surface interne et externe qui n'ont pas été pris en compte. L'hypothèse la plus plausible est celle sur l'état initial. Cela montre la nécessité de prendre en compte l'état d'endommagement initial de la couche de ZrO₂.

qui dépend fortement de son épaisseur.

4.9.2.1.2 Effet de la taille moyenne des fragments de ZrO_2

Les résultats de l'étude paramétrique sur la taille moyenne des fragments de ZrO_2 sont présentés en Figure 4.28. On constate que la vitesse de déformation après fissuration

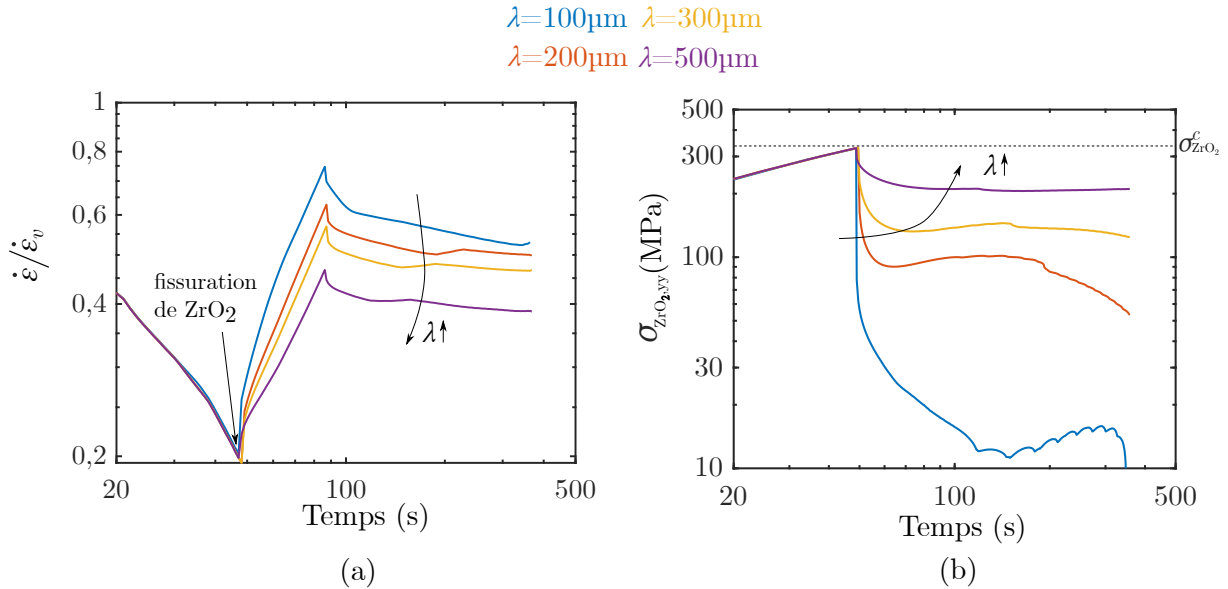


Figure 4.28 : Résultat de l'étude paramétrique sur la taille moyenne des fragments de ZrO_2 pour $e_{\text{ZrO}_2,\text{BT,ext}} = 10\mu\text{m}$, $T = 800^\circ\text{C}$, $P_i = 30\text{bar}$ et $g_{c,\text{ZrO}_2} = 1,3\text{N/mm}$: (a) évolution temporelle de la vitesse de déformation normalisée par celle du matériau vierge ; (b) évolution temporelle de la contrainte dans la couche de ZrO_2 extraite au nœud de contrôle défini en Figure 4.24

de la couche de ZrO_2 augmente lorsque la taille des fragments diminue. La densification de la fissuration de la couche de ZrO_2 en cours de fluage aurait donc tendance à augmenter la vitesse de déformation. Concernant la contrainte résiduelle dans la couche de ZrO_2 après sa fissuration, elle augmente avec la taille des fragments, ce qui voudrait dire que la densification de la fissuration se produirait préférentiellement par fissuration des fragments de taille les plus élevées.

4.9.2.1.3 Effet de la température

Les résultats de l'étude paramétrique sur la consigne de température sont présentés en Figure 4.29. L'épaisseur de la couche d'oxyde en surface externe est fixée à $e_{\text{ZrO}_2,\text{BT,ext}} = 10\mu\text{m}$ et la taille moyenne des fragments à $\lambda = 200\mu\text{m}$. L'effet renfort de la couche de ZrO_2 augmente lorsque la température augmente. Ceci traduit le fait que le comportement d'un gaine pré-oxydée est moins sensible à la température que celui d'une gaine vierge. Ce résultat est cohérent avec les constats expérimentaux de la thèse de Chosson [14] qui observe également une augmentation de l'effet renfort avec la température.

Notons que pour toutes les simulations réalisées dans l'étude paramétrique, la contrainte critique à laquelle la couche de ZrO_2 se fissure reste la même. Cette valeur critique

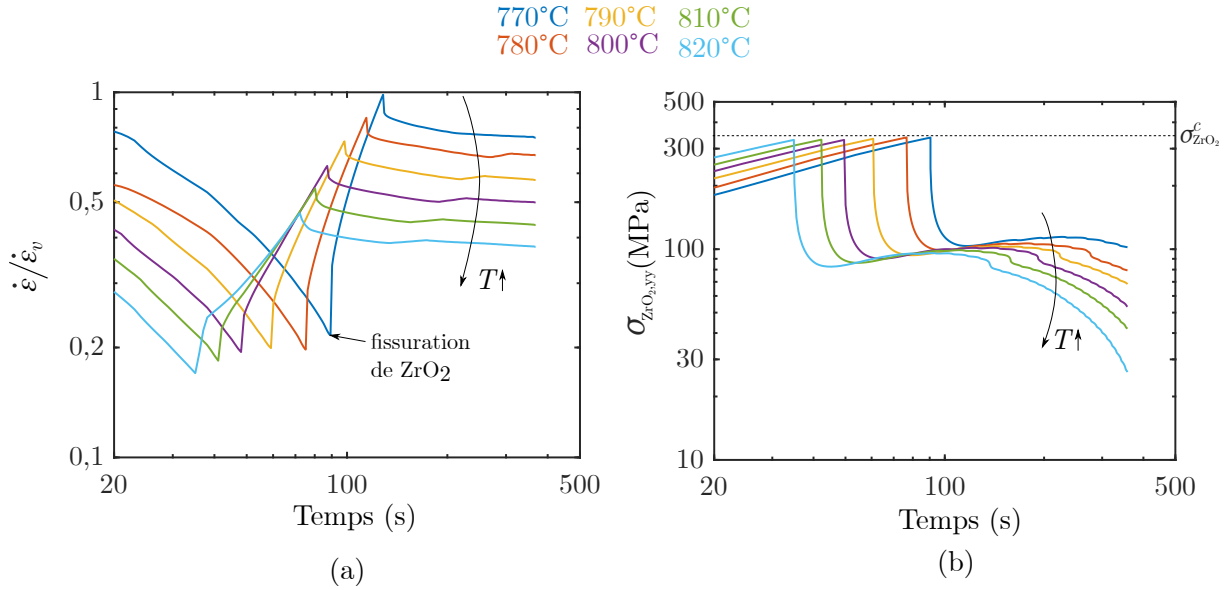


Figure 4.29 : Résultat de l'étude paramétrique sur la consigne de température pour $e_{ZrO_2,BT,ext} = 10\mu m$, $\lambda = 200\mu m$, $P_i = 30bar$ et $g_{c,ZrO_2} = 1,3N/mm$: (a) évolution temporelle de la vitesse de déformation normalisée par celle du matériau vierge ; (b) évolution temporelle de la contrainte dans la couche de ZrO_2 extraite au nœud de contrôle défini en Figure 4.24

$\sigma_{ZrO_2}^c = 345MPa$ dépend uniquement de la résistance à la fissuration de l'oxyde qui a été fixée à $g_{c,ZrO_2} = 1,3N/mm$.

La Figure 4.30 présente les résultats obtenus en perturbant la consigne de température d'une valeur correspondante à l'incertitude de mesure sur la température ($6^\circ C$) afin d'évaluer son effet sur la vitesse de déformation normalisée par celle du matériau vierge. L'incertitude thermique induit un écart d'environ 10% sur la vitesse normalisée après fissuration de la couche de ZrO_2 , ce qui est relativement bas par rapport à l'incertitude sur la valeur absolu de la vitesse (60% environ). Ceci s'explique par le fait que la vitesse normalisée est moins sensible à la température.

4.9.2.2 Application aux essais réalisés à 30bar

Le processus de simulation des essais illustré en Figure 4.25 a été appliqué aux essais {Pox10/10-4, Pox10/10-5, Pox10/10-6, Pox10/10-7*} tous réalisés à 30bar sous argon+oxygène, mais interrompus à différents instants. Les données relatives à l'épaisseur d'oxyde en surface externe et à la taille moyenne des fragments sont résumées dans le Tableau 4.7. La Figure 4.31(a) présente les mesures de pression interne et de température lors de ces essais. Comme décrit plus haut dans le processus de simulation des essais, ces mesures (température, pression interne, épaisseur d'oxyde en surface externe, taille moyenne des fragments) sont utilisées comme données d'entrée des simulations pour définir la géométrie et le chargement thermomécanique. $g_{c,ZrO_2} = 1,3N/mm$ est choisi de manière à observer par simulation, une fissuration de l'oxyde après une durée de fluage comparable à celle constatée durant les essais.

La comparaison essai-calcul sur l'évolution de la vitesse de déformation normalisée est

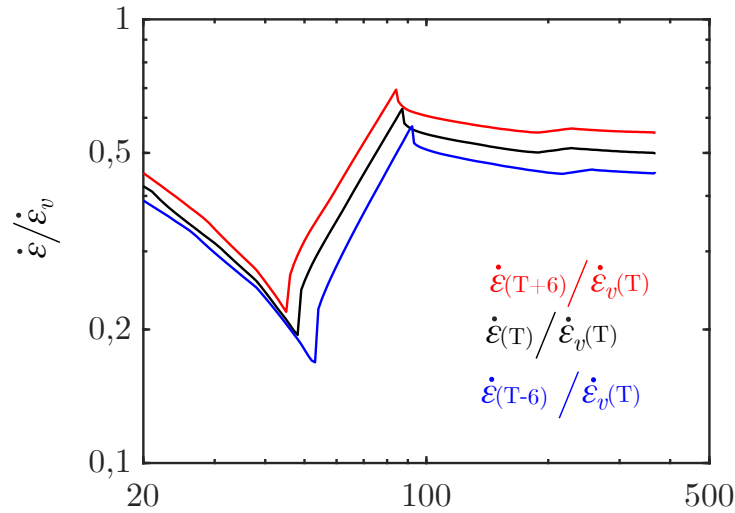


Figure 4.30 : Effet de l'incertitude thermique sur la vitesse de déformation normalisée par celle du matériau vierge. $T = 800^\circ\text{C}$, $e_{\text{ZrO}_2, \text{BT}, \text{ext}} = 10\mu\text{m}$, $\lambda = 200\mu\text{m}$, $P_i = 30\text{bar}$ et $g_{c, \text{ZrO}_2} = 1,3\text{N/mm}$.

ID. Ech	$e_{\text{ZrO}_2, \text{BT}, \text{ext}}$ (μm)	λ (μm)	ε_{max} (%)
Pox10/10-4	9,7	312	0,8
Pox10/10-5	10,5	243	2,4
Pox10/10-6	9,4	83	6
Pox10/10-7*	10,1	167	61,7

Tableau 4.7 : Épaisseur d'oxyde en surface externe et taille moyenne des fragments pour les essais {Pox10/10-4, Pox10/10-5, Pox10/10-6, Pox10/10-7*}. ε_{max} est la déformation macroscopique maximale de l'essai mesurée par 2D-CIN.

présentée en Figure 4.31. La comparaison est dans l'ensemble satisfaisante. On rappelle que seul g_{c, ZrO_2} a fait l'objet d'une identification par méthode inverse à partir des essais. Les autres paramètres sont tous issus de la littérature. Cette valeur de g_{c, ZrO_2} correspond à un facteur d'intensité de contrainte de $K_{Ic, \text{ZrO}_2} \approx 16\text{MPa} \cdot \sqrt{\text{m}}$ à 800°C (cf.Équation 1.6). Le K_{Ic, ZrO_2} obtenu à 800°C est supérieur à celui usuellement constaté à froid pour les zircons industriels (1 à $5\text{MPa} \cdot \sqrt{\text{m}}$ [154]).

Notons toutefois que le modèle ne parvient pas à reproduire l'augmentation de la vitesse observée sur les temps longs, lorsque le niveau de déformation dépasse environ 2%. Cela est probablement une conséquence de l'hypothèse des petites déformations. De plus, le changement significatif de géométrie induit des effets structure de la pression suiveuse qui ne peuvent pas être pris en compte avec une modélisation 2D en déformation plane.

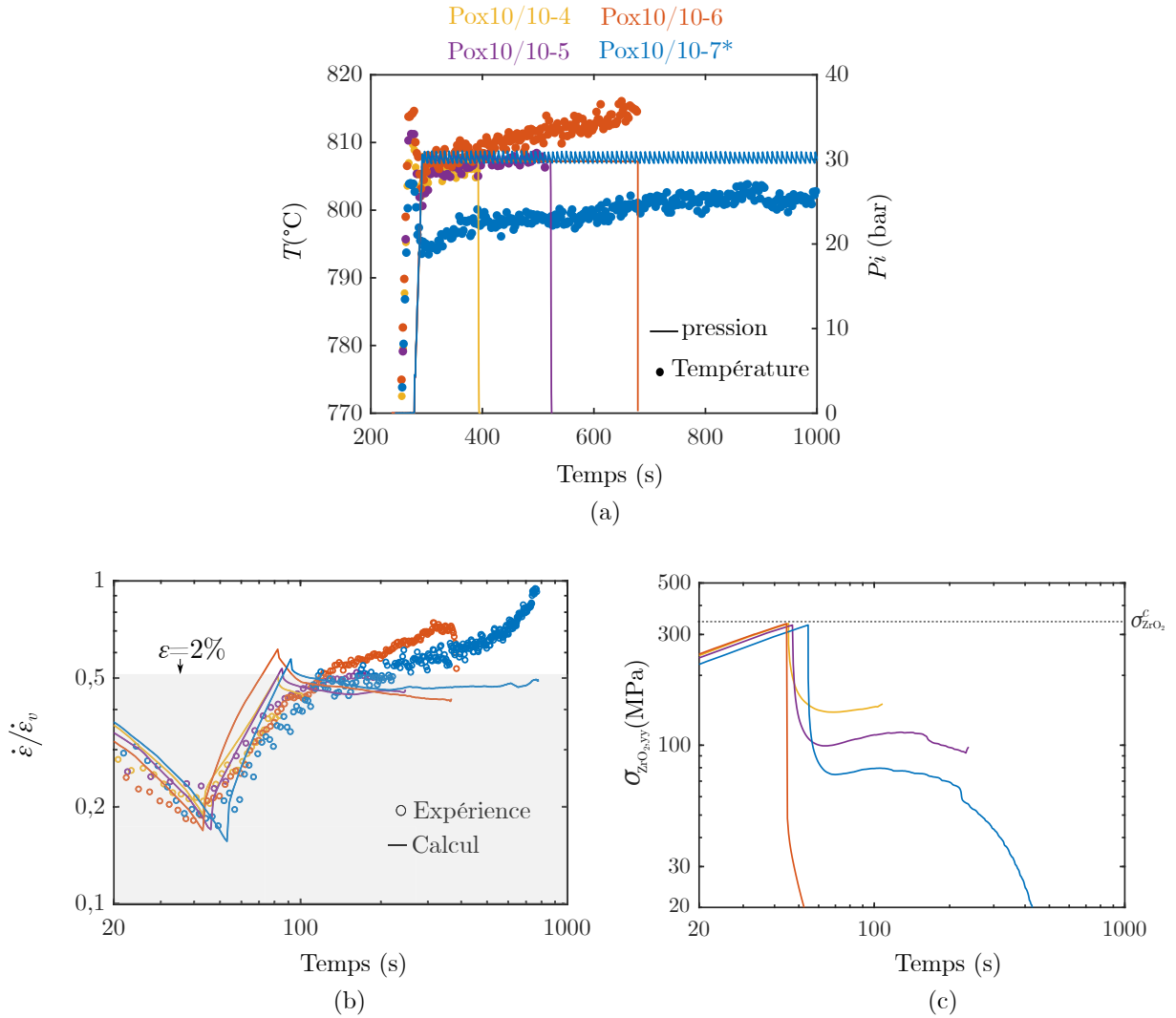


Figure 4.31 : Comparaison entre essai et calcul : (a) mesures de la pression interne et de la température durant les essais et utilisés en entrée des simulations ; (b) évolution temporelle de la vitesse de déformation de la gaine pré-oxydée normalisée par celle de la gaine vierge ; (c) évolution de la contrainte prédite par simulation dans la couche de ZrO_2 extraite au nœud de contrôle défini en Figure 4.24.

4.10 Discussion et synthèse générale

Le but de ce chapitre était de caractériser et décrire l'effet de la couche de pré-oxyde sur le comportement au fluage macroscopique de la gaine.

Dans un premier temps, des essais de fluage semi-intégraux de ballonnement de gaine sous chargement thermomécanique imposé ont été réalisés. Ces essais ont permis par analyse paramétrique, d'étudier l'influence de l'épaisseur d'oxyde externe (10, 30, 60 μm) et interne (10 μm), de l'atmosphère (argon ou mélange argon+oxygène) et du chargement mécanique (20, 30, 50 bar). L'étude a été limitée au domaine α ($T = 800^\circ\text{C}$). Ces essais ont permis de mettre en évidence le rôle prépondérant joué par la couche de pré-oxyde sur le comportement macroscopique au fluage de la gaine. Tant qu'il n'est pas fissuré, le pré-oxyde joue un rôle renfort vis-à-vis du fluage. Dans les conditions de l'étude, la vitesse

de fluage sur la gaine pré-oxydée peut-être jusqu'à 10 fois inférieure à celle d'une gaine vierge. Après fissuration de la couche de pré-oxyde, une perte significative de l'effet renfort initialement apporté par le pré-oxyde est constatée. L'état initial de la couche d'oxyde qui dépend de son épaisseur et des conditions de pré-oxydation a un effet au premier ordre sur le renfort apporté par l'oxyde. En ce qui concerne l'atmosphère de l'essai, bien qu'elle influence localement le mode de ruine de la structure, il a un effet au second ordre sur la vitesse de fluage macroscopique. Il a également été mis en évidence que l'effet renfort du pré-oxyde s'estompe lorsque la pression interne appliquée augmente.

Dans un deuxième temps, une méthodologie de simulation des essais de fluage réalisés a été proposée. Les simulations ont été effectuées à l'aide de la plateforme numérique multi-physique mise en place dans le cadre de cette thèse. Ces simulations ont été effectuées dans le but de prédire, l'effet renfort de la couche de pré-oxyde constaté dans la campagne d'essai. Elles ont été limitées aux essais réalisés sous argon + oxygène. Les essais sous argon induisent en pointe de fissure des niveaux de déformation excessifs, peu compatibles avec l'hypothèse des petites déformations utilisée dans la modélisation.

Le processus de simulation des essais a été conçu de manière à tenir compte des spécificités de chaque essai afin d'être le plus représentatif possible. Les mesures expérimentales effectuées pour chaque essai en termes d'épaisseur initiale de la couche de pré-oxyde, taille moyenne des fragments d'oxyde, température, pression interne sont utilisées en entrée des simulations pour définir la géométrie ainsi que le chargement thermomécanique à appliquer pour simuler l'essai en question. Toutefois, les simulations sont basées sur des hypothèses assez fortes dont certaines ont été choisies pour avoir des temps de simulation raisonnables.

Une étude paramétrique sur l'épaisseur initiale de la couche d'oxyde, la température et la taille moyenne des fragments d'oxyde a été effectuée. Il a été mis en évidence que l'effet renfort de l'oxyde augmente lorsque la température augmente. De même, il a été montré que pour un état initial homogène de la couche de ZrO_2 , l'augmentation de son épaisseur a pour effet d'augmenter également son effet renfort. En ce qui concerne la taille des fragments, il a été constaté que la densification de la fissuration (diminution de la taille des fragments) induit une diminution de l'effet renfort de l'oxyde.

Le processus de simulation mis en place a ensuite été appliqué aux essais réalisés à 30bar sous mélange d'argon+oxygène, sur des éprouvettes présentant une épaisseur de couche d'oxyde en surface interne et externe d'environ 10 μ m. Les simulations réalisées permettent de reproduire de manière satisfaisante les résultats expérimentaux. Toutefois, il s'agit de premières simulations basées sur plusieurs hypothèses qui méritent d'être discutées.

Tout d'abord, les couches de ZrO_2 modélisées comportent des hétérogénéités (fissures et/ou porosités, ondulation de l'interface Zy-4/ ZrO_2 , défauts...) dont les tailles caractéristiques sont du même ordre de grandeur que l'épaisseur des couches de ZrO_2 . De plus, la taille des grains dans la couche de ZrO_2 peut atteindre jusqu'à 500nm, ce qui veut dire que dans une couche d'oxyde de 10 μ m, on aurait seulement 20 grains dans l'épaisseur. On peut donc se poser la question de la pertinence de la mécanique des milieux continus à l'échelle de la couche d'oxyde. Les simulations effectuées permettent toutefois de reproduire de manière satisfaisante les essais sur les faibles épaisseurs d'oxyde (10 μ m). Cela peut s'expliquer par le fait que dans les conditions de chargement (contrainte circonferentielle), les fissures/porosités circonférentielles sont principalement sollicitées en mode II,

qui n'est pas le mode de rupture le plus critique pour l'oxyde. L'endommagement circonférentiel n'aurait donc pas d'effet significatif dans l'homogénéisation du comportement de l'oxyde. Les fissures les plus critiques sont celles orientées radialement qui sont sollicitées en mode I. Pour une description plus fine qui tienne compte de l'hétérogénéité de l'oxyde, il pourrait être envisagé de conduire une modélisation aux différentes échelles impliquées.

D'autre part, l'état initial de la couche de ZrO_2 qui dépend des conditions de pré-oxydation et de son épaisseur n'a pas été pris en compte. Cette hypothèse sur l'état initial a montré ses limites sur la capacité du modèle à simuler les essais sur des gaines avec des épaisseurs d'oxyde importantes ($>35\mu\text{m}$). L'endommagement initial de l'oxyde dans la direction radiale a un effet au premier ordre sur la vitesse de déformation en cours de fluage. Deux pistes peuvent être envisagées pour tenir compte de l'endommagement radial de l'oxyde. La première approche serait de simuler la phase de pré-oxydation à une échelle compatible avec la modélisation réalisée dans ce travail. La deuxième approche, plus simple à mettre en oeuvre, consisterait à construire de manière phénoménologique un état d'endommagement initial de l'oxyde en fonction de son épaisseur. Cela nécessiterait probablement d'y ajouter un aspect stochastique.

Par ailleurs, bien que le modèle multi-physique mis en place permette de simuler le couplage entre mécanique et oxydation, celui-ci a été négligé dans les simulations. Ceci revient à supposer que la cinétique d'oxydation avec ou sans chargement mécanique externe est la même. De même, le couplage entre la viscoplasticité et la diffusion d'oxygène n'est pas pris en compte. Les dislocations à l'origine de la viscoplasticité sont des défauts qui peuvent constituer des court-circuits pour la diffusion de l'oxygène [247, 248]. Toutefois, à notre connaissance, il n'existe pas de données pertinentes sur ces couplages (mécanique/oxydation, viscoplasticité/diffusion d'oxygène) dans nos conditions d'essais. Ces couplages pourraient avoir un impact sur la cinétique d'oxydation en pointe de fissure où des niveaux de déformation importants sont atteints. Il en résulterait donc un effet sur la cinétique de pénétration des fissures dans le métal de base.

D'autres hypothèses comme le fait de considérer l'oxyde comme un matériau élastique, l'hypothèse des déformations planes et l'hypothèse de petites déformations peuvent également être discutées. Certains travaux de la littérature, considèrent que l'oxyde a également un comportement viscoplastique [14, 137–139].

En ce qui concerne l'hypothèse des petites déformations, elle limite la validité du modèle aux faibles niveaux de déformations. Il a justement été mis en évidence le fait que les simulations ne reproduisent pas convenablement les essais sur les temps longs, lorsque des niveaux de déformations importants sont atteints. Le fait de modéliser les essais en 2D sous l'hypothèse des déformations planes ne permet pas non plus de tenir compte de l'effet structure induit par la pression suiveuse appliquée en surface interne. En effet, en cours de ballonnement, la gaine passe d'une géométrie cylindre à une géométrie sphérique dans la zone la plus déformée. Ce changement de géométrie induit des contraintes supplémentaires dans la direction axiale qui ne peuvent pas être prises en compte dans un modèle en 2D sous l'hypothèse de déformation plane.

Conclusion générale & perspectives

Conclusion générale

La gaine combustible en tant que première barrière de confinement au contact direct avec le combustible, représente un enjeu majeur pour la sûreté nucléaire. De nombreuses études sont conduites pour mieux maîtriser le comportement des gaines de combustible et leur capacité à confiner le combustible irradié. La plupart des études portent sur des gaines vierges (à l'état de réception). La littérature est plus lacunaire quand il s'agit du comportement des gaines ayant séjourné en réacteur et pour lesquelles une couche d'oxyde s'est formée en surface interne par oxydation au contact avec le combustible et en surface externe par corrosion au contact avec de l'eau.

Cette thèse porte sur l'étude du comportement thermomécanique d'une gaine dans des conditions représentatives d'un APRP en considérant son état de corrosion avant accident. On caractérise et modélise les couplages physiques constatés lors du fluage des gaines de Zy-4 dans la phase ductile de l'APRP. Ces couplages portent sur l'oxydation du matériau, la diffusion d'oxygène, le fluage du métal et la prise en compte de l'endommagement de l'oxyde. Ces nombreux couplages multi-physiques complexifient considérablement l'étude du comportement effectif au fluage d'une gaine pré-oxydée, ce qui justifie certainement le manque de travaux disponibles sur ce sujet. Cette thèse permet de combler cette lacune en apportant des données expérimentales et un outil numérique permettant de mieux appréhender le comportement macroscopique au fluage d'une gaine pré-oxydée.

Deux études expérimentales distinctes ont été conduites : l'une dédiée au comportement à l'oxydation d'une gaine pré-oxydée et l'autre à son comportement au fluage sous environnement oxydant.

D'un côté, des essais d'oxydation haute température ont été réalisés sur des gaines vierges et pré-oxydées en laboratoire afin d'étudier le phénomène d'oxydation de manière découplée d'un chargement mécanique externe. Ils ont permis de collecter un grand nombre de données sur les cinétiques d'oxydation à 750°C et 820°C, ceci en couplant plusieurs moyens de mesures (permascopie, microscope optique, microsonde de Castaing, analyseur de la teneur en hydrogène).

Les principaux résultats obtenus dans les conditions d'oxydation étudiées ($T \in [750-820^\circ\text{C}]$ et $t < 3200\text{s}$) sont résumés ci-dessous :

- Le pré-oxyde est protecteur vis-vis de l'oxydation. Aucune variation mesurable de l'épaisseur du pré-oxyde n'a été observée après le transitoire à haute température.
- L'environnement de l'essai (argon ou mélange argon+vapeur) n'a pas d'influence sur l'oxydation d'une gaine pré-oxydée.

D'autre part, des essais semi-intégraux de fluage, sous conditions APRP (pressurisation

interne à haute température) ont été réalisés sur des gaines en Zy-4 vierges et pré-oxydées en laboratoire. Ces essais ont permis par analyse paramétrique, d'étudier l'influence de l'épaisseur d'oxyde en surface externe de la gaine, de l'atmosphère de l'essai (argon ou mélange argon+oxygène) et du chargement mécanique (20, 30, 50bar). L'épaisseur d'oxyde en surface interne est maintenue constante et égale à environ 10 μ m pour l'ensemble des éprouvettes testées. L'étude a été limitée au domaine α , la température d'essai se situe dans l'intervalle [790-820] $^{\circ}$ C pour la totalité des essais. Les essais ont été analysés en exploitant simultanément les mesures cinématiques et thermiques effectuées à la surface externe de la région d'intérêt des éprouvettes, ainsi que les coupes métallographiques réalisées post-mortem.

Les principaux résultats obtenus pour les essais de fluage sont résumés ci-dessous :

- Le pré-oxyde joue un rôle prépondérant sur le comportement macroscopique au fluage de la gaine. Tant qu'il n'est pas fissuré, il offre une résistance accrue au fluage. La vitesse de fluage sur la gaine pré-oxydée peut-être jusqu'à 10 fois inférieure à celle prédite pour le matériau vierge soumis aux mêmes conditions de sollicitation sous environnement neutre.
- Après fissuration de la couche de pré-oxyde, une perte significative de l'effet renfort initialement apporté par le pré-oxyde est observée. Toutefois un renfort résiduel est constaté, du moins pour les faibles épaisseurs d'oxyde en surface externe (<35 μ m). La vitesse de fluage de la gaine pré-oxydée reste inférieure à celle prédite pour le matériau vierge jusqu'à un niveau de déformation de 5% de la gaine.
- L'état initial de la couche d'oxyde qui dépend de son épaisseur et des conditions de pré-oxydation a un effet au premier ordre sur le renfort apporté par le pré-oxyde. Deux domaines de comportement au fluage sont identifiés en fonction de l'épaisseur de la couche de pré-oxyde. Dans les conditions de pré-oxydation de l'étude et pour des couches de pré-oxyde d'épaisseurs comprises entre 0 et 35 μ m, le pré-oxyde présente une structure initiale avec peu de fissures/porosités et l'effet renfort augmente lorsque l'épaisseur d'oxyde augmente. Au delà de 60 μ m, le pré-oxyde présente une structure avec de nombreuses fissures circonférentielles et radiales, ce qui induit à l'inverse une perte significative de l'effet renfort lorsque l'épaisseur d'oxyde augmente.
- L'effet renfort du pré-oxyde s'estompe lorsque la contrainte augmente. À 50bar, cette résistance accrue au fluage est moins importante qu'à 20 et 30bar. La contrainte influence également le mode de ruine de la structure pour des essais sous environnement oxydant. À 20 et 30bar, la cinétique de fluage suffisamment lente pour permettre un renouvellement de la couche d'oxyde sur les surfaces nouvellement formées par le fluage du métal. On observe alors des fissures en forme de "V". L'environnement oxydant induit une pénétration des fissures dans le métal de base. À 50bar, la cinétique de fluage domine sur la cinétique d'oxydation. Les fissures n'ont pas le temps de se ré-oxyder ce qui conduit à des fissures en forme de "U".
- Dans les conditions étudiées, bien que l'environnement oxydant de l'essai joue localement un rôle sur le mode de ruine, il semble ne pas avoir d'impact sur la cinétique macroscopique de fluage de la gaine.

Dans un second temps, une plateforme numérique permettant de simuler simultanément

ment les phénomènes de fluage, fissuration, diffusion d'oxygène et oxydation a été mise en place. Les outils numériques pour simuler les discontinuités (fissuration, oxydation) sont basés sur des approches en champ de phases. Cette plateforme a été utilisée pour simuler les essais d'oxydation et les essais de fluage réalisés.

Concernant les essais d'oxydation, **la plateforme numérique a permis l'identification par FEMU des coefficients de diffusion de l'oxygène dans les couches de Zy-4 et ZrO_2 à 750°C et 820°C .** Notons tout de même que les coefficients de diffusion de l'oxygène identifiés dans la couche de ZrO_2 dépendent fortement de la teneur en oxygène à l'interface Zy-4/ ZrO_2 coté ZrO_2 qui est très difficile à mesurer avec précision.

Cette plateforme a également été utilisée pour simuler les essais de fluage réalisés. Le processus de simulation des essais a été conçu de manière à tenir compte des spécificités de chaque essai afin d'être le plus représentatif possible de la situation expérimentale modélisée. Les mesures expérimentales effectuées pour chaque essai (épaisseur initiale de la couche de pré-oxyde, taille moyenne des fragments d'oxyde, température, pression interne) sont utilisées en entrée des simulations. Ces simulations permettent alors de prédire le renfort de l'oxyde (vitesse de déformation de la gaine pré-oxydée normalisée par celle de la gaine vierge) qui est ensuite confronté au renfort mesuré. **Les simulations reproduisent de manière satisfaisante les résultats d'essais sur des éprouvettes présentant une épaisseur de couche d'oxyde en surface interne et externe d'environ $10\mu\text{m}$ jusqu'à un niveau de déformation de 2%. Les simulations ont également permis de quantifier l'influence de l'épaisseur d'oxyde, de la température et de la densité de fissure sur le renfort de l'oxyde.** Toutefois, ces simulations sont basées sur des hypothèses assez fortes : homogénéisation du comportement de l'oxyde, phase de pré-oxydation et densification de la fissuration non simulée, périodicité de la fissuration de l'oxyde, adhérence parfaite entre les couches de Zy-4 et ZrO_2 , couplage mécanique-oxydation négligé. Ces hypothèses nécessitent d'être assouplies afin de pouvoir simuler convenablement les essais pour des épaisseurs d'oxyde et niveau de déformation plus importants. Notamment en ce qui concerne l'hypothèse sur l'état initial de la couche d'oxyde et l'hypothèse des petites déformations.

Perspectives

Plusieurs axes de recherche tant sur le plan expérimental que numérique peuvent être envisagés pour approfondir ce travail sur le comportement au fluage des gaines pré-oxydées.

Sur le volet expérimental, les pistes de recherche suivantes peuvent être envisagées :

- Il serait intéressant d'essayer d'exploiter davantage la richesse des essais. Seules les données au centre de la ROI ont été utilisées pour chaque essai. Une quantité importante de mesures dans la ROI reste donc inexploitée.
- La plage d'épaisseurs d'oxyde en surface externe qui s'étend de $35\text{--}60\mu\text{m}$ n'a pas été explorée. Il serait intéressant de réaliser des essais dans cette plage pour clairement identifier la transition entre les deux domaines de comportement au fluage qui ont été identifiés en fonction de l'épaisseur de la couche de pré-oxyde.
- L'étude a été limitée à 3 niveaux de pression interne. Il serait intéressant d'étudier d'autres conditions de chargement afin de clairement identifier la transition entre le

mode de ruine en "U" et celui en "V".

- Il serait intéressant d'approfondir la caractérisation de l'état initial du pré-oxyde (contraintes résiduelles, endommagement) qui joue au premier ordre sur la vitesse de fluage.

Concernant le volet numérique, les améliorations suivantes hiérarchisées en fonction de leur difficulté de réalisation peuvent être envisagées :

- Il est nécessaire de tenir compte de l'état initial de l'oxyde pour simuler de manière convenable les essais pour des épaisseurs d'oxyde importantes. A court terme, cela peut se faire à travers une approche phénoménologique qui permettrait de générer un état d'endommagement initial représentatif en fonction de l'épaisseur d'oxyde. A plus long terme, on pourrait envisager de simuler la phase de pré-oxydation. Pour cela des améliorations considérables du modèle pourraient être nécessaires (modélisation à échelle de la microstructur, prise en compte de couplages supplémentaires...). Dans ce cas en parallèle il faudrait aussi mettre en place des méthodes d'expérimentation permettant de nourrir les modèles mis en oeuvre et d'en évaluer la pertinence.
- Pour simuler les essais sur les temps longs, il serait aussi intéressant d'étendre la formulation aux grandes déformations. Des techniques de remaillage [249] pourraient être mises en oeuvre pour améliorer l'évaluation des déformations locales après fissuration de l'oxyde.
- Il peut aussi être intéressant d'approfondir les simulations en exploitant davantage les possibilités de couplages qu'offre la plateforme multi-physique. Pour cela, des essais complémentaires pourraient être nécessaires pour calibrer les différents paramètres de couplages intégrés dans le modèle.

Par rapport à la plupart des études précédentes sur le comportement au fluage des gaines lors d'un APRP, les travaux réalisés dans cette thèse permettent de se rapprocher un peu plus des conditions réelles avec la prise en compte des couches d'oxyde initiales et d'un environnement oxydant en cours de fluage. Toutefois, l'écart de représentativité par rapport aux conditions réelles reste important. Notamment en ce qui concerne l'état initial du pré-oxyde, l'effet de l'hydruration secondaire induite par une oxydation sous vapeur d'eau et le transitoire thermomécanique réellement subi par la gaine lors d'un APRP. Des améliorations dans ce sens des moyens expérimentaux utilisés dans cette thèse sont en cours.

Annexe A

Formulation éléments finis du modèle

Les formes fortes des quatre problèmes couplés (déplacement, diffusion, changement de phase, fissuration) à résoudre sont résumées comme suit :

$$\left\{ \begin{array}{l} \nabla \cdot \boldsymbol{\sigma} - \mathbf{f}_v = 0, \\ \dot{c} + \nabla \cdot \left(L(\phi) \nabla \left(\frac{\partial \psi}{\partial c} \right) \right) = 0, \\ -\alpha \Delta \phi + \frac{\dot{\phi}}{M} + \frac{\partial \psi}{\partial \phi} = 0, \\ \frac{g_c}{l_c} (d - l_c^2 \Delta d) = 2(1 - d) \mathcal{H}. \end{array} \right. \quad (\text{A.1})$$

La méthode Newton-Raphson est utilisée pour résoudre le problème multi-physique de manière itérative :

$$\begin{bmatrix} \mathbf{K}_{uu} & \mathbf{K}_{u\phi} & \mathbf{0} & \mathbf{0} \\ \mathbf{K}_{\phi u} & \mathbf{K}_{\phi\phi} & \mathbf{K}_{\phi c} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{K}_{c\phi} & \mathbf{K}_{cc} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{0} & \mathbf{0} & \mathbf{K}_{dd} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \Delta \mathbf{u}_{n+1} \\ \Delta \phi_{n+1} \\ \Delta c_{n+1} \\ \Delta d_{n+1} \end{bmatrix} = - \begin{bmatrix} \mathbf{r}_n^u \\ \mathbf{r}_n^\phi \\ \mathbf{r}_n^c \\ \mathbf{r}_n^d \end{bmatrix}, \quad (\text{A.2})$$

les vecteurs de résidus correspondants sont définis comme suit :

$$\mathbf{r}_i^u = \int_V (\mathbf{B}_{ij} \boldsymbol{\sigma}_j - \mathbf{N}_{ij} \mathbf{f}_{vj}) dV - \int_{\partial V} \mathbf{N}_{ij} \bar{\mathbf{t}}_j dS, \quad (\text{A.3})$$

$$\mathbf{r}_i^c = \int_V \left\{ \mathbf{N}_i \mathbf{N}_j \dot{c}_j - L(\phi) \mathbf{B}_{ij} \left[\nabla \left(\frac{\partial \psi}{\partial c} \right) \right]_j \right\} dV + \int_{\partial V} \mathbf{N}_i (\bar{\mathbf{J}} \cdot \mathbf{n}) dS, \quad (\text{A.4})$$

$$\mathbf{r}_i^\phi = \int_V \left\{ \mathbf{N}_i \left(\frac{\dot{\phi}}{M} + \frac{\partial \psi}{\partial \phi} \right) - \alpha \mathbf{B}_{ij} (\nabla \phi)_j \right\} dV, \quad (\text{A.5})$$

$$\mathbf{r}_i^d = \int_V \left\{ \mathbf{N}_i \left(\frac{g_c}{l_c} d - 2(1 - d) \mathcal{H} \right) + g_c l_c \mathbf{B}_{ij} (\nabla d)_j \right\} dV. \quad (\text{A.6})$$

Dans l'Équation A.4, $\bar{\mathbf{J}}$ est le flux chimique externe. La matrice des fonctions de forme et ses dérivés utilisées pour la discrétisation des quantités scalaires ($\mathbf{N}$, $\mathbf{B}$) et vectorielles ($\underline{\mathbf{N}}$, $\underline{\mathbf{B}}$) sont données par :

$$\mathbf{N} = [N_1 \quad N_2 \quad \dots \quad N_n] \quad (\text{A.7})$$

$$\underline{\mathbf{N}} = \begin{bmatrix} N_1 & 0 & N_2 & 0 & \dots & N_n & 0 \\ 0 & N_1 & 0 & N_2 & \dots & 0 & N_n \end{bmatrix} \quad (\text{A.8})$$

$$\mathbf{B} = \begin{bmatrix} \frac{\partial N_1}{\partial x} & \frac{\partial N_2}{\partial x} & \dots & \frac{\partial N_n}{\partial x} \\ \frac{\partial N_1}{\partial y} & \frac{\partial N_2}{\partial y} & \dots & \frac{\partial N_n}{\partial y} \end{bmatrix} \quad (\text{A.9})$$

$$\underline{\mathbf{B}} = \begin{bmatrix} \frac{\partial N_1}{\partial x} & 0 & \frac{\partial N_2}{\partial x} & 0 & \dots & \frac{\partial N_n}{\partial x} & 0 \\ 0 & \frac{\partial N_1}{\partial y} & 0 & \frac{\partial N_2}{\partial y} & \dots & 0 & \frac{\partial N_n}{\partial y} \\ \frac{\partial N_1}{\partial y} & \frac{\partial N_1}{\partial x} & \frac{\partial N_2}{\partial y} & \frac{\partial N_2}{\partial x} & \dots & \frac{\partial N_n}{\partial y} & \frac{\partial N_n}{\partial x} \end{bmatrix} \quad (\text{A.10})$$

Dans l'Équation A.2, les matrices tangentes sont calculées comme suit :

$$[\mathbf{K}_{uu}]_{ij} = \int_V \left\{ \underline{\mathbf{B}}_{ik}^T \left(\frac{\partial^2 \psi}{\partial \boldsymbol{\varepsilon}^2} \right)_{kl} \underline{\mathbf{B}}_{lj} \right\} dV \quad (\text{A.11})$$

$$[\mathbf{K}_{u\phi}]_{ij} = \int_V \left\{ \underline{\mathbf{B}}_{ik}^T \left(\frac{\partial^2 \psi^{el}}{\partial \phi \partial \boldsymbol{\varepsilon}} \right)_k \mathbf{N}_j \right\} dV \quad (\text{A.12})$$

$$[\mathbf{K}_{\phi u}^e]_{ij} = - \int_V \left\{ \mathbf{N}_i \left(\frac{\partial^2 \psi}{\partial \boldsymbol{\varepsilon} \partial \phi} \right)_k \underline{\mathbf{B}}_{kj} \right\} dV \quad (\text{A.13})$$

$$[\mathbf{K}_{\phi c}]_{ij} = - \int_V \left\{ \frac{\partial^2 \psi}{\partial c \partial \phi} \mathbf{N}_i \mathbf{N}_j \right\} dV \quad (\text{A.14})$$

$$[\mathbf{K}_{\phi\phi}]_{ij} = - \int_V \left\{ \left(\frac{1}{M\Delta t} + \frac{\partial^2 \psi}{\partial \phi^2} \right) \mathbf{N}_i \mathbf{N}_j + \alpha \mathbf{B}_{ik}^T \mathbf{B}_{kj} \right\} dV \quad (\text{A.15})$$

$$[\mathbf{K}_{dd}]_{ij} = \int_V \left\{ \mathbf{N}_i \mathbf{N}_j \left(\frac{g_c}{l_c} + 2\mathcal{H} \right) + g_c l_c \mathbf{B}_{ik}^T \mathbf{B}_{kj} \right\} dV \quad (\text{A.16})$$

$$[\mathbf{K}_{cc}]_{ij} = \int_V \left\{ \frac{1}{\Delta t} \mathbf{N}_i \mathbf{N}_j + L(\phi) \mathbf{B}_{ik}^T \left[\left(\frac{\partial^3 \psi}{\partial c^3} \right) (\nabla c)_k \mathbf{N}_j + \left(\frac{\partial^3 \psi}{\partial c \partial \phi \partial c} \right) (\nabla \phi)_k \mathbf{N}_j + \frac{\partial^2 \psi}{\partial c^2} \mathbf{B}_{kj} \right] \right\} \quad (\text{A.17})$$

Il est important de noter que la matrice de rigidité globale n'est pas symétrique. Le problème est résolu avec un solveur non symétrique.

Les dérivées de la densité d'énergie libre de Helmholtz (ψ) nécessaires pour le calcul des résidus et de la matrice de rigidité sont données ci-dessous :

$$\frac{\partial^2 \psi}{\partial \boldsymbol{\varepsilon}^{el} \partial \phi} = \mathbb{C} : \frac{\partial \boldsymbol{\varepsilon}^{el}}{\partial \phi} + h'(\phi) (\mathbb{C}_a - \mathbb{C}_b) : \boldsymbol{\varepsilon}^{el}, \quad (\text{A.18})$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \psi}{\partial \phi} &= \frac{\partial \psi^{el}}{\partial \phi} + \frac{\partial \psi^{ch}}{\partial \phi} \\ &= \frac{\partial \boldsymbol{\varepsilon}^{el}}{\partial \phi} : \mathbb{C} : \boldsymbol{\varepsilon}^{el} + \frac{h'(\phi)}{2} \boldsymbol{\varepsilon}^{el} : (\mathbb{C}_a - \mathbb{C}_b) : \boldsymbol{\varepsilon}^{el} + W g'(\phi) + h'(\phi) (\psi_a^{ch} - \phi_b^{ch}), \end{aligned} \quad (\text{A.19})$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 \psi}{\partial \phi^2} &= \frac{\partial^2 \psi^{el}}{\partial \phi^2} + \frac{\partial^2 \psi^{ch}}{\partial \phi^2} \\ &= \frac{\partial^2 \boldsymbol{\varepsilon}^{el}}{\partial \phi^2} : \mathbb{C} : \boldsymbol{\varepsilon}^{el} + 2h'(\phi) \frac{\partial \boldsymbol{\varepsilon}^{el}}{\partial \phi} : (\mathbb{C}_a - \mathbb{C}_b) : \boldsymbol{\varepsilon}^{el} \\ &\quad + \frac{\partial \boldsymbol{\varepsilon}^{el}}{\partial \phi} : \mathbb{C} : \frac{\partial \boldsymbol{\varepsilon}^{el}}{\partial \phi} + \frac{h''(\phi)}{2} \boldsymbol{\varepsilon}^{el} : (\mathbb{C}_a - \mathbb{C}_b) : \boldsymbol{\varepsilon}^{el} + W g''(\phi) + h''(\phi) (\psi_a^{ch} - \phi_b^{ch}), \end{aligned} \quad (\text{A.20})$$

$$\frac{\partial^2 \psi}{\partial c \partial \phi} = h'(\phi) k_a (c - c_a) - h'(\phi) k_b (c - c_b), \quad (\text{A.21})$$

$$\frac{\partial^3 \psi}{\partial c \partial \phi^2} = h''(\phi) k_a (c - c_a) - h''(\phi) k_b (c - c_b), \quad (\text{A.22})$$

$$\frac{\partial^3 \psi}{\partial c^2 \partial \phi} = h'(\phi) (k_a - k_b), \quad (\text{A.23})$$

où $\mathbb{C}$ est la matrice de rigidité.

Les dérivées de la déformation élastique ($\boldsymbol{\varepsilon}^{el}$), nécessaires pour le calcul des dérivées de l'énergie libre de Helmholtz, sont données ci-dessous :

$$\frac{\partial \boldsymbol{\varepsilon}^{el}}{\partial \phi} = h'(\phi) (\boldsymbol{\varepsilon}_b^* + \boldsymbol{\varepsilon}_b^{vp} - \boldsymbol{\varepsilon}_a^* - \boldsymbol{\varepsilon}_a^{vp}) \quad (\text{A.24})$$

$$\frac{\partial^2 \boldsymbol{\varepsilon}^{el}}{\partial \phi^2} = h''(\phi) (\boldsymbol{\varepsilon}_b^* + \boldsymbol{\varepsilon}_b^{vp} - \boldsymbol{\varepsilon}_a^* - \boldsymbol{\varepsilon}_a^{vp}) \quad (\text{A.25})$$

Annexe B

Quelques exemples d'application du modèle mis en place

L'objectif de cette annexe est d'illustrer à travers des exemples de complexité croissante, les possibilités qu'offre le modèle développé dans ce travail au delà de l'application à la problématique de la thèse. Ces exemples ont également contribué à la validation de l'implémentation et permettent de mettre en évidence la robustesse du modèle.

Sommaire

B.1	Procédure d'adimensionnement	154
B.2	Stratégie de test du modèle multi-physique mis en place	155
B.3	Compétition entre les phénomènes de fissuration et de visco-plasticité	156
B.3.1	Solution homogène	156
B.3.2	Mode I : Ouverture de fissure en traction	159
B.4	Effet des contraintes résiduelles sur l'interaction entre la rupture et le changement de phase	162
B.4.1	Solution homogène	162
B.4.2	Cas hétérogène	163
B.5	Effet du changement de phase sur la topologie de fissuration . .	168
B.5.1	Inclusion unique	168
B.5.2	Plusieurs inclusions	170

B.1 Procédure d'adimensionnement

Compte tenu du caractère multi-physique du modèle mis en place dans ce travail, un adimensionnement est nécessaire pour simplifier la représentation paramétrique du problème multi-physique et permettre de s'affranchir du choix des unités qui peut induire des problèmes de convergence numérique. De plus, l'utilisation des paramètres sans dimensions pour les simulations offre la possibilité d'extrapoler les résultats à d'autres jeux de paramètres. Les échelles de longueur, de temps et d'énergie sont définies respectivement par la taille du système L , le temps caractéristique de diffusion $\tau = L^2/\max(D_i)$ et la densité d'énergie libre chimique $E_d = r \min(k_i)$. r est une constante positive pouvant être choisie arbitrairement sans avoir d'impact sur les résultats. Les concentrations sont également adimensionnées par la différence de concentrations d'équilibre des deux phases $(c_a - c_b)$ [220]. Les paramètres à adimensionner indiqués par le signe "tilde" ¹, sont résumés dans le Tableau B.1 ci-dessous.

Physique	Sans dimension
Longueur : $l[m]$	$\tilde{l} = \frac{l}{L}$
Temps : $t[s]$	$\tilde{t} = \frac{t}{\tau}$
Propriétés mécanique (n est l'exposant de Norton)	
Module de Young : $E[Pa]$	$\tilde{E} = \frac{E}{E_d}$
Constante de Norton : $A[J^{-n} \cdot m^{3n} \cdot s^{-1}]$	$\tilde{A} = A \cdot E_d^n \cdot \tau$
Énergie de surface de fissure : $g_c[J \cdot m^{-2}]$	$\tilde{g}_c = \frac{g_c}{E_d \cdot L}$
Longueur caractéristique de la fissure : $l_c[m]$	$\tilde{l}_c = \frac{l_c}{L}$
Propriétés chimiques	
concentration : c	$\tilde{c} = \frac{c}{c_a - c_b}$
Energie de l'interface : $\omega[J \cdot m^{-2}]$	$\tilde{\omega} = \frac{\omega}{E_d \cdot L}$
Épaisseur de l'interface : $\delta[m]$	$\tilde{\delta} = \frac{\delta}{L}$
Mobilité de l'interface : $M[J^{-1} \cdot m^3 \cdot s^{-1}]$	$\tilde{M} = M \cdot E_d \cdot \tau$
Coefficient de diffusion : $D[m^2 \cdot s^{-1}]$	$\tilde{D} = \frac{D \cdot \tau}{L^2}$
Courbure de la densité d'énergie libre : $k[J \cdot m^{-3}]$	$\tilde{k} = \frac{k}{E_d}$

Tableau B.1 : Définitions des paramètres sans dimension.

1. $\tilde{x}$ est la grandeur adimensionnée correspondante à la grandeur physique x

Tous les résultats présentés dans la suite sont adimensionnés, mais par souci de clarté, le symbole "tilde" est omis. Les simulations sont effectuées en déformation plane.

B.2 Stratégie de test du modèle multi-physique mis en place

Le modèle mis en œuvre est testé en examinant des quantités qui décrivent la réponse d'une structure jusqu'à la rupture. Comme illustré en Figure B.1, la contrainte critique (σ^c) est définie comme étant la contrainte maximale de traction que peut supporter une structure avant sa rupture. La densité d'énergie de déformation emmagasinée jusqu'à la rupture (U_t) donne une indication sur la ténacité de la structure. U_t représente la zone située sous la courbe contrainte-déformation :

$$U_t = \int_0^{\varepsilon_f} \sigma d\varepsilon, \quad (\text{B.1})$$

où ε_f est la déformation à rupture. Une réponse fragile (RF) correspond à un comportement caractérisé par une valeur élevée de σ^c et une faible valeur de U_t , tandis qu'une réponse ductile (RD) est un comportement caractérisé par une faible valeur de σ^c et une valeur élevée de U_t .

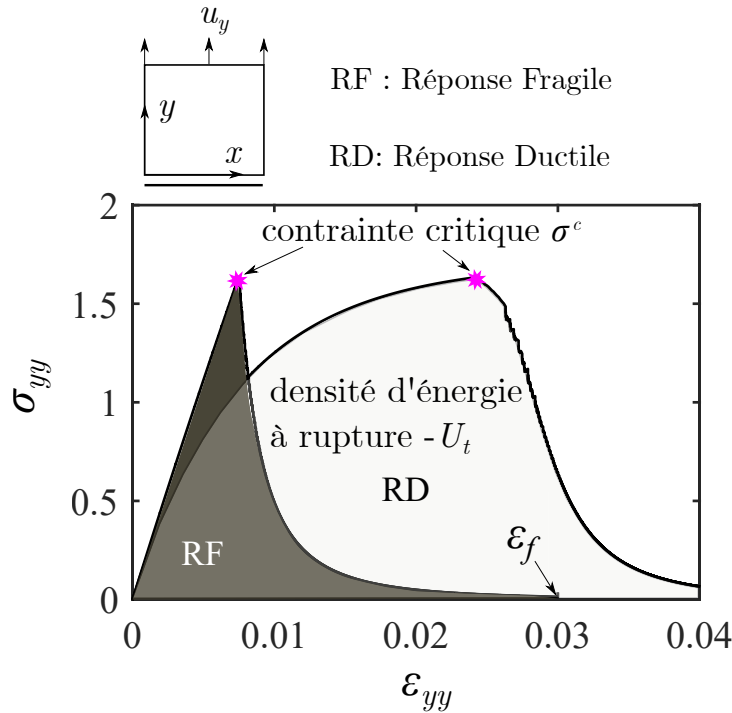


Figure B.1 : Courbes de contrainte-déformation illustrant une Réponse Fragile (RF) et une Réponse Ductile (RD).

Les effets de la viscoplasticité et du changement de phase sur la contrainte critique (σ^c), la densité d'énergie à rupture (U_t) et la topologie de fissure sont analysés à travers

des exemples de complexité croissante. Les sections B.3 et B.4 traitent respectivement de l'effet de la viscoplasticité et du changement de phase sur σ^c et U_t . La section B.5 quant-à elle porte sur l'effet du changement de phase sur la topologie de la fissure. Pour tous les exemples présentés dans cet annexe la fissuration est supposé isotrope : $\alpha_0 = 0$ (cf. Équation 2.24)

B.3 Compétition entre les phénomènes de fissuration et de viscoplasticité

Le modèle champ de phase proposé ne prévoit pas explicitement un couplage entre la fissuration et la viscoplasticité. Cependant, ces deux phénomènes sont indirectement liés par l'énergie de déformation élastique qui peut être dissipée soit par la fissuration, soit par la viscoplasticité. Cette partie porte sur l'impact de cette interaction sur la réponse d'une structure.

B.3.1 Solution homogène

Dans un premier temps nous proposons d'étudier le cas d'un élément $2D$ homogène. Cette exemple simple est intéressant car possède une solution analytique simple qui permet de bien comprendre l'interaction entre la fissuration et la viscoplasticité dans le modèle proposé. Une plaque carrée de dimensions 1×1 est soumise à un cisaillement simple en déplaçant son côté supérieur dans la direction x tandis que son côté inférieur est fixé dans les directions x et y . Le module d'Young est fixé à $E = 210$ avec $\nu = 0,3$; $g_c = 2 \times 10^{-3}$ et $l_c = 2 \times 10^{-4}$. Le paramètre de contrôle du pas de temps est fixé à $\eta = 1\%$. Seules la fissuration et la viscoplasticité sont considérées dans cet exemple.

Indépendamment de la fissuration, le problème viscoplastique peut être résolu analytiquement. Pour un cisaillement simple à vitesse constante ($\dot{\gamma}_{xy}$), le problème viscoplastique se traduit par l'équation différentielle suivante :

$$\dot{\tau}_{xy} = \mu \left(\dot{\gamma}_{xy} - A(\sqrt{3})^{n+1} \tau_{xy}^n \right), \quad (\text{B.2})$$

où $\mu = \frac{E}{2(1+\nu)}$ est le module de cisaillement. La contrainte de cisaillement en régime permanent (τ_{xy}^∞) décrite par $\dot{\tau}_{xy} = 0$ peut être déduite de l'Équation B.2 par :

$$\tau_{xy}^\infty = 3^{-\frac{n+1}{2n}} \cdot \left(\frac{\dot{\gamma}_{xy}}{A} \right)^{\frac{1}{n}}, \quad (\text{B.3})$$

l'énergie de déformation élastique (stockée) en traction lorsque le régime permanent est établi (ψ^∞) est donnée par :

$$\psi^\infty = \frac{(\tau_{xy}^\infty)^2}{4\mu}. \quad (\text{B.4})$$

l'Équation B.3 montre que le comportement viscoplastique ne dépend que du ratio $[\dot{\gamma}_{xy}/A]$, et non des valeurs absolues. Cela reste le cas même lorsque la fissuration est

prise en compte, quelles que soient les conditions de chargement. Pour initier la fissuration de l'élément, l'énergie de déformation élastique en régime permanent (ψ^∞) doit être supérieure au seuil de fissuration (ψ_c). Par conséquent, le ratio critique ($[\dot{\gamma}_{xy}/A]^c$) nécessaire pour atteindre ce seuil de fissuration est donné par :

$$\psi^\infty \geq \psi_c \Rightarrow [\dot{\gamma}_{xy}/A]^c = \sqrt{3} \left(\frac{6\mu g_c}{l_c} \right)^{\frac{n}{2}}. \quad (\text{B.5})$$

Pour $n = 1$, la solution globale de l'Équation B.2 est triviale et la composante de traction ($\psi_{0,+}^{el}$) de l'énergie élastique peut être calculée comme suit :

$$\psi_{0,+}^{el} = \psi^\infty \left[1 - \exp \left(-\frac{\mu \gamma_{xy}}{\tau_{xy}^\infty} \right) \right]^2. \quad (\text{B.6})$$

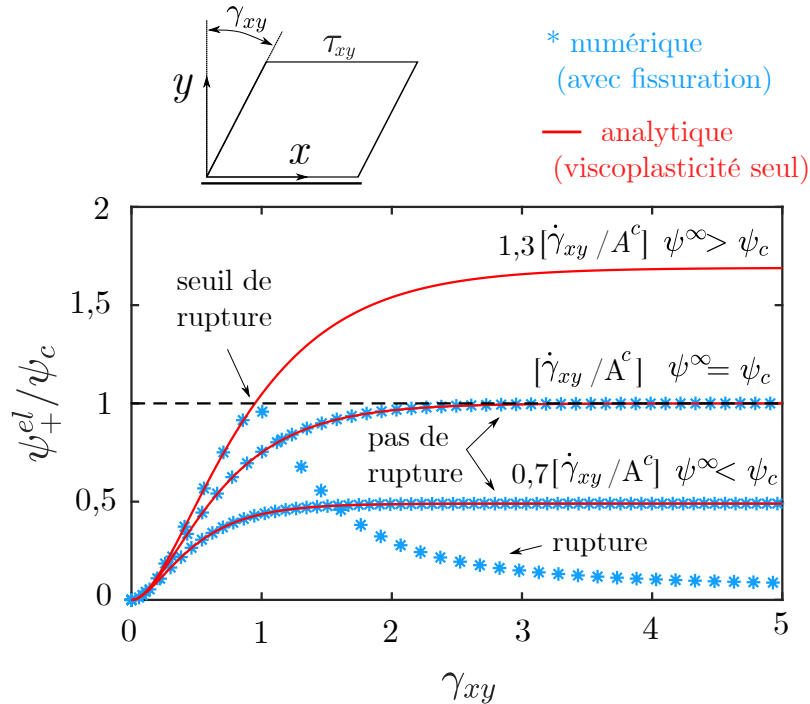


Figure B.2 : Densité d'énergie de déformation élastique en traction (normalisée) en fonction du ratio $[\dot{\gamma}_{xy}/A]^c$. L'exposant de Norton a été fixé à $n = 1$ pour la comparaison avec la solution analytique donnée par l'Équation B.6.

En Figure B.2, on peut voir que pour $[\dot{\gamma}_{xy}/A] \leq [\dot{\gamma}_{xy}/A]^c$, la solution analytique purement viscoplastique (ligne continue rouge) donnée par l'Équation B.6 est cohérente avec la solution numérique (champ de phase). L'énergie élastique de traction en régime permanent ne dépasse pas le seuil de rupture (ψ_c). La vitesse de dissipation viscoplastique est suffisamment élevée pour maintenir l'énergie élastique de traction en dessous du seuil de fissuration. Pour $[\dot{\gamma}_{xy}/A] = 1,3[\dot{\gamma}_{xy}/A]^c$, la vitesse de dissipation viscoplastique n'est plus suffisante. L'élément rompt dès que le seuil de fissuration est atteint ($\psi_+^{el}/\psi_c = 1$) et l'énergie de déformation élastique est totalement dissipée. Ces résultats mettent en évidence le rôle du seuil de fissuration (ψ_c) introduit dans le modèle. Deux échelles de temps

peuvent être observées pour la cinétique de dissipation de l'énergie de déformation élastique. L'endommagement se produit à une échelle de temps très courte, conduisant à la dissipation totale de l'énergie élastique ($\psi_+^{el} \rightarrow 0$), tandis que la viscoplasticité se produit à une échelle de temps plus longue, conduisant à une énergie de déformation élastique non nulle à l'équilibre ($\psi_+^{el} \rightarrow \psi^\infty$).

Une procédure de recherche dichotomique est utilisée pour déterminer numériquement les ratios critiques en cisaillement $[\dot{\gamma}_{xy}/A]^c$ et en traction $[\dot{\epsilon}_{yy}/A]^c$ nécessaires pour atteindre le seuil de rupture de l'élément. On change le ratio en faisant varier la vitesse de déformation appliquée tout en laissant la constante de Norton (A) inchangée.

La Figure B.3(a) et la Figure B.3(b) montrent respectivement l'évolution des ratios critiques en cisaillement ($[\dot{\gamma}_{xy}/A]^c$) et en traction ($[\dot{\epsilon}_{yy}/A]^c$) en fonction de l'exposant de Norton (n). Dans le cas d'un chargement en cisaillement simple, la solution analytique

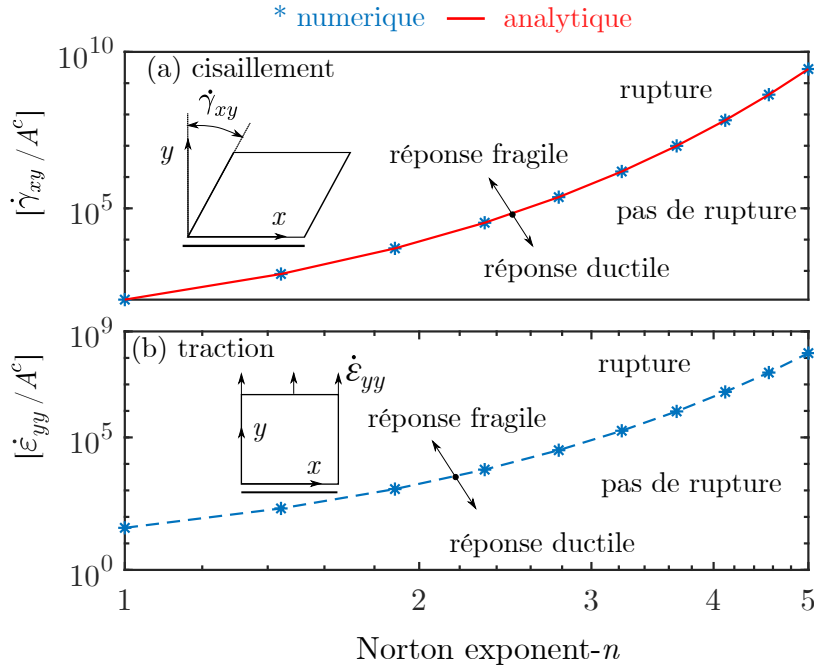


Figure B.3 : Transition entre une réponse fragile et ductile en fonction de l'exposant de Norton (n). Dans le cas d'un chargement en cisaillement simple (a), la solution numérique est comparée à la solution analytique donnée par l'Équation B.5. Dans le cas d'un chargement en traction (b), seule la solution numérique est présentée car il n'existe pas de solution analytique explicite.

(ligne continue rouge) donnée par l'Équation B.5 est cohérente avec la solution numérique correspondante. Les ratios critiques de cisaillement et de traction augmentent exponentiellement avec l'exposant de Norton. Pour un ratio inférieur à la valeur critique, la viscoplasticité domine le comportement de l'élément et la rupture n'est pas observée. En augmentant le ratio, la réponse de l'élément devient de plus en plus fragile et la rupture se produit lorsque le ratio critique est atteint.

B.3.2 Mode I : Ouverture de fissure en traction

Le problème d'ouverture de fissure par traction (mode I) est utilisé pour analyser l'effet de la viscoplasticité sur la rupture d'une structure. La Figure B.4(a) illustre le problème. Le matériau est homogène et seules la fissuration et la viscoplasticité sont considérées. Comme illustré en Figure B.4(b), les conditions aux limites de symétrie permettent de réduire le problème au quart de la géométrie globale. La surface initiale de la fissure est définie par une condition aux limites de type Dirichlet ($\bar{d} = 1$) et est laissée libre de se déplacer. Le module d'Young est fixé à $E = 210$ avec $\nu = 0,3$; $g_c = 2 \times 10^{-3}$ et $l_c = 2 \times 10^{-4}$. La région proche de la fissure pré-existante est maillée finement avec une taille d'élément maximale de $h = l_c/10$ afin de réduire l'effet du maillage spatial sur les résultats [219]. $\eta = 50\%$ est suffisant pour assurer une bonne convergence de la simulation.

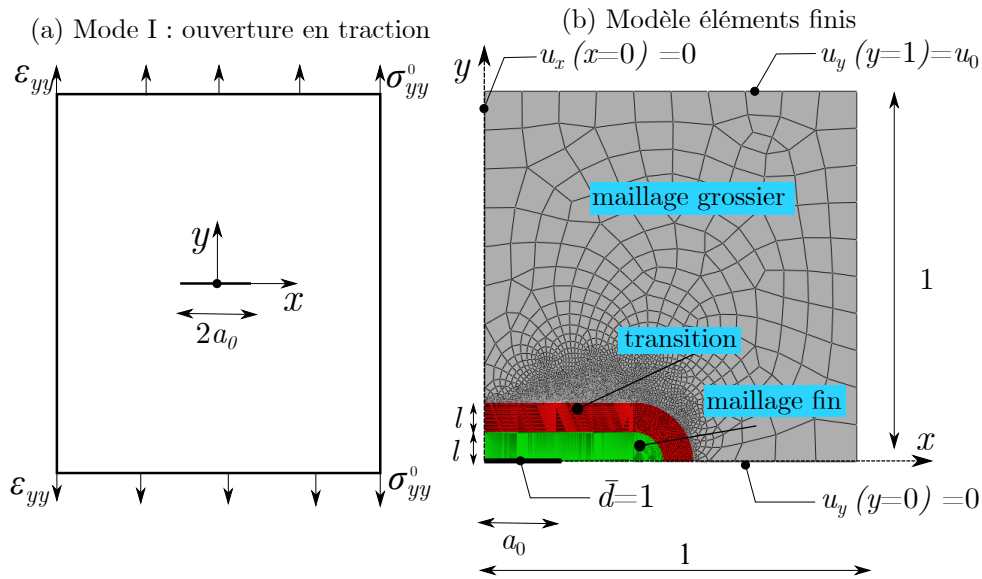


Figure B.4 : Ouverture de fissure en traction (mode I) : (a) problème schématisé; (b) modèle éléments finis. Seule la partie horizontale intacte a été bloquée suivant l'axe y sur la surface inférieure. Les faces de la fissure pré-existante sont laissées libres de se déplacer.

La Figure B.5 montre la courbe contrainte-déformation jusqu'à la rupture pour un ratio de $[\dot{\epsilon}_{yy}/A] = 3 \times 10^3$ et $[\dot{\epsilon}_{yy}/A] = 4 \times 10^4$. L'exposant de Norton et la taille de la fissure pré-existante ont été fixés respectivement à $n = 3$ et $a_0 = l_c$.

Pour $[\dot{\epsilon}_{yy}/A] = 3 \times 10^3$, on observe une réponse fragile (RF) caractérisée par une contrainte critique élevée ($\sigma_{yy}^{0,c}$) et une densité d'énergie à rupture (U_t) faible, tandis que pour $[\dot{\epsilon}_{yy}/A] = 4 \times 10^4$, on observe une réponse ductile (RD) caractérisée par une faible valeur de $\sigma_{yy}^{0,c}$ et une forte valeur de U_t .

La Figure B.7(a) et la Figure B.7(b) montrent respectivement l'évolution de $\sigma_{yy}^{0,c}$ et U_t en fonction du ratio $[\dot{\epsilon}_{yy}/A]$ pour $a_0 = l_c$ et $n = \{1, 3\}$.

En augmentant le ratio $[\dot{\epsilon}_{yy}/A]$, $\sigma_{yy}^{0,c}$ augmente mais U_t diminue. Ce résultat est cohérent avec les observations expérimentales [250]. Pour un ratio $[\dot{\epsilon}_{yy}/A]$ élevé, $\sigma_{yy}^{0,c}$ converge vers la contrainte critique ($\sigma_{yy}^{el,0,c}$) et U_t vers la densité d'énergie à rupture (U_t^{el}) dans le cas d'un matériau élastique fragile. Ces résultats montrent que lorsque la vitesse de déformation viscoplastique ($\dot{\epsilon}^{vp}(A)$) est comparable à la vitesse de chargement ($\dot{\epsilon}_{yy}$), une RD est observée car le matériau subit une déformation viscoplastique et absorbe une énergie

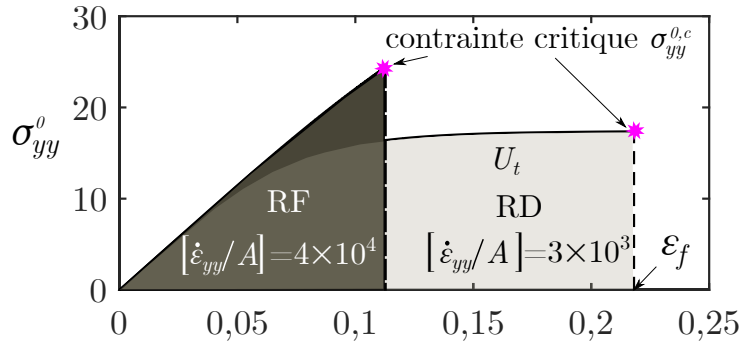


Figure B.5 : Courbes contrainte-déformation pour une réponse fragile (RF) et une réponse ductile (RD) dans le cas d'une ouverture de fissure en traction (mode I). Les simulations ont été effectuées avec $a_0 = l_c$, $n = 3$.

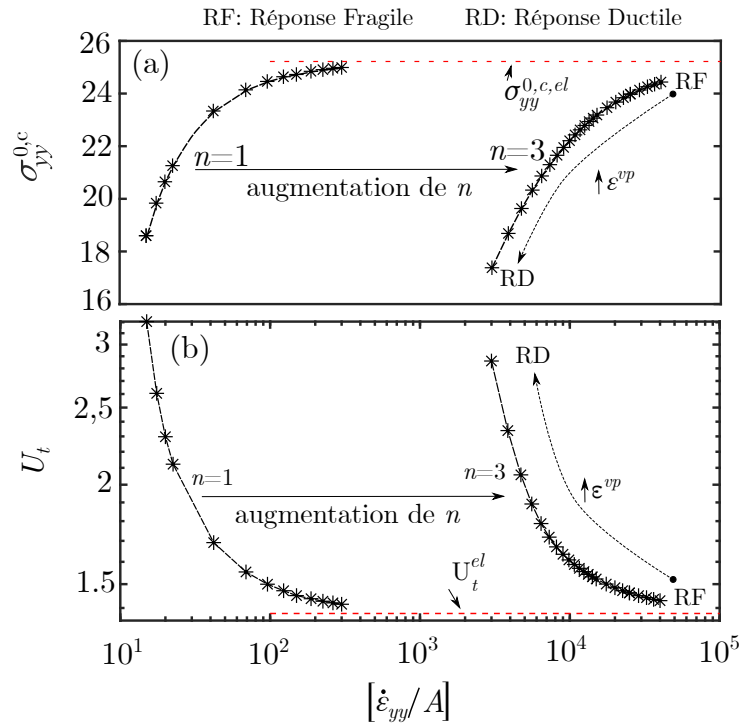


Figure B.6 : Contrainte critique (a) et densité d'énergie jusqu'à rupture (b) en fonction du ratio $[\dot{\epsilon}_{yy}/A]$. La contrainte critique ($\sigma_{yy}^{el,0,c}$) et la densité d'énergie jusqu'à la rupture (U_t^{el}) dans le cas d'un matériau élastique fragile sont également représentées. La direction de l'augmentation de la déformation viscoplastique (ϵ^{vp}) en pointe de fissure est illustrée. Pour toutes les simulations, la longueur de la fissure pré-existante a été fixée à $a_0 = l_c$.

importante avant la rupture. Cependant, si la vitesse de déformation viscoplastique est faible par rapport à la vitesse de chargement, une RF est observée. Le matériau n'a pas assez de temps pour dissiper l'énergie par déformation viscoplastique.

La corrélation entre $\sigma_{yy}^{0,c}$ et U_t est illustrée en Figure B.7. Pour un exposant de Norton donné (n), $\sigma_{yy}^{0,c}$ augmente lorsque U_t diminue. Il est intéressant de constater qu'en agissant simultanément sur l'exposant de Norton (n) et sur la constante de Norton (A), on peut améliorer à la fois $\sigma_{yy}^{0,c}$ et U_t .

L'évolution de la contrainte critique en fonction de la taille de la fissure pré-existante

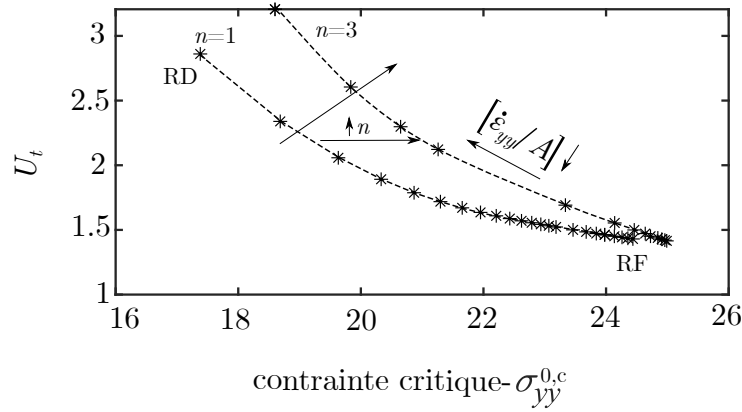


Figure B.7 : Corrélation entre la contrainte critique et la densité d'énergie de déformation à rupture. Les simulations sont effectuées avec $a_0 = l_c$.

normalisée par la longueur caractéristique (l_c) est illustrée en Figure B.8. Les cas élastique

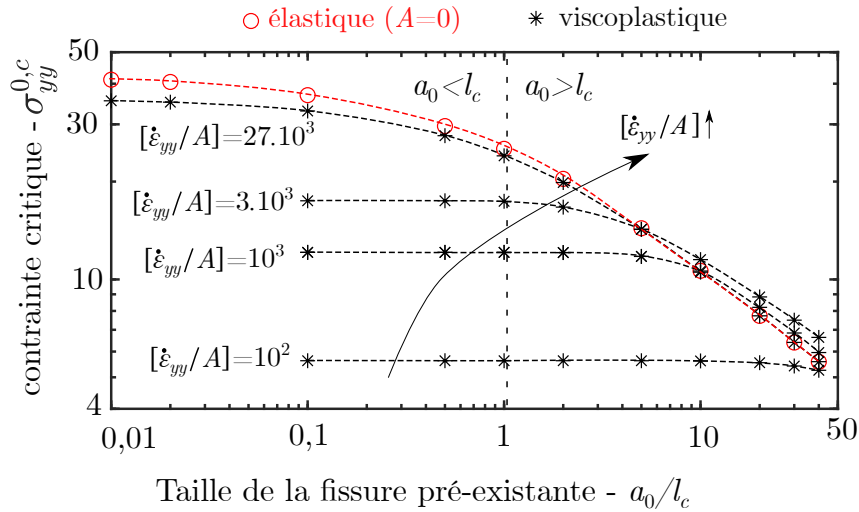


Figure B.8 : contrainte critique en fonction de la taille de la fissure pré-existante (a_0) normalisée par l_c ; l'exposant de Norton a été fixé à $n = 3$ pour les cas viscoplastiques.

(cercle rouge) et viscoplastique (étoile noire) sont représentés. Dans le cas élastique ($A = 0$), pour $a_0 \gg l_c$, $\sigma_{yy}^{0,c}$ varie linéairement avec a_0 (en échelle logarithmique). Ce résultat est cohérent avec la solution analytique de problème de Griffith [219]. Il démontre par ailleurs que la longueur caractéristique (l_c) introduite dans l'approche du champ de phase pour la fissuration n'altère pas la description initiale de Griffith. Lorsque $a_0 < l_c$, $\sigma_{yy}^{0,c}$ converge vers un plateau. Ce résultat similaire à celui de [219], est cohérent avec l'effet de taille observé expérimentalement [251]. Dans les cas viscoplastiques, en augmentant le ratio $[\dot{\epsilon}_{yy}/A]$, la solution viscoplastique converge vers le cas élastique. En réduisant le ratio $[\dot{\epsilon}_{yy}/A]$, la viscoplasticité domine le comportement du matériau et l'effet de la fissure pré-existante tend à disparaître. L'activité viscoplastique en pointe de fissure atténue l'effet de la fissure pré-existante.

B.4 Effet des contraintes résiduelles sur l'interaction entre la rupture et le changement de phase

B.4.1 Solution homogène

Lors de la croissance d'une couche d'oxyde dans un alliage, des contraintes résiduelles peuvent être induites par la déformation de croissance de la couche d'oxyde. Cette déformation de croissance peut être due à l'incompatibilité des volumes molaires entre la phase nouvellement formée et la phase mère [252]. La déformation de croissance est modélisée par une déformation propre supplémentaire (ϵ^*). Le problème homogène avec un élément est intéressant pour comprendre l'effet de cette déformation propre sur le comportement à rupture. Un élément carré de dimensions 1×1 est soumis à une traction simple dans la direction verticale. Le module d'Young est fixé à $E = 210$ avec $\nu = 0.3$, $g_c = 2 \times 10^{-3}$, $l_c = 2 \times 10^{-2}$ et $\eta = 1\%$. Une déformation propre plane défini par un tenseur d'ordre 2 est incorporée dans l'élément : $\epsilon^* = \epsilon^* \delta_{ij}$, où δ_{ij} est le tenseur d'identité d'ordre 2.

La Figure B.9(a) et la Figure B.9(b) montrent respectivement l'évolution de l'énergie de déformation élastique de traction (ψ_+^{el}) normalisée par l'énergie seuil de rupture (ψ_c) et la contrainte supportée par l'élément en fonction de la déformation appliquée (ϵ_{yy}). Le cas de référence ($\epsilon^* = 0$) et le cas élastique ($\epsilon^* = 0,01$) sont représentés. Dans ce dernier

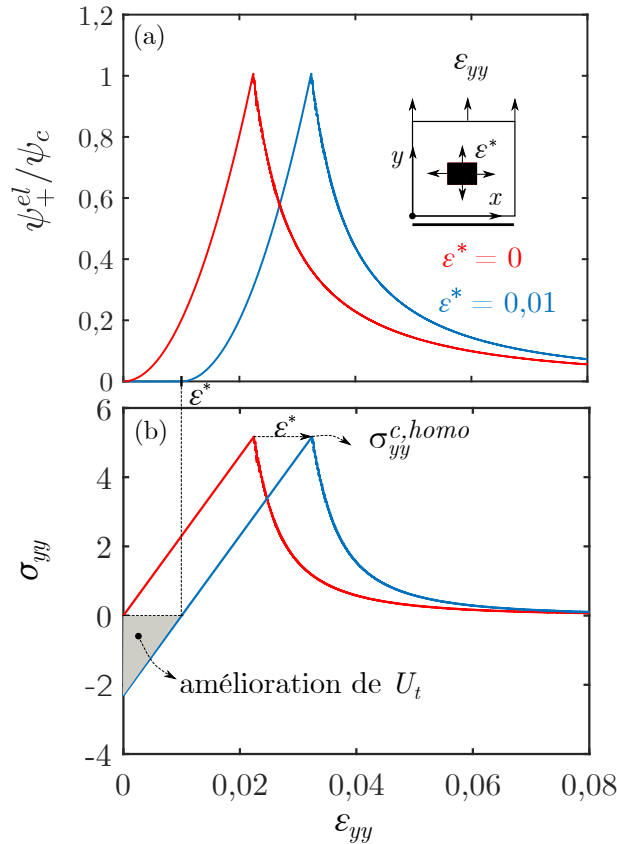


Figure B.9 : (a) Énergie de déformation élastique de traction normalisée et (b) contrainte correspondante en fonction de la déformation ϵ_{yy} . Le cas de référence ($\epsilon^* = 0$) et le cas élastique ($\epsilon^* = 0,01$) sont représentés.

cas, on constate que le matériau reste en compression tant que $\varepsilon_{yy} < \varepsilon^*$ et l'énergie de déformation élastique de traction correspondante qui est la force motrice de la rupture reste à zéro. Lorsque $\varepsilon_{yy} > \varepsilon^*$, la contrainte passe en traction et l'énergie de déformation élastique de traction commence à augmenter. ε^* ne change pas la contrainte critique par rapport au cas de référence, mais induit un décalage sur la déformation critique. En utilisant le critère de rupture et la relation contrainte-déformation, la contrainte critique ($\sigma_{yy}^{c,homo}$) pour ce cas homogène peut être obtenue par l'équation suivante :

$$\sigma_{yy}^{c,homo} = \left(\frac{2\lambda\mu}{\lambda + 2\mu} + 2\mu \right) \sqrt{\frac{\psi_c}{\frac{2\lambda\mu^2}{(\lambda + 2\mu)^2} + \mu}}, \quad (B.7)$$

où $\lambda = \frac{E\nu}{(1+\nu)(1-2\nu)}$, $\mu = \frac{E}{2(1+\nu)}$ sont les paramètres de Lamé. Comme illustré en Figure B.9(b), par rapport au cas de référence, le cas élastique induit une amélioration de U_t correspondant à la densité d'énergie absorbé en compression ne contribuant pas à la rupture.

B.4.2 Cas hétérogène

Cette section porte sur l'influence de la croissance d'une couche d'oxyde sur son comportement à rupture. Nous procédons en deux étapes. (i) tout d'abord, une couche d'oxyde est générée dans une matrice sans chargement mécanique externe. Malgré cela, en raison de la déformation de croissance de la couche d'oxyde, les contraintes locales dans la couche d'oxyde et dans la matrice ne sont pas nulles pendant cette étape de croissance. (ii) Deuxièmement, un chargement mécanique externe est appliquée avec une vitesse élevée jusqu'à la rupture de la couche d'oxyde précédemment formée (étape de chargement). L'effet des contraintes internes sur la cinétique de croissance a déjà été étudié par [213, 220]. Cet effet est négligé ici. Les propriétés chimiques sont donc choisies de manière à avoir un effet négligeable des contraintes internes sur la cinétique de croissance de la couche d'oxyde. L'illustration du problème mécanique combiné au problème chimique est représentée en Figure B.10. Une fonction de type tangente hyperbolique est utilisée pour définir la structure initiale :

$$\phi(x, t = 0) = \frac{1}{2} \left[1 - \tanh \left(\frac{\theta(x - f_o)}{\delta} \right) \right], \quad (B.8)$$

$\theta \approx 2.94$, δ est l'épaisseur de l'interface et $f_o = 2 \times \delta$ est la fraction initiale de la couche d'oxyde ($\phi = 1$). La matrice est initialement en équilibre chimique ($c = c_m = 0$) et un gradient linéaire est prescrit au sein de la couche d'oxyde. La croissance de la couche d'oxyde est donc due à la sursaturation prescrite par la condition aux limites de type Diriclet ($c_0 = 1, 6$; notons que c est la concentration normalisée, sa valeur peut de ce fait être supérieure à 1) sur le côté gauche. Le chargement mécanique est appliquée à l'aide d'une condition aux limites de type "Multi-Point Constraint" (MPC) tel que représenté en Figure B.10. La contrainte moyenne correspondant à la force appliquée à la face supérieure est donnée par :

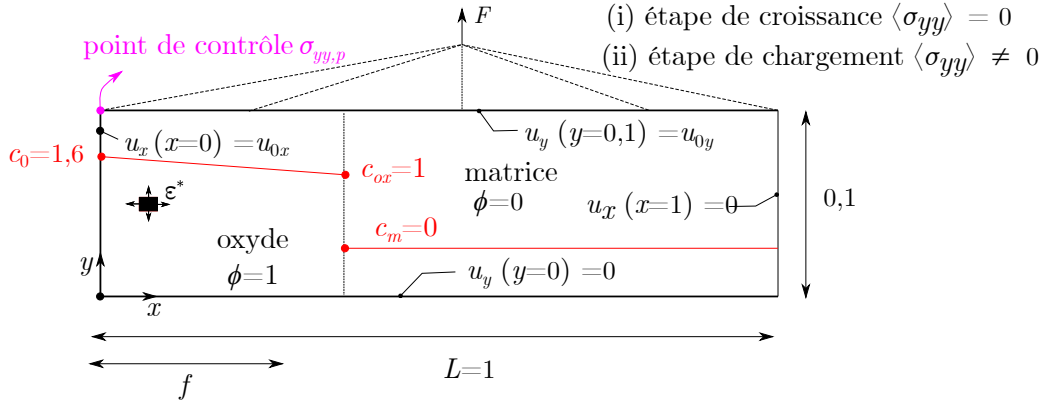


Figure B.10 : Croissance d'une couche d'oxyde rigide dans une matrice souple. Les surfaces supérieure et gauche restent planes. Les simulations sont effectuées en deux étapes. (i) Premièrement, la couche d'oxyde croît sans chargement externe ($F = 0$). (ii) Ensuite, une chargement mécanique est appliquée ($F \neq 0$). La concentration initiale est illustré en rouge.

$$\langle \sigma_{yy} \rangle = \frac{1}{L} \int \sigma_{yy} dx. \quad (\text{B.9})$$

$L = 1$ est la taille du système, $\langle \sigma_{yy} \rangle$ est appliqué avec une vitesse suffisamment élevée par rapport à la vitesse de déformation viscoplastique et à la cinétique de croissance de la couche d'oxyde. Cela permet d'éviter une croissance significative de la couche d'oxyde et une déformation viscoplastique importante pendant l'étape de chargement. Les paramètres utilisés pour le calcul sont résumés dans le Tableau B.2. On suppose que la matrice est largement plus tenace que la couche d'oxyde.

Élasticité :	E_m	58
	E_{ox}	210
	$\nu_m = \nu_p = \nu$	0,3
	ε^*	0,01
Viscoplasticité :	$n_m = n_p$	3
Fissuration :	$g_m = 500 \times g_{ox}$	1
	l_c	2×10^{-2}
	ω	2×10^1
Chimie :	δ	0,01
	M	10^6
	$D_m = D_{ox}$	1
	c_m	0
	c_{ox}	1
	$k_m = k_{ox}$	10^5

Tableau B.2 : Paramètres utilisés pour simuler la croissance d'une couche d'oxyde dans une matrice. Les indices ox, m font référence respectivement à la couche d'oxyde ($\phi = 1$) et à la matrice ($\phi = 0$).

Le domaine est maillé avec 1000 éléments quadrangulaires à interpolation linéaire dans la direction x et 1 élément dans la direction y . Dix éléments dans l'interface sont suffisants

pour résoudre le problème [220]. En ce qui concerne le pas de temps, $\eta = 1\%$ est nécessaire pendant l'étape de chargement pour assurer une bonne précision des simulations.

La Figure B.11 présente le profil de contrainte pendant l'étape de croissance de la couche d'oxyde pour les cas de référence ($\varepsilon^* = A_{ox} = A_m = 0$), élastique ($\varepsilon^* = 0,01$; $A_{ox} = A_m = 0$) et viscoplastique ($\varepsilon^* = 0,01$; $A_{ox} = A_m = 1$). L'interface oxyde/matrice est indiquée par la ligne verticale (en trait interrompu). Dans le cas élastique, la contrainte

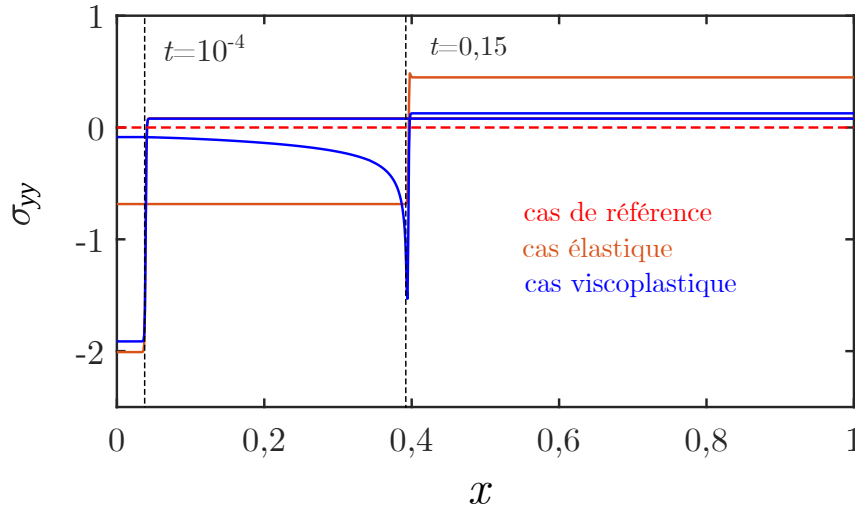


Figure B.11 : Profil de contrainte associé à la croissance de la couche d'oxyde à $t = 10^{-4}$ (a) et $t = 0,15$ (b). Les cas de référence ($\varepsilon^* = A_{ox} = A_m = 0$), élastique ($\varepsilon^* = 0,01$; $A_{ox} = A_m = 0$) et viscoplastique ($\varepsilon^* = 0,01$; $A_{ox} = A_m = 1$) sont représentés. L'interface matrice/oxyde est indiquée par la ligne verticale en pointillés noirs.

reste homogène dans la matrice et dans la couche d'oxyde, tandis qu'un gradient avec de fortes contraintes de compression à l'interface est observé dans la couche d'oxyde dans le cas viscoplastique. Ce gradient de contrainte obtenu par simulation est cohérent avec les observations expérimentales [253]. Il est dû à l'interaction entre les effets de relaxation des contraintes et la croissance de la couche d'oxyde. La couche d'oxyde qui est présente depuis plus longtemps a eu plus de temps que la couche d'oxyde nouvellement formée pour relaxer les contraintes. Dans le cas de référence, il n'y a évidemment aucune contrainte générée pendant l'étape de croissance. La position de l'interface matrice/oxyde dans les cas élastique et viscoplastique coïncide, indiquant comme souhaité, aucun effet des contraintes internes sur la cinétique de croissance.

La Figure B.12(a) illustre la cinétique de croissance de la couche d'oxyde (en échelle semi-logarithmique) pendant l'étape de croissance. Comme prévu pour un processus de croissance contrôlé par diffusion, la cinétique suit une loi de la forme : $f = \sqrt{Kt}$. $K = 1,02$ correspond au meilleur ajustement par la méthode des moindres carrés. La cinétique est la même dans les cas de référence, élastique et viscoplastique, puisque les paramètres ont été choisis de telle manière que les contraintes internes n'impactent pas sur la cinétique de croissance.

L'évolution de la contrainte résiduelle (σ_{yy}^r) dans la couche d'oxyde (extraite au point de contrôle indiqué en Figure B.10) en fonction de la durée de l'étape de croissance est illustrée en Figure B.12(b) pour les cas de référence, élastique et viscoplastique. Dans le cas élastique, pendant la croissance de la couche d'oxyde, la contrainte résiduelle de

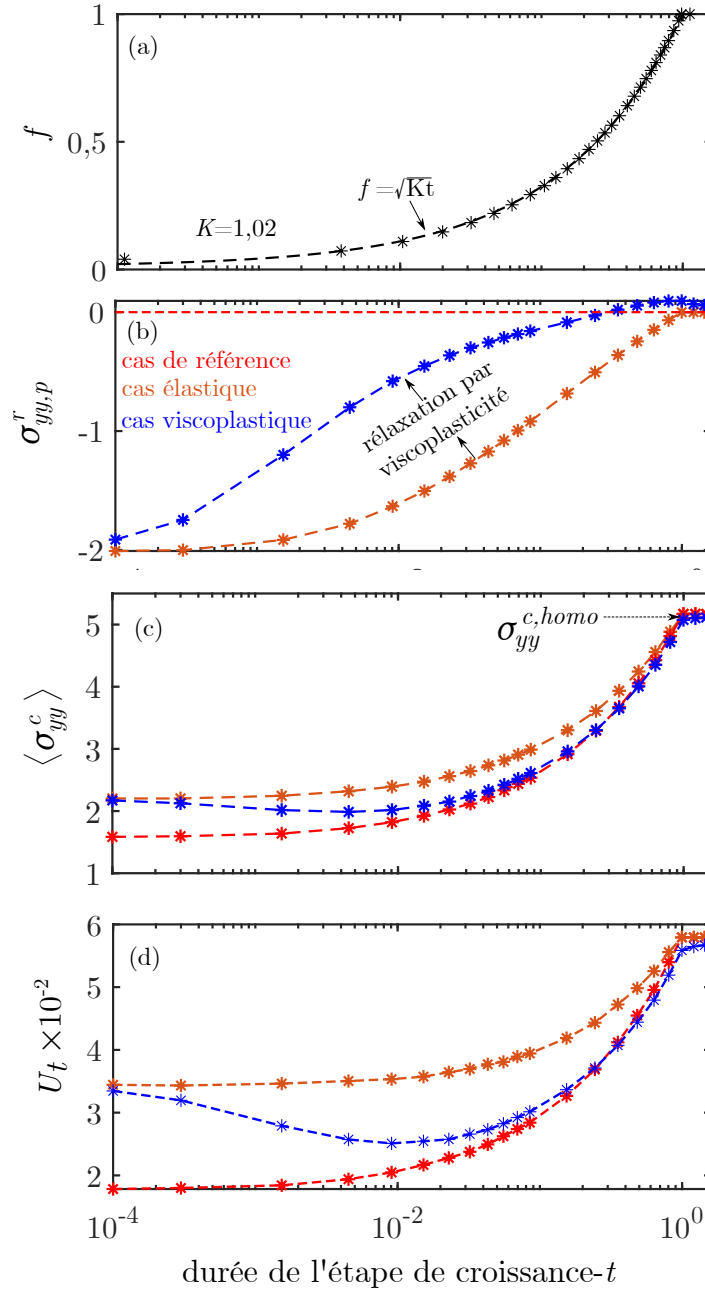


Figure B.12 : (a) Cinétique de croissance de la couche d'oxyde. (b) Contrainte résiduelle (σ_{yy}^r) au point de contrôle après l'étape de croissance de la couche d'oxyde pour les cas de référence ($\varepsilon^* = 0$; $A_p = A_m = 0$), élastique ($\varepsilon^* = 0,01$; $A_p = A_m = 0$) et viscoplastique ($\varepsilon^* = 0,01$; $A_p = A_m = 1$). (c) et (d) montrent respectivement la charge critique ($\langle \sigma_{yy}^c \rangle$) et U_t à la rupture de la couche d'oxyde.

compression dans la couche d'oxyde se relaxe progressivement et tend vers zéro lorsque la matrice est entièrement transformée ($f = 1$). Dans le cas viscoplastique, la relaxation de la contrainte est accélérée par la déformation viscoplastique. Il n'y a évidemment aucune contrainte résiduelle dans le cas de référence.

La Figure B.12(c) compare la contrainte critique ($\langle \sigma_{yy}^c \rangle$) en fonction de la durée de

l'étape de croissance pour les trois cas étudiés. La contrainte critique présentée ici est liée à la rupture de la couche d'oxyde. Dans tous les cas, on constate que la contrainte critique augmente au fur et à mesure de la croissance de la couche d'oxyde. La couche d'oxyde rigidifie l'alliage ce qui induit une amélioration de la contrainte critique. Lorsque $f = 1$, La contrainte critique homogène (voir l'Équation B.7) est atteinte.

Pour une fraction de couche d'oxyde donnée, la contrainte critique est maximale dans le cas élastique et minimale dans le cas de référence. Ceci montre un effet bénéfique des contraintes de compression induites dans la couche d'oxyde pendant sa croissance. Dans le cas viscoplastique, la courbe de contrainte critique se déplace progressivement du cas élastique vers le cas de référence. Ceci est dû à la relaxation progressive de la contrainte résiduelle dans la couche d'oxyde (σ_{yy}^r) durant l'étape de croissance. Par rapport au cas de référence, l'amélioration de la contrainte critique dans le cas élastique ou viscoplastique correspond à la contrainte nécessaire pour compenser la contrainte résiduelle de compression générée par l'étape de croissance dans la couche d'oxyde. Comme le montre la Figure B.12(d), les observations faites pour la contrainte critique sont également valables pour U_t .

Des simulations similaires ont été réalisées en appliquant un chargement mécanique monotone pendant l'étape de croissance. Le chargement est appliquée avec une faible vitesse afin de laisser suffisamment de temps à la couche d'oxyde de croître avant sa rupture. La contrainte imposée varie linéairement de $\langle \sigma_{yy} \rangle = 0$ à $t = 0$ à $\langle \sigma_{yy} \rangle = 16$ à $t = 1$.

La Figure B.13 montre la courbe contrainte-déformation au point de contrôle dans les cas élastique et viscoplastique. Dans le cas élastique, la rigidification induit par la

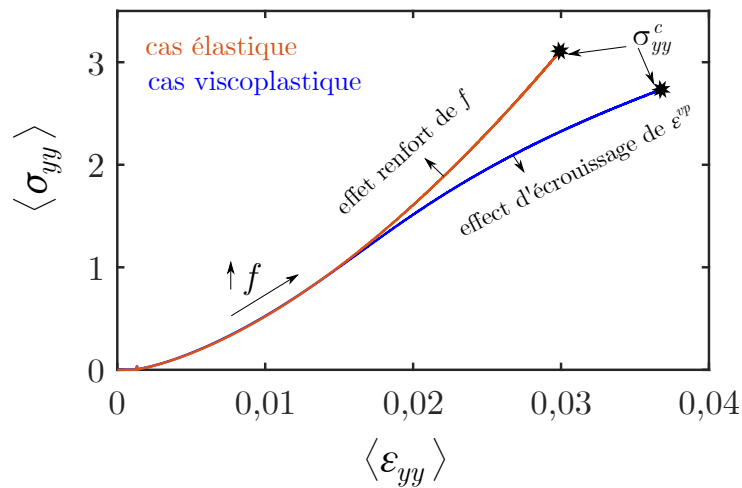


Figure B.13 : Effet d'un chargement mécanique monotone à faible vitesse durant la croissance d'une couche d'oxyde. Courbe contrainte-déformation dans le cas élastique ($\epsilon^* = 0,01$; $A_{ox} = A_m = 0$) et viscoplastique ($\epsilon^* = 0,01$; $A_{ox} = A_m = 0,01$).

croissance de la couche d'oxyde améliore la contrainte critique. Dans le cas viscoplastique, une rigidification est observé au début de la courbe. Ensuite, l'écroutissage induit par la déformation viscoplastique prend progressivement le dessus. La déformation critique est donc améliorée au détriment de la contrainte critique. La dépendance temporelle de la croissance de la couche d'oxyde est donnée par une loi de la forme : $f = \sqrt{Kt}$ tandis que celle de la déformation viscoplastique est donnée par une loi de puissance : $\dot{\epsilon}^{vp} =$

différence de déplacement (Δu) le long de la direction y entre deux points opposés situés respectivement sur les faces inférieure et supérieure. Les CLP appliqués sont résumés par :

$$\begin{cases} u_y(x, y = 1, t) - u_y(x, y = 0, t) = \Delta u, \\ u_x(x, y = 1, t) - u_x(x, y = 0, t) = 0, \\ u_x(x = 0, y, t) - u_x(x = 1, y, t) = 0, \\ d(x, y = 1, t) - d(x, y = 0, t) = 0, \\ d(x = 0, y, t) - d(x = 1, y, t) = 0. \end{cases} \quad (\text{B.10})$$

La déformation moyenne est appliquée à une vitesse relativement élevée par rapport à la cinétique de changement de phase. Cela permet d'éviter un changement morphologique de l'inclusion pendant l'étape de chargement. Une inclusion circulaire de rayon initial $r_0 = 2 \times 10^{-2}$ est placée au centre de la matrice. Initialement, l'inclusion est saturée ($c = c_i$) et évolue à cause de la sursaturation de la matrice ($c = c_m + 0,5$). Les paramètres mécanique et chimiques utilisés pour le calcul sont résumés dans le Tableau B.3. Pour des raisons de simplicité, l'inclusion et la matrice sont supposées avoir le même g_c . Les autres paramètres sont spécifiés pour chaque cas étudié. Un maillage régulier de 250×250 éléments quadrangulaires à interpolation linéaire est utilisé. Pour le contrôle du pas de temps, $\eta = 1\%$ est utilisée.

Élastique :	$\nu_m = \nu_i$	0,3
Fissuration :	$g_m = g_i$	2×10^{-3}
	l_c	8×10^{-3}
Chimique :	ω	5×10^{-2}
	δ	0,04
	M	10^6
	$D_m = D_i = D$	1
	c_m	1,33
	c_i	1,75
	$k_m = k_i$	100

Tableau B.3 : Paramètres adimensionnels utilisés pour la simulation de la croissance d'une inclusion. Les indices i, m désignent respectivement l'inclusion ($\phi = 1$) et la matrice ($\phi = 0$).

La Figure B.15 montre la topologie de fissure obtenue dans le cas de référence ($\varepsilon^* = 0$; $A_m = A_i = 0$) selon que l'inclusion soit plus rigide ou plus souple que la matrice. Lorsque l'inclusion est plus rigide que la matrice ($E_i > E_m$; Figure B.15(a)), l'initiation de la fissure se produit aux pôles de l'inclusion. Alors que lorsque l'inclusion est moins rigide que la matrice ($E_i < E_m$; Figure B.15(b)), l'initiation de la fissure se produit à l'équateur de l'inclusion. Ceci reste vrai dans les cas élastique ($\varepsilon^* = 0.05$; $A_m = A_i = 0$) et viscoplastique ($\varepsilon^* = 0.05$; $A_m = A_i = 100$). L'activité viscoplastique et les contraintes résiduelles induites par la déformation de croissance de l'inclusion n'ont aucune influence sur la topologie de la fissure dans cet exemple.

Cependant, un effet de la viscoplasticité et des contraintes résiduelles est constaté en examinant $\langle \sigma_{yy}^c \rangle$ et U_t comme illustré dans le Tableau B.4. On constate que les valeurs de $\langle \sigma_{yy}^c \rangle$ et U_t dans le cas viscoplastique sont toujours comprises entre les valeurs du cas de

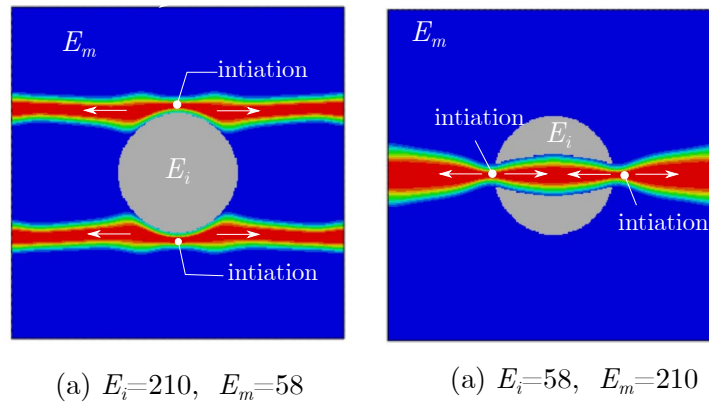


Figure B.15 : Fracture topology during the growth of a single inclusion for the reference case ($\varepsilon^* = 0, A_i = A_m = 0$). In (a) the inclusion is stiffer than the matrix. In (b) the inclusion is softer than the matrix. The arrows indicate the propagation direction from crack initiation.

référence et celles du cas élastique. La relaxation des contraintes induite par la déformation viscoplastique introduit un comportement intermédiaire entre le comportement de référence et le comportement élastique.

inclusion rigide ($E_i = 210, E_m = 58$)			
	référence	viscoplastique	élastique
$\langle \sigma_{yy}^c \rangle :$	3,57	3,64	3,81
$U_t \times 10^{-2} :$	7,43	7,95	8,85
inclusion souple ($E_i = 58, E_m = 210$)			
	référence	viscoplastique	élastique
$\langle \sigma_{yy}^c \rangle :$	5,59	5,03	3,25
$U_t \times 10^{-2} :$	6,47	5,81	2,49

Tableau B.4 : Densité d'énergie jusqu'à rupture (U_t) et contrainte critique ($\langle \sigma_{yy}^c \rangle$) après la croissance d'une inclusion dans le cas de référence ($\varepsilon^* = 0; A_m = A_i = 0$), le cas élastique ($\varepsilon^* = 0,05; A_m = A_i = 0$) et le cas viscoplastique ($\varepsilon^* = 0,05; A_m = A_i = 100$). Dans tous les cas, l'étape de croissance est arrêtée lorsque la fraction d'inclusion atteint $f = 0,1$. Ensuite, le chargement est appliqué jusqu'à la rupture.

B.5.2 Plusieurs inclusions

Ici, le modèle de l'exemple précédent est analysé en considérant plusieurs inclusions rigides qui évoluent dans une matrice moins rigide. Ce problème, connu sous le nom de phénomène de mûrissement d'Ostwald, est un processus qui peut être observé dans des solides hétérogènes. Au cours d'un tel processus, les petites inclusions dispersées dans une matrice évoluent pour minimiser l'énergie libre totale du système [254,255]. L'évolution se fait principalement par la coalescence d'inclusions voisines ou par la croissance de grandes

inclusions aux détriment des plus petites [213]. L'objectif de cette section est d'étudier l'effet d'un tel processus sur la topologie de la fissure.

Une analyse en deux étapes est effectuée. Tout d’abord, les inclusions évoluent sans chargement mécanique externe (étape de mûrissement d’Ostwald). Ensuite, une déformation moyenne verticale est appliquée jusqu’à la rupture (étape de chargement). Le problème est illustré en Figure B.16. Plusieurs inclusions circulaires de rayon initial

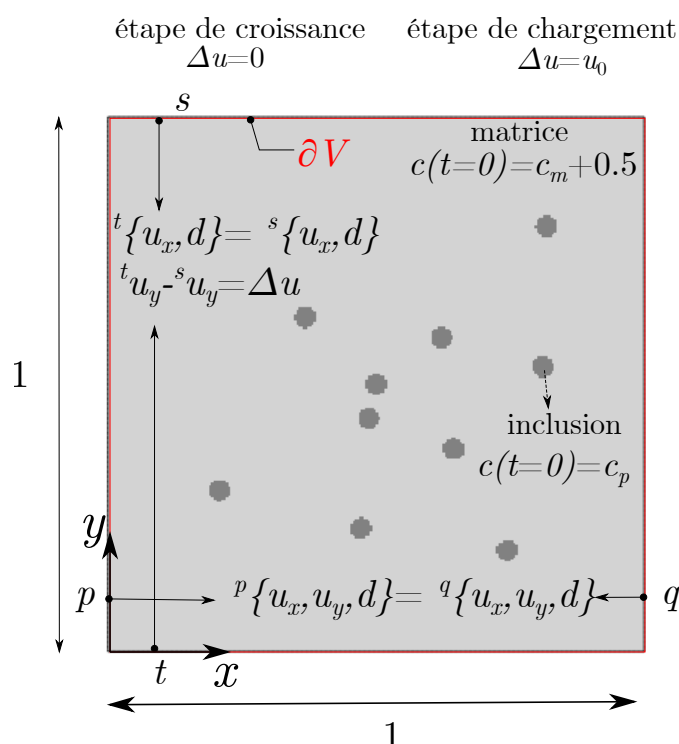


Figure B.16 : Volume Élémentaire Représentatif (VER) d'une structure binaire périodique utilisée pour étudier la fissuration induit par un chargement mécanique pendant le processus de mûrissement d'Ostwald. Nous procédons en deux étapes. Premièrement, les inclusions saturées ($c(t=0) = c_i$) croissent à cause de la sursaturation de la matrice ($c(t=0) = c_m + 0,5$) sans chargement mécanique externe ($\Delta u = 0$). Ensuite, une déformation moyenne verticale macroscopique à vitesse élevé est appliquée ($\Delta u = u_0$) jusqu'à la rupture.

$r_0 = 2 \cdot 10^{-2}$ sont distribuées aléatoirement dans la matrice. Initialement, les inclusions sont saturées ($c = c_i$) et évoluent à cause de la sursaturation de la matrice ($c = c_m + 0,5$). Les paramètres utilisés pour le calcul sont résumés dans le Tableau B.5. Dans cet exemple, les propriétés chimiques sont choisies de manière à ce que les contraintes internes puissent impacter sur la morphologie de croissance des inclusions.

La Figure B.17 montre les topologies de fissures obtenues à différentes étapes du processus de mûrissement d'Ostwald dans le cas de référence ($\varepsilon^* = 0, A_i = A_m = 0$). On constate que les fissures s'initient toujours dans la matrice entre les inclusions les plus proches alignées dans la direction de chargement (Figure B.17(a)-(c)). Les fissures se propagent ensuite en contournant les inclusions rencontrées sur leur chemin de propagation (Figure B.17(d)-(i)). Lorsque l'inclusion rencontrée est petite, une bifurcation est observée (Figure B.17(d) et (g)), mais si l'inclusion est grande, la fissure la contourne sans bifurquer

élasticité :	E_m	58
	E_i	210
	$\nu_m = \nu_i = \nu$	0,3
fissuration :	$g_m = g_i$	2×10^{-3}
	l_c	8×10^{-3}
	ω	5×10^{-4}
chimique :	δ	0,04
	M	10^6
	$D_m = D_i$	1
	c_m	1,33
	c_i	1,75
	$k_m = k_i$	1

Tableau B.5 : Paramètres adimensionnels utilisés pour la simulation du processus de mûrissement d'Ostwald. Les indices i, m désignent respectivement l'inclusion ($\phi = 1$) et la matrice ($\phi = 0$).

(Figure B.17(e),(f),(h) et (i)). D'un point de vue énergétique, le contournement de la fissure à l'approche d'une inclusion augmente la quantité d'énergie dissipée par la fissure par rapport au cas homogène où la fissure se propagerait en ligne droite.

La Figure B.18 compare les topologies de fissures obtenues entre le cas de référence ($\varepsilon^* = 0$; $A_m = A_i = 0$), le cas élastique ($\varepsilon^* = 0,01$; $A_m = A_i = 0$) et le cas viscoplastique ($\varepsilon^* = 0,01$; $A_m = A_i = 1$) après la même durée du processus de mûrissement d'Ostwald ($t = 0,5$). Un défaut ($\bar{d} = 1$) a été ajouté aux nœuds centraux des côtés gauche et droit du domaine. Les morphologies finales et donc les topologies des fissures sont significativement différentes dans les trois cas, ce qui montre l'importance de prendre en compte les contraintes internes générées pendant le processus de croissance. Nous observons que malgré le défaut initial, la fissuration s'initie entre deux particules lorsqu'elles sont très proches l'une de l'autre.

Ce dernier exemple met en évidence la robustesse du modèle proposé qui permet de simuler des évolutions morphologiques et des topologies de fissures complexes.

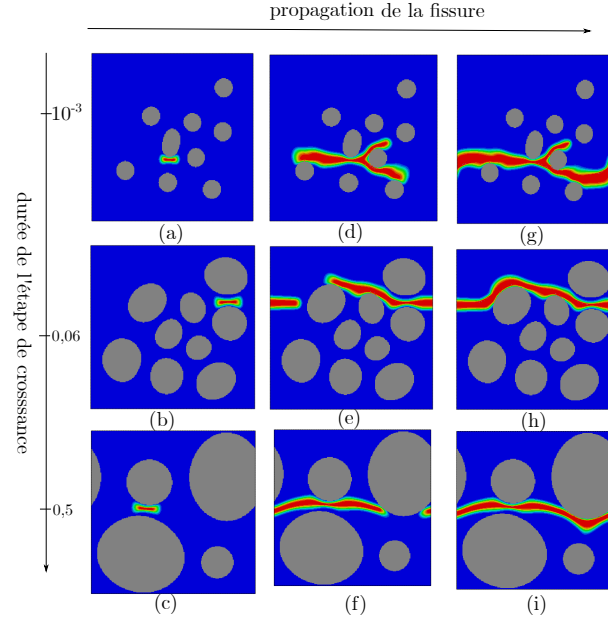


Figure B.17 : Initiation et propagation de la fissure à travers un réseau de matrice-inclusion pour différents stade du processus de mûrissement d'Ostwald. (a)-(c) montrent l'initiation tandis que (d)-(i) décrivent la propagation pendant le processus de mûrissement d'Ostwald.

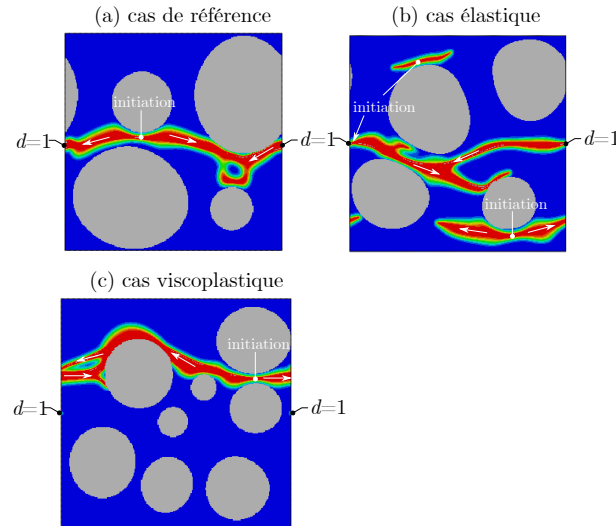


Figure B.18 : Topologie des fissures après le processus de maturation d'Ostwald pour le cas de référence ($\varepsilon^* = 0, ; A_m = A_i = 0$), le cas élastique ($\varepsilon^* = 0,01 ; A_m = A_i = 0$) et le cas viscoplastique ($\varepsilon^* = 0,01 ; A_m = A_i = 1$). La durée de l'étape de croissance a été fixée à $t = 0,5$. La charge a été appliquée dans la direction verticale. Les flèches indiquent la direction de la propagation de la fissure.

Annexe C

Examen de l'état d'endommagement de l'oxyde au microscope optique

La Figure C.1, ci-dessous, illustre l'état d'endommagement de l'oxyde externe et interne après un essai de fluage par pressurisation interne sur le dispositif ELLIE à 50 bar et 800°C sous argon. On observe une multi-fissuration axiale et radiale de l'oxyde avec une distance inter-fissure globalement uniforme en faces interne et externe. Quelques fissures transversales sont observées au voisinage immédiat de la zone d'éclatement.

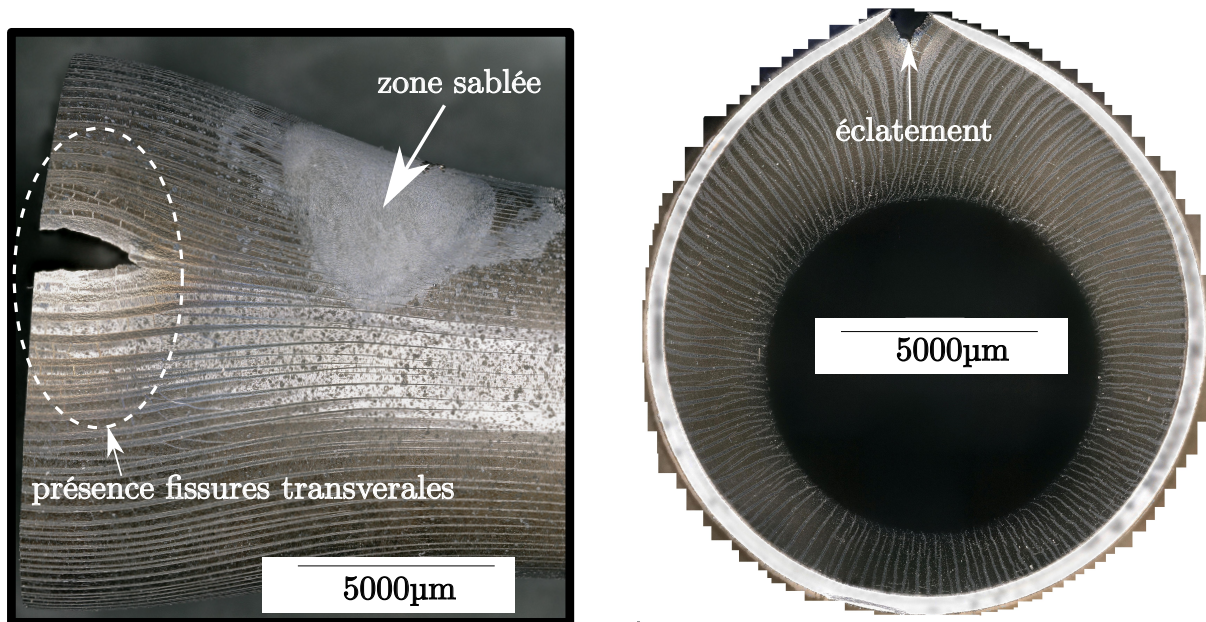


Figure C.1 : Examen au microscope optique d'une éprouvette pré-oxydée de type Pox10/10 après un essai de fluage réalisé à 50bar et 800°C. (a) fissuration de l'oxyde externe ; (b) fissuration de l'oxyde interne.

Annexe D

Analyse du résidu de corrélation d'image

Cette annexe porte sur l'analyse du résidu de corrélation d'image dans le cas d'un essai réalisé sur une éprouvette pré-oxydée. Cette analyse permet par seuillage du résidu, d'identifier le réseau de fissure qui se forme en surface externe en cours de ballonnement. Cela permet aussi d'évaluer l'effet de la fissuration sur détermination de la température par thermographie PIR.

Les Figure D.1(a) et Figure D.1(b) présentent respectivement l'image initiale et déformée pour un essai réalisé à 30bar et 800°C sous argon. Le résidu de corrélation est défini par :

$$R(\mathbf{x}) = f(\mathbf{x}) - g(\mathbf{x} - \mathbf{u}(\mathbf{x})). \quad (\text{D.1})$$

Le champ de résidu de corrélation donné par l'Équation D.1 est illustré en Figure D.1 dans la configuration de référence. L'erreur de corrélation étant plus importante au niveau des pixels fissurés, le champ de résidu révèle le réseau de fissures qui se forme dans la ROI.

En seuillant convenablement le résidu, il est possible de distinguer les pixels correspondant à des zones fissurées de ceux correspondant à des zones non fissurées. La Figure D.2 présente le résultat de l'identification des fissures dans la ROI par seuillage du résidu de corrélation.

Une fois les "pixels fissurés" identifiés, il est possible d'évaluer leurs effets sur le champ thermique. La Figure D.3 présente le champ thermique déterminé par thermographie PIR avec et sans les pixels fissurés. On constate que la prise en compte ou non des pixels

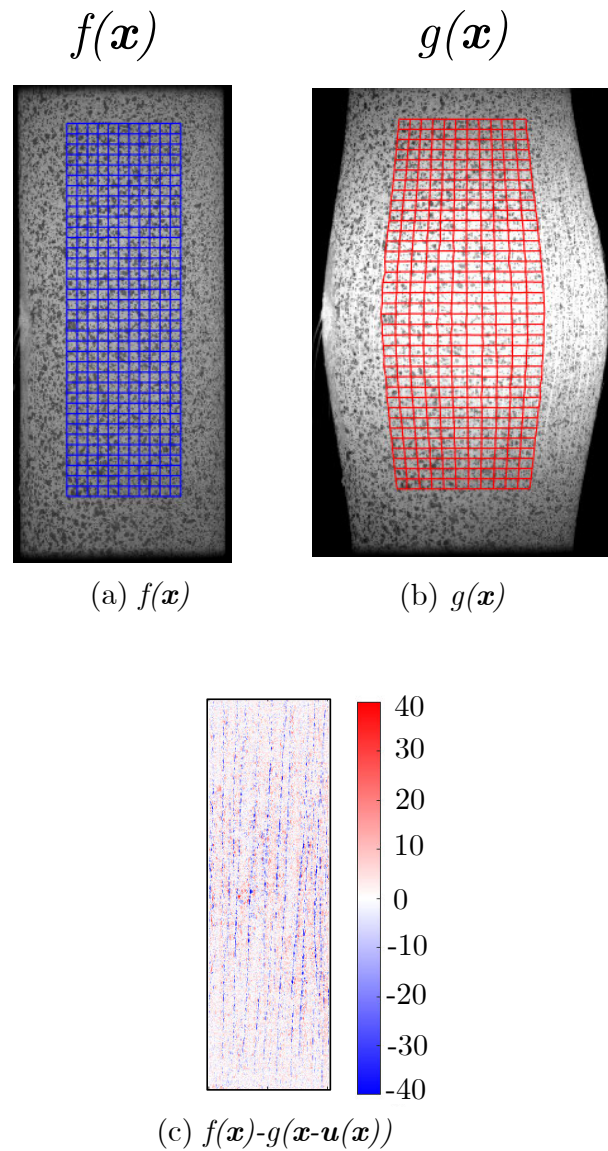


Figure D.1 : (a) Image de référence ; (b) image à l'état déformé ; (c) champ de résidu de corrélation dans la configuration de référence

fissurés dans la détermination de la température par thermographie PIR n'a pas d'effet significatif. La fissuration induit une erreur maximale de 2, 5°C.

La Figure D.4 compare l'évolution temporelle de la déformation obtenue par 2D-CIN (cf. Équation 4.4) et 3D-CIN (cf. Équation 4.5) au centre de la ROI. On constate que la 2D-CIN et la 3D-CIN se comparent relativement bien. On note toutefois un bruit plus important sur la 3D-CIN, raison pour laquelle la 2D-CIN a été retenue pour post-traiter l'ensemble des essais.

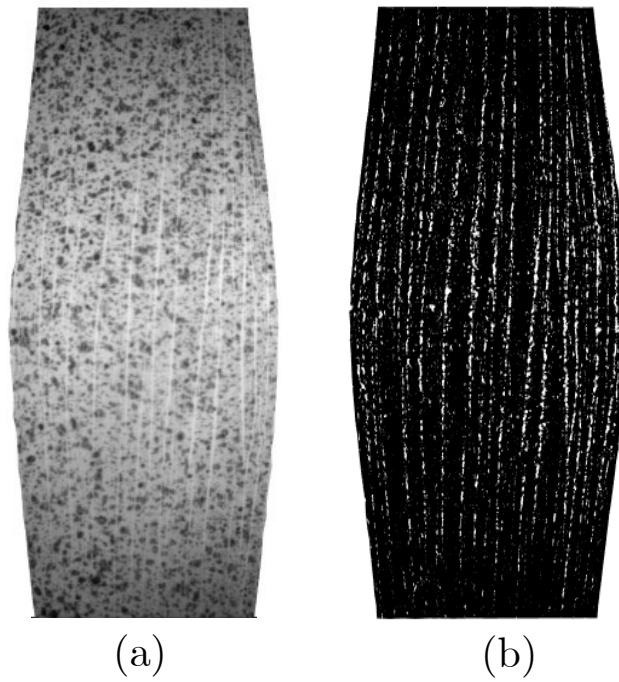


Figure D.2 : (a) ROI déformée; (b) Identification des fissures dans la ROI par seuillage du résidu de corrélation

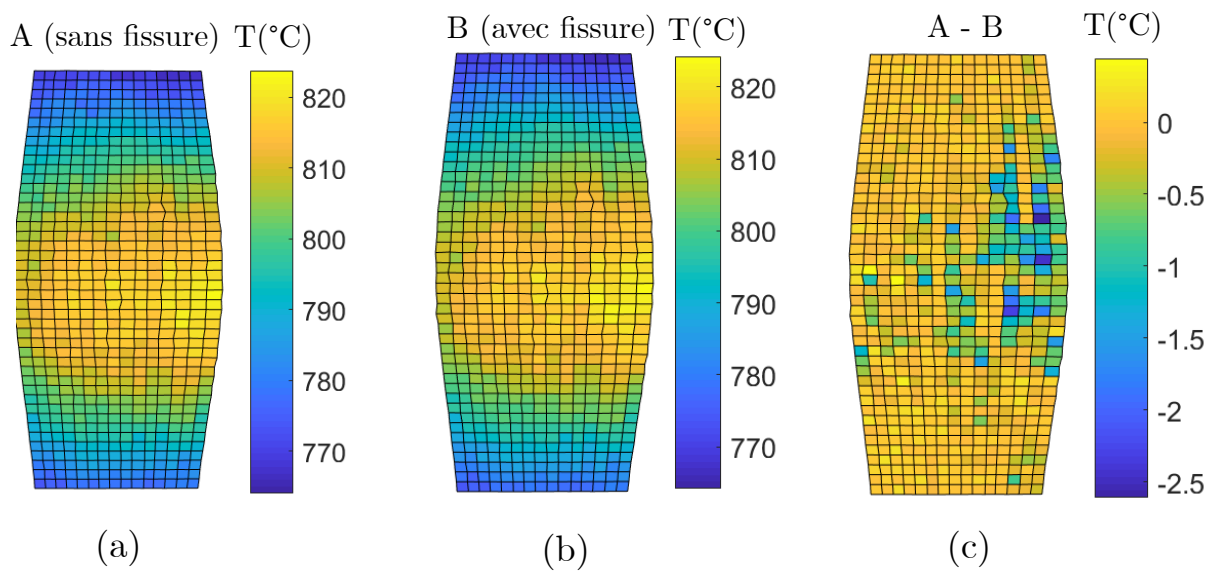


Figure D.3 : (a) Thermographie PIR avec suppression des pixels fissurés; (b) Thermographie PIR sans suppression des pixels fissurés; (c) Ecart de température entre thermographie PIR avec et sans pixels fissurés.

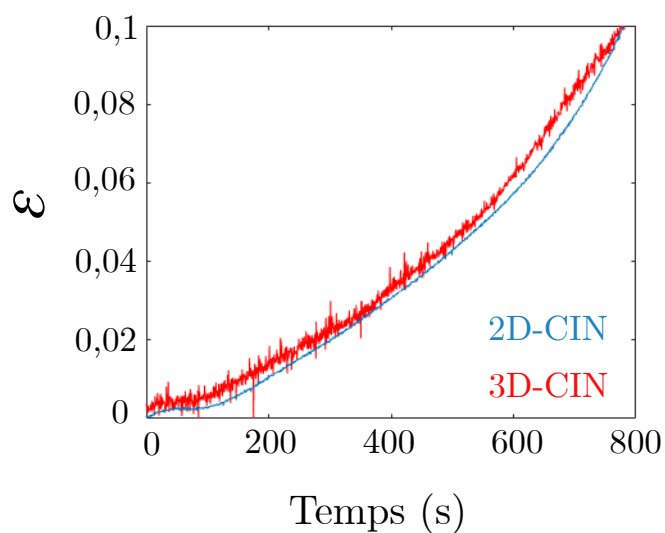


Figure D.4 : Comparaison de l'évolution temporelle de la déformation au centre de la ROI obtenue par 2D-CIN et 3D-CIN dans le cas d'une gaine pré-oxydée de type Pox10/10.

Annexe E

effet des hypothèses de modélisation des essais

Cette annexe porte sur l'analyse de l'effet des l'hypothèses faites pour la simulation des essais. Notamment, l'hypothèse des déformations planes et la non prise en compte de la courbure de la gaine qui permet de réduire de moitié le domaine à simuler.

Les essais réalisés dans ce travail sont simulés moyennant une certains nombre d'hypothèses. Le modèle numérique utilisé pour simuler les essais a été implémenté en 2D sous l'hypothèse des déformations planes. La courbure de la gaine a été négligé, ce qui permet de réduire la taille du modèle par symétrie. Il est donc important d'étudier l'effet de ces hypothèses sur le comportement au fluage macroscopique de la gaine. Trois modèles illustrés en Figure E.1 sont alors considérés :

- modèle 1 : comme illustré en Figure E.1(a), il s'agit d'une modélisation axi-symétrique d'une gaine pré-oxydée de type Pox10/10 dans le plan (e_r, e_z) , en considérant uniquement la longueur utile de l'éprouvette ($L_u = 58\text{mm}$). L'extrémité supérieure est bloquée ($u_r = u_z = 0$) pour traduire l'encastrement sur le mors fixe supérieur tandis que l'extrémité inférieure est fixée dans la direction radiale ($u_r = 0$), mais libre de se déplacer dans la direction axiale, ce qui permet de représenter la liaison avec le mors inférieure mobile. Un profil de température représentatif des essais est imposé durant le calcul. Ce profil est définie à l'aide de la fonction ci-dessous :

$$T(z) = 776 \cos\left(\frac{z\phi}{100}\right) + 24. \quad (\text{E.1})$$

Le profil de température définie par l'Équation E.1 est présenté en Figure E.2. Une pression interne de $P_i = 30\text{bar}$ est appliquée en surface interne de la gaine. La

déformation macroscopique de fluage est définie à partir du déplacement radiale en peau externe de la gaine :

$$\varepsilon = \frac{u_r}{R_e} \quad (\text{E.2})$$

- modèle 2 : illustré en Figure E.1(b), il s'agit d'une modélisation d'une gaine pré-oxydée de type Pox10/10 en déformation plane (e_r, e_θ) en considérant uniquement la section transversale médiane. Des conditions aux limites de périodicité sont appliquées sur les extrémités du secteur angulaire modélisé. La température est homogène dans le domaine et fixée à $T = 800^\circ\text{C}$. La pression interne est également fixée à $P_i = 30\text{bar}$. La définition de la déformation macroscopique reste la même que précédemment (cf. Équation E.2).
- modèle 3 : présenté en Figure E.1(c), il s'agit d'une modélisation d'une gaine pré-oxydée de type Pox10/10 en déformation plane dans un repère cartésien (e_x, e_y) en considérant uniquement la section transversale médiane. La courbure de la gaine est négligée ce qui permet de réduire de moitié le domaine modélisé par symétrie. la surface du bas est bloquée suivant e_x tandis que celle de gauche est bloquée suivant e_y . Une condition de type "Multi-Point Constraint" est appliquée sur la surface de droite afin de garantir qu'elle reste plane. Cette condition au limite permet également d'appliquer un effort de fluage de résultante F suivant l'axe e_x . L'effort de fluage appliquée correspond à la résultante des efforts induit par la pression interne et défini par :

$$F = \frac{P_i R_i L_u}{2} . \quad (\text{E.3})$$

La température est homogène dans le domaine et fixée à $T = 800^\circ\text{C}$. La déformation macroscopique de fluage est définie à partir du déplacement horizontale (u_x) de la surface de droite :

$$\varepsilon = \frac{u_x}{\lambda} . \quad (\text{E.4})$$

Les simulations sont effectuées à l'aide du code de calcul Abaqus avec ses lois de comportement de base intégrée. Pour les trois modèles, le domaine est maillé de manière à avoir 5 éléments dans les couches de ZrO_2 interne et externe d'épaisseur $10\mu\text{m}$. La couche de ZrO_2 est supposée élastique tandis que la couche de Zy-4 a un comportement visco-plastique. La fissuration n'étant pas simulée, l'étude se limite à la phase où la couche de ZrO_2 n'est pas encore fissurée. Les propriétés élastique des couches de Zy-4 et ZrO_2 sont rappelés ci-dessous :

$$E_{\text{Zy-4}}(\text{MPa}) = 116.1.10^3 - 59T(\text{K}) \quad (\text{E.5})$$

$$\nu_{\text{Zy-4}} = 0,35 \quad (\text{E.6})$$

$$E_{\text{ZrO}_2}(\text{MPa}) = 0,5 \left(1,637.10^5 - 37,7T + \left(243200 - 20,2 \exp\left(\frac{-480}{T}\right) \right) \right) \quad (\text{E.7})$$

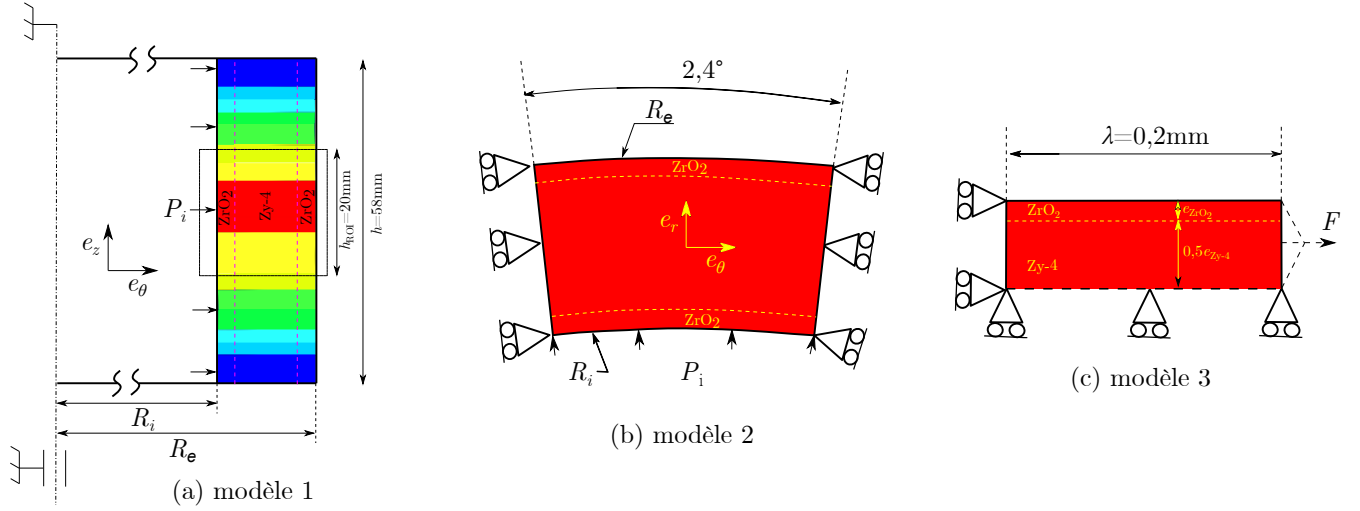


Figure E.1 : Simulation du fluage d'une gaine pré-oxydée avec différents modèles : (a) modèle axi-symétrique qui est le modèle le plus représentatif des essais ; (b) Modèle avec hypothèse des déformations ; (c) modèle avec hypothèse de déformations planes et courbure de la gaine négligées. Le code couleur permet de représenter la température.

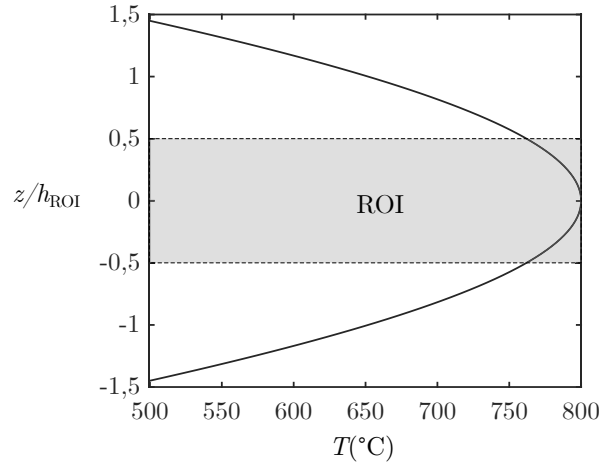


Figure E.2 : Le profil thermique utilisé pour le modèle axi-symétrique (cf. Figure E.1(a)).

$$\nu_{\text{ZrO}_2} = 0,3 \quad (\text{E.8})$$

La loi de fluage du régime dislocation proposée par Campello [236] est utilisé pour la couche de Zy-4 :

$$\dot{\epsilon}_{eq} = \exp(12,2) \sigma_{vm}^{3,92} \exp\left(\frac{-293000}{RT}\right) \quad (\text{E.9})$$

où $R = 8,314$ est la constante des gaz parfaits et T la température en Kelvin.

La Figure E.3 compare les résultats des trois modèles en terme de déformation dans le cas d'une gaine vierge. Avec l'hypothèse des déformations plane (modèle 2) et la non prise en compte de la courbure de la gaine (modèle 3), la déformation obtenue diffère de manière significative de celle obtenue avec le modèle axi-symétrique (modèle 1) que ce soit pour une gaine vierge ou pré-oxydée.

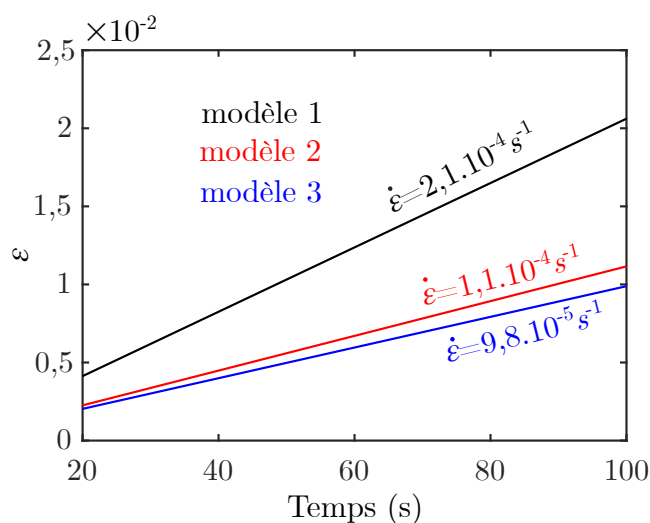


Figure E.3 : (a) Évolution temporelle de la déformation pour les trois modèles étudiés dans le cas d'un gaine vierge.

La Figure E.3 compare les résultats des trois modèles en terme de vitesse de déformation de la gaine pré-oxydée normalisée par celle de la gaine vierge. On constate que les écarts

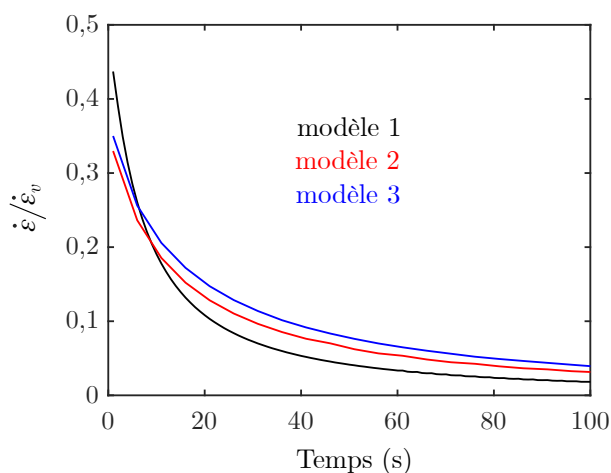


Figure E.4 : Évolution temporelle de la vitesse de déformation d'une gaine pré-oxydée de type Pox10/10, normalisée par celle de la gaine vierge correspondante. La fissuration n'est pas prise en compte. Seule la phase où l'oxyde n'est pas fissurée est simulée.

entre les résultats des différents modèles sont faibles. Les hypothèses de déformations planes et la non prise en compte de la courbure induisent des écarts significatifs par rapport au cas axi-symétrique, si l'on regarde les vitesses en valeur absolue. Toutefois, si l'on regarde plutôt la vitesse de la gaine pré-oxydée normalisée par celle de la gaine vierge correspondante, les écarts entre les trois modèles deviennent négligeables. Rappelons tout de même que cette analyse ne tient pas compte de la fissuration de la couche de ZrO_2 . Toutefois, la fissuration de la couche de ZrO_2 qui a un comportement plutôt fragile est a priori peu sensible à la triaxialité des contraintes. Une analyse plus fine serait cependant nécessaire pour une validation plus rigoureuse.

Annexe F

Données sur la fissuration de la couche de ZrO_2

*Cette annexe fournit les données collectées post-mortem sur
les coupes métallographiques pour analyser la fissuration de la
couche de ZrO_2 .*

ID. Ech	$e_{\text{ZrO}_2, \text{BT, ext}}$	ε_{max}	λ (μm)	ouv (μm)	p (μm)	Env
Pox10/10-2	9,3 $\pm$ 0,4	0,10	89,6 $\pm$ 32	13,3 $\pm$ 3,5	-	Ar+O ₂
Pox10/30-1*	32,6 $\pm$ 0,3	0,12	523,1 $\pm$ 393	77,1 $\pm$ 50,6	38,3 $\pm$ 18,4	
Pox10/10-4	9,7 $\pm$ 0,6	0,0078	312,2 $\pm$ 238	2,9 $\pm$ 0,8	-	
Pox10/10-5	10,5 $\pm$ 0,3	0,02	243,4 $\pm$ 132	10,2 $\pm$ 2,6	-	
Pox10/10-6	9,4 $\pm$ 0,2	0,04	441,7 $\pm$ 246,5	24,7 $\pm$ 14,3	11,4 $\pm$ 6,1	
Pox10/10-7*	10,1 $\pm$ 0,6	0,62	167 $\pm$ 39,2	49,4 $\pm$ 23,8	20,3 $\pm$ 4,8	
Pox10/30-2	25,7 $\pm$ 0,7	0,02	1224,4 $\pm$ 700,4	27,7 $\pm$ 11,4	13,2 $\pm$ 1,9	
Pox10/30-3	29,9 $\pm$ 1,2	0,05	2521,8 $\pm$ 1693,7	110,7 $\pm$ 56,5	41,1 $\pm$ 15,5	
Pox10/30-4	24,4 $\pm$ 1,5	0,08	345,2 $\pm$ 211,2	18,4 $\pm$ 9,6	-	
Pox10/30-5*	30,6 $\pm$ 0,7	0,16	243,9 $\pm$ 164,9	48,9 $\pm$ 27,1	23,9 $\pm$ 6,2	
Pox10/60-2*	63,6 $\pm$ 2,7	0,85	51,6 $\pm$ 34,4	4,7 $\pm$ 2,3	-	Ar
Pox10/10-8*	10,0 $\pm$ 0,6	0,36	356,6 $\pm$ 179,7	132,2 $\pm$ 93,8	-	
Pox10/60-3*	51,5 $\pm$ 3,9	0,395	95,1 $\pm$ 48,5	42,5 $\pm$ 26	-	
Pox10/10-9*	9,9 $\pm$ 0,4	0,32	185,3 $\pm$ 84,6	88,2 $\pm$ 56,3	-	
Pox10/30-6*	29,9 $\pm$ 1,3	0,09	460,4 $\pm$ 388,8	48,1 $\pm$ 24,7	-	
Pox10/60-4*	70,4 $\pm$ 1,3	0,12	361,2 $\pm$ 208,7	216,3 $\pm$ 116	-	
Pox10/10-10	9,4	0,01	342,3 $\pm$ 207,3	6,3 $\pm$ 1,5	-	
Pox10/10-11	9,8	0,07	292,1 $\pm$ 97	28,3 $\pm$ 7,5	-	
Pox10/10-12	9,8	0,11	171,1 $\pm$ 83,5	30 $\pm$ 11,6	-	
Pox10/10-13*	9,0	0,51	150,7 $\pm$ 72	96,9 $\pm$ 73,1	-	
Pox10/30-8*	29,4 $\pm$ 1,0	0,06	83 $\pm$ 56,4	7,8 $\pm$ 3,7	-	

Tableau F.1 : Taille moyenne des fragments de ZrO_2 (λ), ouverture (ouv) et profondeur de pénétration des fissures dans le métal (p). L'écart type représente la dispersion circconférentielle dans la ROI. Pour plus d'informations (durée d'essai, pression interne, température) sur les essais présentés le lecteur pourra consulter la matrice d'essai (cf. Tableau 4.1)

Bibliographie

- [1] Wikipédia, “Réacteur à eau pressurisée.” url : https://fr.wikipedia.org/wiki/R%C3%A9acteur_%C3%A0_eau_pressuris%C3%A9e. Consulté le 16 décembre 2019.
- [2] Marple, *Creep Rupture Study of Annealed Zircaloy-4 : Stress and Temperature Effects*. Rapport de master recherche, Faculty of North Carolina State University, 2005.
- [3] R. F. Domagala et D. J. McPherson, “System zirconium-oxygen,” *JOM*, vol. 6, pp. 238–246, Feb. 1954.
- [4] T. Vagkopoulou, S. Koutayas, P. Koidis, et J. Strub, “Zirconia in dentistry : Part 1. discovering the nature of an upcoming bioceramic,” *The European journal of esthetic dentistry : official journal of the European Academy of Esthetic Dentistry*, vol. 4, pp. 130–51, 02 2009.
- [5] V. Busser, *Mécanismes d’endommagement de la couche d’oxyde des gaines de crayons de combustible en situation accidentelle de type RIA*. Thèse de doctorat, Institut National des Sciences Appliquées de Lyon, 2009. url : <http://theses.insa-lyon.fr/publication/2009ISAL0027/these.pdf>.
- [6] P. Bouffieux, “Light water reactor fuel performance review of degradation phenomena affecting fuel rod cladding.” <https://docplayer.net/user/99930193/>. Accessed : 2021-12-16.
- [7] P. Platt, P. Frankel, M. Gass, R. Howells, et M. Preuss, “Finite element analysis of the tetragonal to monoclinic phase transformation during oxidation of zirconium alloys,” *Journal of Nuclear Materials*, vol. 454, pp. 290–297, Nov. 2014.
- [8] S. Guilbert, P. Lacote, G. Montigny, C. Duriez, J. Desquines, et C. Grandjean, “Effect of Pre-Oxide on Zircaloy-4 High-Temperature Steam Oxidation and Post-Quench Mechanical Properties,” *Zirconium in the Nuclear Industry : 17th Volume* (B. Comstock et P. Barberis, eds.), pp. 952–978, 100 Barr Harbor Drive, PO Box C700, West Conshohocken, PA 19428-2959 : ASTM International, Jan. 2015.
- [9] B. de Gabory, A. T. Motta, et K. Wang, “Transmission electron microscopy characterization of Zircaloy-4 and ZIRLOTM oxide layers,” *Journal of Nuclear Materials*, vol. 456, pp. 272–280, Jan. 2015.
- [10] A. T. Motta, A. Yilmazbayhan, R. J. Comstock, J. Partezana, G. P. Sabol, B. Lai, et Z. Cai, “Microstructure and Growth Mechanism of Oxide Layers Formed on Zr Alloys Studied with Micro-Beam Synchrotron Radiation,” *Zirconium in the Nuclear Industry : Fourteenth International Symposium*, Jan. 2005. Publisher : ASTM International.

-
- [11] F. Nagase, T. Otomo, et H. Uetsuka, "Oxidation Kinetics of Low-Sn Zircaloy-4 at the Temperature Range from 773 to 1,573K," *Journal of Nuclear Science and Technology*, vol. 40, pp. 213–219, Apr. 2003.
- [12] S. Guilbert-Banti, A. Viretto, J. Desquines, et C. Duriez, "Effect of pre-oxide on Zircaloy-4 high temperature steam oxidation," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 548, p. 152854, May 2021.
- [13] S. Fréchin, *Transformations et comportement du Zircaloy-4 en conditions anisothermes*. Thèse de doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2001.
- [14] R. Chosson, *Etude expérimentale et modélisation du comportement en fluage sous pression interne d'une gaine en alliage de zirconium oxydée en atmosphère vapeur*. Thèse de doctorat, École nationale supérieure des Mines de Paris, 2014. url : <https://hal-mines-paristech.archives-ouvertes.fr/tel-01314559/document>.
- [15] D. Campello, *Développement d'essais de ballonnement instrumentés pour la caractérisation et la simulation du fluage secondaire de gaines en Zr-4 dans des conditions thermo-mécaniques représentatives d'un APRP*. Thèse de doctorat, Université de Lyon, 2016. url : <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-01920700>.
- [16] C. Dominguez, "Effect of pre-oxide and hydrogen on creep of Zircaloy-4 at 1123K," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 511, pp. 446–458, 2018.
- [17] P. Bossis, D. Pécheur, K. Hanifi, J. Thomazet, et M. Blat, "Comparison of the high burn-up corrosion on M5 and low tin Zircaloy-4," *Zirconium in the nuclear industry : Fourteenth International Symposium.*, n° 5, pp. 494–524, 2006.
- [18] V. Georgenthum, J. Desquines, et V. Bessiron, "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*, vol. 43, pp. 1089–1096, Sept. 2006. Publisher : Taylor & Francis _eprint : <https://www.tandfonline.com/doi/pdf/10.1080/18811248.2006.9711199>.
- [19] S. Leistikow et G. Schanz, "Oxidation kinetics and related phenomena of zircaloy-4 fuel cladding exposed to high temperature steam and hydrogen-steam mixtures under PWR accident conditions," *Nuclear Engineering and Design*, vol. 103, pp. 65–84, Aug. 1987.
- [20] I. Schäffler, *influence d'une couche de zircone sur le comportement mécanique des tubes en Zircaloy-4*. These de doctorat, Besançon, Jan. 2001.
- [21] J. Desquines, C. Duriez, S. Guilbert, et T. Taurines, "High temperature oxidation and room temperature axial strength of pre-oxidized zircaloy-4 cladding after a simulated LOCA," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 543, p. 152559, Jan. 2021.
- [22] T. Jailin, *Étude expérimentale et modélisation du comportement d'un tube de gainage lors d'un accident de réactivité en phase post-crise ébullition*. Thèse de doctorat, INSA de Lyon, 2020.
- [23] I. G. Ritchie et A. Atrens, "The diffusion of oxygen in alpha-zirconium," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 67, pp. 254–264, Aug. 1977.
- [24] M. Parise, *Mécanismes de corrosion des alliages de zirconium : étude des cinétiques initiales d'oxydation et du comportement mécanique du système métal/oxyde*. Thèse de doctorat, ENSMP MAT. Centre des matériaux, Evry, Essonne, France, 1996.

-
- [25] J. Debuigne, *Contribution à l'étude de l'oxydation du zirconium et de la diffusion de l'oxygène dans l'oxyde et dans le métal*. Thèse de doctorat, Fculté des sciences de l'université de Paris, 1966.
- [26] D. Campello, N. Tardif, M. Moula, M. C. Baietto, M. Coret, et J. Desquines, "Identification of the steady-state creep behavior of Zircaloy-4 claddings under simulated Loss-Of-Coolant Accident conditions based on a coupled experimental/numerical approach," *International Journal of Solids and Structures*, vol. 115-116, pp. 190–199, 2017.
- [27] Y. Guérin et J. Henckes, "Conception et fabrication de combustibles à base d'uranium.," *Techniques de l'ingénieur*, 2005.
- [28] A. T. Motta et L.-Q. Chen, "Hydride Formation in Zirconium Alloys," *Journal of The Minerals*, vol. 64, n° 12, pp. 1403–1408, 2012.
- [29] A. Couet, A. T. Motta, et R. J. Comstock, "Hydrogen pickup measurements in zirconium alloys : Relation to oxidation kinetics," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 451, n° 1-3, pp. 1–13, 2014.
- [30] M. Griffiths, "A review of microstructure evolution in zirconium alloys during irradiation," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 159, pp. 190–218, 1988.
- [31] T. Torimaru, T. Yasuda, et M. Nakatsuka, "Changes in mechanical properties of irradiated Zircaloy-2 fuel cladding due to short term annealing," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 238, n° 2-3, pp. 169–174, 1996.
- [32] J. Ribis, F. Onimus, J. Béchade, S. Doriot, A. Barbu, C. Cappelaere, et C. Lemaignan, "Experimental study and numerical modelling of the irradiation damage recovery in zirconium alloys," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 403, n° 1-3, pp. 135–146, 2010.
- [33] C. Lemaignan, *Science des matériaux pour le nucléaire*. EDP Science, 2012.
- [34] J.-C. Brachet, V. Vandenberghe-Maillot, L. Portier, D. Gilbon, A. Lesbros, N. Waeckel, et J.-P. Mardon, "Hydrogen Content, Preoxidation, and Cooling Scenario Effects on Post-Quench Microstructure and Mechanical Properties of Zircaloy-4 and M5[®] Alloys in LOCA Conditions," *Journal of ASTM International*, vol. 5, pp. 1–28, May 2008. Publisher : ASTM International.
- [35] Y. Yan, J. R. Keiser, K. A. Terrani, G. L. Bell, et L. L. Snead, "Post-quench ductility evaluation of Zircaloy-4 and select iron alloys under design basis and extended LOCA conditions," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 448, pp. 436–440, May 2014.
- [36] J. Stuckert, M. Große, C. Rössger, M. Klimenkov, M. Steinbrück, et M. Walter, "QUENCH-LOCA program at KIT on secondary hydriding and results of the commissioning bundle test QUENCH-L0," *Nuclear Engineering and Design*, vol. 255, pp. 185–201, Feb. 2013.
- [37] Z. Hózer, I. Nagy, A. Vimi, M. Kunstár, P. Szabó, T. Novotny, E. Perez-Feró, Z. Kis, L. Szentmiklósi, M. Horváth, A. Csordás, E. Barsy, K. Kulacsy, et M. Grosse, "High-Temperature Secondary Hydriding Experiments with E110 and E110G Claddings," *Zirconium in the Nuclear Industry : 18th International Symposium*, Jan. 2018. Publisher : ASTM International.

-
- [38] T. L. Hong, *Effets de l'oxygène et de l'hydrogène sur la microstructure et le comportement mécanique d'alliages de zirconium après incursion à haute température*. Thèse de doctorat, Université Paris sciences et lettres, June 2020.
 - [39] K. Honma, O. Mazaaki, U. Shigeru, et S. Taku, "Thermal-shock behavior of PWR high-burn-up fuel cladding under simulated LOCA conditions," *Meeting slides at the ANS Annual Meeting - Milwaukee, Wisconsin*, 2001.
 - [40] G. Hache et H. M. Chung, "The history of LOCA embrittlement criteria," p. 32, 2001.
 - [41] H. E. Rosinger, P. C. Bera, et W. R. Clendening, "Steady-state creep of zircaloy-4 fuel cladding from 940 to 1873 K," *Journal of Nuclear materials*, vol. 82, n° 2, pp. 286–297, 1979.
 - [42] S. Sagat, H. E. Sills, et J. A. Walsworth, "Deformation and Failure of Zircaloy Fuel Sheaths Under LOCA Conditions," *Zirconium in the Nuclear Industry*, Jan. 1984. Publisher : ASTM International.
 - [43] M. Réocreux et E. F. Scott de Martinville, "A study of fuel behavior in PWR design basis accident : an analysis of results from the PHEBUS and EDGAR experiments," *Nuclear Engineering and Design*, vol. 124, pp. 363–378, Dec. 1990.
 - [44] T. Forgeron, J. C. Brachet, F. Barcelo, A. Castaing, J. Hivroz, J. P. Mardon, et C. Bernaudat, "Experiment and Modeling of Advanced Fuel Rod Cladding Behavior Under LOCA Conditions : Alpha-Beta Phase Transformation Kinetics and EDGAR Methodology," *Zirconium in the Nuclear Industry : Twelfth International Symposium*, pp. 256–278, ASTM International, STP1354, 2000.
 - [45] M. K. Khan, M. Pathak, S. Suman, A. Deo, et R. Singh, "Annals of Nuclear Energy Burst investigation on Zircaloy-4 claddings in inert environment," *Annals of Nuclear Energy*, vol. 69, pp. 292–300, 2014.
 - [46] G. Repetto, C. Dominguez, B. Durville, S. Carnemolla, D. Campello, N. Tardif, et M. Gradeck, "The R&D perfroi project on thermal mechanical and thermal hydraulics behaviors of a fuel rod assembly during a loss of coolant accident," *Nureth16*, (Chicago), ANS, 2015.
 - [47] G. H. Choi, D. H. Kim, D. Park, C. Shin, et B. J. Kim, "Development of Non-contact Deformation Measurement Method for Ballooning of Cladding in LOCA Condition," *Transactions of the Korean Nuclear Society Autumn Meeting*, (Goyang), 2019.
 - [48] I. Schäffler, *Modélisation du comportement elasto-viscoplastique anisotrope des tubes de gaine du crayon combustible entre zéro et quatre cycles de fonctionnement en réacteur à eau pressurisée*. These de doctorat, Besançon, Jan. 1997.
 - [49] A. Moal, V. Georgenthum, et O. Marchand, "SCANAIR : A transient fuel performance code. Part One : General modelling description," *Nuclear Engineering and Design*, vol. 280, pp. 150–171, 2014.
 - [50] T. Glantz, T. Taurines, O. De Luze, S. Belon, G. Guillard, et F. Jacq, "DRAC-CAR : A multi-physics code for computational analysis of multi-rod ballooning, coolability and fuel relocation during LOCA transients Part one : General modeling description," *Nuclear Engineering and Design*, vol. 339, pp. 269–285, Dec. 2018.

-
- [51] P. Van Uffelen, J. Hales, W. Li, G. Rossiter, et R. Williamson, "A review of fuel performance modelling," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 516, pp. 373–412, Apr. 2019.
- [52] J. Kim, J. W. Yoon, H. Kim, et S.-U. Lee, "Prediction of ballooning and burst for nuclear fuel cladding with anisotropic creep modeling during Loss of Coolant Accident (LOCA)," *Nuclear Engineering and Technology*, vol. 53, pp. 3379–3397, Oct. 2021.
- [53] R. Thieurmél, J. Besson, E. Pouillier, A. Parrot, A. Ambard, et A.-F. Gourgues-Lorenzon, "Contribution to the understanding of brittle fracture conditions of zirconium alloy fuel cladding tubes during LOCA transient," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 527, 2019. n°151815.
- [54] R. Chosson, A. F. Gourgues-Lorenzon, V. Vandenberghe, J. C. Brachet, et J. Crépin, "Creep flow and fracture behavior of the oxygen-enriched alpha phase in zirconium alloys," *Scripta Materialia*, vol. 117, pp. 20–23, 2016.
- [55] P. Barberis, "Métallurgie du zirconium et du hafnium," *Techniques de l'Ingénieur*, 2016.
- [56] "Waterside corrosion of zirconium alloys in nuclear power plants," *International Atomic Energy Agency*, 1998.
- [57] C. Lemaignan et A. T. Motta, "Zirconium Alloys in Nuclear Applications," *Materials science and technology*, 2006. doi : 10.1002/9783527603978.mst0111.
- [58] D. Charquet, R. Hahn, E. Ortlieb, J.-P. Gros, et J.-F. Wadier, "Solubility Limits and Formation of Intermetallic Precipitates in ZrSnFeCr Alloys," *Zirconium in the Nuclear Industry : Eighth International Symposium*, Jan. 1989. Publisher : ASTM International.
- [59] A. Miquet, D. Charquet, et C. H. Allibert, "Solid state phase equilibria of Zircaloy-4 in the temperature range 750-1050°C," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 105, n° 2-3, pp. 132–141, 1982.
- [60] S. Banerjee et P. Mukhopadhyay, *Phase Transformations : Examples from Titanium and Zirconium Alloys*. Elsevier, 2010.
- [61] R. A. Holt, "The beta to alpha phase transformation in Zircaloy-4," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 35, pp. 322–334, 1970.
- [62] E. J. Mittemeijer, "Review : Analysis of the kinetics of phase transformations," *Journal of Materials Science*, vol. 27, n° 15, pp. 3977–3987, 1992.
- [63] T. Jailin, N. Tardif, J. Desquines, M. Coret, M. C. Baietto, et V. Georgenthum, "Experimental study and modelling of the phase transformation of Zircaloy-4 alloy under high thermal transients," *Materials Characterization*, vol. 162, p. 110199, Apr. 2020.
- [64] D. L. Hagrman et G. A. Reymann, "MATPRO-Version 11 : A handbook of materials properties for use in the analysis of light water reactor fuel rod behavior," rapport, Idaho National Engineering Lab., Idaho Falls (USA), 1979.
- [65] M. Le Saux, T. Guilbert, et J. C. Brachet, "An approach to study oxidation-induced stresses in Zr alloys oxidized at high temperature," *Corrosion Science*, vol. 140, pp. 79–91, Aug. 2018.

-
- [66] J. A. Davies, B. Domeij, J. P. S. Pringle, et F. Brown, "The Migration of Metal and Oxygen during Anodic Film Formation," *Journal of The Electrochemical Society*, vol. 112, p. 675, July 1965. Publisher : IOP Publishing.
- [67] A. Grandjean et Y. Serruys, "Metal and oxygen mobilities during Zircaloy-4 oxidation at high temperature," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 273, pp. 111–115, June 1999.
- [68] B. Cox et J. P. Pemsler, "Diffusion of oxygen in growing zirconia films," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 28, pp. 73–78, Oct. 1968.
- [69] J. Godlewski, *Oxydation d'alliages de zirconium en vapeur d'eau : influence de la zircone tétragonale sur le mécanisme de croissance de l'oxyde*. thesis, Compiègne, Jan. 1990. Publication Title : <http://www.theses.fr>.
- [70] L. Kurpaska, *Analysis of mechanical stresses at high temperatures in oxide films : application to the Zr/ZrO₂ system*. These de doctorat, Compiègne, Jan. 2012.
- [71] E. Polatidis, P. Frankel, J. Wei, M. Klaus, R. J. Comstock, A. Ambard, S. Lyon, R. A. Cottis, et M. Preuss, "Residual stresses and tetragonal phase fraction characterisation of corrosion tested Zircaloy-4 using energy dispersive synchrotron X-ray diffraction," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 432, pp. 102–112, Jan. 2013.
- [72] H. X. Zhang, D. Fruchart, E. K. Hlil, L. Ortega, Z. K. Li, J. J. Zhang, J. Sun, et L. Zhou, "Crystal structure, corrosion kinetics of new zirconium alloys and residual stress analysis of oxide films," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 396, pp. 65–70, Jan. 2010.
- [73] P. Bossis, *Mécanismes de corrosion du Zircaloy-4 et de l'alliage Zr-1Nb en eau pressurisée hors et sous irradiation : rôle des interfaces*. Thèse de doctorat, Grenoble INPG, Jan. 1999.
- [74] R. C. Garvie, "The Occurrence of Metastable Tetragonal Zirconia as a Crystallite Size Effect," *The Journal of Physical Chemistry*, vol. 69, pp. 1238–1243, Apr. 1965. Publisher : American Chemical Society.
- [75] A. Hermann, S. Yagnik, et D. Gavillet, "Effect of Local Hydride Accumulations on Zircaloy Cladding Mechanical Properties," *Zirconium in the Nuclear Industry : 15th International Symposium*, Jan. 2009. Publisher : ASTM International.
- [76] T. U. Nakano, H. J. Fujii, et J. T. Shimizu, "Mitsubishi PWR fuel experience and reliability," (Korea, Republic of), pp. 1CD-ROM, KNS, 2008. INIS Reference Number : 44050147.
- [77] V. Bouineau, G. Bénier, D. Pêcheur, J. Thomazet, A. Ambard, et M. Blat, "Analysis of the Waterside Corrosion Kinetics of Zircaloy-4 Fuel Cladding in French PWRs," *Nuclear Technology*, vol. 170, pp. 444–459, June 2010. Publisher : Taylor & Francis _eprint : <https://doi.org/10.13182/NT10-A10330>.
- [78] E. Hillner, D. G. Franklin, et J. D. Smee, "Long-term corrosion of Zircaloy before and after irradiation," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 278, pp. 334–345, Apr. 2000.
- [79] Y. Dali, M. Tupin, P. Bossis, M. Pijolat, Y. Wouters, et F. Jomard, "Corrosion kinetics under high pressure of steam of pure zirconium and zirconium alloys followed by in situ thermogravimetry," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 426, pp. 148–159, July 2012.

-
- [80] A. J. G. Maroto, R. Bordoni, M. Villegas, A. M. Olmedo, M. A. Blesa, A. Iglesias, et P. Koenig, "Growth and characterization of oxide layers on zirconium alloys," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 229, pp. 79–92, Apr. 1996.
- [81] A. T. Donaldson, "Growth in Zircaloy-4 Fuel Clad Arising from Oxidation at Temperatures in the Range 623 to 723 K," *Zirconium in the Nuclear Industry : Ninth International Symposium*, Jan. 1991. Publisher : ASTM International.
- [82] J. L. Vandegrift, P. M. Price, J.-P. Stroud, C. J. Parga, I. J. Van Rooyen, B. J. Jaques, et D. P. Butt, "Oxidation behavior of Zirconium, Zircaloy-3, Zircaloy-4, Zr-1Nb, and Zr-2.5Nb in air and oxygen," *Nuclear Materials and Energy*, vol. 20, p. 100692, Aug. 2019.
- [83] I.-S. Ting et J.-H. Huang, "Evaluation of incipient oxidation behavior of ZrO₂-Coated Zircaloy-4 by thermogravimetric analysis," *Materials Chemistry and Physics*, vol. 262, p. 124317, Apr. 2021.
- [84] C. Duriez, T. Dupont, B. Schmet, et F. Enoch, "Zircaloy-4 and M5® high temperature oxidation and nitriding in air," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 380, pp. 30–45, Oct. 2008.
- [85] J. J. Vermoyal, L. Dessemond, A. Hammou, et A. Frichet, "In situ characterization of Zircaloy-4 oxidation at 500 °C in dry air," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 298, pp. 297–308, Oct. 2001.
- [86] G. Zumpicchiati, *Modélisation numérique de la diffusion-corrosion des alliages de zirconium*. These de doctorat, Université Paris-Saclay (ComUE), Dec. 2015.
- [87] J. V. Cathcart, R. E. Pawel, R. A. McKee, R. E. Druschel, G. J. Yurek, J. J. Campbell, et S. H. Jury, "Zirconium metal-water oxidation kinetics. IV. Reaction rate studies. [BWR :PWR]," Rapport ORNL/NUREG-17, Oak Ridge National Lab., TN (USA), July 1977.
- [88] T. K. Sawarn, S. Banerjee, et S. Kumar, "Study of the response of Zircaloy- 4 cladding to thermal shock during water quenching after double sided steam oxidation at elevated temperatures," *Journal of Nuclear Materials*, vol. C, n° 473, pp. 237–248, 2016.
- [89] M. Le Saux, J. C. Brachet, V. Vandenberghe, E. Rouesne, S. Urvoy, A. Ambard, et R. Chosson, "Effect of a pre-oxide on the high temperature steam oxidation of Zircaloy-4 and M5® Framatome alloys," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 518, pp. 386–399, May 2019.
- [90] S. Kass, "Aqueous corrosion of the Zircalloys at low temperatures," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 29, pp. 315–321, Mar. 1969.
- [91] G. P. Sabol et S. B. Dalgaard, "The Origin of the Cubic Rate Law in Zirconium Alloy Oxidation," *Journal of The Electrochemical Society*, vol. 122, p. 316, Feb. 1975. Publisher : IOP Publishing.
- [92] C. Wagner, "Theoretical Analysis of the Diffusion Processes Determining the Oxidation Rate of Alloys," *Journal of The Electrochemical Society*, vol. 99, p. 369, Oct. 1952. Publisher : IOP Publishing.
- [93] E. A. García, "Dynamical diffusion model to simulate the oxide crystallization and grain growth during oxidation of zirconium at 573 and 623 K," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 224, pp. 299–304, Sept. 1995.

-
- [94] C. C. Dollins et M. Jursich, "A model for the oxidation of zirconium-based alloys," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 113, pp. 19–24, Jan. 1983.
 - [95] H. E. Evans, D. J. Norfolk, et T. Swan, "Perturbation of Parabolic Kinetics Resulting from the Accumulation of Stress in Protective Oxide Layers," *Journal of The Electrochemical Society*, vol. 125, p. 1180, July 1978. Publisher : IOP Publishing.
 - [96] G. B. Stephenson, "Deformation during interdiffusion," *Acta Metallurgica*, vol. 36, pp. 2663–2683, Oct. 1988.
 - [97] G. Zumpicchiati, S. Pascal, M. Tupin, et C. Berdin-Méric, "Finite element modelling of the oxidation kinetics of Zircaloy-4 with a controlled metal-oxide interface and the influence of growth stress," *Corrosion Science*, vol. 100, pp. 209–221, Nov. 2015.
 - [98] G. Eloff, C. Greyling, et P. Viljoen, "The role of space charge in the oxidation of Zircaloy-4 between 350 and 450deg C in air," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 199, n° 3, pp. 285–288, 1993. Place : Netherlands.
 - [99] S. Leistikow et S. G. Schanz, "The oxidation behavior of Zircaloy-4 in steam between 600 and 1600°C," *Materials and Corrosion*, vol. 36, n° 3, pp. 105–116, 1985. _eprint : <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/maco.19850360302>.
 - [100] O. Al Haj, *Apports de l'émission acoustique couplée à la thermogravimétrie pour l'étude de la corrosion à haute température des métaux et alliages*. These de doctorat, Saint-Etienne, EMSE, Nov. 2014.
 - [101] M. Steinbrück, N. Vér, et M. Große, "Oxidation of Advanced Zirconium Cladding Alloys in Steam at Temperatures in the Range of 600–1200 °C," *Oxidation of Metals*, vol. 76, pp. 215–232, Oct. 2011.
 - [102] J. Böhmert, M. Dietrich, et J. Linek, "Comparative studies on high-temperature corrosion of ZrNb1 and Zircaloy-4," *Nuclear Engineering and Design*, vol. 147, pp. 53–62, Jan. 1994.
 - [103] J. H. Baek, K. B. Park, et Y. H. Jeong, "Oxidation kinetics of Zircaloy-4 and Zr-1Nb-1Sn-0.1Fe at temperatures of 700–1200°C," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 335, pp. 443–456, Dec. 2004.
 - [104] H. H. Kim, J. H. Kim, J. Y. Moon, H. S. Lee, J. J. Kim, et Y. S. Chai, "High-temperature Oxidation Behavior of Zircaloy-4 and Zirlo in Steam Ambient," *Journal of Materials Science & Technology*, vol. 26, pp. 827–832, Jan. 2010.
 - [105] R. Zino, R. Chosson, M. Ollivier, et E. Serris, "Breakaway characterization of Zircaloy-4 oxidized in steam and in oxygen at high temperatures using HT- XRD analysis," *Corrosion Science*, vol. 176, p. 109028, Nov. 2020.
 - [106] H.-G. Kim, I.-H. Kim, B.-K. Choi, et J.-Y. Park, "A study of the breakaway oxidation behavior of zirconium cladding materials," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 418, pp. 186–197, Nov. 2011.
 - [107] P. Barberis, "Zirconia powders and Zircaloy oxide films : tetragonal phase evolution during 400°C autoclave tests," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 226, pp. 34–43, Oct. 1995.
 - [108] N. Pilling et R. Bedworth, "The oxidation of metals at high temperatures," *Inst. Metals*, vol. 529, p. 529, 1923.
-

-
- [109] J. L. Ruan, Y. Pei, et D. Fang, "Residual stress analysis in the oxide scale/metal substrate system due to oxidation growth strain and creep deformation," *Acta Mechanica*, vol. 223, pp. 2597–2607, Dec. 2012.
- [110] F. Antoni-Le Guyadec, *Approche mécano-chimique de l'oxydation du Zircaloy-4*. These de doctorat, Grenoble INPG, Jan. 1990.
- [111] M. Parise, O. Sicardy, et G. Cailletaud, "Modelling of the mechanical behavior of the metal-oxide system during Zr alloy oxidation," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 256, pp. 35–46, July 1998.
- [112] M. G. Chaudron, *Variation des paramètres cristallins de la solution solide α zirconium-oxydène en fonction de la teneur en oxygène*. C.R Acad. SC. Paris, 1969.
- [113] J. Favergeon, *Anisotropie dans l'oxydation du zirconium et de ses alliages : conséquences cinétiques, texturales et mécaniques, apports expérimentaux et de modélisation*. These de doctorat, Dijon, Jan. 2001.
- [114] M. Gestin, M. Mermoux, O. Coindreau, C. Duriez, M. Pijolat, V. Peres, et L. Favergeon, "Experimental study of oxidation in oxygen, nitrogen and steam mixtures at 850C of pre-oxidized Zircaloy-4," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 519, pp. 302–314, June 2019.
- [115] C. Duriez, D. Drouan, et G. Pouzadoux, "Reaction in air and in nitrogen of pre-oxidised Zircaloy-4 and M5TM claddings," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 441, pp. 84–95, Oct. 2013.
- [116] J.-C. Brachet, D. Hamon, M. Le Saux, V. Vandenberghe, C. Toffolon-Masclet, E. Rouesne, S. Urvoy, J.-L. Béchade, C. Raepsaet, J.-L. Lacour, G. Bayon, et F. Ott, "Study of secondary hydriding at high temperature in zirconium based nuclear fuel cladding tubes by coupling information from neutron radiography/tomography, electron probe micro analysis, micro elastic recoil detection analysis and laser induced breakdown spectroscopy microprobe," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 488, pp. 267–286, May 2017.
- [117] M. L. Saux, V. Vandenberghe, P. Crébier, J. Brachet, D. Gilbon, J. Mardon, P. Jacques, et A. Cabrera, "Influence of Steam Pressure on the High Temperature Oxidation and Post-Cooling Mechanical Properties of Zircaloy-4 and M5 Cladding (LOCA Conditions)," *Zirconium in the Nuclear Industry : 17th Volume*, Jan. 2015. Publisher : ASTM International.
- [118] M. Le Saux, J.-C. Brachet, V. Vandenberghe, A. Ambard, et R. Chosson, "Breakaway oxidation of zirconium alloys exposed to steam around 1000°C," *Corrosion Science*, vol. 176, p. 108936, Nov. 2020.
- [119] V. F. Urbanic et T. R. Heidrick, "High-temperature oxidation of Zircaloy-2 and Zircaloy-4 in steam," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 75, pp. 251–261, Aug. 1978.
- [120] B. Mazères, C. Desgranges, C. Toffolon-Masclet, et D. Monceau, "Experimental study and numerical simulation of high temperature (1100–1250°C) oxidation of prior-oxidized zirconium alloy," *Corrosion Science*, vol. 103, pp. 10–19, Feb. 2016.
- [121] N. Prasad, G. Malakondaiah, et P. R. Rao, "Low stress creep behavior of Zircaloy-2 vis-a-vis zirconium," *Scripta Metallurgica ; (United States)*, vol. 26 :4, Feb. 1992.

-
- [122] M. E. Kassner, P. Kumar, et W. Blum, “Harper – Dorn creep,” *International journal of plasticity*, vol. 23, n° 6, pp. 980–1000, 2007.
 - [123] R. Chosson, V. Vandenberghe, A. F. Gourgues-Lorenzon, J. Crépin, J. C. Brachet, A. Cabrera, et V. Garat, “Creep behavior at high temperature of the oxygen stabilized zirconium alpha phase of fuel cladding tubes oxidized in loca conditions,” *LWR Fuel Performance Meeting/TopFuel*, (Charlotte), pp. 520–527, American nuclear society, 2013.
 - [124] F. R. N. Nabbarro, “Deformation of crystals by motion of single ions,” *Report on a Conference on the Strength of Solids*, pp. 75–90, The Physical Society, 1948.
 - [125] C. Herring, “Diffusional viscosity of a polycrystalline solid,” *Journal of Applied Physics*, vol. 21, n° 5, pp. 437–445, 1950.
 - [126] R. L. Coble, “A Model for Boundary Diffusion Controlled Creep in Polycrystalline Materials,” *Journal of Applied Physics*, vol. 34, n° 6, pp. 1679–1682, 1963.
 - [127] C. E. L. Hunt et W. G. Newell, “The ballooning behaviour of Zircaloy-4 fuel sheaths at a heating rate of 0.5 deg Cs-1,” Rapport AECL-6342, Atomic Energy of Canada Ltd., 1978.
 - [128] H. E. Sills et R. A. Holt, “Predicting high-temperature transient deformation from microstructural models,” *Zirconium in the Nuclear Industry*, ASTM International, STP36688S, 1979.
 - [129] H. E. Sills et R. A. Holt, “NIRVANA, a high-temperature creep model for Zircaloy fuel sheathing,” Rapport AECL-6412, Atomic Energy of Canada Ltd., 1979.
 - [130] A. T. Donaldson et R. C. Ecob, “A transition stress in the creep of an alpha phase zirconium alloy at high temperature,” *Scripta metallurgica*, vol. 19, n° 11, pp. 1313–1318, 1985.
 - [131] E. Ortlieb, G. Cheliotis, et H. G. Weidinger, “Influence of the initial material condition on the deformation behavior of Zircaloy cladding tubes in the high- α -phase region,” *Zirconium in the Nuclear Industry*, pp. 539–553, ASTM International, STP28142S, 1987.
 - [132] D. Kaddour, S. Frechinet, A. F. Gourgues, J. C. Brachet, L. Portier, et A. Pineau, “Experimental determination of creep properties of zirconium alloys together with phase transformation,” *Scripta Materialia*, vol. 51, n° 6, pp. 515–519, 2004.
 - [133] D. Kaddour, *Fluage isotherme et anisotherme dans les domaines monophasés (α et β) et biphasés ($\alpha + \beta$) d’un alliage Zr-1 %NbO*. Thèse de doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2004. url : <https://pastel.archives-ouvertes.fr/tel-00162151/document>.
 - [134] B. Burton, A. T. Donaldson, et G. L. Reynolds, “Interaction of Oxidation and Creep in Zircaloy-2,” *Zirconium in the Nuclear Industry*, Jan. 1979. Publisher : ASTM International.
 - [135] C. K. Chow, P. C. Bera, et H. E. Rosinger, “Creep behavior of oxidized Zircaloy-4 fuel sheathing,” *Materials in nuclear energy*, 1982.
 - [136] J. Lankford, R. A. Page, et L. Rabenberg, “Deformation mechanisms in yttria-stabilized zirconia,” *Journal of Materials Science*, vol. 23, pp. 4144–4156, Nov. 1988.

-
- [137] W. Roger Cannon et T. G. Langdon, "Creep of ceramics," *Journal of Materials Science*, vol. 18, pp. 1–50, Jan. 1983.
 - [138] E. Zapata-Solvas, D. Gómez-García, C. García-Gañán, et A. Domínguez-Rodríguez, "High temperature creep behaviour of 4mol% yttria tetragonal zirconia polycrystals (4-YTZP) with grain sizes between 0.38 and 1.15 μ m," *Journal of the European Ceramic Society*, vol. 27, pp. 3325–3329, Jan. 2007.
 - [139] M. Yoshida, Y. Shinoda, T. Akatsu, et F. Wakai, "Superplasticity-like Deformation of Nanocrystalline Monoclinic Zirconia at Elevated Temperatures," *Journal of the American Ceramic Society*, vol. 87, n° 6, pp. 1122–1125, 2004. _eprint : <https://ceramics.onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1111/j.1551-2916.2004.01122.x>.
 - [140] T. Forgeron, J. C. Brachet, F. Barcelo, A. Castaing, J. Hivroz, J. P. Mardon, et C. Bernaudat, "Experiment and Modeling of Advanced Fuel Rod Cladding Behavior Under LOCA Conditions : Alpha-Beta Phase Transformation Kinetics and EDGAR Methodology," *Zirconium in the Nuclear Industry : Twelfth International Symposium*, Jan. 2000. Publisher : ASTM International.
 - [141] R. D. Waddell, Jr. et P. L. Rittenhouse, "High temperature burst strength and ductility of zircaloy tubing,," Rapport ORNL-TM-3289, 4030971, Jan. 1971.
 - [142] J. Desquines, V. Georgenthum, F. Lemoine, et B. Cazalis, "The fracture and spallation of zirconia layers in high burnup pwr fuel claddings submitted to RIA transients," *18th International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology*, 2005.
 - [143] J. C. Grosskreutz et M. B. McNeil, "The Fracture of Surface Coatings on a Strained Substrate," *Journal of Applied Physics*, vol. 40, pp. 355–359, Jan. 1969. Publisher : American Institute of Physics.
 - [144] B. F. Chen, J. Hwang, G. P. Yu, et J. H. Huang, "In situ observation of the cracking behavior of TiN coating on 304 stainless steel subjected to tensile strain," *Thin Solid Films*, vol. 352, pp. 173–178, Sept. 1999.
 - [145] J. M. Antunes, L. F. Menezes, M. F. Vieira, J. V. Fernandes, B. Trindade, A. S. Ramos, et M. T. Vieira, "On the evaluation of the ductility of thin films," *Materials Science and Engineering : A*, vol. 337, pp. 97–103, Nov. 2002.
 - [146] A. Strawbridge et H. E. Evans, "Mechanical failure of thin brittle coatings," *Engineering Failure Analysis*, vol. 2, pp. 85–103, June 1995.
 - [147] A. M. Huntz, M. Andrieux, et R. Molins, "Relation between the oxidation mechanism of nickel, the microstructure and mechanical resistance of NiO films and the nickel purity : I. Oxidation mechanism and microstructure of NiO films," *Materials Science and Engineering : A*, vol. 415, pp. 21–32, Jan. 2006.
 - [148] C. Xie et W. Tong, "Cracking and decohesion of a thin Al₂O₃ film on a ductile Al–5%Mg substrate," *Acta Materialia*, vol. 53, pp. 477–485, Jan. 2005.
 - [149] Y. Liu, I. Bhamji, P. J. Withers, D. E. Wolfe, A. T. Motta, et M. Preuss, "Evaluation of the interfacial shear strength and residual stress of TiAlN coating on ZIRLO™ fuel cladding using a modified shear-lag model approach," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 466, pp. 718–727, Nov. 2015.
-

-
- [150] J. Jiang, H. Zhai, P. Gong, W. Zhang, X. He, X. Ma, et B. Wang, "In-situ study on the tensile behavior of Cr-coated Zircaloy for accident tolerant fuel claddings," *Surface and Coatings Technology*, vol. 394, p. 125747, July 2020.
 - [151] D. C. Agrawal et R. Raj, "Measurement of the ultimate shear strength of a metal-ceramic interface," *Acta Metallurgica*, vol. 37, pp. 1265–1270, Apr. 1989.
 - [152] G. R. Irwin, "Analysis of Stresses and Strains Near the End of a Crack Traversing a Plate," *Journal of Applied Mechanics*, vol. 24, pp. 361–364, June 1957.
 - [153] Griffith, "The phenomena of rupture and flow in solids," *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical or Physical Character*, vol. 221, pp. 163–198, Jan. 1921. Publisher : Royal Society.
 - [154] A. J. A. Winnubst, K. Keizer, et A. J. Burggraaf, "Mechanical properties and fracture behaviour of ZrO₂-Y₂O₃ ceramics," *Journal of Materials Science*, vol. 18, pp. 1958–1966, July 1983.
 - [155] B. F. Sorensen et A. N. Kumar, "Fracture resistance of 8 mol% yttria stabilized zirconia," *Bulletin of Materials Science*, vol. 24, pp. 111–116, Apr. 2001.
 - [156] P. Julien, *Vérification des facteurs d'intensité de contrainte calculés par XFEM*. Thèse de doctorat, École normale supérieure de Cachan - ENS Cachan, 2009.
 - [157] J.-Y. Wu, V. P. Nguyen, C. T. Nguyen, D. Sutula, S. Sinaie, et S. P. A. Bordas, "Chapter One - Phase-field modeling of fracture," *Advances in Applied Mechanics* (S. P. A. Bordas et D. S. Balint, eds.), vol. 53, pp. 1–183, Elsevier, Jan. 2020.
 - [158] A. Bhattacharya, K. Mondal, C. S. Upadhyay, et S. Sangal, "A phase-field investigation of the effect of grain-boundary diffusion on austenite to ferrite transformation," *Computational Materials Science*, vol. 173, p. 109428, Feb. 2020.
 - [159] N. Moelans, B. Blanpain, et P. Wollants, "Quantitative analysis of grain boundary properties in a generalized phase field model for grain growth in anisotropic systems," *Physical Review B*, vol. 78, p. 024113, July 2008. Publisher : American Physical Society.
 - [160] Y. Suwa, Y. Saito, et H. Onodera, "Three-dimensional phase field simulation of the effect of anisotropy in grain-boundary mobility on growth kinetics and morphology of grain structure," *Computational Materials Science*, vol. 40, pp. 40–50, July 2007.
 - [161] M. Asle Zaeem, H. Yin, et S. D. Felicelli, "Modeling dendritic solidification of Al-3%Cu using cellular automaton and phase-field methods," *Applied Mathematical Modelling*, vol. 37, pp. 3495–3503, Mar. 2013.
 - [162] C. Labergère, M. Long, H. Badreddine, N.-T. Niane, D. Grange, et K. Saanouni, "Thermomechanical model for solidification and cooling simulation of Ni-based superalloy components," *International Journal of Solids and Structures*, vol. 212, pp. 202–219, Mar. 2021.
 - [163] K. Kim, Q. C. Sherman, L. K. Aagesen, et P. W. Voorhees, "Phase-field model of oxidation : Kinetics," *Physical Review E*, vol. 101, p. 022802, Feb. 2020. Publisher : American Physical Society.
 - [164] W. Dreyer et W. H. Müller, "A study of the coarsening in tin/lead solders," *International Journal of Solids and Structures*, vol. 37, n° 28, pp. 3841 – 3871, 2000.
-

-
- [165] M. Düsing et R. Mahnken, “A coupled phase field/diffusional/mechanical framework for simulation of upper and lower bainitic transformation,” *International Journal of Solids and Structures*, vol. 162, pp. 45–59, May 2019.
 - [166] K. Ammar, B. Appolaire, G. Cailletaud, et S. Forest, “Combining phase field approach and homogenization methods for modelling phase transformation in elastoplastic media,” *European Journal of Computational Mechanics*, vol. 18, pp. 485–523, Jan. 2009. Publisher : Taylor & Francis _eprint : <https://doi.org/10.3166/ejcm.18.485-523>.
 - [167] Y. Zhao, S. Ai, et D. Fang, “Elasto-plastic phase field modelling of oxidation of zirconium alloys,” *International Journal of Solids and Structures*, vol. 134, pp. 30–42, Mar. 2018.
 - [168] M. Cottura, Y. Le Bouar, A. Finel, B. Appolaire, K. Ammar, et S. Forest, “A phase field model incorporating strain gradient viscoplasticity : Application to rafting in Ni-base superalloys,” *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, vol. 60, pp. 1243–1256, July 2012.
 - [169] V. de Rancourt, K. Ammar, B. Appolaire, et S. Forest, “Homogenization of viscoplastic constitutive laws within a phase field approach,” *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, vol. 88, pp. 291–319, Mar. 2016.
 - [170] A. A. Griffith, “The theory of rupture,” *First Int. Cong. Appl. Mech.*, p. 55–63., 1924.
 - [171] M. L. Falk, A. Needleman, et J. R. Rice, “A critical evaluation of cohesive zone models of dynamic fracture,” *Le Journal de Physique IV*, vol. 11, pp. Pr5–Pr5–50, Sept. 2001. Publisher : EDP Sciences.
 - [172] F. Zhou et J. F. Molinari, “Dynamic crack propagation with cohesive elements : a methodology to address mesh dependency,” *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, vol. 59, n° 1, pp. 1–24, 2004. _eprint : <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/nme.857>.
 - [173] A. E. Huespe, J. Oliver, P. J. Sanchez, S. Blanco, et V. Sonzogni, “Strong discontinuity approach in dynamic fracture simulations,” p. 22, 2006.
 - [174] T. Elguedj, A. Gravouil, et A. Combescure, “Appropriate extended functions for X-FEM simulation of plastic fracture mechanics,” *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, vol. 195, pp. 501–515, Jan. 2006.
 - [175] A. Gravouil, E. Pierres, et M. C. Baietto, “Stabilized global–local X-FEM for 3D non-planar frictional crack using relevant meshes,” *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, vol. 88, n° 13, pp. 1449–1475, 2011. _eprint : <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/nme.3232>.
 - [176] N. Moës, J. Dolbow, et T. Belytschko, “A finite element method for crack growth without remeshing,” *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, vol. 46, n° 1, pp. 131–150, 1999. _eprint : <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/%28SICI%291097-0207%2819990910%2946%3A1%3C131%3A%3AAID-NME726%3E3.0.CO%3B2-J>.
 - [177] J. Réthoré, A. Gravouil, et A. Combescure, “An energy-conserving scheme for dynamic crack growth using the eXtended finite element method,” *International Journal*
-

-
- for *Numerical Methods in Engineering*, vol. 63, n° 5, pp. 631–659, 2005. _eprint : <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/nme.1283>.
- [178] N. Moës, C. Stolz, P.-E. Bernard, et N. Chevaugeon, “A level set based model for damage growth : The thick level set approach,” *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, vol. 86, n° 3, pp. 358–380, 2011. _eprint : <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/nme.3069>.
 - [179] M. Ambati, T. Gerasimov, et L. De Lorenzis, “A review on phase-field models of brittle fracture and a new fast hybrid formulation,” *Computational Mechanics*, vol. 55, pp. 383–405, Feb. 2015.
 - [180] M. Ambati, T. Gerasimov, et L. De Lorenzis, “Phase-field modeling of ductile fracture,” *Computational Mechanics*, vol. 55, pp. 1017–1040, May 2015.
 - [181] F. P. Duda, A. Ciarbonetti, P. J. Sánchez, et A. E. Huespe, “A phase-field/gradient damage model for brittle fracture in elastic–plastic solids,” *International Journal of Plasticity*, vol. 65, pp. 269–296, Feb. 2015.
 - [182] G. Molnár, A. Gravouil, R. Seghir, et J. Réthoré, “An open-source Abaqus implementation of the phase-field method to study the effect of plasticity on the instantaneous fracture toughness in dynamic crack propagation,” *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, vol. 365, p. 113004, June 2020.
 - [183] X. Zhang, C. Vignes, S. W. Sloan, et D. Sheng, “Numerical evaluation of the phase-field model for brittle fracture with emphasis on the length scale,” *Computational Mechanics*, vol. 59, pp. 737–752, May 2017.
 - [184] P. Shanthraj, L. Sharma, B. Svendsen, F. Roters, et D. Raabe, “A phase field model for damage in elasto-viscoplastic materials,” *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, vol. 312, pp. 167–185, Dec. 2016.
 - [185] T. K. Mandal, V. P. Nguyen, et J.-Y. Wu, “A length scale insensitive anisotropic phase field fracture model for hyperelastic composites,” *International Journal of Mechanical Sciences*, vol. 188, p. 105941, Dec. 2020.
 - [186] F. Peng, W. Huang, Z.-Q. Zhang, T. Fu Guo, et Y. E. Ma, “Phase field simulation for fracture behavior of hyperelastic material at large deformation based on edge-based smoothed finite element method,” *Engineering Fracture Mechanics*, vol. 238, p. 107233, Oct. 2020.
 - [187] S. Yin, W. Yang, J. Kwon, A. Wat, M. A. Meyers, et R. O. Ritchie, “Hyperelastic phase-field fracture mechanics modeling of the toughening induced by Bouligand structures in natural materials,” *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, vol. 131, pp. 204–220, Oct. 2019.
 - [188] Y.-S. Lo, M. J. Borden, K. Ravi-Chandar, et C. M. Landis, “A phase-field model for fatigue crack growth,” *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, vol. 132, p. 103684, Nov. 2019.
 - [189] A. Mesgarnejad, A. Imanian, et A. Karma, “Phase-field models for fatigue crack growth,” *Theoretical and Applied Fracture Mechanics*, vol. 103, p. 102282, Oct. 2019.
 - [190] C. Miehe, H. Dal, L.-M. Schänzel, et A. Raina, “A phase-field model for chemo-mechanical induced fracture in lithium-ion battery electrode particles,” *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, vol. 106, n° 9, pp. 683–711, 2016. _eprint : <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/nme.5133>.
-

-
- [191] T.-T. Nguyen, J. Bolivar, Y. Shi, J. Réthoré, A. King, M. Fregonese, J. Adrien, J.-Y. Buffiere, et M.-C. Baietto, “A phase field method for modeling anodic dissolution induced stress corrosion crack propagation,” *Corrosion Science*, vol. 132, pp. 146–160, Mar. 2018.
- [192] D. Schneider, M. Selzer, J. Bette, I. Rementeria, A. Vondrous, M. J. Hoffmann, et B. Nestler, “Phase-Field Modeling of Diffusion Coupled Crack Propagation Processes,” *Advanced Engineering Materials*, vol. 16, n° 2, pp. 142–146, 2014. _eprint : <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/adem.201300073>.
- [193] D. Schneider, E. Schoof, Y. Huang, M. Selzer, et B. Nestler, “Phase-field modeling of crack propagation in multiphase systems,” *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, vol. 312, pp. 186–195, Dec. 2016.
- [194] T. T. Nguyen, J. Yvonnet, M. Bornert, C. Chateau, K. Sab, R. Romani, et R. Le Roy, “On the choice of parameters in the phase field method for simulating crack initiation with experimental validation,” *International Journal of Fracture*, vol. 197, pp. 213–226, Feb. 2016.
- [195] E. Tanné, T. Li, B. Bourdin, J. J. Marigo, et C. Maurini, “Crack nucleation in variational phase-field models of brittle fracture,” *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, vol. 110, pp. 80–99, Jan. 2018.
- [196] A. Kumar, B. Bourdin, G. A. Francfort, et O. Lopez-Pamies, “Revisiting nucleation in the phase-field approach to brittle fracture,” *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, vol. 142, p. 104027, Sept. 2020.
- [197] A. D. Le Claire et A. Rabinovitch, “A mathematical analysis of diffusion in dislocations. I. Application to concentration ‘tails’,” *Journal of Physics Condensed Matter*, vol. 14, pp. 3863–3879, Dec. 1981.
- [198] A. D. Le Claire et A. Rabinovitch, “A mathematical analysis of diffusion in dislocations. II. Influence at low densities on measured diffusion coefficients,” *Journal of Physics Condensed Matter*, vol. 15, pp. 3455–3471, Dec. 1982.
- [199] A. D. Le Claire et A. Rabinovitch, “A mathematical analysis of diffusion in dislocations. III. Diffusion in a dislocation array with diffusion zone overlap,” *Journal of Physics Condensed Matter*, vol. 16, pp. 2087–2104, Dec. 1983.
- [200] S. M. Allen et J. W. Cahn, “A microscopic theory for antiphase boundary motion and its application to antiphase domain coarsening,” *Acta Metallurgica*, vol. 27, n° 6, pp. 1085 – 1095, 1979.
- [201] A. G. Khachaturyan et G. A. Shatalov, “Theory of macroscopic periodicity for a phase transition in the solid,” *Soviet physics JETP*, vol. 29, p. 5, 1969.
- [202] C. Miehe, F. Welschinger, et M. Hofacker, “Thermodynamically consistent phase-field models of fracture : Variational principles and multi-field FE implementations,” *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, vol. 83, n° 10, pp. 1273–1311, 2010. _eprint : <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/nme.2861>.
- [203] C. Miehe, M. Hofacker, et F. Welschinger, “A phase field model for rate-independent crack propagation : Robust algorithmic implementation based on operator splits,” *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, vol. 199, pp. 2765–2778, Nov. 2010.

-
- [204] N. Singh, C. V. Verhoosel, R. de Borst, et E. H. van Brummelen, "A fracture-controlled path-following technique for phase-field modeling of brittle fracture," *Finite Elements in Analysis and Design*, vol. 113, pp. 14–29, June 2016.
 - [205] P. E. Bernard, N. Moës, et N. Chevaugeon, "Damage growth modeling using the Thick Level Set (TLS) approach : Efficient discretization for quasi-static loadings," *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, vol. 233-236, pp. 11 – 27, 2012.
 - [206] Z. A. A. Reuss *Math. Mech.*, vol. 9, p. 49, 1929.
 - [207] K. Ammar, B. Appolaire, G. Cailletaud, et S. Forest, "Combining phase field approach and homogenization methods for modelling phase transformation in elastoplastic media," *European Journal of Computational Mechanics*, vol. 18, n° 5-6, pp. 485–523, 2009.
 - [208] A. Durga, P. Wollants, et N. Moelans, "Evaluation of interfacial excess contributions in different phase-field models for elastically inhomogeneous systems," *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, vol. 21, p. 055018, June 2013. Publisher : IOP Publishing.
 - [209] J. Mosler, O. Shchyglo, et H. Montazer Hojjat, "A novel homogenization method for phase field approaches based on partial rank-one relaxation," *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, vol. 68, pp. 251–266, Aug. 2014.
 - [210] W. Voigt, "W. lehrbuch der kristallphysik," 1928.
 - [211] Y. Wang et A. G. Khachaturyan, "Shape instability during precipitate growth in coherent solids," *Acta Metallurgica et Materialia*, vol. 43, pp. 1837–1857, May 1995.
 - [212] Y. Wang, L.-Q. Chen, et A. Khachaturyan, "Kinetics of strain-induced morphological transformation in cubic alloys with a miscibility gap," *Acta Metallurgica et Materialia*, vol. 41, n° 1, pp. 279 – 296, 1993.
 - [213] K. Ammar, B. Appolaire, S. Forest, M. Cottura, Y. L. Bouar, et A. Finel, "Modelling inheritance of plastic deformation during migration of phase boundaries using a phase field method," vol. 49, n° 11, pp. 2699–2717, 2014.
 - [214] B. Bourdin, G. A. Francfort, et J.-J. Marigo, "Numerical experiments in revisited brittle fracture," *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, vol. 48, pp. 797–826, Apr. 2000.
 - [215] C. Miehe, M. Hofacker, et F. Welschinger, "A phase field model for rate-independent crack propagation : Robust algorithmic implementation based on operator splits," *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, vol. 199, n° 45, pp. 2765 – 2778, 2010.
 - [216] G. Molnár et A. Gravouil, "2d and 3d abaqus implementation of a robust staggered phase-field solution for modeling brittle fracture," *Finite Elements in Analysis and Design*, vol. 130, pp. 27 – 38, 2017.
 - [217] J. Bleyer et R. Alessi, "Phase-field modeling of anisotropic brittle fracture including several damage mechanisms," *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, vol. 336, pp. 213–236, July 2018.
 - [218] S. Teichtmeister, D. Kienle, F. Aldakheel, et M. A. Keip, "Phase field modeling of fracture in anisotropic brittle solids," *International Journal of Non-Linear Mechanics*, vol. 97, pp. 1–21, Dec. 2017.

-
- [219] G. Molnár, A. Doitrand, R. Estevez, et A. Gravouil, “Toughness or strength? regularization in phase-field fracture explained by the coupled criterion,” *Theoretical and Applied Fracture Mechanics*, vol. 109, p. 102736, 2020.
 - [220] V. de Rancourt, K. Ammar, B. Appolaire, et S. Forest, “Homogenization of viscoplastic constitutive laws within a phase field approach,” *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, vol. 88, pp. 291 – 319, 2016.
 - [221] S. Forest, K. Ammar, B. Appolaire, V. d. Rancourt, et S. Wulfinghoff, “Generalized Continua and Phase-Field Models : Application to Crystal Plasticity,” *Mesoscale Models : From Micro-Physics to Macro-Interpretation* (S. Mesarovic, S. Forest, et H. Zbib, eds.), CISM International Centre for Mechanical Sciences, pp. 299–344, Cham : Springer International Publishing, 2019.
 - [222] S. G. Kim, W. T. Kim, et T. Suzuki, “Interfacial compositions of solid and liquid in a phase-field model with finite interface thickness for isothermal solidification in binary alloys,” *Phys. Rev. E*, vol. 58, pp. 3316–3323, Sep 1998.
 - [223] B. Echebarria, R. Folch, A. Karma, et M. Plapp, “Quantitative phase-field model of alloy solidification,” *Phys. Rev. E*, vol. 70, p. 061604, Dec 2004.
 - [224] D. Raabe, F. Roters, F. Barlat, et L. Chen, *Continuum scale simulation of engineering materials :Fundamentals microstructures process applications*. Wesley-VCH, 2004.
 - [225] T. D. Burleigh, “The Postulated Mechanisms for Stress Corrosion Cracking of Aluminum Alloys : A Review of the Literature 1980-1989,” *Corrosion*, vol. 47, pp. 89–98, Feb. 1991.
 - [226] J. Stuckert et M. S. Veshchunov, *Behaviour of Oxide Layer of Zirconium-Based Fuel Rod Cladding under Steam Starvation Conditions*. 2008.
 - [227] J. Desquines, D. Drouan, S. Guilbert, et P. Lacote, “Embrittlement of pre-hydrided Zircaloy-4 by steam oxidation under simulated LOCA transients,” *Journal of Nuclear Materials*, vol. 469, pp. 20–31, Feb. 2016.
 - [228] X. Ma, C. Toffolon-Masclet, T. Guilbert, D. Hamon, et J. C. Brachet, “Oxidation kinetics and oxygen diffusion in low-tin Zircaloy-4 up to 1523K,” *Journal of Nuclear Materials*, vol. 377, pp. 359–369, July 2008.
 - [229] S. Avril, M. Bonnet, A.-S. Bretelle, M. Grédiac, F. Hild, P. Ienny, F. Latourte, D. Lemosse, S. Pagano, E. Pagnacco, et F. Pierron, “Overview of Identification Methods of Mechanical Parameters Based on Full-field Measurements,” *Experimental Mechanics*, vol. 48, p. 381, July 2008.
 - [230] F. Mathieu, H. Leclerc, F. Hild, et S. Roux, “Estimation of Elastoplastic Parameters via Weighted FEMU and Integrated-DIC,” *Experimental Mechanics*, vol. 55, pp. 105–119, Jan. 2015.
 - [231] Y. Wang, “Gauss–Newton method,” *WIREs Computational Statistics*, vol. 4, n° 4, pp. 415–420, 2012. _eprint : <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/wics.1202>.
 - [232] T. Jailin, N. TARDIF, J. Desquines, M. Coret, M.-C. Baietto, P. Chaudet, et V. Georgenthum, “Identification de lois de fluage par FEMU sur une ROI sans bord libre,” *14ème Colloque National en Calcul des Structures CSMA 2019*, (Presqu’île de Giens, France), May 2019.

-
- [233] E. M. T. Hendrix et B. G.-Tóth, *Introduction to Nonlinear and Global Optimization*. Springer, Apr. 2010. Google-Books-ID : jK65BQAAQBAJ.
 - [234] L. Belovsky, “Development of the diffox code for Zircaloy oxidation under loca conditions task 2 : Transient oxidation by diffox 1.1,” rapport, ALIAS CZ, BELL 28, Rev.0, June 2007.
 - [235] N. Tardif, M. Coret, et A. Combescure, “Experimental study of the fracture kinetics of a tubular 16MnNiMo5 steel specimen under biaxial loading at 900 and 1000°C. Application to the rupture of a vessel bottom head during a core meltdown accident in a pressurized water reactor,” *Nuclear Engineering and Design*, vol. 241, n° 3, pp. 755–766, 2011.
 - [236] D. Campello, N. Tardif, J. Desquines, M. C. Baietto, M. Coret, A. Maynadier, et P. Chaudet, “Validation of a multimodal set-up for the study of zirconium alloys claddings’ behaviour under simulated LOCA conditions,” *Strain*, vol. 54, n° 5, pp. 1–14, 2018.
 - [237] T. Jailin, N. Tardif, J. Desquines, M. Coret, M.-C. Baietto, T. Breville, P. Chaudet, et V. Georgenthum, “Coupled NIRT / 3D-DIC for a FEMU Identification of the Thermo-Mechanical Behavior of Zr-4 Claddings Under Simulated Reactivity Initiated Accident,” *Residual Stress, Thermomechanics & Infrared Imaging and Inverse Problems*, vol. 6, pp. 41–47, 2020.
 - [238] T. Jailin, N. Tardif, J. Desquines, P. Chaudet, M. Coret, et M.-C. Baietto, “Thermo-mechanical behavior of Zircaloy-4 claddings under simulated post-DNB conditions,” *Journal of Nuclear Materials*, vol. 531, 2020. n°151984.
 - [239] J. Réthoré, “UFreckles v2,” 2018, doi : 10.5281/zenodo.1433776.
 - [240] T. Jailin, N. Tardif, P. Chaudet, J. Desquines, M. Coret, M.-C. Baietto, et V. Georgenthum, “Measuring both thermal and kinematic full-fields using a single cmos camera during high temperature tests,” *Optics and Lasers in Engineering*, submitted.
 - [241] D. Campello, N. Tardif, J. Desquines, M.-C. Baietto, M. Coret, A. Maynadier, et P. Chaudet, “Validation of a multimodal set-up for the study of zirconium alloys claddings’ behaviour under simulated LOCA conditions,” *Strain*, vol. 54, n° 5, p. e12279, 2018. _eprint : <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1111/str.12279>.
 - [242] E. Maire, T. Morgeneyer, C. Landron, J. Adrien, et L. Helfen, “Bulk evaluation of ductile damage development using high resolution tomography and laminography,” *Comptes Rendus Physique*, vol. 13, pp. 328–336, Apr. 2012.
 - [243] L. Helfen, A. Myagotin, P. Mikulík, P. Pernot, A. Voropaev, M. Elyyan, M. Di Michiel, J. Baruchel, et T. Baumbach, “On the implementation of computed laminography using synchrotron radiation,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 82, p. 063702, June 2011. Publisher : American Institute of Physics.
 - [244] D. G. E. Robertson et J. J. Dowling, “Design and responses of Butterworth and critically damped digital filters,” *Journal of Electromyography and Kinesiology*, vol. 13, pp. 569–573, Dec. 2003.
-

-
- [245] C. Cui, R. Ma, et E. Martínez-Pañeda, "A phase field formulation for dissolution-driven stress corrosion cracking," *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, vol. 147, p. 104254, Feb. 2021.
 - [246] Z. Lu, T. Shoji, Y. Takeda, Y. Ito, A. Kai, et S. Yamazaki, "Transient and steady state crack growth kinetics for stress corrosion cracking of a cold worked 316L stainless steel in oxygenated pure water at different temperatures," *Corrosion Science*, vol. 50, pp. 561–575, Feb. 2008.
 - [247] B.-A. Chetroui, *Corrosion sous contrainte de l'alliage 600 en milieu primaire des REP : étude de la diffusion du chrome*. phdthesis, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, Jan. 2015.
 - [248] J. Nguejio Nguimatsia, *Processus diffusionnels à l'origine de l'évolution de la composition d'un alliage au cours de l'oxydation sélective en pointe de fissures intergranulaires. Application à la CSC de l'Alliage 600 en milieu primaire des REP*. These de doctorat, Paris Sciences et Lettres (ComUE), Dec. 2016.
 - [249] H. Eldahshan, P.-O. Bouchard, J. Alves, E. Perchat, et D. P. Munoz, "Phase field modeling of ductile fracture at large plastic strains using adaptive isotropic remeshing," *Computational Mechanics*, vol. 67, pp. 763–783, Mar. 2021.
 - [250] P. Verleysen et J. Peirs, "Quasi-static and high strain rate fracture behaviour of Ti6Al4V," *International Journal of Impact Engineering*, vol. 108, pp. 370–388, Oct. 2017.
 - [251] Z. P. Bažant, "Size Effect in Blunt Fracture : Concrete, Rock, Metal," *Journal of Engineering Mechanics*, vol. 110, pp. 518–535, Apr. 1984. Publisher : American Society of Civil Engineers.
 - [252] B. Panicaud, J. L. Grosseau-Poussard, et J. F. Dinhut, "On the growth strain origin and stress evolution prediction during oxidation of metals," *Applied Surface Science*, vol. 252, pp. 5700–5713, June 2006.
 - [253] J. Godlewski, P. Bouvier, G. Lucazeau, et L. Fayette, "Stress Distribution Measured by Raman Spectroscopy in Zirconia Films Formed by Oxidation of Zr-Based Alloys," *Zirconium in the Nuclear Industry : Twelfth International Symposium* (G. Sabol et G. Moan, eds.), pp. 877–900, West Conshohocken, PA : ASTM International, Jan. 2000.
 - [254] D. Alloyeau, G. Prévot, Y. Le Bouar, T. Oikawa, C. Langlois, A. Loiseau, et C. Ricolleau, "Ostwald Ripening in Nanoalloys : When Thermodynamics Drives a Size-Dependent Particle Composition," *Physical Review Letters*, vol. 105, p. 255901, Dec. 2010. Publisher : American Physical Society.
 - [255] A. Kabalnov, "Ostwald Ripening and Related Phenomena," *Journal of Dispersion Science and Technology*, vol. 22, pp. 1–12, Feb. 2001. Publisher : Taylor & Francis
_eprint : <https://doi.org/10.1081/DIS-100102675>.