

**Université de Limoges**

**ED 609 : SIMME (Sciences et Ingénierie des Matériaux, Mécanique, Energétique)**

**IRCER – CEA/DEC**

Thèse pour obtenir le grade de  
**Docteur de l'Université de Limoges**  
Matériaux céramiques et traitements de surface

Présentée et soutenue par  
**PARISE Jean-Baptiste**

Le 18 juin 2021

**Etude des mécanismes de déformation viscoplastiques du dioxyde d'uranium polycristallin au voisinage de la stœchiométrie : influence de l'activité d'oxygène et de la microstructure**

Thèse dirigée par Guy Antou

**JURY :**

**Présidente**

Mme. Marie-France Barthe, Directrice de Recherche CNRS, Laboratoire CEMHTI

**Rapporteurs**

M. Jean-Marc Chaix, Directeur de Recherche CNRS, Laboratoire SIMaP

M. Sylvain Meille, Professeur, INSA Lyon, Laboratoire MATEIS

**Examineurs**

M. Philippe Garcia, Ingénieur de Recherche, CEA, Centre de Cadarache (DES/DEC)

M. Thomas Helfer, Ingénieur de Recherche, CEA, Centre de Cadarache (DES/DEC)

M. Guy Antou, Maître de Conférences (HDR), Université de Limoges, Laboratoire IRCER

« *We don't make mistakes – we just have happy accidents* »

**Bob Ross**

## Remerciements

*Je tiens tout d'abord à remercier mon directeur de thèse, M. Guy Antou, pour ses conseils bienveillants ainsi que pour sa supervision globale du projet. Je remercie également M. Jean-Marc Chaix et M. Sylvain Meille qui ont accepté d'évaluer ce travail. Enfin, je remercie sincèrement Mme. Marie-France Barthe, avec qui j'ai eu la chance de collaborer, pour sa participation au Jury de soutenance. Merci à vous tous pour vos remarques constructives et intéressantes.*

*Par la suite, j'adresse mes plus sincères remerciements à mes encadrants, Philippe Garcia et Thomas Helfer, qui ont permis à ce projet d'aboutir. Travailler à vos côtés pendant ces années aura été l'expérience la plus enrichissante que j'ai pu vivre à ce jour. Votre rigueur et votre maîtrise du sujet m'auront toujours impressionné et j'espère un jour atteindre un tel niveau. Merci à vous d'avoir cru en moi du début à la fin.*

*Je remercie chaleureusement Audrey Miard pour m'avoir ouvert les portes du Laboratoire. J'ai appris, avec grand plaisir, à maîtriser ses dispositifs d'essai avec toi. Je te dois la majeure partie des résultats présentés dans ce manuscrit.*

*Je tiens à remercier également toutes les personnes qui ont contribué à ce projet, de près comme de loin. Tout d'abord merci aux nombreux collaborateurs du Laboratoire UO<sub>2</sub>, Doris, Nicolas, Florent, Justine, Sid, Olivier, Andréa, Josselin, Claire et Xavière pour leur aide au quotidien. Merci aussi à tous les collaborateurs du Cemhti, Pierre, Thierry, Paul, Bertrand et tous les autres, avec qui j'ai eu la chance de mettre en place une belle expérience. Ce fut une réelle opportunité de travailler avec vous tous.*

*Une petite pensée va à mes camarades thésards Antoine et Elodie, avec nos petites galères du quotidien et nos bien chouettes week-ends... Je pense aussi à mes proches amis, Bastien, Loïc, Péhâ, Banana, Loris, et tant d'autres, qui ont toujours été là pour moi, même lors des moments les plus difficiles.*

*Enfin merci à Clarisse pour son soutien moral indéfectible pendant ces années.*

# Table des matières

Table des matières.....	4
Table des Figures.....	7
Table des Tableaux.....	16
Introduction .....	17
<b>Chapitre 1 : Etude du fluage dans les métaux et les céramiques .....</b>	<b>19</b>
I.1. Introduction .....	19
I.2. Comportement en fluage des matériaux .....	20
I.3. Micro-mécanismes de fluage dans les métaux et céramiques.....	21
I.3.1. Carte de fluage.....	22
I.3.2. Fluage diffusion .....	23
I.3.3. Fluage dislocation.....	27
I.4. Spécificités des oxydes.....	28
I.4.1. Conséquence de l'existence de plusieurs sous-réseaux.....	28
I.4.2. Rôle de la non-stœchiométrie, effets directs et indirects.....	31
I.4.3. Mécanismes de déformation macroscopiques et manifestations microstructurales .....	33
I.5. Synthèse.....	35
<b>Chapitre 2 : Structure, propriétés physiques et comportement viscoplastique du dioxyde d'uranium .....</b>	<b>37</b>
II.1. Introduction .....	37
II.2. Diagramme de phase et défauts ponctuels dans $UO_{2+x}$ .....	37
II.2.1. Structure et non-stœchiométrie de l'oxyde .....	37
II.2.2. Equilibre entre l'oxyde et son environnement .....	39
II.2.3. Défauts ponctuels dans $UO_{2+x}$ .....	40
II.2.4. Conclusion.....	42
II.3. Propriétés d'autodiffusion dans $UO_{2+x}$ .....	43
II.3.1. Autodiffusion de l'oxygène.....	44
II.3.2. Autodiffusion de l'uranium .....	46
II.3.3. Conclusion sur les phénomènes de diffusion.....	48
II.4. Comportement viscoplastique du dioxyde d'uranium .....	48
II.4.1. Etude de la réponse macroscopique .....	49
II.4.2. Simulation de la réponse viscoplastique du matériau .....	60
II.4.3. Identification des mécanismes de déformation à partir de l'examen des microstructures.....	62
II.5. Conclusion et positionnement de cette étude.....	72
<b>Chapitre 3 : Dispositifs expérimentaux.....</b>	<b>75</b>
III.1. Introduction .....	75
III.2. Description des dispositifs d'essais thermomécaniques .....	75
III.2.1. Presses et fours .....	75
III.2.2. Maîtrise de l'atmosphère .....	80
III.2.3. Conclusions concernant les dispositifs d'essais.....	84
III.3. Analyse des essais de compression et de flexion .....	84
III.3.1. L'essai de compression .....	84
III.3.2. L'essai de flexion.....	87

III.4. Mise en œuvre et maîtrise d'un essai mécanique .....	93
III.4.1. Caractérisation de l'échantillon et mise en place .....	93
III.4.2. Etablissement de l'atmosphère et montée en température .....	95
III.4.3. Réalisation de l'essai mécanique.....	96
III.4.4. Influence de l'eau de refroidissement du dispositif sur le déroulement des essais .....	98
III.5. Conclusion .....	101
<b>Chapitre 4 : Simulations éléments-finis du comportement en fluage : modèles de compression et de flexion .....</b>	<b>103</b>
IV.1. Introduction.....	103
IV.2. Hypothèses de modélisation.....	103
IV.2.1. Théorie des grandes transformations .....	103
IV.2.2. Mise en œuvre .....	107
IV.2.3. Conclusion .....	108
IV.3. Application aux essais .....	109
IV.3.1. Essais de compression .....	109
IV.3.2. Essais de flexion .....	118
IV.4. Conclusion.....	132
<b>Chapitre 5 : Etude en compression du comportement viscoplastique de l'UO<sub>2+x</sub> à haute température .....</b>	<b>133</b>
V.1. Introduction.....	133
V.2. Echantillons et microstructures .....	133
V.2.1. Lot de pastilles élaboré par frittage naturel (lot A) .....	133
V.2.2. Lot de pastilles courtes élaboré par frittage SPS (lot B) .....	134
V.2.3. Synthèse.....	140
V.3. Campagne expérimentale et résultats .....	141
V.3.1. Gamme de sollicitations .....	141
V.3.2. Validation de la démarche.....	143
V.3.3. Résultats des essais et premières interprétations .....	145
V.3.4. Conclusions relatives à l'ensemble des essais de compression réalisés.....	154
V.4. Examens microstructuraux de pastilles déformées en compression .....	154
V.4.1. Lot A .....	154
V.4.2. Lot B .....	170
V.4.3. Synthèse des examens microstructuraux.....	182
V.5. Discussion des résultats à la lumière de la simulation numérique.....	183
V.5.1. Comportement en fluage du dioxyde d'uranium à haute température.....	183
V.5.2. Comportement en fluage du dioxyde d'uranium à faible température .....	186
V.5.3. Comportement en fluage d'une pastille courte .....	187
V.6. Conclusion.....	190
<b>Chapitre 6 : Etude en flexion du comportement viscoplastique de l'UO<sub>2+x</sub> à haute température .....</b>	<b>192</b>
VI.1. Introduction.....	192
VI.2. Description du matériau d'étude .....	192
VI.2.1. Elaboration des éprouvettes de flexion.....	192
VI.2.2. Microstructure du lot.....	192
VI.3. Campagne expérimentale et résultats .....	196
VI.3.1. Conditions d'essais .....	196

VI.3.2. Résultats des essais et premières interprétations .....	197
VI.3.3. Conclusions .....	205
VI.4. Examens microstructuraux post-essai .....	206
VI.4.1. Eprouvettes déformées à l'issue d'essais de flexion 3-points .....	206
VI.4.2. Eprouvettes déformées en flexion 4-points.....	217
VI.5. Synthèse des résultats obtenus en flexion.....	222
VI.5.1. Evolution des courbes de charge et intérêt du calcul.....	222
VI.5.2. Dissymétrie traction-compression .....	224
VI.5.3. Relations entre les différentes mesures de la déformation .....	225
VI.5.4. Influences de la contrainte et de la pression partielle d'oxygène .....	226
VI.6. Synthèse .....	227
<b>Chapitre 7 : Mécanismes d'endommagement et de restauration – Discussion</b> .....	229
VII.1. Introduction.....	229
VII.2. En quoi les lois phénoménologiques en régime stationnaire sont-elles significatives des mécanismes de déformation ou de restauration ? .....	229
VII.2.1. Dispersion des résultats expérimentaux relatifs aux vitesses de déformation stationnaires.....	229
VII.2.2. Exposant de la contrainte dans la loi de comportement phénoménologique....	232
VII.2.3. Dépendance à la pression d'oxygène et à la température .....	234
VII.3. Etude en compression d'un échantillon monocristallin .....	236
VII.4. Synthèse : déformations macroscopiques et observations microstructurales.....	242
<b>Chapitre 8 : Effets d'une irradiation aux ions sur le comportement du dioxyde d'uranium en traction</b> .....	246
VIII.1. Introduction.....	246
VIII.2. Fluage sous irradiation du dioxyde d'uranium .....	247
VIII.2.1. Fluage sous irradiation .....	247
VIII.2.2. Choix d'un irradiateur, dimensionnement de l'expérience.....	248
VIII.2.3. Synthèse .....	252
VIII.3. Dispositif expérimental et préparation des éprouvettes.....	252
VIII.3.1. Préparation des éprouvettes et montage dans leur porte-échantillon .....	252
VIII.3.2. Dispositif d'essai mécanique sous irradiation .....	254
VIII.4. Déroulement des expériences, résultats et discussion.....	256
VIII.4.1. Déroulement des expériences.....	256
VIII.4.2. Résultats et discussion.....	257
VIII.5. Conclusion et perspectives .....	263
<b>Conclusion générale et perspectives</b> .....	265
<b>Références bibliographiques</b> .....	271
<b>Annexe 1</b> - Tableau récapitulatif des études du comportement en fluage du dioxyde d'uranium - liste non exhaustive. C : Compression ; F : Flexion ; X : données non renseignées ; Séparateur / : résultats pour fluage-diffusion et fluage-dislocation.....	281
<b>Annexe 2</b> – Mesure et étalonnage de la température des dispositifs d'essais.....	283

# Table des Figures

Figure I-1. Evolution de la déformation au cours du temps lors d'un essai de fluage classique (à contrainte constante).....	20
Figure I-2. Evolution de la contrainte au cours du temps lors d'un essai à vitesse de traverse constante.....	21
Figure I-3. Carte d'Ashby typique. ....	22
Figure I-4. Représentation du mécanisme de fluage-diffusion de Nabarro-Herring, à l'échelle d'un grain. ....	23
Figure I-5 . Modèle de Coble : description schématique du mécanisme de fluage-diffusion faisant intervenir les joints de grains.....	24
Figure I-6. Illustration du mécanisme couplé de déformation par glissement aux joints de grains et diffusion. ....	25
Figure I-7. Illustration du mécanisme décrit par Ashby et Verrall, qui permet de modéliser la superplasticité. ....	26
Figure II-1. Maille cristallographique du dioxyde d'uranium.....	37
Figure II-2. Diagramme de phase U-O. [Higgs et al. 2007].....	38
Figure II-3. Dépendance de l'écart à la stœchiométrie à la pression partielle d'oxygène et à la température pour l' $UO_{2+x}$ sur-stœchiométrique. [Perron 1968].....	39
Figure II-4. Concentration en défauts calculée à 1300°C. [Garcia et al. 2017] .....	42
Figure II-5. Diagramme d'Arrhénius du coefficient de diffusion de l'oxygène dans le dioxyde d'uranium (cercles et carrés jaunes : échantillons contenant différentes teneurs en impuretés ; ronds rouges : échantillons dopés-Cr). (Dorado, Garcia, Carlot, & Davoisne, 2011).....	45
Figure II-6. Comparaison des coefficients de diffusion en volume (a) et le long des joints de grains (b) du cation dans le Dioxyde d'Uranium, d'après les données de la littérature. La courbe rouge correspond à la référence pour $x=0$ . [Knorr 1989]. ....	47
Figure II-7. Comparaison des vitesses de fluage obtenues pour différents niveaux de contrainte et différentes températures. [Seltzer et al. 1971] .....	51
Figure II-8. Superposition de courbes de compression du dioxyde d'uranium à 1600°C, pour des vitesses de traverse différentes. [Guérin 1974].....	52
Figure II-9. Energies d'activation obtenues par essais de fluage sur du dioxyde d'uranium stœchiométrique. [Hough 1988] 53	
Figure II-10. Courbes de compression, réalisées à une même vitesse de traverse et différentes températures. [Guérin 1974] .....	54
Figure II-11. a) Représentation de l'influence de la taille de grains sur la vitesse de fluage pour des essais de flexion (1400°C - 34 MPa - Armstrong 1962). b) Même représentation pour des essais de compression (1600°C - 7MPa - Bohaboy 1969) .....	55
Figure II-12. Mise en évidence d'un changement de l'influence de la taille de grains. [Chung et Davies, 1979] .....	56
Figure II-13. Variation de la vitesse de fluage stationnaire du combustible en fonction de la taille de grains, à 1463°C et pour différentes contraintes. [Vivant-Duguay 1998] .....	57
Figure II-14. Mise en évidence d'un effet de l'écart à la stœchiométrie sur la réponse en fluage de l' $UO_{2+x}$ . a) par des essais à charges constantes (Armstrong 1972) ; b) par des essais à vitesses de traverse imposées (Nadeau 1969).....	58
Figure II-15. Micrographie électronique à balayage d'un échantillon déformé à 15% en fluage-diffusion à 25 MPa, à 1465°C [Dherbey 2002]. ....	63
Figure II-16. Microstructure d'un échantillon d' $UO_{2+x}$ aux grains fins (2 $\mu$ m) déformé à 68% à 1350%. (Chung and Davies, 1979b) .....	64
Figure II-17. Observation de la microstructure d'un échantillon déformé à 8,7% en fluage-compression sous 50 MPa à 1465°C - après attaque chimique. [Dherbey 2000] .....	69
Figure II-18. Carte d'indice de qualité et de désorientations relatives sur $UO_{2+x}$ déformé à 20 $\mu$ m.min <sup>-1</sup> . [Thèse M. Ben Saada 2017].....	70
Figure II-19. Observation en A-ECCI d'un sous-joint de grain dans l' $UO_{2+x}$ . [Mansour et al. 2019].....	71
Figure III-1. Dispositif d'essai thermomécanique de compression - Thèse Salvo 2014, inspiré de Thèse Vivant-Duguay 1998. ....	76
Figure III-2. Eléments chauffants : demi-coque et maillage en Tungstène.....	77

Figure III-3. Vue schématique de l'échantillon indiquant la position des deux tiges extensométriques qui permettent la mesure de la flèche maximale et de la flèche imposée (Palpeurs représentés en violet).....	78
Figure III-4. Capteurs de déplacement (type LVDT), déportés en zone froide. ....	78
Figure III-5. Machine d'essai thermomécanique « MECAFLEX » en configuration flexion 3-points. ....	79
Figure III-6. Schéma de principe d'une sonde électrolytique. ....	80
Figure III-7. Principe de fonctionnement d'une pompe à oxygène. ....	81
Figure III-8. Dépendance de l'équilibre W/WO <sub>2</sub> en fonction de la température et de la pression partielle d'oxygène (courbe rouge). En bleu et vert sont représentés l'équilibre H/H <sub>2</sub> O pour différents rapports pH <sub>2</sub> O/pH <sub>2</sub> . ....	83
Figure III-9. Comparaison entre une éprouvette de traction (à gauche) et une de compression (à droite) de géométrie équivalente.....	84
Figure III-10. Visualisation de la mise en tonneau d'un échantillon lors d'un essai de compression. ....	85
Figure III-11. Schéma analytique d'une poutre en flexion 3-points.....	88
Figure III-12. Evolution de la contrainte normale ( $\sigma_{xx}$ ) au point médian, dans l'épaisseur du barreau.....	89
Figure III-13. Répartition de la contrainte normale dans un barreau parallélépipédique en flexion 3-points dans le cadre de la théorie des poutres. Cas arbitraire où la contrainte maximale vaut 100 MPa. ....	89
Figure III-14. Schéma d'une poutre en flexion 4-points. ....	90
Figure III-15. Contrainte normale stationnaire dans l'épaisseur du barreau dans le cas d'un comportement de type Norton pour différentes valeurs de $n$ . $k$ fixé pour avoir une contrainte maximale de 100 MPa dans le cas où $n = 1$ ( $k = 770$ MPa/m). ....	92
Figure III-16. Illustration d'une éprouvette de flexion. Représentation de ses dimensions caractéristiques.....	93
Figure III-17. Support inférieur du dispositif de flexion 3-points. A gauche mise en évidence des orifices pour la mesure de la flèche imposée et la flèche maximale. A droite avec la cale étalon utilisée pour le positionnement des barreaux. ....	94
Figure III-18. Illustration d'une pastille de compression - Représentation de ses dimensions caractéristiques. ....	95
Figure III-19. Evolution de la pression partielle d'oxygène lors de la préparation d'un essai. ( $pO_2$ visée : $1.10^{-24}$ atm.).....	96
Figure III-20. Résultats bruts d'un essai à vitesse de traverse constante (DVC) en flexion 3-points sur UO <sub>2+x</sub> . Bleu : charge appliquée (N) – Vert : flèche imposée (mm). ....	97
Figure III-21. Résultats bruts d'un essai à vitesse de traverse constante (DVC) en flexion 4-points sur UO <sub>2+x</sub> . Bleu : charge appliquée (N) – Vert continu : Flèche imposée (mm) - Vert pointillé : flèche maximale (mm). ....	97
Figure III-22. Résultats bruts d'un essai à vitesse de traverse constante (DVC) en compression sur UO <sub>2+x</sub> . Bleu : charge appliquée (N) - Vert : déplacement imposé (mm). ....	98
Figure III-23. Evolutions dans le temps de la température de l'eau réfrigérée et du déplacement de la colonne.....	99
Figure III-24a : Evolution de la contrainte lors d'un essai de compression caractérisé par l'application de trois vitesses de déplacement de traverse successives, à 1520°C et $pO_2 = 5.10^{-26}$ atm. – 24b : évolution de la température de l'eau réfrigérée en entrée et en sortie de dispositif. Les échelles d'abscisses sont identiques sur les deux figures. ....	100
Figure III-25a. Evolution de la contrainte lors d'un essai de compression caractérisé par l'application de trois vitesses de déplacement de traverse successives, à 1320°C et $pO_2 = 5.10^{-26}$ atm. – 25b : évolution de la température de l'eau réfrigérée en entrée et en sortie de dispositif. Les échelles d'abscisses sont identiques sur les deux figures. ....	101
Figure IV-1. a) Rapport entre le volume défini en HPP et le volume réel. b) Rapport entre la vitesse de déformation définie en HPP et la vitesse de déformation définie en GD. Dans le cadre d'un essai de compression à vitesse de déformation constante de 50 $\mu\text{m}/\text{min}$ . HPP : hypothèses des petites perturbations et GD : grandes déformations.....	105
Figure IV-2. Comparaison de l'évolution de la déformation linéaire et de la déformation logarithmique. Avec $\alpha = 50 \mu\text{m}/\text{min}$ et $h_0 = 16 \text{ mm}$ . ....	107
Figure IV-3. Comparaison de l'évolution de la contrainte de Von Mises déduite de l'expérience (courbe bleue) à la contrainte déterminée par la simulation (courbe orange) sous l'hypothèse d'un essai uniaxial. La courbe verte représente la variation de la hauteur de la pastille au cours de l'essai, imposée comme chargement dans le calcul. ....	111
Figure IV-4. Comparaison entre l'évolution de la charge expérimentale (bleu), de la charge déduite du calcul 1D (orange) et de la charge résultante du calcul 2D (brun). La courbe verte représente l'évolution du déplacement imposé.....	113



Figure IV-5. Distribution de la contrainte équivalente de Von Mises (en Pa) dans la pastille en condition d'ancrage unilatéral. ....	114
Figure IV-6. Comparaison de l'évolution axiale du rayon externe d'une pastille simulée et mesurée à l'issue d'un essai de compression. Le calcul 2D est réalisé sous une hypothèse d'ancrage unilatéral. ....	115
Figure IV-7. Courbes de charge obtenues par simulation 2D pour des pastilles d'élancements différents et comparaison à la mesure pour un élancement voisin de 2. (2 : Orange ; 1 : Rouge ; 0,5 : Brun) .....	116
Figure IV-8. Evolution de l'écart entre les charges stationnaires issues des calculs 1D et 2D en fonction de l'élancement des échantillons. ....	116
Figure IV-9. Distribution des contraintes équivalentes de Von Mises pour un élancement de 1 (a) et de 0,5 (b) avec des vitesses de déformation linéaires identiques. ....	117
Figure IV-10. Evolution de la contrainte axiale en fonction de la position radiale (bleu à l'interface encastrée ; rouge sur le plan médian), a. Demi-pastille E = 1 ; b. Pastille courte E = 0,5. ....	117
Figure IV-11. Comparaison entre l'évolution de la charge expérimentale lors d'un essai de flexion 3-points (courbe bleue) et de la charge obtenue par la simulation (courbe orange). La flèche imposée et mesurée au cours de l'essai est représentée en vert. ....	120
Figure IV-12. Mise en évidence de l'influence des paramètres du fluage primaire sur la charge numérique, a. Effet de C ; b. Effet de D. ....	121
Figure IV-13. Mise en évidence de l'influence potentielle de la rigidité du dispositif au regard de celui de l'échantillon. E = 50 GPa. a) K = 168 MPa ; b) K = 178 MPa. ....	121
Figure IV-14. Contrainte de Von Mises dans la demi-éprouvette dans le cas d'un essai de flexion 3-points. Segment vert : ligne médiane / segment rouge : ligne supérieure. ....	122
Figure IV-15. Evolution des composantes du tenseur de contrainte (a) et du tenseur de déformation (b) le long du segment vertical d'abscisse nulle. Cas de la Flexion 3-points .....	123
Figure IV-16. Evolution des composantes du tenseur de contraintes (a) et du tenseur de déformations (b) le long du segment rouge d'ordonnée +e/2. ....	123
Figure IV-17. Evolution de la contrainte normale dans l'épaisseur en flexion 3-points. Points orange : résultat du calcul 2D ; points violet : résultat de la résolution semi-analytique. ....	124
Figure IV-18. Comparaison des charges expérimentale et calculée avec un modèle 2D lors d'un essai de flexion 4-points. La flèche imposée au cours de l'essai est représentée en vert. ....	125
Figure IV-19. Evolution de la contrainte normale maximale ( $\sigma_{xx}$ ) de compression (prise sur l'extrémité supérieure de la ligne médiane).....	126
Figure IV-20. Comparaison entre la flèche maximale expérimentale (courbe bleue) et celle obtenue par la simulation numérique (courbe orange). ....	127
Figure IV-21. Comparaison des charges expérimentale et calculée avec un modèle 2D et un modèle 3D lors d'un essai de flexion 4-points. La flèche imposée au cours de l'essai est représentée en vert. ....	128
Figure IV-22. Contrainte de Von Mises dans l'éprouvette dans le cas d'un essai de flexion 4-points. Segment vert : plan central / segment rouge : ligne supérieure. ....	129
Figure IV-23. Evolution des composantes du tenseur de contraintes (a) et du tenseur de déformations (b) le long du segment vertical d'abscisse nulle .....	129
Figure IV-24. Evolution des composantes du tenseur de contraintes (a) et du tenseur de déformations (b) le long du segment rouge d'ordonnée +e/2. ....	130
Figure IV-25. Evolution de la contrainte normale dans l'épaisseur en flexion 4-points. Courbe Orange : résultat du calcul 2D ; courbe violette : résultat de la résolution analytique. ....	131
Figure V-1. Histogramme de distribution de taille de grains du lot A - (données thèse Ben Saada, 2017) .....	134
Figure V-2. Pastille de dioxyde d'uranium du lot B. a) vue latérale ; b) vue de dessus.....	135
Figure V-3. Images optiques de la microstructure du lot B après attaque chimique. ....	136
Figure V-4. Carte EBSD d'indice de qualité de diffraction (en niveau de gris) sur laquelle les joints de grains de désorientation supérieure à 5° sont matérialisés par des lignes noires. ....	137
Figure V-5. Histogramme de distribution en nombre en fonction de la taille de grains (DCE) pour un échantillon du lot B. ....	138

Figure V-6. Fraction volumique cumulée des grains en fonction de leur taille en DCE pour les lots A et B. Médiane : $d_{50-A} = 17\mu\text{m}$ ; $d_{50-B} = 5\mu\text{m}$ . .....	138
Figure V-7. Micrographie électronique (MEB, mode : BSE) acquise sur l'échantillon de référence du lot B. Mise en évidence de régions avec une distribution hétérogène de taille de grains. ....	139
Figure V-8. . Micrographie électronique (MEB, mode : BSE) acquise sur l'échantillon de référence du lot B. Mise en évidence d'une distribution hétérogène de taille de grains sur les bords supérieurs et latéraux. La zone à grains plus grossiers située sur la droite du cliché s'étend verticalement sur environ $150\mu\text{m}$ et horizontalement sur environ $100\mu\text{m}$ . ....	140
Figure V-9. Micrographie électronique (MEB, mode : BSE) acquise sur l'échantillon de référence du lot B, révélant la présence d'une phase aciculaire (représentée en rouge) au sein des grains d'UO <sub>2</sub> . ....	140
Figure V-10. Evolution de la contrainte d'écoulement et de la variation de la hauteur de la pastille pour un essai réalisé à $1500^\circ\text{C}$ à vitesse de traverse unique (courbes rouges – essai non référencé) et pour un essai au cours duquel la vitesse de traverse est modifiée (courbes bleues – A1). ....	144
Figure V-11. Evolution de la charge et du déplacement a – échantillon A1 (élanement de 2) ; b – échantillon A2 (élanement de 0,6), [T = $1520^\circ\text{C}$ , $p\text{O}_2 = 1,8.10^{-12}\text{atm}$ ]. ....	145
Figure V-12. Evolution de la charge en fonction de l'allongement relatif à T= $1520^\circ\text{C}$ et $p\text{O}_2 = 1,8.10^{-12}\text{atm}$ . sur deux pastilles d'élanement différent ; A1 longue - E = 2 ; A2 courte - E =0,6.....	145
Figure V-13. Comparaison de l'évolution au cours du temps des contraintes de Cauchy et de Piola-Kirchhoff. (Echantillon A4 – T = $1520^\circ\text{C}$ – $p\text{O}_2 = 6,7.10^{-11}\text{atm}$ .) .....	146
Figure V-14. Evolution de la contrainte et du déplacement en fonction du temps. (Echantillon A11 – T = $1620^\circ\text{C}$ – $p\text{O}_2 = 1,9.10^{-10}\text{atm}$ ) .....	147
Figure V-15. Evolution de la contrainte et du déplacement en fonction du temps. (Echantillon A6 – T = $1320^\circ\text{C}$ – $p\text{O}_2 = 3,1.10^{-14}\text{atm}$ .) .....	147
Figure V-16. Contrainte d'écoulement en fonction de la pression partielle d'oxygène à $1520^\circ\text{C}$ et pour une vitesse de déformation de $2.10^{-5}\text{s}^{-1}$ (rouge) et $5.10^{-5}\text{s}^{-1}$ (vert). ....	148
Figure V-17. Estimation de l'exposant de la contrainte à partir de l'équation (5.2) avec les points expérimentaux de tous les essais réalisés à $1520^\circ\text{C}$ et avec $an = 0,036$ . ....	149
Figure V-18. Estimation de l'énergie d'activation du fluage à partir d'essais réalisés à $1520^\circ\text{C}$ (bleu) et $1620^\circ\text{C}$ (rouge). ....	150
Figure V-19. Courbe de charge pour un essai de compression à vitesse de traverse imposée de $11\mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$ , à $1320^\circ\text{C}$ . (Echantillon B2) .....	151
Figure V-20. Comparaison de l'évolution de la contrainte de Cauchy en fonction de l'allongement relatif des échantillons B2 et A8, à une température ( $1320^\circ\text{C}$ ), une vitesse de déformation ( $5.10^{-5}\text{s}^{-1}$ ) et une pression partielle d'oxygène équivalentes ( $2,2.10^{-13}\text{atm}$ ). ....	152
Figure V-21. Evolution de la contrainte de Cauchy en fonction de l'allongement relatif lors d'essais de compression réalisés sur des échantillons du lot B, à des pressions d'oxygène différentes et à des température et vitesse de traverse identiques. ....	153
Figure V-22. Evolution de la contrainte de Cauchy en fonction de l'allongement relatif lors d'essais de compression réalisés sur des échantillons du lot B, à des vitesses de traverse différentes et à mêmes température et pression d'oxygène. ....	153
Figure V-23. Photographie de pastilles du lot A avant essai (à gauche) et après un essai de compression (à droite). ....	155
Figure V-24. Montage de plusieurs images optiques couvrant l'intégralité de la coupe axiale d'une pastille de fort élanement déformée en compression (A4 – T = $1520^\circ\text{C}$ – $p\text{O}_2 = 6,7.10^{-11}\text{atm}$ - 19%), avec mise en évidence de zones caractérisées par une forte porosité. ....	156
Figure V-25. Montage constitué de plusieurs images optiques couvrant l'intégralité de la coupe axiale d'une pastille de faible élanement déformée en compression (A8 – T = $1320^\circ\text{C}$ – $p\text{O}_2 = 2,2.10^{-13}\text{atm}$ - 16%), avec mise en évidence de zones caractérisées par la présence de fissures. ....	156
Figure V-26. Représentation schématique des zones d'intérêt pour l'observation dans une pastille déformée. Voir le texte pour les descriptions. ....	157
Figure V-27. Micrographies électronique (MEB, mode : BSE) acquises à plusieurs grossissements sur la pastille A4, testée en compression à une déformation axiale d'environ 19%. La zone observée se situe à l'intérieur de la région I (telle que définie sur la Figure V-26) et présente de nombreuses décohésions intergranulaires. ....	158
Figure V-28. Micrographie électronique (MEB, mode : BSE) acquise dans la région II, sur la pastille A4 testée en compression à une déformation axiale d'environ 19%. ....	159

Figure V-29. Micrographie électronique (MEB, mode : BSE) acquise dans la région III sur la pastille A4 testée en compression à une déformation axiale d'environ 19%.	159
Figure V-30. Montage de micrographies électroniques (MEB, mode : SE), d'une demi-pastille (A11) déformée à 1620°C jusqu'à une déformation de 19 % montrant la présence d'un nombre important de zones de fortes porosité localisées dans la région de contrainte de Von Mises maximale.	160
Figure V-31. Micrographies électroniques (MEB, mode : BSE) de l'échantillon A11, testé à 1620°C, acquises dans la région I, dans une zone présentant de nombreuses décohésions intergranulaires.	161
Figure V-32. Micrographies électroniques (MEB, mode : BSE) acquises dans la région III de l'échantillon A11 testé à 1620°C jusqu'à une déformation axiale finale de 19 %.	162
Figure V-33. Micrographies électroniques (MEB, mode : BSE) acquises dans la région I de l'échantillon A8 testé à 1320°C jusqu'à une déformation axiale finale de 16 %.	163
Figure V-34. Micrographie électronique (MEB, mode : BSE) acquise dans la région II de l'échantillon A8 testé à 1320°C jusqu'à une déformation axiale finale de 16 %.	164
Figure V-35. Carte EBSD d'indice de qualité de diffraction et de désorientation : mise en évidence des joints de grains et sous-joints de grains au sein d'une zone contenue dans une région de type I dans l'échantillon A4 déformé à 1520°C jusqu'à une déformation axiale de l'ordre de 19 %.	165
Figure V-36. Carte EBSD d'indice de qualité de diffraction et de désorientation : mise en évidence des joints de grains et sous-joints de grains au sein d'une zone contenue dans une région de type I avec une très forte porosité dans l'échantillon A4 déformé à 1520°C jusqu'à une déformation axiale de l'ordre de 19 %.	166
Figure V-37. Carte EBSD d'indice de qualité de diffraction et de désorientation : mise en évidence des joints de grains et sous-joints de grains au sein d'une zone contenue dans une région de type II à proximité de l'interface avec la cale, dans l'échantillon A4 déformé à 1520°C jusqu'à une déformation axiale de l'ordre de 19 %.	167
Figure V-38. a) Histogrammes de fractions linéaires de sous-joints de grains déduits des cartes EBSD réalisées le long de l'axe de révolution de l'échantillon A4 - 1500°C - pO <sub>2</sub> haute. b) Evolution de la fraction linéaire totale de sous-joints de grains en fonction de la distance à l'interface avec la cale.	169
Figure V-39. Histogrammes de fractions linéaires de sous-joints de grains déduits des cartes EBSD réalisées le long de l'axe de révolution des échantillons élancés (A3, A4 et A11) et d'un échantillon court (A8).	170
Figure V-40. Images optiques de différentes pastilles du lot B à l'issue d'un essai de compression à 1320°C.	171
Figure V-41. Représentation schématique d'une tranche de pastille déformée. Illustration des différentes régions : I - centrale ; II - Interface/centre ; III - Interface/bordure ; IV - vue radiale.	172
Figure V-42. Montage d'images optiques d'une coupe transversale de la pastille B1 [T = 1320°C – pO <sub>2</sub> = 3,1.10 <sup>-14</sup> atm. – v = 11 µm.min <sup>-1</sup> ].	172
Figure V-43. Montage d'images optiques sur une tranche transversale de la pastille B2 [T = 1320°C – pO <sub>2</sub> = 2,2.10 <sup>-13</sup> atm. – v = 11 µm.min <sup>-1</sup> ].	173
Figure V-44. Micrographies électroniques (MEB, mode : BSE) acquises à plusieurs grossissements sur la pastille B4 [T = 1320°C – pO <sub>2</sub> = 3,1.10 <sup>-14</sup> atm – v = 5 µm.min <sup>-1</sup> ] - région I, déformation axiale d'environ 13%.	174
Figure V-45. Micrographies électroniques (MEB, mode : BSE) acquises à plusieurs grossissements sur la pastille B1 [T = 1320°C – pO <sub>2</sub> = 3,1.10 <sup>-14</sup> atm. – v = 11 µm.min <sup>-1</sup> ] – région III, déformation axiale d'environ 16,6 %.	175
Figure V-46. Micrographies électroniques (MEB, mode : BSE) acquises à plusieurs grossissements sur la pastille B5 [T = 1320°C – pO <sub>2</sub> = 2,2.10 <sup>-13</sup> atm. – v = 5 µm.min <sup>-1</sup> ] – région IV, déformation axiale d'environ 13,4%.	176
Figure V-47. Histogramme de distribution en nombre en fonction de la taille de grain (DCE) pour l'échantillon B1 (dans la région I). Comparaison avec la distribution de référence.	178
Figure V-48. Histogramme de la fréquence relative du rapport grand axe / petit axe des grains (avec une approximation elliptique). Région I – Echantillon B1.	178
Figure V-49. Cartographie EBSD en indice de qualité et en désorientation. Mise en évidence des joints de grains et sous-joints de grains, selon le code couleur indiqué. Région I - Echantillon B1.	179
Figure V-50. Cartographie EBSD en indice de qualité et en désorientation. Mise en évidence des joints de grains et sous-joints de grains, selon le code couleur indiqué. Région III - Echantillon B1.	180
Figure V-51. Cartographie EBSD en indice de qualité et en désorientation. Mise en évidence des joints de grains et sous-joints de grains, selon le code couleur indiqué. Région IV - Echantillon B1.	181

Figure V-52. Histogrammes de fractions linéaires de sous-joints de grains déduits des cartes EBSD réalisées à cœur (région I) dans les échantillons du lot B. ....	182
Figure V-53. Comparaison de l'évolution de la contrainte expérimentale et simulée en fonction du temps pour l'essai A3, [T = 1520°C ; pO <sub>2</sub> = 6,3.10 <sup>-13</sup> atm], jeu de paramètres : C = 570.10 <sup>6</sup> ; D = 80 ; n = 4,5 ; K = 520.10 <sup>6</sup> .....	185
Figure V-54. Comparaison de l'évolution de la contrainte expérimentale et simulée et de la contrainte interne en fonction du temps pour l'essai A4, [T = 1520°C ; pO <sub>2</sub> = 6,7.10 <sup>-11</sup> atm], jeu de paramètres : C = 570.10 <sup>6</sup> ; D = 80 ; n = 4,5 ; K = 430.10 <sup>6</sup> . ....	185
Figure V-55. Comparaison de l'évolution des contraintes expérimentale et simulée et de la contrainte interne en fonction du temps pour l'essai A9, [T = 1320°C ; pO <sub>2</sub> = 4.10 <sup>-13</sup> atm], jeu de paramètres : C = 450.10 <sup>6</sup> ; D = 17 ; n = 4,5 ; K = 730.10 <sup>6</sup> . ....	187
Figure V-56. Comparaison de l'évolution des contraintes expérimentale et simulée en fonction du temps pour l'essai A6, [T = 1320°C ; pO <sub>2</sub> = 3.10 <sup>-14</sup> atm], jeu de paramètres : C = 400.10 <sup>6</sup> ; D = 17 ; n = 4,5 ; K = 900.10 <sup>6</sup> .....	187
Figure V-57. Comparaison de l'évolution des charges expérimentale et simulée en fonction du temps de l'essai B2. Le déplacement imposé dans la simulation numérique a été modifié pour faire correspondre le pic de compression. Jeu de paramètres : C = 1100.10 <sup>6</sup> ; D = 95 ; n = 5 ; K = 500.10 <sup>9</sup> ; X(t=0) = 190 MPa. ....	189
Figure V-58. Superposition d'une micrographie optique d'une pastille SPS déformée avec le champ de contrainte de Von Mises calculé. ....	189
Figure VI-1. Illustration de l'orientation des observations par rapport à l'échantillon.....	193
Figure VI-2. Micrographie optique représentative de la microstructure du lot C. En rouge est encerclée une poche de grains fins.....	193
Figure VI-3. Micrographies électroniques (MEB, mode : BSE) représentant la microstructure de référence lot C. Les contours rouges mettent en évidence des poches de grains fins. ....	194
Figure VI-4. Carte d'indice de qualité de diffraction (en niveau de gris) et de désorientations acquise sur l'échantillon de référence du lot C. Les joints de grains sont représentés par des lignes noires, les sous-joints de grains.....	195
Figure VI-5. Histogramme de distribution de tailles de grains en fonction de la taille (DCE) pour des échantillons des lots A et C. ....	196
Figure VI-6. Evolution de la charge et de la flèche au cours du temps pour l'essai de flexion 3-points relatif à l'échantillon C7, réalisé à une vitesse de traverse imposée de 40 μm.min <sup>-1</sup> . ....	198
Figure VI-7. Comparaison de l'évolution de la contrainte maximale élastique en fonction du temps pour trois essais de flexion 3-points réalisés dans des conditions identiques. ....	198
Figure VI-8. Courbes de contrainte-déformation pour quatre essais de flexion 3-points à vitesse de traverse imposée de 40 μm.min <sup>-1</sup> . Mise en évidence de l'effet de l'atmosphère.....	199
Figure VI-9. Contrainte élastique maximale à 4 % de déformation maximale élastique en fonction de la pression partielle d'oxygène à 1500°C. Vitesses de déformation élastiques maximales : Rouge - 3,5.10 <sup>-5</sup> s <sup>-1</sup> ; Vert - 2,6.10 <sup>-5</sup> s <sup>-1</sup> ; Bleu - 1,7.10 <sup>-5</sup> s <sup>-1</sup> . ....	200
Figure VI-10. Estimation de l'exposant de la contrainte à partir de l'équation (5.2) avec les points expérimentaux de tous les essais de flexion 3-points. α/n = 0,024. ....	201
Figure VI-11. Courbes contraintes-déformation de l'essai de flexion 3-points de l'éprouvette C1. Bleu : grandeurs déduites des formules élastiques ; Rouge : grandeurs déduites des formules d'équivalence de Timoshenko.....	201
Figure VI-12. Evolution de la charge et de la flèche (imposée et maximale) au cours du temps. Essai de flexion 4-points à vitesse de traverse imposée de 60 μm.min <sup>-1</sup> – C15.....	202
Figure VI-13. Contrainte élastique maximale en fonction de la pression partielle d'oxygène à 1500°C pour différentes vitesses de déformation élastique maximales : vert – 1,4.10 <sup>-5</sup> s <sup>-1</sup> ; bleu – 9,0.10 <sup>-5</sup> s <sup>-1</sup> . ....	203
Figure VI-14. Estimation de l'exposant de la contrainte dans la relation phénoménologique en utilisant les points expérimentaux des essais de flexion 4-points. α/n = 0,033. ....	204
Figure VI-15. Courbes contraintes-déformation pour l'essai de flexion 4-points correspondant à l'éprouvette C15. La courbe bleue représente les grandeurs déduites des formules élastiques ; la courbe rouge les grandeurs déduites des formules d'équivalence de Timoshenko.....	205
Figure VI-16. Photographie d'une éprouvette déformée en flexion 3-points. Eprouvette C11 – T = 1500°C ; pO <sub>2</sub> = 2,9.10 <sup>-10</sup> atm. ; v = 60 μm.min <sup>-1</sup> ; déformation viscoplastique maximale ~ 20%.....	206
Figure VI-17. Micrographie optique de la fibre externe en traction d'une éprouvette déformée en flexion 3-points. Eprouvette C9 – T = 1500°C ; pO <sub>2</sub> = 6,0.10 <sup>-13</sup> atm. ; v = 60 μm.min <sup>-1</sup> ; déformation viscoplastique maximale ~13%.....	206

Figure VI-18. Micrographie électronique (MEB, mode : BSE) prise suivant la surface externe de l'éprouvette sollicitée en traction (orientation parallèle à l'épaisseur), présentant une large fissure ouverte. Echantillon C1 <sub>a</sub> – T = 1500°C ; pO <sub>2</sub> = 2,8.10 <sup>-13</sup> atm.; v = 80 μm.min <sup>-1</sup> - taux de déformation finale de 22%.	207
Figure VI-19. Micrographie optique d'une partie d'une éprouvette déformée en flexion 3-points. Mise en évidence d'une large fissure (la flèche indique le sens de l'observation de la micrographie en Figure VI-18). Echantillon C1 <sub>a</sub> .	208
Figure VI-20. Micrographies optiques de deux fissures. a) Caractère transgranulaire - ruine de l'éprouvette C1 <sub>b</sub> ; b) caractère intergranulaire - éprouvette intact C1 <sub>a</sub> .	209
Figure VI-21. Micrographie électronique (MEB, mode : SE) montrant un faciès de rupture. Echantillon C1 <sub>b</sub> . Mise en évidence du passage de la fissure sur une pôle de grain fins plus poreuses (zone contourée).	209
Figure VI-22. Mise en évidence du motif constitué de marques d'indentations sur la surface d'une éprouvette de flexion (C11) après essai.	210
Figure VI-23. Micrographie optique mettant en évidence le maillage déformé. Eprouvette C12 – T = 1500°C ; pO <sub>2</sub> = 2,9.10 <sup>-10</sup> ; vitesse de traverse de 120 μm.min <sup>-1</sup> ; déformation élastique maximale finale d'environ 5,5%.	211
Figure VI-24. Evolution de la déformation normale moyenne, estimée par le rapport de la distance finale à la distance initiale entre deux marques d'indentation consécutives situées sur une même ligne du motif, en fonction de leur position suivant l'épaisseur. a) Eprouvette C11 – vitesse de traverse de 60 μm.min <sup>-1</sup> ; b) Eprouvette C12 – vitesse de traverse de 120 μm.min <sup>-1</sup> .	212
Figure VI-25. Micrographies électroniques (MEB, mode : BSE) présentant la surface à proximité de la zone de plus forte compression. Eprouvette déformée en flexion 3-points. Eprouvette C9 – T = 1500°C ; pO <sub>2</sub> = 6.10 <sup>-13</sup> atm ; déformation élastique maximale d'environ 3,6%. Les contours rouges indiquent des régions avec un changement de contraste notable.	213
Figure VI-26. Histogramme de la population de taille de grains. Comparaison entre la microstructure initiale et la microstructure après un essai de flexion. Echantillon C7 ; déformation maximale élastique : 4,2%.	213
Figure VI-27. Illustration mettant en évidence l'orientation des éprouvettes par rapport aux cartes EBSD.	214
Figure VI-28. Carte d'indice de qualité de diffraction (en contraste de gris) et de désorientations acquises sur l'échantillon C1 [T = 1500°C ; pO <sub>2</sub> = 2,8.10 <sup>-13</sup> atm ; v = 80 μm.min <sup>-1</sup> ; déformation maximale élastique de 4%] a) Région proche de la fibre externe en traction ; b) région proche de la fibre externe en compression.	215
Figure VI-29. Histogramme représentant la fraction linéaire de différentes populations de sous-joints de grains à différentes positions dans l'épaisseur de l'éprouvette (6 clichés EBSD) et pour l'éprouvette C1 – T = 1500°C ; pO <sub>2</sub> = 2,8.10 <sup>-13</sup> atm ; v = 80 μm.min <sup>-1</sup> (déformation élastique maximale de 4,1 %).	216
Figure VI-30. Histogramme représentant la fraction linéaire de différentes populations de sous-joints de grains à différentes positions dans l'épaisseur de l'éprouvette (6 clichés EBSD) et pour l'éprouvette C7 – T = 1500°C ; pO <sub>2</sub> = 2,7.10 <sup>-11</sup> atm ; v = 40 μm.min <sup>-1</sup> (déformation élastique maximale de 4,2 %).	216
Figure VI-31. Photographie d'une éprouvette déformée en flexion 4-points jusqu'à une déformation maximale élastique de 3,3%. Echantillon C14 [T = 1500°C ; v = 30 μm.min <sup>-1</sup> ; pO <sub>2</sub> = 1,2.10 <sup>-10</sup> atm].	217
Figure VI-32. Micrographies électroniques (MEB, mode : BSE) acquises sur une éprouvette déformée en flexion 4-points, jusqu'à 3,3%. C14 [T = 1500°C ; pO <sub>2</sub> = 1,2.10 <sup>-10</sup> atm ; v = 30 μm.min <sup>-1</sup> ]. a) Région à proximité du bord en compression ; b) Région à proximité du bord en traction.	218
Figure VI-33. Carte d'indice de qualité de diffraction (en niveaux de gris) et de désorientations acquises sur une région située au centre de l'éprouvette C14, à proximité de la fibre neutre. [T = 1500°C ; pO <sub>2</sub> = 1,2.10 <sup>-10</sup> atm ; v = 30 μm.min <sup>-1</sup> ; déformation élastique maximale 3,3 %]. Les joints de grains sont représentés par des lignes noires et les sous-joints de grains sont colorisés suivant le code de la légende.	219
Figure VI-34. Carte d'indice de qualité et de désorientations acquises sur l'échantillon C14 – température 1500°C ; pression partielle d'oxygène 1,2.10 <sup>-10</sup> atm ; vitesse de traverse 30 μm.min <sup>-1</sup> ; déformation élastique maximale 3,3 % a) Région proche de la fibre externe en traction ; b) région proche de la fibre externe en compression	220
Figure VI-35. Histogrammes par classes de désorientation des fractions linéaires de sous-joints de grains. Comparaison sur une épaisseur complète de l'éprouvette (composée de 6 clichés). Eprouvette C13 – température 1500°C ; pression partielle d'oxygène 2,6.10 <sup>-13</sup> atm ; vitesse de traverse 30 μm.min <sup>-1</sup> ; déformation élastique maximale 3,7 %	221
Figure VI-36. Histogrammes par classes de désorientation des fractions linéaires de sous-joints de grains. Evolution dans l'épaisseur de l'éprouvette composée de 6 clichés. Eprouvette C14 – température 1500°C ; pression partielle = 1,2.10 <sup>-10</sup> atm ; vitesse de traverse 30 μm.min <sup>-1</sup> ; déformation élastique maximale 3,3 %.	221
Figure VI-37. Evolution de la contrainte maximale élastique en fonction du temps pour les essais C1a et C1b ; pO <sub>2</sub> = 2,8.10 <sup>-13</sup> atm ; v = 80 μm.min <sup>-1</sup> ; T = 1500°C.	222

Figure VI-38. Micrographies de deux éprouvettes déformées en flexion 3-points : a) C1b rupture prématurée à 1,2% ; b) C1a déformation élevée sans rupture à 5,9%.	223
Figure VI-39. Comparaison de l'évolution de la déformation normale, déterminée par la simulation, le calcul analytique ou l'expérience, le long de l'épaisseur de l'éprouvette C11.	224
Figure VI-40. Comparaison de l'évolution de la déformation normale, déterminée numériquement, analytiquement et à partir de la courbure, le long de l'épaisseur de l'éprouvette. Représentation de la fraction linéaire de sous-joints de grains avec une échelle proportionnelle (fraction négative lorsque du côté de la compression pour correspondre à la déformation). a) échantillon C13 ; b) échantillon C14.	226
Figure VII-1. Comparaison des différentes études du comportement viscoplastique du dioxyde d'uranium en compression. <b>Rouge</b> : notre étude, $n = 4,9$ , $d = 11 \mu\text{m}$ ; <b>vert</b> : Garcia et al., $n = 6,7$ , $d = 11 \mu\text{m}$ ; <b>violet</b> : Thèse Ndiaye, $d = 15 \mu\text{m}$ , $n = 6,1$ ; <b>fuchsia</b> : Thèse Ben Saada, $d = 11 \mu\text{m}$ , $n = 7,7$ ; <b>bleu</b> : Thèse Ndiaye, $d = 9 \mu\text{m}$ , $n = 8,3$ ; <b>orange</b> : Thèse Vivant-Duguay, $d = 11 \mu\text{m}$ , $n = 7,4$ ; <b>vert clair</b> : Bohaboy et al., $d = 12-14 \mu\text{m}$ , $n = 4$ ; <b>jaune</b> : Poteat et Yust, $d = 10 \mu\text{m}$ , $n = 4,8$ ; <b>marron</b> : Thèse Guérin, $d = 5 \mu\text{m}$ , $n = 9,2$ .	230
Figure VII-2. Comparaison des essais de compression et de flexion 3 et 4 points présentés dans ce manuscrit et obtenus au cours d'une étude antérieure (Garcia et al., 2021). En abscisse, est reportée la contrainte d'écoulement corrigée de la quantité $\rho_{2\alpha}$ .	232
Figure VII-3. Evolution de la contrainte et du déplacement imposé en fonction du temps de l'essai de compression réalisé sur l'échantillon monocristallin. $T = 1520^\circ\text{C}$ ; $p\text{O}_2 = 6.10^{-13} \text{ atm}$ ; $v = 20 \mu\text{m}.\text{min}^{-1}$ .	237
Figure VII-4. Macrographie optique d'une éprouvette monocristalline d' $\text{UO}_2$ déformée ; comparaison avec son profil initial. La flèche représente l'orientation de la micrographie	238
Figure VII-5. Micrographie optique d'un échantillon monocristallin d'oxyde de cuivre déformé en compression à $800^\circ\text{C}$ . [Bretheau, et al., 1978]	238
Figure VII-6. Micrographie électronique (MEB, mode : SE) présentant le profil déformé de l'échantillon monocristallin. En rouge est représenté l'orientation de l'échantillon par rapport à la vue de l'image (cadre noir).	239
Figure VII-7. Micrographies électroniques (MET, champ clair) du monocristal déformé. Les images ont été obtenues en condition deux ondes, avec un vecteur de diffraction selon une direction $\langle 220 \rangle$ . Mise en évidence d'importants réseaux de dislocations « tricotées » sur les clichés a) et b), et de larges boucles de dislocations sur le cliché c).	241
Figure VII-8. Micrographie électronique (MET, champ clair) présentant un réseau hexagonal de dislocations. Les différentes familles qui le composent sont représentées dans l'encart. Leurs vecteurs de Burgers respectifs sont rapportés.	242
Figure VIII-1. a) Profil de pertes d'énergie nucléaire des protons de 20 MeV, b) profil d'implantation ionique (ordonnée de gauche), obtenus par le calcul avec le logiciel SRIM (à l'aide du modèle de Kinchin-Pease) pour une irradiation aux protons 20 MeV dans le dioxyde d'uranium et profil d'implantation des défauts pour des protons de 10 MeV et de 20 MeV (ordonnée de droite).	250
Figure VIII-2. Schéma du dispositif d'irradiation complet. [Chen et al, 2020]	251
Figure VIII-3. Profil d'endommagement dans l' $\text{UO}_{2+x}$ d'un faisceau de protons de 20 MeV. L'homogénéité est obtenue grâce au dégradeur en énergie : roue tournante en amont de l'échantillon qui est composée de feuilles d'aluminium d'épaisseurs différentes.	251
Figure VIII-4. Mesure de l'épaisseur moyenne d'un échantillon sur toute sa longueur.	252
Figure VIII-5. Eprouvette d' $\text{UO}_{2+x}$ prête pour un essai de traction. On retrouve le porte-échantillon, les logements en graphite et la pièce de maintien en forme de « H » à l'arrière.	253
Figure VIII-6. Photographies du montage d'un échantillon (rouge) dans un porte-échantillon de traction. La plaque support, à l'arrière, sert de référence fixe durant l'ensemble de la procédure. a) Installation de la lamelle d' $\text{UO}_{2+x}$ dans les logements en graphite (vert) ; b) Dernière étape : serrage des blocs en acier inoxydable (bleu) et installation de la pièce de maintien en forme de « H » (turquoise).	254
Figure VIII-7. Photographie du dispositif de traction prêt à être installé dans la chambre d'irradiation. La flèche rouge indique l'axe de traction ; Les zones colorées représentent : l'éprouvette $\text{UO}_{2+x}$ (encadrement orange) ; les deux capteurs LVDT (encadrements verts) ; les pièces comportant les quatre buses d'hélium (encadrements violets) et les deux roulements d'attache (encadrements bleus).	255
Figure VIII-8. Evolution de la contrainte appliquée en fonction du déplacement mesuré par les capteurs LVDT pour 4 essais de traction réalisés sur des éprouvettes d' $\text{UO}_{2+x}$ à température ambiante. La légende spécifie les différences de traitements et de préparations que les échantillons ont subis.	258
Figure VIII-9. Photographies mettant en évidence la rupture d'échantillons lors d'essais de traction sous irradiation. a) fracture centrale ; b) fracture à proximité d'une extrémité.	259

Figure VIII-10. Distribution de la température sur la surface de l'échantillon sous irradiation ( $I = 3\mu A$ ), a) sur la largeur - balayage horizontal ; b) sur la hauteur - balayage vertical.....	260
Figure VIII-11. Evolution de la longueur de l'éprouvette telle qu'elle est mesurée par les capteurs LVDT en fonction du temps lors d'1 cycle complet d'irradiation. ....	261
Figure VIII-12. Evolution du déplacement moyen mesuré en fonction de la température de la chambre. Superposition de la mesure des 11 cycles d'irradiation à fluence croissante. ....	262
Figure VIII-13. Evolution du gonflement volumique (estimé à partir de l'allongement) de l'échantillon en fonction du taux d'endommagement (grandeur proportionnelle à la fluence). ....	262
Figure VIII-14. Evolution de la charge en fonction du déplacement pour l'essai de traction réalisé sur l'éprouvette après irradiation (rouge). Comparaison avec les résultats présentés sur la Figure VIII-8. ....	263

## Table des Tableaux

---

<b>Tableau 1.</b> Récapitulatif des énergies d'activation communément retenues pour la diffusion de l'uranium.....	48
<b>Tableau 2.</b> Jeu de paramètres identifiés. Résultats en Figure IV-3 .....	112
<b>Tableau 3.</b> Jeu de paramètres utilisé pour le calcul présenté sur la Figure IV-11.....	120
<b>Tableau 4.</b> Jeu de paramètres retenus pour la simulation de l'essai de flexion 4-points.....	126
<b>Tableau 5.</b> Essais de compression réalisés à 1520°C sur des échantillons du lot A. Un élanement court [ $E = 0,6$ ] est indiqué en soulignant la référence de l'échantillon dans la première colonne. Tous les autres cas correspondent à un élanement de 2.....	142
<b>Tableau 6.</b> Essais de compression réalisés à 1320°C. Même codification relative aux élanements.....	142
<b>Tableau 7.</b> Essai de compression réalisé à 1620°C. ....	143
<b>Tableau 8.</b> Essais de flexion 3-points réalisés à 1500°C.....	196
<b>Tableau 9.</b> Essais de flexion 4-points réalisés à 1500°C.....	197



# Introduction

---

Le parc électronucléaire français, composé de 56 réacteurs, génère à lui seul environ 70%<sup>1</sup> de la production d'électricité nationale. Les réacteurs à eau pressurisée (REP), qui constitue la technologie de réacteur la plus répandue en France, fonctionnent avec un combustible de type oxyde : le dioxyde d'uranium ou le MOX (Mixed OXides). Il se présente sous forme de pastilles cylindriques de taille centimétrique, chanfreinées et possédant un évidement à chaque extrémité. Ces pastilles sont mises bout à bout dans de longues gaines à base d'un alliage de zirconium (Zircalloy-4). Cet ensemble pastilles et gaine forme un crayon combustible. Les crayons sont réunis en assemblages carrés de 17x17. Au final, un réacteur nucléaire est constitué de multiples assemblages (entre 157 et 205 suivant la génération du réacteur et sa puissance nominale).

En fonctionnement normal, le fluide caloporteur, permettant d'évacuer les calories par une mise en circulation au sein des assemblages, est porté à une pression de 155 bars et sa température est d'environ 300°C. Les réactions de fissions qui ont lieu dans le combustible nucléaire constituent la source de chaleur. Elles génèrent une puissance linéique d'environ 220 W.cm<sup>-1</sup> en régime nominal. De par la mauvaise conductivité thermique du combustible oxyde, les pastilles sont le siège d'un important gradient de température radial : les températures à cœur et en périphérie de pastille sont de l'ordre de 1000°C et de 400°C respectivement. Dans cette gamme de température, le combustible est sujet à un phénomène de fluage induit par l'irradiation sous l'effet combiné des températures et des contraintes modérées. Certains scénarios mettent en jeu des transitoires de puissance au cours desquels la température à cœur s'élève fortement. Le cœur du combustible peut alors se trouver à plus de 1700°C. Ces conditions extrêmes modifient fortement son comportement : elles induisent d'importantes contraintes de compression à cœur pouvant atteindre une centaine de MPa et une sollicitation importante de la gaine en traction du fait des dilatations thermiques différentielles. Un phénomène de corrosion sous contraintes (CSC) de la gaine peut apparaître et la déformation viscoplastique du combustible s'active. L'étude des propriétés physiques et mécaniques à haute température du combustible est ainsi essentielle : d'une part, pour garantir la sûreté d'un réacteur, par le développement de modèles prédictifs fiables permettant une simulation fidèle des multiples interactions possibles (comme l'interaction pastille-gaine) ; d'autre part, en vue d'en optimiser le fonctionnement, en réduisant l'impact de phénomènes délétères, par exemple à l'aide d'une microstructure spécifique (porosité plus ou moins élevée, population de taille de grain plus ou moins fine, dopants...).

Des études sont menées au sein même de réacteurs expérimentaux. Cela permet de reproduire, plus ou moins fidèlement, les conditions thermodynamiques dans lesquelles se trouvent le matériau (haute température, rayonnement, ...). Cependant, ces essais sont très coûteux et de plus relativement difficile à bien instrumenter. C'est pourquoi des études sont également menées dans des dispositifs d'essais thermomécaniques, plus accessibles, dans le but de caractériser finement les propriétés de l'oxyde à haute température.

Malgré les nombreuses études sur le sujet, des zones d'ombres subsistent notamment vis-à-vis des mécanismes de déformation opérant à haute température dans le dioxyde d'uranium. C'est dans ce contexte que se situe cette étude. Nous nous proposons d'investiguer les mécanismes de déformation mis en jeu, à travers la réalisation d'essais mécaniques à haute température sous atmosphère

---

<sup>1</sup> Source RTE 2021 : <https://www.rte-france.com/eco2mix/la-production-deelectricite-par-filiere>

contrôlée. L'analyse de ces derniers s'appuie sur la simulation numérique d'une part, et des examens microstructuraux d'autre part.

Le présent manuscrit se décompose en huit chapitres.

Le premier constitue une présentation du comportement viscoplastique des métaux et des céramiques en général. Une description des principaux mécanismes de déformation viscoplastique est proposée. Le cas particulier des céramiques oxyde non-stœchiométriques, tel que le dioxyde d'uranium, est abordé. L'enjeu principal de cette première partie est de cerner toute la complexité que constitue l'étude de propriétés du combustible à haute température, et ainsi de mettre en valeur l'apport de notre étude.

Un état de l'art des propriétés physico-chimiques et structurales du dioxyde d'uranium est proposé au chapitre 2. Sont abordés successivement la capacité du matériau ( $\text{UO}_{2+x}$ ) à accommoder de larges gammes de teneurs en oxygène ainsi que les propriétés de diffusion des atomes qui le constituent. En effet, ces dernières recèlent une des clés de la compréhension de son comportement viscoplastique. Enfin, une revue de la littérature relative spécifiquement au comportement viscoplastique du dioxyde d'uranium est présentée.

Ces deux chapitres permettent de souligner le fait que toute étude visant à mieux comprendre les mécanismes de déformation viscoplastique du dioxyde d'uranium polycristallin nécessite une combinaison d'approches. En tout premier lieu, il s'agit de maîtriser les conditions expérimentales associées aux essais macroscopiques afin de garantir la fiabilité des résultats. Le chapitre 3 est dédié à ce sujet dans son intégralité. Nous soulignons l'importance de contrôler les aspects purement thermomécaniques du problème mais également ses aspects physicochimiques. Nous détaillons en particulier comment est contrôlée et mesurée la pression partielle d'oxygène qui règne dans le gaz avec lequel le matériau se met à l'équilibre thermodynamique. Le second aspect dont la maîtrise est essentielle est la simulation numérique des essais macroscopiques (chapitre 4). Outre l'intérêt pour le développement des lois de comportement, la simulation, parfois négligée dans les études antérieures, permet de quantifier de nombreuses facettes des essais qui sont à l'origine de dispersions dans les résultats expérimentaux : effets multidimensionnels, effets des grandes transformations, contact et interaction avec les matériaux de structure... Les chapitres 5 et 6 constituent le cœur de ce travail puisqu'ils concernent les essais réalisés en compression et en flexion respectivement. À cette occasion, une première analyse des résultats est proposée dont la synthèse fait l'objet du chapitre 7, au cours duquel nous discutons des mécanismes de déformation dont le matériau est le siège. Au chapitre 8, une tentative est décrite pour aborder le phénomène de fluage induit par l'irradiation, à des températures inférieures à  $1000^\circ\text{C}$ , par recours aux irradiations externes et en particulier à des faisceaux de protons de plusieurs MeV.

# Chapitre 1 : Etude du fluage dans les métaux et les céramiques

---

## I.1. Introduction

Différentes branches de la physique s'intéressent au comportement à haute température des matériaux. Le géophysicien cherche à comprendre et modéliser la structure de la croûte terrestre et le mouvement des plaques lithosphériques (J. P. Poirier et al., 1983; Weertman, 1970) composés principalement d'oxydes ; l'ingénieur aéronautique dimensionne des pièces techniques des réacteurs d'avions, telles que les aubes de turbines composées d'alliages métalliques (Cormier et al., 2010), dont on cherche à minimiser les évolutions microstructurales et les déformations pendant leur utilisation sur des périodes de temps de l'ordre de plusieurs milliers d'heures à très haute température. On peut citer également les céramistes qui développent des matériaux techniques aux propriétés très spécifiques comme les tuiles protectrices des boucliers thermiques des engins spatiaux qui ont de très grandes capacités calorifiques. Pour finir, on peut parler aussi des combustibles nucléaires céramiques, qui passent plusieurs années en réacteur, à haute température. Ils sont soumis à des contraintes mécaniques très variables et à un flux neutronique important. L'objectif dans ce cas est de préserver l'intégrité de la gaine et donc de limiter les interactions mécaniques trop importantes entre la céramique oxyde et la gaine tout en s'assurant que l'oxyde conserve une certaine tenue mécanique. En effet, une diminution trop forte de la tenue mécanique de l'oxyde peut induire un relâchement de produits de fission volatils en fonctionnement normal (Colle et al., 2013) et donc engendrer un terme source de radionucléides important en cas de rupture de la gaine qui constitue la première barrière de confinement vis-à-vis de l'environnement.

Historiquement, l'essentiel des études relatives au comportement mécanique des matériaux à haute température a concerné les métaux. En effet, leur utilisation ou leur élaboration à haute température se sont particulièrement développées au début du XX<sup>ème</sup> siècle. Ainsi, les premiers modèles et théories de la déformation plastique de matériaux cristallins ont été développés pour l'étude des métaux (Andrade, 1910; Norton, 1929). Ce n'est qu'à partir des années 1950, avec le développement de céramiques techniques que leur étude a pris de l'ampleur et notamment l'étude de leurs propriétés mécaniques à haute température. Il est à noter que la notion de haute température est relative à la température de fusion du matériau et par conséquent, ce terme désigne des régimes de températures très différents suivant qu'il s'applique par exemple à un alliage métallique ou une céramique. On considère souvent que le terme haute température correspond à un domaine situé au-delà de la moitié de la température de fusion du matériau. Ce domaine varie d'un matériau à l'autre mais correspond à des températures supérieures à 1000 – 1100°C pour le dioxyde d'uranium alors que sa température de fusion est d'environ 2850°C (Fink, 2000).

Dans ce chapitre, nous nous intéressons tout d'abord aux caractéristiques générales d'un comportement en fluage au cours d'un essai mécanique macroscopique (section I.2). La section I.3 est consacrée à la présentation des principaux mécanismes de déformations à l'échelle microstructurale et à leurs manifestations macroscopiques telles que l'on peut les caractériser au cours d'un essai de fluage. La section I.4 constitue le cœur de ce chapitre. Nous nous attachons à souligner quelques aspects du comportement des céramiques, et plus particulièrement des oxydes métalliques qui les

rendent plus délicats à étudier que les alliages. En outre, nous essayons de dresser un panorama du comportement en fluage des oxydes et d'établir un lien entre lois phénoménologiques de fluage et mécanismes de déformations caractérisées à travers l'étude de la microstructure.

## I.2. Comportement en fluage des matériaux

Un essai de fluage, est un essai mécanique au cours duquel la céramique ou l'alliage sont soumis à une contrainte constante pendant un temps pouvant aller de quelques minutes à plusieurs jours et à des températures relativement élevées, supérieures à environ la moitié de la température de fusion du matériau. En effet la plupart des mécanismes de déformation en fluage s'activent thermiquement et sont donc complètement inopérants à température ambiante.

La réponse d'un matériau en fluage se caractérise par une forte dépendance de la vitesse de déformation à la contrainte appliquée, par opposition à une déformation plastique pure : on parle de réponse viscoplastique. Celle-ci se caractérise par la présence au cours d'un essai de trois régimes, souvent bien distincts :

**I.** Le fluage primaire ou transitoire, caractérisé par une vitesse de déformation initiale élevée qui diminue progressivement. D'un point de vue microstructurale, cette première phase correspond à une activation des sources de dislocations dont la densité croissante durcit le matériau.

**II.** Le fluage secondaire, caractérisé par l'établissement d'un régime quasi-permanent au cours duquel la vitesse de déformation reste sensiblement constante sur une période pouvant être très longue. C'est le régime le plus étudié et le mieux connu notamment parce qu'il est capital dans le dimensionnement de pièces mécaniques et permet de prévoir leur durée de vie. La Figure I-1 montre l'évolution typique de la déformation au cours du temps, mettant en évidence les trois régimes. Ici, la durée du régime stationnaire a été fixée de manière arbitraire.

**III.** Le fluage tertiaire caractérisé par une nouvelle augmentation de la vitesse de déformation du matériau, signe macroscopique annonciateur de sa ruine. On le distingue a posteriori microstructuralement par la présence de nombreuses cavités.

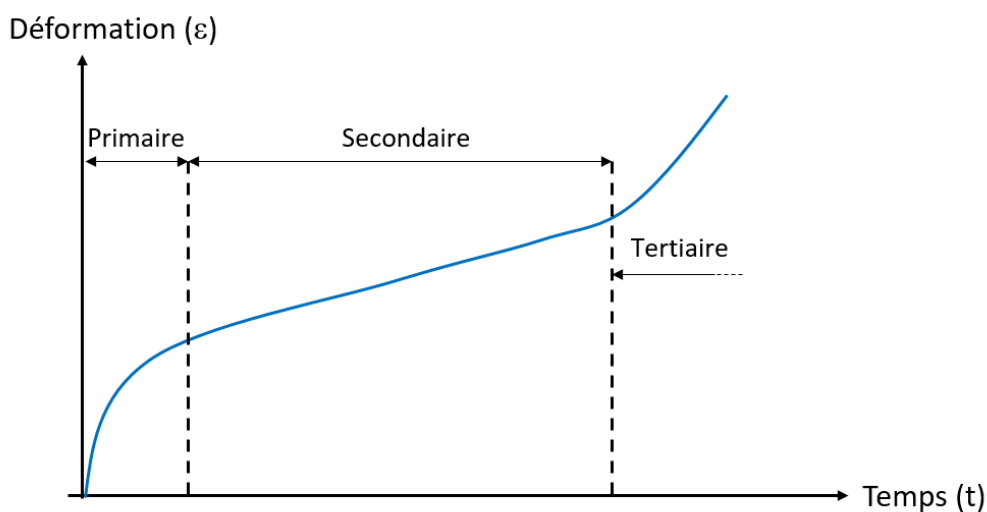


Figure I-1. Evolution de la déformation au cours du temps lors d'un essai de fluage classique (à contrainte constante).

En pratique, des essais de fluage à contrainte constante sont difficiles à mettre en œuvre. En effet, il est aisé d'imposer une charge constante sur un échantillon, mais il est plus compliqué de conserver un niveau de contrainte constant, notamment à cause des variations de géométrie de l'échantillon au cours de l'essai (*i.e.* augmentation de section en compression). Il est donc possible de réaliser des essais à vitesse de traverse constante, appelés également tests d'écroutissage. En pratique ils diffèrent des essais de fluage classique, principalement au niveau du fluage primaire. Cependant réalisés à haute température et pour des vitesses adéquates, ils permettent d'étudier le régime de fluage secondaire, correspondant à une déformation à vitesse constante.

La Figure I-2 montre l'évolution typique de la contrainte lors d'un essai où la vitesse de déformation est imposée. Une réponse viscoplastique est mise en évidence lorsque l'on peut observer une dépendance à la vitesse de déformation.

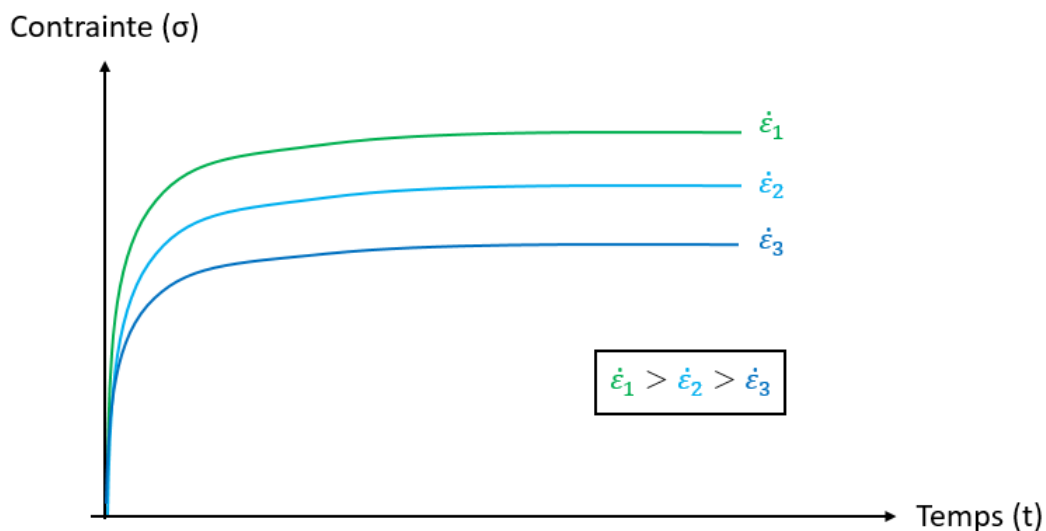


Figure I-2. Evolution de la contrainte au cours du temps lors d'un essai à vitesse de traverse constante.

### I.3. Micro-mécanismes de fluage dans les métaux et céramiques

Les mécanismes de déformation en fluage stationnaire peuvent grossièrement être classés suivant les conditions dans lesquelles le matériau est sollicité. Aux contraintes suffisamment basses, pour que les systèmes de glissement ne soient pas activés, les vitesses de déformation sont lentes et dues aux phénomènes de migration atomiques dans un gradient de contrainte. Aux contraintes plus élevées, la déformation est liée à l'activation des systèmes de glissement. Plusieurs mécanismes plus complexes peuvent ensuite être envisagés, et des investigations structurales et microstructurales sont nécessaires pour identifier les mécanismes impliqués. Ces investigations font souvent appel à de la microscopie optique et électronique, à balayage ou en transmission. Dans certains cas (exemple (Caillard & Martin, 1982b)) et lorsque le matériau le permet, la microscopie *in situ* se révèle être un outil indispensable. Cette technique précise résulte de la combinaison d'un microscope haute résolution environnemental, c'est-à-dire pouvant travailler à haute température, avec un système permettant la sollicitation mécanique de l'échantillon observé. Cela permet entre autre l'observation de la mobilité des dislocations dans le matériau, ce qui peut servir à identifier un mécanisme en particulier. Dans cette partie, nous présentons quelques-uns des mécanismes de déformation et de restauration les plus souvent rapportés dans la littérature, indépendamment de la nature du matériau cristallin.

### I.3.1. Carte de fluage

Ashby (MF. Ashby, 1972) a proposé une carte de fluage mettant en évidence les différents domaines correspondants à des mécanismes de déformation prépondérants. Ce genre de carte est établi pour la plupart des matériaux. Sur la Figure I-3, on peut voir l'allure d'une carte type. Les échelles sont normalisées : en abscisse on trouve le rapport de la température à la température de fusion du matériau, et en ordonnée le rapport de la contrainte sur le module de cisaillement. Cette normalisation des axes permet la comparaison de matériaux entre eux.

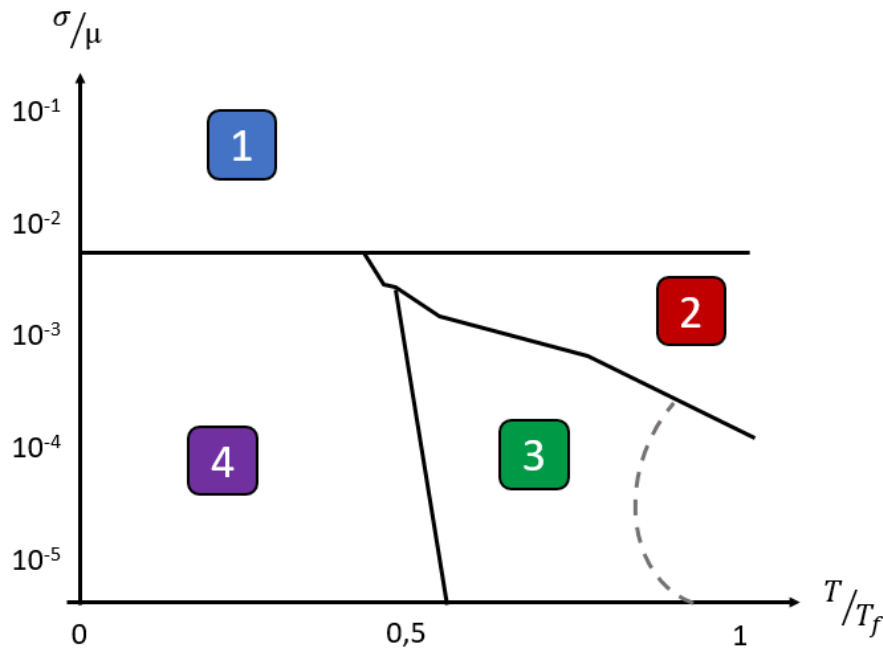


Figure I-3. Carte d'Ashby typique.

Sur la carte, quatre domaines sont mis en évidence :

- **Domaine 1 – Déformation plastique** : au-delà d'une certaine contrainte, la déformation du matériau est purement plastique, c'est-à-dire irréversible et sans dépendance à la vitesse de sollicitation.
- **Domaine 2 et Domaine 3 – Déformation viscoplastique** : dans une gamme de température suffisamment élevée, souvent au-delà de la moitié de la température de fusion, et pour des contraintes permettant de rester hors du domaine plastique, on dit que le matériau se déforme en fluage. Cette région est elle-même divisée en deux sous domaines : le **fluage-dislocation** et le **fluage-diffusion**. Ces régions correspondent à deux groupes de mécanismes de déformation bien distincts. Le fluage dit « dislocation » est caractérisé par une vitesse de fluage fonction puissance de la contrainte avec une puissance élevée ( $n \geq 3$ ). Il est caractérisé par la présence d'une densité de dislocations élevée dont le glissement et/ou la montée sont à l'origine de la déformation. Le fluage diffusion, est en revanche caractérisé par une dépendance linéaire de la vitesse de fluage à la contrainte ( $n = 1$ ). Dans ce cas, la déformation est causée principalement par des phénomènes de diffusion atomique.
- **Domaine 4 – Déformation élastique** : pour des températures allant de l'ambiante jusqu'à la moitié de la température de fusion, le matériau se comporte de manière élastique en dessous d'une contrainte seuil.

Sur ces cartes, la frontière entre les domaines 4 et 1 (frontière élastique – plastique) est souvent représentée par une droite parfaitement horizontale. Cependant elle peut dépendre de la température, une représentation plus rigoureuse décrirait la frontière par une droite dont la pente serait décroissante avec la température. Le comportement viscoplastique n'apparaît qu'à des températures élevées. En effet, les mécanismes associés à sa déformation (glissement des dislocations, diffusion atomique, ...) ne sont actifs qu'au-delà de températures seuils : on parle d'activation thermique. Dans les sections suivantes, nous présentons les principaux modèles décrivant la déformation par fluage-diffusion et fluage-dislocation.

### I.3.2. Fluage diffusion

A haute température et pour des contraintes inférieures à celles nécessaires à l'activation des systèmes de glissement, la déformation de solides cristallins se fait par transport de matière par diffusion des atomes et par glissement aux joints de grains. Les deux phénomènes opèrent simultanément, l'un accommodant la déformation de l'autre évitant une ruine prématurée du matériau. Ils sont indissociables mais souvent seul l'un des deux est responsable de la majeure partie de la déformation (J.-P. Poirier, 1985). Ce type de mécanisme est connu sous le nom de modèle de Nabarro-Herring, du nom des auteurs qui les premiers ont suggéré et étudié ces modes de déformation (Herring, 1950; Nabarro, 1948). La déformation du cristal résulte d'un mouvement de matière par diffusion en volume. Une variante de ce modèle faisant intervenir le mouvement de matière aux joints de grains a ensuite été proposée par Coble (Coble, 1963).

#### I.3.2.1. Modèle de Nabarro-Herring

Nabarro exprime les variations de concentrations en lacunes à la surface du grain sous l'effet d'un gradient de contraintes. Cette concentration dépend de l'orientation du grain par rapport à la contrainte appliquée : les surfaces en tension sont plus riches en lacunes et les zones en compression plus pauvres. Ce gradient de concentration en lacunes engendre un flux de lacunes à l'échelle du grain ce qui induit à son tour un flux d'atomes dans le sens opposé : les atomes ont tendance à migrer de la zone en compression vers la zone en traction. Un tel mécanisme est illustré en Figure I-4.

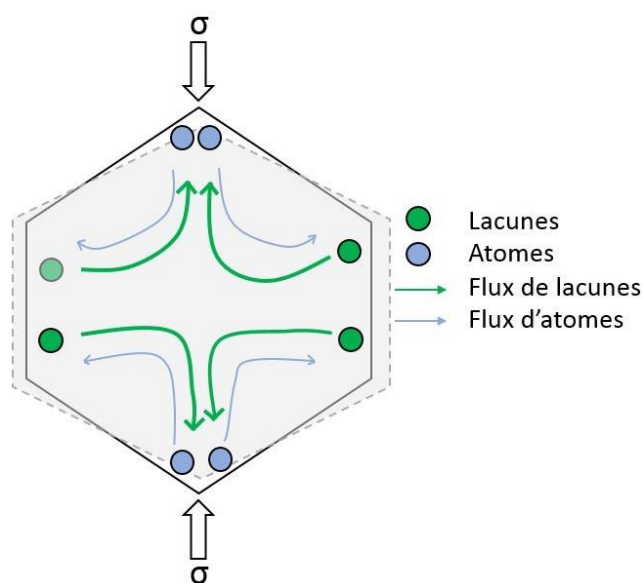


Figure I-4. Représentation du mécanisme de fluage-diffusion de Nabarro-Herring, à l'échelle d'un grain.

Ce modèle nécessite une source importante de lacunes et une certaine mobilité de celles-ci, d'où son activation à haute température.

L'analyse des auteurs permet d'établir une relation phénoménologique reliant la vitesse de déformation à la contrainte, la température et à des paramètres relatifs à la microstructure :

$$\dot{\epsilon} = \alpha \frac{D_{sd} \sigma \Omega}{d^2 kT} \quad (1.1)$$

Avec  $D_{sd}$  (SD pour « Self Diffusion ») le coefficient d'autodiffusion,  $\Omega$  le volume atomique,  $d$  la taille de grain et  $k$  la constante de Boltzmann.

Expérimentalement, on peut identifier la prédominance d'un régime de fluage de Nabarro-Herring lorsque la vitesse de déformation est linéairement dépendante de la contrainte et inversement proportionnelle au carré de la taille de grain. De plus, les observations microstructurales d'échantillons déformés mettent en évidence un allongement des grains et une absence de dislocations.

### 1.3.2.2. Modèle de Coble

Coble s'est proposé de décrire le cas où la diffusion était de nature intergranulaire plutôt qu'en volume. De la même manière que Herring, en faisant l'hypothèse d'un agencement de grains sphériques, il établit la relation suivante :

$$\dot{\epsilon} = \beta \frac{D_{gb} \delta \sigma \Omega}{kT d^3} \quad (1.2)$$

$D_{gb}$  représente le coefficient de diffusion le long des joints de grains et  $\delta$  est la largeur du joint de grain. Un mécanisme de déformation par transport le long des joints de grains est représenté en Figure I-5.

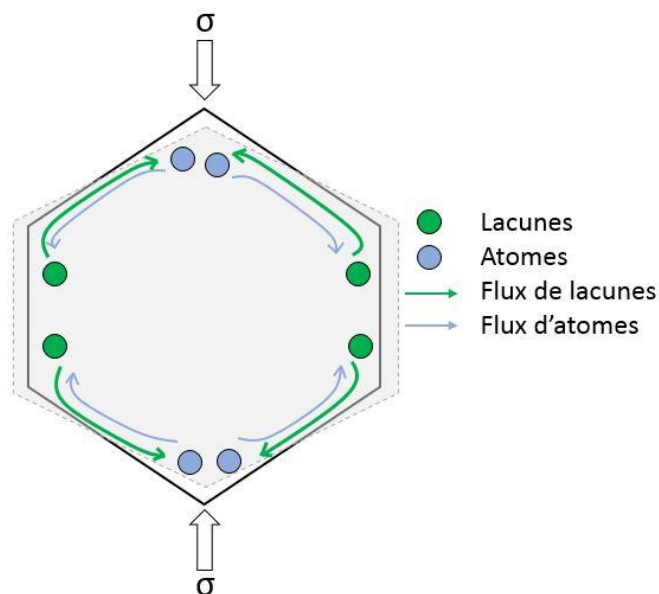


Figure I-5 . Modèle de Coble : description schématique du mécanisme de fluage-diffusion faisant intervenir les joints de grains.

Compte tenu du fait que le coefficient de diffusion intergranulaire est de plusieurs ordres de grandeur supérieur au coefficient de diffusion en volume, le modèle de Coble prévoit des vitesses de fluage dans l'ensemble plus importantes que le modèle de Nabarro-Herring. De plus, compte tenu des énergies



d'activation pour la diffusion intergranulaire plus faibles que pour la diffusion en volume, le modèle prévoit une déformation du matériau pour des températures plus faibles et pour des grains plus fins (Chokshi, 2002).

Lorsqu'un cristal flue dans le domaine du fluage-diffusion, les deux mécanismes opèrent simultanément, mais généralement un seul des deux mécanismes est responsable de l'essentiel de la déformation.

Il est en pratique difficile de distinguer un mécanisme de l'autre. Cela nécessite une connaissance précise des coefficients de diffusion intergranulaire et en volume, et en particulier leurs énergies d'activation respectives. Par ailleurs, la dépendance de la vitesse de fluage à la taille de grain constitue un autre indicateur puisqu'elle est inversement proportionnelle au carré et au cube de cette grandeur pour le fluage de Nabarro-Herring et Coble respectivement. Compte tenu des hypothèses simplificatrices du modèle (taille de grain unique, grains sphériques, isotropie de la diffusion...), une analyse des résultats expérimentaux fournit le plus souvent des valeurs comprises entre 2 et 3, c'est le cas de Knorr dans son analyse du fluage-diffusion dans le dioxyde d'uranium (Knorr et al., 1989).

### I.3.2.3. Glissement aux joints de grains

La déformation d'un cristal ne peut se faire par fluage-diffusion sans être accompagnée d'un phénomène de glissement intergranulaire qui permet d'assurer l'intégrité du matériau. Et inversement, le glissement intergranulaire s'accompagne nécessairement de transport de matière par diffusion (J.-P. Poirier, 1985). Ce mécanisme est illustré sur le schéma de la Figure I-6.

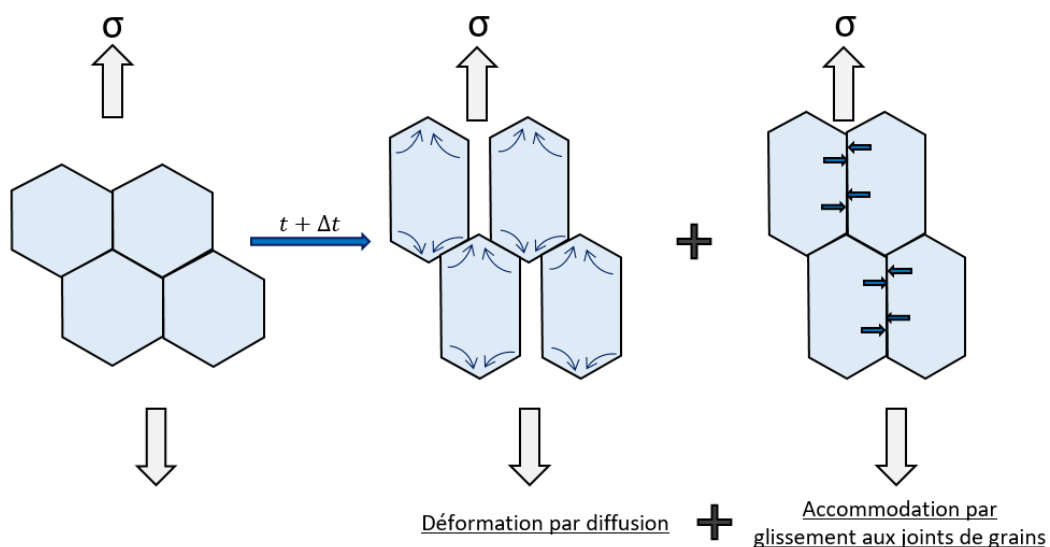


Figure I-6. Illustration du mécanisme couplé de déformation par glissement aux joints de grains et diffusion.

Le glissement des grains permet d'accommoder la formation de cavités au cours de la déformation.

Raj & Ashby (Raj & Ashby, 1971) ont étudié et modélisé le phénomène de glissement entre grains. En faisant l'hypothèse d'une interface 2D de forme sinusoïdale et d'un transport de matière qui se fait à la fois dans le volume et le long des joints de grains, ils ont établi l'expression suivante pour la vitesse de déformation :

$$\dot{\epsilon} = \alpha \frac{D_{eff} \sigma \Omega}{d^2 kT} \quad (1.3)$$

Avec  $D_{eff} = D_{sd} \left[ 1 + \frac{\pi \delta D_{gb}}{\lambda D_{sd}} \right]$  qui représente un coefficient de diffusion effectif prenant en compte les deux phénomènes de diffusion en volume ( $D_{sd}$ ) et aux joints de grains ( $D_{gb}$ ). La grandeur  $\lambda$  représente la période spatiale de la sinusoïde. Les auteurs approximent cette grandeur par deux diamètres de grains :  $\lambda = 2d$ .

Il arrive à l'inverse que la déformation soit principalement causée par du glissement aux joints de grains et que le fluage-diffusion ne serve qu'à accommoder cette déformation. C'est le cas notamment pour des matériaux aux grains très fins, typiquement submicroniques. La spécificité d'un tel mécanisme est la vitesse de déformation du matériau qui est bien plus rapide que lorsque seul le fluage-diffusion est actif. De plus, dans certaines circonstances, ce mécanisme peut conduire à une déformation très importante, sans dégradation rédhibitoire du matériau (Edington et al., 1976). Il s'agit alors d'une forme de superplasticité. Ashby et Verrall (M. F. Ashby & Verrall, 1973) ont proposé un modèle qui permettrait d'expliquer ce phénomène. Le schéma de la Figure I-7 illustre ce mécanisme.

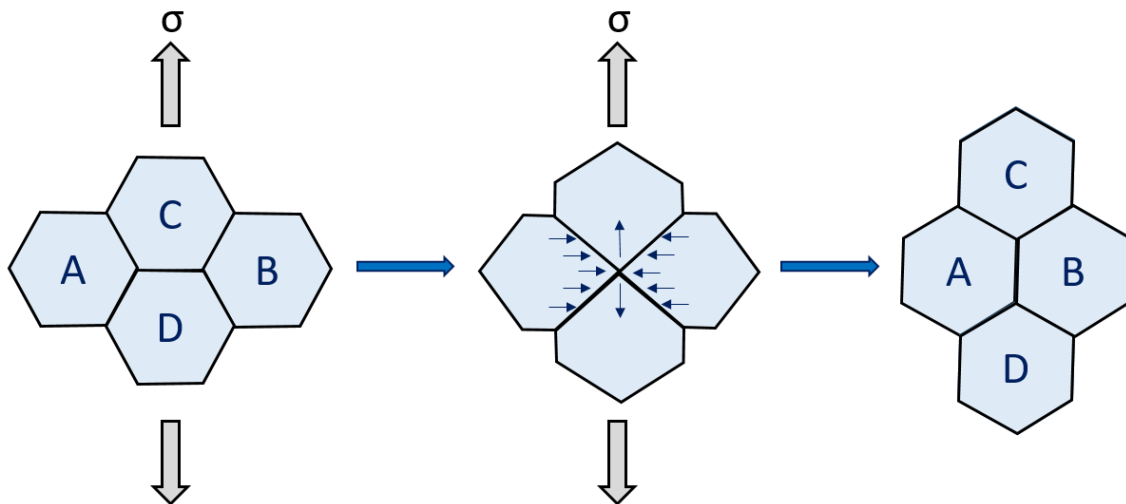


Figure I-7. Illustration du mécanisme décrit par Ashby et Verrall, qui permet de modéliser la superplasticité.

Ils proposent un réarrangement des grains par glissement intergranulaire qui conduit à des taux de déformation macroscopiques très élevés sans que la géométrie des grains ne soit modifiée. La diffusion de matière intervient dans le réarrangement de la forme des grains. Elle joue peu sur la déformation finale mais permet de garantir une intégrité de la microstructure.

Du modèle en découle une expression de la vitesse de déformation, permettant de relier la vitesse de fluage à la sollicitation :

$$\dot{\epsilon} = 100 \frac{\Omega D_v}{kT d^2} \left( \sigma - \frac{0.72 \Gamma}{d} \right) \left( 1 + \frac{3.3 \delta D_{gb}}{d D_{sd}} \right) \quad (1.4)$$

où  $\Gamma$  représente l'énergie interfaciale associée au joint de grain. Cette relation combine les deux phénomènes de diffusion, en volume et le long des joints de grains.

Les expressions des vitesses de déformation correspondant aux différents modèles montrent qu'il est difficile *a priori* de mettre en évidence un mécanisme plutôt qu'un autre. L'identification précise d'un

mécanisme de déformation nécessite une caractérisation de la microstructure par microscopie électronique à balayage ou transmission afin d'analyser la géométrie des grains.

### 1.3.3. Fluage dislocation

Le fluage-dislocation opère plutôt à plus haute température et pour des contraintes plus élevées que le fluage-diffusion puisque le fluage-diffusion n'a lieu de manière prépondérante que lorsqu'aucun système de glissement n'est activé. On le distingue expérimentalement par une dépendance forte de la vitesse de déformation à la contrainte, avec un exposant de cette dernière compris entre 3 et 8.

Parmi les premiers modèles permettant de formaliser le lien entre la loi de comportement macroscopique et des phénomènes physiques intervenant à l'échelle de la microstructure, on peut citer celui proposé par Weertman dès 1955 (Weertman, 1955) qui a évolué au cours des années suivantes [Weertman 1968 (Weertman, 1968), Weertman 1972 (Weertman, 1972)]. Il établit l'expression de la vitesse de fluage à partir du mécanisme physique suivant : des sources de Frank-Read sont activées sous l'effet de la contrainte. Des dislocations de signes opposés sont ainsi émises dans des plans de glissement parallèles et forment des dipôles stables qui empêchent les dislocations libres de glisser et ainsi durcissent le matériau pendant la phase de fluage primaire. Sous l'effet de la montée, les dislocations de tête vont s'annihiler, ce qui permet aux dislocations bloquées de glisser à leur tour et à la source d'émettre une nouvelle dislocation. On voit qu'au cours de ce processus, la déformation est due au glissement mais c'est la montée, processus le plus lent, qui va contrôler la cinétique de déformation. Ainsi le fluage quasi-stationnaire qu'est censé représenter ce modèle est dû à un équilibre qui s'établit entre le processus d'endommagement (création et glissement de dislocations) et de restauration (annihilation des dislocations par un mécanisme de montée). La vitesse de déformation est exprimée à partir de la loi d'Orowan :

$$\dot{\epsilon} = \rho b v \quad (1.5)$$

Où  $\rho$  est la densité de dislocations,  $b$  le vecteur de Burgers de ces dislocations et  $v$  leur vitesse moyenne.

Weertman montre que la vitesse de montée est proportionnelle au produit du coefficient d'autodiffusion du métal par la contrainte.  $\rho$  étant proportionnel à la contrainte élevée à une puissance  $p$  (supérieure ou égale à 2), l'approche prévoit que la vitesse de déformation suive une loi puissance de la contrainte avec un exposant supérieur à 3. En fonction du détail des mécanismes retenus, cet exposant est compris entre 4,5 et 6. Ces exposants sont effectivement couramment rapportés pour les métaux (Bird et al., 1969; Bretheau et al., 1979; J. P. Poirier, 1976; Weertman, 1968). Plusieurs formulations pour l'expression de la loi phénoménologique ont été proposées. Nous reprenons ici l'une d'entre elles, proposée par Bretheau :

$$\dot{\epsilon} = A \frac{\mu b}{kT} \left( \frac{\sigma}{\mu} \right)^n D \quad (1.6)$$

Dans cette expression,  $n$  est un exposant de l'ordre de 5,  $D$  représente un coefficient de diffusion, généralement supposé être le coefficient d'autodiffusion du métal dans l'approche de Weertman,  $\mu$  est le module de cisaillement. La quantité  $A$  est adimensionnée, elle est utile pour comparer divers essais sur un matériau identique.

D'une manière générale, ce mécanisme de déformation entre dans la catégorie des mécanismes de fluage-restauration. Dans ce cas, le mécanisme d'endommagement est celui lié à la multiplication de

dislocations, et le mécanisme de restauration, qui contrôle la cinétique de déformation, est la montée. Le mécanisme, décrit par Weertman initialement, a été un temps présenté comme le seul mécanisme opérant à des températures supérieures à la moitié de la température de fusion des métaux purs (Bird et al., 1969; J. P. Poirier, 1976; Weertman, 1968). L'argument essentiel pour justifier cette assertion est lié au fait que les énergies d'activation mesurées pour ces deux phénomènes sont très proches.

Une controverse est née cependant à la fin des années 70 suite au réexamen par Poirier (J. P. Poirier, 1978) d'un corpus de résultats expérimentaux. Les éléments justifiant ce réexamen étaient les suivants.

Les métaux à structure hexagonale semblaient échapper à la règle générale avec une énergie d'activation pour le fluage supérieur à l'énergie d'activation pour l'autodiffusion. Si un exposant de la contrainte de 3 est considéré convaincant, Poirier estime que des exposants supérieurs à 5, ce qui est fréquemment rencontré, traduisent plutôt des changements dans les mécanismes de déformation. Ainsi, l'auteur estime que les lois de comportement ne sont pas établies sur des plages de contraintes suffisamment larges permettant de garantir la robustesse de loi phénoménologiques de type (1.6).

Poirier conclut son réexamen des données publiées sur le fait qu'elles militent en réalité beaucoup moins qu'il ne l'est dit dans la littérature pour le mécanisme de fluage proposé par Weertman. En particulier, il note une courbure positive des vitesses de déformation dans une représentation d'Arrhenius ce qu'il considère comme un signe que plusieurs mécanismes de restauration sont opérants simultanément. La montée assistée par la diffusion en est un, mais il existe d'autres mécanismes de restauration comme le glissement dévié. Cette controverse n'est pas close mais Poirier (J.-P. Poirier, 1985) suggère d'associer une étude microstructurale de manière à statuer au cas par cas sur le ou les mécanismes impliqués dans le processus de déformation.

## **I.4. Spécificités des oxydes**

Les mécanismes évoqués ci-dessus, même s'ils ne couvrent qu'une petite partie de la complexité des mécanismes rencontrés dans les métaux sont, dans les grandes lignes, communs aux oxydes métalliques mono ou poly-cristallins. Cependant, la diversité des mécanismes dans ces derniers engendre un niveau de complexité supplémentaire à traiter, que ce soit dans l'approche expérimentale ou théorique. Certaines de ces difficultés, principalement liées à l'approche expérimentale, seront traitées dans les paragraphes suivants. Par ailleurs, il n'est pas possible ici d'aborder dans le détail le caractère spécifique du comportement des oxydes métalliques vis-à-vis du fluage à haute température. Néanmoins, il semble nécessaire de rappeler les différences de comportement les plus saillantes entre alliages et oxydes métalliques, afin d'éviter ultérieurement les plus gros écueils. Notons que ce sujet a fait l'objet de plusieurs travaux importants de synthèse (Cannon & Langdon, 1983, 1988; J. Philibert, 1984; Veyssière & Rabier, 1978) qui constituent le support de cette section. Mentionnons surtout l'ouvrage de (Bretheau et al., 1979) qui représente *a priori* l'effort le plus complet et le plus rigoureux dans ce domaine.

### **I.4.1. Conséquence de l'existence de plusieurs sous-réseaux**

#### **I.4.1.1. Mécanismes de diffusion**

Nous avons vu dans les parties I.3.2 et I.3.3 que les lois phénoménologiques du fluage stationnaire faisaient intervenir le plus souvent un coefficient de diffusion. Or l'une des principales spécificités

associées aux oxydes métalliques est la coexistence de deux sous-réseaux, l'un anionique et l'autre cationique. Il se pose alors inévitablement la question de savoir quel coefficient de diffusion il convient de considérer lorsque l'on étudie ce type de matériau. Là, plusieurs cas sont à distinguer suivant qu'il s'agisse de fluage de type Nabarro ou de fluage mettant en jeu le mouvement de dislocations.

Concernant le « fluage-diffusion », est-il possible de modifier une expression générale du type de celle établie par Raj et Ashby (équation 1.3) pour tenir compte de la coexistence de phénomènes de diffusion sur deux sous-réseaux ? Ce problème a été traité par (Li et al., 1966) et repris par (Burton, 1977), dans une revue relative à ce phénomène. Rappelons ici simplement que le transport de matière envisagé par un mécanisme de type Nabarro nécessite le transport d'une molécule de composé  $A_\alpha B_\beta$  s'il s'agit d'un oxyde binaire (on fait l'hypothèse que la composition de l'oxyde reste homogène à toutes les échelles). On peut montrer, par exemple en s'appuyant sur les hypothèses de Li (flux d'atomes de A et de B en proportion de la composition du matériau et principe de minimisation du taux de production d'entropie), que le flux moléculaire à considérer dans ce cas est celui associé au coefficient de diffusion effectif dont l'expression est donnée par la relation :

$$\frac{1}{D_{eff}} = \frac{\alpha}{D_A} + \frac{\beta}{D_B} \quad (1.7)$$

Où  $D_A$  et  $D_B$  représentent les coefficients d'autodiffusion des éléments A et B respectivement. Ainsi, l'équation (1.3) peut être modifiée en remplaçant  $D_{sd}$  et  $D_{gb}$  par des grandeurs effectives, fournies par la relation (1.7), où  $D_A$  et  $D_B$  représentent soit les coefficients de diffusion en volume, soit des coefficients de diffusion intergranulaires.

On retiendra de la forme de l'équation (1.7) que, dans le cas d'un mécanisme de fluage de type Nabarro-Herring, la déformation et la cinétique de déformation sont déterminées par la diffusion de l'élément dont le coefficient de diffusion est le plus faible.

La situation est plus complexe dans le cas du fluage faisant intervenir les dislocations. En effet deux cas sont à distinguer suivant que le mouvement des dislocations est contrôlé par du glissement (glissement visqueux par exemple) ou de la montée (fluage restauration). Le cas du premier mécanisme a été traité par (Chin et al., 1977) et s'apparente à un effet de type Portevin-Le-Châtelier qui conduit à l'établissement autour de la dislocation en mouvement d'une sur ou sous concentration en atomes d'un type ou d'un autre. Il peut apparaître par conséquent au voisinage de celle-ci un gradient de concentration en défauts ponctuels. Dans ces conditions, le nuage de défauts doit se déplacer avec la dislocation et nous tombons dans le cas de figure de l'inter-diffusion où la relation de Darken s'applique :

$$\tilde{D} = (\chi_a D_b + \chi_b D_a) f_T \quad (1.8)$$

Où  $\chi_a$  et  $\chi_b$  sont les fractions molaires des éléments a et b,  $D_a$  et  $D_b$  les coefficients d'auto-diffusion de a et de b et  $f_T$  représente le facteur thermodynamique  $f_T = (1 + \frac{\partial \log(\gamma_i)}{\partial \log(\chi_i)})$ , où  $\gamma_i$  est le coefficient d'activité thermodynamique de l'élément considéré dans un mélange binaire où il figure avec une fraction molaire  $\chi_i$ . Concernant le mouvement des dislocations par montée, la situation est différente et Chin (Chin et al., 1977) montre, avec les arguments semblables à ceux développés pour le fluage diffusion (la montée d'une dislocation nécessite le mouvement d'une molécule de  $A_\alpha B_\beta$ ), que le coefficient de diffusion à considérer est celui de la relation (1.7). Bien sûr, l'influence de la diffusion aux joints de grains peut venir modifier la nature des coefficients de diffusion à considérer dans ces relations.

Dans un oxyde binaire, il est courant que l'un des deux coefficients de diffusion, de l'anion ou du cation, soit dominant. Ainsi, deux cas peuvent se produire compte tenu des expressions (1.7) et (1.8). **On peut en effet s'attendre à ce que l'expression (1.7) s'applique dans le cas du fluage diffusion ou du fluage dislocation pour lequel le phénomène limitant (et éventuellement même le mécanisme de déformation lui-même) serait la montée. La cinétique de déformation sera alors contrôlée par le mouvement de l'élément dont le coefficient de diffusion est le plus faible. Dans le cas d'un mécanisme de déformation contrôlé par le glissement des dislocations, la vitesse de déformation sera au contraire déterminée par le mouvement de l'élément dont le coefficient de diffusion est le plus élevé.**

Or, le coefficient de diffusion s'exprime au premier ordre comme le produit de la concentration en défaut par le coefficient de diffusion du défaut impliqué dans le mécanisme de transport. Sans doute pour cette raison, le coefficient d'autodiffusion le plus faible correspond-il au défaut minoritaire. Ainsi, la mesure d'une propriété de fluage dans un oxyde qui peut être non-stœchiométrique, peut être un moyen d'étudier le comportement des défauts minoritaires, par ailleurs souvent difficiles à caractériser par des méthodes directes du fait de leur faible abondance (J. Philibert, 1984).

#### **I.4.1.2. Structure des dislocations et plans de glissements**

Si les contraintes auxquelles le matériau est soumis sont suffisantes, les propriétés viscoplastiques observées à une échelle macroscopique sont une manifestation du comportement des dislocations : de leur mouvement par glissement ou montée ; de leurs interactions entre elles ou avec les défauts cristallins préexistants (impuretés, joints de grains, macles etc.). Dans des zones situées à plusieurs distances atomiques de la ligne de dislocation, on peut décrire l'effet de celle-ci sur le cristal par un champ élastique. À proximité de la ligne par contre, les lois de l'élasticité linéaire ne s'appliquent pas et l'agencement des atomes autour de celle-ci est profondément modifié. On parle de cœur de la dislocation. Or le comportement des dislocations est très étroitement lié à leurs structures de cœur, et force est de constater que celles-ci présentent une diversité bien plus grande dans les oxydes que les structures rencontrées dans les matériaux métalliques. Il suffit pour s'en convaincre de considérer le nombre souvent important d'atomes dans une maille conventionnelle d'un oxyde, atomes qui plus est de nature chimique différente.

La structure de cœur d'une dislocation peut être compacte ou étendue et dans certaines conditions, il est avantageux d'un point de vue énergétique à ce qu'une dislocation se dissocie en deux dislocations partielles séparées par une faute d'empilement. Expérimentalement, le cœur d'une dislocation est difficilement observable mais la largeur de la dissociation si elle existe est déterminée par l'énergie de faute d'empilement qui est créée du fait de la dissociation (Veyssière et al., 1978). Ainsi une énergie de faute d'empilement élevée n'est pas propice à la dissociation d'une dislocation. De plus, une abondance de défauts ponctuels, telle que l'on peut en rencontrer dans les oxydes par dopage ou du fait de conditions thermodynamiques propices, peut contribuer à abaisser les énergies de faute d'empilement et donc favoriser les dissociations.

On note également que la complexité du problème relatif à la description précise du cœur d'une dislocation peut être simplement liée à la taille des mailles cristallines rencontrées dans les oxydes et par conséquent au vecteur de Burgers associé à une dislocation parfaite. Veyssière (Veyssière, 1977) propose une structure de dislocation coin pour le spinelle comportant quatre plans cristallins supplémentaires simplement pour conserver la périodicité du réseau. Du fait de l'énergie élevée

associée à cette configuration, il propose un mécanisme de dissociation permettant une relaxation de l'énergie du système.

Une difficulté essentielle à décrire le cœur des dislocations et spécifique aux solides ioniques en général et aux oxydes en particulier concerne la charge portée par les atomes du réseau. En effet, comme le fait remarquer Veyssière (Veyssière & Rabier, 1978), il existe un certain arbitraire à choisir quels atomes mettre en bordure de dislocation. Veyssière indique également qu'au voisinage du cœur des dislocations, les centres de gravité des charges sont fortement déplacés ce qui induit des phénomènes de polarisation qui sont difficiles à prévoir. Si des efforts se multiplient pour décrire par des outils de calculs aux échelles atomiques les structures de dislocations les plus probables, force est de constater que, pour les oxydes d'actinides en particulier, ce travail se heurte au double problème de la taille des boîtes de simulation et du fait que ces matériaux, comme bon nombre d'oxydes, sont iono-covalents. De ce fait, les calculs utilisant les potentiels empiriques sont sans doute mal adaptés pour décrire la complexité des liaisons. On notera cependant des efforts récents à développer des méthodes de calculs utilisant des potentiels dits « à charges variables » qui sont sans doute plus appropriés à la description des agencements d'atomes dans les zones très perturbées du cristal situées autour des dislocations (A. Soulié et al., 2018; A. Soulié, 2018).

Finalement, même si quelques notions générales se dégagent de cette partie et dont les points de départ sont établis à partir d'une analogie avec les alliages métalliques, il n'en reste pas moins que compte tenu de la présence de différents sous-réseaux dans les oxydes, des charges portées par les atomes, de la complexité des liaisons atomiques... des règles générales peuvent s'avérer difficiles à établir. La cartographie des modes de déformation de l'alumine dopée à la magnésie constitue un bon exemple d'une telle complexité (Heuer et al., 1980) et une approche expérimentale s'avère indispensable. Par exemple, on trouve dans les oxydes de nombreux contre-exemples à la règle générale relative aux métaux de structure CFC qui stipule que les plans de glissement sont constitués des plans à plus fortes densités atomiques.

## **1.4.2. Rôle de la non-stœchiométrie, effets directs et indirects**

### **1.4.2.1. Effets dits « directs »**

Une des propriétés thermodynamiques caractéristique des oxydes et d'autres céramiques est leur capacité à présenter un domaine stable de composition non-stœchiométrique. Dans les cristaux ioniques, cette propriété est liée à des changements de valence des cations et l'écart à la stœchiométrie est alors fixé, s'il y a une possibilité de mise à l'équilibre avec l'environnement gazeux, par les conditions thermodynamiques qui prévalent. On montre en effet que la variance d'un oxyde binaire est de trois, c'est-à-dire que les trois grandeurs thermodynamiques intensives qui déterminent la composition du matériau sont la température, la pression totale et la pression partielle d'oxygène. Il existe bon nombre d'études dans lesquelles une propriété est mesurée à une température donnée en fonction de la composition du matériau (ex. (Hj. Matzke, 1969)). Cette approche n'est pas souhaitable à plusieurs titres :

- 1- Une variable de composition est une propriété, dépendant au même titre que toutes les autres des grandeurs thermodynamiques d'environnement. On est en droit de s'interroger sur le sens que revêt l'expression d'une propriété exprimée comme fonction d'une autre propriété, qu'il est nécessaire de déterminer ou pour laquelle il faut faire confiance aux résultats de la littérature.

2- Expérimentalement, il peut s'avérer difficile voire impossible de fixer la stœchiométrie *a priori*. Par exemple, au voisinage de la stœchiométrie dans  $UO_{2+x}$ , de très faibles variations de  $x$ , qui ne sont quasiment pas mesurables même par thermogravimétrie, peuvent engendrer des variations du potentiel chimique de l'oxygène très importantes. Il devient dans ce cas futile de vouloir « imposer » la stœchiométrie autrement qu'en mettant à l'équilibre le solide avec la phase gazeuse dont on maîtrise l'activité d'oxygène.

3- Les propriétés des oxydes, et le fluage en particulier, sont souvent dépendantes des concentrations en défauts ponctuels. Or les défauts ponctuels, qu'ils soient majoritaires ou minoritaires, s'avèrent être des fonctions puissance de la pression partielle d'oxygène. Ainsi, Bretheau propose une modification de l'expression (1.6) qui incorpore une dépendance phénoménologique à la pression partielle d'oxygène compte tenu du fait que la plupart des mécanismes de fluage stationnaires envisagés est limitée par un coefficient de diffusion, produit d'une concentration en défauts par un coefficient de migration de ce même défaut :

$$\dot{\varepsilon} = A(T) \frac{\mu b}{kT} \left( \frac{\sigma}{\mu} \right)^n \left( \frac{p_{O_2}}{p_{O_2}^{ref}} \right)^\alpha \quad (1.9)$$

$A(T)$  est une fonction de type Arrhenius, dont l'énergie d'activation a un sens physique bien déterminé, et  $p_{O_2}^{ref}$  est une pression de référence prise généralement égale à 1 atmosphère, c'est-à-dire environ  $10^5$  Pa. Cette formule vaut pour une microstructure donnée. L'exposant  $\alpha$  de la pression d'oxygène est également lié aux mécanismes mettant en jeu des défauts ponctuels et plus précisément aux équilibres quasi-chimiques auxquels ils participent. Ainsi, on peut tenter d'attribuer un sens physique à cet exposant. Une expression de la vitesse de fluage stationnaire en fonction de la composition du matériau, si tant est que ce soit possible, rend plus difficile l'interprétation des résultats expérimentaux.

En dehors des phénomènes d'oxydation qui peuvent être rencontrés, l'interprétation macroscopique de résultats de fluage de systèmes métalliques ne présente pas ce degré de complexité.

Malgré tout, cette complexité peut être utilisée à bon escient dans l'étude des oxydes non-stœchiométriques. En effet, la vitesse de déformation en fluage établie par Bretheau *et al.* (Bretheau et al., 1981) dans le cas de l'oxyde de cuivre suit une loi puissance de la pression partielle d'oxygène dont l'exposant ( $0,4 \pm 0,1$ ) est identique à la valeur de l'exposant de la pression partielle dans l'expression du coefficient d'autodiffusion de l'oxygène (0,4, (Perinet et al., 1980)). Dans ce système, l'oxygène est l'élément dont le coefficient de diffusion est le plus lent. Comme nous l'avons indiqué au paragraphe I.4.1, c'est un des éléments qui leur permet de conclure vis-à-vis du mécanisme de fluage à forte contrainte qui prédomine dans cet oxyde.

#### I.4.2.2. Effets indirects

Dans la section précédente (I.4.1), nous avons évoqué certaines difficultés spécifiques aux oxydes liées à la connaissance du cœur des dislocations et aux interactions susceptibles de se produire en présence de défauts ponctuels en concentrations pouvant être élevées. La non-stœchiométrie vient généralement rajouter de la complexité à cette situation. L'hypothèse relative à son influence, décrite dans le paragraphe précédent, correspond finalement au cas de figure le plus simple pour lequel la cinétique de déformation est contrôlée par la montée ; et une expression de la vitesse de montée est établie, proportionnelle à un coefficient de diffusion en volume. Or précisément, les variations de



stœchiométrie et de concentrations en défauts ponctuels associées peuvent provoquer une modification de la structure de cœur des dislocations induisant des changements importants de mécanismes. Par exemple, Duclos (Duclos, 1981) conclut à une augmentation de la mobilité intrinsèque des dislocations dans la spinelle  $\text{MgO}(\text{Al}_2\text{O}_3)$  qui ne peut pas s'expliquer uniquement par une augmentation du coefficient de diffusion de l'ion le plus lent. Un changement de stœchiométrie, en modifiant le cœur de la dislocation, peut en effet entraîner un changement dans l'expression de la vitesse de montée (J. Philibert, 1984), des modifications de l'énergie de faute d'empilements (Duclos, 1981), une modification des forces de Peierls (Bretheau et al., 1979) et finalement des changements de système de glissement facile. De tels changements sont répertoriés pour  $\text{UO}_{2+x}$  comme nous le verrons ultérieurement.

On peut aussi mentionner les effets liés aux liaisons iono-covalentes qui caractérisent les oxydes. Lorsque ces matériaux s'éloignent de la stricte stœchiométrie, une modification profonde de la nature des défauts majoritaires peut se produire. Ceux-ci sont susceptibles de former des agrégats dont la charge est inférieure à la somme des charges des défauts ponctuels qui les constituent lorsque ceux-ci sont isolés. Ces effets sont rapportés dans plusieurs oxydes binaires pour les lacunes métalliques dans le cas où la non-stœchiométrie est portée par le réseau cationique ( $(\text{NiCo})_{1-x}\text{O}$  (Stiglich et al., 1973),  $\text{Fe}_{1-x}\text{O}$  (Koch & Cohen, 1969), et pour les interstitiels d'oxygène dans le cas où elle est portée par le réseau anionique (exemple dans l' $\text{UO}_2$  (Willis, 1978)).

A forts écarts à la stœchiométrie, de telles évolutions peuvent conduire à une variété de défauts et de gradients de défauts à proximité du cœur des dislocations (J. Philibert, 1984).

On voit à travers ces exemples que les effets de non-stœchiométrie peuvent être d'une grande complexité. Rares sont les systèmes oxydes pour lesquels ces informations sont bien répertoriées.

#### **I.4.3. Mécanismes de déformation macroscopiques et manifestations microstructurales**

Ce dernier développement n'a pas vraiment pour but d'illustrer la spécificité des oxydes vis-à-vis des systèmes métalliques, mais plutôt de dégager quelques règles générales de l'étude de différents oxydes métalliques qui vont nous guider par la suite dans notre recherche des mécanismes élémentaires responsables de la déformation viscoplastique du matériau.

Le point de départ d'une étude relative aux mécanismes de fluage secondaire consiste le plus souvent à identifier à partir d'essais mécaniques macroscopiques une loi de comportement du type de celle présentée dans la section précédente (équation 1.9, section I.4.2), reliant vitesse de déformation et contrainte. Les valeurs des paramètres de ces lois, déterminées dans une certaine gamme de conditions thermodynamiques, peuvent ensuite être comparées à des valeurs déduites de modèles mettant en jeu des micro-mécanismes dont on a pu vérifier la pertinence.

Ce type de démarche est typique de l'étude relative à l'oxyde de cuivre évoquée ci-dessus (Bretheau et al., 1981), à notre connaissance la plus complète pour un oxyde sur le sujet, et pour laquelle il est rapporté une dépendance à la pression d'oxygène identique pour le fluage et pour le coefficient d'autodiffusion de l'élément le plus lent. Les auteurs d'ailleurs consolident leur analyse en discutant des énergies d'activation qui s'avèrent être fort comparables pour les deux phénomènes ( $1,8 \pm 0,3$  eV pour le fluage et 1,6 eV (Perinet et al., 1980) pour l'autodiffusion). Ce genre de démarche a aussi été mis en œuvre pour l'oxyde de cobalt  $\text{Co}_{1-x}\text{O}$  (Dominguez-Rodriguez et al., 1982) et l'oxyde de nickel  $\text{Ni}_{1-x}\text{O}$  (Cabrera-Cano & Castaing, 1980), oxydes dont la non-stœchiométrie est portée par le réseau des

cations. Les mesures de fluage semblent indiquer dans le premier cas un rôle des interstitiels d'oxygène et dans le second cas des lacunes d'oxygène.

Au-delà de la sensibilité à la pression partielle d'oxygène ou à la composition de l'oxyde, l'exposant de la contrainte fournit une indication supplémentaire relative à la nature de mécanisme de déformation. Cannon et Langdon (Cannon & Langdon, 1988) rappellent en effet que les céramiques présentent grossièrement deux classes de comportement qui se distinguent macroscopiquement par un exposant de la contrainte plutôt voisin de 3 ou plutôt voisin de 5.

Le premier exposant ( $n=3$ ) est associé soit à un mécanisme de montée pure (cinétique et mécanisme de déformation déterminés par la montée) soit à un mécanisme combiné de glissement et de montée dans lequel la cinétique de déformation est fixée par du glissement visqueux. Ce dernier mécanisme, proche de l'effet Portevin-Lechâtelier ou Suzuki déjà évoqués, suppose une atmosphère d'impureté qui accompagne et ralentit le déplacement de la dislocation. Finalement, les auteurs considèrent que le coefficient de diffusion en facteur de l'équation (1.6) et présent de manière implicite dans l'équation (1.9) est celui de l'impureté elle-même. Les modèles de déformation par montée basés sur l'expression de la loi d'Orowan (1.5), sous l'hypothèse d'une vitesse de montée proportionnelle à la contrainte et d'une densité de dislocations libres proportionnelle au carré de la contrainte, prévoit un exposant de la contrainte de 3. Le fluage d'échantillons de spinelle (composition  $\text{MgO}(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1.1}$ , voir Duclos *et al.* (Duclos *et al.*, 1978) ou de  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  (Firestone & Heuer, 1976)) correspond à ce type de comportement. Dans l'étude de Duclos, les auteurs mesurent néanmoins des exposants de la contrainte supérieure à 3 mais ne concluent à un mécanisme de montée pure qu'après un examen détaillé de la microstructure. Celle-ci ne présente que des dislocations isolées rendues sessiles par un phénomène de dissociation.

Un exposant de la contrainte de l'ordre de 5 est en revanche systématiquement associé à un mécanisme de type fluage-restauration semblable à celui décrit dans la section 1.3.3. Par ailleurs, ce mode de déformation est associé au cours de la phase de régime permanent à une microstructure typique caractérisée par la présence de sous-joints bien définis séparant dans le cas de polycristaux des zones de faible désorientation à l'intérieur des grains originaux du matériau. Ce type de microstructure est facilement distinguable du fluage par montée pure ou glissement visqueux (J. Philibert, 1984). Un examen plus détaillé des sous-joints révèle qu'ils sont formés de parois de dislocations. Leur rôle est essentiel à la compréhension du mécanisme de fluage car ces parois conduisent au durcissement du matériau dans un premier temps. C'est alors leur capacité à absorber de nouvelles dislocations ou leur rôle comme lieu d'annihilation de dislocations constituant la paroi qui détermineront la cinétique de déformation en fluage stationnaire. La structure, les mécanismes de formation ou d'évolution des sous-joints sont très complexes et sont au cœur des mécanismes de déformation et des cinétiques contrôlant la déformation. Le mécanisme de formation des sous-joints dit « par tricotage » a été pour la première fois proposé par Lindroos en Miekko Oja (Lindroos & Miekko-Oja, 1968) dans le cas d'alliage aluminium-magnésium et a été ensuite observé dans la magnésie par Reppich et Hüther (Reppich, 1974). Il donne lieu à l'apparition de cellules de formes géométriques variables (rectangles, carrés, hexagones...) en fonction des systèmes de glissement qui interagissent. Si l'existence de ces sous-joints, associée à des sous-grains ne contenant que peu de dislocations sont considérés comme des manifestations de fluage-restauration, cette observation ne constitue pas en elle-même une indication du mode de restauration de la microstructure. Deux mécanismes sont répertoriés : la restauration par montée des dislocations dans la paroi et par glissement dévié. Le premier mécanisme conduit à une vitesse de déformation stationnaire proportionnelle au coefficient

de diffusion le plus faible et a été invoqué dans le cas de la magnésie (Reppich, 1974). Le second constitue un mécanisme à la fois de réorganisation des dislocations qui constituent les parois et d'annihilation de celles-ci. Il est abordé d'un point de vue théorique par Friedel (Friedel, 1977) et invoqué de manière très détaillée dans l'étude de la déformation par fluage dans l'aluminium (Caillard & Martin, 1982a, 1982b).

## I.5. Synthèse

Dans ce chapitre, nous avons présenté les principales caractéristiques de l'évolution au cours du temps de la déformation et de la contrainte lors d'un essai de fluage ou d'un essai à vitesse de déformation constante. Les lois de déformation viscoplastique en fluage stationnaire qui en découlent permettent d'établir, pour un oxyde non-stœchiométrique, des valeurs de paramètres caractérisant la dépendance de la vitesse de déformation à la contrainte, la température et la pression partielle d'oxygène. A ce sujet, une analyse en fonction de la composition du matériau plutôt que la pression partielle d'oxygène est à proscrire aussi bien pour des raisons pratiques que théoriques. La comparaison des valeurs de ces paramètres à des expressions théoriques établies sous certaines hypothèses souvent très restrictives, est indicative du type de micro-mécanisme mis en jeu. En comparaison aux alliages métalliques, la diversité de situations rencontrées lors de l'étude des céramiques et des oxydes non-stœchiométriques en particulier rend l'identification de mécanismes de déformation délicate.

Nous avons identifié quelques spécificités des céramiques oxydes, dont l'origine est la nature même des liaisons iono-covalentes :

- Existence de plusieurs sous-réseaux cristallins, anioniques et cationiques, qui confère au cœur des dislocations une plus grande complexité et variété. Plusieurs plans atomiques supplémentaires sont souvent nécessaires pour respecter la composition du matériau. La question se pose bien sûr alors de la charge éventuelle portée par les dislocations.

- Existence de concentrations en défauts chargés dont la complexité et la concentration qui est « naturellement » élevée augmente avec la non-stœchiométrie. Cette dernière est alors de nature à modifier les systèmes de glissement faciles, par exemple en augmentant la propension des dislocations à la dissociation.

Il est possible néanmoins de distinguer des comportements types en fonction de la température et surtout du niveau de contrainte. A faibles contraintes, on peut s'attendre à une vitesse de déformation proportionnelle à la contrainte et à un mécanisme et une cinétique de déformation déterminés par la diffusion des atomes constitutifs du matériau. La grandeur physique à considérer dans ce cas en préfacteur de la loi stationnaire est le coefficient d'autodiffusion en volume ou au joint de grain le plus faible des deux types d'ions (anions ou cations). A fortes contraintes, la situation est moins claire mais on distingue grossièrement deux types de comportement avec une dépendance de la vitesse de déformation en régime stationnaire à une fonction puissance de la contrainte dont l'exposant est de l'ordre de 3 ou 5. Un exposant de l'ordre de 3 est considéré comme étant plutôt associé à mécanisme de montée pure (Duclos et al., 1978) ou de glissement visqueux, alors qu'un exposant de l'ordre de 5 est jugé caractéristique d'un mécanisme de fluage-restauration. Cependant, l'identification d'un mécanisme par cette méthode uniquement est loin d'être suffisante puisque le phénomène de restauration peut être due au glissement dévié ou à la montée. Dans ce dernier cas, on s'attend aussi à ce que la cinétique de déformation soit encore contrôlée par la diffusion de l'ion le plus lent. Pour lever les ambiguïtés, il est essentiel de déterminer, lorsque la composition du matériau peut varier, la

dépendance de la vitesse de déformation à la pression d'oxygène. Ainsi, comme dans le cas des oxydes de nickel, de cobalt, de fer mais surtout de cuivre (Bretheau et al., 1981), l'exercice consiste à corréler la dépendance du fluage stationnaire à celui du coefficient d'autodiffusion le plus faible lorsque celui-ci est disponible. Des essais sur monocristaux d'orientations différentes permettent parfois de compléter ce genre d'étude et des essais sous atmosphères contrôlées et à différentes températures permettent potentiellement la mesure d'une véritable énergie d'activation.

L'exemple de la magnésie montre qu'il faut malgré tout rester prudent. Il a été rapporté pour ce matériau (Langdon & Pask, 1970) une puissance de la contrainte de l'ordre de 3, alors que la microstructure indique un mécanisme de fluage-restauration (Reppich, 1974). Une étude par microscopie électronique à transmission ou balayage s'avère donc nécessaire pour comprendre dans le détail le mécanisme de déformation et/ou de restauration. Ce dernier se caractérise par la formation de sous-grains faiblement désorientés les uns par rapport aux autres. Les sous-joints sont constitués de parois de dislocation formées d'un agencement plus ou moins régulier de cellules de formes géométriques diverses.

Il n'existe donc pas de règle simple permettant d'identifier les mécanismes élémentaires de déformation sous contrainte à haute température des oxydes, et des approches expérimentales et théoriques à plusieurs échelles s'avèrent indispensables. Il est en effet nécessaire de disposer de plusieurs éléments pour démontrer le mécanisme mais le plus souvent, ces éléments constituent plutôt un faisceau de présomptions que des preuves irréfutables d'un mécanisme ou d'un autre du fait de la complexité des phénomènes mis en jeu. De plus, ces approches nécessitent une bonne connaissance générale des propriétés physiques du matériau. Dans le chapitre suivant, nous nous focalisons donc sur le dioxyde d'uranium non-stœchiométrique et analysons notre connaissance actuelle de ce matériau sous l'éclairage que nous venons d'apporter.

# Chapitre 2 : Structure, propriétés physiques et comportement viscoplastique du dioxyde d'uranium

## II.1. Introduction

Nous avons vu dans les parties précédentes l'importance qu'il y a à corrélérer la microstructure du matériau déformé, les propriétés de transport atomique et les propriétés viscoplastiques si l'on souhaite identifier les mécanismes de déformation d'un matériau à hautes températures. Ce chapitre est donc consacré à l'étude du dioxyde d'uranium exclusivement. Dans un premier temps, nous nous intéressons à la structure cristalline de ce matériau et à la propriété qu'il a d'exister sur un large domaine de composition. En particulier, les liens établis entre non-stœchiométrie, défauts ponctuels et phases d'oxydes supérieurs sont discutés. Ensuite, un état de l'art des connaissances des phénomènes de diffusion des ions dans le cristal est dressé. Pour finir, une synthèse de la connaissance relative au comportement viscoplastique du dioxyde d'uranium à haute température est proposée, en insistant sur les aspects susceptibles d'être investigués plus en détails dans le cadre de ce travail.

## II.2. Diagramme de phase et défauts ponctuels dans $UO_{2+x}$

### II.2.1. Structure et non-stœchiométrie de l'oxyde

#### II.2.1.1. Structure cristalline

Le dioxyde d'uranium est un solide ionique (céramique), dont la température de fusion est d'environ 2850°C (Fink, 2000). Sa structure cristalline appartient au groupe d'espace  $Fm\bar{3}m$ , qui correspond à la

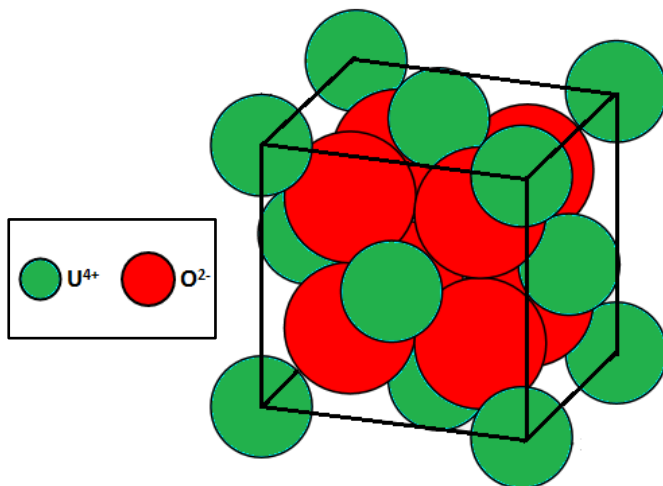


Figure II-1. Maille cristallographique du dioxyde d'uranium.

structure de la fluorine (CaF<sub>2</sub>). Celle-ci peut être décrite comme étant constituée d'un réseau CFC de cations dont tous les sites tétraédriques sont occupés par des anions (Figure II-1). On peut aussi décrire cette structure comme un agencement régulier, tridimensionnel de cubes d'oxygènes dont un centre sur deux est occupé par un cation. La structure fluorine présente donc un site interstitiel susceptible d'accueillir des atomes d'oxygène en excès par rapport à la composition stœchiométrique. Cet excès d'oxygène est accommodé d'un point de vue des charges par l'oxydation d'uranium à un état de

valence supérieur à +IV. On dit que l'oxyde est non-stœchiométrique, noté  $UO_{2+x}$

Le paramètre de maille mesuré par Grønvold (Grønvold, 1955), à 20°C et pour la composition nominale de l'oxyde, est de 0,547 nm. Dans une description ionique du matériau, celui-ci peut être considéré

comme constitué d'ions  $O^{2-}$  et  $U^{4+}$ . Cependant les liaisons interatomiques présentent un caractère covalent non négligeable. Ainsi, Sawbridge *et al.* (Sawbridge & Sykes, 1970) évaluent la part du caractère ionique dans la liaison en utilisant l'approche de Pauling (Pauling, 1960) :

$$I_{U-O} = 1 - \exp\left(-\frac{1}{4}(\chi_O - \chi_U)^2\right) \quad (2.1)$$

Avec  $\chi_O$  et  $\chi_U$  les électronégativités respectives au sens de Pauling de l'oxygène et de l'uranium, et  $I_{U-O}$  la part ionique de la liaison U-O. La liaison est ainsi estimée ionique à 63% (Sawbridge & Sykes, 1970). Cette valeur est susceptible de diminuer à mesure que l'écart à la stœchiométrie augmente.

### II.2.1.2. Diagramme de phase U-O

La Figure II-2 représente le diagramme de phase binaire U-O.

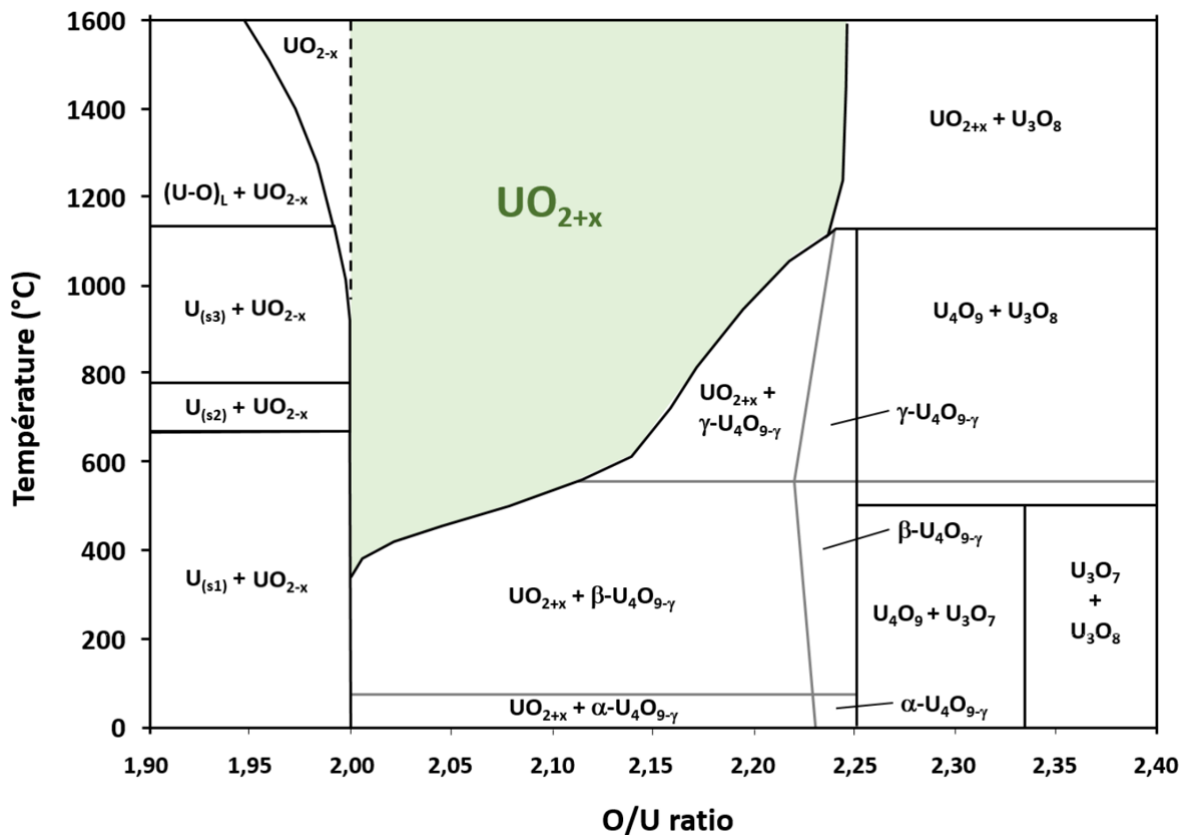


Figure II-2. Diagramme de phase U-O. [Higgs *et al.* 2007]

Ce diagramme appelle plusieurs commentaires. Le système U-O présente de nombreuses phases selon le domaine de composition et de température. Le dioxyde d'uranium dans sa structure fluorine,  $UO_{2+x}$ , présente un large domaine monophasé à haute température (jusqu'à 1600°C) avec une gamme de composition allant de 1,95 à 2,25. Dans des environnements extrêmement réducteurs et pour des températures supérieures à 1300°C, l'oxyde peut devenir sous-stœchiométrique. À température ambiante, le matériau initialement sur-stœchiométrique devient biphasé et présente un mélange d' $UO_{2+x}$  et d' $U_4O_{9-\gamma}$ .

La règle des phases de Gibbs exige qu'au-delà de la connaissance de la température et de la pression totale en équilibre avec le solide, une grandeur thermodynamique supplémentaire est nécessaire pour fixer la composition du matériau : il s'agit de la pression partielle d'oxygène.

### II.2.2. Equilibre entre l'oxyde et son environnement

On peut s'attendre à ce que la concentration en défauts ponctuels, et de nombreuses propriétés physiques à haute température dépendent fortement de la composition du matériau, c'est-à-dire de son écart à la stœchiométrie  $x$ . Or, en système ouvert, lorsque le matériau est en mesure de se mettre à l'équilibre avec une phase gazeuse, la composition du matériau dépend nécessairement de la pression partielle d'oxygène du gaz. La relation entre composition et pression partielle d'oxygène, à une température donnée ( $x = f(pO_2, T)$ ), caractérise une propriété thermodynamique fondamentale du matériau. De nombreuses études ont permis de caractériser cette relation. On peut citer les synthèses de Baichi (Baichi et al., 2006), de Guéneau (Guéneau et al., 2002), et également les travaux de Perron (Perron, 1968).

La Figure II-3 met en évidence la dépendance de l'écart à la stœchiométrie  $x$  à la pression partielle d'oxygène pour des températures allant de 800 à 1300°C.

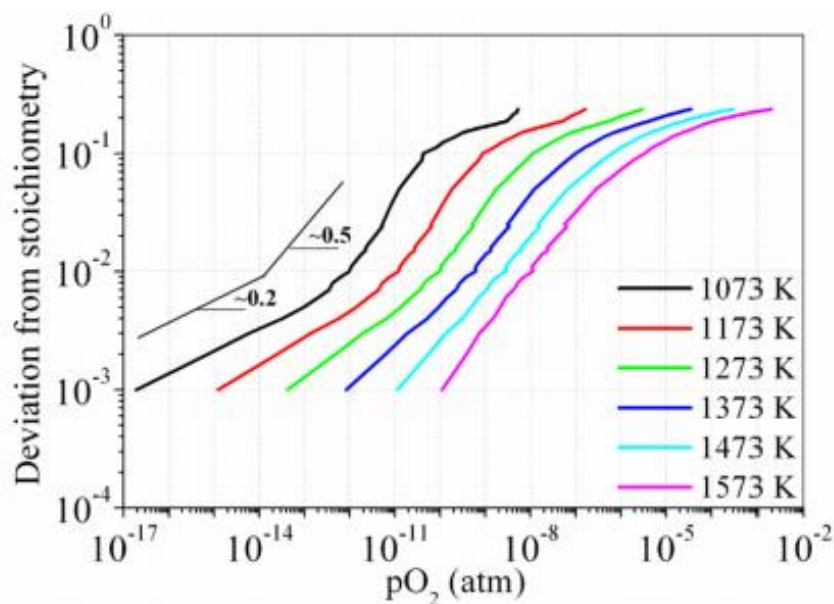


Figure II-3. Dépendance de l'écart à la stœchiométrie à la pression partielle d'oxygène et à la température pour l' $UO_{2+x}$  sur-stœchiométrique. [Perron 1968]

Pour les températures les plus faibles (de 800 à 1100°C), trois régimes semblent se distinguer. Aux températures plus élevées et jusqu'à 1300°C, il ne semble y avoir plus que deux domaines. La transition de trois à deux régimes semble se faire progressivement avec la température et il paraît difficile, sur cette base uniquement, de déterminer une température précise de transition. Les changements de dépendance de la composition d'un oxyde non-stœchiométrique à la pression d'oxygène sont considérés depuis longtemps comme une manifestation de changements de régimes de défauts ponctuels majoritaires (Brouwer, 1954; Kröger & Vink, 1956; J. Philibert, 1984). Dans le cas du dioxyde d'uranium, la Figure II-3 indique un changement de régime à 800°C, associé à un changement de pente dans une représentation logarithmique de 0,2 à 0,5.

À partir de l'analyse de ces pentes et de caractérisations structurales complémentaires, il est possible d'élaborer un diagramme de stabilité de défauts majoritaires pour un oxyde non-stœchiométrique.

### II.2.3. Défauts ponctuels dans $\text{UO}_{2+x}$

#### II.2.3.1. Oxydation par l'incorporation d'oxygène

La connaissance des défauts ponctuels et de leurs domaines de prédominance est essentielle pour comprendre les mécanismes fondamentaux associés à des propriétés complexes telles que la diffusion des atomes ou le fluage. Ces domaines sont essentiellement déterminés par la température et la pression partielle d'oxygène, et dans une moindre mesure par la présence de différentes impuretés. C'est le cas notamment dans un domaine extrinsèque, c'est-à-dire à basses températures.

Il existe un faisceau d'éléments suggérant que l'oxyde d'uranium est un oxyde à excès ou déficit en oxygène. Nous ferons d'ailleurs cette hypothèse dans le reste de ce manuscrit. Tout d'abord, des mesures de conductivité électrique ont pu être corrélées à des modèles pour lesquels les défauts en oxygène sont largement majoritaires (Kröger, 1966; Ruello *et al.*, 2004; Garcia *et al.*, 2017) et où les défauts du sous-réseau cationique sont complètement négligés. Les mesures d'autodiffusion de l'oxygène (Dorado *et al.*, 2011; Garcia *et al.*, 2009) ont également montré que la dépendance du coefficient d'autodiffusion de l'oxygène à la pression partielle d'oxygène était compatible avec la présence de défauts interstitiels d'oxygène. Il en va de même pour les études réalisées par thermogravimétrie (Gerdanian & Dodé, 1965). De surcroît, toutes ces études (réalisées dans une assez large gamme de températures et de compositions) sont dans l'ensemble cohérentes entre elles et avec les études structurales de Willis relatives à l'oxyde sur-stœchiométrique. En effet, Willis a montré, il y a bien longtemps (Willis, 1978) par diffraction de neutrons, qu'à la sensibilité de la méthode près, la concentration en lacunes d'uranium est nulle pour des températures comprises entre 20 et 1100°C et toute la gamme d'existence de  $\text{UO}_{2+x}$  (de  $\text{UO}_2$  à  $\text{U}_4\text{O}_9$ ). Finalement, les études structurales relatives aux oxydes supérieures (Cooper & Willis, 2004) sont toutes cohérentes avec l'hypothèse que ce sont les modifications relatives au sous-réseau anionique qui déterminent les changements de structures observés.

Les ions sont incorporés dans le solide à partir du gaz, au niveau des sites interstitiels octaédriques (Garrido *et al.*, 2003). Or très vite, l'agencement de ces défauts dans l' $\text{UO}_{2+x}$  se révèle être très complexe. On observe un phénomène d'agrégation de ces défauts simples. Willis a été le premier à proposer un modèle structural permettant de corréliser les diffractogrammes obtenus sur du dioxyde d'uranium hyper-stœchiométrique. La structure qu'il propose est composée de deux oxygènes légèrement décalés de leur site usuel sur le sous-réseau anionique selon la direction  $\langle 111 \rangle$ , de deux lacunes d'oxygènes en ces emplacements, et de deux autres oxygènes placés en sites interstitiels déplacés dans la direction  $\langle 110 \rangle$ . Cette structure est décrite comme un défaut 2 : 2 : 2.

Aujourd'hui de nombreux autres types d'agrégats d'oxygène ont été mis en évidence, que ce soit par le calcul *ab initio* ou expérimentalement par des analyses structurales (Ma *et al.*, 2018).

#### II.2.3.2. Equilibre des défauts

Lorsque les défauts restent isolés dans le matériau et qu'ils n'interagissent pas entre eux, donc lorsque l'on se place dans des conditions de dilution infinie, une approche thermodynamique *via* les constantes d'équilibre est possible et permet d'étudier les domaines de prédominance de ces défauts.

Les défauts les plus simples que l'on puisse imaginer au voisinage de la stœchiométrie sont les suivants:

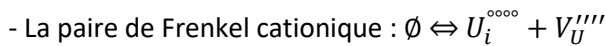
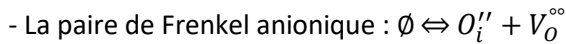
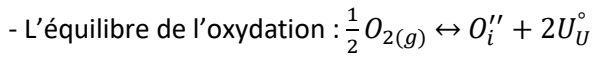
- La lacune d'oxygène, correspondant à un site oxygène libre dans le sous-réseau anionique.



- La lacune d'uranium, correspondant à un site uranium libre dans le sous-réseau cationique.
- L'oxygène interstitiel, correspondant à un ion oxygène positionné en site interstitiel.
- L'uranium interstitiel, correspondant à un ion uranium positionné en site interstitiel.

Ces défauts sont caractérisés par leurs énergies libres de migration et de formation.

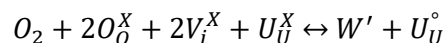
Pour les domaines proches de la stœchiométrie et en suivant le formalisme de Kröger et Vink, on peut décrire les différents équilibres de ces défauts (Garcia et al., 2017) :



Une première simplification du système peut se faire en négligeant les paires de Frenkel cationiques qui sont de très loin minoritaires parmi les autres défauts. En effet, les énergies de formation associées à l'équilibre de Frenkel cationique sont très importantes (Crocombette, 2012; Dorado *et al.*, 2011). On peut également négliger les lacunes d'uranium, présentes *via* l'équilibre de Schottky associé à des énergies très élevées (environ 5 eV) devant les défauts d'oxygènes. Ainsi, seule la relation d'oxydation et l'équilibre de Frenkel anionique suffiraient à décrire les défauts majoritaires pour le dioxyde d'uranium.

En toute rigueur, ces équilibres décrivent correctement l'équilibre des défauts dans le matériau tant que les phénomènes d'agrégation de défauts en défauts plus complexes peuvent être négligés. Or la formation des premiers agrégats survient pour des valeurs relativement faibles de sur-stœchiométrie, dès  $x > 10^{-3}$  (Garcia et al., 2017).

Une approche proposée par Garcia *et al.* (Garcia et al., 2017) consiste à considérer les clusters de Willis comme des défauts simples. Ils proposent l'équilibre suivant pour le décrire, en adaptant la notation de Kröger et Vink :



Où  $W'$  correspond au défaut de Willis globalement chargé négativement une fois, et dont la formation est accompagnée par l'oxydation d'un ion uranium.

En considérant cet équilibre supplémentaire, ils ont pu tracer le diagramme de Brouwer suivant (Figure II-4) :

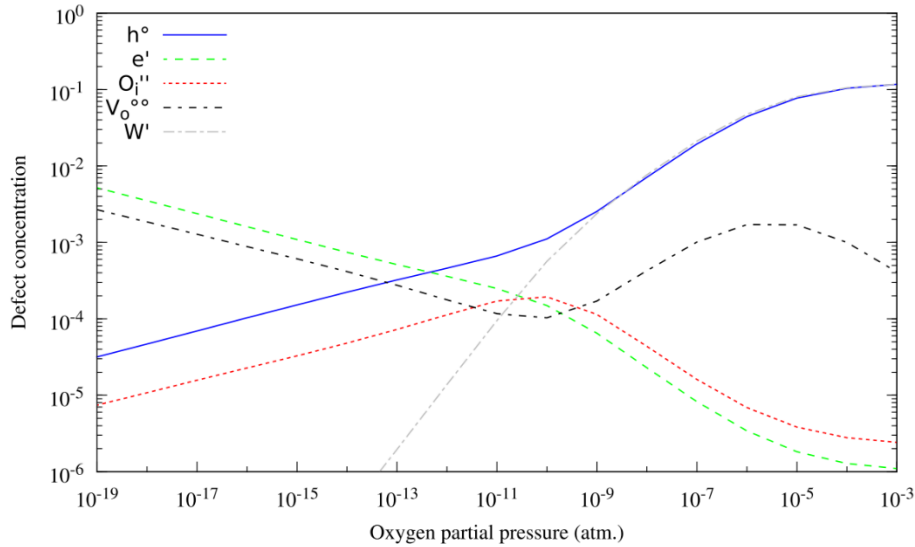


Figure II-4. Concentration en défauts calculée à 1300°C. [Garcia et al. 2017]

Dans cette figure,  $O_i''$  correspond à la concentration en oxygène interstitiel,  $W'$  à la concentration en agrégat de Willis,  $V_o''$  à la concentration en lacune d'oxygène,  $h^\circ$  correspond aux « trous électroniques » chargés positivement qui sont en fait les  $U^{5+}$ , et pour finir  $e'$  correspond aux électrons.

Il est intéressant de voir que la concentration en agrégat de Willis surpasse celle des oxygènes interstitiels pour des pressions partielles d'oxygène supérieures à  $10^{-10}$  atm, ce qui correspond (en se référant à la Figure II-3) à des écarts à la stœchiométrie très faibles ( $x < 10^{-3}$ ).

Pour finir, en considérant l'équilibre de Schottky, on montre que la concentration en lacunes d'uranium dans le cristal augmente avec l'écart à la stœchiométrie, et donc avec la pression partielle d'oxygène. Andersson *et al.* (Andersson et al., 2014) ont montré sur la base de l'analyse précédente, que la concentration en lacune d'uranium varierait linéairement avec la pression d'oxygène, *i.e.*  $[V_U] \propto pO_2$ , pour des écarts à la stœchiométrie plus élevés sous l'hypothèse d'une présence d'agrégats de défauts d'oxygène et de lacunes d'uranium neutres.

Nous verrons par la suite que ce résultat est central, car les lacunes d'uranium, constituant le défaut minoritaire dans le dioxyde d'uranium, contrôlent les phénomènes de transport de matière dans le solide.

## II.2.4. Conclusion

Le dioxyde d'uranium est un cristal iono-covalent de structure fluorine. C'est un oxyde présentant une très large gamme de stabilité autour de sa composition stœchiométrique. Cette propriété découle d'une part de la présence de sites interstitiels octaédriques, et d'autre part de la capacité des cations  $U^{4+}$  à changer de degré d'oxydation afin d'accommoder l'ajout d'oxygène dans le réseau. À faible écart à la stœchiométrie, les défauts ponctuels restent isolés et sans interaction les uns avec les autres. À mesure que cet écart augmente, ces défauts en oxygène interagissent entre eux pour former des amas. Aujourd'hui de multiples types d'amas de défauts anioniques ont été proposés, mais les plus couramment cités restent les défauts de Willis.

Les défauts cationiques sont présents en proportion négligeable dans le matériau *a priori*, mais l'étude de l'abondance des défauts dans le matériau en fonction de la température et de la pression d'oxygène

présente un enjeu clé pour comprendre les multiples phénomènes sous-jacents. Nous venons de voir que pour certaines propriétés, telle que la conductivité électrique ou le potentiel chimique de l'oxygène, il n'est pas négligeable de négliger la présence de défauts minoritaires.

Cependant, on comprend que la cinétique des phénomènes mettant en jeu du transport de matière comme le fluage soit contrôlée par l'espèce diffusant le plus lentement. Or très souvent dans les oxydes, les espèces associées aux défauts ponctuels les moins abondants présentent les coefficients de diffusion les plus faibles (J. Philibert, 1984).

Nous retiendrons cependant la règle générale selon laquelle la concentration en défaut de quelques espèces que ce soit s'exprime, à une température donnée, comme le produit de la pression d'oxygène à la puissance  $\alpha$ . Dans la partie suivante, une synthèse de la connaissance relative à la diffusion des anions et cations dans le dioxyde d'uranium est présentée.

### II.3. Propriétés d'autodiffusion dans $\text{UO}_{2+x}$

Les phénomènes relatifs au transport de matière occupent une place centrale dans la compréhension du comportement viscoplastique ainsi que d'autres processus comme le frittage ou la croissance granulaire. Plusieurs études ont été réalisées dès les années soixante : Belle et Auskern (Auskern & Belle, 1961a, 1961b), Marin et Contamin (Marin & Contamin, 1969), Alcock et Hawkins (Hawkins & Alcock, 1966).

Expérimentalement, l'autodiffusion est étudiée à l'aide de traceurs radioactifs ou plus souvent isotopiques. Dans le cas de  $\text{UO}_{2+x}$ , les isotopes concernés sont l'oxygène-18 ou l'uranium-235. Le principe de ces expériences consiste à incorporer par voies solide ou gazeuse l'isotope traceur et à déterminer après recuit *ad hoc*, le profil de concentration de l'isotope. Le profil de concentration est souvent établi par SIMS (Secondary Ion Mass Spectrometry) (Dorado et al., 2011; Ma, 2017; Sabioni et al., 2000) ou dans le cas où l'isotope est radioactif, par spectroscopie alpha (Hj. Matzke, 1969). Ces méthodes sont difficiles à mettre en œuvre et l'obtention de résultats précis représente un réel défi qui nécessite un contrôle fin des grandeurs physiques d'environnement (température, pression partielle d'oxygène). Les difficultés sont d'autant plus importantes pour la mesure de diffusion du cation qui est très faible dans  $\text{UO}_{2+x}$ , et qui requiert des recuits de longue durée à haute température associés à des méthodes de caractérisation dont les résolutions spatiales sont très importantes. En effet, il est connu depuis longtemps que le coefficient de diffusion de l'oxygène est plus élevé que celui de l'uranium et ce, de plusieurs ordres de grandeurs (Marin & Contamin, 1969; H. Matzke, 1987; Sabioni et al., 2000).

Il est possible d'investiguer les propriétés diffusives indirectement, par l'intermédiaire de processus physiques mettant en jeu du transport de matière. Philibert propose (J. Philibert, 1984) d'utiliser la réponse en fluage des oxydes pour étudier la diffusion de l'espèce la plus lente. Dans le cas du fluage-diffusion, où la déformation de l'échantillon ainsi que la cinétique de déformation résultent directement d'un transport de matière à l'échelle atomique, on comprend que ce lien existe entre diffusion et réponse viscoplastique. Concrètement la diffusion d'une espèce est directement reliée à la concentration en défaut qui assiste ce mécanisme. Or si ce dernier dépend de la pression partielle d'oxygène, il en découle que la diffusion de l'espèce en dépend également.

Cependant dans le cas du fluage-dislocation, ce lien est moins évident et par ailleurs pas obligatoirement vérifié. Des phénomènes de diffusion peuvent avoir un rôle prépondérant lorsque par exemple le processus de restauration est associé à la montée de dislocations coins. Dans ce qui suit,

nous présentons succinctement les résultats relatifs à l'autodiffusion de l'oxygène et de l'uranium au sein du dioxyde d'uranium. Nous discutons la pertinence des résultats.

### II.3.1. Autodiffusion de l'oxygène

Les coefficients d'autodiffusion de l'oxygène au voisinage de la stœchiométrie rapportés par différents auteurs (Auskern & Belle, 1961a; Marin & Contamin, 1969) présentent une large dispersion en valeurs absolues (2 à 3 ordres de grandeurs) mais des énergies d'activation comparables. Dorado et Garcia (Dorado et al., 2011), dans leur étude à la fois théorique et expérimentale, montrent que cette dispersion est essentiellement liée à deux facteurs :

- Tout d'abord, l'absence systématique du contrôle de la pression partielle d'oxygène au cours de ces expériences généralement réalisées sous un mélange d'argon et d'hydrogène pour garantir une composition stœchiométrique du matériau. Or la mesure et le contrôle de cette grandeur est nécessaire pour connaître avec précision la composition du matériau d'étude. Elle l'est d'autant plus si l'on souhaite déterminer à partir de ce genre de mesures la nature du défaut d'oxygène mis en jeu. Markin et Bones (Markin & Bones, 1962) ont estimé qu'une variation d'écart à la stœchiométrie de  $x = 2 \cdot 10^{-3}$ , en partant du matériau stœchiométrique ( $x = 0$ ), engendrait une variation de la pression partielle d'oxygène de 4 ordres de grandeurs. La concentration en défauts étant, sur un intervalle de pression partielle donnée, une fonction puissance de la pression partielle d'oxygène, on comprend la dispersion des résultats expérimentaux acquis sans maîtrise particulière de cette grandeur.

- Et dans un second temps, l'absence de maîtrise de la concentration en impuretés cationiques de valence différente de +IV. En effet, à des températures inférieures à 1000°C environ, la concentration en trous dans le matériau n'est plus déterminée par des effets thermodynamiques purs mais par la concentration en impuretés. Dans ce domaine de température donc, chaque étude présentera un coefficient de diffusion spécifique lié à la dépendance de celui-ci, à la concentration en trous. Ils montrent dans ce cas, qu'une mesure de conductivité permet de différencier quantitativement les matériaux.

La Figure II-5 rassemble les valeurs des coefficients d'autodiffusion de l'oxygène parmi différentes études, d'une part celles d'études plus antérieures (Roberts *et al.*, Marin *et al.*, Auskern *et al.*, Hadari *et al.*), et d'autres part celles de l'étude considérée (Dorado, Garcia *et al.*).

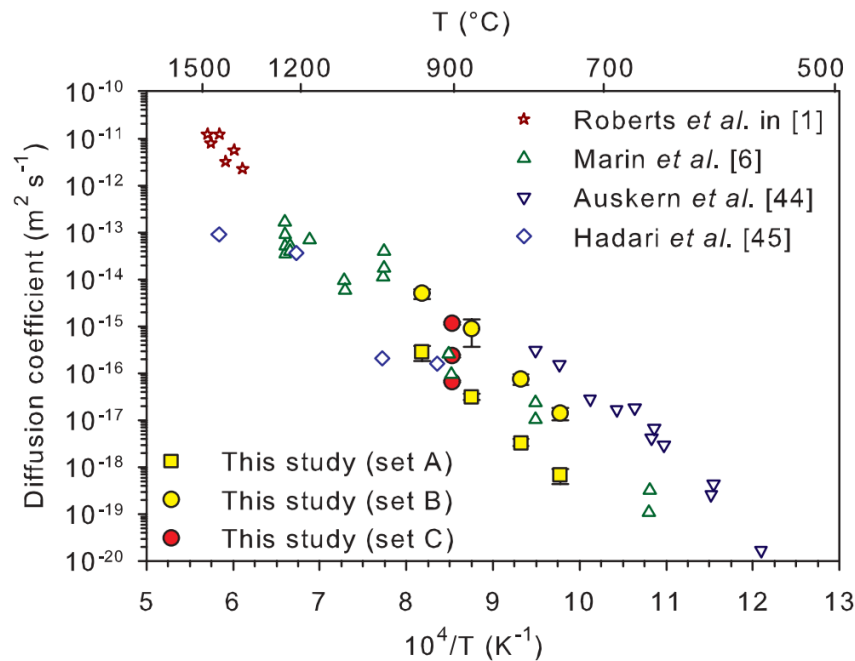


Figure II-5. Diagramme d'Arrhénius du coefficient de diffusion de l'oxygène dans le dioxyde d'uranium (cercles et carrés jaunes : échantillons contenant différentes teneurs en impuretés ; ronds rouges : échantillons dopés-Cr). (Dorado, Garcia, Carlot, & Davoisne, 2011)

Ces auteurs mettent en évidence qu'un strict contrôle de la pression partielle d'oxygène accompagné d'une caractérisation précise des impuretés permettent de réduire considérablement les incertitudes expérimentales. En effet leurs points expérimentaux semblent s'aligner quasi parfaitement selon une droite lorsque le taux d'impuretés est le même (carrés jaunes d'un côté et cercles jaunes de l'autre). De manière réciproque, on peut voir, avec les cercles rouges, la forte influence sur le coefficient de diffusion de la teneur en Chrome.

Dorado *et al.* attribuent le fait que les énergies d'activation sont comparables d'une étude à l'autre à la dépendance du coefficient de diffusion à la racine carrée de la pression partielle d'oxygène. En supposant en effet que la pression partielle est fixée par l'équilibre en phase gazeuse :



et que le coefficient de diffusion de l'oxygène est proportionnel à la racine carrée de la pression d'oxygène, on peut s'attendre à ce que l'énergie d'activation associée à la constante d'équilibre de la réaction chimique (2.2) contribue à l'énergie d'activation apparente du coefficient d'autodiffusion à hauteur d'environ 2,6 eV. Cette valeur qui est complètement indépendante des mécanismes de migration dans le matériau est quatre à cinq fois plus importante que la somme des énergies de migration et de formation du défaut interstitiel. De plus, elle est très proche de l'énergie d'activation estimée de l'autodiffusion de l'oxygène de l'ordre de 2,5 eV (241 kJ.mol<sup>-1</sup>).

Dorado *et al.* ont identifié une énergie d'activation correspondant à la somme de l'énergie de migration et de formation du défaut simple de l'oxygène sous forme interstitielle de l'ordre de 0,6 eV (soit environ 60 kJ.mol<sup>-1</sup>).

En outre, le contrôle précis de l'atmosphère lors de ces mesures a permis de montrer que le coefficient d'autodiffusion de l'oxygène pour des matériaux dopés au chrome, était proportionnel à la racine

carrée de la pression partielle d'oxygène. Ce résultat confirme un mécanisme de diffusion interstitiel dans un domaine de composition légèrement sur-stœchiométrique. Cette dépendance des propriétés de diffusion avec l'écart à la stœchiométrie avait été identifiée lors d'autres études. Contamin (Contamin et al., 1972) et Belle (Belle, 1969) ont tous les deux mesurés une forte augmentation de la diffusion dans le domaine hyper-stœchiométrique, suivi d'un plateau puis d'une légère décroissance. La saturation semble survenir pour des écarts à la stœchiométrie de l'ordre de 0,01.

L'augmentation du coefficient d'autodiffusion est liée à l'augmentation de la concentration en défaut d'oxygène. À l'inverse, la diminution semble liée à l'organisation des défauts d'oxygène dans le dioxyde d'uranium sous forme d'agrégats dont la formation limite la concentration en défauts simples, plus mobiles.

### II.3.2. Autodiffusion de l'uranium

Le premier résultat notable relatif à la diffusion de l'uranium dans le dioxyde d'uranium est qu'elle est bien plus faible que celle de l'oxygène. À haute température et à peu près sur toute la gamme de composition du matériau ( $0 < x < 0,25$ ), on constate que (Hj. Matzke, 1992; Sabioni et al., 2000) :

$$D_O^{volume} / D_U^{volume} > 10^6$$

Or comme nous avons pu l'expliquer dans le chapitre précédent, l'espèce qui diffuse le plus lentement contrôle les processus mettant en jeu un transport de matière.

De nombreuses études se sont portées sur l'autodiffusion de l'uranium, en essayant de distinguer lorsqu'elle semble opérer dans le volume ou le long des joints de grains. Knorr *et al.* (Knorr et al., 1989) ont rassemblé dans une revue de nombreux résultats d'études antérieures (Alcock et al., 1966; Bohaboy et al., 1969; Chung & Davies, 1979b; Hawkins & Alcock, 1966; Hj. Matzke, 1969; Reynolds & Burton, 1979; Wolfe & Kaufman, 1967). Sur la Figure II-6a sont représentées les différentes valeurs de coefficient de diffusion en volume de l'uranium dans du dioxyde d'uranium supposé stœchiométrique. Ces valeurs sont obtenues par différentes méthodes : isotopes traceurs, essais de fluage ou de frittage. La Figure II-6b est structurée de la même manière mais les valeurs correspondent *a priori* à de la diffusion le long des joints de grains. On note une grande dispersion des résultats : en vert est représentée la dispersion entre les différentes études à une température donnée, en rouge est repérée la valeur supposée nominale pour  $UO_{2.00}$ . On note que la dispersion est de plusieurs ordres de grandeurs que ce soit pour les coefficients de diffusion en volume ou le long des joints de grains. De la même façon que dans le cas de la diffusion de l'anion, peu d'études se sont astreintes à contrôler la pression partielle d'oxygène, le combustible étant souvent supposé stœchiométrique.

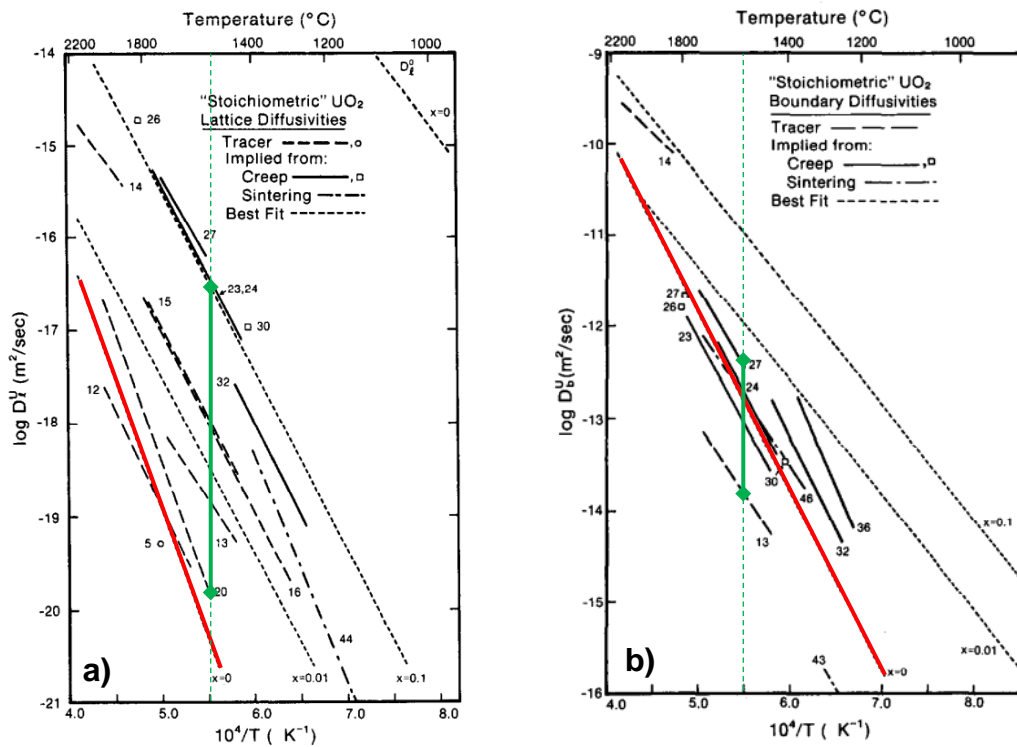


Figure II-6. Comparaison des coefficients de diffusion en volume (a) et le long des joints de grains (b) du cation dans le Dioxyde d'Uranium, d'après les données de la littérature. La courbe rouge correspond à la référence pour  $x=0$ . [Knorr 1989].

On peut retrouver, dans le Tableau 1, les énergies d'activations que l'on retient classiquement dans la littérature pour la diffusion de l'uranium dans le dioxyde d'uranium. On peut exprimer quelques doutes vis-à-vis de ces valeurs, la Figure II-6 illustrant les dispersions très importantes parmi les multiples études.

De plus, et nous le verrons plus précisément dans la section suivante (II.4.1.3), il est relativement complexe d'identifier précisément quel mécanisme domine dans le cas où le matériau est sollicité en fluage-diffusion (Nabarro-Herring ou Coble). Or, c'est sur ce critère que les différentes études s'appuient pour différencier s'il s'agit de diffusion en volume ou le long des joints de grains.

Enfin, quelques auteurs ont caractérisé une dépendance du coefficient de diffusion en fonction de l'écart à la stœchiométrie. Il en ressort (Knorr et al., 1989; Hj. Matzke, 1969) :

$$D_U^{volume} \propto x^2$$

$$D_U^{JdG} \propto x$$

Ces mesures ont été réalisées sur des matériaux dont l'écart à la stœchiométrie est relativement élevé et compris entre :  $0,02 < x < 0,1$ .

**Tableau 1. Récapitulatif des énergies d'activation communément retenues pour la diffusion de l'uranium**

Energie d'activation de la diffusion de l'Uranium dans $UO_{2+x}$	$x = 0$	$x = 0,001$	$x = 0,01$ à $0,02$
Diffusion dans le volume (Hj. Matzke, 1969)	544 kJ.mol <sup>-1</sup> (5,6 eV)	418 kJ.mol <sup>-1</sup> (4,3 eV)	368 kJ.mol <sup>-1</sup> (3,8 eV)
Diffusion le long des joints de grains (Hawkins & Alcock, 1966)	377 kJ.mol <sup>-1</sup> (3,9 eV)	272 kJ.mol <sup>-1</sup> (2,8 eV)	238 kJ.mol <sup>-1</sup> (2,5 eV)

### II.3.3. Conclusion sur les phénomènes de diffusion

Bien que la diffusion de l'uranium et de l'oxygène aient fait l'objet de nombreuses études, les résultats souffrent d'une dispersion trop importante, que ce soit pour les valeurs des coefficients de diffusion ou des énergies d'activation relatives aux différents mécanismes de transport. Ces études mériteraient d'être reprises en contrôlant plus précisément les grandeurs thermodynamiques qui déterminent la composition du matériau.

On peut retenir néanmoins que la diffusion de l'oxygène est considérablement plus élevée que celle de l'uranium et qu'elle s'active à des températures plus faibles. Pour un composé proche de la stœchiométrie, l'énergie d'activation de l'autodiffusion de l'oxygène est relativement faible, on peut retenir la valeur de 0,6 eV (Dorado et al., 2011), le transport des anions se fait *via* un mécanisme interstitiel pour un écart à la stœchiométrie relativement faible. Le mécanisme se complexifie pour des écarts plus importants sans doute du fait de l'évolution des défauts vers des formes plus complexes.

La diffusion de l'uranium est plus faible que celle de l'oxygène, et cela va effectivement dans le sens où les espèces chimiques associées à des défauts minoritaires diffusent le plus lentement (J. Philibert, 1984). On peut s'attendre à ce que ce soit le transport des cations qui contrôle les processus impliquant un mouvement de matière, comme c'est le cas pour le fluage ou le frittage. Celui-ci se fait probablement *via* un mécanisme lacunaire au voisinage de la stœchiométrie et au-delà. De plus la diffusion semble s'accélérer avec l'augmentation de l'écart à la stœchiométrie, ce qui est cohérent avec le mécanisme de diffusion supposé ainsi que les modèles de défauts les plus simples. Des études de diffusion du cation plus approfondies seraient néanmoins les bienvenues. En effet, une meilleure connaissance des mécanismes de diffusion dans le matériau apporterait plus de certitudes pour l'étude des mécanismes de déformation à haute température. Nous allons désormais aborder l'analyse de ces études.

### II.4. Comportement viscoplastique du dioxyde d'uranium

Le comportement en fluage du dioxyde d'uranium est essentiel car il permet de prédire le comportement de l'élément combustible lors de transitoires de puissance, au cours desquels sa température peut s'élever jusqu'à 1700°C, ou de situations accidentelles. Cette propriété est révélée



lors d'examens post-irradiatoires par exemple, par le fait que les évidements présents aux deux extrémités des pastilles peuvent se combler à des degrés divers (Papin et al., 2007; Sercombe, et al., 2010). Par ailleurs, la conception de matériaux nouveaux, plus performants du point de vue de l'interaction pastille-gaine, exige que cet aspect du matériau soit bien maîtrisé ce qui nécessite une bonne compréhension des mécanismes élémentaires qui lui sont associés.

Il existe cependant une seconde motivation. Comme nous l'avons vu précédemment, l'étude de la réponse viscoplastique du dioxyde d'uranium pourrait permettre de quantifier et de comprendre certains processus mis en jeu à l'échelle atomique (voir chapitre 1, section I.4). En particulier, dans certains cas, les cinétiques et parfois les mécanismes de déformation sont contrôlés par des phénomènes de transport de matière. Ainsi une étude minutieuse du fluage du dioxyde d'uranium pourrait mettre en évidence certains de ces mécanismes et permettre l'évaluation de grandeurs fondamentales telles que les énergies de migration ou de formation des défauts ponctuels minoritaires. Ce deuxième intérêt à étudier la réponse en fluage du dioxyde d'uranium, plus fondamental, est pourtant nécessaire à l'optimisation et à l'élaboration de combustibles plus performants.

L'étude bibliographique de la réponse viscoplastique de l' $\text{UO}_{2+x}$  se divise en trois volets relativement distincts :

i. Le premier est consacré à la réalisation d'essais mécaniques dans les domaines où le fluage stationnaire est activé. Ils permettent une caractérisation du comportement macroscopique du matériau soumis à des sollicitations thermomécaniques.

ii. Le second volet est dédié à la simulation de la réponse viscoplastique du combustible. Ici le choix de la loi de comportement est crucial puisque d'une part, celle-ci détermine les aspects de la réponse macroscopique du matériau que l'on sera en mesure de simuler, et d'autre part elle définit souvent quel type d'essais réaliser pour identifier les paramètres qui la définissent.

iii. Le troisième est dévolu aux examens microstructuraux du matériau avant et après la sollicitation. Les différentes observations, réalisées en microscopie optique ou électronique, mettent en évidence des mécanismes de déformation spécifiques. Une caractérisation minutieuse d'un matériau déformé est nécessaire pour confirmer ou infirmer les hypothèses relatives aux mécanismes de déformation en jeu.

L'idéal est donc d'associer ces trois aspects du comportement viscoplastique et d'essayer de surcroît de corrélérer les différents paramètres de la loi de comportement à des phénomènes microstructuraux avérés. À partir des éléments qui émergeront de cette analyse, nous identifierons les différents aspects du problème qui seront abordés dans le cadre de cette étude.

#### II.4.1. Etude de la réponse macroscopique

Nous reprenons la loi phénoménologique proposée par Bretheau ( $\dot{\epsilon} = A(T) \frac{\mu b}{kT} \left(\frac{\sigma}{\mu}\right)^n \left(\frac{p_{O_2}}{p_{O_2}^{ref}}\right)^\alpha$ ) pour décrire le fluage stationnaire des oxydes non-stœchiométriques. Nous nous focalisons sur la phase stationnaire du fluage car c'est dans ce domaine qu'il existe le plus de données expérimentales.

L'étude expérimentale de la réponse macroscopique du matériau devrait donc consister, en partie du moins, à vérifier la pertinence de cette formulation et ce faisant, d'identifier les différents paramètres du modèle (l'énergie d'activation qui sous-tend  $A(T)$  ; la puissance de la contrainte  $n$  et la puissance de

la pression partielle d'oxygène  $\alpha$ ). En pratique, on est amené à réaliser des essais paramétriques en fonction de la température, de la contrainte ou de la vitesse de déformation et de la pression partielle d'oxygène. Notons que la constante de proportionnalité dépendante de la température  $A(T)$  peut, dans le cas d'un matériau polycristallin, présenter une dépendance à la microstructure, et en particulier à la taille de grains.

Le dioxyde d'uranium a fait l'objet de très nombreux travaux. On peut citer quelques travaux notables, dont ceux de (Burton & Reynolds, 1973; Garcia et al., 2021; Seltzer et al., 1972; Vivant-Duguay, 1998) réalisés en compression et ceux de (W. M. Armstrong et al., 1962; Colin, 2003; Scott et al., 1959) réalisés en flexion. Un tableau plus complet des différentes études peut être trouvé en Annexe 1. Il y est notamment précisé les domaines d'études de chacun, lorsque cela est possible, ainsi que les résultats principaux qui découlent de leurs travaux. Ce tableau constitue une liste non exhaustive du sujet et sert principalement à exposer l'importante diversité des résultats et des paramètres en jeu.

Ces études ont permis d'aborder le comportement macroscopique de l'oxyde sous divers aspects. Cependant, rares sont les études au cours desquelles l'effet de la pression d'oxygène ou de la composition en oxygène du solide a été quantifié. Dans cette partie, nous abordons successivement l'influence de la contrainte, de la température, de la pression partielle d'oxygène (ou composition du matériau) et de la taille de grains.

#### **II.4.1.1. Effet de la contrainte**

La réalisation d'essais mécaniques dans une large gamme de sollicitation (de 5 à 150 MPa) a permis la caractérisation de l'effet de la contrainte sur la réponse viscoplastique du dioxyde d'uranium.

Il en ressort très nettement deux domaines distincts, illustrés sur la Figure II-7, correspondant à deux mécanismes de déformations différents. La vitesse de déformation est généralement exprimée comme une fonction puissance de la contrainte dont l'exposant caractérise chacun des domaines.

Dans le premier domaine, qui intervient aux contraintes les plus faibles, l'exposant de la contrainte est de l'ordre de 1, alors qu'il est communément compris entre 4 et 8 dans le second domaine.

Le domaine où la vitesse de fluage est quasiment proportionnelle à la contrainte d'écoulement correspond à un mécanisme de déformation par transport de matière dans le cristal (fluage-diffusion, voir chapitre I, section I.3.2). Certaines études avancent un exposant qui peut être légèrement supérieur à l'unité. Burton et Reynold (Burton & Reynolds, 1973) par exemple suggèrent que ceci peut provenir du fait que les joints de grains n'agissent pas comme des puits/sources parfaits de lacunes.

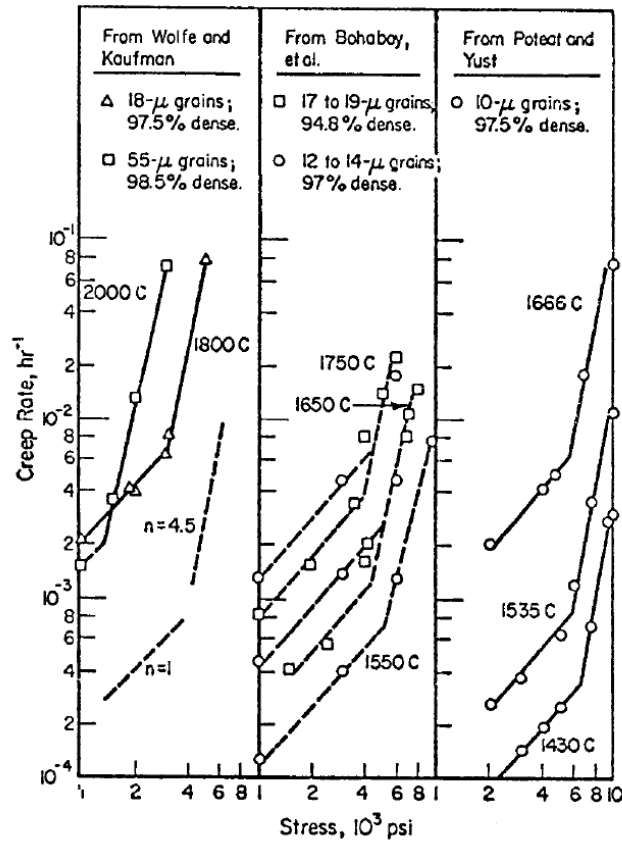


Figure II-7. Comparaison des vitesses de fluage obtenues pour différents niveaux de contrainte et différentes températures. [Seltzer et al. 1971]

Le domaine des fortes contraintes souffre de son côté d'une certaine dispersion dans la valeur de l'exposant de la contrainte  $n$ . La plupart des auteurs identifie une valeur, qu'il s'agisse de polycristaux ou de monocristaux, comprise entre 4 et 8 (W. M. Armstrong et al., 1966; Bohaboy et al., 1969; Colin, 2003; Dherbey, 2000; Garcia et al., 2021; Hough, 1988; Seltzer et al., 1972; Vivant-Duguay, 1998). Les multiples essais mécaniques, réalisés entre 1430°C et 2000°C, semblent montrer une faible dépendance de l'exposant de contrainte à la température. Par ailleurs, cet exposant élevé constitue l'un des critères permettant d'affirmer qu'il s'agit de mécanismes de fluage - restauration (voir chapitre I, section I.3.3).

Le passage d'un mécanisme à l'autre peut être identifié par ce que l'on appelle la contrainte de transition. Cette contrainte dépend principalement de la taille de grains du matériau et également de la température. Lorsque la taille de grains augmente (et donc que la densité de joints de grains diminue), le glissement des dislocations se fait plus aisément, car il y a bien moins d'obstacles sur le parcours (joint de grains). Cela favorise donc le fluage-dislocation. Cela a été montré expérimentalement (Vivant-Duguay, 1998; Wolfe & Kaufman, 1967). La transition se situe à des niveaux de contraintes relativement faibles, autour de 20 MPa, pour un matériau avec une taille de grains de l'ordre de 10  $\mu\text{m}$ . Alors qu'elle se trouve autour de 80 MPa pour un matériau aux grains plus fins de 4,5  $\mu\text{m}$ .

Deux autres caractéristiques de la réponse du matériau semblent valider l'hypothèse d'un fluage de type restauration. Tout d'abord, plusieurs études ont observé la présence de « pics de compression » lors d'essais de compression réalisés à de fortes vitesses de déformation et pour des températures

élevées. On peut en voir un exemple sur la Figure II-8 (Guérin, 1974). Ce pic a été expliqué par la forte croissance de la densité de dislocations en début d'essai. Toutes ces dislocations se réarrangent ensuite progressivement jusqu'à ce qu'un régime permanent s'établisse, entre la nucléation et l'annihilation des dislocations, et qu'une microstructure « d'équilibre » s'installe.

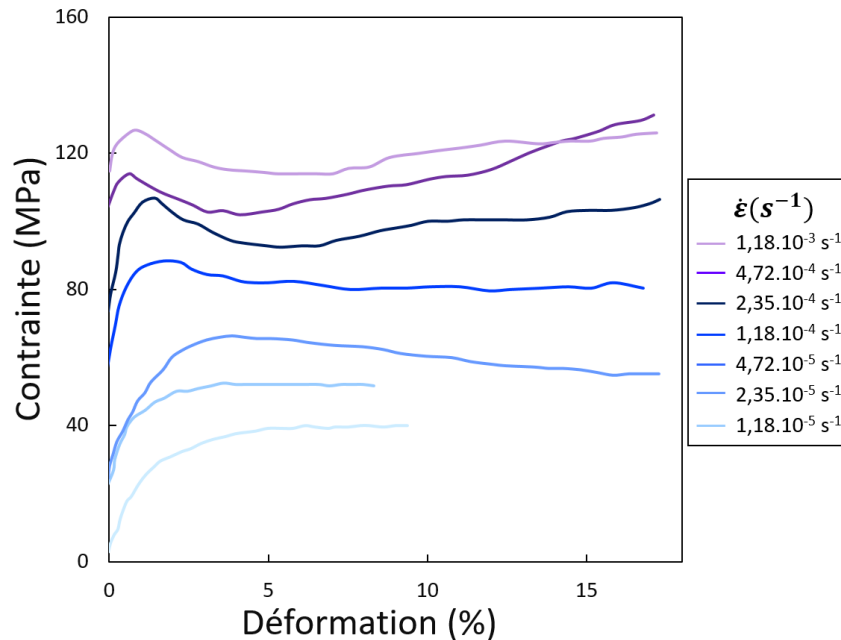


Figure II-8. Superposition de courbes de compression du dioxyde d'uranium à 1600°C, pour des vitesses de traverse différentes. [Guérin 1974]

Un deuxième argument en faveur d'un mécanisme de fluage-restauration pour le domaine des fortes contraintes provient de la thèse de Colin (Colin, 2003). En effet par la réalisation d'essais spécifiques où il fait chuter rapidement la charge appliquée (appelés « *dip-tests* »), il observe un fluage inverse du matériau, c'est-à-dire une déformation dans la direction opposée au sens initial. Il interprète ce comportement comme le résultat d'une contrainte interne présente dans le matériau et qui a progressé au cours de l'essai. Lorsque cet écrouissage surpasse la contrainte appliquée lors d'un *dip-test*, on observe un fluage « inverse ».

Pour résumer, deux mécanismes de déformation distincts semblent intervenir dans la déformation viscoplastique du dioxyde d'uranium sollicité dans une gamme de contrainte comprise entre 5 et 150 MPa et pour des températures comprises entre 1400 et 2000°C. Le premier domine la déformation aux faibles contraintes et est défini par une dépendance linéaire de la contrainte à la vitesse de déformation. La dépendance linéaire suggère qu'il s'agit d'un mécanisme de fluage-diffusion. Le second intervient aux contraintes plus élevées et se distingue par un exposant de contrainte élevé (entre 4 et 8). Les différentes observations de la réponse du matériau dans ce domaine (pic de compression, reprise du fluage en sens inverse lors de *dip-tests*, exposant élevé de la contrainte) suggèrent que le mécanisme en jeu est du type fluage-restauration.

## II.4.1.2. Effet de la température : identification d'une énergie d'activation

### II.4.1.2.1. Energie d'activation du fluage

Le fluage est un phénomène qui s'active thermiquement. C'est pourquoi dans la loi phénoménologique qui le décrit, on retrouve un terme d'Arrhenius en  $\exp(-Q/RT)$ , où Q désigne une énergie apparente d'activation qui doit pouvoir être reliée aux mécanismes mis en jeu dans la déformation du matériau.

Cependant, étudier l'effet de la température se révèle être relativement complexe expérimentalement. En effet, généralement la caractérisation de l'effet de la température est réalisée expérimentalement par des sauts de température successifs à vitesse de déformation ou charge constante. Or dans le cas d'un oxyde non-stœchiométrique, pour garantir que la composition du matériau reste homogène, il est nécessaire de changer simultanément la pression d'oxygène. Une maîtrise de l'atmosphère est donc primordiale lors de l'étude de l'effet de la température, et lors de l'identification d'une énergie d'activation. Or peu d'études se sont astreintes à mesurer et à contrôler la pression partielle d'oxygène *in-situ* lors d'essais à différentes températures.

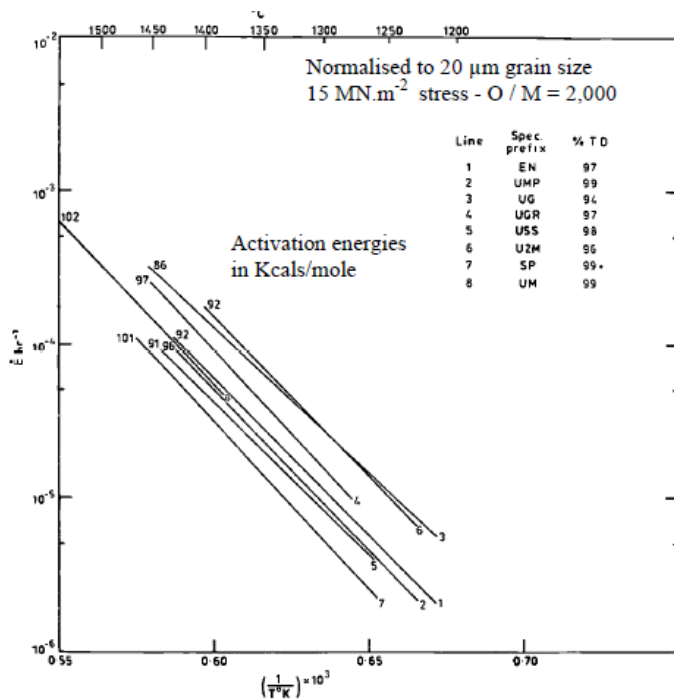


Figure II-9. Energies d'activation obtenues par essais de fluage sur du dioxyde d'uranium stœchiométrique. [Hough 1988]

Malgré tout, il est intéressant de s'attarder sur quelques résultats de la littérature. Sur la Figure II-9 sont répertoriées les énergies d'activation obtenues à partir d'essais de fluage (Hough, 1988). Les essais ont été faits pour divers lots d'oxydes tous supposés stœchiométriques, sollicités en compression à 15 MPa et pour des températures comprises entre 1155 et 1545°C. Hough en déduit des énergies d'activation comprises entre 360 et 427  $\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$  (3,7eV à 4,4eV).

En parcourant les résultats des diverses études (Annexe 1), on note la très large dispersion des valeurs d'énergie d'activation déterminées par l'expérience, pour le fluage stationnaire. Et cela que ce soit pour le

domaine de fortes et de faibles contraintes. Certains auteurs tentent un rapprochement de ces valeurs avec celles de l'énergie d'activation pour l'autodiffusion de l'uranium (section II.3.2), qui souffrent elles-mêmes d'une très large dispersion. La relation entre les deux est donc discutable.

Des doutes peuvent être formulés par rapport à la détermination de ces énergies d'activation. Garcia *et al.* (Dorado *et al.*, 2011; Garcia *et al.*, 2021) émettent l'idée que ces énergies mesurées (ainsi que celles relatives à l'autodiffusion) ne correspondent pas à un mécanisme de fluage, mais plutôt à la réaction de dissociation de l'eau ( $H_2O \rightleftharpoons H_2 + \frac{1}{2}O_2$ ). En effet, les essais réalisés dans des mélanges d'argon et d'hydrogène sont présentés comme garantissant la stœchiométrie du matériau. C'est vrai mais il n'empêche que nous sommes alors précisément dans le cas de figure des paragraphes II.3.1 et II.3.2 relatifs à l'autodiffusion de l'oxygène et de l'uranium respectivement.

On peut dire qu'il est difficile de tirer des conclusions précises vis-à-vis des valeurs des énergies d'activation obtenues dans les domaines des faibles et des fortes contraintes. Néanmoins, elles sont du même ordre de grandeur que celles déterminées pour l'autodiffusion du cation, les deux mesures étant généralement entachées des mêmes erreurs de mise en œuvre et d'interprétation.

#### II.4.1.2.2. Effet de la température sur la réponse

On peut cependant présenter l'effet de la température d'un point de vue qualitatif sur la réponse macroscopique du matériau. Sur la Figure II-10 sont représentées les courbes de chargement lors d'essais de compression à différentes températures sur un matériau polycristallin (Guérin, 1974). Pour des températures inférieures à 1000°C, le matériau rompt sans avoir pu accommoder de déformation car le dioxyde d'uranium est dans son domaine fragile. Au-delà, dans son domaine ductile, il se déforme plastiquement, ce qui veut dire que les processus en jeu dans la déformation (transport de matière, glissement des dislocations, ...) sont activés. On peut voir aussi que la contrainte d'écoulement diminue lorsque la température augmente, elle passe de presque 270 MPa à 1000°C à 80 MPa pour 1700°C. Ces valeurs ont été obtenues en imposant une vitesse de déformation de  $1,6 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ . On note aussi les crochets de compression observés également dans certaines circonstances sur monocristaux (voir paragraphe II.4.3.2).

De ces études, nous concluons que l'augmentation de la température induit une forte diminution de la contrainte d'écoulement. Cela illustre l'activation thermique de la déformation viscoplastique, sans qu'il soit réellement possible de statuer sur le fait qu'il s'agisse d'une manifestation de fluage restauration ou de glissement activé thermiquement. La caractérisation de ces processus constitue le deuxième enjeu de ce genre d'étude, *via* l'identification d'une énergie d'activation fiable.

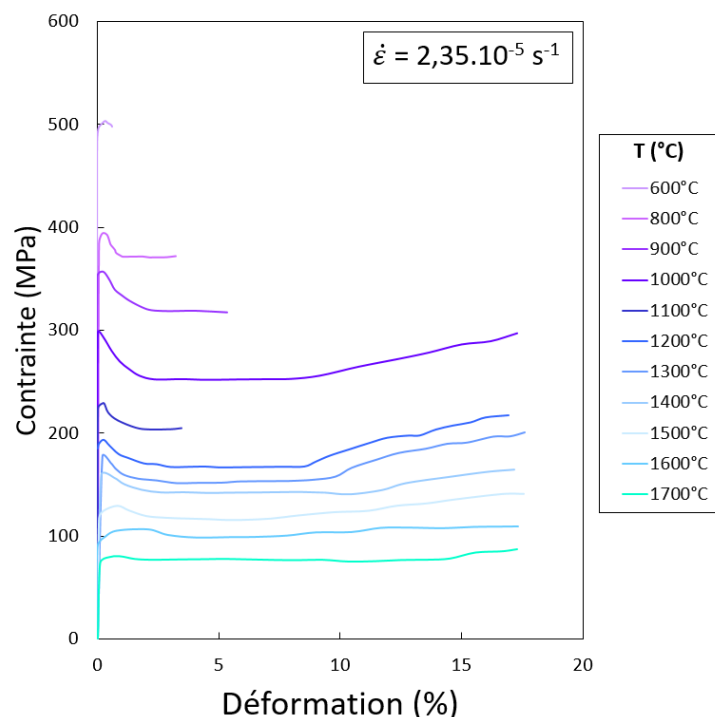


Figure II-10. Courbes de compression, réalisées à une même vitesse de traverse et différentes températures. [Guérin 1974]

### II.4.1.3. Effet de la taille de grain

L'effet de la taille de grain est primordial à l'identification de mécanismes de déformations opérant au sein du matériau polycristallin. Pour l' $UO_{2+x}$  deux tendances sont observées, la première dans le domaine des faibles contraintes et la seconde dans le domaine des fortes contraintes.

#### II.4.1.3.1. Domaine des faibles contraintes

Dans le domaine des faibles contraintes, on observe une dépendance à la taille de grain suivant une loi puissance du type :  $\dot{\epsilon} \propto 1/d^p$ , avec  $d$  représentant la taille de grain. L'exposant  $p$  est alors compris entre 2 et 3.

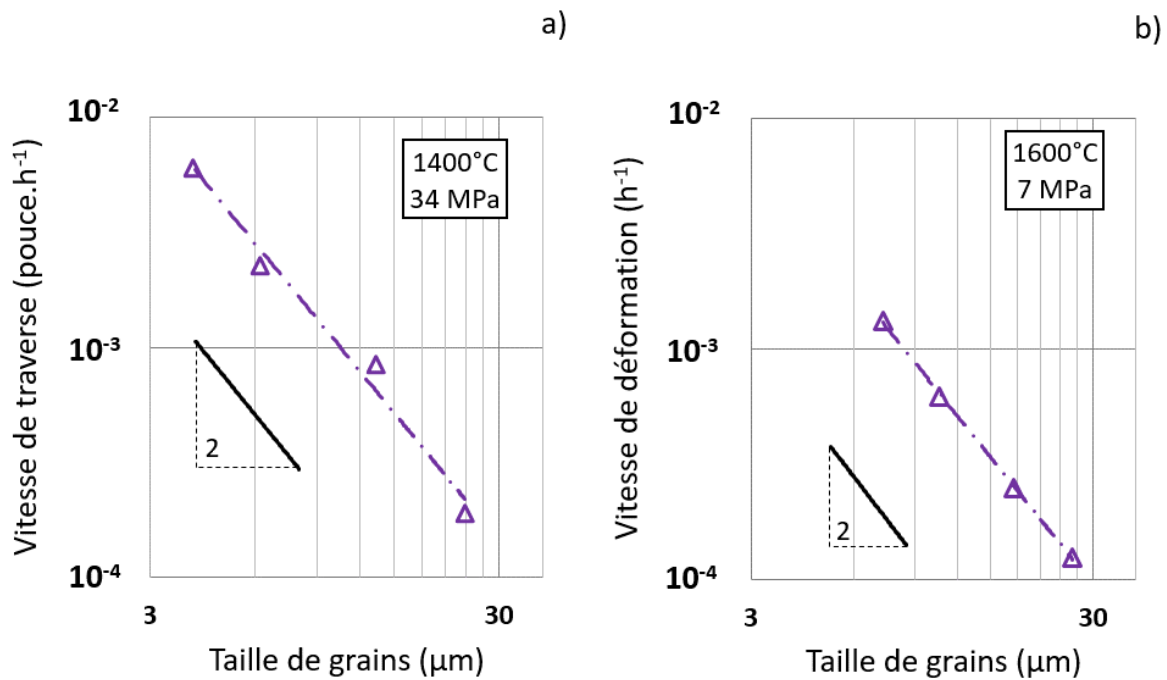


Figure II-11. a) Représentation de l'influence de la taille de grains sur la vitesse de fluage pour des essais de flexion (1400°C - 34 MPa - Armstrong 1962). b) Même représentation pour des essais de compression (1600°C - 7MPa - Bohaboy 1969)

La Figure II-11 représente la variation de la vitesse de fluage en fonction de la taille de grains : la Figure II-11a dans le cas d'essais de flexion avec des matériaux dont la taille de grain varie de 4 à 20 microns (W. M. Armstrong et al., 1962), et la Figure II-11b dans le cas d'essais de compression où cette fois-ci la taille de grain des échantillons varie entre 8 et 30 microns (Bohaboy et al., 1969). Dans ces deux études, réalisés à 1400°C et 1600°C, on note une évolution de la vitesse de déformation inversement proportionnelle au carré de la taille de grains du matériau. Une telle dépendance semble correspondre à un mécanisme de fluage-diffusion de type Nabarro-Herring, pour lequel le transport des atomes se fait préférentiellement par diffusion en volume. Or, Chung et Davies (Chung & Davies, 1979b) ont mis en évidence le passage d'une dépendance en  $1/d^2$  à  $1/d^3$  lorsque la taille de grain diminue (Figure II-12). Cette transition signale le passage d'un mécanisme de déformation piloté par la diffusion en volume (Nabarro-Herring) à de la diffusion active le long des joints de grains (Coble). La surface spécifique des joints de grains évolue grossièrement de manière inversement proportionnelle à la taille des grains, et cela semble favoriser un mécanisme de Coble. D'après cette étude, la transition semble opérer entre 3 et 5 microns pour une température de 1400°C.

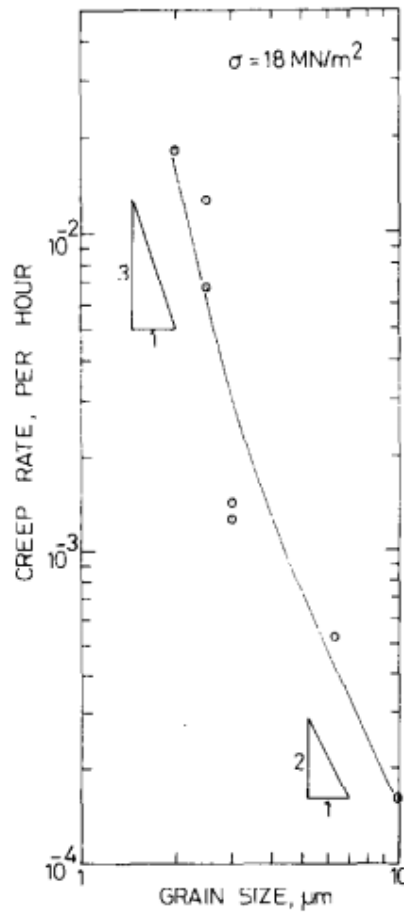


Figure II-12. Mise en évidence d'un changement de l'influence de la taille de grains. [Chung et Davies, 1979]

#### II.4.1.3.2. Domaine des fortes contraintes

Le domaine des fortes contraintes est quant à lui souvent décrit comme indépendant de la taille de grain (Bohaby et al., 1969; Seltzer et al., 1971). Cependant Burton (Burton et al., 1973), et plus récemment Vivant-Duguay (Vivant-Duguay, 1998) observent une augmentation de la vitesse de fluage avec la taille de grain. Ce phénomène, décrit par la loi de Hall-Petch, est lié aux joints de grains qui jouent le rôle de barrières face au glissement des dislocations. Ainsi, un matériau à grains fins, donc avec une densité de joints de grains très élevée, présente une contrainte d'écoulement plus élevée qu'un matériau similaire avec des grains plus volumineux.

#### II.4.1.3.3. Synthèse

Les diverses études relatives à l'effet de la taille de grain sur la réponse en fluage de l' $\text{UO}_{2+x}$  ont permis de mettre en évidence la vaste complexité du sujet. D'une part l'influence diffère d'un régime de fluage à l'autre, et d'autre part la transition entre les multiples mécanismes dépend elle-même de la taille de grain et de nombreux autres paramètres (température, porosité, ...).

La Figure II-13 permet d'illustrer la variété des résultats lorsque l'on étudie l'influence de la taille de grains. Elle met en évidence la vitesse de fluage stationnaire pour différentes sollicitations sur des



matériaux aux grains dont la taille varie de 4 à 27  $\mu\text{m}$  (Vivant-Duguay, 1998). D'une part sur le graphe est mise en évidence la très forte influence de la taille de grains sur la contrainte de transition entre les deux régimes de fluage. Celle-ci diminue de 60 à 25 MPa pour une taille de grain allant de 7 à 22  $\mu\text{m}$ . D'autre part, on observe une influence notable de la taille de grain sur la vitesse de fluage dans le domaine de fluage-dislocation.

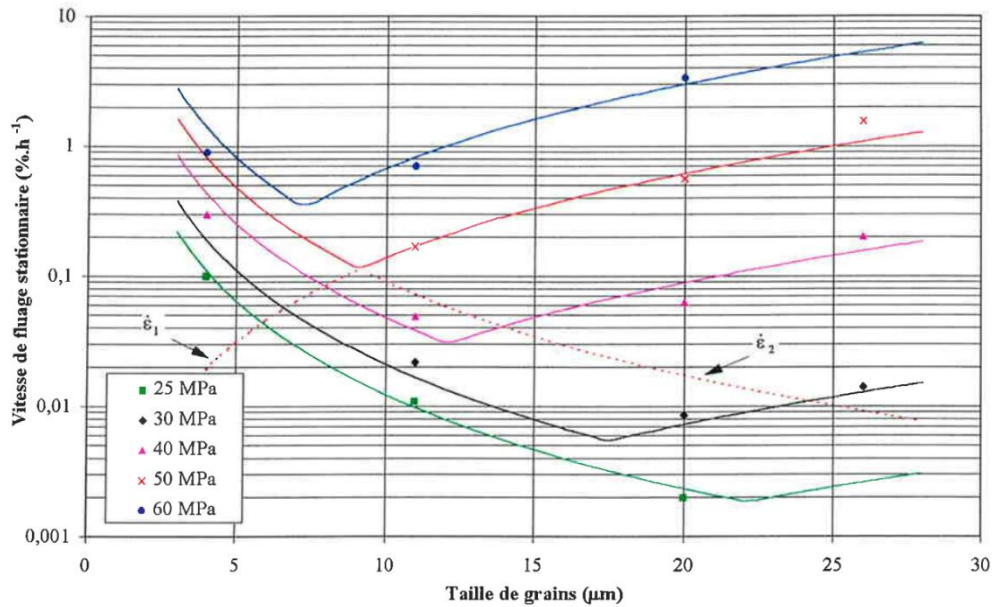


Figure II-13. Variation de la vitesse de fluage stationnaire du combustible en fonction de la taille de grains, à 1463°C et pour différentes contraintes. [Vivant-Duguay 1998]

On peut noter le fait que pour des matériaux aux grains extrêmement fins, de l'ordre de quelques microns, il a été observé une réponse qui semble caractéristique du phénomène de superplasticité (Chung & Davies, 1979a). Des pastilles d' $\text{UO}_{2+x}$  avec des grains de 2  $\mu\text{m}$  ont été sollicités en compression à 1350°C jusqu'à de très fort taux de déformation (jusqu'à 68%). Les vitesses de fluage de ces essais sont supérieures de 2 à 3 ordres de grandeurs par rapport à ce qui est donné par les formules théoriques des mécanismes de Nabarro-Herring ou de Coble. De plus des observations, réalisés sur le matériau déformé, ne mettent en évidence qu'un très faible endommagement. Ces deux résultats laissent à supposer que du glissement aux joints de grains pilote la déformation dans ce domaine précis.

#### II.4.1.4. Effet de la pression partielle d'oxygène

De nombreuses études ont été menées pour caractériser l'influence de l'écart à la stœchiométrie sur la réponse viscoplastique de l' $\text{UO}_{2+x}$ . On peut citer les travaux de Seltzer (Seltzer et al., 1971), Burton (Burton & Reynolds, 1973), Nadeau (Nadeau, 1969) et Garcia (Garcia et al., 2021). Comme évoqué précédemment, il est plus correct du point de vue de la cohérence physique d'étudier l'effet de la pression partielle d'oxygène sur le comportement en fluage, plutôt que l'écart à la stœchiométrie (voir chapitre I, section I.4.2). En effet, ce dernier n'est qu'une grandeur intermédiaire qui découle de la température et de la pression partielle d'oxygène (*via* le potentiel chimique de l'oxygène). En pratique, on ne peut pas contrôler cette grandeur *in-situ*, à l'inverse de la pression d'oxygène et de la température. De plus, il est difficile de la déterminer précisément pour un écart à la stœchiométrie

inférieur à  $10^{-3}$ , or c'est justement dans ce domaine très proche de la stœchiométrie que son influence sur le comportement est sans doute le plus notable (Nadeau, 1969; Seltzer et al., 1972).

Les études antérieures ont néanmoins permis d'établir des tendances relatives à l'effet de la non-stœchiométrie. D'un point de vue du comportement macroscopique, on observe un accroissement de la ductilité de la céramique avec une augmentation de son écart à la stœchiométrie. Plus précisément, la vitesse de fluage en régime stationnaire augmente avec l'écart à la stœchiométrie pour un même niveau de contrainte (Figure II-14a). Réciproquement, on observe une diminution de la contrainte d'écoulement avec l'augmentation de l'écart à la stœchiométrie pour une même vitesse déformation imposée (Figure II-14b).

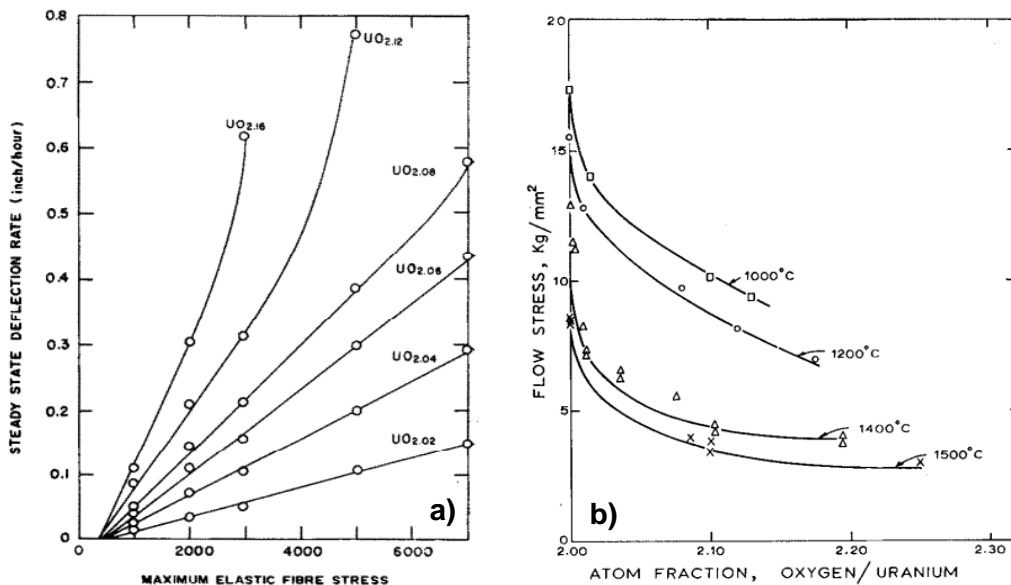
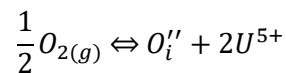


Figure II-14. Mise en évidence d'un effet de l'écart à la stœchiométrie sur la réponse en fluage de l' $UO_{2+x}$ . a) par des essais à charges constantes (Armstrong 1972) ; b) par des essais à vitesses de traverse imposées (Nadeau 1969)

Cet adoucissement peut être qualitativement corrélé à l'évolution de la population de défauts dans le matériau. Une augmentation de  $x$  correspond à l'insertion d'ions oxygènes supplémentaires dans le cristal, la réaction d'oxydation suivante peut s'écrire :



L'ajout de charges négatives avec les ions oxygènes est compensée par l'oxydation de deux cations de l'état +4 à l'état +5.

Comme nous l'avons vu dans la section précédente dédiée à la structure de l'oxyde (II.2.2), une augmentation de l'écart à la stœchiométrie du matériau induit une augmentation de la concentration en interstitiels d'oxygène ainsi qu'en lacunes d'uranium. Or davantage de lacunes d'uranium favorise la diffusion du cation, ce qui entraîne une accélération des phénomènes de transport de matière, tel que l'autodiffusion de l'uranium. Seltzer (Seltzer et al., 1972) quantifie cette influence, à l'aide d'une loi de comportement du type  $\dot{\epsilon}_{vp} \propto x^a$ . Il identifie une dépendance en  $x^2$  pour un rapport O/U > 2,001. De plus, il note un deuxième effet notable sur l'énergie d'activation, celle-ci chute brusquement lorsque l'on s'éloigne du composé stœchiométrique, de 560 kJ.mol<sup>-1</sup> à 238 kJ.mol<sup>-1</sup>.

Plus récemment, Garcia *et al.* (Garcia et al., 2021) ont quantifié l'effet de la pression partielle d'oxygène sur le comportement viscoplastique du dioxyde d'uranium. Ils ont donc utilisé une loi différente de celle de Seltzer reprenant celle développée par Bretheau (1.9) :  $\dot{\epsilon}_{vp} \propto pO_2^\alpha$ . A partir d'une campagne d'essais de compression réalisée à 1500°C avec un contrôle de la pression partielle d'oxygène compris entre  $10^{-10}$  et  $10^{-13}$ atm, ils identifient une valeur de  $\frac{1}{3,7}$  pour le paramètre  $\alpha$  avec une valeur de 7,3 pour le paramètre  $n$ . Cette valeur de  $\alpha$  est proche de 1/3. Cette dernière peut être retrouvée en appliquant le modèle simplifié de défauts établi au paragraphe II.2.3.2 sous l'hypothèse que les défauts majoritaires sont les interstitiels d'oxygène et les trous d'électrons. Cette hypothèse reste valable dans un domaine proche de la stœchiométrie, ce qui est le cas dans cette étude puisque la gamme de pression d'oxygène correspond à un écart à la stœchiométrie inférieur à  $10^{-3}$  d'après les abaques de Perron (Perron, 1968). Ainsi, l'évolution de la population de défauts dans le cristal permettrait d'interpréter l'adoucissement macroscopique du matériau sous l'hypothèse que la cinétique de déformation est contrôlée par la diffusion des cations.

En outre, d'autres phénomènes peuvent expliquer cet adoucissement avec l'augmentation de l'écart à la stœchiométrie. En effet l'activation de systèmes de glissement secondaire peut influencer la réponse viscoplastique du matériau (J. Philibert, 1984).

#### II.4.1.5. Synthèse

L'essentiel des essais macroscopiques portant sur l'étude du comportement en fluage du dioxyde d'uranium ont été réalisés en compression, mais on note quelques études relatives à la flexion. Globalement l'étude du comportement viscoplastique de l' $UO_{2+x}$  et sa caractérisation souffrent d'une dispersion significative et d'un niveau de précision faible relatif aux paramètres des lois de comportement.

Il est néanmoins possible d'établir quelques tendances. En exprimant, comme il est fréquent, la vitesse de déformation en régime stationnaire comme étant proportionnelle à une fonction puissance de la contrainte, la réponse en fluage du dioxyde d'uranium polycristallin présente deux domaines bien distincts :

- Aux faibles contraintes, l'exposant  $n$  de la contrainte est proche de l'unité. La vitesse de déformation s'exprime alors comme le produit de fonctions puissances de la contrainte et de la taille de grains (avec un exposant entre 2 et 3 suivant la taille de grains) ;

- Dans le domaine des fortes contraintes,  $n$  est plus élevé (compris généralement entre 4 et 8). Le passage d'un domaine à l'autre ne peut pas se décrire de manière univoque car la contrainte de transition dépend fortement de la taille de grains et est légèrement influencée par la température. L'exposant élevé de la contrainte est un signe parmi d'autres (voir chapitre I, section I.3.3) que le matériau est le siège d'un mécanisme de fluage-restauration.

Concernant la détermination des énergies d'activation, les résultats expérimentaux souffrent d'une dispersion très importante, sans doute liée à l'absence de maîtrise de la pression d'oxygène au cours des essais.

Enfin l'influence de la composition de l' $UO_{2+x}$  sur sa réponse viscoplastique a été investiguée presque exclusivement en fonction de l'écart à la stœchiométrie. Cependant comme cette grandeur dépend à la fois de la pression partielle d'oxygène et de la température, *via* le potentiel chimique de l'oxygène, il est très difficile de garantir son contrôle *in-situ*, et cela d'autant plus lorsque le composé est proche

de la composition nominale ( $x < 10^{-3}$ ). On comprend l'intérêt qu'il y a de caractériser les différentes propriétés du dioxyde d'uranium tout en maîtrisant la pression partielle d'oxygène.

## II.4.2. Simulation de la réponse viscoplastique du matériau

L'analyse des essais tels qu'ils ont été décrits dans le paragraphe précédent consiste en général à déterminer les paramètres d'une loi du type (1.9), c'est-à-dire décrivant le régime de fluage stationnaire. Or, cette approche ne permet que, dans une faible mesure, d'analyser les résultats d'un essai car elle ne s'appuie sur l'analyse que d'une partie restreinte d'une courbe de chargement. Les effets plus complexes tels que l'analyse de la phase de fluage primaire, l'existence de « pics » ou « crochets » de compression, les effets structuraux et multidimensionnels (frottement, glissement aux interfaces, géométrie du problème) ou liés à la mise en place d'un essai (réponse intrinsèque d'un dispositif d'essai) ne peuvent ainsi pas être analysés. Seule une approche méthodique du problème nécessitant l'appui de la simulation numérique des courbes de chargements permet de saisir la richesse et la complexité d'un essai macroscopique. Peu d'études ont mis en œuvre ce type d'approche. On peut citer les travaux de Colin, Garcia et Salvo (Colin, 2003; Garcia et al., 2021; Salvo, 2014). Nous rappelons ici l'expression et l'origine des différentes lois phénoménologiques qui ont été développées ou mises en œuvre pour décrire le comportement macroscopique de l' $\text{UO}_{2+x}$ .

### II.4.2.1. Loi de fluage stationnaire

Bohaby (Bohaby et al., 1969) fut l'un des premiers à proposer une loi de comportement décrivant la réponse en fluage stationnaire de l' $\text{UO}_{2+x}$  sous compression uniaxiale. Cette loi de comportement a été établie à l'aide de nombreux essais de fluage comme suit :

$$\dot{\varepsilon} = \frac{0,3918}{(\rho - 87,7)d^2} \sigma e^{-\frac{377000}{RT}} + \frac{2,034 \cdot 10^{-25}}{\rho - 90,5} \sigma^{4,5} e^{-\frac{552000}{RT}} \text{ [s}^{-1}\text{]} \quad (2.3)$$

Où  $\sigma$  représente la contrainte de compression,  $\rho$  la densité relative,  $d$  la taille de grain. Cette expression est valide pour une plage de température comprise entre 1400 et 1800°C. On peut voir qu'elle repose sur une somme de deux lois, relatives à deux mécanismes de déformation : le premier correspondant à du fluage-diffusion avec une dépendance à la contrainte linéaire, et le second relatif à du fluage-dislocation avec une dépendance à la contrainte plus élevée, de 4,5. Cette loi permet de simuler, sur l'ensemble de ses essais, la vitesse de fluage secondaire avec une erreur maximale de 30%.

### II.4.2.2. Loi sinus hyperbolique

Dherbey propose une loi de comportement « en sinus hyperbolique » (Dherbey, 2000) :

$$\dot{\varepsilon} = \dot{\varepsilon}_0 e^{\left(\frac{-Q}{kT}\right)} \sinh\left(\frac{\sigma V^*}{kT}\right) \quad (2.4)$$

Où  $V^*$  est le volume d'activation du mécanisme. Le sinus hyperbolique découle de l'expression suivante (Eyring, 1936) :

$$\dot{\varepsilon} = \dot{\varepsilon}_0 \left\{ e^{\left(\frac{-Q - \sigma V^*}{kT}\right)} - e^{\left(\frac{-Q + \sigma V^*}{kT}\right)} \right\}$$

Avec  $\sigma V^*$  représentant l'énergie nécessaire au glissement des dislocations.

L'avantage d'avoir recouru au sinus hyperbolique plutôt qu'une simple loi puissance pour exprimer l'influence de la contrainte est lié au fait que, pour des faibles contraintes,  $\sinh \sigma \sim \sigma$ , alors que pour

des contraintes élevées  $\sinh \sigma \sim \exp \sigma$ . Ainsi à l'aide d'une seule expression, il est possible de décrire le comportement du matériau dans toute la gamme de sollicitations, c'est-à-dire à la fois en fluage-diffusion et en fluage-dislocation. L'utilisation d'une telle loi possède le même inconvénient que la formulation classique de Bohaboy. Elle ne permet pas de simuler le stade transitoire du fluage primaire.

### II.4.2.3. Loi de fluage à effet d'historique

Sauter et Leclercq (Sauter, 2001) ont proposé une loi de fluage dite à effet d'historique, basée sur la théorie des dislocations. Cette loi se décrit selon les 4 équations constitutives suivantes (2.5) :

$$v = v_0 \left( \frac{\tau^*}{\tau} \right)^m e^{\left( -\frac{\Delta H}{RT} \right)}$$

$$\dot{\gamma} = \frac{\dot{\tau}}{M_a} + b\rho v$$

$$\tau^* = \max(0; \tau - \tau_i)$$

$$\dot{\rho} = K\rho v \tau^*$$

Où  $v$  est la vitesse des dislocations,  $\Delta H$  est l'enthalpie libre du mécanisme de migration,  $\rho$  est la densité de dislocations,  $\tau^*$  représente la contrainte effective,  $\tau_i$  la contrainte interne,  $\dot{\gamma}$  est la vitesse de déformation en cisaillement et  $M_a$  la rigidité du dispositif d'essai. Cette loi se base sur la mobilité des dislocations (et donc de la loi d'Orowan) et le champ de contraintes qui en résulte. Cette formulation est issue du modèle de plasticité d'Alexander et Haasen (Alexander & Haasen, 1969).

Cette loi de comportement présente l'avantage de représenter le comportement au cours du fluage primaire et secondaire, et plus précisément le pic de compression observé sur  $UO_{2+x}$  dans certaines études. En effet, la présence de ce pic a été attribué à une importante augmentation de la quantité de dislocations dans le matériau qui arrive à saturation assez tôt. Sauter et Leclercq ont identifié les paramètres de cette loi lors d'essais de compression pour des températures allant de 950 à 1600°C et des contraintes allant de 15 à 250 MPa. Cependant, cette loi d'écoulement correspond plutôt à une situation où la déformation est liée à des mécanismes qui sont homogènes à l'échelle d'un grain. Or, comme nous le verrons au paragraphe suivant, il semble que le fluage-restauration qui caractérise l' $UO_{2+x}$  soit lié à la formation de sous-grains et que la cinétique de restauration soit associée aux cinétiques d'absorption et d'annihilation des dislocations dans les murs de dislocations délimitant ces sous-grains. Il semblerait donc que la formulation de cette loi avec une densité de dislocations supposée homogène ne soit pas totalement pertinente pour décrire cette situation.

Enfin, notons que cette loi ne décrit pas le domaine des faibles contraintes où les systèmes de glissement ne sont pas activés.

### II.4.2.4. Loi à écrouissage cinématique

Colin (Colin, 2003) utilise une loi de comportement avec une variable relative à de l'écrouissage cinématique, dont le tenseur est noté  $\bar{\bar{X}}$ . Cette formulation a été initialement développée par Frederick et Armstrong (P. J. Armstrong & Frederick, 1966) pour modéliser l'effet Bauschinger. Celui-ci correspond à un durcissement du matériau, observé lors d'essais cycliques où la sollicitation passe alternativement de la traction à la compression. Lemaitre et Chaboche (Lemaitre & Chaboche, 1988) ont repris ces équations constitutives et proposé le formalisme suivant (2.6) :

$$\begin{aligned}\bar{\varepsilon} &= \dot{\nu} \cdot \bar{n} \\ \bar{n} &= \frac{\partial f}{\partial \bar{\sigma}} \text{ avec } f = J(\bar{\sigma} - \bar{X}) \\ \dot{\nu} &= \left( \frac{|J(\bar{\sigma} - \bar{X})|}{K} \right)^n \\ \bar{X} &= \frac{2}{3} C \bar{\varepsilon} - D \bar{X} \dot{\nu}\end{aligned}$$

Où  $J$  est le second invariant du tenseur des contraintes. Quatre paramètres sont à identifier dans cette loi :  $K$ ,  $n$ ,  $C$  et  $D$  ( $C$  est homogène à une contrainte,  $K$  à des  $(MPa)^n \cdot s^{-n}$ ,  $n$  et  $D$  sont sans unité). La première et la seconde équation traduisent le fait que l'écoulement viscoplastique est normal à la surface de charge. Colin justifie le choix de cette loi de comportement, comprenant un terme d'écrouissage cinématique, en réalisant des essais de type « *dip-tests* » (voir paragraphe II.4.1.1). Lors de ces essais, il a mis en évidence que le matériau flue en « sens inverse » lorsqu'au cours de la seconde phase de l'essai, la charge est suffisamment basse. Cela signifie qu'une contrainte interne est présente dans le matériau et est supérieure à la contrainte appliquée extérieure lors de seconde phase. On dit que le fluage est « négatif ». Colin, puis plus récemment Garcia (Garcia et al., 2021) ont démontré que cette loi reproduisait de manière très satisfaisante le comportement du dioxyde d'uranium dans le cas d'une sollicitation uniaxiale avec les essais de compression. Cependant Colin a montré dans le cas d'essais de flexion, où la sollicitation est plus complexe, qu'il était nécessaire d'ajouter à la loi d'évolution de la contrainte interne un terme de restauration :

$$\bar{X} = \frac{2}{3} C \bar{\varepsilon} - D \bar{X} \dot{\nu} - \left( \frac{J(\bar{X})}{M} \right)^m \frac{\bar{X}}{J(\bar{X})}$$

Ce terme, incluant un adoucissement du matériau par une évanescence de l'écrouissage, permet une meilleure représentation du comportement de l' $UO_{2+x}$  sollicité en flexion. Concrètement ce terme supplémentaire lui permet de représenter avec plus d'exactitude les pentes finales de ses essais.

Deux paramètres se rajoutent donc à l'identification de la loi :  $m$  et  $M$ .

Retenons ici que dans le cadre de cette étude, il peut être très enrichissant d'analyser les résultats expérimentaux au travers d'une approche « calcul de structure » permettant de tirer le plus d'enseignements possibles de chaque essai. Dans ce cadre, il semble raisonnable de se cantonner à une approche phénoménologique qui permette néanmoins de décrire, partiellement sans doute, les différents types de courbes de charge observées à la fois en compression et en flexion. A cette fin, nous retiendrons la formulation proposée par Lemaitre et Chaboche d'une loi d'écrouissage cinématique avec effet de restauration.

### II.4.3. Identification des mécanismes de déformation à partir de l'examen des microstructures

Nous avons vu au chapitre précédent l'importance d'associer à une loi de comportement macroscopique une caractérisation de la microstructure. Celle-ci va permettre d'étayer le ou les mécanismes de déformation subodorés à partir de la réponse macroscopique. Dans cette partie, nous rapportons certaines des observations microstructurales réalisées sur monocristaux et polycristaux d' $UO_{2+x}$ , et les classons selon le niveau de sollicitation auquel le matériau est soumis.

La première partie est consacrée aux microstructures mises en évidence à la suite de sollicitations à faibles niveaux de contraintes ou de vitesses de déformation.

La seconde partie est dédiée aux observations réalisées sur matériaux déformés à fortes contraintes. Nous commençons par résumer ce que l'on sait des contraintes critiques résolues (CCR) et des systèmes de glissement dans  $UO_{2+x}$ , puis nous détaillons les examens microstructuraux relatifs aux déformations par fluage dit dislocation en général.

#### II.4.3.1. Microstructures associées au fluage à faibles contraintes ou « fluage – diffusion »

Les caractérisations microstructurales faites dans le domaine des faibles contraintes sont peu nombreuses. On peut citer les examens de Dherbey (Dherbey et al., 2002) en MEB. Ces clichés révèlent une répartition de la porosité largement différente de ce qu'elle a pu voir sur des échantillons déformés à fortes contraintes. Celles-ci forment plutôt des ensembles lenticulaires, comme on peut le voir à la Figure II-15.

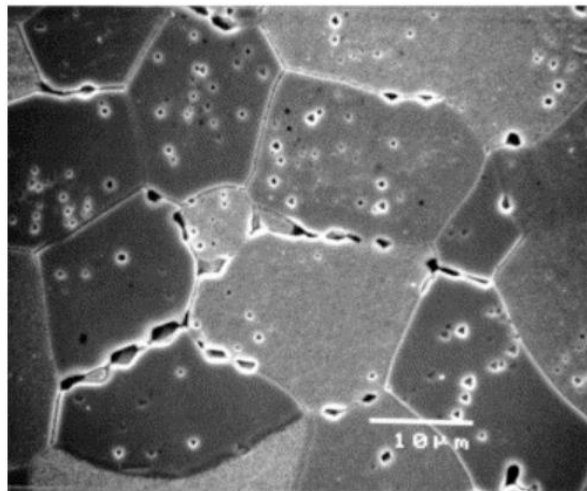


Figure II-15. Micrographie électronique à balayage d'un échantillon déformé à 15% en fluage-diffusion à 25 MPa, à 1465°C [Dherbey 2002].

Cependant dans le domaine du fluage-diffusion, les examens microstructuraux aussi fins et précis soient-ils, ne permettent pas d'opérer une distinction entre les mécanismes de Nabarro-Herring et de Coble. Associés à une analyse EBSD, ils permettraient éventuellement de statuer sur la présence d'une densité de dislocations très faible et sur l'absence de la formation de sous-cellules au sein des grains (Ben Saada, 2017), justifiant ainsi que l'on se situe bien dans un domaine de fluage-diffusion.

Les analyses par MEB peuvent également renseigner sur l'importance du glissement aux joints de grains dans la part de déformation. Il s'agit là de la contribution de l'étude de Chung et Davies (Chung & Davies, 1979b), qui ont sollicité à haute température du dioxyde d'uranium aux grains très fins, de l'ordre de 2  $\mu\text{m}$ . Leurs examens microstructuraux mettent en évidence des grains relativement peu allongés malgré la déformation très élevée (Figure II-16). Ce résultat peut s'expliquer si la déformation est causée principalement par du glissement aux joints de grains, ainsi qu'il est décrit dans le modèle d'Ashby et Verrall (M. F. Ashby & Verrall, 1973).

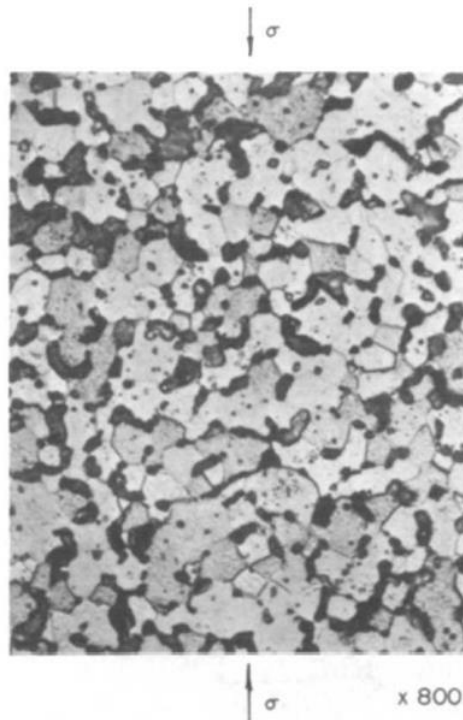


Figure II-16. Microstructure d'un échantillon d' $\text{UO}_{2+x}$  aux grains fins ( $2\mu\text{m}$ ) déformé à 68% à 1350%. (Chung and Davies, 1979b)

En résumé, sur la base des travaux de la littérature, il semble se dégager les corrélations suivantes entre la microstructure (*i.e.* taille de grains) et le mécanisme prédominant de déformation. Lorsque les grains dépassent 20 microns, le mécanisme de Nabarro-Herring semble alors piloter majoritairement la déformation (Vivant-Duguay, 1998). Pour des grains plus petits, compris entre 5 et 20 microns, il s'agirait d'un mécanisme de Coble (Knorr et al., 1989). Enfin un matériau avec des grains encore plus fins, c'est-à-dire de l'ordre du micron voire moins, aurait une déformation majoritairement causée par du glissement aux joints de grains, selon le mécanisme d'Ashby et Verrall (Chung & Davies, 1979b).

### II.4.3.2. Microstructures associées au fluage « dislocation »

#### II.4.3.2.1. Systèmes de glissement dans l' $\text{UO}_{2+x}$ et contraintes de cisaillement critiques

Pour aborder les évolutions de microstructures liées aux déformations viscoplastiques à fortes contraintes, il est nécessaire de s'intéresser aux systèmes de glissement susceptibles d'être activés. Chronologiquement, les informations relatives à cet aspect des propriétés du matériau ont été déterminées en liaison avec des expériences permettant d'évaluer la contrainte, caractéristique du matériau, au-delà de laquelle l'activation de sources et le glissement des dislocations sont rendus possibles. Ces expériences consistent en des essais de compression unidirectionnelle, généralement réalisés à vitesse de traverse constante, mettant en œuvre des monocristaux orientés. Elles ont permis d'établir deux types d'information qui sont intimement liés :

i. L'examen des faces exposées des monocristaux permet de révéler les traces de glissement. Ces informations combinées à des études par microscopie électronique à transmission (MET) établissent la nature des systèmes de glissement activés.



ii. La mesure de la charge axiale plus ou moins stabilisée au cours de l'essai ou prise à une valeur faible de la déformation permet d'évaluer la Contrainte de Cisaillement Critique Résolue (CCCR ou CRSS en anglais). En effet, la contrainte de cisaillement critique caractéristique du système de glissement activé correspond à la composante de la force dans la direction de glissement, résolue dans le plan de glissement considéré. Le rapport entre cette grandeur et la contrainte macroscopique est appelé facteur de Schmid.

Nous tentons ici de dégager les points communs ou les contradictions d'une étude à l'autre malgré l'extrême difficulté que représente l'exercice compte tenu du nombre élevé des paramètres qui influent sur le résultat des expériences et ne sont à l'évidence pas tous rapportés. Notons également la difficulté à tirer des conclusions générales sur la base d'observations par MET, dont les échantillons sont difficiles à préparer et qui correspondent à des volumes d'observation très faibles.

### Généralités sur les systèmes de glissement observés

Il est systématiquement rapporté (Alamo et al., 1978; K. H. G. Ashbee, 1964) que le vecteur de Burgers observé est  $\frac{a}{2}\langle 110 \rangle$ , ce qui correspond à la plus petite période du réseau (K. H. G. Ashbee, 1964). Les plans de glissement sont cependant de type  $\{100\}$ ,  $\{110\}$  ou  $\{111\}$  suivant la température et la teneur en oxygène du matériau ; le système  $\{100\}\langle 110 \rangle$  étant considéré comme le système de glissement facile comme dans d'autres cristaux de structure fluorine (K. H. Ashbee & Frank, 1970). Rapperport et Huntress (Rapperport & Huntress, 1960) ont étudié les premiers la déformation de monocristaux d' $\text{UO}_{2+x}$  en réalisant des essais de compression à des températures allant de 700 à 1900°C. L'observation des traces de glissement a permis de déterminer le système de glissement principal ( $\{100\}\langle 110 \rangle$ ). Leurs résultats indiquent deux systèmes secondaires  $\{110\}\langle 110 \rangle$  et  $\{111\}\langle 110 \rangle$  qui s'activent aux plus hautes températures.

Ces observations n'ont pu être que partiellement confirmées par d'autres auteurs (Alamo et al., 1978; Byron, 1968; Yust & McHargue, 1969). Alamo *et al.* et Byron confirment les plans de glissement faciles, ainsi que l'activation du système  $\{110\}$  suivant l'orientation du cristal. Cependant, Byron ne rapporte pas de dépendance du système activé à la température, mais simplement à l'orientation et Alamo *et al.* mentionnent les plans  $\{111\}$  comme ayant un rôle « auxiliaire » permettant la déviation des dislocations associées aux plans  $\{100\}$  et  $\{110\}$ .

Le rôle des plans  $\{111\}$  est mis en évidence aux écarts à la stœchiométrie élevés dans les études de Yust et Mc Hargue (Yust & McHargue, 1971, 1973) et de Keller et al. (Keller et al., 1988a, 1988b). Les premiers montrent qu'aux températures inférieures ou égales à 1000°C, le glissement a lieu dans les plans  $\{100\}$  à faible écart à la stœchiométrie, alors qu'à plus fort écart ( $x \sim 0,06$ ), il a lieu dans les plans  $\{111\}$ . Keller *et al.* (Keller et al., 1988a, 1988b) confirment l'activation du glissement dans les plans  $\{100\}$  à faibles écarts et hautes températures, et dans les plans  $\{111\}$  à plus forts écarts et aux faibles températures.

On s'attend dans les métaux à structure cubique à ce que le glissement soit favorisé dans les plans  $\{111\}$  car ce sont les plans les plus denses. Par conséquent la déformation locale induite par la dislocation est répartie sur un plus grand nombre d'atomes qui sont moins déplacés par rapport à leur position d'équilibre, d'où une énergie associée à la dislocation plus faible. Cette règle ne s'applique pas à  $\text{UO}_{2+x}$  et aux matériaux de structure fluorine, car ceux-ci se conforment à un critère de minimum d'énergie électrostatique plutôt qu'à celui de minimum d'énergie élastique (Sawbridge & Sykes, 1970).

La question se pose dès lors du mécanisme qui conduit dans les échantillons à plus fort écart à la stœchiométrie à un glissement observé dans les plans {111}. Nous abordons cette question ci-dessous.

### **Evolutions de la CCCR avec la température**

Il est également intéressant de discuter des valeurs de CCCR en fonction de la température et de l'écart à la stœchiométrie, car ces grandeurs sont complémentaires des observations évoquées ci-dessus et de nature à suggérer le mécanisme responsable du comportement observé. De nombreux auteurs ont rapporté une contrainte d'écoulement ou plutôt, à l'exception de Byron, une CCCR pour des monocristaux de diverses orientations en fonction de la température. Concernant le glissement dans les plans {100}, Byron (Byron, 1968), Yust (Yust & McHargue, 1969) et Lefebvre (Lefebvre, 1976) rapportent une diminution conséquente de la CCCR avec la température jusqu'à environ 1000°C, et une diminution moins forte au-delà pour deux de ces trois auteurs (Byron et Lefebvre). D'autres auteurs annoncent des CCCR du même ordre de grandeur entre 1000°C et 1400°C pour des échantillons proches de la stœchiométrie et ce système de glissement (Keller et al., 1988b, 1988a; Sawbridge & Sykes, 1971) : par exemple 27 MPa d'après Sawbridge à 1330°C. De plus, cette grandeur présente une assez forte anisotropie puisque Sawbridge *et al.* annoncent une valeur environ deux fois supérieure pour le glissement dans les plans {110} à cette température (66 MPa). Lefebvre rapporte un rapport à peu près équivalent (facteur 2) dans toute la gamme de températures (entre 800°C et 1400°C), confirmant que les plans {100} constituent les plans de glissement faciles.

Cette diminution de la CCCR avec la température a été associée à un mécanisme de Peierls (Lefebvre, 1976; Nadeau, 1969). Aux basses températures (inférieures à 1000°C environ) pour lesquelles la diffusion est active sur le réseau anionique mais très faible sur le réseau cationique (section II.3), une augmentation de la température pourrait favoriser les réarrangements atomiques locaux au niveau du cœur des dislocations. Ainsi l'activation thermique contribuerait à diminuer les barrières d'énergie, qui franchies, permettent le glissement des dislocations. La cinétique de déformation a donc plus de chance, du moins aux faibles taux de déformations, d'être associée à la cinétique de glissement visqueux de celles-ci. De nombreux auteurs insistent sur le rôle des défauts ponctuels et impuretés anioniques dans leurs expériences. Par exemple, à partir de l'analyse du vieillissement dynamique réalisé aux plus basses températures d'essai (inférieures à 1000°C) et de l'observation de l'effet Portevin-Lechâtelier (voir chapitre 1) observé sous certaines conditions, Lefebvre propose un mécanisme d'interaction lacunes d'oxygène-dislocations ou impuretés anioniques-dislocations dont l'énergie d'activation (compatibles avec les énergies de migration sur le réseau anionique, voir partie II.3.1) est évaluée à 1 eV. On peut également citer l'observation de Lefebvre d'un minimum dans la CCCR pour la direction {100} mais pour un échantillon supposé sous-stœchiométrique. Il est cependant difficile d'imaginer que, même si les échantillons sont sous-stœchiométriques initialement, cet écart soit conservé au cours de l'essai. On s'attend plutôt à une mise à l'équilibre progressive de l'échantillon qui dépendrait alors de la durée totale de l'essai et de la température à laquelle il est réalisé. Malgré tout, Lefebvre associe ce minimum à une interaction défaut anionique-dislocation. L'étude de Yust (Yust & McHargue, 1971) présente des similitudes avec celles de Lefebvre qui nous concernent ici par deux points. Les auteurs observent également un minimum de la CCCR vers 950°C, ainsi qu'un effet Portevin-Lechâtelier à 1150°C. Il est cependant assez difficile de considérer le premier point comme une confirmation des résultats de Lefebvre tant la dispersion des valeurs est importante (par exemple plus de 25 MPa de dispersion aux plus fortes températures étudiées (~1370°C) pour une même vitesse de déformation).

### Evolutions avec la teneur en oxygène

Nous revenons sur les études de Keller *et al.* (Keller et al., 1988b, 1988a) et Yust et al. (Yust & McHargue, 1973) en relation avec l'effet de la non-stœchiométrie. Ces auteurs observent un effet de la non-stœchiométrie sur la nature des plans de glissement, son augmentation étant jugée propice à l'activation de systèmes faisant intervenir les plans {111}. Nous avons remarqué aux paragraphes précédents que les liaisons dans  $UO_{2+x}$  étaient de moins en moins ioniques lorsque  $x$  augmentait. On pourrait ainsi penser que la part de l'énergie électrostatique de la dislocation diminue à mesure que  $x$  croît. Formulée différemment, une hypothèse consisterait à ce que les interstitiels d'oxygène présents dans le matériau contribuent à diminuer la barrière de Peierls de la dislocation, rendant le glissement dans les plans {111} plus facile.

Bien qu'envisagée, cette hypothèse n'est pas retenue par Yust et Mc Hargue (Yust & McHargue, 1971). En effet, ils constatent dans les cristaux d'écart à la stœchiométrie élevée que les traces de glissement ne sont pas rectilignes et présentent un aspect sinueux (« glissement non-cristallographique »). Ils attribuent cela à un phénomène de glissement dévié sur des plans {111} de dislocations vis à partir des plans {100}. Ils émettent l'hypothèse que la présence de défauts ponctuels réduit la contrainte d'écoulement ce qui permet l'activation de deux systèmes de glissement {100} qui interagissent entre eux dans les plans {111} pour former les réseaux de dislocations observés. Ces observations ne semblent cependant pas spécifiques à  $UO_{2+x}$  puisque Sawbridge et Sykes (Sawbridge & Sykes, 1971) arrivent à des conclusions semblables pour des monocristaux d' $UO_{2,0}$ , supposément stœchiométriques.

Par ailleurs, ils rapportent des CCCR indépendantes de la teneur en oxygène pour le glissement dans les plans {100} et une diminution de celles-ci avec la concentration en oxygène pour ce qui est des plans d'orientation {111}. Nadeau (Nadeau, 1969) rapporte également un effet considérable de la non-stœchiométrie (allant de  $UO_{2,0}$  à  $UO_{2,10}$ ) sur cette grandeur pour des monocristaux orientés de telle façon à activer le système  $\{110\}\langle 110 \rangle$ , et ce dans une large gamme de température (1000°C-1600°C, diminution d'un facteur 4 à 1200°C et d'un facteur 2 à 1500°C). Cet effet existe mais semble effectivement moindre pour le système  $\{100\}\langle 110 \rangle$  (Yust & McHargue, 1971).

Les résultats de Keller sont à prendre avec la plus grande précaution pour les raisons suivantes (qui peuvent cependant s'appliquer à nombre de ces études) :

1- La dispersion des points de mesure est très importante. On peut citer plus de 10 MPa d'écart pour des écarts à la stœchiométrie annoncée de  $10^{-5}$ .

2- Les indications relatives à la méthodologie pour maintenir l'atmosphère garantissant la composition des échantillons ainsi que les temps de mise à l'équilibre sont rarement détaillés. Les écarts à la stœchiométrie annoncés sont déterminés à partir de corrélations expérimentales ou de modèles, mais annoncer des écarts à la stœchiométrie de  $10^{-5}$  ou même  $10^{-6}$  n'a pas réellement de signification. Par ailleurs aux plus basses températures, les comportements extrinsèques prédominent et chaque matériau, voire chaque échantillon, se comportera différemment.

3- Les courbes de charge ne sont la plupart du temps pas fournies, ce qui rend très difficile l'analyse critique des données et la comparaison des études entre elles.

De ces études, il faut principalement retenir que la teneur en oxygène a une influence importante sur la plasticité du matériau. Elle a tendance à modifier les systèmes de glissement et à faire diminuer la contrainte d'écoulement substantiellement pour les systèmes  $\{110\}\langle 110 \rangle$  et  $\{111\}\langle 110 \rangle$ , mais aussi

dans une moindre mesure pour le système de glissement principal de  $\text{UO}_{2+x}$ ,  $\{100\}\langle 110\rangle$ . Notez aussi que la référence à la CCCR n'est pas toujours extrêmement pertinente dans la mesure où il n'est pas forcément vérifié dans les études qu'un seul type de système de glissement est actif pendant l'expérience considérée. La charge mesurée correspond alors plutôt à une contrainte d'écoulement.

### **Synthèse**

Nous avons vu que le système de glissement facile de  $\text{UO}_{2+x}$  est  $\{100\}\langle 110\rangle$ , mais que des systèmes secondaires  $\{110\}\langle 110\rangle$  et  $\{111\}\langle 110\rangle$  existent. La contrainte de cisaillement critique pour le glissement selon les plans  $\{110\}$  est environ deux fois plus élevée que selon les plans  $\{100\}$  à toutes les températures. Le grand nombre de systèmes de glissement indépendants donne lieu à de nombreuses possibilités pour que les dislocations interagissent entre elles pour former des réseaux de dislocations à mesure que le taux de déformation augmente. À ce titre, les plans  $\{111\}$  apparaissent jouer un rôle singulier. Des augmentations de la teneur en oxygène et de la température sont de nature à adoucir le matériau substantiellement. L'adoucissement dû à l'augmentation de la teneur en oxygène s'avère être plus important pour les plans  $\{110\}$  que pour les plans  $\{100\}$ . Ces éléments amènent bon nombre d'auteurs à invoquer un mécanisme de type Peierls pour le contrôle de la cinétique de déformation de  $\text{UO}_{2+x}$  mettant en jeu des interactions entre défauts ponctuels anioniques et dislocations. Ceci est surtout le cas aux températures inférieures à  $1000^\circ\text{C}$ . Au-delà, certains auteurs évoquent un mécanisme de fluage-restauration. Il y aurait donc une transition à la température à laquelle les défauts du réseau cationique deviennent mobiles.

Notons finalement qu'il n'est pas aisé d'analyser de manière synthétique ces informations et les conclusions que nous tirons ne peuvent être considérées que qualitatives. Les difficultés de l'exercice sont liées à la forte dispersion des résultats à l'intérieur d'une même étude et d'une étude à l'autre. Il existe une myriade de sources de dispersion potentielles : la composition en oxygène des échantillons ou l'atmosphère de l'essai qui n'est pas maîtrisée le plus souvent, le comportement des défauts extrinsèques à basse température (inférieure à  $1000^\circ\text{C}$ ) lié au taux et la nature des impuretés qui peuvent modifier substantiellement les concentrations en défauts ponctuels, la vitesse de sollicitation à laquelle est réalisé l'essai, la répétabilité des essais compte tenu du jeu qui peut exister dans les machines d'essais, l'élancement des échantillons, leur orientation exacte...

Les études sur monocristaux que nous avons abordées ici sont souvent couplées à des évaluations de CCCR et associées à de faibles taux de déformations. Nous allons désormais aborder spécifiquement les manifestations microstructurales observées à plus forts taux de déformations dans les monocristaux et polycristaux.

#### **II.4.3.2.2. Microstructures observées à forts niveaux d'endommagement**

Nous nous focalisons ici sur les microstructures observées après déformation sur des échantillons ayant subis de forts niveaux de déformation, de l'ordre de plusieurs pourcents. De ce fait, ces microstructures concernent des expériences menées aux plus hautes températures (supérieures ou égales à  $1000^\circ\text{C}$ ) auxquelles le matériau présente une forte ductilité. Des résultats existent pour des monocristaux et des polycristaux, et couvrent des échelles très différentes puisqu'ils concernent des observations par microscopie optique et électronique, par balayage et transmission.

L'évolution de la microstructure à forts taux de déformation peut être quantifiée à travers trois aspects : l'apparition de cavités ou de fissures, la croissance granulaire et la formation de sous-joints de grains. Concernant les deux premiers aspects, au moins trois études sur des polycristaux font état de l'apparition de cavités ou de fissures, essentiellement intergranulaires à des niveaux de déformations compris entre 5 et 15 % (Dherbey, 2000; Garcia et al., 2021; Ndiaye, 2012). D'après Ndiaye, la porosité intergranulaire se développe différemment suivant que les mécanismes de déformation sont plutôt associés à du fluage dit « diffusif » ou du fluage dit « dislocation ». Au premier mode de déformation est associée une porosité sphérique, alors que le second mode de déformation engendre l'apparition de cavités plus allongées et plus anguleuses. Ces dernières observations, c'est-à-dire la présence de décohésions, sont corroborées par Dherbey et Garcia dans une gamme équivalente de températures (environ 1500°C) et de contraintes (de 50 à 80 MPa) et sont attribuées à une forme de glissement intergranulaire. Dherbey fait remarquer que ces fissures présentent une orientation plutôt parallèle à l'axe de compression (Figure II-17). La figure semble mettre en évidence des décohésions également orientées à 45° de l'axe de compression. Dherbey et Ndiaye font remarquer que la croissance granulaire à l'issue de ce type d'essai semble équiaxe.

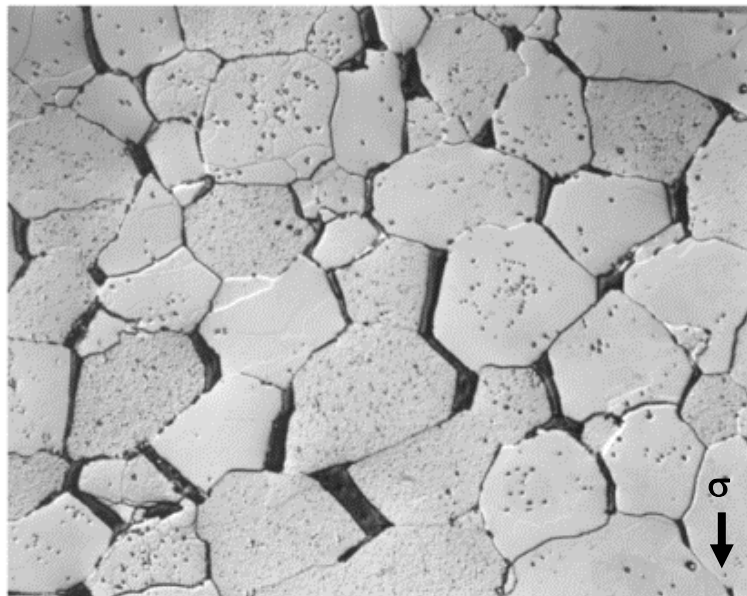


Figure II-17. Observation de la microstructure d'un échantillon déformé à 8,7% en fluage-compression sous 50 MPa à 1465°C - après attaque chimique. [Dherbey 2000]

Il est intéressant de noter que les différences observées d'une étude à l'autre pourraient résulter de la réalisation des essais sous atmosphère plus ou moins oxydante. En effet, Garcia *et al.* (Garcia et al., 2021) font état de la présence de poches de porosités anguleuses associées à du glissement intergranulaire, alors que Ben Saada (Ben Saada et al., 2019) n'observe pas cette porosité. Or, les essais de compression auxquels ces deux études font référence sont réalisés sur des matériaux élaborés de manière identique et présentent donc la même microstructure initiale. Les températures d'essais, les vitesses de déformation et les niveaux de déformation finaux sont très proches. Garcia *et al.* rapportent que le volume de matériau concerné par ce niveau de porosité élevé est d'autant plus grand que la pression partielle d'oxygène pendant l'essai est élevée. Si les essais relatés par Garcia *et al.* sont réalisés sous Ar/H<sub>2</sub> humidifié, ceux de Ben Saada sont en revanche réalisés dans un mélange d'argon et d'hydrogène simplement donc *a priori* à des pressions partielles plus basses de plusieurs ordres de grandeurs. Ceci souligne, si besoin était, l'importance du contrôle des conditions thermodynamiques

de l'essai. Si l'apparition de porosités au cours de ce type d'essai n'est donc pas toujours rapportée, l'apparition de sous-joints de grains l'est systématiquement. Ben Saada (Ben Saada, 2017) a récemment mis au point une méthodologie basée sur l'EBSD qu'elle a appliquée à la quantification de certaines des caractéristiques de ces sous-joints. La Figure II-18, tirée de sa thèse, est une cartographie obtenue à partir d'une analyse EBSD, qui présente d'une part les grains d'origine, fortement désorientés (désorientation supérieure à  $5^\circ$ ), et d'autre part les sous-joints de grains résultant de la déformation mécanique subie par l'échantillon. On note que ces sous-joints délimitent des zones à l'intérieur des grains d'origine qui sont faiblement désorientées les unes par rapport aux autres. L'analyse de telles informations permet de quantifier certaines caractéristiques de ces sous-joints : la fraction linéique de sous-joints délimitant des zones de faibles désorientations et sa répartition par classes de désorientation associée. Ben Saada *et al.* (Ben Saada et al., 2019) notent par ailleurs que ces grandeurs (les fractions linéiques de sous-joints dans chacune des classes de désorientation) restent relativement stables pour des déformations comprises entre 5 % et 10 % (vitesse de déformation de  $2 \cdot 10^{-5} \text{s}^{-1}$ ). Ceci est cohérent avec un mécanisme de fluage stationnaire au cours duquel l'endommagement est « absorbé » par le matériau par un mécanisme de restauration. Le fait que, dans cette gamme de déformation, on observe également un régime quasi-permanent dans les courbes de charge associées aux expériences corrobore cette analyse.

Dherbey (Dherbey et al., 2002) a également observé, dans les mêmes gammes de températures et de

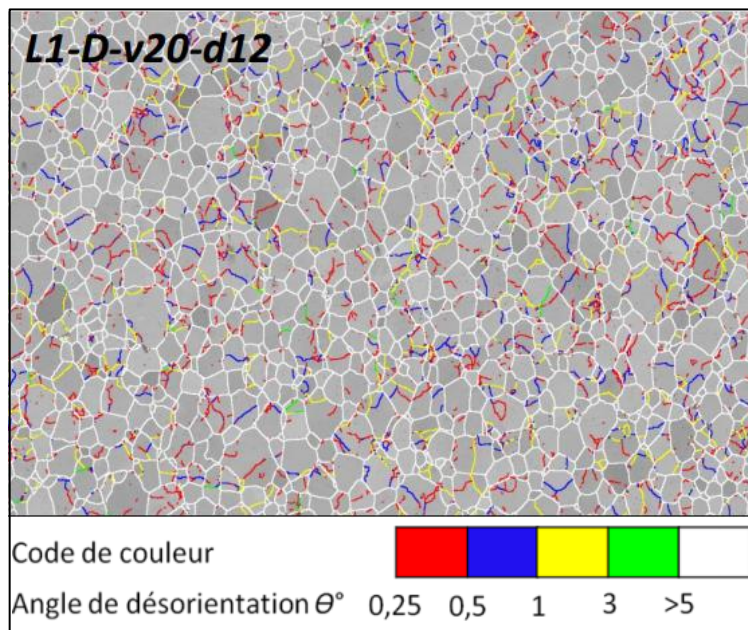


Figure II-18. Carte d'index de qualité et de désorientations relatives sur  $\text{UO}_{2+\text{-}x}$  déformé à  $20 \mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$ . [Thèse M. Ben Saada 2017]

contraintes, la formation de sous-joints de grains à partir du réarrangement de dislocations. Son étude par MET a confirmé des résultats antérieurs de Alamo *et al.* (Alamo et al., 1978) en particulier, selon lesquels ces sous-joints de grains sont formés de réseaux hexagonaux constitués d'au moins trois types de dislocations. D'ailleurs, les irrégularités observées dans les sous-joints de grains suggèrent, d'après ces auteurs, que les dislocations formées à l'intérieur des grains peuvent être échangées entre sous-grains *via* des processus d'émission et d'annihilation qui ne sont pas identifiés.

Les caractérisations par MET les plus poussées de ce type de sous-joints sont dues sans doute à Lefebvre (Lefebvre, 1976) et concernent des monocristaux qui ont subi des essais de compression à

1000°C et 1400°C jusqu'à 7 et 12 % de déformation respectivement, en glissement dévié. L'auteur constate la formation généralisée de sous-joints de grains et la présence de dislocations dans ces sous-joints exclusivement. A 1000°C, il constate la présence de structures hexagonales (très semblables à celles de Dherbey) constituées de deux familles de dislocations vis, issues des plans {100} et ayant interagi entre elles sur les plans {111}.

S'il est donc confirmé comme le suggère Philibert (J. Philibert, 1984) que ces microstructures sont associées à une forme de fluage-restauration (voir chapitre I, section I.4.3), la question se pose du mode de restauration. Celui-ci peut être le glissement dévié (dans le cas de dislocations vis) ou la montée (dans le cas de dislocations coins) ou une combinaison des deux. Récemment, Mansour *et al.* (Mansour et al., 2019) ont étudié finement la nature des dislocations au sein des sous-joints en s'appuyant sur une technique de visualisation des défauts cristallins qui peut désormais être mise en œuvre dans un MEB : l'A-ECCI (Accurate Electron Channelling Contrast Imaging). Cette technique est combinée à l'EBCD à haute résolution afin de cartographier les orientations des différentes régions du cristal, mais surtout afin de caractériser la nature des dislocations qui forment des réseaux constituant ainsi des sous-joints. Ces auteurs ont en particulier caractérisé un

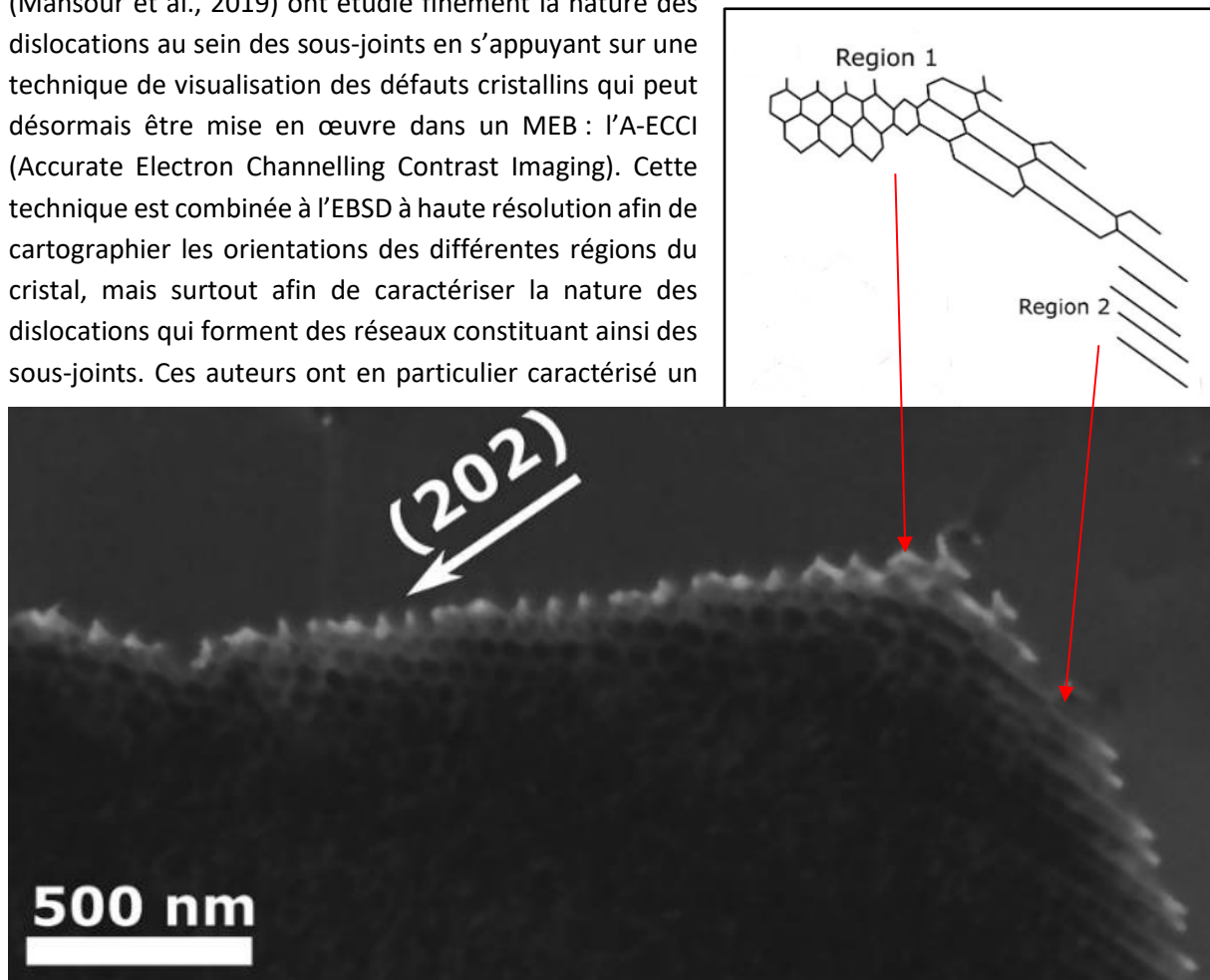


Figure II-19. Observation en A-ECCI d'un sous-joint de grain dans l' $\text{UO}_{2-x}$ . [Mansour et al. 2019]

sous-joint sur toute sa longueur « visible » présentant une transition nette d'une sous-structure de réseau hexagonale vers une sous-structure de type « mur de dislocations », les dislocations étant parallèles entre elles (Figure II-19). L'analyse proposée, semblable aux analyses qui peuvent être réalisées par MET, montre que les réseaux hexagonaux sont constitués de trois types de dislocations, deux d'entre elles étant des dislocations vis, et la troisième étant une dislocation coin ou mixte. Le mur de dislocations est par contre constitué de deux types de dislocations, parallèles entre elles, dont un présente un caractère mixte. Ainsi, le sous-joint doit présenter lui-même un caractère mixte, c'est-à-dire de flexion et de torsion.

## Synthèse

Nous avons vu que les déformations viscoplastiques réalisées à hautes températures (supérieures à 1000°C) à des vitesses de déformation (supérieures à  $10^{-5}\text{s}^{-1}$ ) et des niveaux de déformations importants (plusieurs pourcents) conduisent à une modification profonde des microstructures initiales qui se caractérise par la formation d'une porosité intergranulaire et anguleuse, ainsi que l'apparition de sous-joints de grains. Ces sous-joints de grains délimitent des zones des cristaux d'origine faiblement désorientées les unes par rapport aux autres. Ils sont constitués de dislocations organisées en réseaux géométriques (hexagones, rectangles, ...) et constituent des signes d'un phénomène de fluage-restauration pour lesquels l'annihilation a lieu par incorporation de dislocations à partir du grain dans les réseaux constituant les sous-joints de grains. Les études disponibles sur le sujet montrent que les dislocations en question présentent un caractère vis ou mixte, et produisent par conséquent des joints mixtes (de flexion et de torsion). Le processus de restauration subodoré peut donc être le glissement dévié, la montée ou une combinaison des deux mécanismes. Ces sous-structures ressemblent en tout point aux sous-structures dont la formation est décrite par Reppich *et al.* (Reppich, 1974) dans MgO, et initialement dans les métaux (Caillard & Martin, 1982; Lindroos & Miekko-Oja, 1968, voir chapitre 1 section I.4.1), par un mécanisme de « tricottage » et sont associées à un mécanisme de fluage-restauration.

## **II.5. Conclusion et positionnement de cette étude**

Une propriété essentielle du dioxyde d'uranium réside en sa non-stœchiométrie en oxygène dont l'origine est liée aux différents équilibres existant entre défauts pour des conditions thermodynamiques données. Les défauts sont d'une complexité variable en fonction des conditions mais on retiendra que : 1- les forces électrostatiques jouent un rôle majeur, 2- les défauts du réseau anionique sont plus abondants que ceux présents sur le réseau cationique et 3- une concentration en défauts ponctuels, quel que soit la nature du défaut, peut s'exprimer comme une fonction puissance de la pression partielle ( $\text{Défaut} \propto pO_2^\alpha$ ) dans une certaine gamme (Partie 2).

De multiples propriétés matériaux découlent des points précédents. On peut citer dans un premier temps les propriétés de transport dans le dioxyde d'uranium. Nous avons vu que la diffusion de l'oxygène était aujourd'hui relativement bien décrite, mais ce n'est pas le cas pour la diffusion du cation. Malgré le nombre important d'études sur le sujet, les incertitudes restent trop importantes et font obstacle à une compréhension globale du sujet (Partie 3). On peut cependant retenir que la diffusion du cation est bien plus faible que celle de l'anion et que, dans un régime de défauts ponctuels c'est-à-dire aux faibles écarts à la stœchiométrie, le coefficient de diffusion s'exprime comme :  $D_{U \text{ ou } O} \propto pO_2^\alpha$ .

Enfin nous nous sommes intéressés dans le détail à la littérature disponible relative au comportement viscoplastique de l' $UO_{2+x}$ . Celui-ci a fait l'objet de nombreuses études qu'il est souvent difficile de comparer entre elles, et, de la même manière que pour l'étude des propriétés de transport, souffre de fortes incertitudes. Les causes sont multiples. Nous avons pu en identifier certaines parmi lesquelles : le nombre très important de paramètres physiques (déformation finale (fluage primaire ou stationnaire), vitesses de déformation, contrainte, microstructure initiale), la mise en œuvre des essais et l'absence parfois de contrôle de grandeurs physiques clés (la pression partielle d'oxygène). Par ailleurs, chaque étude propose une méthode d'analyse qui suppose la mise en œuvre d'un modèle, même élémentaire. Ceci rajoute aux difficultés de comparer les études entre elles et peu font l'objet



de simulations numériques. Or la simulation permet d'enrichir l'analyse des essais typiquement en permettant de décorrélérer les effets parasites tel que l'effet de l'élanement, le frottement sur les pièces de structures, et d'autres.

Malgré ces réserves, il est possible de dégager certaines tendances à basses et hautes températures, à faibles et fortes contraintes :

i. En dessous de 1000°C, le dioxyde d'uranium est fragile. Les déformations sont seulement possibles sur des monocristaux par glissement des dislocations.

ii. À plus hautes températures et pour des contraintes faibles, il est observé une dépendance linéaire à la contrainte de la vitesse déformation. Même s'il est clair que la déformation est pilotée par un mécanisme de fluage-diffusion, les études manquent de précision pour pouvoir décrire avec exactitude les transitions entre les différents mécanismes faisant intervenir le transport atomique de matière (Nabarro-Herring, Coble, Ashby-Verrall, ...). Il se dégage seulement un net effet de la taille de grain : aux tailles les plus grandes, le transport semble se faire principalement dans le cœur des grains ; aux tailles intermédiaires, de quelques microns, le transport de matière se produit de façon accéléré le long des joints de grains ; et enfin pour les tailles de grains les plus fines, la déformation semble majoritairement causée par du glissement aux joints de grains.

iii. À hautes températures et fortes contraintes, la valeur élevée de l'exposant de contrainte ( $n > 4,5$ ) ainsi que la microstructure caractéristique laissent à penser que la déformation est pilotée par un mécanisme de fluage-restauration.

Cependant, des questions précises demeurent :

i. À hautes températures et dans le domaine des fortes contraintes, quel processus de restauration entre en jeu et contrôle le comportement ? S'agit-il d'un processus de restauration par montée, par glissement dévié, ou les deux ?

ii. À quel phénomène et quel processus (micro-)structural peut-on relier l'allure des différentes courbes de charges ? (Pic de compression, écrouissage du matériau, écoulement stable, ...)

iii. Quel rôle a la pression partielle d'oxygène sur le comportement viscoplastique du dioxyde d'uranium ? Est-ce son influence sur la diffusion des espèces qui importe principalement ou bien celui sur le glissement des dislocations ? Et également joue-t-elle différemment sur le comportement en fonction de la taille de grains ?

Il est clair qu'il doit exister un lien entre les propriétés de transport atomique du constituant dont le coefficient de diffusion est le plus faible et la réponse en fluage du dioxyde d'uranium. Ce lien est plus évident dans le domaine dit des faibles contraintes, mais plus difficile *a priori* à mettre en évidence dans le domaine des fortes contraintes. Faute de données précises relatives à l'autodiffusion du cation, il est impossible aujourd'hui de statuer. On peut simplement garder à l'esprit qu'un fil conducteur intéressant consiste à caractériser la dépendance, à une température donnée, des propriétés de fluage à la pression partielle d'oxygène, par l'identification précise des paramètres de la loi de comportement ( $\alpha$  et  $n$ ).

Il paraît également nécessaire, au vu des très fortes dispersions observées d'une étude à l'autre, d'allier la réalisation d'essais macroscopiques à la modélisation numérique de ces essais et la caractérisation (microstructurale) du matériau avant et après déformation. D'une part la simulation permet la modélisation du fluage primaire, dont la prise en compte est essentielle au vue de

l'établissement d'une loi de comportement prédictive. D'autre part la corrélation avec les examens microstructuraux renseigne sur la présence de zones de déformations prononcées.

Ainsi, afin d'aborder ces questions, le présent manuscrit est organisé de la manière suivante :

Une description détaillée des dispositifs expérimentaux utilisés est menée dans le **chapitre 3**. L'accent se porte sur la maîtrise de l'essai mécanique ainsi que des différentes grandeurs physiques que l'on mesure (charge, déplacement imposé, température, pression partielle d'oxygène). Une présentation des essais de compression uniaxiale et de flexion 3 et 4 points est effectuée. Pour finir, la procédure d'essais est décrite précisément, de la mise en place des échantillons, à l'établissement de l'atmosphère, jusqu'à la réalisation de l'essai mécanique.

Ensuite le **chapitre 4** est dédié à la présentation de nos outils numériques. Le formalisme choisi des grandes transformations, les différents modèles uni- et multidimensionnels, ainsi que la loi de comportement implémentée avec lesquels nous simulons les différents essais y sont présentés.

La campagne d'essais de compression, réalisée à haute température sous atmosphère contrôlée, est abordée dans le **chapitre 5**. Après une description de la microstructure des matériaux d'étude, les résultats expérimentaux sont présentés. Une analyse à partir de la loi phénoménologique (1.9) permet l'identification des dépendances à la contrainte et à l'atmosphère. Divers examens microstructuraux réalisés sur les échantillons déformés sont également présentés. Pour finir une analyse de ces résultats, étayée par la simulation numérique de ces essais, est proposée.

Il s'en suit, dans le **chapitre 6**, la présentation des essais réalisés en flexion 3 et 4-points sous atmosphère contrôlée. La microstructure des matériaux étudiés, présentant des différences avec celles utilisées pour les essais de compression, est décrite. Dans un second temps, les résultats des essais sont présentés, et une première analyse en est faite pour déterminer les effets de la contrainte et de l'atmosphère. Après avoir présenté les examens microstructuraux conduits sur les éprouvettes déformées, une discussion des résultats est faite. Celle-ci s'appuie sur l'analyse combinée des essais mécaniques, des examens microstructuraux et de la simulation numérique des essais.

Une synthèse des résultats principaux est proposée à la suite de ces deux chapitres, et constitue le **chapitre 7**. Une analyse critique du comportement viscoplastique du dioxyde d'uranium lors de nos essais est menée. Il en est de même des examens microstructuraux, auxquels s'ajoute la caractérisation conduite en MET sur un monocristal déformé. L'objectif est de tenter d'apporter des éléments de réponses aux divers points soulevés au cours de la synthèse de la littérature du sujet, présenté tout au long de ce chapitre.

Le **chapitre 8** se consacre à la présentation d'une étude relativement distincte, centrée sur l'investigation du fluage sous irradiation du dioxyde d'uranium. En effet, au cours de ces travaux de thèse, nous avons participé à la mise en place d'une expérience unique sur le combustible de traction sous irradiation. Le cadre de l'expérience, ainsi que les résultats principaux sont présentés.

# Chapitre 3 : Dispositifs expérimentaux

---

## III.1. Introduction

L'étude du fluage des céramiques consiste à réaliser des essais mécaniques à haute température. Imposer une sollicitation mécanique dans un environnement chaud requiert l'utilisation de dispositifs complexes, souvent composés d'un assemblage de systèmes initialement indépendants (presse, four, ...). Dans notre cas, les conclusions du chapitre 2 indiquent qu'il est nécessaire de contrôler avec précision l'atmosphère d'essai, notre matériau étant un oxyde non-stœchiométrique.

Les presses mécaniques utilisées dans cette étude sont des presses de marque INSTRON, sur lesquelles sont montés des systèmes de chauffe utilisant des résistances chauffantes. La conception de ce type de système dépend de l'application visée (plages de température ou types de sollicitation désirés, atmosphère...) et chaque montage est donc unique. La zone « utile » du four permet une chauffe homogène pour des échantillons de taille centimétrique, tout en laissant l'espace nécessaire à la réalisation d'un essai mécanique. L'enceinte du four est de plus entièrement hermétique ce qui permet un contrôle précis de l'atmosphère lors des essais.

Ce chapitre est consacré à la description de nos dispositifs d'essais thermomécaniques (de compression et de flexion). En particulier, l'instrumentation permettant les mesures des différentes grandeurs physiques pendant l'essai (charge, déplacement et pression partielle d'oxygène) est présentée et détaillée. Dans la section III.3, nous abordons la phénoménologie et l'analyse des essais mécaniques de compression et de flexion. Dans la dernière partie de ce chapitre, nous décrivons la mise en œuvre des essais et les principales difficultés auxquelles nous avons été confrontés. La description de notre mesure de la température ainsi que de la procédure d'étalonnage peut être trouver en Annexe 2.

## III.2. Description des dispositifs d'essais thermomécaniques

Deux dispositifs d'essais thermomécaniques ont été utilisés dans le cadre de ce travail. Le dispositif de compression a été décrit avec précision de nombreuses fois (par exemple dans les thèses de Vivant-Duguay et Salvo (Vivant-Duguay, 1998), (Salvo, 2014)). Nous en rappelons ici les principales caractéristiques. Par contre, le dispositif de flexion n'a fait l'objet que de peu d'études et sa description est par conséquent plus détaillée.

### III.2.1. Presses et fours

#### III.2.1.1. Dispositif de compression

Le dispositif d'essai thermomécanique « PRECOCE » est composé d'une presse Instron, modèle 1185, d'une capacité de 100 kN et d'un four à haute température dont les éléments chauffants sont en tungstène. Ce dispositif peut fonctionner sous atmosphères réductrice (mélange d'argon et d'hydrogène), inerte (Ar) ou sous vide. Il permet de travailler jusqu'à des températures de l'ordre de 1900°C. La Figure III-1 montre un schéma du dispositif dans son ensemble.

La force est appliquée *via* la colonne supérieure, reliée elle-même à une traverse mobile. La cellule de charge utilisée ici est d'une capacité de 50 kN. Elle permet de mesurer la charge transmise par la

traverse, *via* la colonne, à l'échantillon avec une précision de  $\pm 10$  N. L'asservissement de la machine permet le pilotage des essais en charge constante ou en vitesse de traverse imposée.

Les dimensions du dispositif permettent la réalisation d'essais de compression sur des échantillons de hauteur pouvant aller de quelques centimètres à quelques millimètres. De géométries cylindriques ou parallélépipédiques, ils sont comprimés entre deux cales dites « martyres » en tungstène également. Elles transmettent l'effort de compression de la colonne supérieure mobile à la colonne inférieure fixe. La déformation de l'échantillon est mesurée *in-situ* à l'aide de deux tiges extensométriques, l'une en contact avec la cale supérieure et l'autre avec la cale inférieure. Ces tiges sont reliées dans leurs parties inférieures à deux capteurs LVDT (marque Solartron) situés en zone « froide ». Ils ont une course maximale de 1 cm, et ont une précision de l'ordre du micron.

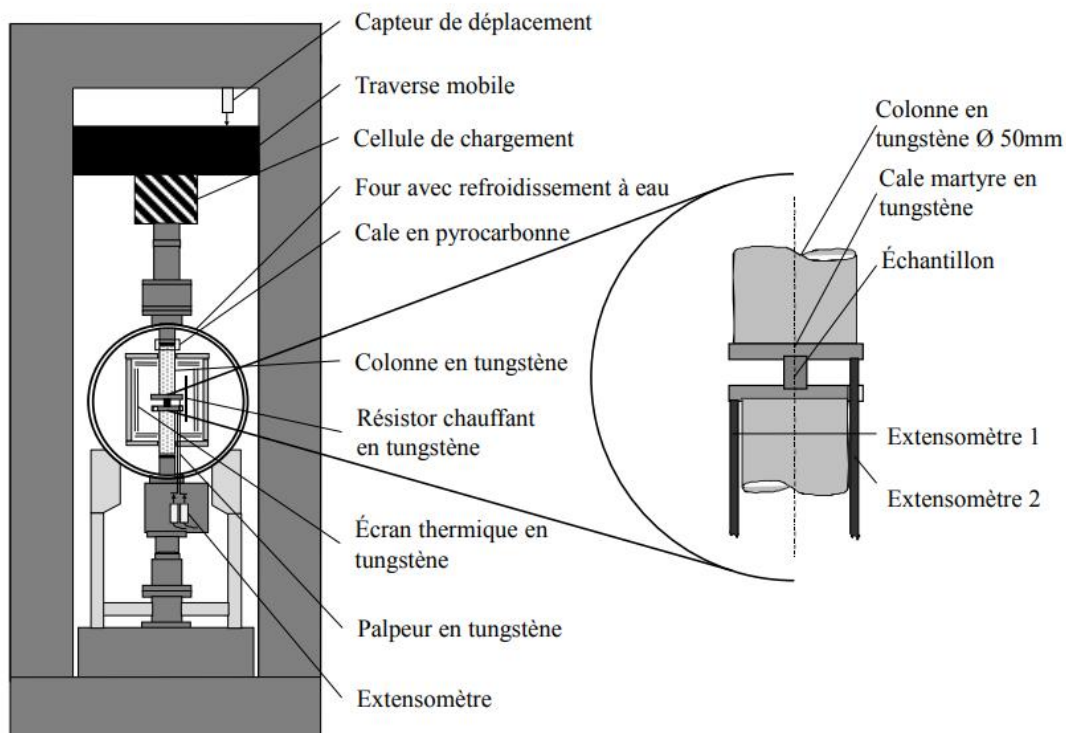


Figure III-1. Dispositif d'essai thermomécanique de compression - Thèse Salvo 2014, inspiré de Thèse Vivant-Duguay 1998.

En faisant l'hypothèse que les cales en tungstène ne se déforment pas au cours de l'essai et que les plans horizontaux définis par les surfaces supérieures et inférieures des cales et de l'échantillon restent parallèles entre elles, la différence entre le déplacement correspondant à la cale supérieure et celui correspondant à la cale inférieure est égale à la variation de hauteur de l'échantillon. L'intérêt de cette méthode est de permettre une mesure extensométrique précise de la hauteur de la pastille et de s'affranchir des mouvements éventuels de corps rigide du dispositif. Cela permet aussi de limiter l'effet de la dilatation thermique des pistons du dispositif.

Une caractérisation précise de la dimension des cales avant et après essai permet de constater leur déformation progressive à mesure que les essais sont réalisés. Elles perdent leur parallélisme et prennent une forme de coque concave. En toute rigueur l'analyse d'un essai nécessiterait la prise en compte du comportement thermomécanique du tungstène et de son évolution dans le temps. Nous

avons fait le choix de caractériser les épaisseurs avant et après essai, d'estimer l'influence de cet effet sur l'erreur commise dans la détermination de la déformation de la pastille, et de changer les cales régulièrement. En pratique nous conservons un même jeu de cale pour 3 à 5 essais de compression, sans avoir de critère précis sur la déformation maximale que nous admettons acceptable pour les cales.

L'isolation thermique du four, sensible au niveau de l'axe de transmission de l'effort, est assurée par des cales en pyrocarbone placées de part et d'autre des colonnes en tungstène. Ces pièces, susceptibles de s'endommager, peuvent être source de complications de mise en œuvre de l'essai (désalignement de l'axe de compression, mouvement de corps rigide trop important, ...). Elles doivent donc être également remplacées régulièrement (environ 1 fois par an).

Un travail important a été conduit pour contrôler la pression partielle d'oxygène lors de nos essais à haute température. Une description de la solution mise en place peut être trouvée dans l'article de Garcia (Garcia et al., 2021). Nous abordons ce sujet dans la section III.2.2.

### III.2.1.2. Dispositif de flexion

Le second dispositif d'essai thermomécanique « MECAFLEX » est également constitué d'une presse de marque Instron, modèle 5565, d'une capacité de 10 kN, associée à un four comportant des éléments chauffants en tungstène (Figure III-2). Cet équipement permet donc de travailler jusqu'à 1900°C dans des conditions similaires au dispositif de compression.



Figure III-2. Eléments chauffants : demi-coque et maillage en Tungstène

La traverse supérieure constitue la partie mobile de la presse et permet d'appliquer un effort *via* la colonne supérieure. Le dispositif est équipé d'une cellule de charge de 1 kN située cette fois dans la partie inférieure et permet une mesure de la charge à 0,1 N près. De la même manière que le dispositif de compression, les essais se pilotent soit en charge soit en vitesse de traverse.

Dans le cadre de cette étude, des essais de flexion 3-points et 4-points ont été réalisés. En Figure III-3, on peut voir une illustration de la configuration 3-points. L'entraxe est fixé par l'outil inférieur positionné sur la colonne du bas, celui-ci est de 25 mm. Le passage à la configuration 4-points se fait en changeant l'ensemble de la colonne supérieure. L'entraxe entre les appuis supérieurs est de 12,5 mm, on a donc un rapport de 2 entre les entraxes inférieurs et supérieurs en 4-points.

Comme présenté en partie III.3, l'essai de flexion est un essai plus complexe à analyser que l'essai de compression du fait de l'existence d'une large gamme de contraintes allant de la compression en peau interne à la traction en peau externe de la poutre. La flexion 3-points est plus facile à mettre en œuvre que la flexion 4-points car cette dernière technique nécessite un parallélisme parfait entre les plans définis par les deux points d'appuis supérieurs et inférieurs. La flexion 4-points présente cependant l'avantage d'induire un moment fléchissant constant et l'absence d'effort tranchant entre les deux points d'appuis supérieurs, ce qui rend son analyse *a priori* plus simple.

Deux tiges extensométriques en tungstène, installées au cœur du dispositif, mesurent le déplacement de la colonne supérieure et la flèche maximale de l'échantillon (voir Figure III-3 et Figure III-4 – les palpeurs sont représentés en violet sur le schéma). La mesure effective est réalisée par deux capteurs LVDT situés en zone froide, de propriétés identiques à ceux utilisés dans le dispositif de compression. En configuration 3-points, les deux déplacements mesurés sont identiques, car la flèche au point médian, située sous le point d'application, est égale au déplacement imposé par la traverse. La double mesure est nécessaire en flexion 4-points et apporte une information supplémentaire : la flèche maximale. La Figure III-5 représente le dispositif thermomécanique dans son ensemble.

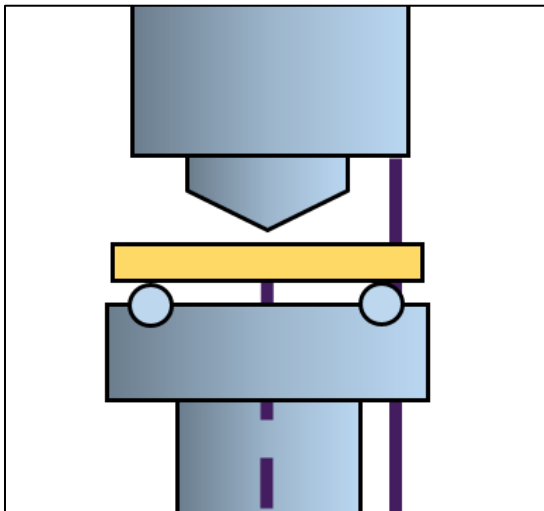


Figure III-3. Vue schématique de l'échantillon indiquant la position des deux tiges extensométriques qui permettent la mesure de la flèche maximale et de la flèche imposée (Palpeurs représentés en violet).



Figure III-4. Capteurs de déplacement (type LVDT), déportés en zone froide.

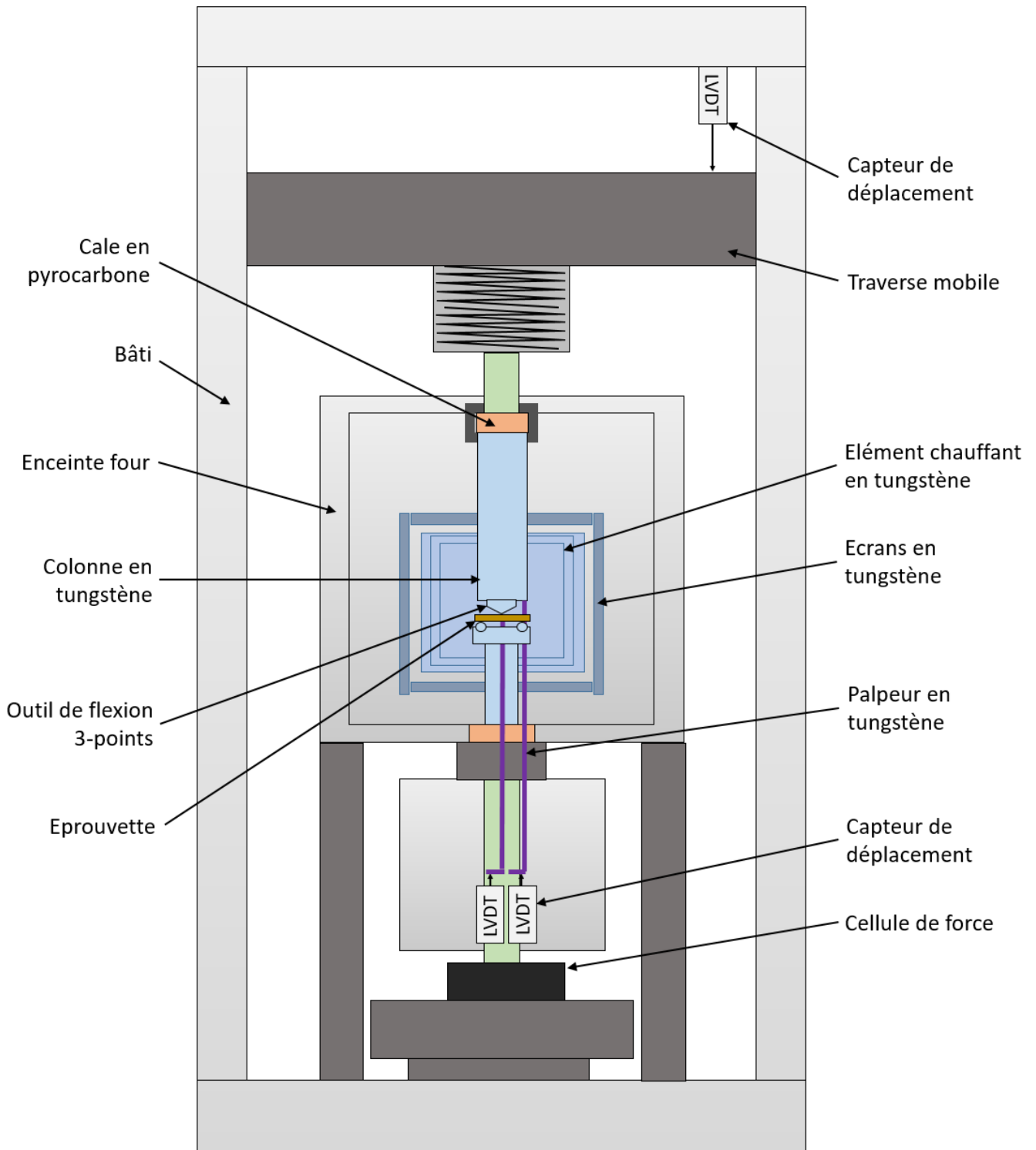


Figure III-5. Machine d'essai thermomécanique « MECAFLEX » en configuration flexion 3-points.

### III.2.2. Maîtrise de l'atmosphère

#### III.2.2.1. Systèmes de contrôle de la pression partielle d'oxygène

Les essais mécaniques sont réalisés sous atmosphère contrôlée. Nous avons vu que cela s'avérait nécessaire pour l'étude des oxydes non-stœchiométriques et donc tout particulièrement pour celle du dioxyde d'uranium. Dans cette section, nous décrivons le principe de fonctionnement des équipements (sondes à oxygène et pompe électrochimique) qui permettent d'imposer et de mesurer la pression partielle d'oxygène à laquelle est exposé l'échantillon au cours de l'essai.

##### III.2.2.1.1. Mesure de la pression partielle d'oxygène

La mesure de la pression partielle d'oxygène se fait dans nos deux dispositifs d'essais à l'aide de sondes électrolytiques. Le principe repose sur les propriétés de conduction ionique de la zirconite yttrée. La sonde se compose d'une membrane constituée de zirconite yttrée, exposée de part et d'autre à deux systèmes chimiques isolés l'un de l'autre et en équilibre. De ce fait, une différence de potentiel apparaît aux températures voisines de 600°C qui est liée par la loi de Nernst aux activités d'oxygène d'équilibre de part et d'autre du conducteur électrolytique. Ce genre de sonde est exposé à une de ses électrodes au gaz dont on souhaite mesurer l'activité d'oxygène et à l'autre, à un système de référence qui peut être soit un gaz soit un couple constitué d'un métal et de son oxyde en équilibre. La particularité des sondes commercialisées par la société SETNAG (France, Marseille), qui sont utilisées dans cette étude, est d'être miniaturisées. En effet, le système chimique de référence est constitué d'un mélange intime de palladium ou d'iridium et de leurs monoxyde ou dioxyde respectifs.

La loi de Nernst s'écrit (J. M. Philibert, 2012) :

$$E = \frac{1}{4\mathcal{F}} RT \ln \left( \frac{p_{O_2}}{p_{O_2}^{ref}} \right) \quad (3.3)$$

Où  $p_{O_2}^{ref}$  représente la pression partielle de référence déterminée par l'équilibre :  $Pd + \left(\frac{1}{2}\right) O_2 \rightleftharpoons PdO$  (dans le cas du palladium),  $E$  est la tension mesurée aux bornes du dispositif schématisé sur la Figure III-6,  $R$  et  $\mathcal{F}$  sont les constantes des gaz parfaits et de Faraday respectivement, et  $T$  est la température.

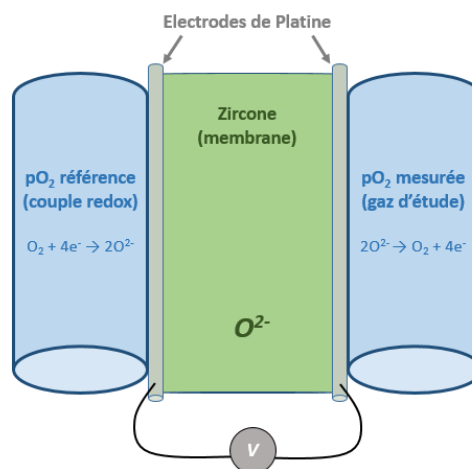


Figure III-6. Schéma de principe d'une sonde électrolytique.



### III.2.2.1.2. Ajout ou retrait d'oxygène du mélange de gaz de balayage

Les modifications de la pression partielle d'oxygène du mélange de gaz de balayage auquel l'échantillon est exposé se font par ajout en amont du système expérimental de compression ou de flexion de quantités maîtrisées d'oxygène. Ceci se fait grâce à un dispositif électrochimique. Ce dispositif, illustré sur la Figure III-7, est constitué d'un tube en zircone yttrée (conducteur ionique parfait aux températures de fonctionnement du dispositif, c'est-à-dire 800°C) à l'intérieur duquel circule le gaz de balayage. Le tube est platiné intérieurement et extérieurement. En appliquant une différence de potentiel à ses bornes, un courant circule dans le circuit ainsi constitué et se manifeste par un flux d'ions  $O^{2-}$  (puisque le matériau est un conducteur ionique) à travers la paroi du tube. Le sens de circulation des ions, de l'extérieur du tube vers le gaz vecteur ou l'inverse, est déterminé par la polarisation imposée.

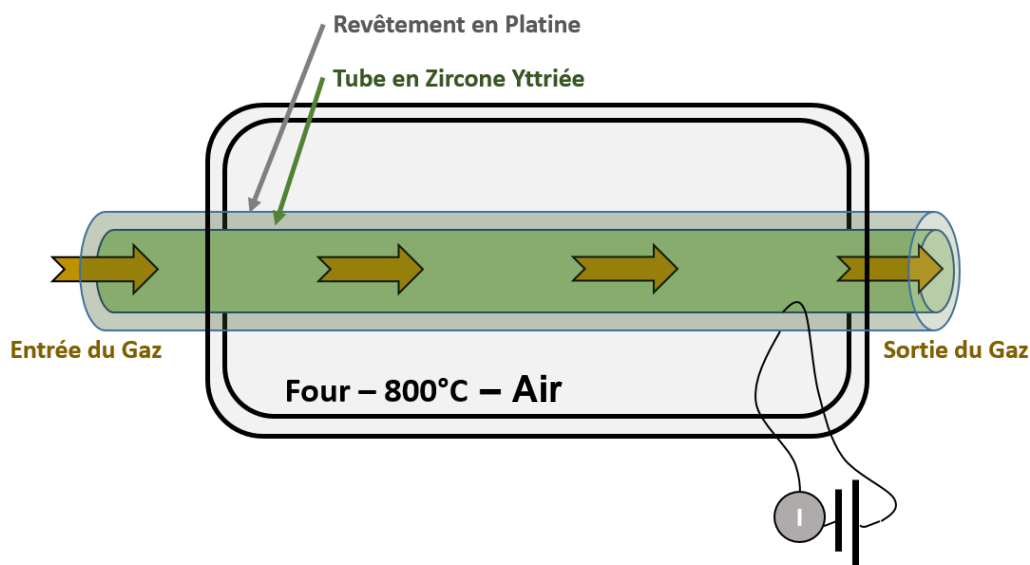


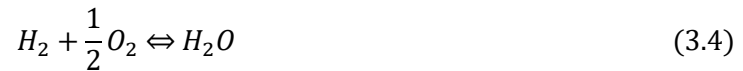
Figure III-7. Principe de fonctionnement d'une pompe à oxygène.

### III.2.2.2. Application à notre cas d'étude

Afin de maîtriser la composition de l'échantillon pendant l'essai, nous utilisons la méthode de mise à l'équilibre avec une phase gazeuse dont l'activité d'oxygène est contrôlée et mesurée. L'étude du dioxyde d'uranium à haute température au voisinage de la stœchiométrie ainsi que la protection des éléments internes du four nécessitent de travailler sous atmosphère plutôt réductrice, ce qui est généralement obtenu en utilisant des mélanges d'argon et d'hydrogène. Néanmoins, la mesure de la pression partielle d'oxygène, se faisant en amont et en aval du dispositif dans lequel sont réalisés les essais, impose d'utiliser un mélange tamponné chimiquement. Cette section est consacrée à la mise en œuvre d'un tel mélange gazeux basé sur l'équilibre entre l'hydrogène et l'eau à l'état de vapeur.

#### III.2.2.2.1. Utilisation d'un tampon gazeux

Le mélange tampon est obtenu en injectant dans un mélange d'argon et d'hydrogène (teneur de 5 % au maximum) une quantité contrôlée d'oxygène comme nous l'avons décrit au paragraphe III.2.2.1.2. La réaction entre l'hydrogène et l'oxygène est une réaction totale et l'injection d'oxygène permet donc de déplacer l'équilibre suivant, caractérisé par sa constante d'équilibre (Kubaschewski et al., 1967) :



$$K_{eq-H_2O} = \frac{p_{H_2O}}{p_{H_2}\sqrt{p_{O_2}}} \quad (3.5)$$

Mettre en œuvre un mélange tamponné signifie que les quantités d'hydrogène et d'humidité sont suffisantes pour que la pression d'oxygène soit définie par la relation précédente quelle que soit la température. Il est alors possible d'imposer au solide des activités d'oxygène extrêmement faibles avec une très bonne précision.

La pression d'oxygène est ainsi fixée par le rapport entre les pressions d'hydrogène et de vapeur d'eau (espèces majoritaires par rapport à l'oxygène), espèces qui sont à peu de choses près conservées en tout point du système. La pression d'oxygène minimale que l'on peut contrôler tout en conservant le tampon gazeux est ainsi définie par le rapport entre la pression d'hydrogène maximale (5 %) et la pression de vapeur d'eau minimale en-dessous de laquelle le mélange ne remplit plus son rôle de tampon. Il est communément admis qu'en dessous de  $10^{-3}$  atm., il devient difficile de s'assurer que la pression d'oxygène soit fixée par cet équilibre plutôt qu'un autre.

L'application numérique relative à notre étude fournit une pression d'oxygène minimale de l'ordre de  $10^{-26}$  atm, pour une température de 650°C correspondant à la température de fonctionnement de nos sondes.

#### III.2.2.2.2. JokAir© et GenAir©

Au laboratoire, nous utilisons deux appareils commerciaux de l'entreprise SETNAG, appelés Jok'Air© et Gen'Air©. Le premier comprend une sonde électrolytique permettant la mesure de la pression d'oxygène et le second se compose d'un ensemble sonde et pompe électrochimique permettant à la fois de mesurer et d'imposer la pression d'oxygène.

Une mesure *in-situ* est impossible simplement avec une telle technologie car la zircone yttrée présente une composante électronique à la conduction qui ne permet pas d'appliquer la relation (3.3) directement. Par ailleurs, les températures étudiées ici sont incompatibles avec les couples de référence qu'utilisent ces sondes. En pratique, nous mesurons donc la pression d'oxygène dans le gaz entrant dans le four thermomécanique et dans le gaz sortant. Nous nous assurons de la bonne maîtrise de l'atmosphère lorsque les deux valeurs de pression d'oxygène en amont et en aval du dispositif sont identiques.

#### III.2.2.3. Pressions partielles maximales compatibles avec le dispositif

Nous avons vu une première limitation relative à la borne inférieure en pression d'oxygène que l'on peut explorer avec nos méthodes liées à la capacité tampon des mélanges gazeux utilisés. Dans cette section, nous détaillons l'origine de la limite supérieure de pression partielle d'oxygène imposée par le risque d'oxydation des différentes pièces métalliques du four.

##### III.2.2.3.1. Éléments chauffants en Tungstène

À l'exception des échantillons que nous étudions et des parties « froides » du four, les écrans thermiques, les pièces de transmission de l'effort situées en zone chaude et les pièces de chauffe sont en tungstène. Or ce métal est relativement sensible à l'oxydation et nous empêche de travailler dans une gamme élevée de pression partielle d'oxygène.

Une manière d’appréhender cette limite consiste à représenter dans une représentation d’Arrhenius la pression partielle d’oxygène correspondant à l’équilibre  $W/WO_2$  ainsi que la pression partielle d’oxygène correspondant à différents rapports  $p_{H_2O}/p_{H_2}$ . La Figure III-8 constitue une telle représentation.

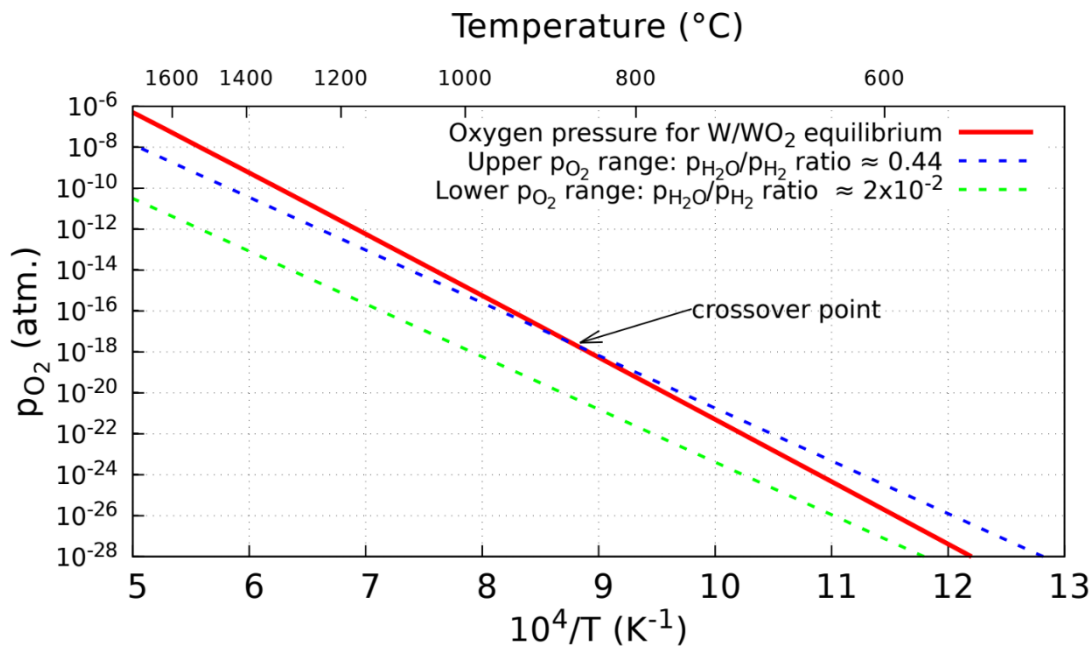


Figure III-8. Dépendance de l’équilibre  $W/WO_2$  en fonction de la température et de la pression partielle d’oxygène (courbe rouge). En bleu et vert sont représentés l’équilibre  $H/H_2O$  pour différents rapports  $p_{H_2O}/p_{H_2}$ .

Ce graphe appelle deux commentaires. Tout d’abord, on s’aperçoit qu’il existe une température à laquelle les droites représentant la pression d’oxygène imposée par l’équilibre chimique en phase gazeuse intersectent la droite correspondant à l’équilibre  $W/WO_2$ . Dans l’illustration, pour la composition précise définie par la courbe bleue, le tungstène va s’oxyder à des températures inférieures à 900°C environ. Concrètement cela veut dire que lors de la redescente en température, après la réalisation d’un essai, les pièces en tungstène vont avoir tendance à s’oxyder. L’oxydation reste superficielle car le four atteint rapidement des températures suffisamment faibles pour que la réaction soit limitée d’un point de vue cinétique. Cette oxydation se traduit par une forte chute de la pression d’oxygène au niveau de la sonde placée en aval du dispositif d’essai.

Réciproquement, on observe une élévation notable de la pression d’oxygène en sortie de four lors de montée en température lorsque le mélange d’Ar/ $H_2$  utilisé n’est pas enrichi en oxygène. De la même manière, la couche d’oxyde éventuellement formée lors de la redescente en température a tendance à être réduite au cours de la phase de montée en température sous atmosphère réductrice, libérant ainsi de l’oxygène.

III.2.2.3.2. Mise à l’équilibre

Une deuxième contrainte nous est imposée par les appareils utilisés. De par leur géométrie, la température des sondes peut être sensible au débit de gaz utilisé. Si celui-ci est trop important, un gradient de température apparaît dans le capteur et la loi de Nernst (équation 3.3) n’est plus

applicable. Ces appareils sont donc prévus pour des débits gazeux de l'ordre de  $12 \text{ L.h}^{-1}$ . Il en résulte un faible taux de renouvellement de l'atmosphère dans nos dispositifs qui ont un volume compris entre 30 et 60 L. Nos durées de mise à l'équilibre sont donc très longues, typiquement de l'ordre de 24 h.

### III.2.3. Conclusions concernant les dispositifs d'essais

Pour réaliser nos essais de fluage, nous avons à disposition deux dispositifs thermomécaniques composés d'une presse associée à un four. Ces ensembles complexes, de conception unique, nécessitent une instrumentation et une méthodologie précises dans le but de maîtriser la mesure des grandeurs physiques clés (température, charge, évolution de la géométrie de l'échantillon, pression partielle d'oxygène). Nous avons vu en outre, que la pression partielle d'oxygène atteignable présentait des bornes inférieure et supérieure, qui compte tenu des propriétés du dioxyde d'uranium cantonnent l'étude du matériau dans un voisinage proche de la stœchiométrie, avec  $x < 5.10^{-3}$ .

## III.3. Analyse des essais de compression et de flexion

Cette partie est consacrée aux essais mécaniques de compression et de flexion. Une description des essais et de leurs solutions analytiques quand elles existent est proposée.

### III.3.1. L'essai de compression

#### III.3.1.1. Description de l'essai

Les matériaux fragiles, tels que les céramiques, sont étudiés préférentiellement en compression. Même si d'un point de vue analytique, les sollicitations lors d'un essai de traction ou de compression sont équivalentes, les résultats de ces deux types d'essais diffèrent pour plusieurs raisons. Tout d'abord les éprouvettes sont sensiblement différentes, comme on peut le constater à l'aide de la Figure III-9. La partie utile d'une éprouvette de traction ne constitue qu'une petite portion de l'éprouvette complète, alors qu'en compression elle représente l'intégralité de l'échantillon. De plus, en traction, la préparation des éprouvettes est un travail minutieux : typiquement le passage des mors à la partie utile doit se faire progressivement pour éviter toute concentration de contrainte qui pourrait nuire au bon déroulement de l'essai.

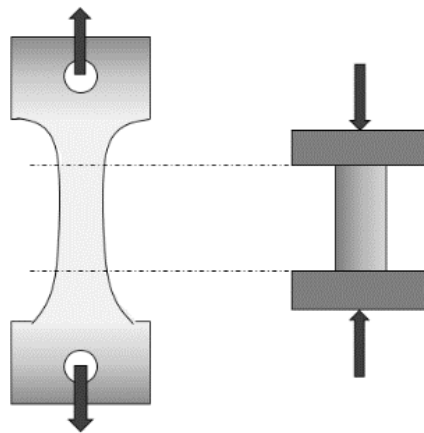


Figure III-9. Comparaison entre une éprouvette de traction (à gauche) et une de compression (à droite) de géométrie équivalente.

L'essai de compression quant à lui présente l'avantage de mettre en œuvre des éprouvettes de géométries simples (généralement des cylindres ou parallélépipèdes). Cependant plusieurs complications peuvent survenir suivant l'élancement des échantillons (rapport hauteur sur diamètre dans le cas d'un cylindre) et la nature du contact entre l'échantillon et les cales en tungstène.

Ce contact peut être décrit de trois manières différentes :

- **Condition de glissement parfait** : il s'agit là de la condition idéale qui garantit l'uniaxialité de l'essai. Afin d'établir cette condition, on recourt souvent à l'utilisation d'un lubrifiant. Cependant ces lubrifiants sont en principe additionnés de matières organiques susceptibles de nuire à la qualité de l'atmosphère que l'on essaie d'imposer. Par ailleurs aux températures visées, il se pose la question de la compatibilité chimique entre le dioxyde d'uranium, le tungstène et le lubrifiant. Nous avons fait le choix de ne pas « expérimenter » l'utilisation de tels produits.

- **Condition d'encastrement total** : cette situation intervient lorsque l'échantillon est encastré entre les deux cales martyres. L'encastrement des surfaces aux interfaces entre l'échantillon et les cales empêche leur déformation transversale et l'échantillon prend alors la forme d'un tonneau de plus en plus marquée à mesure que la déformation augmente. La Figure III-10 illustre ce phénomène. Dans ces conditions, la sollicitation n'est plus homogène dans le matériau et l'essai n'est plus strictement uniaxial, mais devient tridimensionnel avec dans le meilleur des cas une symétrie de révolution. Pour limiter cet effet, on privilégie des échantillons dont l'élancement est élevé.

- **Condition de frottement** : cette situation est intermédiaire entre les deux situations précédentes. La pastille prend alors une forme de tonneau mais les surfaces en ses extrémités sont susceptibles de se déformer transversalement.

Il a été mis en évidence (Garcia et al., 2021) dans le cadre d'une étude comparable sur le même dispositif, que les pastilles adoptaient une forme de tonneau et que les dimensions des surfaces extrémales augmentaient. Cela démontre l'existence de conditions de frottement aux interfaces avec les cales en tungstène. Nous verrons au chapitre 4 que la simulation numérique des essais permet, entre autre, de retrouver ce phénomène et de quantifier son influence sur la réponse du matériau.

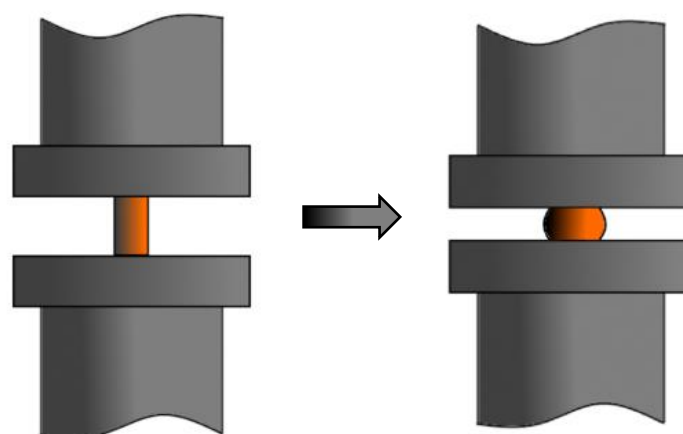


Figure III-10. Visualisation de la mise en tonneau d'un échantillon lors d'un essai de compression.

### III.3.1.2. Sollicitation uniaxiale

Si l'on néglige le frottement entre l'échantillon et les cales, la sollicitation est uniaxiale. Ainsi, la seule composante des contraintes non nulle est celle dans la direction de sollicitation. Le tenseur peut donc s'écrire :

$$\bar{\sigma} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & F/S \end{bmatrix}$$

Où  $S$  est la section (indépendante de la position axiale) de l'éprouvette, et  $F$  est la charge appliquée.

Au cours d'un essai mécanique, la charge évolue ainsi que la section de l'éprouvette. La contrainte vraie ou contrainte de Cauchy peut s'exprimer en fonction du temps de la manière suivante :  $\sigma(t) = F(t)/S(t)$ . Une description satisfaisante de la contrainte nécessite donc de connaître l'évolution de la surface de l'échantillon au cours de l'essai. Sous l'hypothèse d'une déformation viscoplastique isochore, on peut écrire  $V(t) = V_0$ , soit  $S(t) \cdot h(t) = S_0 \cdot h_0$ ,  $h_0$  et  $S_0$  étant respectivement les surface et hauteur de pastille au démarrage de l'essai. La contrainte s'exprime alors :

$$\sigma(t) = F(t)h(t)/S_0h_0 \quad (3.6)$$

Ces hypothèses sont suffisantes pour décrire un essai de compression pour des élanements d'échantillons de l'ordre de 2 (Garcia et al., 2021). Nous reviendrons sur ce point au chapitre 4.

### III.3.1.3. Analyse des essais de fluage

Le passage à la réponse viscoplastique du matériau n'ajoute pas de difficulté supplémentaire à l'analyse des essais (Garcia et al., 2021). On montre en particulier que, pour une loi de fluage à écrouissage cinématique (équation (2.6) chapitre 2, paragraphe II.4.2.4), il existe des solutions analytiques au problème de déformation à vitesse constante, y compris dans le cadre des grandes déformations et sous l'hypothèse de déformations logarithmiques. Le détail du formalisme est donné dans le chapitre 4. Les solutions sont de la forme :

$$\sigma_z^{lin}(t) = s \frac{C}{D} \left( 1 - e^{-sD \frac{\alpha t}{h_0}} \right) - K \left( \frac{s\alpha}{h_0} \right)^{\frac{1}{n}} \quad (3.7)$$

$$\sigma_z^{log}(t) = s \frac{C}{D} \left( 1 - \left( 1 + \frac{\alpha t}{h_0} \right)^{-sD} \right) - K \left( \frac{s\alpha}{h_0 + \alpha t} \right)^{\frac{1}{n}} \quad (3.8)$$

La première solution est établie dans le formalisme linéaire classique, où la vitesse de déformation linéaire est définie par :

$$\dot{\epsilon}_z^{lin} = \frac{\alpha}{h_0} \quad (3.9)$$

Dans cette expression,  $\alpha$  représente la vitesse de déplacement de la traverse et  $h_0$  la hauteur de l'échantillon au moment où l'essai de fluage débute. La seconde expression de la contrainte ci-dessus, découle du formalisme des grandes déformations développé dans le cadre de déformations logarithmiques :

$$\dot{\epsilon}_z^{log} = \frac{\alpha}{h_0 + \alpha t} \quad (3.10)$$

Dans ces différentes équations  $n, K, C$  et  $D$  sont les paramètres de la loi d'érouissage cinématique non linéaire (décrite au chapitre 2) et  $s$  est le signe de la différence entre la contrainte  $\sigma_z$  et  $2/3$  de la contrainte interne  $X_z$ .

Ces auteurs montrent la bijectivité de la solution lorsqu'un seul paramètre est fixé. Ainsi un essai de compression permet d'identifier trois paramètres de la loi sur quatre. De plus ils ont montré, pour les conditions d'essai qu'ils ont étudiées, que l'augmentation de la charge en régime permanent ne correspond pas à un érouissage du matériau mais à une augmentation de sa section sous l'effet d'un mécanisme de déformation isochore. Lorsque la contrainte macroscopique est déduite de l'évolution de la hauteur de la pastille et de la charge mesurées suivant l'équation (3.6), un régime permanent caractéristique du fluage dit secondaire apparaît (chapitre 1, section 1.2) qui se traduit par une phase au cours de laquelle la contrainte varie peu.

### III.3.2. L'essai de flexion

#### III.3.2.1. Cadre et hypothèses

##### III.3.2.1.1. Description de l'essai

Les essais de flexion sont les autres types d'essais les plus fréquents pour l'étude du comportement des céramiques. Ils ont l'avantage d'être très simples à mettre en œuvre avec des éprouvettes de géométrie parallélépipédique. Cependant leur interprétation s'avère plus complexe que les essais de compression car la sollicitation n'est pas uniaxiale et les champs de contrainte et de déformation qui en résultent ne sont pas homogènes.

Dans la suite de cette section, nous allons décrire les solutions établies dans le domaine élastique, en précisant dans quel cadre elles s'appliquent. Nous pourrions constater les différences concrètes qu'il en résulte sur la sollicitation dans deux cas de flexion : 3 et 4-points. Enfin nous décrivons le problème du fluage en flexion, et son influence sur la répartition des contraintes.

##### III.3.2.1.2. Hypothèses

Les problèmes de flexion 3 et 4-points admettent des solutions analytiques simples sous conditions de la validité de certaines hypothèses. Ces hypothèses définissent le cadre de la théorie des poutres et sont les suivantes :

- Le matériau doit être homogène et isotrope. Dans le cas des céramiques, cela veut dire que la taille des imperfections de la microstructure, tel que les cavités, doit être négligeable par rapport aux dimensions de l'échantillon.
- Le solide doit avoir une géométrie similaire à une poutre : 1- il doit être suffisamment élancé rapport à sa hauteur et à sa largeur. 2- la ligne moyenne du solide doit être plane et varier de manière continue dans l'espace. 3- La section du solide doit être constante dans l'espace ou varier continuellement avec la ligne moyenne, et elle doit être orthogonale avec celle-ci en tout point.
- Les sections droites restent planes et parallèles entre elles pendant l'essai. Cela veut dire que les sections droites ne se déforment pas au cours de l'essai. Elles restent donc orthogonales à la ligne moyenne. Cette hypothèse est celle de *Navier-Bernoulli*

- Le comportement en un point quelconque du solide est indépendant de la façon dont sont appliquées les forces extérieures, à condition d'être suffisamment éloigné des points d'applications des dites forces. Cela constitue le principe de Saint Venant.

On en déduit ensuite contrainte de fléchissement et flèche le long de la ligne moyenne du barreau, et indépendamment le cisaillement et le gauchissement sur la section de la poutre. Une mise en commun des deux solutions permet de déterminer où le barreau est le plus sollicité et de quelle manière.

Il arrive que la composante de cisaillement soit complètement négligée, en fonction de la section droite et du type de sollicitation subi : on se place alors dans le cadre d'Euler-Bernoulli. A l'inverse, s'il est nécessaire de prendre en compte l'apport du cisaillement, il faut se placer dans le cadre de la théorie des poutres de Timoshenko (Timoshenko, 1970).

### III.3.2.2. Solutions élastiques

#### III.3.2.2.1. En flexion 3-points

Nous rappelons ici les solutions dans le cas de la flexion 3-points, schématisée sur la Figure III-11. L'éprouvette considérée est de géométrie parallélépipédique, de longueur  $L$  (axe  $x$ ), de largeur  $b$  (axe  $z$ ), d'épaisseur  $e$  (axe  $y$ ), à laquelle est appliqué un effort  $F$  en son plan médian. On néglige par la suite le cisaillement dans la poutre, on suppose également que le comportement du matériau est symétrique, c'est-à-dire le même en compression ou traction.

Dans cette configuration, l'effort tranchant, étant la résultante des efforts dans le plan défini par la section droite du barreau, est non nul de toute part de la ligne moyenne, excepté dans le plan médian. Le moment fléchissant, quant à lui, est nul aux deux extrémités et croît continument jusqu'au centre de l'éprouvette, où il atteint son maximum.

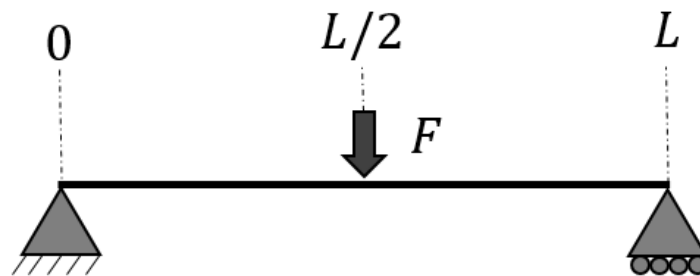


Figure III-11. Schéma analytique d'une poutre en flexion 3-points.

On parle, dans ce cas-ci, de flexion simple.

Il en résulte une contrainte normale définie, en tout point, par la relation suivante :

$$\sigma_{xx} = -\frac{M_{fz}}{I_{Gz}} y \quad (3.11)$$



Où  $M_{fz}$  est le moment fléchissant suivant l'axe  $z$ ,  $I_{Gz}$  est le moment quadratique de la section suivant l'axe  $z$ , et  $y$  définit l'épaisseur du barreau, et est compris entre  $-e/2$  et  $e/2$ .

Ainsi la contrainte est maximale sur les deux points extrémaux du plan médian. Elle varie linéairement selon l'épaisseur, en étant nulle à la fibre neutre, positive sur la moitié inférieure (traction) et négative sur la moitié supérieure (compression). La contrainte varie également le long de la poutre, en fonction de l'éloignement du point d'application de la charge (via le moment fléchissant).

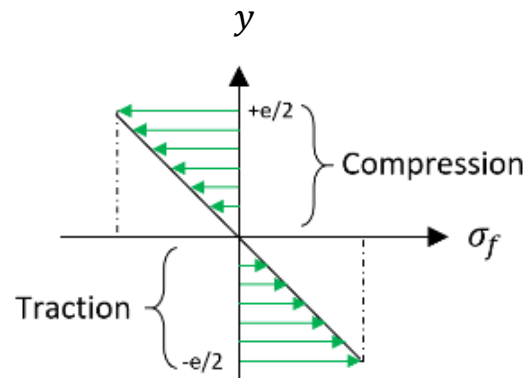


Figure III-12. Evolution de la contrainte normale ( $\sigma_{xx}$ ) au point médian, dans l'épaisseur du barreau

En tout point de la ligne moyenne, l'évolution de la contrainte normale est décrite par la Figure III-12.

Dans le cas d'une éprouvette de section rectangulaire, comme nous l'avons défini en début de partie, la contrainte maximale vaut :

$$|\sigma_{max}| = \frac{3 FL}{2 be^2} \quad (3.12)$$

Toujours dans le cadre de la réponse élastique, on peut décrire l'évolution de la flèche en tout point de la poutre. Elle est également maximale au plan médian et vaut :

$$f_{max} = \frac{FL^3}{4be^3E} \quad (3.13)$$

Où  $E$  est le module d'Young du matériau.

A titre représentatif, la Figure III-13 permet de visualiser la distribution de la contrainte normale dans un barreau bidimensionnelle dans un cas de flexion 3-points. On constate ainsi la forte localisation de la sollicitation, située aux abords du point d'application de la charge.

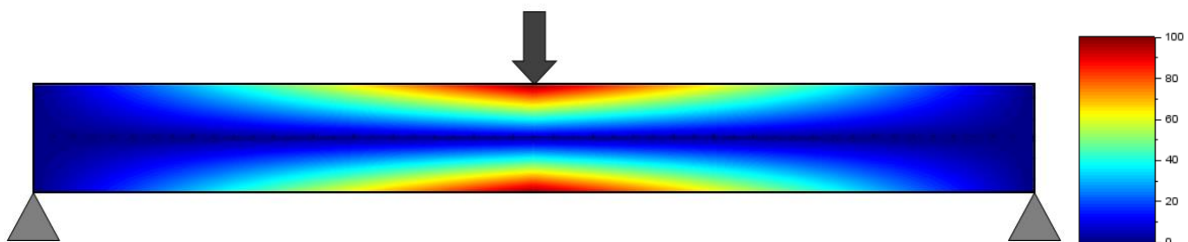


Figure III-13. Répartition de la contrainte normale dans un barreau parallélépipédique en flexion 3-points dans le cadre de la théorie des poutres. Cas arbitraire où la contrainte maximale vaut 100 MPa.

### III.3.2.2.2. En flexion 4-points

Dans le cas de la flexion 4-points, avec une poutre de géométrie similaire à celle considérée dans le cas de flexion 3-points, le chargement est alors appliqué en deux endroits simultanément, l'entraxe des appuis supérieurs valant  $a$  (Figure III-14).

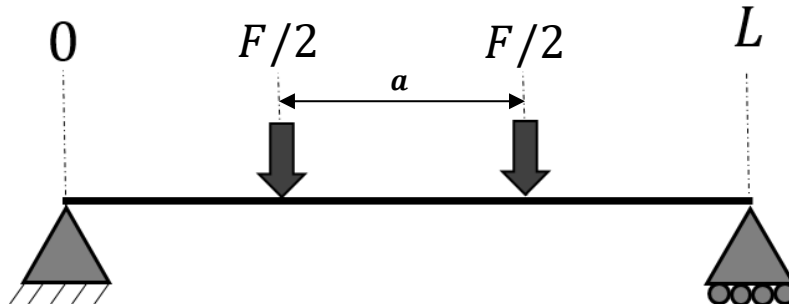


Figure III-14. Schéma d'une poutre en flexion 4-points.

L'intérêt de la flexion 4-points découle du fait que, entre les appuis supérieurs, l'effort tranchant est nul en tout point et le moment fléchissant est constant. La sollicitation obtenue est donc de la flexion pure.

La contrainte normale, toujours définie par la relation (3.11), est dorénavant constante sur toute la fibre externe (haute et basse) comprise entre les deux appuis supérieurs et non plus localisée en un point. Elle continue d'évoluer mais seulement suivant l'épaisseur, d'une manière similaire à la représentation de la Figure III-12.

Dans le cas d'une éprouvette de section rectangulaire, la contrainte maximale est définie par la relation :

$$|\sigma_{max}| = \frac{3 FL}{4 be^2} \quad (3.14)$$

L'essai de flexion 4-points s'avère cependant plus complexe à réaliser principalement car le système mécanique doit permettre un alignement parfait entre la colonne supérieure et l'outil où est posée l'éprouvette. En effet, un contact simultané des deux lignes d'application du chargement doit être assuré. En pratique, et surtout dans les dispositifs similaires au notre qui mettent en jeu plusieurs pièces en série dans l'axe de la transmission de l'effort avec de surcroît une isolation thermique, cet alignement est délicat à vérifier et maintenir. Une procédure spécifique, mise au point par le fabricant du four (AET, Grenoble), permet de mesurer le désalignement et de le rectifier.

### III.3.2.3. Fluage en flexion

L'étude du fluage d'un matériau sollicité en flexion est plus complexe qu'en compression. A l'inverse du problème de compression qui admet sous certaines conditions des solutions analytiques, le problème de flexion n'en admet pas.

Un phénomène, que l'on retrouve souvent sous le nom de « redistribution des contraintes » intervient, dans le cas du fluage en flexion. Il est induit par le fait que la contrainte normale s'éloigne de la solution élastique et perd sa linéarité dans l'épaisseur de l'éprouvette. Le comportement spécifique du fluage en flexion a été traité en premier par Timoshenko (Timoshenko, 1930) qui a établi une relation entre les grandeurs définies par la théorie élastique et les grandeurs réelles viscoplastiques. En supposant

qu'une loi de type « Norton » ( $\dot{\varepsilon}_{vp} = \left(\frac{\sigma}{K}\right)^n$ ) décrit le comportement viscoplastique du matériau, les contraintes et déformations normales maximales se déterminent à partir des relations suivantes :

$$\sigma_{vp}^{max} = \frac{2n + 1}{3n} \sigma_{élastique}^{max} \quad (3.15)$$

$$\varepsilon_{vp}^{max} = \frac{n + 2}{3} \varepsilon_{élastique}^{max} \quad (3.16)$$

Où  $n$  correspond à l'exposant de la contrainte dans la loi de Norton.

Cette redistribution est une conséquence de l'hypothèse de Navier-Bernoulli qui reste valide même dans le domaine de réponse viscoplastique. En petites déformations, les sections planes restent planes et par conséquent la déformation évolue linéairement dans l'épaisseur. Ce résultat a pu être vérifié par l'expérience, à la fois à l'aide de jauges extensométriques placées à même l'échantillon (McCullough, 1933) et aussi par DIC (Digital Image Correlation – Corrélation d'images) (Tapsell & Johnson, 1940). Bailey (Bailey, 1935), puis Popov (Popov, 1949) ont proposé une équation décrivant l'évolution de la contrainte suivant l'épaisseur du barreau. Cette considération se base uniquement sur la variation linéaire de la déformation qui permet d'écrire :

$$\frac{\dot{\varepsilon}_{vp}}{\dot{\varepsilon}_{vp}^{max}} = \frac{y}{h} \quad (3.17)$$

Où  $h$  correspond à la demi-épaisseur de l'échantillon et  $y$  à la cote axiale comprise entre  $-e/2$  et  $e/2$ .

Ainsi, en insérant la relation (3.17) dans une loi de Norton, on obtient la relation suivante :

$$\sigma_{vp}(y) = ky^{1/n} \quad (3.18)$$

Où  $k$  est une constante. Cela signifie que la contrainte normale n'évolue pas linéairement le long de l'épaisseur mais suit une évolution en puissance ( $1/n$ ). Elle reste nulle le long de la fibre neutre ( $y=0$ ) et atteint son maximum sur les fibres externes inférieures et supérieures.

Sur la Figure III-15 est représentée l'évolution de la contrainte dans l'épaisseur du barreau pour différentes valeurs de  $n$  (1, 3, 5 et 11) prises arbitrairement. Dans le cas où le paramètre  $n$  vaut 1, que l'on est *a priori* dans un domaine de fluage-diffusion, la contrainte varie linéairement et elle reste égale à la solution élastique. Ce dernier résultat s'obtient directement par les formules d'équivalence de Timoshenko (3.15 et 3.16) avec  $n=1$ .

Lorsque  $n$  prend des valeurs plus élevées, l'évolution de la contrainte dans l'épaisseur s'écarte notablement d'une variation linéaire. La distribution devient bien plus homogène dans l'épaisseur. De plus, on peut noter que la valeur maximale de la contrainte, aux extrémités haute et basse, diminue lorsque  $n$  augmente dans les proportions établies par la relation entre la contrainte réelle et la solution élastique, proposées par Timoshenko.

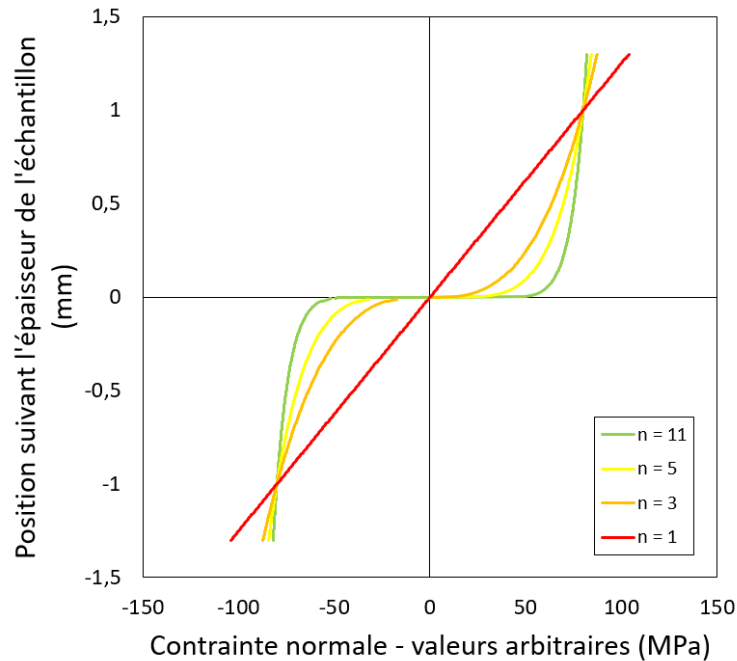


Figure III-15. Contrainte normale stationnaire dans l'épaisseur du barreau dans le cas d'un comportement de type Norton pour différentes valeurs de  $n$ .  $k$  fixé pour avoir une contrainte maximale de 100 MPa dans le cas où  $n = 1$  ( $k = 770$  MPa/m).

#### III.3.2.4. Analyse d'essais de fluage en flexion

Nous venons de voir que la réponse viscoplastique dans le cas de la flexion s'avère être complexe. L'état thermomécanique de notre matériau, défini par les tenseurs des contraintes et des déformations, ne peut être calculé simplement que dans le cas d'un comportement de type Norton et sous certaines hypothèses restrictives. La stratégie d'analyse, communément reprise dans la plupart des études du fluage en flexion, consiste à ne considérer que les grandeurs définies par la théorie de l'élasticité, au point où elles sont maximales. Contrainte d'écoulement et vitesse de déformation sont déduites de la charge et de la flèche qui sont toutes les deux mesurées pendant l'essai.

En effet, on constate d'après les relations d'équivalence de Timoshenko (3.15) et (3.16) que si la réponse viscoplastique du matériau suit effectivement une loi de Norton, alors la pente de la droite obtenue en traçant dans un diagramme log-log la déformation élastique maximale en fonction de la contrainte élastique maximale, est égale à l'exposant de la contrainte de la loi,  $n$ .

Dans notre étude, nous avons également comme objectif l'identification de la dépendance à la pression partielle d'oxygène, *via* l'exposant  $\alpha$  (voir chapitre 1, section I.4.2). Nous le déterminerons, dans un premier temps, à l'aide des grandeurs élastiques. Après avoir identifié les exposants ( $n$ ,  $\alpha$ ), nous appliquerons les relations d'équivalence de Timoshenko afin de retrouver des valeurs de contraintes et de vitesses de déformation qui ont un sens physique. C'est avec ces valeurs que nous serons en mesure de comparer nos campagnes d'essais en flexion avec celles réalisées en compression.

Dans une étude récente (Afzal Jalali et al., 2020; Jalali et al., 2019, 2020), les auteurs analysent ces essais de fluage en flexion par itération. La première analyse est faite à l'aide des grandeurs élastiques. L'identification du paramètre  $n$  permet de les convertir en grandeurs viscoplastiques, à partir desquelles il identifie une nouvelle valeur de  $n$ . Au final, cela ne change pas grandement la valeur de l'exposant de la contrainte, mais permet plutôt de l'affiner.

Dans la section suivante, nous abordons la procédure d'essais dont la maîtrise constitue un point crucial pour identifier les paramètres d'une loi de comportement.

### III.4. Mise en œuvre et maîtrise d'un essai mécanique

Les résultats de ce genre d'essai sur  $UO_{2+x}$  rapportés dans la littérature souffrent d'une importante dispersion dont les origines sont difficiles à identifier. Dans bien des cas, celles-ci sont liées à une connaissance incomplète du matériau et de sa microstructure, une maîtrise de l'atmosphère ou de l'essai mécanique lui-même insuffisante et une interprétation de l'essai superficielle. Nous décrivons donc ici la réalisation d'un essai de fluage, de la mise en place de l'échantillon, à la réalisation de l'essai mécanique dans les conditions thermodynamiques désirées. Nous discuterons également des résultats bruts que nous obtenons lors d'essais de ce type et de leur pertinence. Nous aborderons le problème de l'influence du système de refroidissement du dispositif sur les résultats expérimentaux et comment cette difficulté a été traitée.

#### III.4.1. Caractérisation de l'échantillon et mise en place

##### III.4.1.1. Cas de la flexion 3 et 4-points

La première étape consiste à caractériser les dimensions de l'échantillon. Dans le cas d'une éprouvette de flexion, il s'agit de sa longueur, largeur et épaisseur (Figure III-16), dont les mesures sont réalisées en plusieurs points du barreau à l'aide d'un micromètre. Cela nous permet d'estimer grossièrement la planéité ou non de l'échantillon.

Une description détaillée de nos éprouvettes et de leur élaboration est conduite dans le chapitre 6, qui est consacré à la campagne d'essais de flexion. L'ensemble des échantillons utilisés dans cette étude ont les mêmes dimensions : une longueur  $L$  de 32 mm, une largeur  $b$  de 4,2 mm (+/- 0,05 mm) et une épaisseur  $e$  de 2,6 mm (+/- 0,2 mm).

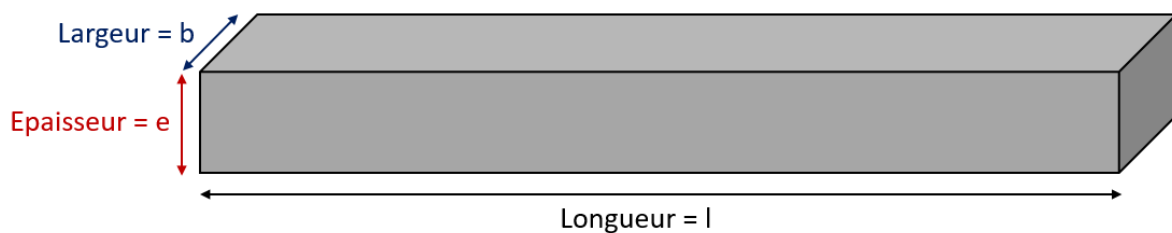


Figure III-16. Illustration d'une éprouvette de flexion. Représentation de ses dimensions caractéristiques.

Leur longueur a été imposée par l'entraxe inférieure du dispositif. Le reste de la géométrie a été dimensionnée d'une part par la cellule de charge du dispositif de flexion, dont nous voulions évoluer dans le tiers inférieur de sa pleine gamme, et d'autre part afin de respecter les conditions d'une poutre suffisamment élancée par rapport à sa section droite.

Dans un second temps, l'échantillon est positionné sur les deux rouleaux constituant les deux appuis inférieurs du dispositif. Le positionnement est réalisé avec précision à l'aide d'une cale étalon (voir Figure III-17) qui garantit que l'échantillon est perpendiculaire aux rouleaux d'appuis. La cale ne permet cependant pas le centrage gauche-droite mais cela n'influence pas le déroulement de l'essai.

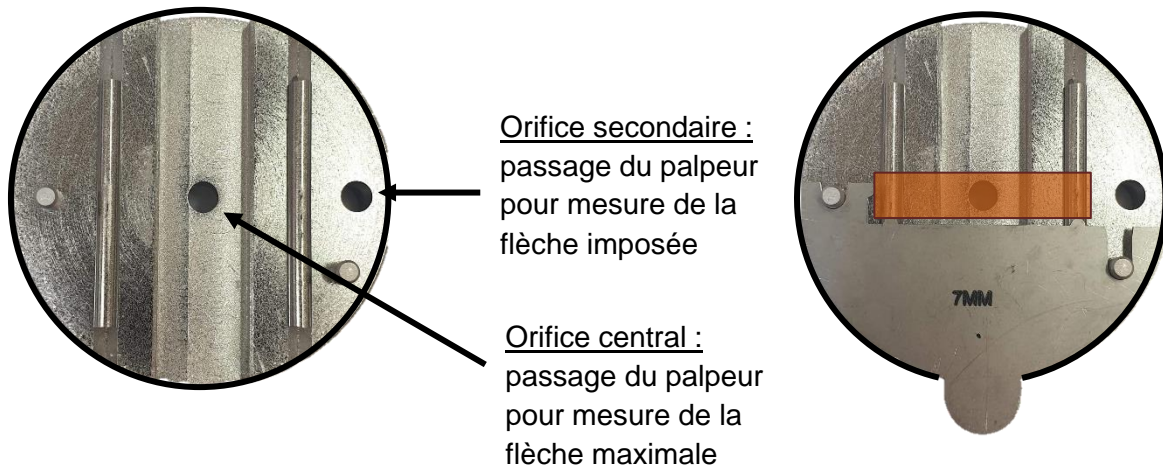


Figure III-17. Support inférieur du dispositif de flexion 3-points. A gauche mise en évidence des orifices pour la mesure de la flèche imposée et la flèche maximale. A droite avec la cale étalon utilisée pour le positionnement des barreaux.

Le barreau est ensuite maintenu en position à l'aide de l'outil supérieur mis au contact. À l'aide d'une option de la presse, appelée « protection d'éprouvette », nous nous assurons que la charge ne dépasse pas quelques Newton. L'idée est de maintenir l'éprouvette en place tout au long de la montée en température, afin d'être certain de son bon positionnement une fois à haute température.

#### III.4.1.2. Cas de la compression

De manière analogue, il faut relever précisément les dimensions des échantillons destinés aux essais de compression. Dans le cas de pastilles cylindriques (Figure III-18), il s'agit du diamètre et de la hauteur.

Une description détaillée des pastilles d'essais est effectuée dans le chapitre 5. Deux types d'échantillons ont été utilisés dans ces travaux : tout d'abord des pastilles élancées, d'une hauteur de  $16,3 \pm 0,13$  mm et d'un diamètre rectifié de  $8,19 \pm 0,005$  mm ; et également des pastilles courtes d'une hauteur de  $3,5 \pm 0,15$  mm et d'un diamètre de  $6,0 \pm 0,1$  mm.

En premier lieu, la cale en tungstène inférieure est mise en place. Celle-ci se distingue de la cale supérieure car elle possède un orifice traversant permettant le passage de la tige extensométrique. Ensuite, la pastille est mise en place avec la cale supérieure. L'ensemble devient stable une fois que la

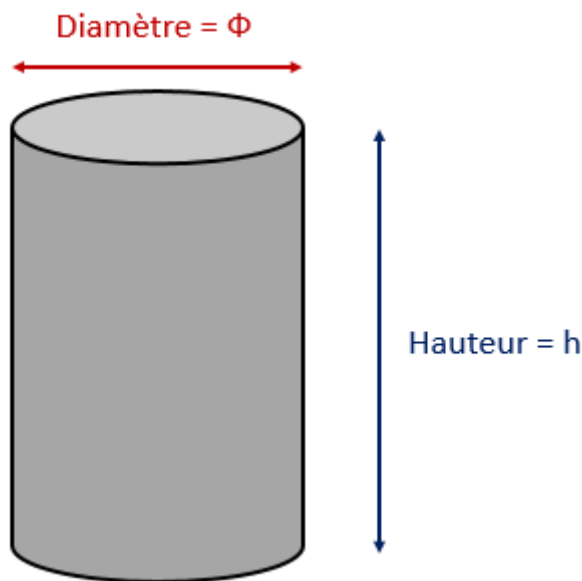


Figure III-18. Illustration d'une pastille de compression - Représentation de ses dimensions caractéristiques.

colonne supérieure est descendue et mise en contact. L'option de « protection d'éprouvette » nous permet d'appliquer un effort de maintien au juste niveau, garantissant l'intégrité de l'échantillon. Dans le cas de la compression, une valeur d'environ 200 N permet de fixer l'ensemble de manière satisfaisante.

Il est intéressant de préciser que la montée en charge se fait en deux temps. Une fois le premier contact atteint (il se distingue par une première élévation de la charge autour de 70 N), il nous faut descendre la traverse d'environ 1 à 2 mm supplémentaires avant de voir la charge augmenter jusqu'à la valeur maximale de 200 N. Le déplacement de l'ensemble, que l'on peut considérer comme un mouvement de corps rigide, s'explique par

une « mise en place » de tout l'ensemble de l'axe de compression. Les jeux se combent, les pièces « déformables » comme les cales en pyrocarbone s'adaptent au chargement imposé. Une fois l'ensemble rigide, l'effort est réellement transmis à l'échantillon. Cela permet de réduire la phase de mise en place rapportée dans la littérature (Garcia et al., 2021).

#### III.4.2. Etablissement de l'atmosphère et montée en température

Avant d'entamer la rampe de montée en température, il est nécessaire de remplir l'enceinte d'une atmosphère réductrice de manière à protéger les différentes pièces du dispositif thermomécanique et notre échantillon contre tout risque d'oxydation. Une purge de l'enceinte est réalisée par trois pompages puis remplissages successifs avec un mélange d'argon et d'hydrogène.

La mesure de la pression partielle d'oxygène nous renseigne sur la teneur en oxygène dans le dispositif. Si elle est suffisamment basse, nous pouvons entamer la montée en température. D'expérience, on estime pouvoir démarrer la chauffe lorsque la pression d'oxygène en sortie est inférieure à  $10^{-26}$  atm. Les rampes usuelles que nous utilisons sont de l'ordre de 20 à 30°C/min.

La montée en température provoque la réduction de la couche d'oxyde de tungstène superficielle (voir section III.2.2), formée lors des essais antérieurs. Sur la Figure III-19, on peut suivre l'évolution de la pression partielle d'oxygène en entrée et en sortie de notre dispositif lors des phases d'application de l'atmosphère désirée et de mise à l'équilibre de l'enceinte à chaud. On remarque la forte montée de la pression d'oxygène en sortie (verte) au début du premier jour lors de la phase de montée en température, conséquence de cette réduction. Nous attendons que la pression partielle d'oxygène redescende à une valeur suffisamment basse, c'est-à-dire lorsqu'elle est au moins inférieure à celle que l'on vise au cours de l'essai.

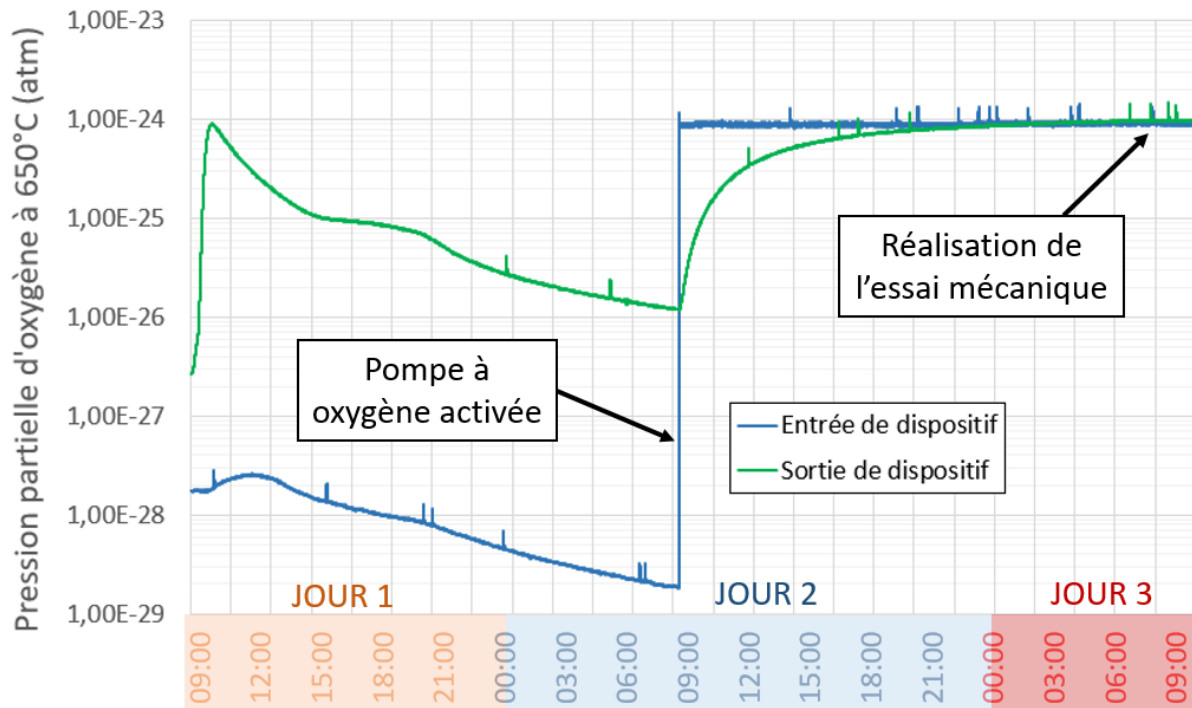


Figure III-19. Evolution de la pression partielle d'oxygène lors de la préparation d'un essai.  $p_{O_2}$  visée :  $1.10^{-24}$ atm.

Une fois que les conditions le permettent, nous imposons le courant à travers la pompe électrochimique en entrée de notre dispositif. La valeur est précisément déterminée au préalable de l'essai et fixe nos conditions expérimentales. Dans le cas de la Figure III-19, le courant est imposé au début du 2<sup>e</sup> jour et la montée de la pression partielle d'oxygène d'entrée (bleue) est immédiate. Il nous faut attendre à nouveau que la pression en sortie s'équilibre ce qui prend environ 12h. Idéalement, pour être certain que le mélange gazeux joue son rôle de tampon, il faut que les pressions mesurées en entrée et en sortie du dispositif soient identiques. L'impossibilité d'atteindre cet équilibre peut signifier deux choses : soit que la pression partielle d'oxygène est fixée par autre chose dans le dispositif (humidité résiduelle, couple tampon différent, ...), soit qu'il existe un défaut d'étanchéité sur le dispositif. L'essai mécanique est généralement réalisé le jour suivant.

### III.4.3. Réalisation de l'essai mécanique

L'essai mécanique peut démarrer lorsque la pression partielle d'oxygène est équilibrée dans tout le dispositif. Nous maîtrisons donc l'ensemble des grandeurs physiques ayant une influence sur le comportement du matériau. Tous les essais d'une campagne sont précédés de l'application d'une précharge identique. Elle est de 10 N dans le cas de la flexion et de 500 N dans le cas de la compression. Ces deux charges correspondent à une contrainte appliquée (et une contrainte maximale en flexion) de l'ordre de 10 MPa compte tenu des géométries typiques d'éprouvettes que nous avons mis en œuvre. Dans le cadre de cette étude, tous nos essais mécaniques ont été réalisés en vitesse de traverse imposée. Les Figure III-20, Figure III-21 et Figure III-22 représentent les résultats typiques en flexion 3-points, 4-points et en compression respectivement.

Dans le cas de la flexion 3 et 4 points, la flèche imposée (courbe verte forêt sur la Figure III-20 et Figure III-21) varie linéairement et présente une pente égale à la vitesse de déplacement de traverse imposée (Figure III-20 :  $40 \mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$  et Figure III-21 :  $30 \mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$ ). Dans le cas de la compression (Figure III-22), la variation de la hauteur de pastille (courbe verte) telle qu'elle est mesurée grâce aux deux



extensomètres (paragraphe III.2.1.1) correspond à la vitesse de traverse imposée, de  $20 \mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$ , après environ 10 minutes d'essai. Les courbes bleues correspondent à la mesure de la charge appliquée à l'échantillon et leurs évolutions seront discutées dans les chapitres dédiés (5 et 6).

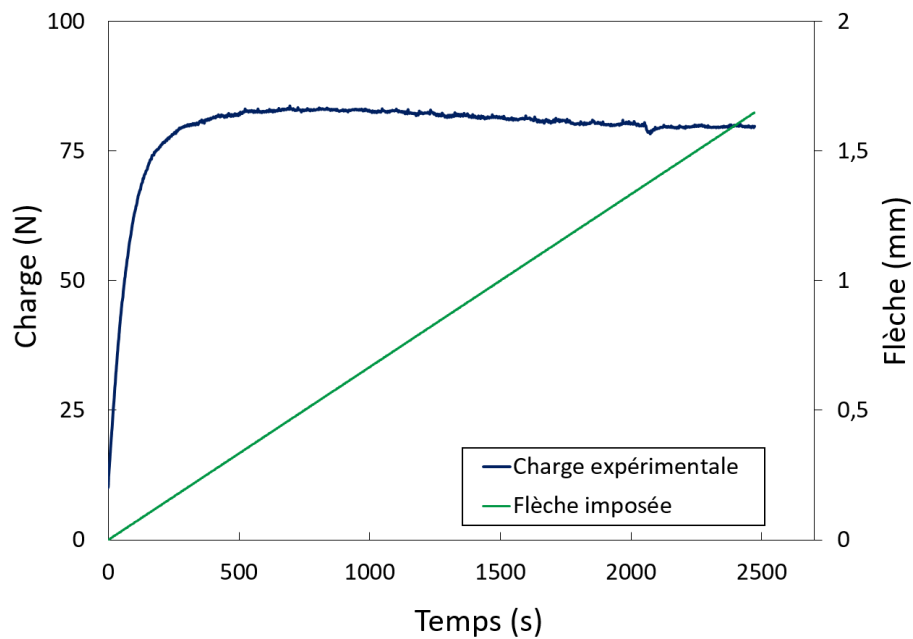


Figure III-20. Résultats bruts d'un essai à vitesse de traverse constante (DVC) en flexion 3-points sur  $\text{UO}_{2+x}$ .  
Bleu : charge appliquée (N) – Vert : flèche imposée (mm).

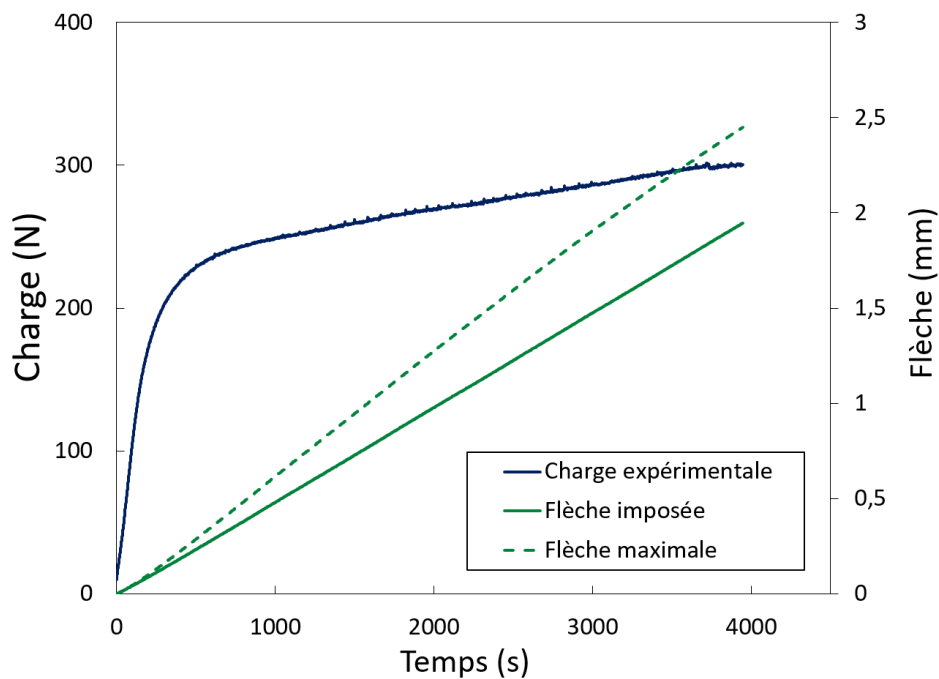


Figure III-21. Résultats bruts d'un essai à vitesse de traverse constante (DVC) en flexion 4-points sur  $\text{UO}_{2+x}$ .  
Bleu : charge appliquée (N) – Vert continu : Flèche imposée (mm) - Vert pointillé : flèche maximale (mm).

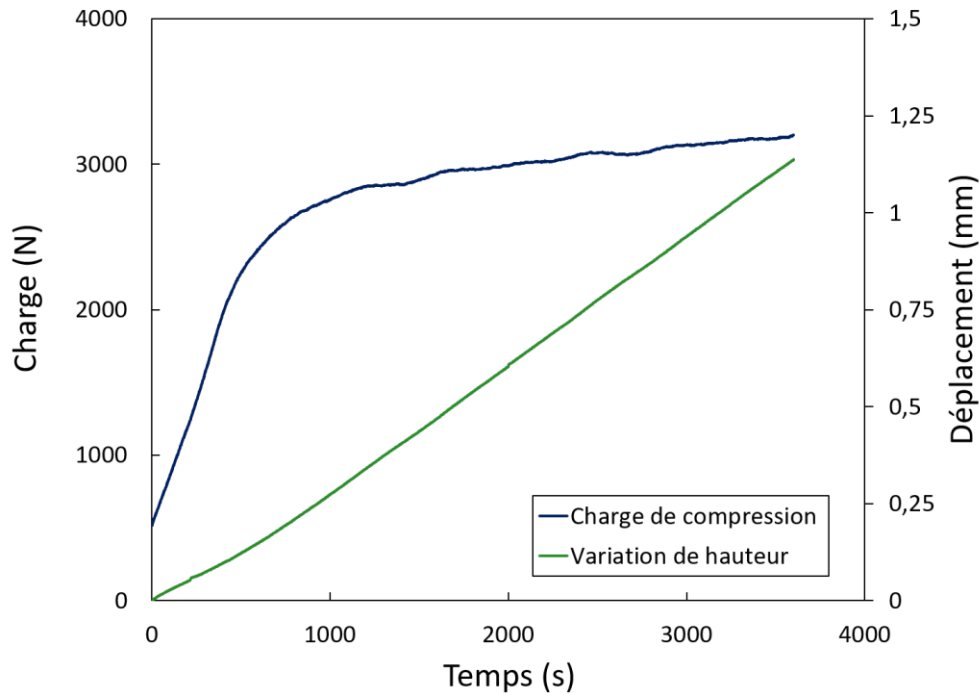


Figure III-22. Résultats bruts d'un essai à vitesse de traverse constante (DVC) en compression sur  $UO_{2+x}$ . Bleu : charge appliquée (N) - Vert : déplacement imposé (mm).

#### III.4.4. Influence de l'eau de refroidissement du dispositif sur le déroulement des essais

##### III.4.4.1. Effet sur le dispositif thermomécanique

Au cours de cette étude, nous avons pu mettre en évidence l'influence des variations de température de l'eau de refroidissement sur la réalisation d'essais mécaniques à haute température et mettre en place une solution pour pallier ses effets délétères.

Pour des raisons environnementales, le dispositif qui fonctionnait « en eau perdue » il y a plusieurs années a été gréé d'un groupe froid qui permet de maintenir l'eau de refroidissement des fours à une température comprise entre 15°C et 20°C. Le compresseur de ce groupe s'active lorsque la température de l'eau dépasse 19°C et se désactive lorsque celle-ci tombe en-dessous de 17°C environ.

Or nous avons mis en évidence une corrélation forte entre la variation de la température de l'eau de quelques degrés et les variations de déplacement mesurées de la colonne de charge de notre dispositif. La Figure III-23 illustre cette influence. La courbe rose représente l'évolution dans le temps de la température de l'eau qui circule en cycle fermé dans le dispositif et mesurée à l'entrée de celui-ci. La courbe verte indique la mesure du déplacement de la colonne supérieure alors qu'aucune consigne de mouvement ne lui est fournie. Par ailleurs, l'acquisition de ces données a lieu à température ambiante. Les évolutions de la température et du déplacement de la colonne présentent toutes les deux périodes identiques, l'une courte (~2 minutes) et l'autre longue (~40 minutes). Notons aussi que lorsque le groupe froid est arrêté, les mouvements de la colonne cessent.

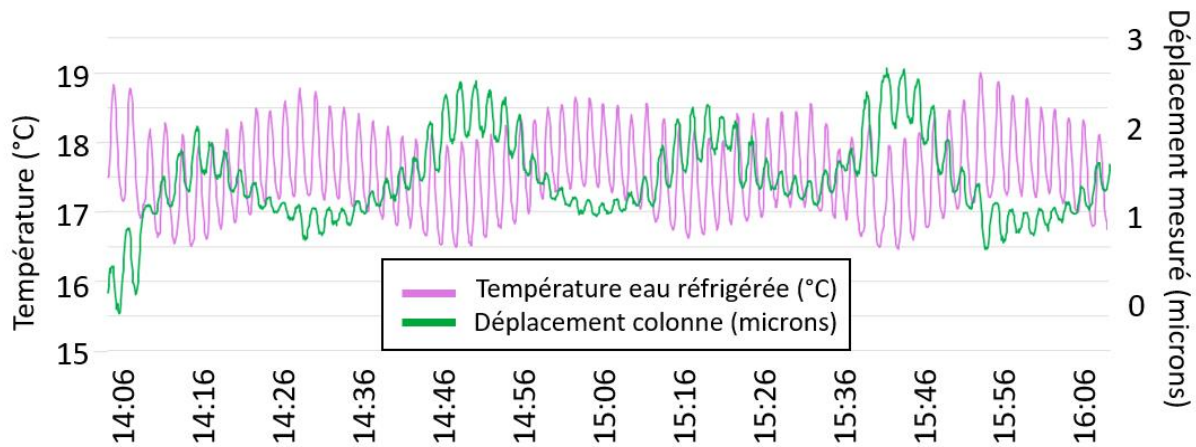


Figure III-23. Evolutions dans le temps de la température de l'eau réfrigérée et du déplacement de la colonne.

#### III.4.4.2. Influence sur la réalisation d'un essai mécanique

Il est intéressant de voir l'influence que peut avoir cette dilatation et contraction du dispositif de quelques microns sur la réponse de l'échantillon lors d'un essai à haute température. La Figure III-24 illustre la courbe de charge obtenue dans un cas où le refroidissement varie avec une amplitude de 4°C environ. L'effet sur la courbe de charge (bleue) est notable et il s'observe également sur le déplacement (courbe verte) correspondant à la variation de hauteur de la pastille. L'interprétation des résultats expérimentaux en utilisant un modèle numérique montre que les variations de charge sont dues aux fluctuations de hauteurs de pastilles, induites par ces variations de température, et qui viennent se rajouter à la vitesse de déformation constante imposée par le déplacement de la traverse.

Dans certaines circonstances et notamment aux vitesses de déformations les plus basses, ces variations de hauteur sont rédhibitoires pour interpréter les courbes de charge de manière satisfaisante. Un effort important a donc été consacré à réduire l'amplitude des variations de la température de refroidissement de nos appareils.

Ainsi, le système de refroidissement que nous avons mis en place a consisté à intercaler entre le groupe froid d'origine et nos machines d'essais mécaniques, un appareil qui permet de délivrer une eau dont la température est régulée à  $\pm 0,1^\circ\text{C}$ . En pratique, une température stable à  $\pm 0,15^\circ\text{C}$  est obtenue. La température de l'eau est maintenue par l'ouverture contrôlée d'une vanne de régulation qui permet d'injecter du gaz frigorigène chaud au niveau de l'échangeur entre le gaz frigorigène et l'eau de refroidissement. Le résultat d'un tel contrôle de la température sur le déroulement d'un essai est présenté sur la Figure III-25.

Il est à préciser que les essais de flexion 3-points, qui ont été les premiers à être menés dans le cadre de cette étude, n'ont pas été réalisés avec cet appareil mais avec le système frigorifique centralisé du laboratoire. L'eau délivrée suit les variations de température correspondant à la Figure III-23. Autrement dit, celle-ci varie très rapidement avec une amplitude d'un à deux degrés (période courte), mais également de quelques degrés sur plusieurs heures (période longue). Nous avons pu constater, avec la réalisation de ces essais, que le dispositif de flexion était bien moins sensible à ces effets que le dispositif de compression. Même si l'origine d'une telle différence n'est pas encore clairement établie, il est possible que cela vienne du fait qu'une variation de déplacement identique induit une

variation de contrainte plus élevée en compression qu'en flexion. Cette observation a été faite par comparaison de notre campagne avec celle réalisée lors d'études antérieures (Garcia et al., 2021).

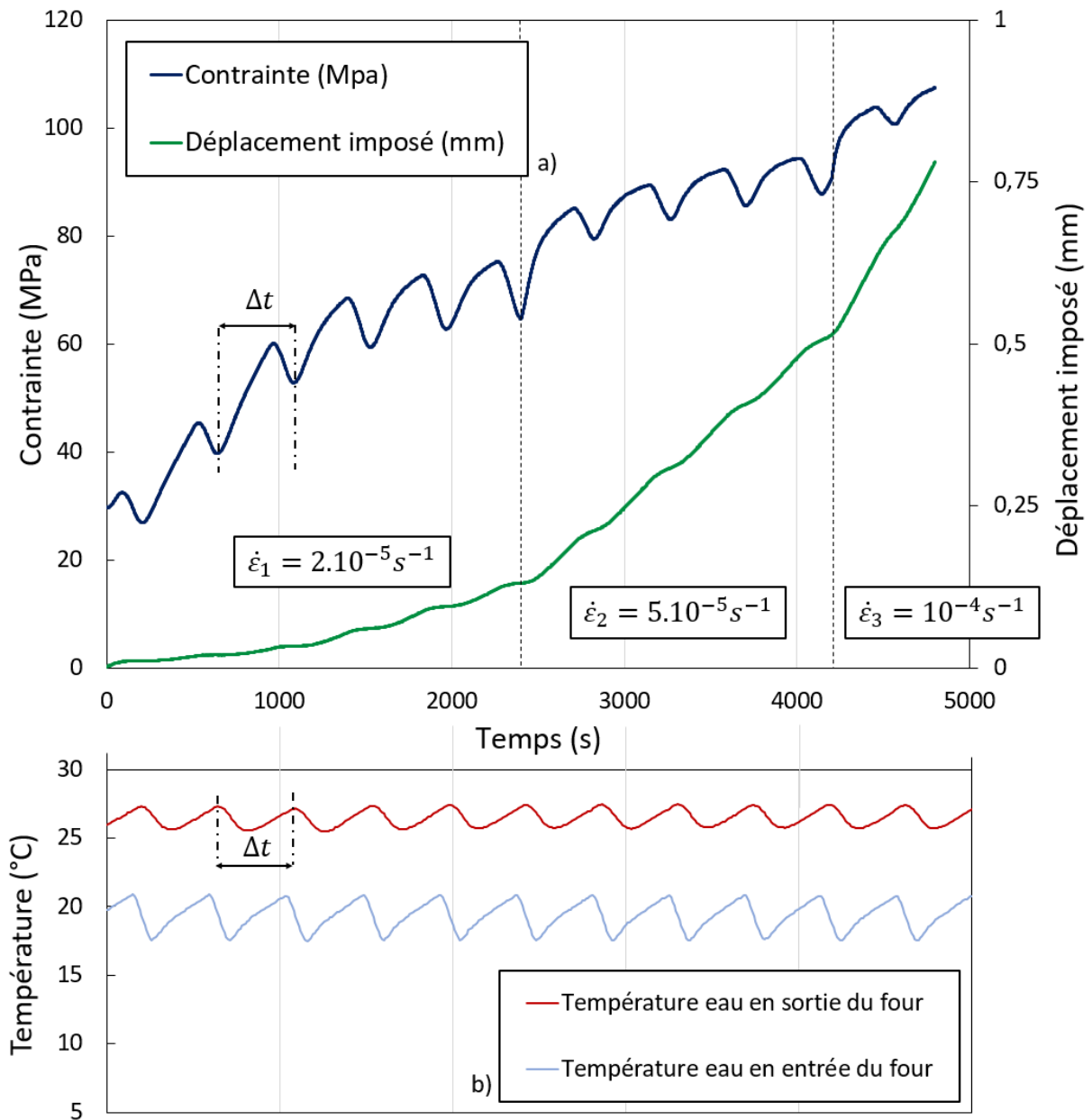


Figure III-24a : Evolution de la contrainte lors d'un essai de compression caractérisé par l'application de trois vitesses de déplacement de traverse successives, à 1520°C et  $pO_2 = 5.10^{-26}$  atm. – 24b : évolution de la température de l'eau réfrigérée en entrée et en sortie de dispositif. Les échelles d'abscisses sont identiques sur les deux figures.

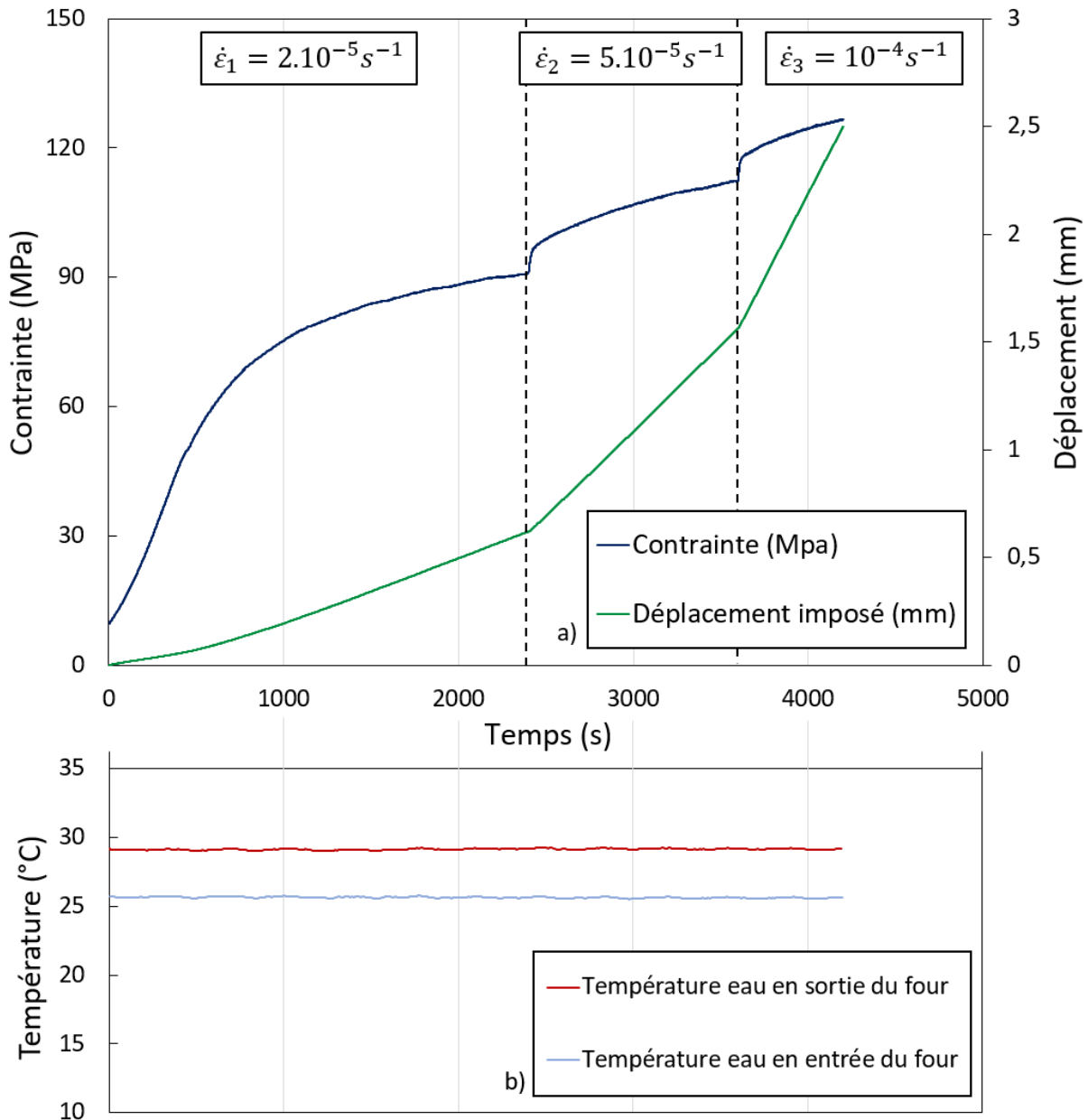


Figure III-25a. Evolution de la contrainte lors d'un essai de compression caractérisé par l'application de trois vitesses de déplacement de traverse successives, à  $1320^{\circ}\text{C}$  et  $p\text{O}_2 = 5.10^{-26}$  atm. – 25b : évolution de la température de l'eau réfrigérée en entrée et en sortie de dispositif. Les échelles d'abscisses sont identiques sur les deux figures.

### III.5. Conclusion

Dans ce chapitre, les dispositifs d'essais mis en œuvre dans le cadre de cette étude ont été présentés, c'est-à-dire les dispositifs d'essais thermomécaniques de compression et de flexion. Du fait que peu d'études ont fait l'objet d'un contrôle de l'atmosphère, les équipements et procédures développés à cette fin sont détaillés. En particulier, nous précisons le domaine de non-stœchiométrie auquel il est possible d'accéder compte tenu des options techniques retenues : équipements, méthodes de mise à l'équilibre des échantillons, températures d'essais. Celui-ci est relativement restreint et se cantonne à un domaine proche de la stœchiométrie ( $x < 5.10^{-3}$ ). Or, c'est dans cette gamme que l'activité d'oxygène d'équilibre de l'échantillon varie le plus avec l'écart à la stœchiométrie (chapitre 2, section

II.2.1), et seule une maîtrise de la pression partielle d'oxygène permet, dans ce domaine de composition, de fixer expérimentalement la teneur en oxygène du matériau.

Les méthodes d'analyses des essais de compression et de flexion sont ensuite présentées. Nous rappelons les éléments essentiels relatifs aux essais de compression : lorsque l'éclatement des pastilles est suffisant, ils peuvent être traités comme des essais uniaxiaux et des solutions analytiques existent pour une loi de fluage à écrouissage cinématique. Leur interprétation peut donc s'avérer être assez directe. A l'inverse, les essais de flexion sont plus complexes et des solutions analytiques ou semi-analytiques n'existent que dans le cas d'une loi de type Norton. Le champ de contraintes inhérent à l'essai de flexion présente l'avantage de permettre une identification d'une loi en compression et en traction. L'inconvénient de tels essais réside dans la complexité du champ de contraintes et donc l'hétérogénéité de microstructure qui en découle : il s'avère alors nécessaire de s'appuyer sur une analyse numérique du problème pour les interpréter.

Dans la dernière partie de ce chapitre, la mise en œuvre des essais ainsi que quelques-unes des difficultés expérimentales auxquelles nous avons été confrontés sont abordées. Nous insistons en particulier sur l'importance de maîtriser l'atmosphère au cours des essais. Cette contrainte impose en outre d'attendre l'établissement d'un équilibre du système dans son intégralité avant que l'essai ne débute. Les résultats typiques d'essais de compression et de flexion à vitesse de traverse imposée sont présentés. Enfin, l'influence du groupe froid sur nos dispositifs et ses conséquences sur la réalisation des essais mécaniques sont mises en évidence. Une très nette amélioration de nos essais est observée sur les courbes de charges grâce à une meilleure maîtrise et une réduction de l'amplitude des variations en température de l'eau de refroidissement

# Chapitre 4 : Simulations éléments-finis du comportement en fluage : modèles de compression et de flexion

---

## IV.1. Introduction

Le chapitre bibliographique (chapitre 2, section II.4) a révélé qu'une des difficultés que pose la comparaison de données ou de lois de comportement provenant d'études différentes est liée aux méthodes employées, d'un niveau de rigueur très variable, pour interpréter les essais. Dans la plupart des cas, les études relatives au comportement viscoplastique du dioxyde d'uranium ne s'appuient pas sur une simulation numérique des essais réalisés et se limitent pour l'essentiel à l'estimation *via* une approche analytique de l'exposant de la contrainte et de l'énergie d'activation apparente associés à une loi de type Norton.

L'objectif de ce chapitre est de décrire comment la simulation numérique des différents essais réalisés a été mise en œuvre et sur quels fondements théoriques elle s'appuie. Nous montrons ainsi comment cette simulation à l'échelle des milieux continus permet de comparer objectivement les essais entre eux et de tenir compte le cas échéant, qui plus est quantitativement, de détails expérimentaux (particulièrement les dimensions des éprouvettes) que les analyses courantes ne permettent pas de considérer.

Dans la première partie, nous précisons le cadre théorique dans lequel la simulation numérique est réalisée ainsi que les outils utilisés pour décrire ces expériences. En particulier, nous justifions l'utilisation des transformations finies aussi appelées grandes transformations, et montrons l'intérêt pratique à les mettre en œuvre dans le contexte des déformations logarithmiques. Dans une seconde partie, nous appliquons les outils et modélisations développés à deux essais typiques de compression et de flexion.

## IV.2. Hypothèses de modélisation

### IV.2.1. Théorie des grandes transformations

#### IV.2.1.1. Justification de l'approche en gradient de transformation pour décrire les essais

Dans cette partie, le formalisme utilisé des transformations finies est succinctement défini, et son utilisation est justifié compte tenu du niveau de déformation que les échantillons atteignent couramment au cours des essais réalisés.

Soit  $\phi_t(\vec{X})$  la transformation du matériau qui associe à la position  $\vec{X}$  d'un point dans la configuration initiale, sa position  $\vec{x}_t$  à l'instant  $t$  :

$$\vec{x}_t = \phi_t(\vec{X}) = \vec{X} + \vec{u}_t(\vec{X}) \quad (4.1)$$

Où  $\vec{u}_t$  représente le champ de déplacement à l'instant  $t$  par rapport à la géométrie d'origine. Dans le cadre d'une théorie de premier gradient, le gradient de la transformation  $\mathbf{F}$  est suffisant pour décrire les transformations géométriques locales (à l'échelle d'un point matériel) du matériau :

$$\underset{\sim}{\mathbf{F}} = \frac{\partial \phi_t}{\partial \underset{\sim}{\mathbf{X}}} = \underset{\sim}{\mathbf{1}} + \frac{\partial \underset{\sim}{\mathbf{u}}_t}{\partial \underset{\sim}{\mathbf{X}}} \quad (4.2)$$

Où  $\underset{\sim}{\mathbf{1}}$  représente le tenseur identité et  $\frac{\partial \underset{\sim}{\mathbf{u}}_t}{\partial \underset{\sim}{\mathbf{X}}}$  le gradient du champ de déplacement.

On trouve dans le cours suivant (Forest, Chapitre 3, Cours des Mines de Paris, 2020) les démonstrations relatives aux transformations de segments, de surfaces et de volumes. Le point le plus pertinent dans notre contexte concerne l'expression de la transformation d'un volume de la configuration d'origine à la configuration déformée. Nous avons :

$$dv = [\overrightarrow{dx}_1, \overrightarrow{dx}_2, \overrightarrow{dx}_3] = [\underset{\sim}{\mathbf{F}}d\underset{\sim}{X}_1, \underset{\sim}{\mathbf{F}}d\underset{\sim}{X}_2, \underset{\sim}{\mathbf{F}}d\underset{\sim}{X}_3] = \det(\underset{\sim}{\mathbf{F}}) \times dV = J \times dV \quad (4.3)$$

Dans ces expressions  $dv$  et  $dV$  représentent les éléments de volume dans la configuration déformée et d'origine respectivement,  $\det(\underset{\sim}{\mathbf{F}})$  est le déterminant de  $\underset{\sim}{\mathbf{F}}$  et les crochets représentent le déterminant des vecteurs concernés.

Ainsi, dans le cadre des transformations finies, une transformation isochore, telle une déformation viscoplastique, est caractérisée par la relation :  $\mathbf{det}(\underset{\sim}{\mathbf{F}}) = 1$ . Dans le contexte des déformations et rotations infinitésimales, l'hypothèse de transformation isochore se traduit par  $\mathbf{tr}(\underset{\sim}{\boldsymbol{\varepsilon}}) = 0$  (Forest et al., 2020). Quelles sont les conséquences, dans ces deux approches, de ces relations ? L'hypothèse « infinitésimale » suffit-elle pour décrire les essais que nous réalisons ?

Pour répondre à cette question, nous considérons l'analyse, faisant intervenir le gradient de transformation d'une part et le cadre des déformations infinitésimales d'autre part, d'un essai de compression à volume constant d'un échantillon cylindrique de rayon et de longueur initiaux  $R$  et  $h_0$  respectivement, à vitesse de traverse constante  $\alpha$ . La première approche garantit la conservation du volume par construction  $dv = dV$  (voir 4.3).

Dans le contexte infinitésimal, compte tenu de l'expression des déformations dans une géométrie axisymétrique et du fait que  $\mathbf{tr}(\underset{\sim}{\boldsymbol{\varepsilon}}) = 0$ , le déplacement radial  $u_r$  est solution de l'équation différentielle suivante :

$$\frac{du_r}{dr} + 2\frac{u_r}{r} - \frac{\alpha t}{h_0} = 0$$

La résolution de cette équation fournit la solution analytique :  $u_r(r, t) = \frac{1}{2} \frac{\alpha t}{h_0} r$ . Il est ainsi possible de calculer l'évolution des dimensions de la pastille et en particulier de son volume :

$$V(t) = \pi(R + u_r(R))^2(h_0 - \alpha t) = V(0)(1 + \eta)^2(1 - 2\eta) = V(0)(1 - 3\eta^2 - 2\eta^3)$$

Dans cette expression,  $\eta(t) = \frac{1}{2} \frac{\alpha t}{h_0}$ . On note que le développement au premier ordre a disparu : c'est la manifestation de l'hypothèse des déformations infinitésimales.

Nous pouvons ainsi tracer (Figure IV-1a), l'évolution du volume d'un échantillon cylindrique de 16 mm de hauteur pour une vitesse de traverse de  $50 \mu\text{m}.\text{min}^{-1}$ , typique de nos essais. Nous observons qu'après 120 minutes d'essai, soit une déformation linéaire de 37% environ, l'écart entre le volume calculé et le volume réel est de 12% environ.



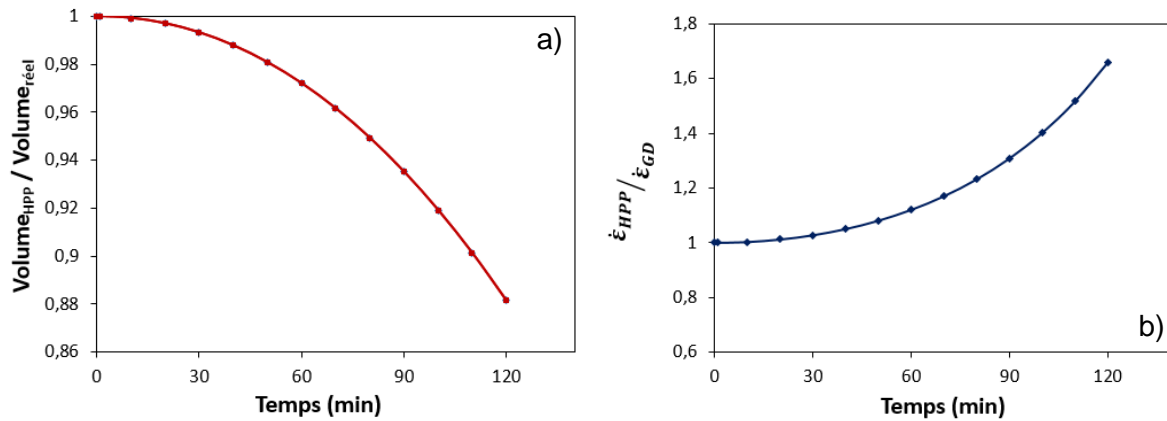


Figure IV-1. a) Rapport entre le volume défini en HPP et le volume réel. b) Rapport entre la vitesse de déformation définie en HPP et la vitesse de déformation définie en GD. Dans le cadre d'un essai de compression à vitesse de déformation constante de 50  $\mu\text{m}/\text{min}$ . HPP : hypothèses des petites perturbations et GD : grandes déformations.

En supposant une loi de comportement de type Norton pour laquelle la vitesse de déformation serait proportionnelle à  $\sigma^4$ , on peut estimer l'erreur commise cette fois sur la vitesse de déformation (Figure IV-1b). On constate que celle-ci, qui s'exprime comme le rapport à la puissance 4 de la section en grandes déformations sur la section dans l'hypothèse infinitésimale, s'établit à 12% après 60 minutes d'essai. Par ailleurs, on sait (Guérin, 1974; Vivant-Duguay, 1998) qu'un essai de compression peut conduire à une hétérogénéité substantielle de la déformation dans l'éprouvette dont les conséquences vis-à-vis du cas simpliste traité dans ce paragraphe seraient difficiles à quantifier. Finalement, il faut noter que, dans le contexte de l'hypothèse infinitésimale, les rotations doivent demeurer faibles (Forest et al., 2020). Or dans un essai de flexion, celles-ci peuvent s'avérer conséquentes.

Ces éléments nous mènent à nous tourner vers une analyse de nos essais dans le cadre des transformations finies, cadre dans lequel il reste à préciser l'expression des déformations.

#### IV.2.1.2. Lois de comportement en grandes transformations : le choix des déformations logarithmiques

Une loi de comportement mécanique décrit l'évolution de l'état microstructural d'un matériau (représenté par un ensemble de variables internes) et d'une contrainte mécanique en connaissant l'évolution du gradient de la transformation sur un incrément de temps donné.

La contrainte mécanique peut être définie de différentes manières suivant que l'on exprime l'équilibre dans la configuration initiale ou la configuration déformée. Dans le premier cas, la contrainte mécanique à considérer est le premier tenseur de Piola-Kirchhoff ( $\underline{\Pi}$ ). Dans le second cas, la contrainte mécanique est la contrainte de Cauchy ( $\underline{\sigma}$ ).

On montre que la puissance mécanique, par unité de volume, peut être donnée indifféremment par les relations suivantes :

$$p_w = J \underline{\sigma} : \underline{\mathbf{D}} = \underline{\Pi} : \frac{d\mathbf{F}}{dt} \quad (4.6)$$

Où  $\underline{\mathbf{D}}$  est le taux de déformation défini par :  $\underline{\mathbf{D}} = \frac{1}{2} (\underline{\mathbf{L}} + \underline{\mathbf{L}}^T)$  avec  $\underline{\mathbf{L}} = \frac{d\mathbf{F}}{dt} \cdot \mathbf{F}^{-1}$ .

Pour être physiquement bien posée, une loi de comportement doit satisfaire un certain nombre de principes, dont le principe d'objectivité qui impose que les résultats physiques soient indépendants des observateurs (Belytschko, 2000). Par ailleurs, cette loi doit garantir que la dissipation mécanique, c'est-à-dire la partie irréversible de la puissance mécanique, soit positive, ce qui est la traduction du second principe.

Avec ces « contraintes », un cadre de travail pratique pour exprimer les lois de comportement est de se donner une mesure de déformation lagrangienne (voir ci-dessous la définition) et de lui associer une contrainte par dualité énergétique, c'est-à-dire de la construire par la relation (4.6).

Le théorème de la décomposition polaire permet d'écrire  $\tilde{\mathbf{F}}$ , tenseur vis-à-vis duquel la seule hypothèse est qu'il soit inversible, comme le produit d'une rotation  $\tilde{\mathbf{R}}$  et d'une déformation  $\tilde{\mathbf{U}}$  ou  $\tilde{\mathbf{V}}$  :

$$\tilde{\mathbf{F}} = \tilde{\mathbf{R}} \cdot \tilde{\mathbf{U}} \quad (4.7)$$

$$\tilde{\mathbf{F}} = \tilde{\mathbf{V}} \cdot \tilde{\mathbf{R}} \quad (4.8)$$

$\tilde{\mathbf{R}}$  est une matrice d'une rotation pure ( $\det(\tilde{\mathbf{R}}) = 1$  et  $\tilde{\mathbf{R}} \cdot \tilde{\mathbf{R}}^T = \tilde{\mathbf{1}}$ ) et  $\tilde{\mathbf{U}}$  et  $\tilde{\mathbf{V}}$  sont des tenseurs symétriques, définis positifs. La première décomposition (4.7), que nous retenons dans la suite de ce document, est dite lagrangienne, car le tenseur des déformations est appliqué à la configuration initiale. La seconde décomposition (4.8) est dite eulérienne, car le tenseur des déformations est appliqué au système ayant subi une rotation.

Une mesure de déformation lagrangienne  $\underline{\underline{\boldsymbol{\varepsilon}}}$  est une fonction du tenseur  $\tilde{\mathbf{U}}$  qui :

tend en zéro vers l'expression correspondant à l'hypothèse des petites déformations ;

est une fonction monotone de  $\tilde{\mathbf{U}}$ .

Suivant l'équation (4.6), sa contrainte duale  $\tilde{\mathbf{T}}$  est définie à partir de la relation :

$$p_w = J \underline{\underline{\boldsymbol{\sigma}}} : \tilde{\mathbf{D}} = \tilde{\mathbf{T}} : \dot{\tilde{\mathbf{E}}} \quad (4.9)$$

Les rotations étant éliminées de cette relation puisque par définition  $\underline{\underline{\boldsymbol{\varepsilon}}}$  n'est qu'une fonction de  $\tilde{\mathbf{U}}$ , un résultat important est que les lois de comportement reliant  $\tilde{\mathbf{T}}$  et  $\underline{\underline{\boldsymbol{\varepsilon}}}$  sont nécessairement objectives (Belytschko, 2000).

Il existe cependant une infinité de mesures de déformations possibles (Forest et al., 2020), toutes équivalentes d'un point de vue théorique. Dans ce mémoire, nous faisons le choix d'utiliser la déformation de Hencky, aussi appelée déformation logarithmique. Elle est définie par la relation suivante :

$$\underline{\underline{\boldsymbol{\varepsilon}}} = \log \tilde{\mathbf{U}} = \frac{1}{2} \log (\tilde{\mathbf{F}}^T \cdot \tilde{\mathbf{F}}) \quad (4.10)$$

Elle possède notamment la propriété mathématique de relier sa trace au changement de volume par la relation :

$$J = \exp(\text{tr}(\underline{\underline{\boldsymbol{\varepsilon}}})) \quad (4.11)$$

Ce lien entre la trace et le changement de volume étant à la base de toutes les lois de plasticité et viscoplasticité usuelles en HPP, le choix de la déformation logarithmique permet de réutiliser ces formalismes pour créer des lois de comportements en grandes transformations. En effet, une loi ainsi construite est automatiquement objective et assure la positivité de la dissipation si la loi HPP d'origine

le garantissait. De plus, on peut montrer que, dans ce cadre, la contrainte duale  $\mathbf{T}$  est strictement égale à la contrainte de Cauchy lorsque l'on se place dans le cas d'une sollicitation uniaxiale et incompressible (fluage en compression 1D par exemple). En pratique, ce formalisme des déformations logarithmiques est devenu le formalisme usuel utilisé dans la plateforme PLEIADES (CEA/Cadarache) (Helfer, 2015).

#### IV.2.1.3. Illustration sur un cas de compression uniaxiale des écarts d'analyse entre déformations infinitésimale et logarithmique

Nous comparons ici les déformations calculées dans le cadre de l'hypothèse des petites perturbations (Equation 3.9) aux déformations de Hencky (logarithmiques pour la même expérience isochore à vitesse de déplacement de traverse constante  $\alpha$  (équation 3.10)). Dans le cadre des HPP, la déformation axiale fonction du temps est donnée par la relation :

$$\varepsilon_z = \frac{\alpha t}{h_0} \quad (4.12)$$

Dans le cadre des déformations logarithmiques, cette déformation s'exprime comme suit :

$$\varepsilon_z = \log\left(1 + \frac{\alpha t}{h_0}\right) \quad (4.13)$$

La Figure IV-2 présente les évolutions des deux déformations (expressions 4.12 et 4.13). L'écart est significatif : il est de 1,5% après 1h d'essai et de 5,6% après deux heures.

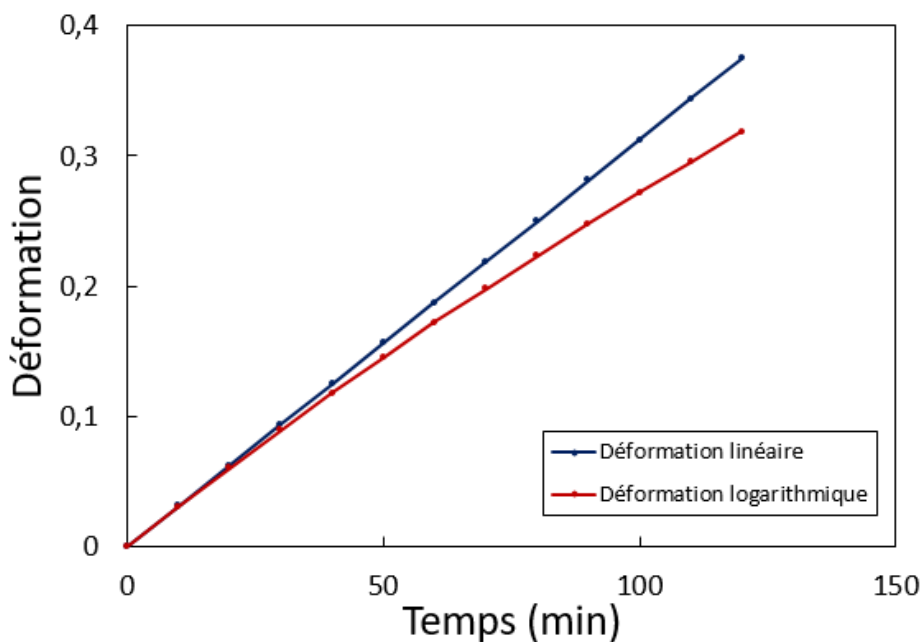


Figure IV-2. Comparaison de l'évolution de la déformation linéaire et de la déformation logarithmique. Avec  $\alpha = 50 \mu\text{m}/\text{min}$  et  $h_0 = 16 \text{ mm}$ .

#### IV.2.2. Mise en œuvre

L'utilisation du formalisme des grandes transformations n'est pas immédiate dans la plupart des solveurs et codes éléments-finis. Dans notre étude, le calcul de la déformation logarithmique est réalisé par le code Mfront (Helfer et al., 2015). Celui-ci récupère le gradient de la transformation (de

Mtest dans le cas d'un calcul uniaxial, ou de Castem/Licos dans le cas d'un calcul bidimensionnel) et en déduit les déformations logarithmiques. La loi de comportement est alors intégrée ce qui permet d'obtenir le tenseur de contraintes  $\underline{\mathbf{T}}$ . Finalement, Mfront convertit ce résultat en contrainte de Cauchy dans un post-traitement.

L'intégration de la loi de comportement réalisé par Mfront se fait suivant un schéma implicite, décrit sur le site MFront (Helfer & Hure, 2017). L'écriture de la loi que nous avons adoptée (chapitre 2, section II.4.2.4) est basée sur la formulation de Chaboche (Lemaitre & Chaboche, 1988) reprise dans les travaux de Colin (Colin, 2003). La loi d'écoulement viscoplastique retenue dans ce manuscrit correspond à une loi de Norton-Hoff associée à un écrouissage cinématique de type Armstrong et Frederick (P. J. Armstrong & Frederick, 1966) (voir Chapitre 3). Quelques tests préliminaires ont pu être fait avec le terme de restauration présenté au chapitre précédent (section II.4.2.4). Cependant, aucun résultat abouti n'a pu en sortir, principalement par la difficulté d'identifier deux paramètres supplémentaires dans la loi de comportement. Ainsi dans la suite de l'étude le terme de restauration a été à chaque fois négligé.

La vitesse de déformation viscoplastique, est ainsi donnée par :

$$\underline{\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}}^{\text{vp}} = \dot{p} \underline{\mathbf{n}} \quad \text{avec} \quad \dot{p} = \dot{\varepsilon}_0 \left( \frac{|\underline{\mathbf{T}} - \underline{\mathbf{X}}|_{eq}}{T_0} \right)^n \quad \text{et} \quad \underline{\mathbf{n}} = \frac{\partial |\underline{\mathbf{T}} - \underline{\mathbf{X}}|_{eq}}{\partial \underline{\mathbf{T}}} = \frac{3 \text{dev}(\underline{\mathbf{T}} - \underline{\mathbf{X}})}{2 |\underline{\mathbf{T}} - \underline{\mathbf{X}}|_{eq}} \quad (4.14)$$

Où :

$\underline{\mathbf{X}}$  décrit l'écrouissage cinématique et représente phénoménologiquement l'effet des contraintes internes dans le matériau.

$|\underline{\mathbf{T}} - \underline{\mathbf{X}}|_{eq}$  désigne la norme de Von Mises de la contrainte effective  $\underline{\mathbf{T}} - \underline{\mathbf{X}}$ .

$\underline{\mathbf{n}}$  donne la direction d'écoulement. Ce tenseur étant déviatorique, l'écoulement viscoplastique est à trace nulle, ce qui, du fait de la relation (4.11), traduit le caractère isochore de l'écoulement viscoplastique<sup>2</sup>.

La loi de Armstrong et Frederick s'écrit (Besson et al., 2010):

$$\underline{\dot{\mathbf{X}}} = \frac{2}{3} C \underline{\mathbf{a}} \quad \text{et} \quad \underline{\dot{\mathbf{a}}} = \dot{p} \underline{\mathbf{n}} - D \dot{p} \underline{\mathbf{a}}$$

### IV.2.3. Conclusion

Nous venons d'aborder le formalisme lié au traitement mathématique du problème. En analysant des cas simples mais proches de situations que nous traitons lors des essais, il semble que l'hypothèse des petites perturbations ne soit pas satisfaisante et qu'un traitement en grandes transformations soit nécessaire. Cependant, les grandes transformations peuvent être très complexes à mettre en œuvre et nécessitent par ailleurs le choix d'une expression pour les déformations. Ce choix s'est porté sur les déformations de Hencky qui présentent l'avantage de permettre de reprendre presque à l'identique les expressions classiques des lois de comportement et les relations qui leurs sont associées, établies dans le cadre bien connu des petites perturbations. Par ailleurs, dans l'approche uniaxiale, nous

<sup>2</sup> Cette hypothèse est valide tant que l'on néglige l'influence de la porosité (et de son évolution). Cette influence peut être décrite en suivant les travaux de Monerie *et al.* (2006) qui ont également été repris par Salvo *et al.* (2015a; 2015b).

établissons que la contrainte de Cauchy est celle que l'on peut déterminer expérimentalement. Cette approche est appliquée par la suite aux essais de compression et de flexion.

Nous abordons désormais la simulation numérique des essais présentés au chapitre précédent. Nous comparons les résultats de ces simulations numériques aux résultats d'essais mais aussi entre eux afin de quantifier l'importance des effets de structure (1D, 2D et 3D).

### IV.3. Application aux essais

#### IV.3.1. Essais de compression

##### IV.3.1.1. Description de l'essai

On considère un essai de compression uniaxiale, réalisée sur une pastille de dioxyde d'uranium d'une hauteur de 16,05 mm et d'un diamètre de 8,2 mm. L'essai mécanique a été réalisé à 1520°C, à une pression partielle d'oxygène de  $6,3 \cdot 10^{-13}$  atm., à une vitesse de traverse de  $20 \mu\text{m} \cdot \text{min}^{-1}$ , ce qui correspond pour l'échantillon à une vitesse de déformation linéaire d'environ  $2 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ . Nous allons voir qu'un élément géométrique déterminant dans la réponse de l'éprouvette est son élancement défini comme le rapport de sa hauteur sur son diamètre :

$$E = h/d \quad (4.15)$$

La pastille relative à cet essai a donc un élancement proche de 2. Les résultats expérimentaux de cet essai sont indiqués sur la Figure III-22 (chapitre 3).

Deux modèles sont utilisés pour la simulation des essais de compression : le premier est une représentation uniaxiale du problème, le second une représentation bidimensionnelle axisymétrique. Nous allons préciser dans les paragraphes suivants la manière dont le chargement est appliqué au cours du calcul. Notons que dans les deux cas (uniaxial ou bidimensionnel), le chargement correspond à la variation de la hauteur de la pastille pendant l'essai dont la valeur est fournie par les deux extensomètres décrits précédemment (chapitre 3, section III.2.1.1). Cette procédure permet d'évaluer un chargement au plus proche de la réalité puisque, en début d'essai en particulier et du fait des jeux mécaniques, le déplacement de la traverse ne correspond pas forcément à la variation de hauteur de l'éprouvette.

##### IV.3.1.1.1. Modèle 1D : calcul d'un point matériel

L'essai de compression uniaxial peut être simulé à l'aide d'une modélisation unidimensionnelle du problème qui revient à considérer une condition de glissement parfait à l'interface entre les cales en tungstène et l'échantillon.

Le modèle ne prend donc pas en considération la géométrie du problème et consiste en une description du solide réduite à un point matériel dont le comportement est régi par une loi de comportement viscoplastique. La sollicitation est imposée par le gradient de la transformation  $\tilde{\mathbf{F}}$ . Dans le cas d'une compression uniaxiale (supposée s'exercer suivant  $z$ ), le tenseur est diagonal et seule l'évaluation de la troisième composante suivant  $z$  est nécessaire. Celle-ci s'exprime de la façon suivante en fonction de la variation mesurée de la hauteur de pastille (Garcia et al., 2021) :

$$F_{zz} = 1 + \frac{\partial u_z}{\partial Z} = \frac{h(t) - h(0)}{h_f} + f(T) \quad (4.16)$$

$h(t) - h(0)$  représente la variation de la longueur de l'échantillon au temps  $t$  après le démarrage de l'essai à haute température (grandeur fournie par la mesure) et  $h_f$  représente la longueur de l'échantillon à froid avant le démarrage de l'essai.  $f(T)$  est une fonction de la température liée à la dilatation thermique de la pastille. Cette expression, qui constitue donc le chargement de la pastille, est établie à partir de l'expression de  $u_z$ , le déplacement suivant  $z$ . Celui-ci se décompose en une contribution initiale, liée à la dilatation thermique libre de l'échantillon d'une part, et une variation de la hauteur de la pastille correspondant à la phase d'essai à proprement parler (au cours de laquelle l'écoulement viscoplastique se produit) d'autre part.

Les paramètres de la loi de comportement sont obtenus en minimisant l'écart entre la contrainte expérimentale, déduite de la charge mesurée lors de l'essai et de la section de l'échantillon corrigée (voir chapitre 3, section III.3.1.2), et la contrainte simulée. Comme évoqué précédemment (chapitre 3, section III.3.1.3), seuls 3 des 4 paramètres de la loi de comportement peuvent être déterminés à partir d'un seul essai. Ainsi, notre stratégie d'analyse de l'essai consiste à fixer la valeur du paramètre  $n$ , et à identifier les paramètres  $C$ ,  $D$  et  $K$ . La valeur de  $n$  étant identifiée à partir des contraintes d'écoulement en fluage stationnaire pour des essais à différentes vitesses de déformation imposées, après en avoir décorrélé l'effet de l'atmosphère (voir le chapitre 5). L'identification des autres paramètres est réalisée par itérations successives. Les deux premiers ( $C$  et  $D$ ) permettent de reproduire la phase de fluage primaire associée dans la simulation à une évolution de la contrainte interne  $\underline{X}$ . Le dernier paramètre ( $K$ ) fixe la contrainte d'écoulement stationnaire.

#### IV.3.1.1.2. Modèle 2D-axisymétrique

Le modèle 1D, aussi utile soit-il pour analyser les essais, ne permet pas de décrire certains aspects du problème tels qu'ils sont observés expérimentalement, comme par exemple la mise en tonneau des pastilles. C'est pourquoi nous avons également mis en œuvre un modèle 2D représentant la symétrie de révolution du problème. Seule une demi-longueur de pastille est ainsi représentée : la face supérieure est en contact avec la cale supérieure et la face inférieure correspond au plan supposé de symétrie de l'échantillon.

Ce modèle permet de décrire la condition de contact entre la pastille et la cale supérieure :

Une condition de glissement parfait revient à considérer le problème de compression uniaxiale décrit au paragraphe précédent.

Une condition d'encastrement total (ancrage unilatéral) permet de rendre compte partiellement de l'hétérogénéité des champs de contrainte et de déformation susceptibles de se développer dans la pastille. En outre, nous pouvons envisager cette approche comme un moyen de quantifier l'écart à l'approche uniaxiale et au glissement parfait.

De la même manière que dans l'approche uniaxiale, la variation de hauteur de l'échantillon mesurée expérimentalement est utilisée comme chargement dans la simulation. Plus précisément un champ de déplacement axial uniforme correspondant à la variation mesurée de hauteur de la pastille est imposé sur la face supérieure de la pastille, à l'interface avec la cale en tungstène.

La comparaison à l'expérience se fait en évaluant la résultante axiale totale des forces qui s'exercent sur la pastille à l'interface avec la cale. Ce calcul fournit une grandeur directement comparable à la charge mesurée au cours de l'essai. L'idée n'est pas forcément de ré-identifier les paramètres de la loi de comportement avec ce modèle, mais plutôt de comparer quantitativement sa réponse au résultat

de calcul 1D. Ainsi, les résultats de cette simulation peuvent être rapprochés des effets multidimensionnels dont les échantillons sont le siège, qu'il s'agisse d'effets macroscopiques comme la « mise en tonneau », ou d'effets microstructuraux.

#### IV.3.1.2. Comparaison calcul/mesure

Les résultats des simulations, uniaxiale dans un premier temps, puis bidimensionnelle dans un second temps, sont comparés à la courbe de charge mesurée. L'effet de l'éclatement sur la réponse du matériau est ensuite discuté.

##### IV.3.1.2.1. Simulation uniaxiale

La Figure IV-3 représente la comparaison de la contrainte axiale ou de Von Mises issue de la simulation numérique unidimensionnelle (courbe orange) à l'expérience (courbe bleu). Les paramètres de la loi de comportement correspondant sont renseignés dans le Tableau 2. Notons que cette comparaison entre contrainte expérimentale telle qu'elle est définie au chapitre 3, équation (3.6) et contrainte simulée en 1D est parfaitement légitime d'après les résultats de la section IV.2.1. En effet, il s'agit dans les deux cas de la contrainte de Cauchy.

On remarque que le résultat de la simulation apparaît comme un nuage de points. Cela vient de l'extrême sensibilité du calcul vis-à-vis du déplacement imposé en entrée. Ce dernier étant directement pris de l'expérience il est entaché d'une certaine variation résultant du bruit de la mesure. Une variation du déplacement de quelques microns se répercutent donc par une variation de la contrainte de quelques MPa.

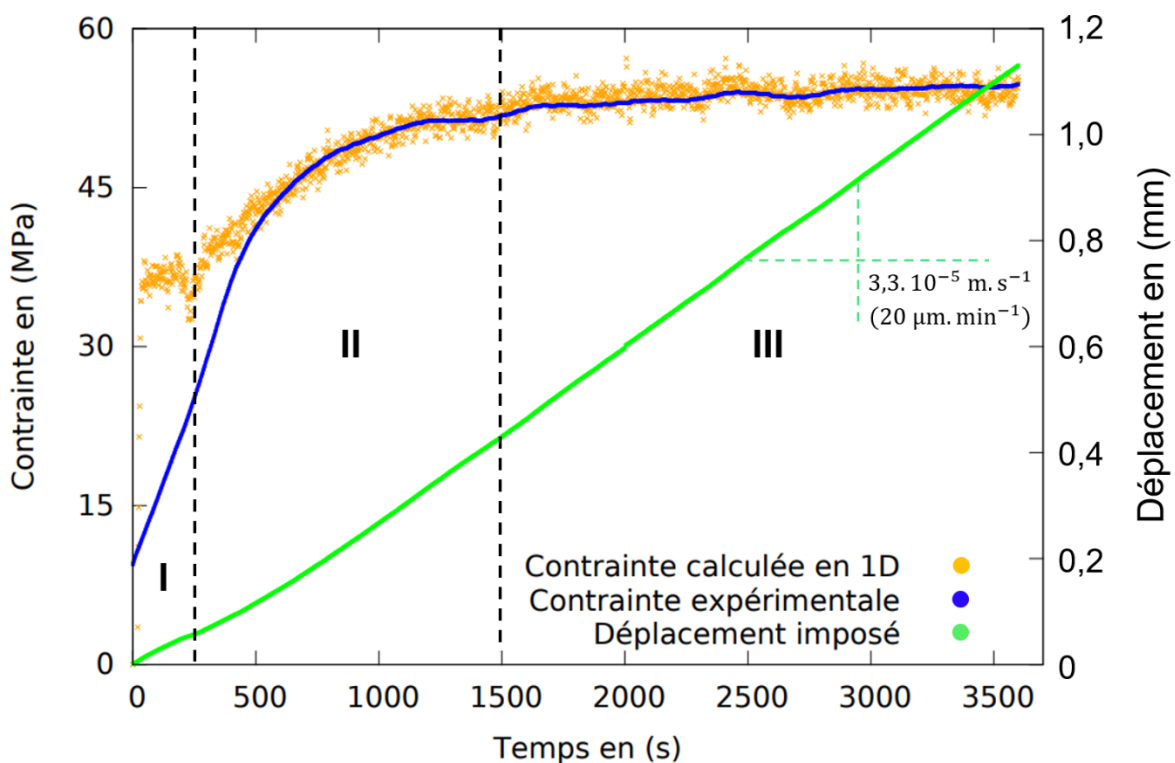


Figure IV-3. Comparaison de l'évolution de la contrainte de Von Mises déduite de l'expérience (courbe bleue) à la contrainte déterminée par la simulation (courbe orange) sous l'hypothèse d'un essai uniaxial. La courbe verte représente la variation de la hauteur de la pastille au cours de l'essai, imposée comme chargement dans le calcul.

**Tableau 2. Jeu de paramètres identifiés. Résultats en Figure IV-3**

<b>C (MPa)</b>	<b>D</b>	<b>n</b>	<b>K (MPa/s)<sup>n</sup></b>
570	80	4,5	520

Le résultat de cet essai présente trois phases distinctes :

La première (I) au cours de laquelle le résultat de la simulation numérique ne correspond pas à la mesure. On peut associer cette observation à l'évolution de la courbe de déplacement : en effet, la pente de cette courbe au cours de la phase I ne correspond pas strictement à la pente de la courbe de déplacement au cours des stades 2 et 3, elle-même très proche de la vitesse de déplacement de la traverse. Nous pouvons interpréter ceci en invoquant une période de mise en place de l'essai au cours de laquelle les différents jeux présents le long de la colonne de charge se combent. La variation de hauteur de pastille n'est dans ce cas pas strictement égale à la différence de signal provenant des deux extensomètres.

La seconde (II) au cours de laquelle la simulation reproduit de manière satisfaisante l'évolution de la contrainte estimée expérimentalement. Cette phase correspond au premier stade de fluage (fluage primaire, voir chapitre 1, section I.2) et s'achève lorsque la contrainte se stabilise. Dans la simulation, cette phase correspond à une évolution asymptotique la contrainte interne. Les paramètres (C et D) influencent directement cette partie de l'essai.

La troisième phase (III) que l'on reconnaît à l'établissement d'une contrainte stationnaire, signe *a priori* distinctif du fluage secondaire. Cela permet également de montrer que l'érouissage apparent du matériau observé sur la Figure III-22 (chapitre 3), qui se traduit par une évolution croissante de la charge au cours de l'essai, est en réalité lié à l'évolution de la section de l'échantillon.

La simulation numérique permet une représentation satisfaisante des deux étapes liées au comportement du matériau. La loi de comportement de Frederick-Armstrong utilisée ici permet de simuler, en partie du moins, le fluage primaire du matériau ce qui n'est pas possible avec une loi de Norton.



IV.3.1.2.2. Simulation axisymétrique

La Figure IV-4 indique les évolutions des charges mesurée et calculée avec les modèles uniaxial et bidimensionnel. Pour le calcul bidimensionnel, l'hypothèse d'un encastrement de l'échantillon (courbe brune) est considérée.

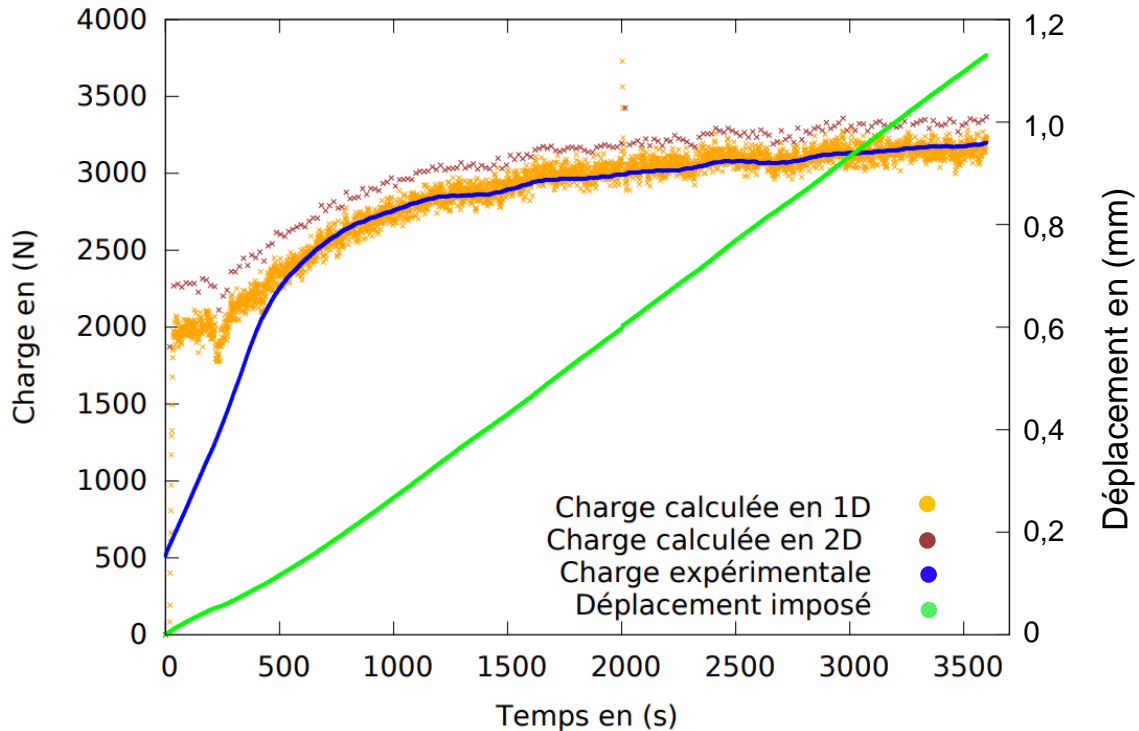


Figure IV-4. Comparaison entre l'évolution de la charge expérimentale (bleu), de la charge déduite du calcul 1D (orange) et de la charge résultante du calcul 2D (brun). La courbe verte représente l'évolution du déplacement imposé.

On constate qu'il existe un écart entre les courbes de charge calculées en 1D et 2D. Cet écart est quasi constant sur toute la durée de l'essai. Il représente une augmentation de la charge de 6% en moyenne.

De plus, cette différence est de même amplitude sur l'intégralité de l'essai, sans différence entre le fluage primaire et secondaire. Cela nous permet de dire que seule une correction sur le paramètre K est nécessaire pour contrecarrer cet effet et ainsi faire correspondre le résultat du calcul 2D avec l'expérience. On retombe sur la solution uniaxiale avec une valeur plus faible de 10 MPa. Rappelons que cette erreur correspond à un essai sur une pastille dont l'élanement est relativement élevé.

Malgré les efforts réalisés pour stabiliser la température de l'eau de refroidissement du dispositif (chapitre 3, section III.4.4), nous observons des fluctuations périodiques sur la courbe de charge expérimentale que l'on retrouve sur les courbes de charge simulées pour des raisons déjà évoquées (voir chapitre 3, paragraphe III.4.4.2). Si les périodes observées au niveau des calculs uni- et bidimensionnels sont identiques et correspondent aux périodes des fluctuations observées sur la courbe expérimentale, l'amplitude de ces fluctuations est en revanche mieux reproduite par la simulation 2D que la simulation 1D. **Ceci semble donc indiquer qu'au premier ordre, il s'agit là d'un effet de structure et n'est pas lié fondamentalement à la loi d'écoulement viscoplastique.**

#### IV.3.1.2.3. Répartition des contraintes et déformations

La Figure IV-5 représente la distribution des contraintes équivalentes de Von Mises sous l'hypothèse de l'ancrage unilatéral. Dans le cas du calcul 1D, la contrainte de Von Mises est strictement identique en tout point (chapitre 3, section III.3.1).

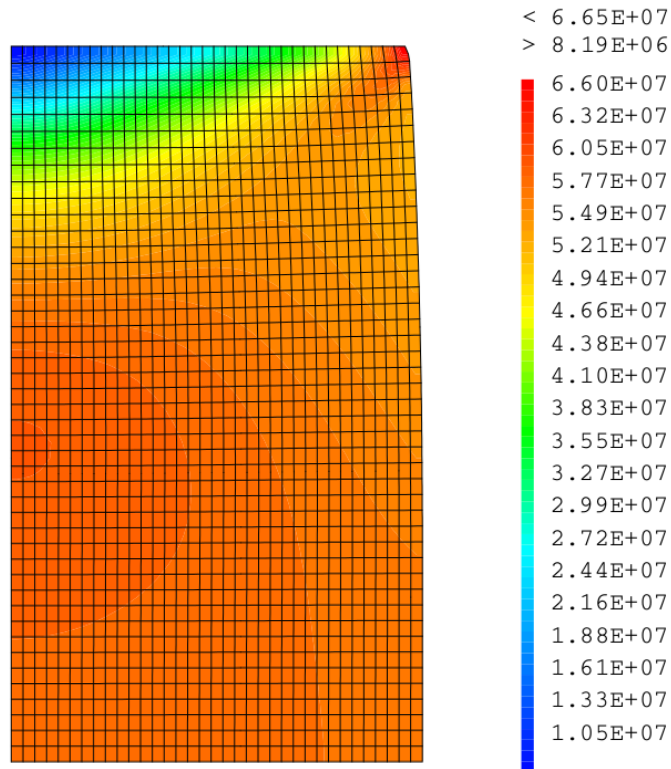


Figure IV-5. Distribution de la contrainte équivalente de Von Mises (en Pa) dans la pastille en condition d'ancrage unilatéral.

On voit que dans l'approche bidimensionnelle, il n'en est rien. La simulation de l'encastrement apporte *a priori* plus d'information que la représentation uniaxiale puisque cette hypothèse est en mesure de décrire l'hétérogénéité de la distribution des contraintes et des déformations qui en découle. La Figure IV-5 indique une hétérogénéité de la distribution de contrainte à l'intérieur d'un cône dont la base correspond à la face supérieure de la pastille en contact avec la cale. La contrainte présente un minimum de 8,2 MPa sur l'axe de révolution de la pastille à l'interface avec la cale, et un maximum de 66,5 MPa en périphérie et dans ce même plan.

#### IV.3.1.2.4. Simulation de la « mise en tonneau »

Nous avons comparé l'évolution axiale du diamètre extérieur de la pastille obtenue par simulation 2D, avec une mesure réalisée par laser du diamètre de la pastille à l'issue de l'expérience. La Figure IV-6 montre la mise en tonneau de l'échantillon. Le profil de la pastille déformée présente une légère dissymétrie que le calcul ne reproduit pas compte tenu du fait que le plan médian de la pastille est un plan de symétrie. On constate également que le rayon de la pastille à chacune de ses extrémités ne semble pas avoir évolué lors de l'essai (4,1 mm). De plus, le profil obtenu par le calcul est relativement proche du profil réel. Tout cela confirme la pertinence de l'hypothèse d'ancrage aux interfaces.

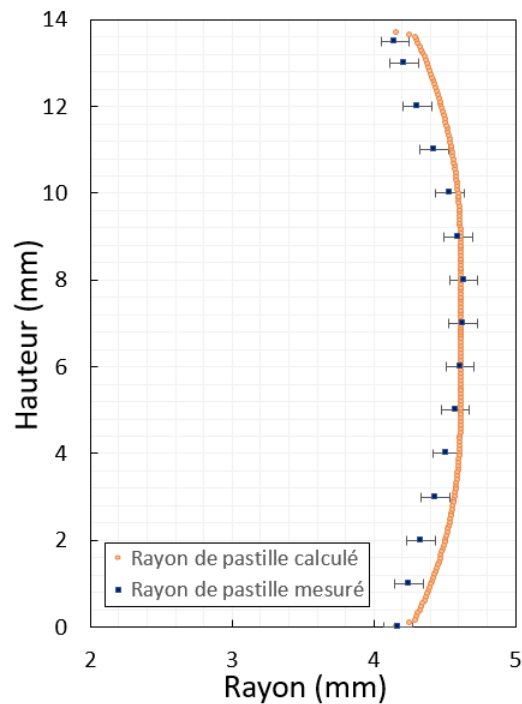


Figure IV-6. Comparaison de l'évolution axiale du rayon externe d'une pastille simulée et mesurée à l'issue d'un essai de compression. Le calcul 2D est réalisé sous une hypothèse d'ancrage unilatéral.

### IV.3.1.3. Effet de l'élançement

Compte tenu des études envisagées et de la pertinence apparente des hypothèses de simulation axisymétriques, l'influence de l'élançement de la pastille a été étudiée sur la courbe de charge. Une étude paramétrique a ainsi été réalisée en considérant des pastilles d'élançements allant de 0,25 à 3,5 (2 : échantillon de référence). Afin de n'étudier que cet effet de structure, nous avons tenu à conserver une cohérence physique du point de vue des vitesses de déformation. Ainsi, les vitesses de déplacement de traverse ont été diminuées en proportion de l'élançement des pastilles de sorte que, d'un essai à l'autre, les vitesses de déformation linéaires macroscopiques des pastilles soient identiques. Tous les paramètres de la loi de comportement ont été conservés (voir le Tableau 2).

La Figure IV-7 représente le résultat de cette étude comparative, sur trois élançements spécifiques : 0,5 (quart de pastille) ; 1 (demi-pastille) et 2 (pastille de référence). On constate que, plus l'élançement de l'échantillon est faible, plus la charge d'écoulement induite par la vitesse de déformation imposée est élevée. Cela va bien dans le sens où le frottement à l'interface s'oppose au fluage du matériau comme l'indique nos simulations 1D et 2D avec encastrement.

Par ailleurs, l'écart entre les charges issues des calculs 1D et 2D est une fonction inversement proportionnelle à l'élançement, comme on peut le voir sur la Figure IV-8. Ces résultats nous montrent que l'hypothèse d'uniaxialité dans le cas d'une pastille dont l'élançement est de 2 induit un biais de 6 % sur la charge, alors qu'elle induit dans le cas d'une pastille courte (élançement de 0,5) un biais de plus de 28 %.

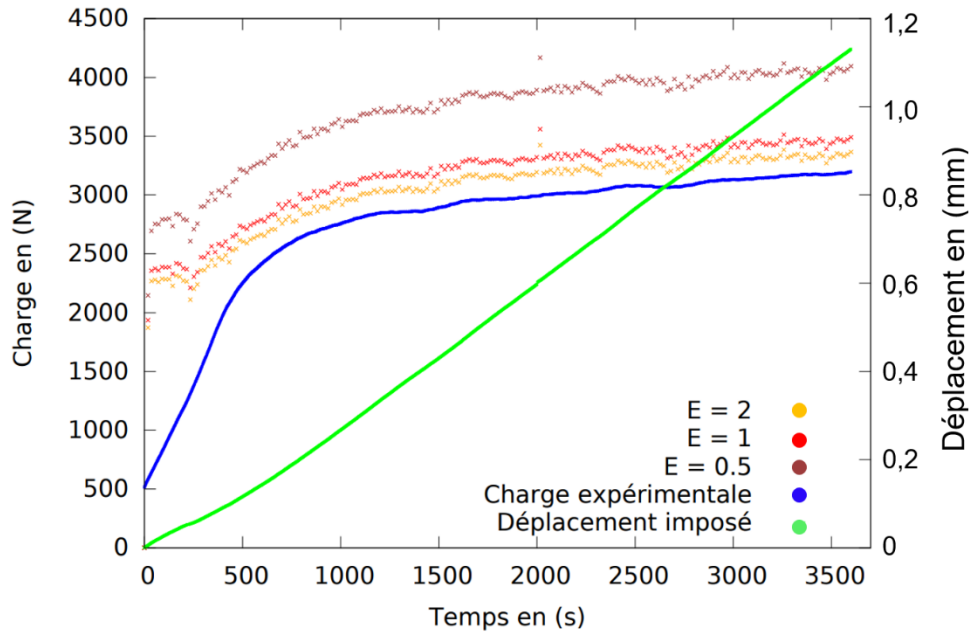


Figure IV-7. Courbes de charge obtenues par simulation 2D pour des pastilles d'élancements différents et comparaison à la mesure pour un élancement voisin de 2. (2 : Orange ; 1 : Rouge ; 0,5 : Brun).

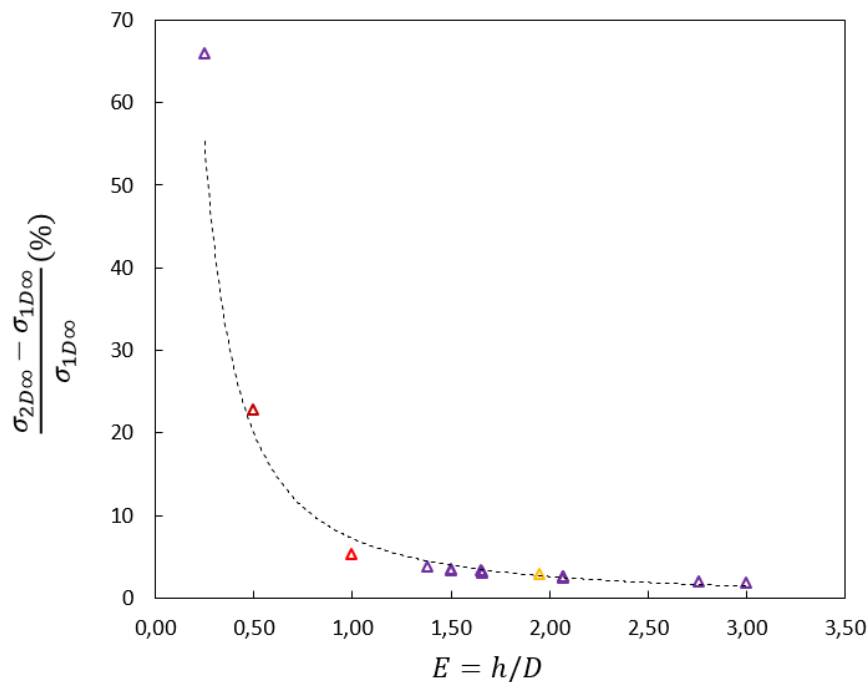


Figure IV-8. Evolution de l'écart entre les charges stationnaires issues des calculs 1D et 2D en fonction de l'élancement des échantillons.

Cet écart à l'hypothèse d'uniaxialité peut s'illustrer par la distribution de la contrainte équivalente dans le matériau, comme l'indique la Figure IV-9 pour une pastille d'élancement 1 (Figure IV-9a) et un-demi (Figure IV-9b). Dans le premier cas, la distribution est proche de celle observée sur la pastille de référence (Figure IV-5). La contrainte semble relativement homogène à cœur. À l'inverse, on constate une forte hétérogénéité des contraintes sur la Figure IV-9b. Pour être plus précis on peut regarder l'évolution de la contrainte axiale en deux endroits : le long de l'interface encastrée et le long du plan médian de symétrie (représentés par les droites bleue et bordeaux sur la Figure IV-9) et cela pour les

deux pastilles d'élancements respectifs de 1 et 0,5. On constate alors une hétérogénéité relativement importante pour les deux pastilles (Figure IV-10).

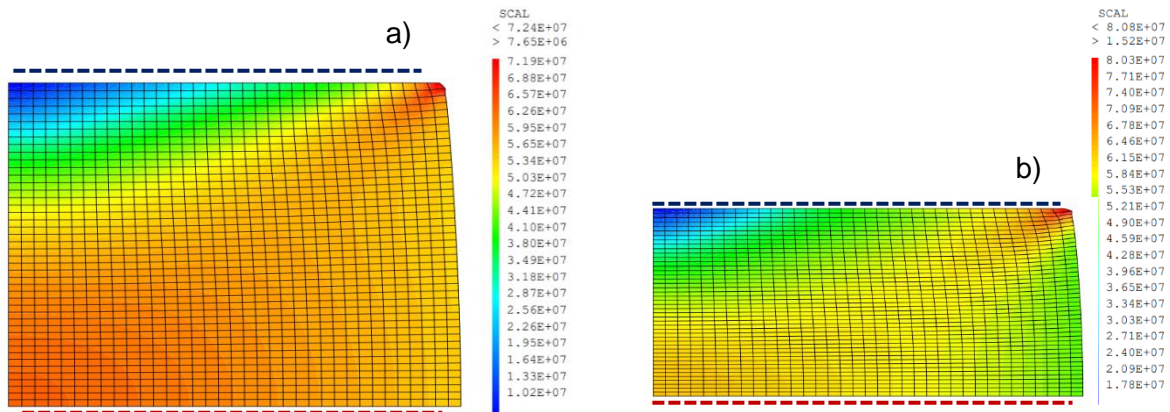


Figure IV-9. Distribution des contraintes équivalentes de Von Mises pour un élancement de 1 (a) et de 0,5 (b) avec des vitesses de déformation linéaires identiques.

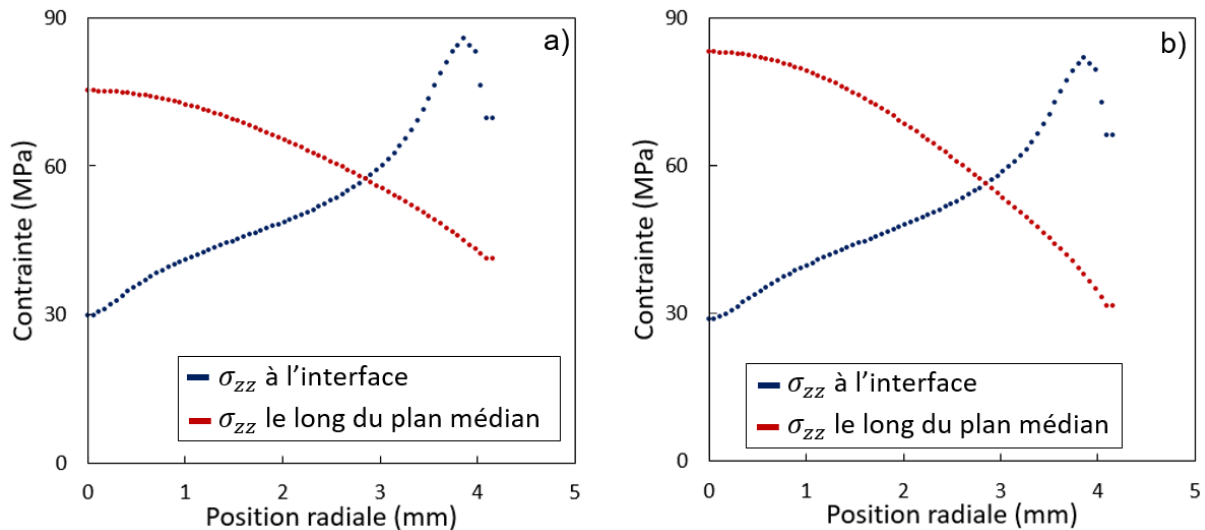


Figure IV-10. Evolution de la contrainte axiale en fonction de la position radiale (bleu à l'interface encastrée ; rouge sur le plan médian), a. Demi-pastille  $E = 1$  ; b. Pastille courte  $E = 0,5$ .

Ces résultats mettent en évidence la nécessité d'utiliser la simulation numérique dans le cas de réalisation d'essais qui sortent du cadre de l'uniaxialité dans le but à la fois d'étayer l'analyse des essais, c'est-à-dire séparer les effets de la loi de comportement de ceux liés à la géométrie du problème, et également de pouvoir établir des corrélations avec l'évolution locale de la microstructure.

#### IV.3.1.4. Conclusion de la simulation de la compression

Les résultats que nous venons de présenter nous permettent de dresser un bilan de la capacité de la simulation, en terme de géométrie et de loi de comportement, à reproduire l'ensemble des effets macroscopiques mesurés : les courbes de charges ainsi que certains effets de structure.

Il semble que le modèle unidimensionnel permette de simuler de manière satisfaisante les essais de compression lorsque l'élancement de l'échantillon est suffisamment élevé. C'est le cas du lot de pastilles frittées de référence dont nous disposons et dont l'élancement est de 2. Par contre,

l'hypothèse d'uniaxialité n'est plus pertinente pour des pastilles dont l'élanement est inférieur ou égal à 1. Dans ce cas, et si l'objectif est d'identifier une loi de comportement, une analyse bidimensionnelle s'impose. Cette situation sera rencontrée et décrite au chapitre 5 dans le cadre d'échantillons cylindriques élaborés par SPS et dont l'élanement est de 0,6 environ. Par ailleurs, deux phénomènes macroscopiques semblent être liés à des effets de structure et convenablement reproduits par une représentation axisymétrique associée à une hypothèse d'ancrage à l'interface entre la pastille et les cales en tungstène : il s'agit de la déformation en tonneau des pastilles à l'issue d'un essai et de l'amplitude des fluctuations de la charge observée au cours de l'essai. Ces dernières subsistent bien que largement diminuées par la mise en œuvre d'un système de régulation de la température de l'eau de refroidissement de notre dispositif et la simulation axisymétrique en reproduit l'amplitude.

La loi de comportement de Frederick-Armstrong (4.14) décrit convenablement les premiers stades de la réponse viscoplastique du matériau. Son utilisation permet de décorrélérer la réponse matériau des phénomènes indésirables liés à la mise en place du dispositif.

### IV.3.2. Essais de flexion

Dans cette section, les conditions des essais de flexion dont nous proposons une analyse sont tout d'abord rappelées. Des modélisations en 2D et 3D de ces essais sont ensuite présentées, en précisant le chargement et les grandeurs pertinentes relatives aux calculs. Enfin, l'allure des résultats numériques est analysée et discutée en termes de pertinence vis-à-vis des grandeurs analytiques présentées dans le chapitre précédent (section III.3.2.3).

#### IV.3.2.1. Description des essais

Nous considérons à présent les essais de flexion 3- et 4-points, dont les résultats ont été présentés au chapitre précédent (section III.4.3). Ces derniers ont été réalisés à 1500°C, sous une pression partielle d'oxygène de  $2,7 \cdot 10^{-11}$  atm. pour l'essai de flexion 3-points et de  $2,8 \cdot 10^{-13}$  atm. pour l'essai de flexion 4-points, sur des éprouvettes de dioxyde d'uranium de forme parallélépipédique. Les éprouvettes ont une longueur de 30 mm, une largeur de 4,2 mm et une épaisseur de 2,7 mm. La vitesse de traverse imposée est de  $40 \mu\text{m} \cdot \text{min}^{-1}$  pour l'essai de flexion 3-points et de  $30 \mu\text{m} \cdot \text{min}^{-1}$  pour l'essai en configuration 4-points. Le grand entraxe est similaire dans les deux configurations et vaut 25 mm, en configuration 4-points l'entraxe des appuis supérieurs est de 12,5 mm.

#### IV.3.2.2. Modélisation

##### IV.3.2.2.1. Modélisation 2D de l'essai de flexion

Les essais de flexion en 3 et 4 points présentent de multiples symétries. Il est courant de les modéliser en deux dimensions sous une hypothèse de contraintes ou de déformations planes. Dans le cas de solides suffisamment élancés (ce qui est le cas de nos éprouvettes), il est plus approprié d'appliquer une hypothèse de contraintes planes selon laquelle le champ de contraintes présente une symétrie de translation dans le sens de la largeur de l'éprouvette.

Dans toute la suite de cette section, nous adoptons le même repère que celui du chapitre précédent (paragraphe III.3.2.2.1). Ainsi l'axe  $x$  est parallèle à la longueur de l'éprouvette (et à sa fibre neutre), l'axe  $y$  correspond à son épaisseur, c'est-à-dire la direction d'application du chargement, et enfin l'axe  $z$  s'étend dans la largeur de l'éprouvette et n'est considéré que dans le cas d'un calcul en trois

dimensions. La contrainte normale correspond donc à la composante  $\sigma_{xx}$  du tenseur de contraintes et la contrainte de cisaillement à la composante  $\sigma_{xy}$ . Le problème présente une symétrie par rapport au plan perpendiculaire à la longueur de l'éprouvette (passant par le point d'application de la force dans le cas de la flexion 3-points). Ainsi, nous pouvons ne modéliser qu'une demi-éprouvette, décrite par sa demi-longueur et son épaisseur. Ce plan de symétrie correspond au plan d'abscisse nulle. L'origine des ordonnées est fixée sur la fibre neutre. Chaque extrémité correspond donc à  $y = \pm e/2$ . Les appuis supérieurs et inférieurs sont considérés comme des solides indéformables, de géométrie circulaire avec un rayon de 1,5 mm. Le déplacement imposé lors de la simulation est égal à la flèche imposée à l'éprouvette et mesurée pendant l'expérience (voir Figure III-20, chapitre 3). Il est appliqué directement sur l'appui supérieur. Nous faisons donc l'hypothèse que l'épaisseur de l'éprouvette reste constante pendant l'essai. Ce point a été soigneusement vérifié par comparaison de la flèche maximale, mesurée grâce au palpeur situé sous l'échantillon là où le matériau est sollicité, au déplacement de l'outil mesuré à l'aide d'un second palpeur en appui sur l'outil supérieur. D'ailleurs, l'abscisse de l'appui supérieur constitue la seule différence entre les modèles de flexion 3- et 4-points. Dans le premier cas l'appui est placé sur l'axe de symétrie, d'abscisse nulle  $x = 0$ . Dans le second cas, l'appui est décalé d'une demi-entraxe, c'est-à-dire de  $x = 6,25 \text{ mm}$  par rapport au plan de symétrie.

Une rapide étude a mis en évidence que le raffinement du maillage utilisé était adéquat et n'influait pas outre mesure les résultats de la simulation. Nous discuterons dans la suite d'un effet relatif au maillage des appuis dans le cas de la flexion 4-points.

#### IV.3.2.2.2. Modélisation 3D de l'essai de flexion

Nous avons également mis en place un modèle tridimensionnel de l'essai de flexion dans l'objectif d'évaluer la pertinence de la simulation bidimensionnelle en contraintes planes. La modélisation 3D met en œuvre une nouvelle symétrie définie par le plan perpendiculaire à la section de l'éprouvette et passant par le centre de symétrie de l'éprouvette. Nous ne modélisons donc qu'un quart d'échantillon. Les appuis sont décrits comme des cylindres indéformables et le chargement en déplacement appliqué au niveau de l'appui supérieur. La charge appliquée est mesurée comme résultante des forces le long de la ligne de contact entre l'appui supérieur et l'échantillon.

### IV.3.2.3. Comparaison calcul/mesure en flexion 3-points

#### IV.3.2.3.1. Analyse des résultats par simulation numérique

La Figure IV-11 illustre le résultat d'une simulation numérique dans une représentation bidimensionnelle du problème utilisant un jeu de paramètre (Tableau 3) permettant de reproduire le niveau de charge « en régime permanent ». La valeur du paramètre  $n$  provient de l'identification faite sur les contraintes maximales stabilisées expérimentales. Les autres paramètres ont été déterminés par une méthode itérative. Or, à l'inverse de la simulation unidimensionnelle de l'essai de compression qui est instantanée, le calcul complet d'un essai de flexion dure une dizaine de minutes, ce qui rend cette méthode coûteuse en temps d'optimisation.

L'évolution de la charge en fonction du temps présente trois parties distinctes. Au cours du premier stade (I), la simulation ne permet pas de reproduire l'évolution expérimentale de la charge de manière satisfaisante. Il est probable qu'au cours de cette étape, le matériau subisse une part de fluage primaire et que le dispositif soit sujet à une phase de mise en place. La courbe de charge atteint une valeur maximale au début de la seconde phase puis décroît légèrement sur une durée d'environ 1500 s,

passant progressivement de 83N à 80N. Bien que cette diminution soit faible, elle représente une chute de la contrainte maximale de 5 MPa par rapport à une analyse élastique du problème. La succession d'une phase d'érouissage apparent suivi d'un adoucissement n'est pas convenablement reproduite par la simulation. Simulation et expérience se rejoignent au cours du dernier stade (III) de fluage stationnaire.

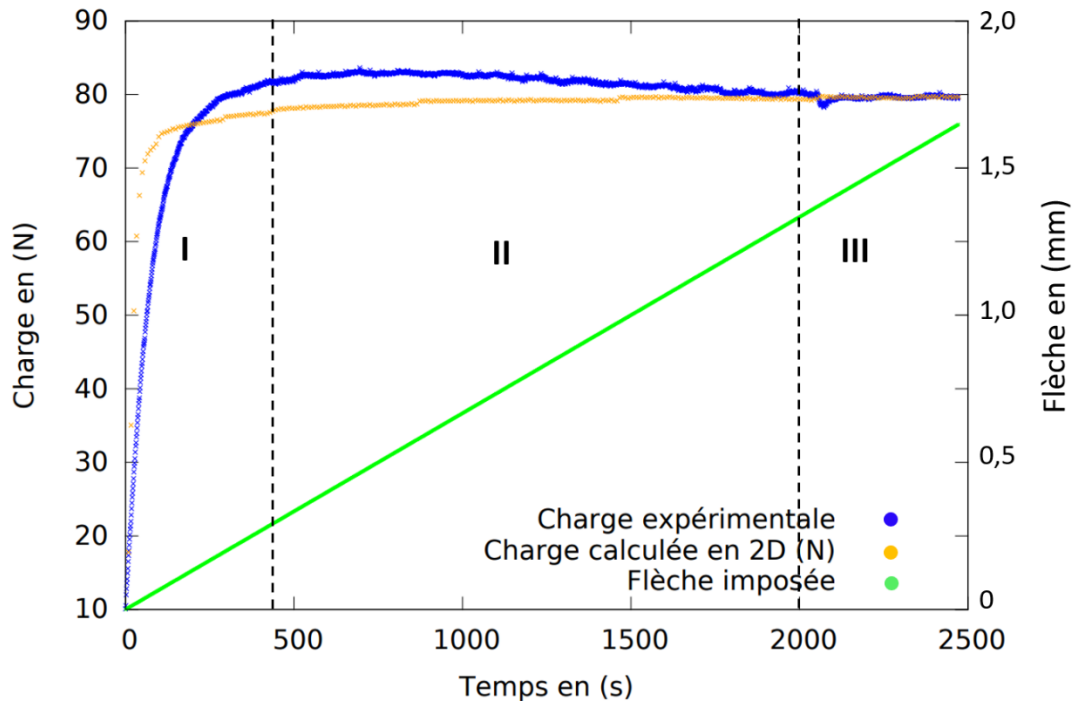


Figure IV-11. Comparaison entre l'évolution de la charge expérimentale lors d'un essai de flexion 3-points (courbe bleue) et de la charge obtenue par la simulation (courbe orange). La flèche imposée et mesurée au cours de l'essai est représentée en vert.

**Tableau 3. Jeu de paramètres utilisé pour le calcul présenté sur la Figure IV-11**

$C$ (MPa)	$D$	$n$	$K$ (MPa/s) <sup><math>n</math></sup>
600	200	10	168

Deux remarques doivent être faites au sujet de cet essai de flexion et de sa simulation :

Il n'a pas été possible d'améliorer substantiellement la qualité de la simulation en modifiant les paramètres du modèle à érouissage cinématique (voir chapitre 2, section II.4.2.4). On peut voir sur la Figure IV-12 l'effet sur la courbe de charge numérique des deux paramètres du fluage primaire ( $C$  et  $D$ ). Le premier paramètre joue légèrement sur l'amplitude du fluage primaire, et le second influence sa durée. Aucun des deux ne permet de reproduire convenablement l'évolution de la charge lors du fluage primaire, et en particulier la phase d'adoucissement. Il est possible que l'ajout d'un terme de restauration dans la loi de comportement permette de représenter un tel comportement, cependant nous n'avons pas pu l'appliquer à ces travaux.

Cette phase d'adoucissement constitue une caractéristique systématique des essais réalisés en flexion 3-points. Nous reviendrons sur ce point au chapitre 6.



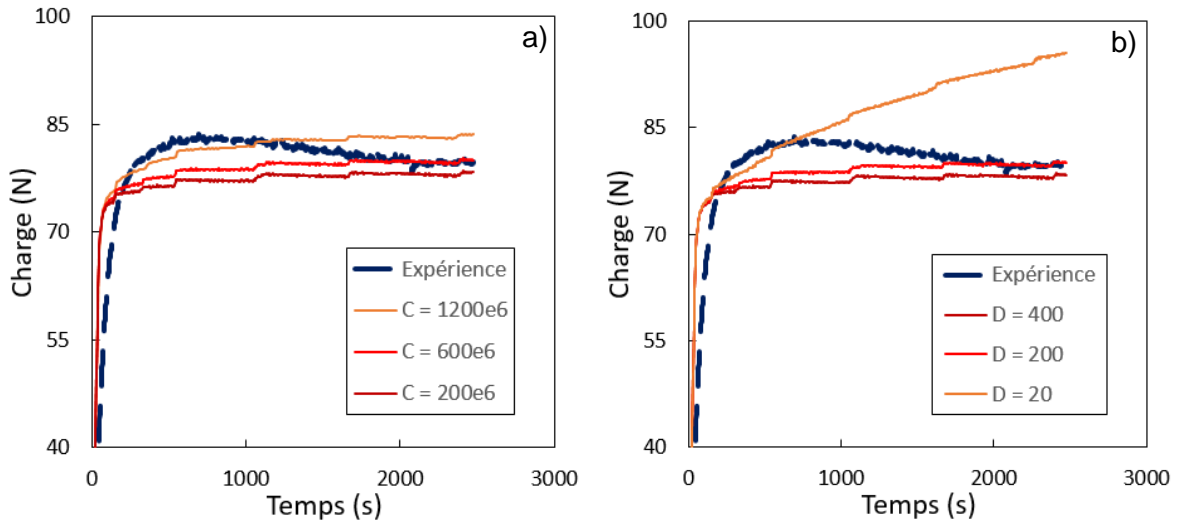


Figure IV-12. Mise en évidence de l'influence des paramètres du fluage primaire sur la charge numérique, a. Effet de C ; b. Effet de D.

Concernant le premier point, la phase initiale de l'essai peut être reproduite de manière satisfaisante en faisant l'hypothèse d'un module d'Young apparent nettement inférieur de l'ordre de 50 GPa (inférieure d'un facteur 5 environ par rapport à celui du dioxyde d'uranium, voir Figure IV-13). Une combinaison de deux effets pourrait contribuer à ce qui l'en soit ainsi. Tout d'abord, au cours de la phase élastique, l'inverse de la rigidité apparente peut s'exprimer comme la somme des inverses des rigidités du dispositif et de l'échantillon (De Bilbao et al., 2010). Or, au cours de la phase initiale de l'essai, la charge reste faible au regard de la capacité maximale de la cellule de charge (1 kN) et de l'équipement dans son ensemble, ce qui rend légitime l'hypothèse selon laquelle la pente initiale de la courbe de charge observée sur la Figure IV-11 est plus représentative de la réponse élastique de l'équipement. Une approximation du module d'Young apparent, à partir de la réponse en contrainte – déformation, donne une valeur proche de 50 GPa. Cela valide la concordance du résultat de la simulation numérique avec un module d'Young pris à cette valeur (Figure IV-13). De plus, on peut en déduire une rigidité de la machine, à l'aide de ce module apparent et du module d'Young du dioxyde d'uranium. On obtient une rigidité du dispositif de l'ordre de 40 GPa.

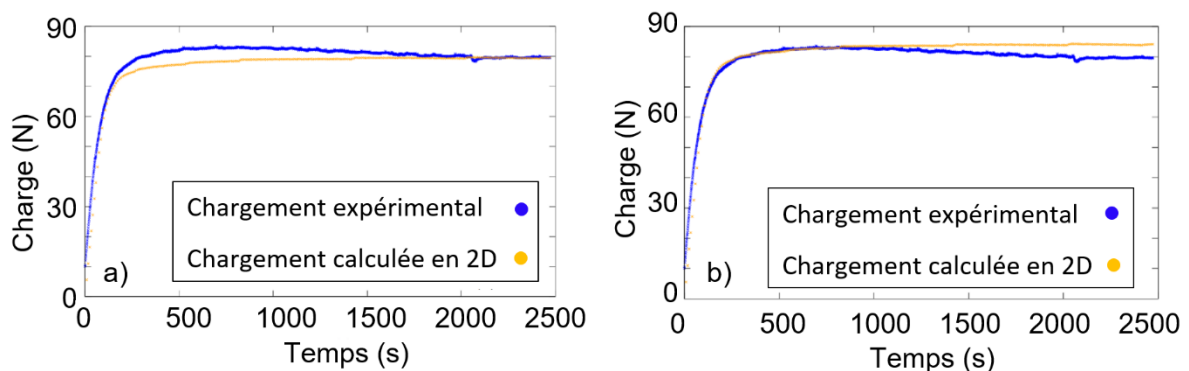


Figure IV-13. Mise en évidence de l'influence potentielle de la rigidité du dispositif au regard de celui de l'échantillon. E = 50 GPa. a) K = 168 MPa ; b) K = 178 MPa.

#### IV.3.2.3.2. Champs de contrainte et de déformation dans l'éprouvette

La Figure IV-14 représente la contrainte de Von Mises en fin d'essai. La distribution est hétérogène et présente, comme cela était attendu, des maxima sous le point d'appui en peau interne ( $y = +e/2$ ) d'éprouvette et en peau externe ( $y = -e/2$ ) d'éprouvette à l'abscisse ( $x = 0$ ). Cette contrainte diminue à mesure que l'on s'éloigne du plan d'abscisse nul dans le sens de la longueur de l'éprouvette.

Les Figure IV-15 et Figure IV-16 représentent l'évolution des différentes composantes du tenseur des contraintes et des déformations, d'une part dans l'épaisseur de l'éprouvette au niveau du plan d'abscisse nulle (zone représentée par le segment vert sur la Figure IV-14) et d'autre part dans la longueur de l'éprouvette au niveau de l'extrémité supérieure en compression (zone représentée par le segment rouge sur la Figure IV-14).

On retrouve l'évolution attendue de la contrainte normale dans l'épaisseur de l'éprouvette lors d'un essai de fluage en flexion (voir le chapitre 3, Figure III-15). Cette évolution, qui est une fonction puissance de l'ordonnée (la puissance est en  $1/n$ , avec  $n$  l'exposant de la contrainte dans la loi de comportement), résulte en une distribution relativement homogène de la contrainte dans l'épaisseur de part et d'autre de la fibre neutre. Cependant, dans le sens de la longueur de l'éprouvette, la contrainte normale diminue quasi linéairement jusqu'au niveau de l'appui inférieur. On s'aperçoit également que la composante normale du tenseur des contraintes domine toutes les autres. La composante de cisaillement ne présente de valeurs substantielles qu'au niveau de la fibre neutre.

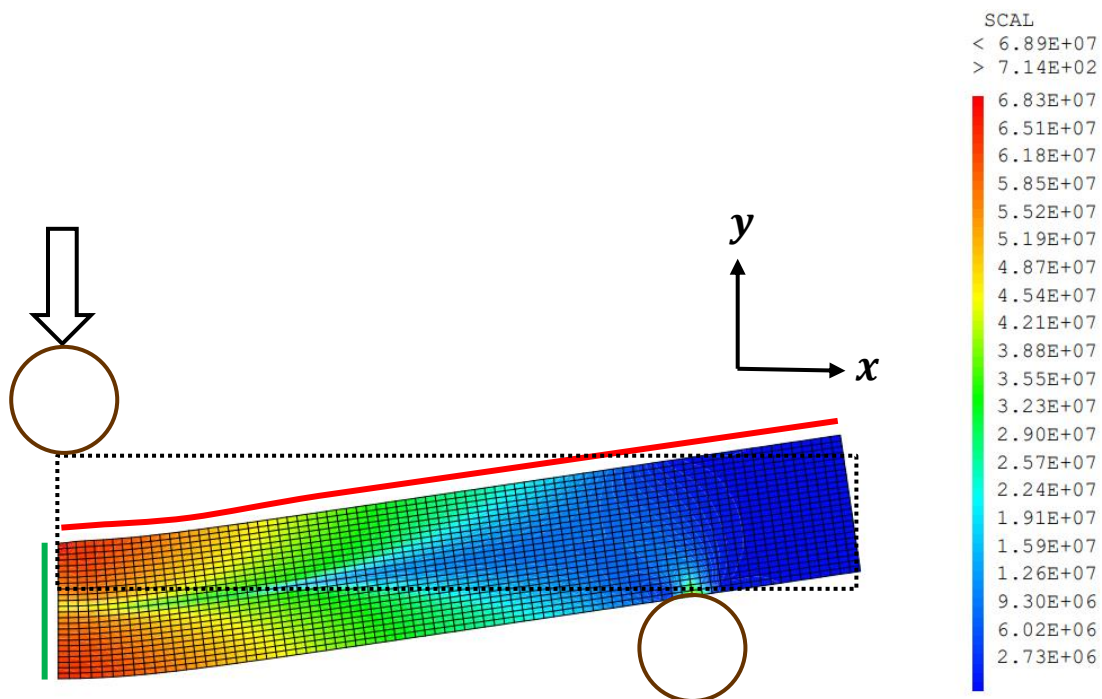


Figure IV-14. Contrainte de Von Mises dans la demi-éprouvette dans le cas d'un essai de flexion 3-points.  
 Segment vert : ligne médiane / segment rouge : ligne supérieure.

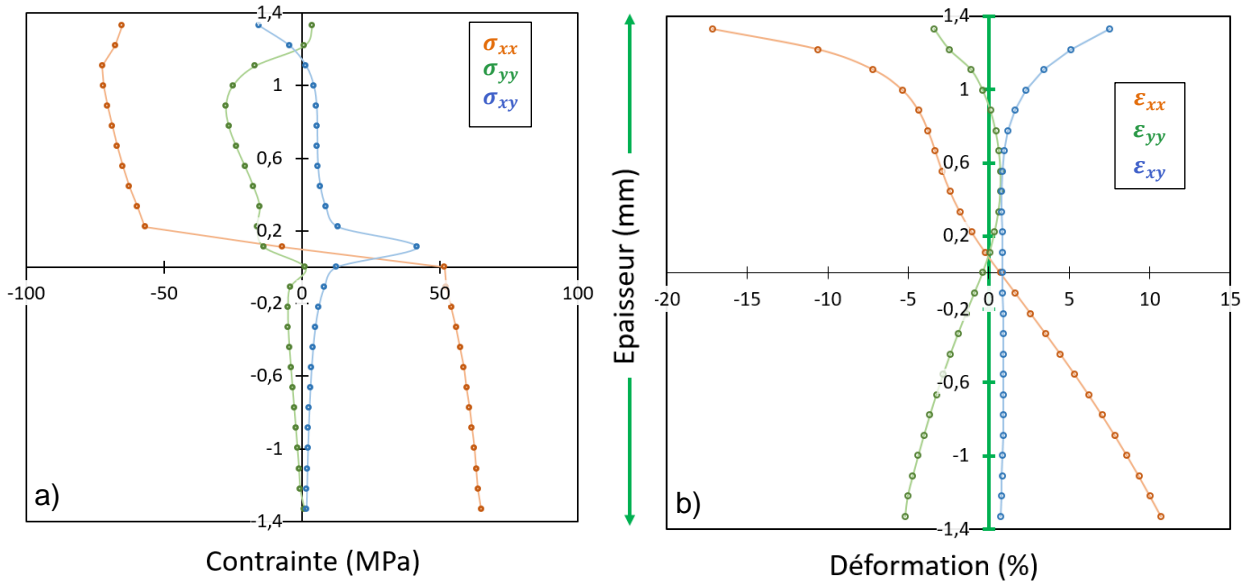


Figure IV-15. Evolution des composantes du tenseur de contrainte (a) et du tenseur de déformation (b) le long du segment vertical d'abscisse nulle. Cas de la Flexion 3-points

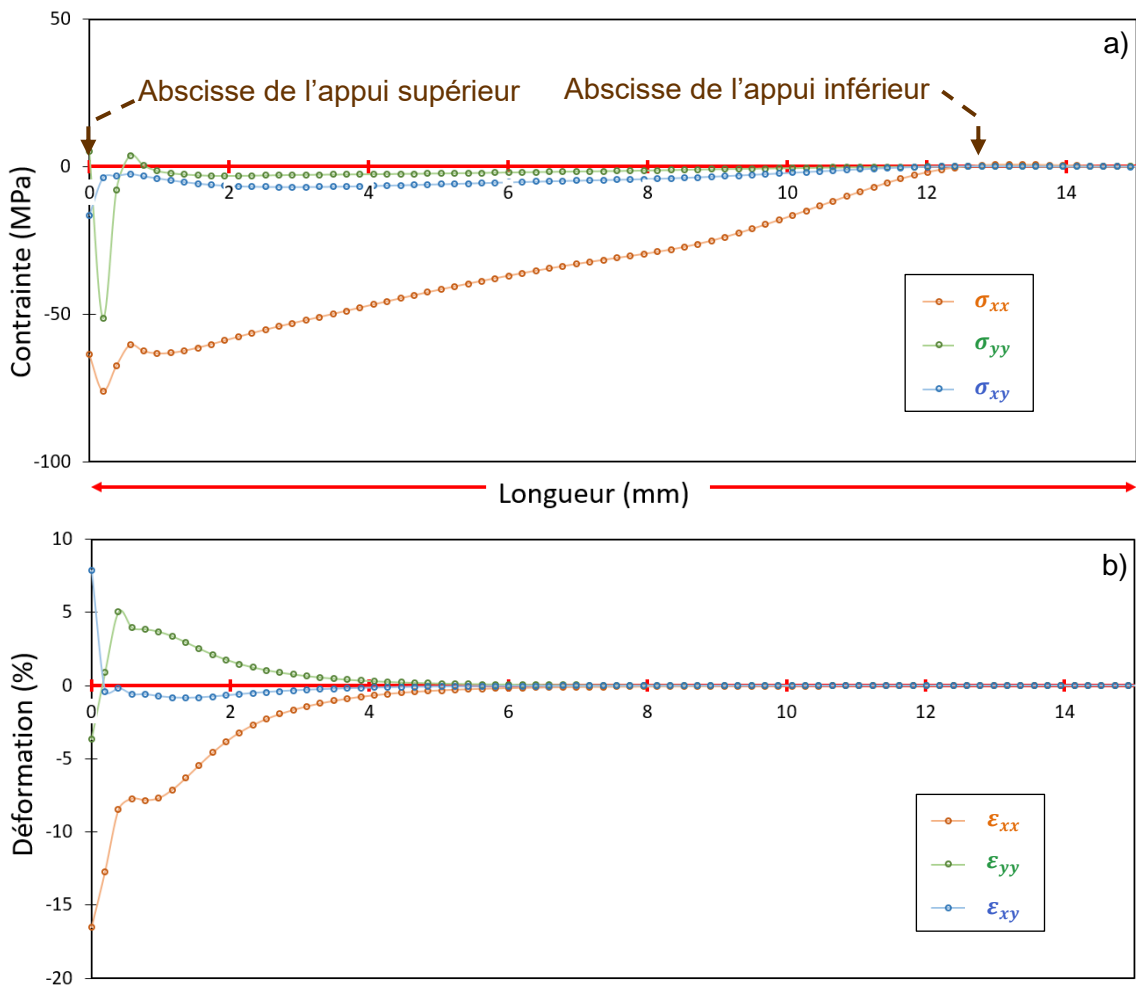


Figure IV-16. Evolution des composantes du tenseur de contraintes (a) et du tenseur de déformations (b) le long du segment rouge d'ordonnée +e/2.

La composante normale de la déformation ( $\varepsilon_{xx}$ ) semble évoluer de manière quasi-linéaire dans l'épaisseur de l'éprouvette, comme le suggère la relation 3.17. On observe néanmoins une singularité au niveau du point d'appui supérieur dont même un maillage plus fin n'en minimise l'intensité. Enfin dans le sens de la longueur de l'éprouvette, la déformation diminue rapidement.

Ces différentes constatations sont cohérentes avec l'approche analytique exposée au chapitre précédent. Elles semblent donc justifier les hypothèses qui sous-tendent les approches analytiques élastiques et viscoplastiques exposées au chapitre précédent (paragraphe III.3.2.1.2). Les dimensions de nos échantillons sont donc adaptées au problème. De plus, l'évolution quasi-linéaire de la déformation normale le long de l'épaisseur prouve que les sections droites restent planes au cours de l'essai et cela malgré la déformation normale maximale relativement élevée en fin d'essai (l'hypothèse de Navier-Bernoulli est vérifiée). Nous pouvons ainsi appliquer la théorie des poutres afin d'estimer la contrainte maximale dans l'éprouvette, ainsi que son évolution dans l'épaisseur.

Choisissons la charge en fin d'essai pour définir la contrainte maximale élastique :  $F_{stationnaire} \approx 80N$ . Ce qui donne d'après l'application de l'équation donnée dans le chapitre 3 (3.12) :  $\sigma_{max}^{élastique} \approx 100 MPa$ . La contrainte maximale viscoplastique est ainsi déduite à partir de la relation d'équivalence de Timoshenko (3.15). Pour une valeur de  $n$  égale à 10 (prise à partir de l'identification faite sur nos essais, voir chapitre 6) :  $\sigma_{max}^{viscoplastique} \approx 70 MPa$ . On peut donc tracer l'évolution de la contrainte dans l'épaisseur à l'aide de l'équation (3.18) (Figure IV-17).

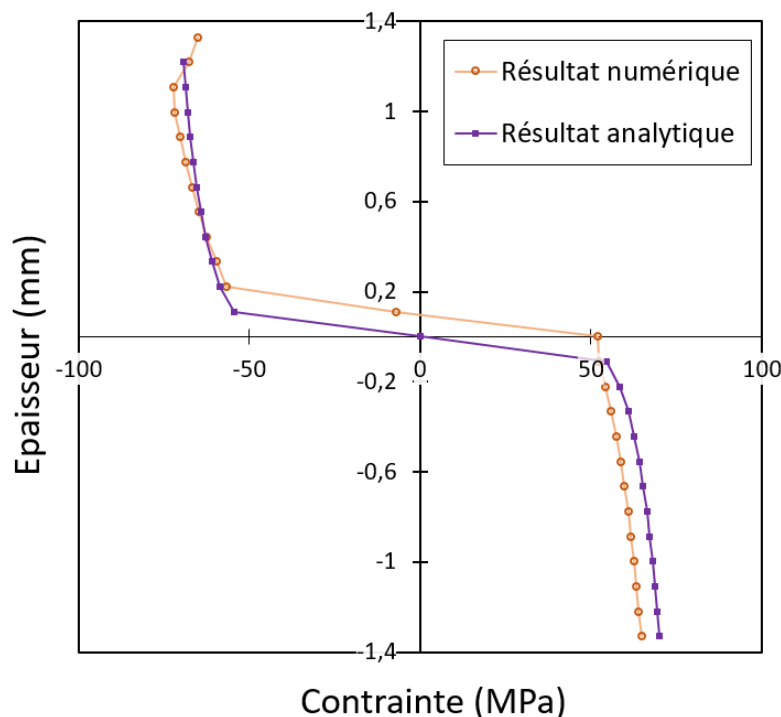


Figure IV-17. Evolution de la contrainte normale dans l'épaisseur en flexion 3-points. Points orange : résultat du calcul 2D ; points violets : résultat de la résolution semi-analytique.

Les évolutions sont très semblables. Le résultat analytique est bien entendu symétrique. A l'inverse, la simulation prévoit un décalage de la fibre neutre du côté de la zone en compression. Nous avons investigué brièvement l'origine de cette dissymétrie présente dans la simulation numérique, et il est possible que celle-ci soit causée par l'écrasement de l'éprouvette sur l'appui, modifiant ainsi la

distribution des contraintes et déformations dans l'épaisseur. En effet, la loi de comportement ne prévoit pas de dissymétrie de comportement entre la traction et la compression. Elle ne peut donc expliquer, en-soi, ce décalage observé par le calcul numérique. De plus, les études de la réponse du dioxyde d'uranium en traction sont quasiment inexistantes, pour la raison évidente qu'il est très difficile de conduire ce genre d'expérience. Aucune étude ne suggère donc une dissymétrie de comportement pour ce matériau. Pour conclure, l'analyse des essais sous l'hypothèse semi-analytique semble donc justifiée. Par ailleurs, sur ce cas, il semble que les hypothèses associées à l'analyse élastique soient entièrement justifiées.

#### IV.3.2.4. Comparaison calcul/mesure en flexion 4-points

Nous allons commenter dans un premier temps les résultats obtenus par les simulations 2D et 3D. Ensuite, en comparant les champs de contrainte et de déformation dans l'éprouvette calculés *via* les approches numérique et analytique, nous discuterons de la pertinence de l'analyse élastique, appliquée à ces essais.

##### IV.3.2.4.1. Résultat de simulation

La Figure IV-18 illustre le résultat de la simulation de l'essai de flexion 4-points avec le modèle 2D (points orange). Les paramètres de la loi de comportement sont indiqués dans le Tableau 4. La réponse du matériau est qualitativement différente de celle obtenu lors d'un essai de flexion 3-points malgré des conditions expérimentales voisines (température identique et vitesses de traverse proches). En particulier, on note que la charge est une fonction croissante du temps. La simulation représente bien cette évolution, avec une charge qui croît tout au long de l'essai sans atteindre une valeur d'équilibre.

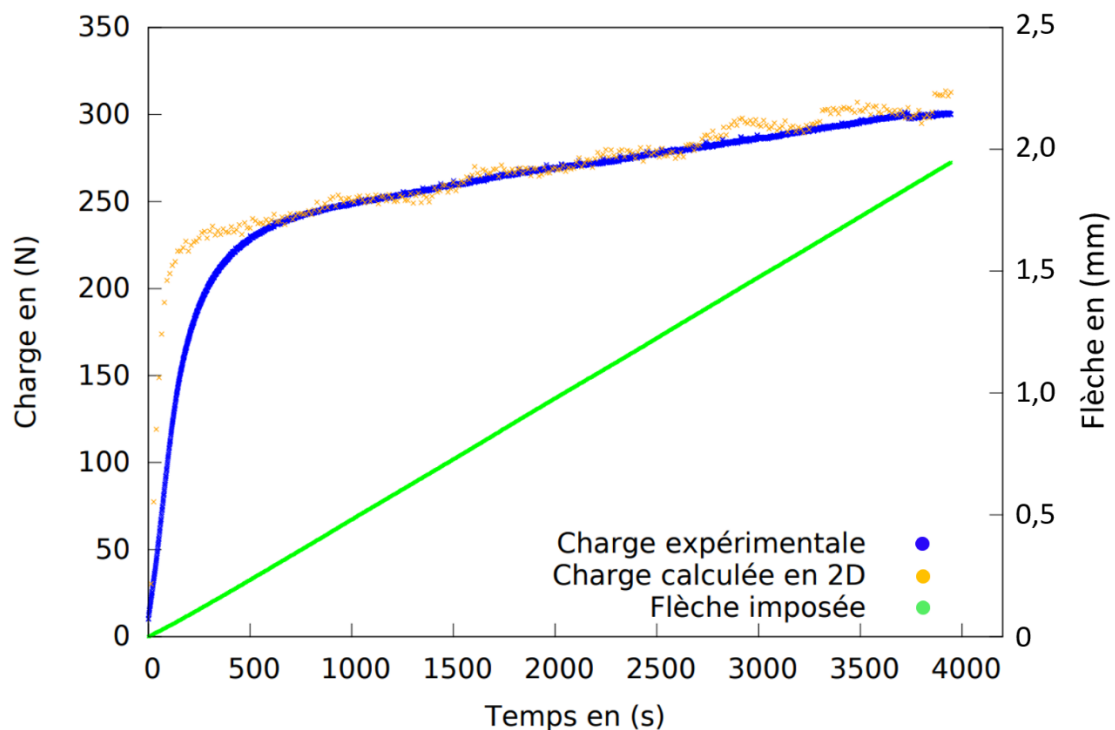


Figure IV-18. Comparaison des charges expérimentale et calculée avec un modèle 2D lors d'un essai de flexion 4-points. La flèche imposée au cours de l'essai est représentée en vert.

**Tableau 4. Jeu de paramètres retenus pour la simulation de l'essai de flexion 4-points.**

<b>C (MPa)</b>	<b>D</b>	<b>n</b>	<b>K (MPa/s)<sup>n</sup></b>
200	200	8	370

La croissance de la charge suggère que le matériau est soumis à un écrouissage. Or, comme on peut le voir sur la Figure IV-19, la contrainte normale maximale ( $\sigma_{xx}$ ) de compression, obtenue à partir du calcul, se stabilise rapidement. Ces deux observations peuvent paraître contradictoires. Contrairement à l'essai de compression, on ne peut expliquer la croissance de la charge par des considérations géométriques. En effet d'après la relation (3.12), la contrainte normale dépend d'une part de la longueur de l'échantillon et d'autre part de l'inverse de l'épaisseur et de la largeur. Or, pendant l'essai, la longueur de l'éprouvette aura tendance à augmenter (passage d'un segment rectiligne à un arc de cercle). L'épaisseur, quant à elle, aura tendance à diminuer, notamment si l'on considère l'écrasement sous les points d'appuis. Ces considérations sont plutôt compatibles avec une diminution de la charge car cela serait cohérent avec le fait que la contrainte au cours de l'essai est stable. De plus, nous avons observé que la rapide stabilisation de la contrainte normale se vérifiait dans l'intégralité de l'éprouvette. Le phénomène de redistribution des contraintes ne peut donc expliquer cette augmentation de la charge au cours de l'essai. Enfin, on remarque que l'augmentation de la charge numérique se fait principalement par à-coup (Figure IV-18). A partir d'un raffinement du maillage des appuis, nous avons pu voir que cela avait comme impact d'augmenter la fréquence de ces à-coup de la courbe de charge, tout en réduisant leur amplitude. On obtient ainsi une évolution de la charge numérique qui paraît plus continue.

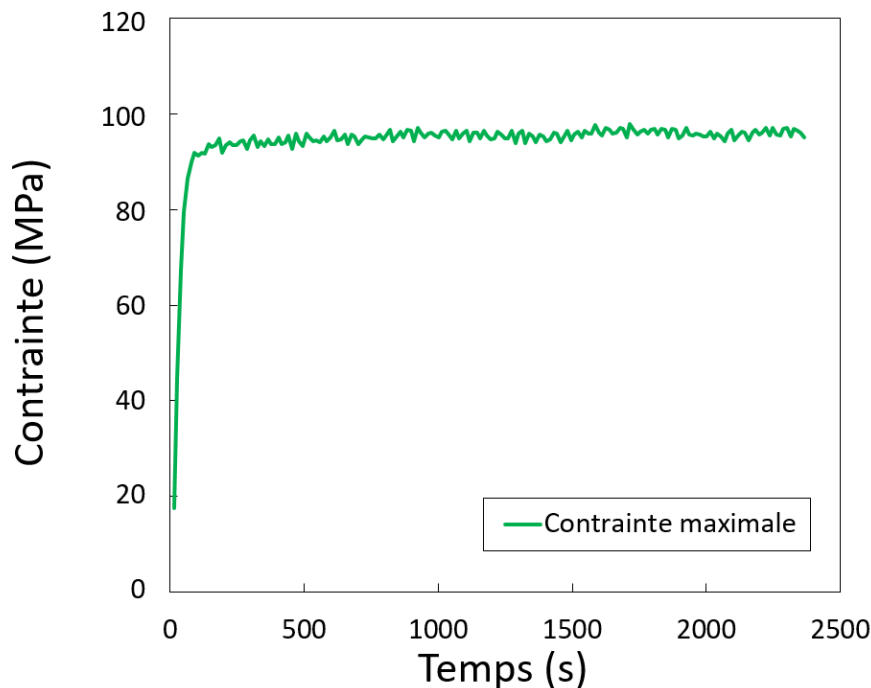


Figure IV-19. Evolution de la contrainte normale maximale ( $\sigma_{xx}$ ) de compression (prise sur l'extrémité supérieure de la ligne médiane)

Ces différentes observations laissent à penser que l'augmentation de la charge, que l'on retrouve à la fois expérimentalement et par la simulation numérique, tire son origine d'une augmentation de la surface de contact entre les appuis et l'éprouvette. C'est pour cela que le nombre d'occurrence des sauts augmentent pour un appui maillé plus finement et que leur amplitude diminue proportionnellement.

Malgré la simulation satisfaisante de l'essai dans son ensemble, la partie initiale de la courbe de chargement est mal reproduite de la même façon que pour l'essai de flexion 3-points. Nous avons tenté d'appliquer un raisonnement similaire au problème de flexion 3-points, mais celui-ci ne donne pas de résultats valides.

En outre, lors d'un essai de flexion 4-points, nous disposons d'une grandeur supplémentaire mesurée pendant l'essai qui est la flèche maximale. Ainsi, nous pouvons comparer les flèches maximales numérique et expérimentale. Cette comparaison est représentée sur la Figure IV-20. On constate que la simulation numérique surestime la valeur expérimentale de manière significative. Cette surestimation atteint environ 500  $\mu\text{m}$  en fin d'essai. En terme de vitesse, la vitesse de traverse imposée de 30  $\mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$  résulte en une vitesse de flèche maximale expérimentale de 39  $\mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$  et numérique de 48  $\mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$ . Contrairement à la charge, la flèche maximale calculée est bien moins sensible à l'effet des paramètres de la loi de comportement. Cet écart indique que la déformation calculée est surestimée par rapport au taux de déformation réel du matériau.

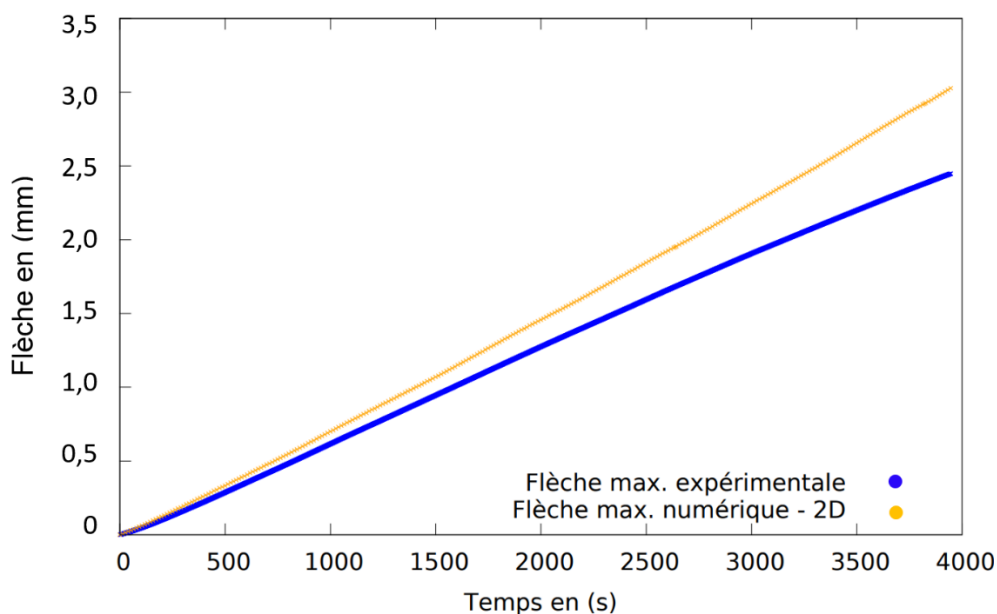


Figure IV-20. Comparaison entre la flèche maximale expérimentale (courbe bleue) et celle obtenue par la simulation numérique (courbe orange).

Une origine possible de cet écart peut venir de la flèche expérimentale. En effet la présence de fissures sur la partie en traction aurait pour effet de relaxer les contraintes. On observerait ainsi une flèche maximale moins importante que ce que peut prévoir la simulation. L'analyse des examens microstructuraux, en lien avec la simulation des essais, est faite dans le chapitre 6.

Notons qu'une simulation 3D a été mise en place dont les résultats sont très proches de la simulation 2D. Comme on peut le voir sur la Figure IV-21, les deux courbes sont très proches, les seules différences proviennent des sursauts qui surviennent à des instants différents. Nous nous sommes par ailleurs servis de cette simulation pour confirmer l'hypothèse des contraintes planes retenue en 2D.

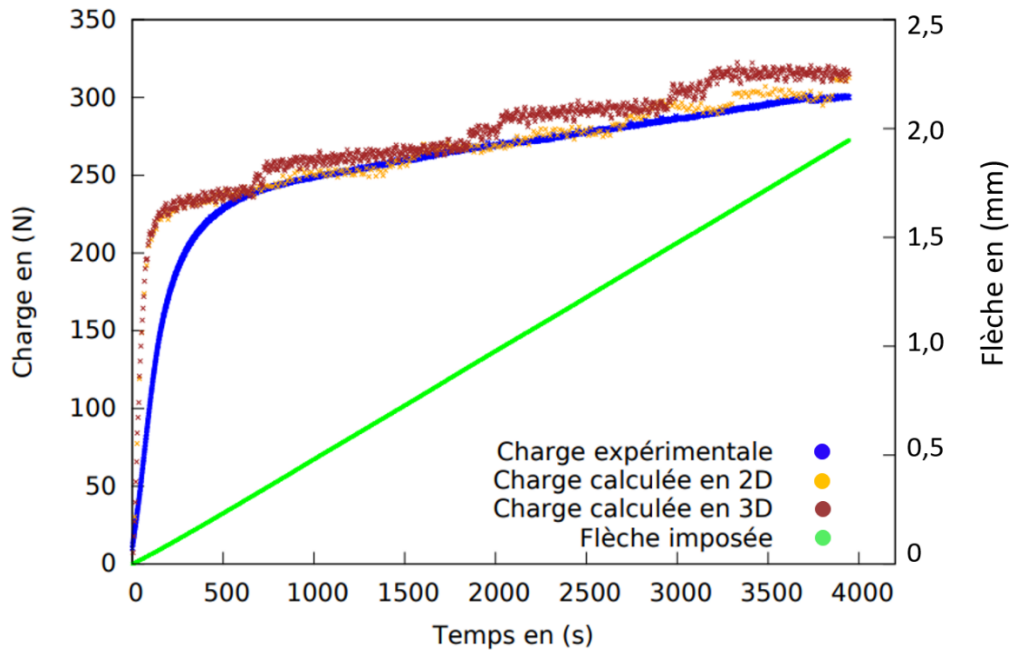


Figure IV-21. Comparaison des charges expérimentale et calculée avec un modèle 2D et un modèle 3D lors d'un essai de flexion 4-points. La flèche imposée au cours de l'essai est représentée en vert.

#### IV.3.2.4.2. Champs de contrainte et de déformation dans l'éprouvette

La Figure IV-22 montre la distribution de contrainte équivalente de Von Mises en fin d'essai. Le champ de contrainte est bien indépendant de la section droite considérée entre les deux points d'appui supérieurs ce qui contraste avec l'essai de flexion 3-points.

Les Figure IV-23 et Figure IV-24 montrent l'évolution des différentes composantes des tenseurs des contraintes et des déformations suivant le segment d'abscisse nulle (segment vert sur la Figure IV-22) d'une part, et suivant la longueur supérieure de l'éprouvette en compression (segment rouge sur la Figure IV-22). Globalement, la contrainte de cisaillement ainsi que la composante verticale du tenseur de contraintes sont faibles en comparaison à la composante normale suivant la direction  $x$ , excepté au niveau de la fibre neutre ou à proximité des points d'appui. Cela justifie une analyse du problème qui négligerait le cisaillement et ne considérerait que la composante horizontale du champ de contrainte. De plus, on retrouve une distribution des contraintes voisine de ce que fournit l'approche analytique : la composante normale de la contrainte suit une fonction puissance de la position dans l'épaisseur de l'éprouvette et évolue peu suivant la longueur de l'éprouvette entre les deux appuis supérieurs. L'état de contrainte est donc bien moins localisé qu'en flexion 3-points.



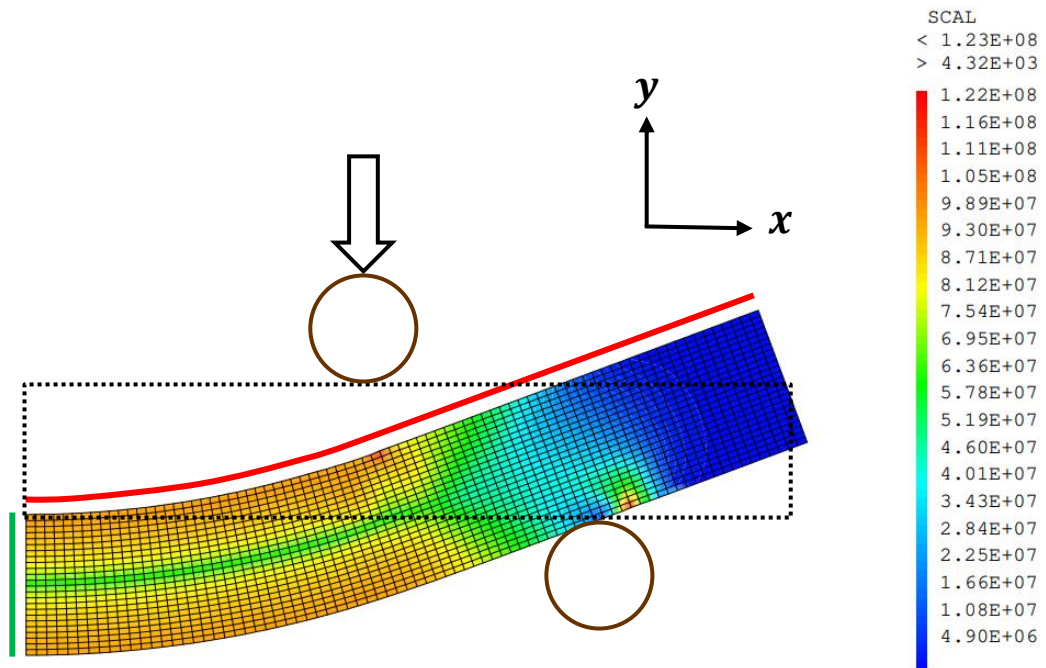


Figure IV-22. Contrainte de Von Mises dans l'éprouvette dans le cas d'un essai de flexion 4-points. Segment vert : plan central / segment rouge : ligne supérieure.

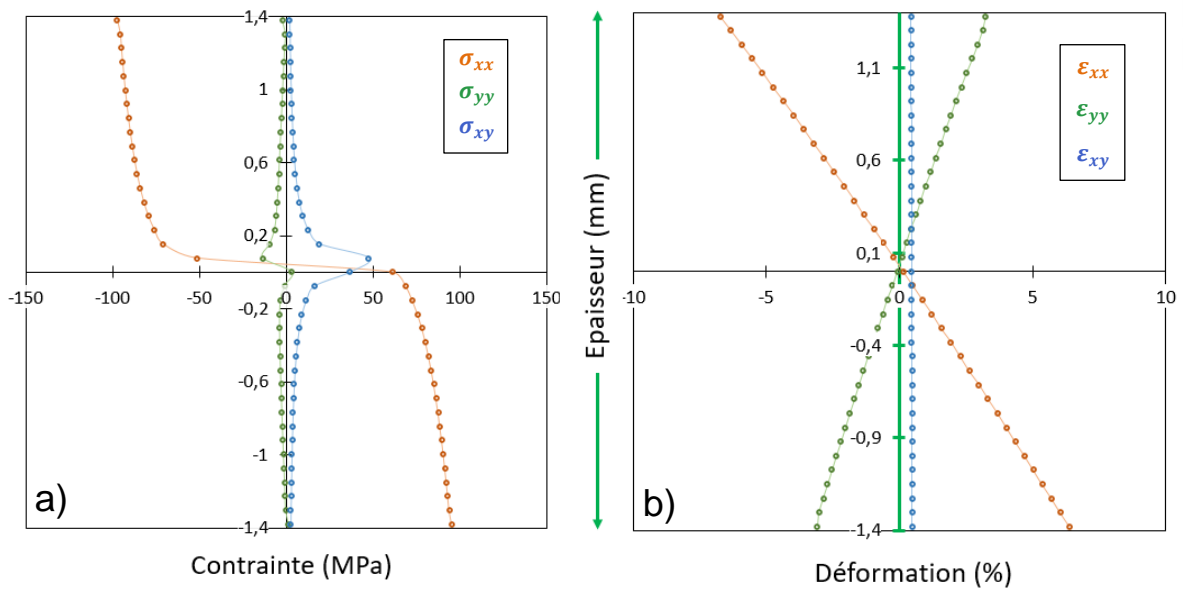


Figure IV-23. Evolution des composantes du tenseur de contraintes (a) et du tenseur de déformations (b) le long du segment vertical d'abscisse nulle

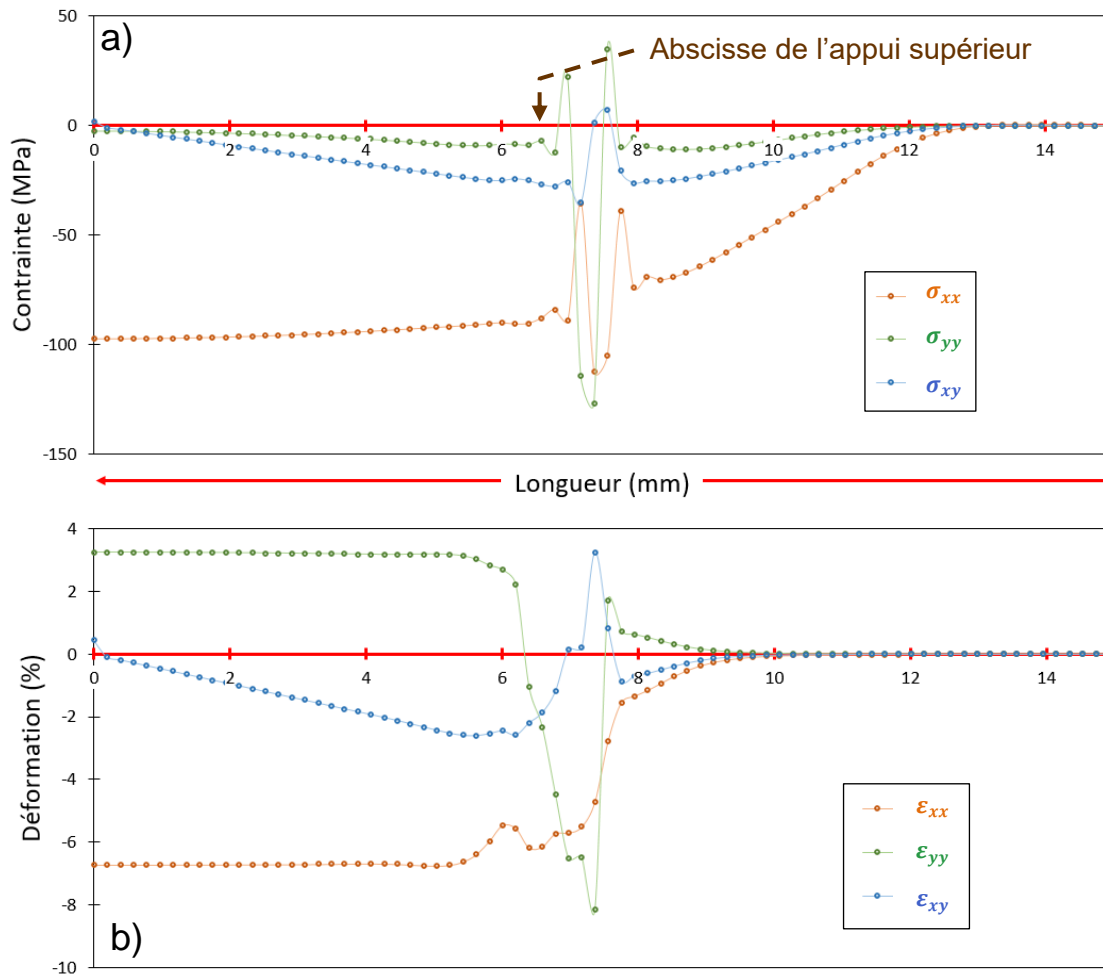


Figure IV-24. Evolution des composantes du tenseur de contraintes (a) et du tenseur de déformations (b) le long du segment rouge d'ordonnée  $+e/2$ .

Contrairement à l'essai de flexion 3-points, où la charge mesurée pendant l'essai se stabilise, en flexion 4-points il est plus difficile de calculer une contrainte maximale élastique, étant donné que celle-ci dépend directement de la charge que l'on choisit et que cette dernière croît linéairement. Nous avons donc tenté d'identifier l'établissement d'un régime permanent à partir de la Figure IV-19. On note qu'à partir de 500 secondes, la contrainte normale maximale semble avoir atteint son régime d'écoulement stationnaire. En admettant que cela est le signe que la fibre externe de l'échantillon est en fluage secondaire, on choisit de prendre la valeur de la charge à ce temps-là ( $t = 500s$ ) pour calculer la contrainte maximale élastique, puis en déduire la contrainte maximale viscoplastique. L'application des relations (3.14) et (3.15) nous donne :  $\sigma_{max}^{viscoplastique} \approx 94 MPa$

Ainsi, on peut tracer l'évolution de la contrainte maximale selon l'épaisseur de l'échantillon (à partir de la relation 3.18) et la comparer aux résultats du calcul numérique. La Figure IV-25 met en évidence cette comparaison.

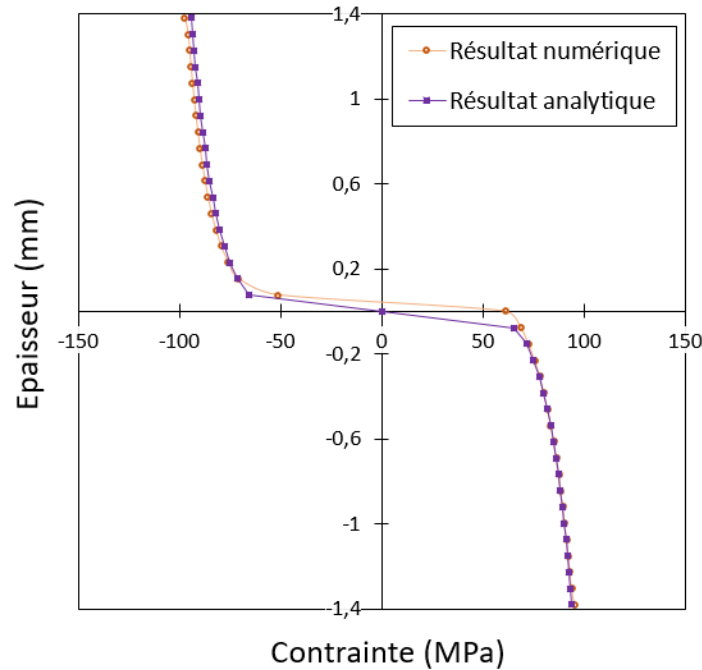


Figure IV-25. Evolution de la contrainte normale dans l'épaisseur en flexion 4-points. Courbe Orange : résultat du calcul 2D ; courbe violette : résultat de la résolution analytique.

Si la simulation numérique prévoit un déplacement léger de la fibre neutre vers la zone en compression, les résultats des résolutions numérique et analytique restent très proches.

La dissymétrie du résultat numérique est ici moins importante que dans la configuration 3-points de par l'éloignement des appuis par rapport au point d'observation.

#### IV.3.2.5. Conclusion sur la simulation de la flexion 3 et 4-points

Les résultats de la simulation numérique des essais de flexion 3- et 4-points sont moins satisfaisants qu'en compression. La simulation mise en place relative aux essais de flexion 3 points ne permet de reproduire que partiellement l'évolution de la charge expérimentale. La courbe de charge expérimentale présente des caractéristiques qui pourraient traduire un phénomène de durcissement et d'adoucissement dont l'origine n'est pas encore identifiée mais pourrait être associé à un endommagement de l'éprouvette en traction.

Les essais de flexion 4-points sont reproduits de manière satisfaisante par la simulation numérique en 2D et 3D, même si la flèche simulée surestime la valeur expérimentale correspondante. Plusieurs hypothèses ont été émises quant à cet écart, cela peut venir d'un endommagement de l'éprouvette sur la partie en traction, ou bien d'une dissymétrie du comportement traction/compression.

L'étude numérique a permis de quantifier les états de sollicitation dans les éprouvettes qui sont caractérisés, comme attendu, par une localisation de la sollicitation beaucoup plus importante lors d'un essai de flexion 3-points que lors d'un essai de flexion 4-points. Ceci laisse présager du fait que la microstructure d'une éprouvette sera plus facilement caractérisable dans ce dernier cas.

## IV.4. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté le cadre théorique sur lequel se basent nos simulations numériques. Le choix des grandes transformations se justifie assez naturellement à la vue de nos essais mécaniques qui, soit atteignent des niveaux de déformations élevés (essais de compression), soit mettent en jeu des rotations importantes (essais de flexion). L'utilisation des déformations logarithmiques, développées par Hencky et dont l'implémentation est basée sur les travaux de Miehe, nous permet de travailler avec les grandeurs classiques définies en petites déformations et également de conserver toute loi de comportement établie dans ce cadre.

Avec la volonté d'avoir la simulation numérique comme outil supplémentaire dans l'analyse de nos essais, nous avons utilisé différents modèles tous à l'échelle des milieux continus : i) tout d'abord un modèle unidimensionnel, à l'échelle d'un point matériel, pour les essais de compression uniaxiaux ; ii) puis des modèles éléments-finis, 2D et 3D, pour représenter les effets multidimensionnels des essais de compression et de flexion.

Nous avons pu vérifier la bonne simulation des essais de compression à l'aide du seul modèle 1D, dans le cas d'essais réalisés sur des pastilles élancées. En effet, il a été mis en évidence que ce paramètre, l'élanement, influence substantiellement la réponse du matériau. Nous avons vu que dans le cas d'échantillon court, il est nécessaire d'avoir recourt aux calculs numériques pour pouvoir interpréter correctement le comportement viscoplastique et aussi pour établir des comparaisons avec d'autres essais. A ce sujet, il est probable que ce paramètre, qui à notre connaissance n'a jamais été pris en compte dans les études de fluage en compression, constitue une source de dispersion importante des résultats expérimentaux.

La simulation des essais de flexion est sous certains aspects moins satisfaisante. Dans le cas de la flexion 3-points, le modèle de Frederick-Armstrong utilisé ne permet pas de reproduire fidèlement le passage de la charge par un maximum. Nous aborderons ce point au chapitre 6. En revanche, la simulation des essais de flexion 4-points avec le modèle d'écrouissage cinématique retenu est plus satisfaisante dans le sens où elle reproduit fidèlement l'évolution de la courbe de charge.

Pour conclure, nous avons développé des outils numériques qui vont d'une part, contribuer à l'analyse des résultats d'essais en nous permettant de décorrélérer la mise en place du dispositif et les effets de structure de la réponse intrinsèque du matériau. D'autre part, la modélisation servira à étayer les examens microstructuraux, en reliant les niveaux de contraintes et de déformations aux observations conduites par microscopie électronique.

# Chapitre 5 : Etude en compression du comportement viscoplastique de l'UO<sub>2+x</sub> à haute température

---

## V.1. Introduction

Nous présentons dans ce chapitre l'ensemble des résultats expérimentaux obtenus dans le cadre d'essais de compression à différentes températures, vitesses de déformation et pressions partielles d'oxygène. Deux lots d'échantillons ont été étudiés. Ils se distinguent par leur mode d'élaboration (frittage naturel à haute température ou frittage SPS) et les microstructures qui en résultent. La section 2 de ce chapitre est dédiée à la description du mode d'élaboration et à la caractérisation des microstructures initiales de ces deux lots d'échantillons. La section 3 présente les essais, les résultats d'essais, et une première interprétation macroscopique de ceux-ci. La section 4 concerne les examens microstructuraux réalisés post-mortem. Enfin, dans la section 5, nous présentons les résultats de la simulation numérique de ces essais.

## V.2. Echantillons et microstructures

Dans le cadre de cette étude, nous avons réalisé des essais de compression sur différents types de pastilles de dioxyde d'uranium. En effet, un des objectifs de l'étude est de caractériser l'influence de l'atmosphère sur la réponse en fluage du dioxyde d'uranium et cela pour différentes microstructures (*i.e.* taille de grains). Cette section est donc consacrée à la description microstructurale des deux lots étudiés.

### V.2.1. Lot de pastilles élaboré par frittage naturel (lot A)

Ce lot de pastilles présente des caractéristiques qui constituent une référence à plusieurs titres. Tout d'abord, elles ont été élaborées à partir d'une procédure que l'on peut qualifier de classique, et ont donc une microstructure comparable aux combustibles qui font l'objet d'irradiation en réacteur. De plus, ce même lot a fait l'objet d'une étude antérieure (Garcia et al., 2021), sur laquelle se base nos travaux. Ainsi une comparaison directe des résultats sera possible.

#### V.2.1.1. Elaboration des pastilles

La poudre initiale est obtenue par voie sèche et se compose d'agglomérats de dioxyde d'uranium de quelques microns. Celle-ci subit une étape de broyage afin d'homogénéiser sa granulométrie. A la suite de cela, on y incorpore 0,3 % en masse de stéarate de zinc qui agit comme lubrifiant. Cet ajout est nécessaire pour l'étape de pressage. Un produit homogène est obtenu à l'issue d'un passage du mélange pendant 20 minutes dans un agitateur tridimensionnel.

Les comprimés sont mis en forme à l'aide d'une presse uniaxiale dans des matrices cylindriques. La pression de maintien est de 400 MPa. Pour finir, les pastilles « crues » sont frittées à 1750°C pendant 4h, avec une rampe de montée de 4°C/min et une redescente à 8°C/min, sous une atmosphère réductrice composée d'un mélange d'argon et de 5% d'hydrogène. Le lubrifiant est entièrement éliminé lors de cette étape, de sorte qu'après le cycle thermique, il ne reste que des pastilles denses de dioxyde d'uranium. Ce procédé de fabrication par métallurgie des poudres est considéré comme classique et permet d'obtenir des matériaux denses, homogènes, et stœchiométriques.

Les cylindres ont une hauteur de  $16,3 \pm 0,13$  mm et présentent un diamètre rectifié de  $8,19 \pm 0,005$  mm. L'élanement du lot ( $E \sim 2$ ) est plus élevé que celui des pastilles industrielles ( $E \sim 1,6$ ) à dessein. En effet, comme nous l'avons vu au chapitre précédent (IV.3.1.3), ce paramètre géométrique influence fortement la réponse du matériau, surtout lorsque celui-ci est réduit ( $E < 1$ ). Afin d'être le plus proche possible des conditions d'un essai uniaxial, nous avons donc choisi des pastilles plus élancées.

### V.2.1.2. Microstructure du lot

La microscopie optique de surfaces polies révèle une microstructure homogène : on observe un matériau dense, dont la porosité est distribuée de manière homogène. La densité relative du lot, mesurée par pesée hydrostatique, est de  $98,2 \pm 0,1\%$ . La porosité fermée de 1,8 % et la porosité ouverte inexistante aux précisions de mesure près. La taille de grains moyenne a été estimée à  $11 \mu\text{m}$  (en diamètre circulaire équivalent) à l'aide de cartographies EBSD réalisées dans le cadre de travaux antérieurs (Ben Saada, 2017). Cette estimation est une moyenne faite sur plus de 1300 grains. La distribution de taille de grains en fonction des différentes classes de tailles est présentée sur la Figure V-1. On constate ainsi que la distribution est relativement large, avec une majorité des grains présentant des tailles comprises entre 5 et  $15 \mu\text{m}$ .

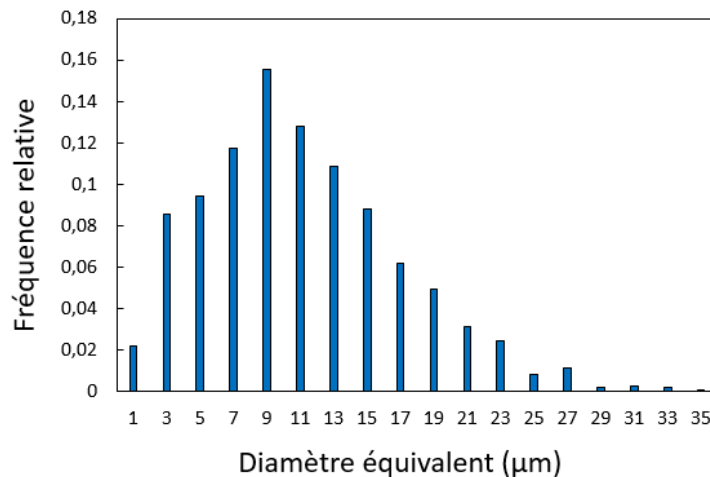


Figure V-1. Histogramme de distribution de taille de grains du lot A - (données thèse Ben Saada, 2017)

### V.2.2. Lot de pastilles courtes élaboré par frittage SPS (lot B)

Dans ces travaux, nous avons étudié le comportement d'un second lot, le lot B, présentant une microstructure particulière. Ces échantillons ont été élaborés par un frittage de type SPS (Spark Plasma Sintering). Cette technique de frittage consiste à soumettre une poudre (généralement nanométrique) à une forte pression uniaxiale (plusieurs dizaines de MPa) tout en la chauffant rapidement grâce au passage d'un courant électrique de fort ampérage dans l'outillage en graphite (voire dans la poudre si celle-ci est conductrice). Ce procédé conduit à une réduction de la durée des cycles thermiques ainsi que des températures de palier par rapport au frittage naturel. Ainsi, elle permet d'obtenir des céramiques denses aux tailles de grain fines, souvent submicroniques, car la croissance granulaire est limitée.

Ces échantillons ont été fabriqués au JRC Karlsruhe (avec l'aide de M. Cologna). L'optimisation de leur fabrication a fait l'objet d'une étude détaillée, dans le but d'obtenir des pastilles cylindriques

suffisamment élancées (spécifiquement pour notre thématique), tout en ayant une microstructure finale relativement homogène.

### V.2.2.1. Elaboration des pastilles

La poudre initiale provient d'un procédé dit sol-gel (solidification-gélification). Elle est constituée d'agglomérats de l'ordre de 50 nm en moyenne (Cologna et al., 2016) et subit un traitement thermique de 3h à 700°C sous une atmosphère réductrice d'argon-hydrogène dans la journée précédant le frittage afin de garantir une composition stœchiométrique du matériau. Nous avons caractérisé la microstructure de pastilles issues d'une campagne de fabrication antérieure n'ayant pas fait l'objet d'une telle précaution. Celle-ci présentait plusieurs phases d'oxydes supérieurs et n'ont pas pu être utilisées. La poudre à fritter est ensuite placée dans une cellule hermétique sous atmosphère inerte contenant également le dispositif complet de frittage SPS (fourni par FCT System, Allemagne). Une étape de pré-compaction à froid est réalisée avant la montée en température directement dans l'appareil. La pression appliquée est de l'ordre de 70 MPa. Les pastilles crues, logées dans une matrice en graphite, subissent un cycle thermique constitué d'une montée en température à 50°C.min<sup>-1</sup>, d'un palier de 10 minutes à 850°C (nécessaire pour obtenir des échantillons denses et homogènes), puis d'une phase de refroidissement à 25°C.min<sup>-1</sup>. Le courant appliqué est régulé de façon à ce que la température mesurée par pyrométrie en un point de l'outillage en graphite respecte le cycle thermique choisi. Le courant imposé est un courant pulsé de fort ampérage (compris entre 0 et 0,19kA) et de tension faible (5,5V), avec une fréquence de l'ordre de la dizaine de millisecondes.

Un tel système, à l'inverse d'un four de frittage classique, ne permet de fabriquer qu'un échantillon à la fois. Un travail minutieux est ainsi nécessaire pour réaliser plusieurs pastilles dans des conditions identiques permettant de garantir une homogénéité à l'intérieur d'un lot. Seules 8 pastilles composent ainsi le lot B, sur une fabrication d'une quinzaine d'échantillons au total. Celles-ci ont une hauteur de 3,5 ± 0,15 mm pour un diamètre de 6 ± 0,1mm. La Figure V-2 présente l'aspect général d'une pastille élaborée suivant ce procédé.

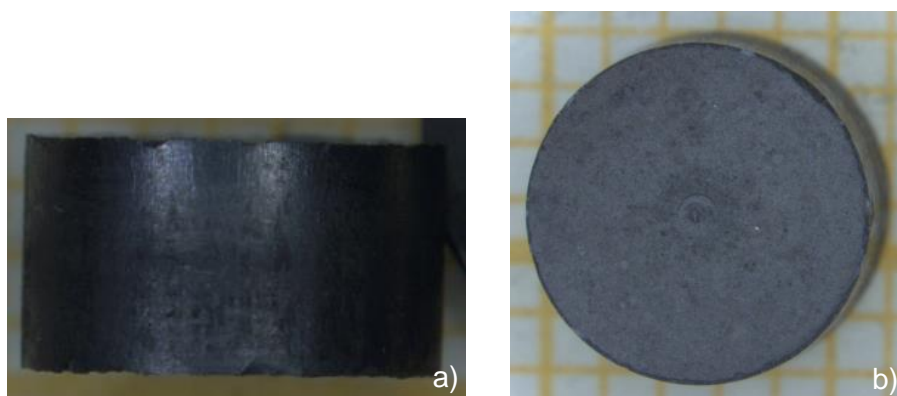


Figure V-2. Pastille de dioxyde d'uranium du lot B. a) vue latérale ; b) vue de dessus.

### V.2.2.2. Microstructure du lot

La densité relative du lot, mesurée par pesée hydrostatique, conduit à des valeurs allant de 98 à 99%. La porosité fermée est comprise entre 1,1 et 2,0 %, et la porosité ouverte est quasi-négligeable de l'ordre de 0,1 %.

#### V.2.2.2.1. Examens en microscopie optique

Une pastille a été sélectionnée afin que sa microstructure puisse être caractérisée. On peut voir sur la Figure V-3 des images réalisées en microscopie optique sur une tranche axiale, c'est-à-dire comprenant l'axe de révolution de la pastille. La microstructure est homogène sur l'ensemble de la surface, et ne présente pas d'endommagement apparent (fissures ou cavités), en dehors de l'arrachement de grains résultant du polissage. Une attaque chimique de la surface à l'acide sulfurique a permis de révéler les joints de grains. Par application de la méthode des interceptes, la taille de grains moyenne du lot B est estimée à  $2,8 \mu\text{m}$  (en diamètre circulaire équivalent, DCE) dans les sens horizontal et vertical, suggérant ainsi la présence de grains équiaxes.

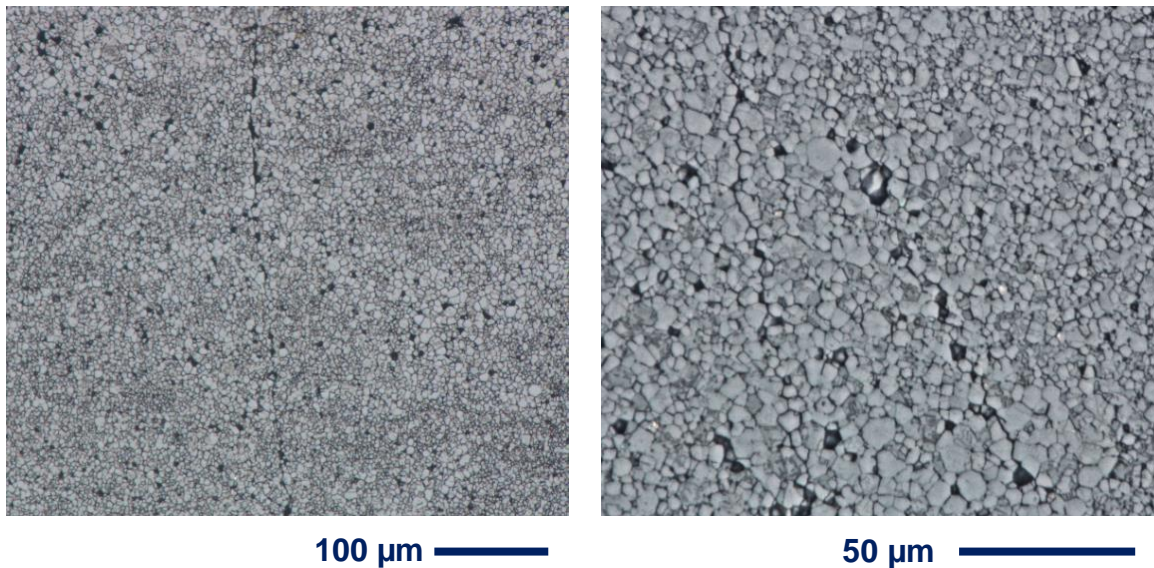


Figure V-3. Images optiques de la microstructure du lot B après attaque chimique.

#### V.2.2.2.2. Examens en MEB/EBSD

La caractérisation microstructurale a été complétée grâce à des observations en microscopie électronique à balayage (MEB), accompagnées de cartographies par EBSD (Electron BackScattered Diffraction). Ces examens permettent de décrire plus finement la microstructure initiale du lot et les échelles auxquelles les hétérogénéités apparaissent.

Les cartographies par EBSD consistent en une mesure locale de l'orientation cristalline, permettant ainsi de distinguer individuellement chaque grain et également de caractériser les désorientations entre eux. On peut voir sur la Figure V-4, le résultat d'une telle caractérisation réalisée sur un échantillon du lot B. Il s'agit d'une carte en indice de qualité, c'est-à-dire dont les niveaux de gris locaux reflètent la qualité du signal de diffraction (une zone claire diffractant très bien, contrairement à une zone sombre). Cette carte comporte également des lignes noires qui matérialisent les joints de grains de désorientation supérieure à  $5^\circ$ . Les désorientations plus faibles, inférieures à  $5^\circ$  et colorisées selon le code de couleur indiqué sur la Figure V-4, sont considérées comme correspondant à des sous-joints de grains (Ben Saada, 2017).

D'après cette figure, la microstructure initiale est quasiment exempte de sous-joints de grains. Par ailleurs, ces cartes nous permettent de caractériser en taille, avec un échantillonnage conséquent, la population de grains. D'une manière similaire à ce qui a été fait sur le lot A (Ben Saada, 2017), nous obtenons une taille de grains moyenne de  $2,7 \mu\text{m}$  sur plus de 15000 grains. Cette valeur est très proche



de celle déterminée par la méthode des interceptes. La Figure V-5 présente un histogramme en nombre en fonction de la taille de grains. La distribution en tailles est relativement large, avec une majorité de grains présentant des tailles comprises entre 1 et 4  $\mu\text{m}$ . **Le mode d'élaboration par SPS conduit donc effectivement à des tailles de grains substantiellement inférieures en moyenne à celles du lot A.** La Figure V-6 illustre ce point et présente la fraction volumique cumulée des grains en fonction de leur taille en DCE pour les lots A et B. Nous avons aussi pu confirmer que les grains du lot B présentaient un caractère équiaxe.

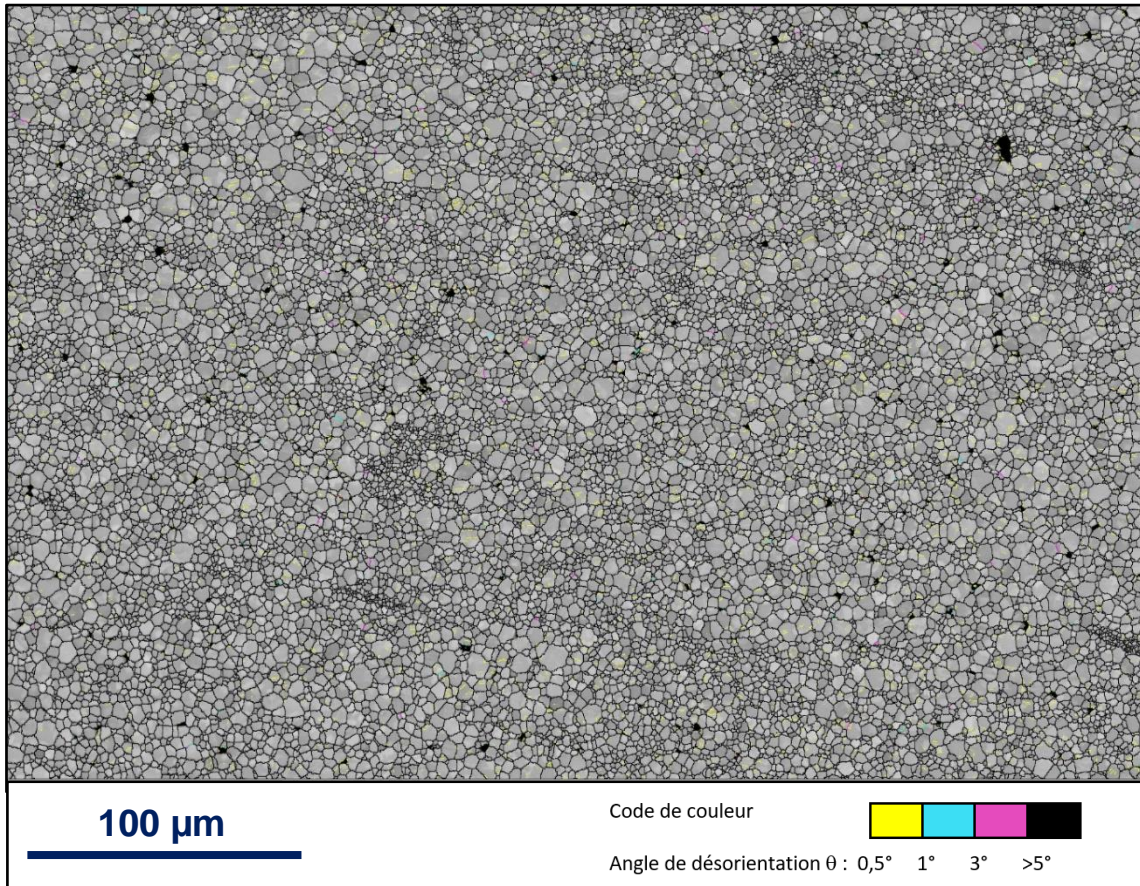


Figure V-4. Carte EBSD d'indice de qualité de diffraction (en niveau de gris) sur laquelle les joints de grains de désorientation supérieure à 5° sont matérialisés par des lignes noires.

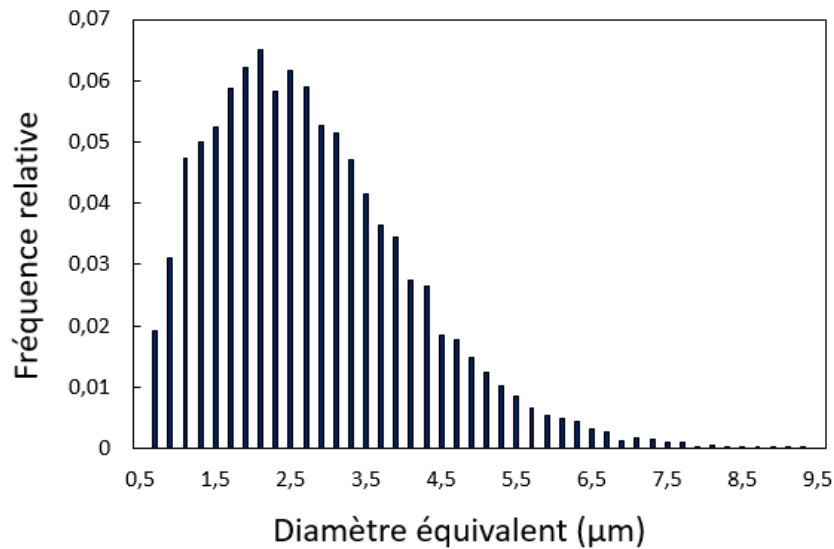


Figure V-5. Histogramme de distribution en nombre en fonction de la taille de grains (DCE) pour un échantillon du lot B.

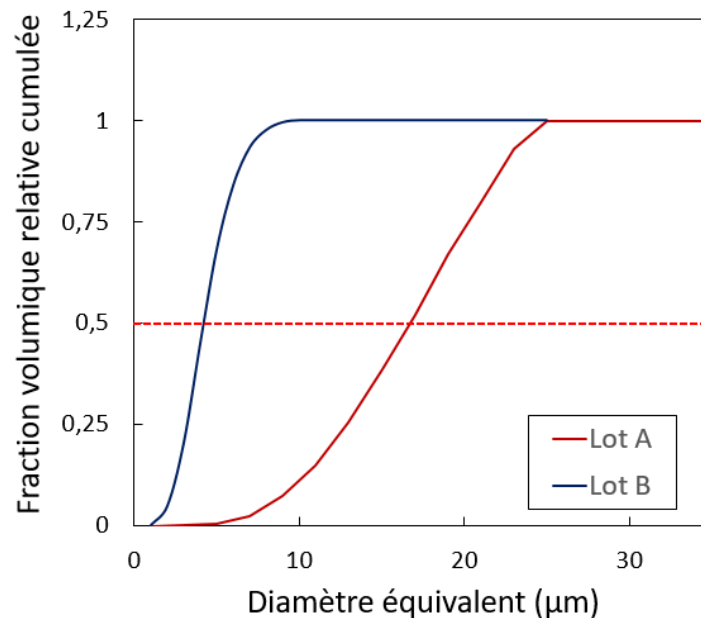


Figure V-6. Fraction volumique cumulée des grains en fonction de leur taille en DCE pour les lots A et B. Médiane :  $d_{50-A} = 17\mu\text{m}$  ;  $d_{50-B} = 5\mu\text{m}$ .

La Figure V-4 révèle, à l'échelle de la carte EBSD, une microstructure relativement homogène dans laquelle des poches de grains de tailles submicroniques sont « noyées » dans une matrice constituée de grains de plus grandes tailles, supérieures au micron et pouvant aller jusqu'à 10 microns. La Figure V-7 est une image à fort grandissement et en électrons rétrodiffusés (en mode dit « BSE » pour BackScattered Electrons), qui illustre une hétérogénéité typique à une échelle plus petite que celle de la Figure V-4. On note que les régions à faibles et fortes tailles de grains sont délimitées dans ce cas par un réseau de pores intergranulaires. Signalons cependant que nous avons aussi observé une certaine hétérogénéité dans la taille de grains à des échelles plus grandes que celles de la Figure V-7. La Figure V-8 en fournit un exemple. On y distingue les bords supérieurs et latéraux de la pastille SPS. Deux zones apparaissent nettement, l'une présentant des tailles de grains très faibles, et l'autre, sur la droite de l'image, présentant des tailles de grains plus importantes, proches de celles obtenues par

frittage naturel. Dans cette zone à « gros grains », une tendance à l'augmentation de la taille de grain à mesure que l'on s'approche du bord supérieur de la pastille est observée. **Ces hétérogénéités témoignent de mécanismes de frittage complexes, tels que la présence de gradients thermiques entraînant des cinétiques de densification et de croissance granulaire légèrement hétérogènes, qui conduisent à des microstructures potentiellement différentes d'une pastille à une autre.**

Pour finir, des contrastes spécifiques, révélant des formes aciculaires, ont été observées à l'intérieur de certains grains (voir Figure V-9). Ces contrastes, caractéristiques de densités atomiques et d'orientations cristallines variables, peuvent être interprétés comme signalant la présence de phases d'oxyde supérieurs de type  $\text{U}_4\text{O}_9$  (Ma, 2017). Cette oxydation pourrait provenir, soit de la période d'attente entre le moment où la poudre stœchiométrique est élaborée (bien que très courte), soit du frittage SPS, où la pression d'oxygène est imposée par l'atmosphère, la température et l'outillage en graphite. Les contrastes observés en microscopie ne sont pas révélés sur les cartes EBSD car les deux phases sont structurellement très voisines et sans doute orientées de manière identique.

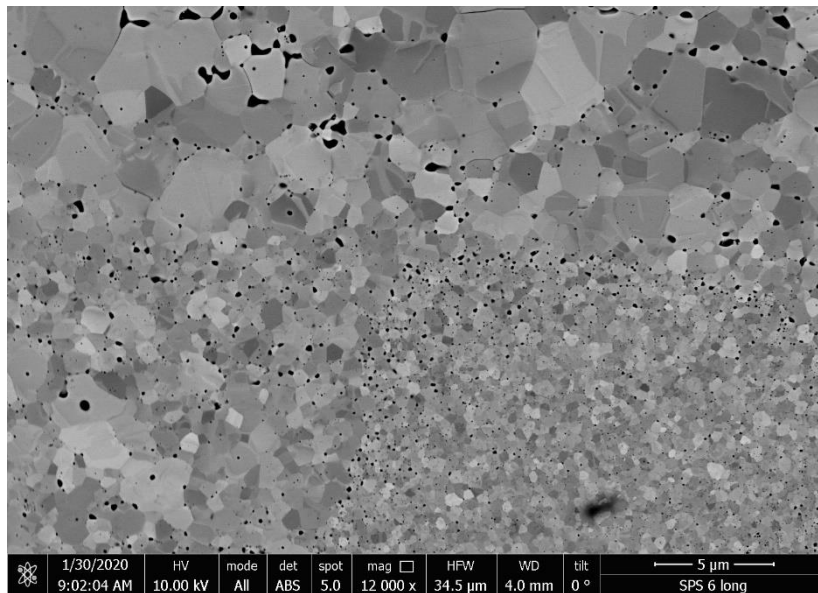


Figure V-7. Micrographie électronique (MEB, mode : BSE) acquise sur l'échantillon de référence du lot B. Mise en évidence de régions avec une distribution hétérogène de taille de grains.

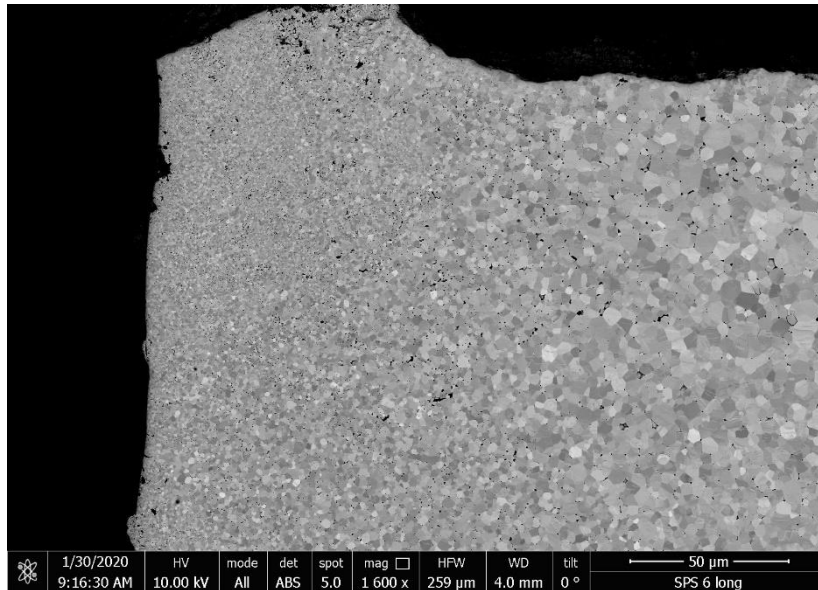


Figure V-8. . Micrographie électronique (MEB, mode : BSE) acquise sur l'échantillon de référence du lot B. Mise en évidence d'une distribution hétérogène de taille de grains sur les bords supérieurs et latéraux. La zone à grains plus grossiers située sur la droite du cliché s'étend verticalement sur environ 150 µm et horizontalement sur environ 100 µm.

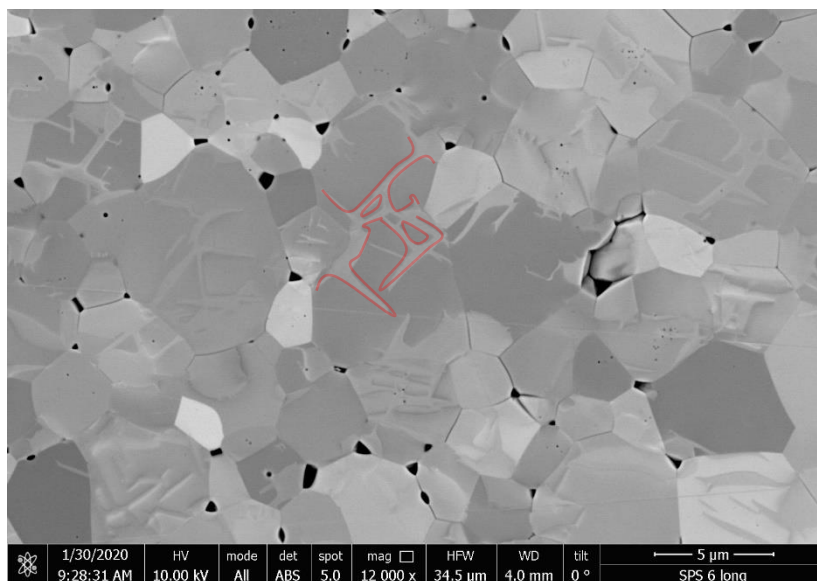


Figure V-9. Micrographie électronique (MEB, mode : BSE) acquise sur l'échantillon de référence du lot B, révélant la présence d'une phase aciculaire (représentée en rouge) au sein des grains d'UO<sub>2</sub>.

### V.2.3. Synthèse

Deux lots de pastilles ont été fabriqués et caractérisés en vue de faire l'objet ensuite d'essais de compression. Le premier lot (lot A) représente la microstructure dite de référence. Les pastilles de ce lot sont issues d'une voie de fabrication classique permettant l'élaboration de matériaux denses et homogènes. Le second lot (lot B) provient d'une fabrication par procédé SPS et les pastilles qui en sont issues ont une microstructure particulière caractérisée par une taille de grains plus faible (marquée toutefois par de fortes hétérogénéités). La taille de grain moyenne (DCE) du lot A est de 11 µm, et celle

du lot B est de 2,8  $\mu\text{m}$ . Sur la base de la fraction volumique, on note une réduction d'environ un facteur 3.

D'un point de vue macroscopique, les pastilles présentent des élancements très différents. Les pastilles du premier lot sont longues avec un facteur d'élancement proche de 2. Nous avons vu dans le chapitre précédent que cela nous permettait d'interpréter les essais de compression sous l'hypothèse uniaxiale. A l'inverse, les pastilles du lot B sont beaucoup plus courtes : leur élancement est de l'ordre de 0,6. Dans ce cas, la simulation axisymétrique est nécessaire à l'interprétation des essais de fluage.

Dans la suite du chapitre nous allons présenter la campagne expérimentale d'essais mécaniques ainsi que les résultats qui en sont issus. Les examens microstructuraux réalisés sur les échantillons déformés seront présentés ensuite. Pour finir, ces résultats seront analysés sous l'angle de la simulation numérique.

### V.3. Campagne expérimentale et résultats

Cette campagne expérimentale, constituée d'essais de compression de pastilles de dioxyde d'uranium sous atmosphère contrôlée à haute température, a deux objectifs distincts :

- d'une part, caractériser les effets de la pression partielle d'oxygène, de la température et de la vitesse de déformation sur la réponse viscoplastique macroscopique de l' $\text{UO}_{2+x}$ , et corrélérer ces effets à l'évolution de la microstructure.

- d'autre part, caractériser l'effet de la microstructure sur la réponse viscoplastique du matériau, en comparant les comportements des lots A (référence) et B (SPS).

Les pastilles du lot B, de fait de leur géométrie et microstructure spécifiques, nous imposent certaines contraintes :

- tout d'abord, dans le but de limiter le plus possible la croissance granulaire en cours de fluage, les essais de compression doivent être réalisés dans une gamme de température la plus faible possible, mais suffisamment élevée pour que le fluage-dislocation soit actif. En tout état de cause, il est nécessaire que la température choisie soit suffisante pour induire une mobilité sur le réseau cationique. Sur la base des études antérieures, nous avons choisi une température de 1320°C.

- de plus, leur faible diamètre nous a obligé à développer des cales spécifiques présentant un système de glissière garantissant le mouvement de la cale supérieure et protégeant ainsi le dispositif de toute chute de pièces lors de l'essai et des manipulations. L'ajout d'une pièce supplémentaire dans la transmission de l'effort a eu pour effet d'augmenter le temps de mise en place des essais de compression.

#### V.3.1. Gamme de sollicitations

Les essais de compression réalisés peuvent se diviser en trois catégories distinctes en fonction de la température. Le Tableau 5 résume les essais de compression réalisés à 1520°C sur les pastilles du lot A. Ces essais nous ont permis d'établir des premiers résultats (effets de la contrainte et de l'atmosphère) et servent de référence. De plus, une comparaison directe est possible avec de précédents essais réalisés avec ce dispositif dans des conditions similaires (Garcia et al., 2021). Le Tableau 6 présente les essais de compression réalisés à 1320°C. Il comporte principalement des essais réalisés sur les pastilles du lot B, ainsi que quelques essais réalisés sur des échantillons du lot A. Ces derniers ont été nécessaires pour pouvoir comparer dans des conditions similaires les comportements

des échantillons des deux lots. Enfin, le Tableau 7 présente un essai réalisé à 1620°C, sur une pastille du lot A.

**Tableau 5. Essais de compression réalisés à 1520°C sur des échantillons du lot A. Un élançement court [E = 0,6] est indiqué en soulignant la référence de l'échantillon dans la première colonne. Tous les autres cas correspondent à un élançement de 2.**

#	Vitesse de traverse ( $\mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$ )			Vitesse de déformation axiale linéaire ( $\text{s}^{-1}$ )			Pression d'oxygène à 650°C (atm.)	Pression d'oxygène à 1520°C (atm.)	Déformation axiale linéaire finale (%)
A1	20	50	-	$2\cdot 10^{-5}$	$5\cdot 10^{-5}$	-	$5,6\cdot 10^{-26}$	$1,8\cdot 10^{-12}$	13,3
<u>A2</u>	6	15	30	$2\cdot 10^{-5}$	$5\cdot 10^{-5}$	$1\cdot 10^{-4}$	$5,6\cdot 10^{-26}$	$1,8\cdot 10^{-12}$	16,0
A3	20	50	-	$2\cdot 10^{-5}$	$5\cdot 10^{-5}$	-	$2\cdot 10^{-26}$	$6,3\cdot 10^{-13}$	16,1
A4	20	50	-	$2\cdot 10^{-5}$	$5\cdot 10^{-5}$	-	$1,8\cdot 10^{-24}$	$6,7\cdot 10^{-11}$	19,1
A5	-	50	100	-	$5\cdot 10^{-5}$	$1\cdot 10^{-4}$	$2,9\cdot 10^{-25}$	$9,8\cdot 10^{-12}$	19,5

**Tableau 6. Essais de compression réalisés à 1320°C. Même codification relative aux élançements.**

# Test	Vitesse de traverse ( $\mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$ )			Vitesse de déformation axiale linéaire ( $\text{s}^{-1}$ )			Pression d'oxygène à 650°C (atm.)	Pression d'oxygène à 1320°C (atm.)	Déformation axiale linéaire finale (%)
<u>B1</u>	11			$5\cdot 10^{-5}$			$6\cdot 10^{-26}$	$3,1\cdot 10^{-14}$	16,6
<u>B2</u>	11			$5\cdot 10^{-5}$			$5\cdot 10^{-25}$	$2,2\cdot 10^{-13}$	16,2
<u>B3</u>	11			$5\cdot 10^{-5}$			$2\cdot 10^{-25}$	$1\cdot 10^{-13}$	15,2
<u>B4</u>	5			$2\cdot 10^{-5}$			$6\cdot 10^{-26}$	$3,1\cdot 10^{-14}$	13,3
<u>B5</u>	5			$2\cdot 10^{-5}$			$5\cdot 10^{-25}$	$2,2\cdot 10^{-13}$	13,4
<u>B6</u>	20			$1\cdot 10^{-4}$			$6\cdot 10^{-26}$	$3,1\cdot 10^{-14}$	14,5
<u>B7</u>	20			$1\cdot 10^{-4}$			$2\cdot 10^{-24}$	$1\cdot 10^{-12}$	15,0
A6	20	50	100	$2\cdot 10^{-5}$	$5\cdot 10^{-5}$	$1\cdot 10^{-4}$	$6\cdot 10^{-26}$	$3,1\cdot 10^{-14}$	15,2
<u>A7</u>	6	15	30	$2\cdot 10^{-5}$	$5\cdot 10^{-5}$	$1\cdot 10^{-4}$	$6\cdot 10^{-26}$	$3,1\cdot 10^{-14}$	10,6
<u>A8</u>	15			$5\cdot 10^{-5}$			$5\cdot 10^{-25}$	$2,2\cdot 10^{-13}$	16,1
A9	50			$5\cdot 10^{-5}$			$7\cdot 10^{-25}$	$4\cdot 10^{-13}$	15,2
<u>A10</u>	15			$5\cdot 10^{-5}$			$7\cdot 10^{-25}$	$4\cdot 10^{-13}$	12,8

**Tableau 7. Essai de compression réalisé à 1620°C.**

# Test	Vitesse de traverse ( $\mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$ )		Vitesse de déformation axiale linéaire ( $\text{s}^{-1}$ )		Pression d'oxygène à 650°C (atm.)	Pression d'oxygène à 1620°C (atm.)	Déformation axiale linéaire finale (%)
A11	20	50	$2\cdot 10^{-5}$	$5\cdot 10^{-5}$	$1,8\cdot 10^{-24}$	$1,9\cdot 10^{-10}$	19,2

### V.3.2. Validation de la démarche

#### V.3.2.1. Essais réalisés à plusieurs vitesses de traverse

Comme indiqué dans les tableaux ci-dessus, nous avons réalisé deux types d'essais de compression : des essais qui consistent à imposer une unique vitesse de traverse constante, et des essais au cours desquels plusieurs vitesses de traverse se succèdent. Cette stratégie, utilisée dans plusieurs études relatives à des essais de compression (Bretheau et al., 1981), présente l'avantage de ne pas induire de dispersion liée à la mise en place de l'expérience. Outre le gain de temps potentiel, cette procédure pourrait simplifier l'interprétation des résultats en révélant directement la dépendance de la vitesse de déformation à la contrainte.

Pour que l'essai soit exploitable à l'aide d'une loi phénoménologique (chapitre 1, relation 1.9), il faut que le matériau ait atteint un régime stationnaire avant d'initier le changement de vitesse de traverse. Nous verrons par la suite que ce premier critère n'est pas rempli pour les essais conduits à 1320°C sur les pastilles du lot A.

Par ailleurs, on pourrait s'attendre à ce que la contrainte d'écoulement en régime stationnaire soit différente suivant que celle-ci a été atteinte au cours d'un essai à vitesse de déformation unique, ou pour un essai au cours duquel la vitesse a été modifiée. En effet, la microstructure du matériau au cours de l'écoulement en régime stationnaire n'est pas nécessairement la même dans les deux cas. La Figure V-10 illustre le fait que ces différences, si elles existent, semblent négligeables vis-à-vis de la contrainte d'écoulement. Elle présente les résultats de deux essais réalisés sous une atmosphère contrôlée proche, de  $1,5\cdot 10^{-12}$  atm pour l'essai caractérisé par les courbes rouges et de  $1,8\cdot 10^{-12}$  atm pour celui dont les grandeurs sont représentées en bleu. On voit que les contraintes d'écoulement stabilisées des deux essais pour une vitesse de traverse finale de  $50 \mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$  sont quasi-identiques, aux fluctuations des grandeurs mesurées près (à +/- 1 MPa).

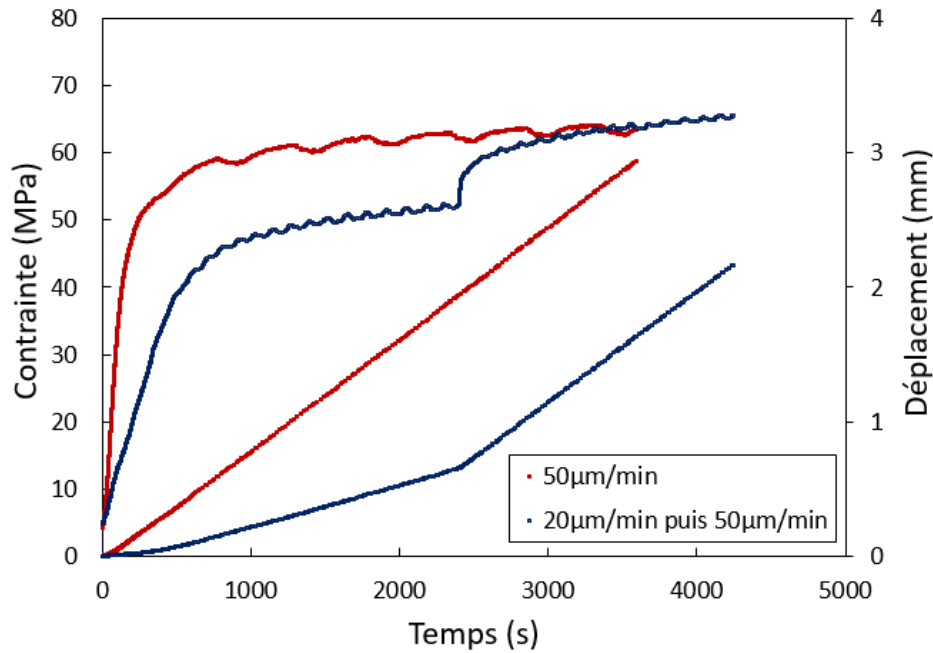


Figure V-10. Evolution de la contrainte d'écoulement et de la variation de la hauteur de la pastille pour un essai réalisé à 1500°C à vitesse de traverse unique (courbes rouges – essai non référencé) et pour un essai au cours duquel la vitesse de traverse est modifiée (courbes bleues – A1).

### V.3.2.2. Prise en compte de l'élanement

Nous avons mis en évidence dans le chapitre précédent (IV.3.1.3) la forte influence de l'élanement des échantillons sur les résultats macroscopiques des essais. La simulation numérique bidimensionnelle a permis de montrer qu'à vitesse de déformation et loi de comportement identiques, la charge à laquelle un échantillon de faible élanement était soumis était plus importante que sous l'hypothèse d'une déformation uniaxiale. Nous avons pu quantifier cette augmentation de la charge et nous nous proposons de valider cette démarche par l'expérience.

Considérons les essais dont font l'objet les échantillons A1 et A2 (Tableau 5 et Figure V-11). Le premier présente un élanement proche de 2 et le second un élanement de 0,6. Il s'agit dans les deux cas d'essais à deux vitesses de traverse successives. Le choix de ces vitesses a été déterminé pour qu'elles correspondent à des vitesses de déformation linéaires équivalentes de  $2 \cdot 10^{-5} \text{s}^{-1}$  et  $5 \cdot 10^{-5} \text{s}^{-1}$ . La pastille courte a également subi une troisième vitesse de traverse, correspondant à une vitesse de déformation de  $1 \cdot 10^{-4} \text{s}^{-1}$ .

Ces deux essais ont été réalisés sans le système de contrôle de l'eau de refroidissement que nous avons mis en place et qui a été décrit dans le chapitre 3 (section III.4.4.2). De plus, l'essai mécanique réalisé sur la pastille courte A2 a été conduit dans des conditions dégradées, avec d'importantes variations de la température de l'eau de refroidissement du procédé. De ce fait, et compte tenu des vitesses de traverses faibles qu'impose l'élanement de l'échantillon, les variations observées sur la courbe de charge sont importantes mais également particulièrement visibles sur la courbe de déplacement imposée à la pastille. Malgré tout, nous pouvons quantifier l'effet de l'élanement et ainsi à terme, distinguer ce qui est imputable au comportement du matériau et aux effets géométriques et de structures. Les évolutions de la charge en fonction de l'allongement relatif sont tracées pour les deux



essais sur la Figure V-12. La courbe en pointillés de la Figure V-11b et celle de la Figure V-12, pour l'essai A2, ont été linéarisées afin de donner une idée de l'évolution attendue sans perturbations.

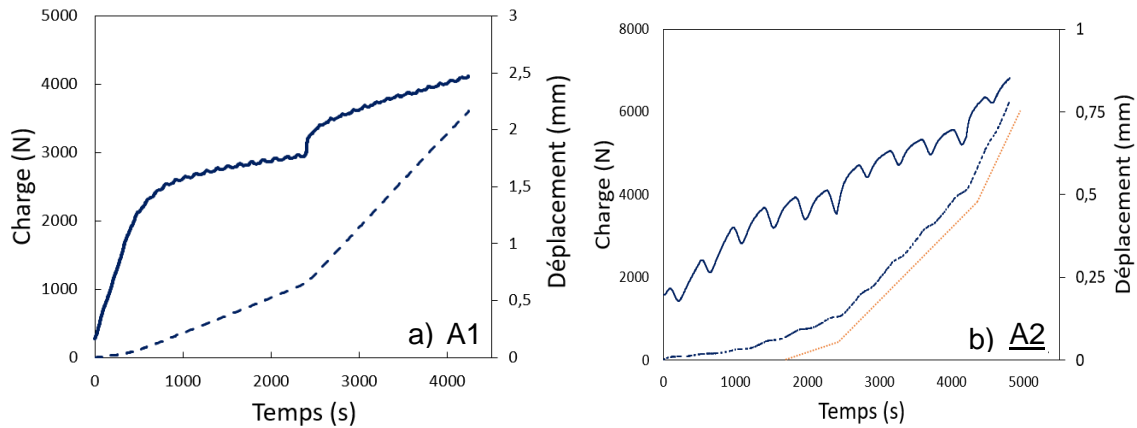


Figure V-11. Evolution de la charge et du déplacement a – échantillon A1 (élanement de 2) ; b – échantillon A2 (élanement de 0,6), [T = 1520°C, pO<sub>2</sub> = 1,8.10<sup>-12</sup>atm].

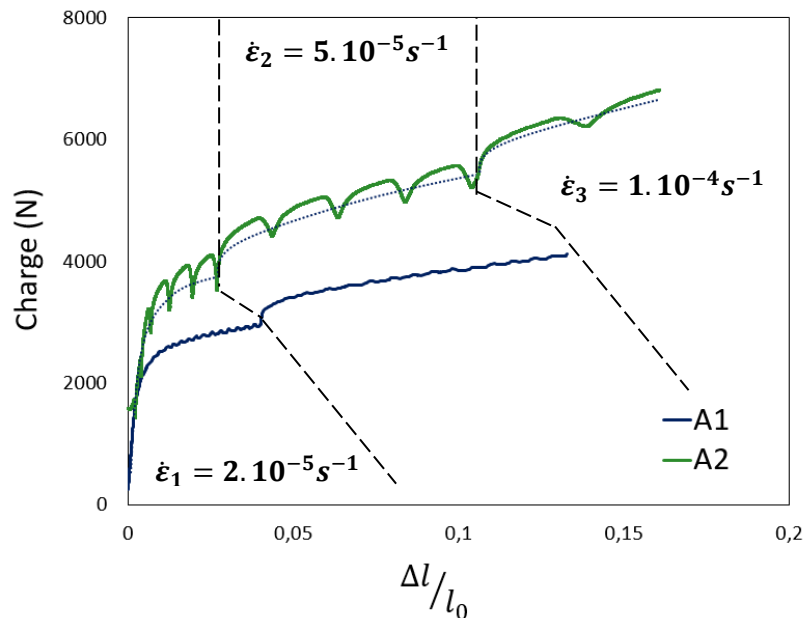


Figure V-12. Evolution de la charge en fonction de l'allongement relatif à T=1520°C et pO<sub>2</sub> = 1,8.10<sup>-12</sup>atm. sur deux pastilles d'élanement différent ; A1 longue - E = 2 ; A2 courte - E =0,6.

On observe sur la Figure V-12 qu'à vitesse de déformation équivalente, la charge relative à la pastille courte est supérieure à celle de la pastille longue, d'environ 750 N pour la vitesse la plus basse et de 1200 N pour la vitesse la plus élevée. Ce constat expérimental confirme bien les conclusions issues de la simulation au Chapitre 4 (IV.3.1.3).

### V.3.3. Résultats des essais et premières interprétations

Dans la section suivante, les résultats des différents essais de compression sont présentés. A partir des seules données expérimentales, nous proposons une première identification des paramètres de la loi phénoménologique (relation I.9) liés à la dépendance à la contrainte et à la pression partielle d'oxygène.

### V.3.3.1. Lot A

#### V.3.3.1.1. Résultats macroscopiques

Comme vu dans le chapitre précédent (IV.3.1), la géométrie des échantillons du lot A permet de faire l'hypothèse d'un essai uniaxial. La Figure V-13 représente donc les évolutions des contraintes (uniaxiale) de Cauchy (en vert) et de Piola-Kirchhoff (en bleu) en fonction du temps lors d'un essai de compression conduit à 1520°C, à une pression partielle d'oxygène de  $6,7 \cdot 10^{-11}$  atm et à une vitesse de déplacement de traverse de  $20 \mu\text{m} \cdot \text{min}^{-1}$  puis  $50 \mu\text{m} \cdot \text{min}^{-1}$ .

Comme expliqué dans le chapitre précédent (III.3.1.3), l'augmentation observée de la charge est essentiellement liée à l'augmentation de la section de la pastille. Dans la suite du chapitre, nous présentons donc les résultats en fonction de la contrainte de Cauchy uniquement. On note donc qu'au cours de cet essai, le stade de fluage dit secondaire est atteint pour les deux vitesses de déformation imposées. Un tel essai nous permet donc d'identifier une contrainte d'écoulement correspondant à chaque vitesse de déformation, et cela pour une pression partielle d'oxygène identique. Notons que cet essai a été réalisé avec le système de régulation de l'eau de refroidissement. On remarque malgré cela l'influence des variations de cette température, d'une amplitude de l'ordre de  $0,2^\circ\text{C}$ , sur la réponse.

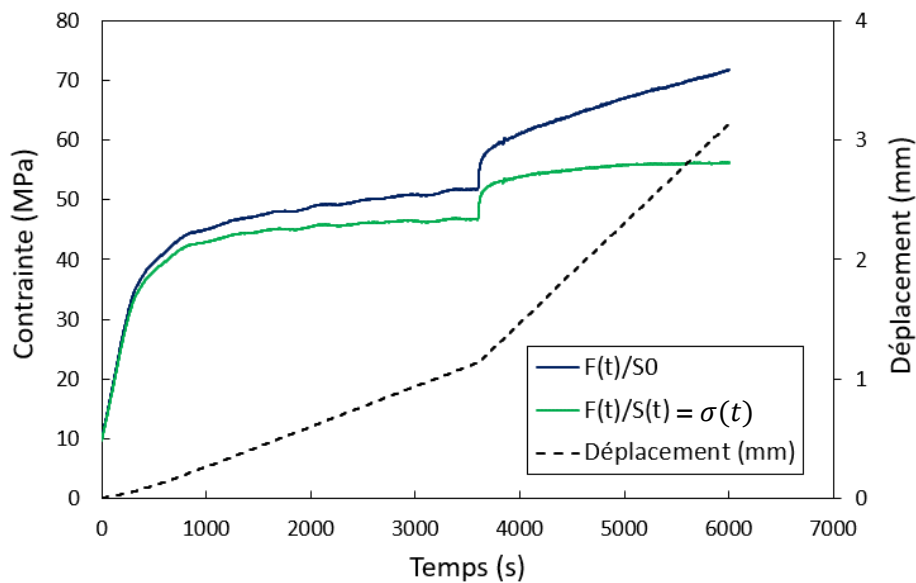


Figure V-13. Comparaison de l'évolution au cours du temps des contraintes de Cauchy et de Piola-Kirchhoff. (Echantillon A4 –  $T = 1520^\circ\text{C}$  –  $p\text{O}_2 = 6,7 \cdot 10^{-11}$  atm.)

Un seul essai à  $1620^\circ\text{C}$  a pu être réalisé (Figure V-14). L'allure de la courbe est typique du comportement usuel du dioxyde d'uranium. La stabilisation de la contrainte est révélatrice de la mise en place d'un fluage stationnaire.

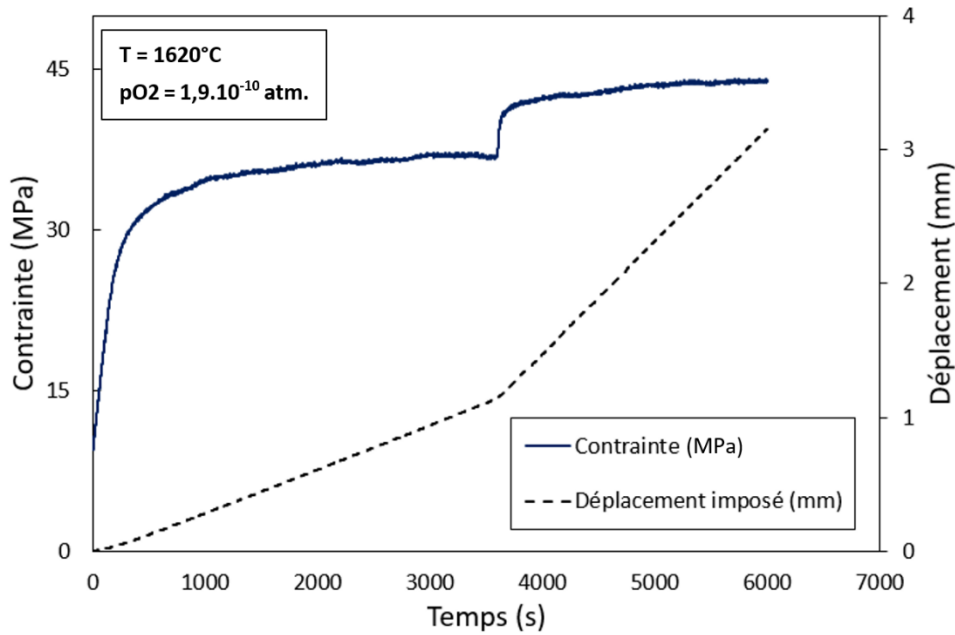


Figure V-14. Evolution de la contrainte et du déplacement en fonction du temps. (Echantillon A11 –  $T = 1620^{\circ}\text{C}$  –  $p\text{O}_2 = 1,9 \cdot 10^{-10} \text{ atm}$ )

Les essais équivalents réalisés à  $1320^{\circ}\text{C}$  montrent que le régime stationnaire n'est pas totalement atteint à l'échelle de temps de nos essais (Figure V-15). Il ne sera donc pas possible, dans ce cas, de déterminer précisément les paramètres de la loi de comportement phénoménologique. Par ailleurs, cette courbe semble indiquer soit un changement de mécanisme de déformation à cette température, soit que la cinétique nécessaire à la mise en place du fluage stationnaire est très dépendante de la température comme on pourrait s'y attendre pour un mécanisme contrôlé par la diffusion du cation.

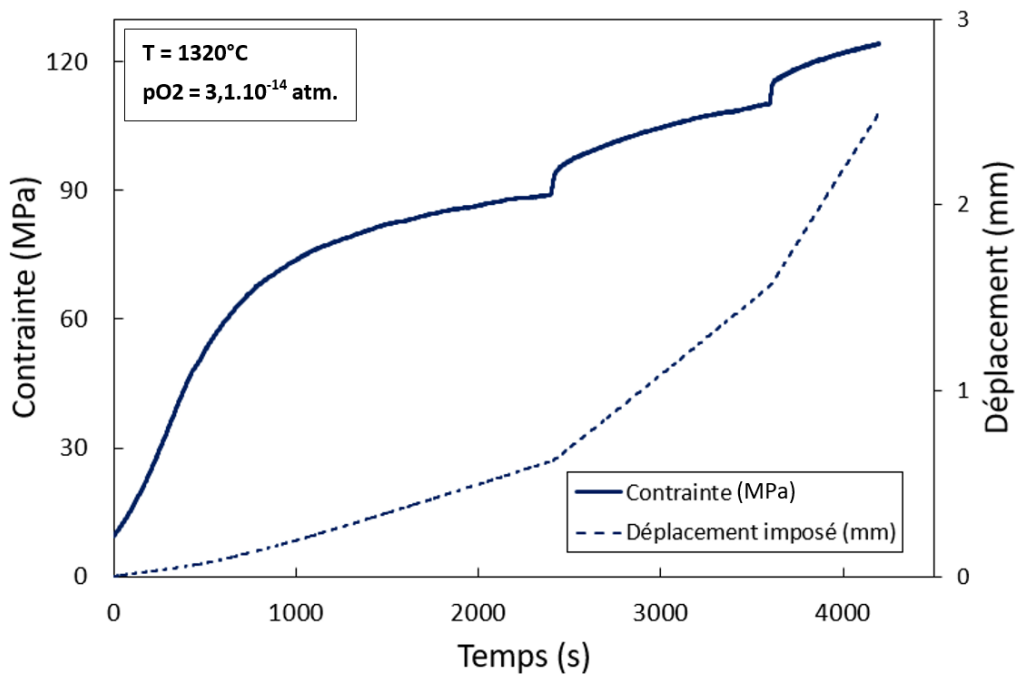


Figure V-15. Evolution de la contrainte et du déplacement en fonction du temps. (Echantillon A6 –  $T = 1320^{\circ}\text{C}$  –  $p\text{O}_2 = 3,1 \cdot 10^{-14} \text{ atm}$ .)

### V.3.3.1.2. Identification de l'effet de la contrainte, de la pression d'oxygène et de la température

Nous suivons la méthode utilisée antérieurement (Garcia et al., 2021) pour interpréter nos essais et en déterminer les paramètres de la loi de comportement phénoménologique (voir chapitre 1, section I.4.2, relation 1.9).  $\alpha$  étant l'exposant lié à la pression partielle d'oxygène, le logarithme de la contrainte d'écoulement s'exprime de la façon suivante :

$$\log(\sigma) = -\frac{\alpha}{n} \log(pO_2) + \log(\dot{\epsilon}) + C \quad (5.1)$$

$\sigma$  et  $pO_2$  sont respectivement la contrainte d'écoulement stationnaire et la pression partielle d'oxygène de l'essai. Les couples de points {contrainte d'écoulement, pression partielle d'oxygène} des essais réalisés à 1520°C sont représentés sur la Figure V-16. Les points s'alignent relativement bien, et cela pour les deux vitesses de déformations investiguées.

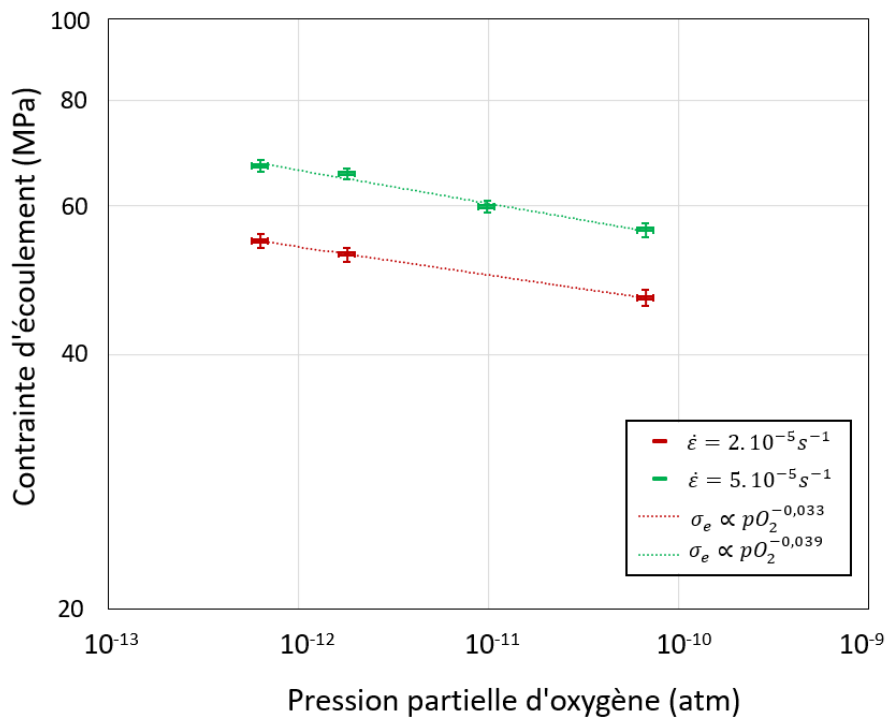


Figure V-16. Contrainte d'écoulement en fonction de la pression partielle d'oxygène à 1520°C et pour une vitesse de déformation de  $2.10^{-5} s^{-1}$  (rouge) et  $5.10^{-5} s^{-1}$  (vert).

A 1520°C, le rapport  $\alpha/n$  moyen s'exprime de la façon suivante :  $-\alpha/n = 0,036 \pm 0,005$ .

Le fait que la valeur de ce paramètre soit la même pour les deux vitesses de déformation suggère des mécanismes de déformation identiques. La loi phénoménologique peut également s'exprimer de la façon suivante :

$$\log(\dot{\epsilon}) = n \cdot \log\left(\sigma pO_2^{\frac{\alpha}{n}}\right) + C \quad (5.2)$$

Les résultats de tous les essais réalisés à une même température peuvent être reportés dans la même représentation (voir Figure V-17). On constate que les points expérimentaux s'alignent plutôt bien dans une représentation logarithmique, la pente de la droite correspondante fournissant l'exposant de la contrainte :  $n = 4,9 \pm 0,1$ . A partir de cette valeur, on peut estimer le paramètre qui

caractérise la dépendance de la vitesse de déformation à la pression partielle d'oxygène :  
 $\alpha = 0,176 \pm 0,05 \approx \frac{1}{6}$ .

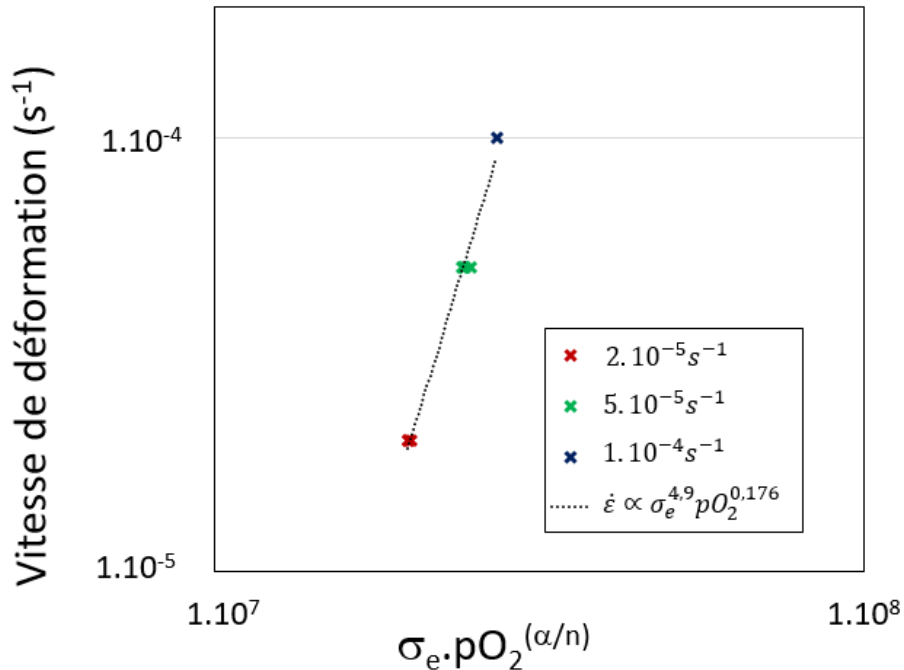


Figure V-17. Estimation de l'exposant de la contrainte à partir de l'équation (5.2) avec les points expérimentaux de tous les essais réalisés à 1520°C et avec  $\alpha/n = 0,036$ .

Nous discuterons du sens physique à donner à ces résultats dans le chapitre 7.

L'essai réalisé à 1620°C ne nous permet pas de caractériser l'effet de l'atmosphère, mais il nous permet d'estimer l'exposant de la contrainte à **5,1**, ce qui est proche de la valeur de 4,9 établie à 1520°C. A 1320°C, le régime stationnaire n'étant pas atteint, il est impossible de mettre en œuvre une analyse comparable.

Enfin, en faisant l'hypothèse que les mécanismes de déformation sont semblables à 1620°C et à 1520°C, ce qui pourrait se traduire par des dépendances comparables dans la loi phénoménologique de la vitesse de déformation à la pression partielle d'oxygène et à la contrainte, il est possible d'estimer une énergie d'activation pour le phénomène de fluage stationnaire. A partir de l'expression de la loi phénoménologique proposée par Bretheau (Bretheau et al., 1981), on exprime cette énergie d'activation de la façon suivante :

$$\ln\left(\frac{T \times \dot{\epsilon}}{\sigma_e^n pO_2^\alpha}\right) = -Q \frac{1}{RT} + C \quad (5.3)$$

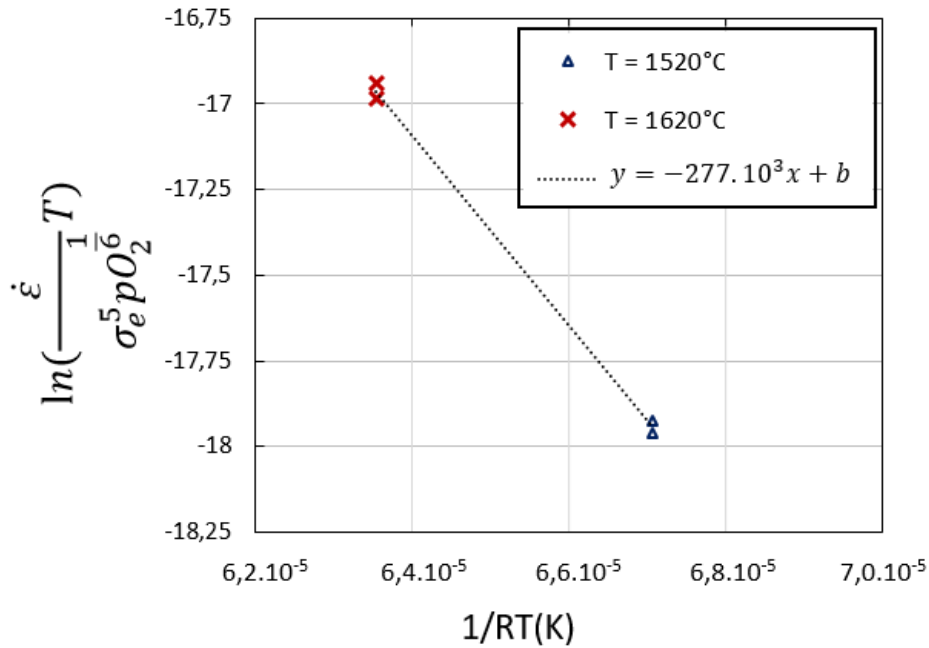


Figure V-18. Estimation de l'énergie d'activation du fluage à partir d'essais réalisés à 1520°C et 1620°C.

Les points correspondant à cette estimation sont reportés sur la Figure V-18 en faisant l'hypothèse d'une dépendance à la contrainte et à la pression d'oxygène suivant des lois puissance d'exposants 5 et 1/6 respectivement. On obtient ainsi une énergie d'activation de l'ordre de  $Q \approx 277 \text{ kJ. mol}^{-1}$ , c'est-à-dire de l'ordre de **2,9 eV/atome**.

### V.3.3.2. Lot B

Comme cela a été précisé dans le Tableau 6, sept essais de compression ont été réalisés à 1320°C sur les échantillons du lot B. Rappelons que l'objectif de ces essais est, d'une part d'identifier des effets liés à la microstructure particulière de ces échantillons en s'affranchissant des effets de structure (dont on a vu l'importance dans la section IV.3.1.3) et, d'autre part, d'identifier une dépendance de la vitesse de déformation à la pression partielle d'oxygène et à la contrainte. Concernant le premier point, nous avons également réalisé des essais complémentaires sur des pastilles courtes du lot A à 1320°C dans le but de décorréliser les effets de structure et de microstructure.

#### V.3.3.2.1. Réponse macroscopique du matériau

Tous les essais réalisés sur les échantillons du lot B présentent un maximum dans la courbe de charge que nous n'avons constaté sur aucun essai relatif aux échantillons du lot A. La Figure V-19 représente l'évolution de la charge au cours d'un essai de compression réalisé à une pression partielle d'oxygène de  $2,2 \cdot 10^{-13}$  atm. sur une pastille du lot B (B2). L'essai a été réalisé à une vitesse de traverse imposée de  $11 \mu\text{m.min}^{-1}$ , ce qui correspond à une vitesse de déformation linéaire de  $5 \cdot 10^{-5} \text{s}^{-1}$ . La charge maximale de compression correspond à une valeur de contrainte très élevée comprise entre 187 et 195 MPa (suivant que l'on tient compte de l'évolution de la section ou non). Une fois ce maximum atteint, la charge diminue rapidement jusqu'à atteindre une valeur qui semble stationnaire. Notons ici que nous avons vérifié que l'allure générale de la courbe de charge n'était pas modifiée si on l'exprimait en termes de contrainte soit sous l'hypothèse minorante (contrainte de Cauchy), soit sous

l'hypothèse majorante d'une section qui n'évolue pas au cours de l'essai (contrainte de Piola-Kirchhoff).

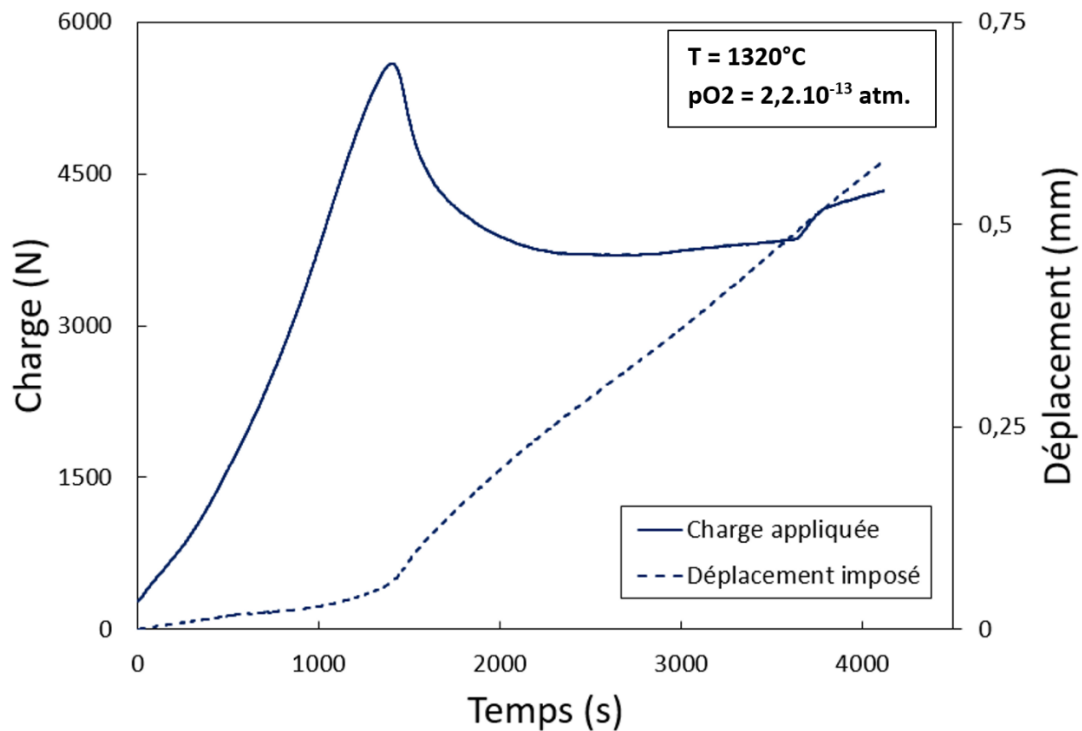


Figure V-19. Courbe de charge pour un essai de compression à vitesse de traverse imposée de  $11 \mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$ , à  $1320^{\circ}\text{C}$ . (Echantillon B2)

Afin de déterminer l'origine du pic de compression, nous avons réalisé un essai de compression sur un échantillon du lot A, d'élanement identique et dans les mêmes conditions, c'est-à-dire à  $1320^{\circ}\text{C}$ , à une vitesse de déformation de  $5 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ , sous une pression partielle d'oxygène de  $2,2 \cdot 10^{-13} \text{ atm}$ . L'évolution de la contrainte de Cauchy est présentée sur la Figure V-20 en fonction de l'allongement relatif. On distingue plusieurs phases dans cet essai. Au cours de la première (**partie I**), on assiste à la mise en place du dispositif. Celle-ci est relativement longue pour les deux essais, sans doute en partie à cause du système de cales spécifiques que nous avons utilisé pour les essais sur pastilles courtes. Il est intéressant de noter la différence de réponse d'un échantillon à l'autre. Dans le cas des pastilles SPS, la contrainte de compression atteint un maximum de 187 MPa, alors que celle-ci croît régulièrement au cours du temps pour l'échantillon du lot A. Au cours de la seconde phase (**partie II**), la contrainte de compression axiale de l'échantillon du lot B décroît substantiellement pour atteindre une valeur sensiblement constante qui correspond à la moitié de la contrainte maximale. En revanche, pour la pastille du lot A, la réponse a une allure semblable à celles observées sur les pastilles d'élanement plus important. Néanmoins, il faut noter que, malgré l'hypothèse minorante relative à l'évaluation de la contrainte, celle-ci n'atteint pas un régime parfaitement stationnaire. Il est assez difficile d'évaluer quand débute la troisième phase (**partie III**) ni même si une troisième phase existe en particulier pour l'échantillon du lot A qui présente un écrouissage apparent continu. On retrouve pour la plupart des échantillons du lot B une brusque montée de la charge. Sa possible origine est discutée ultérieurement. On note cependant que contrairement à ce que suggère la littérature sur le sujet (Vivant-Duguay, 1998), si la faible taille de grain semble induire un durcissement initial très important pour l'échantillon du lot B, la contrainte d'écoulement est inférieure à celle du lot A au-delà d'environ 7% d'allongement.

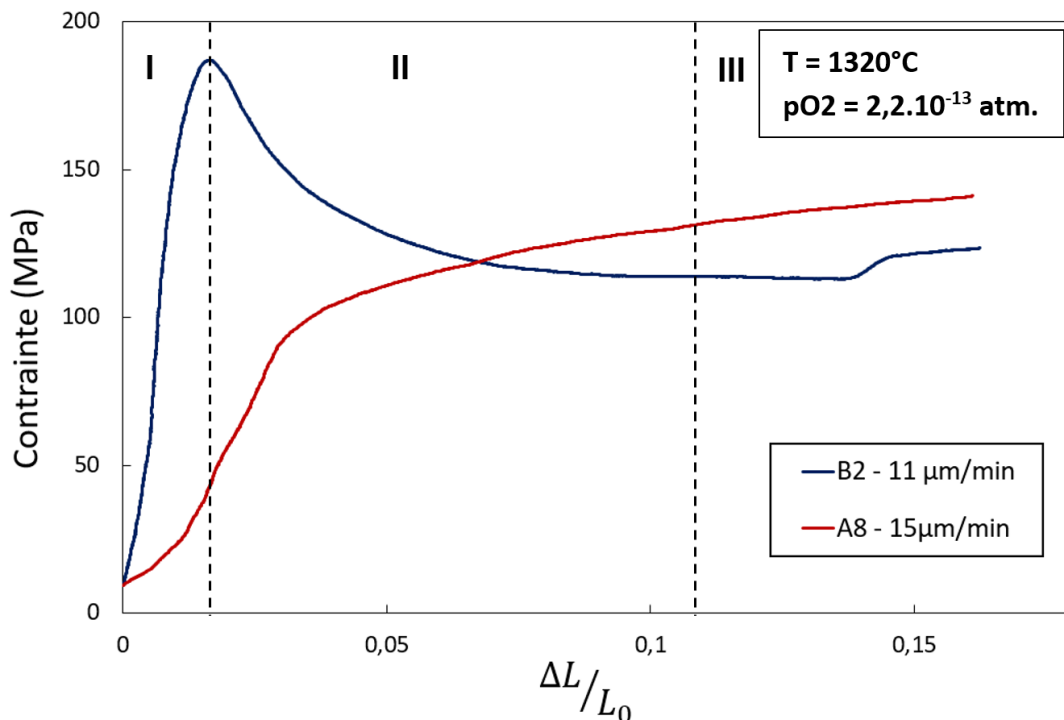


Figure V-20. Comparaison de l'évolution de la contrainte de Cauchy en fonction de l'allongement relatif des échantillons B2 et A8, à une température (1320°C), une vitesse de déformation ( $5.10^{-5}s^{-1}$ ) et une pression partielle d'oxygène équivalentes ( $2,2.10^{-13}atm$ ).

#### V.3.3.2.2. Répétabilité des essais

Les Figure V-21 et Figure V-22 présentent les courbes de charge correspondant aux essais de compression réalisés sur les échantillons du lot B, pour différentes pressions partielles d'oxygène (Figure V-21) et à pressions partielles d'oxygène identiques, pour des vitesses de traverses différentes (Figure V-22). Les échantillons du lot B présentent un comportement qualitativement semblable : la présence systématique d'un pic de compression, puis d'une phase d'adoucissement et enfin d'une stabilisation de la contrainte. L'allure particulière de la courbe de charge de l'essai B4 s'explique par un fonctionnement fortement dégradé du système de refroidissement, où l'amplitude des variations en température de l'eau était de l'ordre de 4°C. La plupart d'entre eux présentent également une 4<sup>e</sup> phase en fin d'essai au cours de laquelle la contrainte augmente à nouveau soudainement. Cependant, nos essais ne montrent pas de tendance particulière liée à des différences de pression partielle d'oxygène ou de vitesses de déformation dans la gamme de valeurs étudiées, que ce soit au niveau de la contrainte de compression maximale, ou de la valeur de la contrainte d'écoulement stabilisée qui semble intervenir entre 10 et 15% de déformation axiale. Nous verrons dans la prochaine section que les examens microstructuraux apportent quelques éléments d'explication vis-à-vis du manque de répétabilité des résultats de cette campagne d'essais.



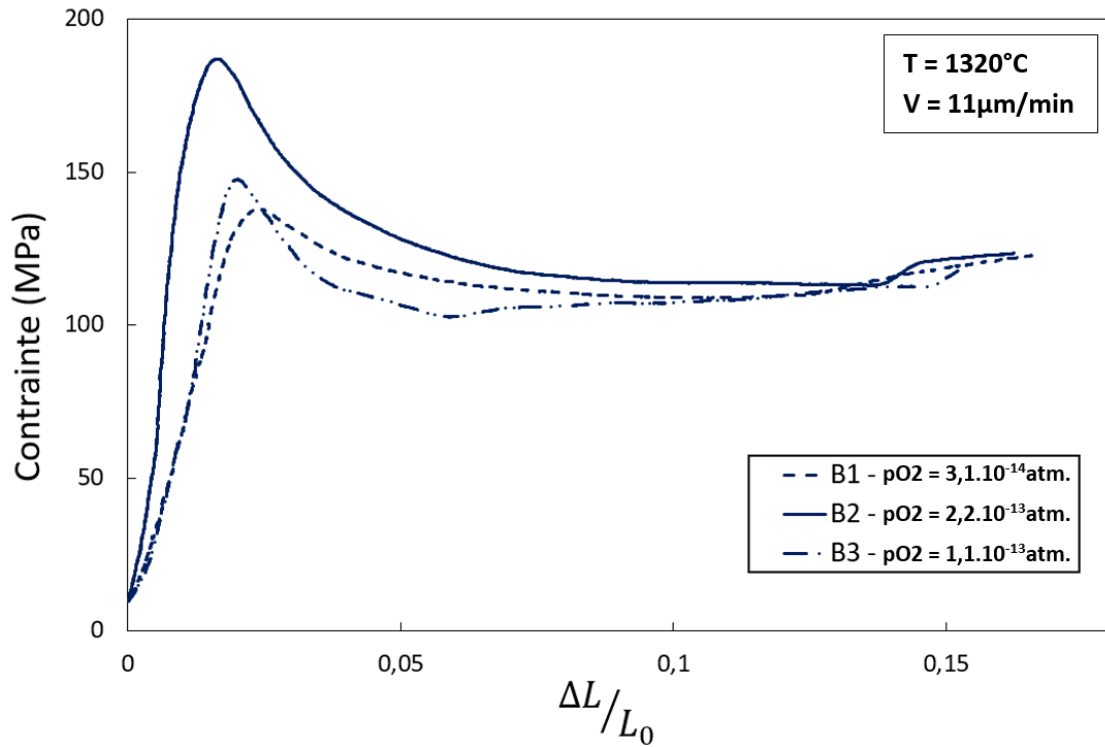


Figure V-21. Evolution de la contrainte de Cauchy en fonction de l'allongement relatif lors d'essais de compression réalisés sur des échantillons du lot B, à des pressions d'oxygène différentes et à des température et vitesse de traverse identiques.

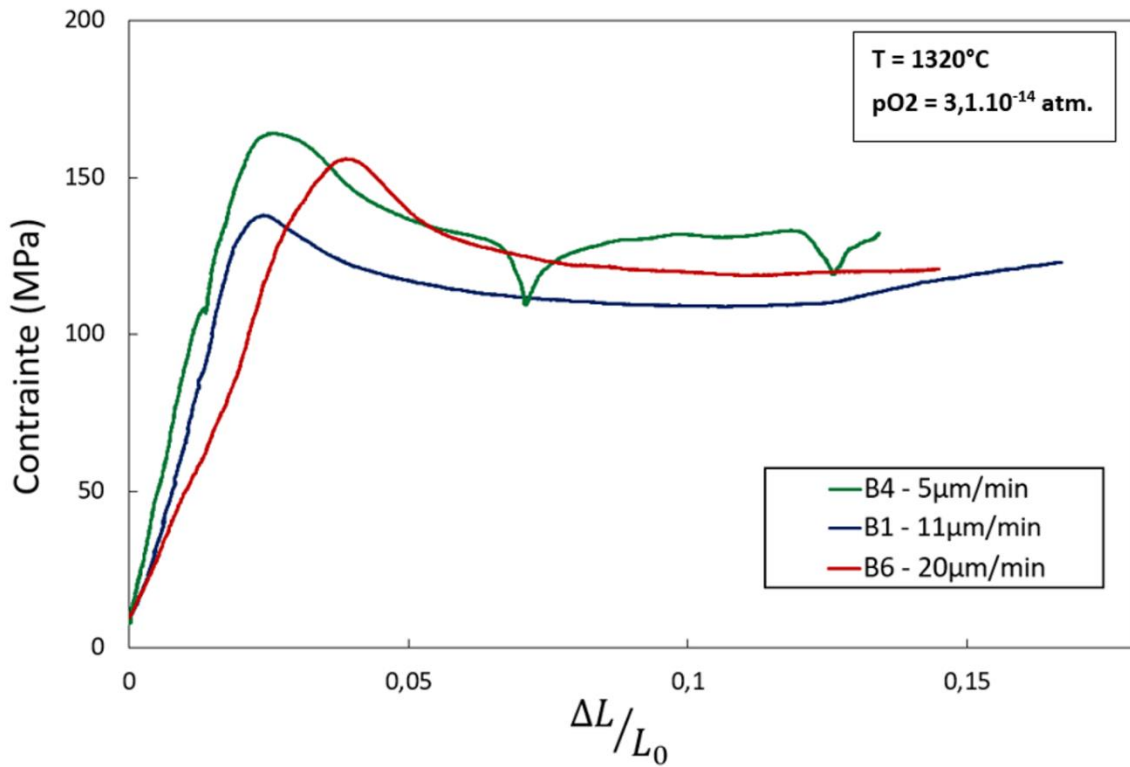


Figure V-22. Evolution de la contrainte de Cauchy en fonction de l'allongement relatif lors d'essais de compression réalisés sur des échantillons du lot B, à des vitesses de traverse différentes et à mêmes température et pression d'oxygène.

### V.3.4. Conclusions relatives à l'ensemble des essais de compression réalisés

Nous avons réalisé une série d'essais de compression sur des échantillons de microstructure et d'éclatement différents, à plusieurs températures, vitesses de déformations et pressions partielles d'oxygène. Concernant notre lot d'échantillons de référence (lot A), nous avons pu identifier avec une précision satisfaisante, les paramètres de la loi de comportement phénoménologique proposée par Bretheau (chapitre 1, relation 1.9) aux températures les plus élevées : ainsi, nos résultats suggèrent, dans la gamme de températures (supérieures à 1500°C) et de vitesses de déformations investiguées, un mécanisme de déformation unique. De plus, l'exposant de la contrainte dans le loi phénoménologique ( $\sim 5$ ), suggère un mécanisme de fluage-restauration (voir chapitre 1, section I.3.3). Cette analyse est rendue possible du fait de l'existence d'un régime d'écoulement stationnaire. Cela n'est pas le cas à la température la plus basse étudiée suggérant, soit un changement de mécanisme, soit une cinétique de restauration plus lente. En effet, on peut imaginer que l'endommagement soit essentiellement contrôlé par la vitesse de déformation, alors qu'on peut s'attendre à ce que la cinétique de restauration soit un phénomène thermiquement activé.

Le comportement des échantillons du lot B est significativement différent de celui des échantillons du lot A. En particulier, les courbes de charge de ces échantillons aux tailles de grains réduites présentent une phase initiale de durcissement suivie dans un second temps d'un adoucissement. Nous avons vérifié par comparaison à un échantillon du lot A d'éclatement identique que cette observation n'était pas liée à la géométrie des échantillons. Néanmoins, contrairement aux échantillons du lot A, nous n'avons pas pu imputer la variabilité de réponse observée d'un essai à l'autre à une variation de la vitesse de déformation ou de la pression partielle d'oxygène.

Nous nous efforçons dans la section suivante de corrélérer les réponses macroscopiques des échantillons à l'évolution de leur microstructure dans le but d'identifier les mécanismes physiques mis en jeu.

## V.4. Examens microstructuraux de pastilles déformées en compression

Dans cette partie sont présentés et discutés les divers examens microstructuraux réalisés sur les pastilles déformées en compression. Celles-ci sont comparées aux microstructures initiales dans le but de contribuer à l'identification des mécanismes de déformation. Cette partie se divise en deux sections, la première est consacrée au lot A et la seconde au lot B.

### V.4.1. Lot A

#### V.4.1.1. Observations macroscopiques

La photographie de la Figure V-23 montre deux pastilles du lot A dont l'une a été déformée suite à un essai de compression. Elle met en évidence la déformation hétérogène de l'éprouvette et sa « mise en tonneau ». On remarque également une marque circulaire à l'extrémité supérieure de l'échantillon déformé qui correspond à une interaction avec les empreintes dont sont dotées les cales martyres en tungstène. Ces marques confirment l'hypothèse d'ancrage unilatéral retenue pour modéliser les essais.

Aucune trace d'endommagement macroscopique (fissures ou décohésions) n'est décelable sur les pastilles déformées jusqu'à 19%.



Figure V-23. Photographie de pastilles du lot A avant essai (à gauche) et après un essai de compression (à droite).

#### V.4.1.2. Examens de coupes radiales et transversales par microscopie optique et par MEB/EBSD

##### V.4.1.2.1. Vues d'ensemble

Les Figure V-24 et Figure V-25 sont des montages d'images optiques de coupes axiales relatives à deux pastilles d'élanements différents du lot A. La Figure V-24 concerne la pastille A4 d'élanement égal à 2, présentant une déformation axiale de 19%. La Figure V-25 correspond à la pastille A8 d'élanement égal à 0,6 et dont la déformation axiale est de 16%. La pastille élanée a une forme de tonneau relativement symétrique et ne présente pas d'endommagement macroscopique particulier. En revanche, les micrographies optiques révèlent des régions localisées caractérisées par une importante décohésion intergranulaire. Deux de ces zones sont représentées sur les encarts de la Figure V-24. Celles-ci paraissent concentrées dans le cœur de la pastille, là où la contrainte axiale est maximale.

La Figure V-25 montre que la pastille courte présente en revanche plusieurs traces d'endommagement macroscopique caractérisées par deux longues fissures transversales dont les dimensions sont de l'ordre de l'épaisseur de l'échantillon ainsi qu'une large fracture le long d'une diagonale de la coupe qui part de l'interface avec la cale martyre supérieure. Les observations réalisées par microscopie optique n'ont pas permis de mettre en évidence des régions de décohésions intergranulaires semblables à celles que l'on observe pour les pastilles élanées. Cependant, davantage d'examen, menés sur des pastilles courtes déformées en compression, seraient nécessaires pour tirer des conclusions plus précises.

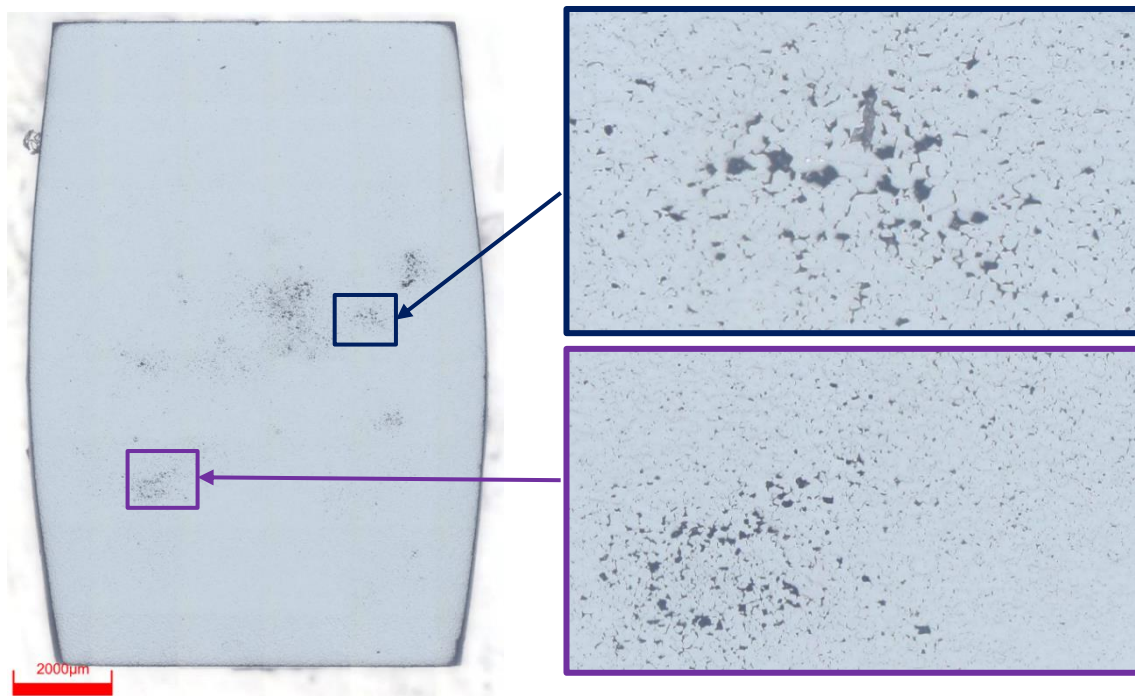


Figure V-24. Montage de plusieurs images optiques couvrant l'intégralité de la coupe axiale d'une pastille de fort élongement déformée en compression ( $A4 - T = 1520^{\circ}\text{C} - p\text{O}_2 = 6,7 \cdot 10^{-11} \text{ atm} - 19\%$ ), avec mise en évidence de zones caractérisées par une forte porosité.

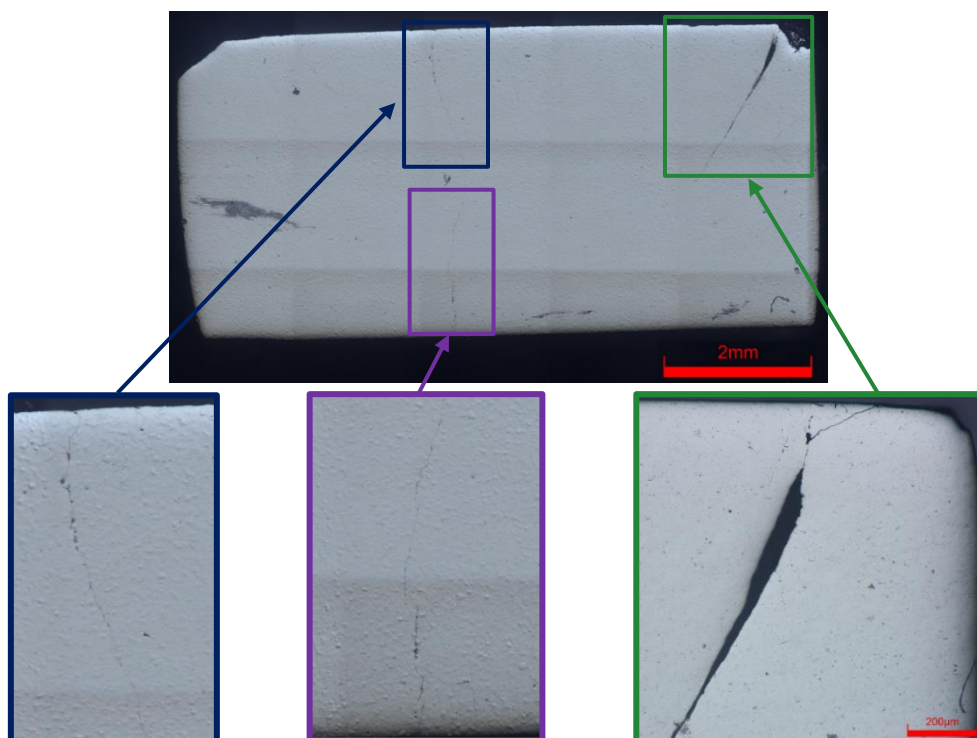


Figure V-25. Montage constitué de plusieurs images optiques couvrant l'intégralité de la coupe axiale d'une pastille de faible élongement déformée en compression ( $A8 - T = 1320^{\circ}\text{C} - p\text{O}_2 = 2,2 \cdot 10^{-13} \text{ atm} - 16\%$ ), avec mise en évidence de zones caractérisées par la présence de fissures.

V.4.1.2.2. Examens par MEB

Les examens réalisés par microscopie électronique à balayage ont permis d'observer plus en détail les régions présentant des microstructures différentes. La Figure V-26, établie à partir du calcul des contraintes de Von Mises lors d'un essai de compression, indique les différentes régions dans lesquelles les micrographies présentées dans la suite de cette section ont été réalisées. Quatre régions d'intérêt pour les observations micrographiques sont identifiées. La 1<sup>ère</sup> correspond au cœur de la pastille qui, d'après les simulations multidimensionnelles des essais, peut être considérée comme le siège d'une sollicitation relativement homogène dans le cas des échantillons à fort élanement. La 2<sup>nde</sup> correspond aux régions d'interfaces entre l'échantillon et les cales supérieure et inférieure, à proximité de l'axe de révolution. La 3<sup>ème</sup> correspond aux zones de transition entre les deux premières, zones dans lesquelles la contrainte de cisaillement est importante. Et enfin la 4<sup>ème</sup> est une zone qui correspond à une coupe radiale de l'échantillon, c'est-à-dire qui est contenue dans un plan perpendiculaire à l'axe de révolution de la pastille. **Précisons que sur toutes les images présentées dans cette section, l'axe de compression est horizontal.**

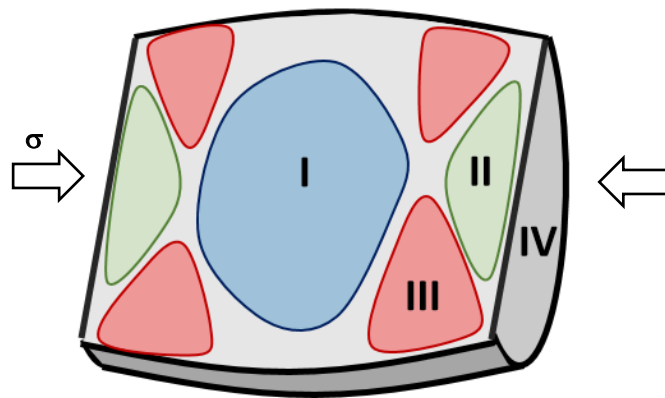


Figure V-26. Représentation schématique des zones d'intérêt pour l'observation dans une pastille déformée. Voir le texte pour les descriptions.

**Pastille longue A4 – T = 1520°C – pO<sub>2</sub> = 6,7.10<sup>-11</sup>atm – Déformation finale = 19%**

La pastille A4 déformée à 1520°C a été testée sous une pression partielle d'oxygène parmi les plus élevées que nous avons investiguées. La Figure V-27 présente deux micrographies d'une même zone choisie à l'intérieur de la région I ; et présentant une forte porosité dont on montre ici qu'il s'agit de décohésions intergranulaires. Nous remarquons que les lignes de décohésion suivent grossièrement une direction parallèle à l'axe de compression. De plus, l'imagerie en électrons rétrodiffusés (BSE) est sensible à l'orientation cristallographique des grains d'UO<sub>2</sub> et révèle une sous-structuration de ces derniers, qui est *a priori* caractéristique d'un fort endommagement viscoplastique associé à des mécanismes de restauration dynamique (Ben Saada, 2017; Dherbey, 2000). Cela s'observe particulièrement sur la micrographie à plus fort grandissement (Figure V-27b), où l'on distingue nettement des domaines (sous-grains) caractérisés par des niveaux de gris légèrement différents à l'intérieur de grains déchaussés.

Les micrographies de zones provenant de régions de types II et III, présentées sur les Figure V-28 et Figure V-29, montrent des grains sans sous-structuration notable. De plus, elles révèlent très peu de décohésions intergranulaires. Les observations effectuées sur les différentes pastilles du lot A déformées à 1520°C, n'ont pas mises en évidence de différences notables qui seraient imputables à la sollicitation ou à la pression partielle d'oxygène.

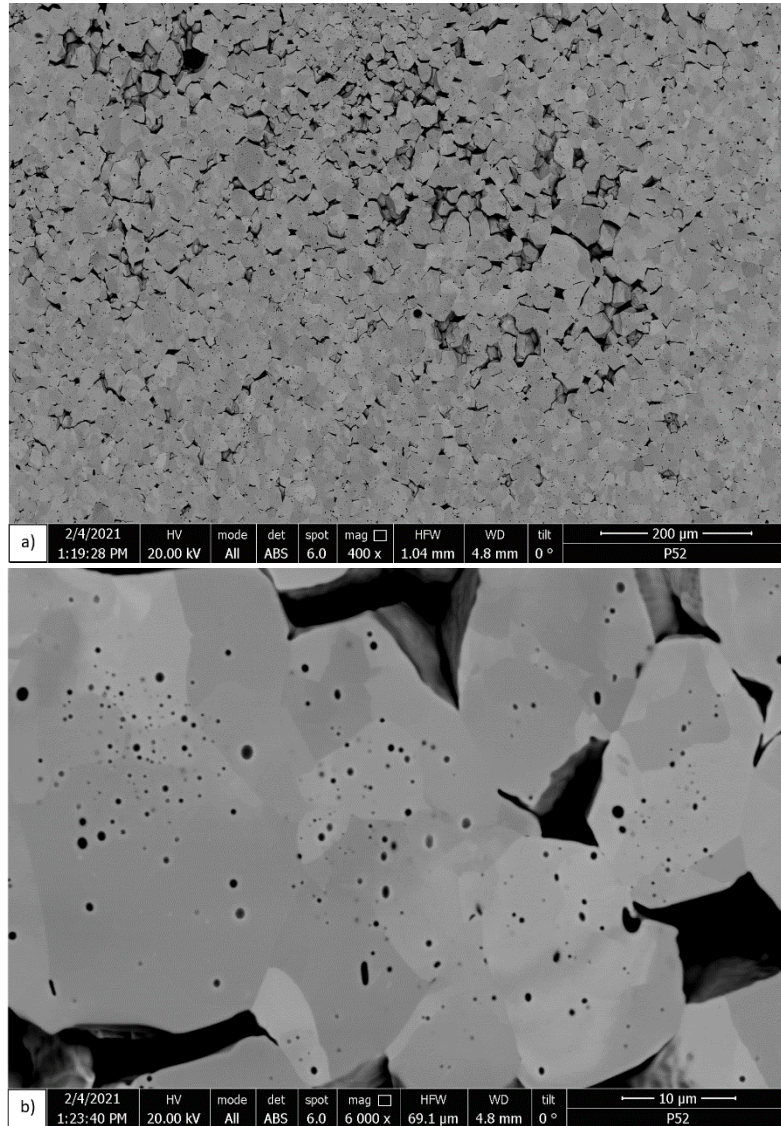


Figure V-27. Micrographies électronique (MEB, mode : BSE) acquises à plusieurs grandissements sur la pastille A4, testée en compression à une déformation axiale d'environ 19%. La zone observée se situe à l'intérieur de la région I (telle que définie sur la Figure V-26) et présente de nombreuses décohésions intergranulaires.

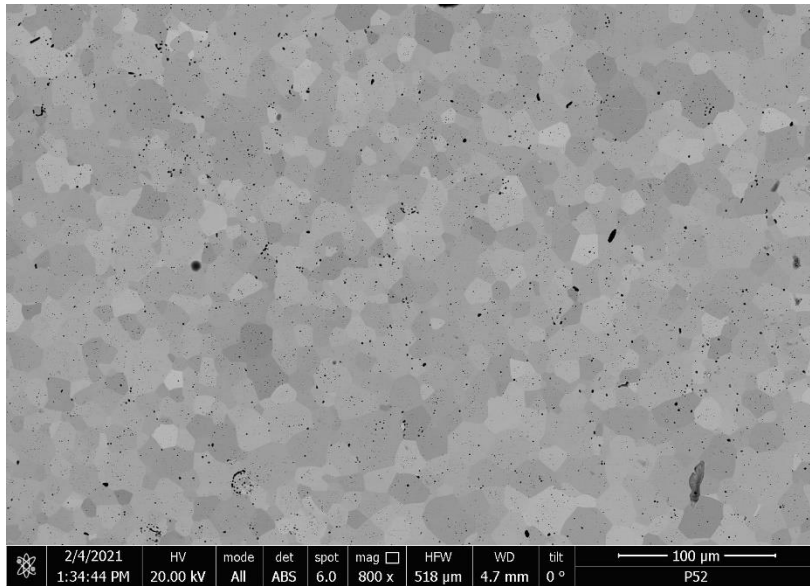


Figure V-28. Micrographie électronique (MEB, mode : BSE) acquise dans la région II, sur la pastille A4 testée en compression à une déformation axiale d'environ 19%.

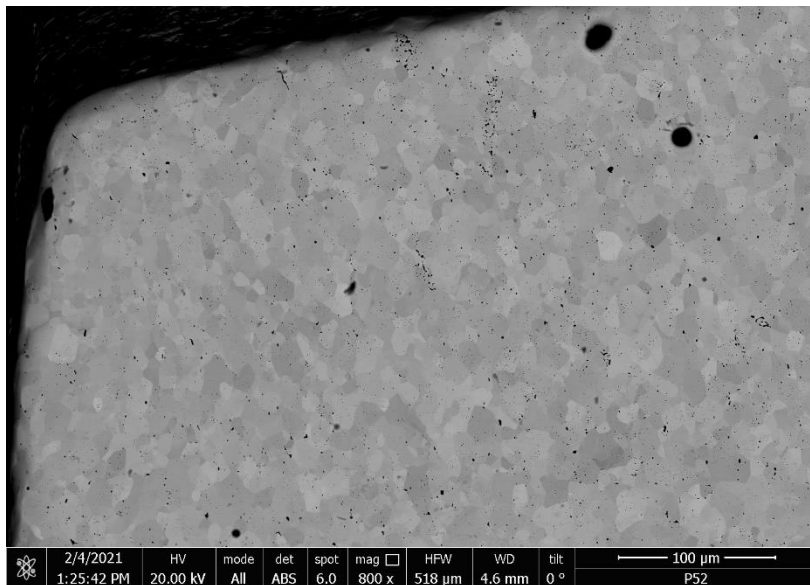


Figure V-29. Micrographie électronique (MEB, mode : BSE) acquise dans la région III sur la pastille A4 testée en compression à une déformation axiale d'environ 19%.

### **Pastille longue A11 – 1620°C - pO<sub>2</sub> = 1,9.10<sup>-10</sup>atm – Déformation finale = 19%**

Les examens réalisés sur la pastille A11, déformée à 1620°C et à une déformation axiale de l'ordre de 19 %, semblent révéler un effet important de la température sur la microstructure. Tout d'abord, on distingue sur la Figure V-30 un nombre bien plus important de régions présentant de fort taux de porosité que l'on peut attribuer à de la décohésion intergranulaire. Ces « poches » sont localisées dans la région I, dans laquelle la contrainte de Von Mises est maximale. La pastille montre également les traces de son ancrage sur les cales en tungstène au niveaux de ses extrémités.

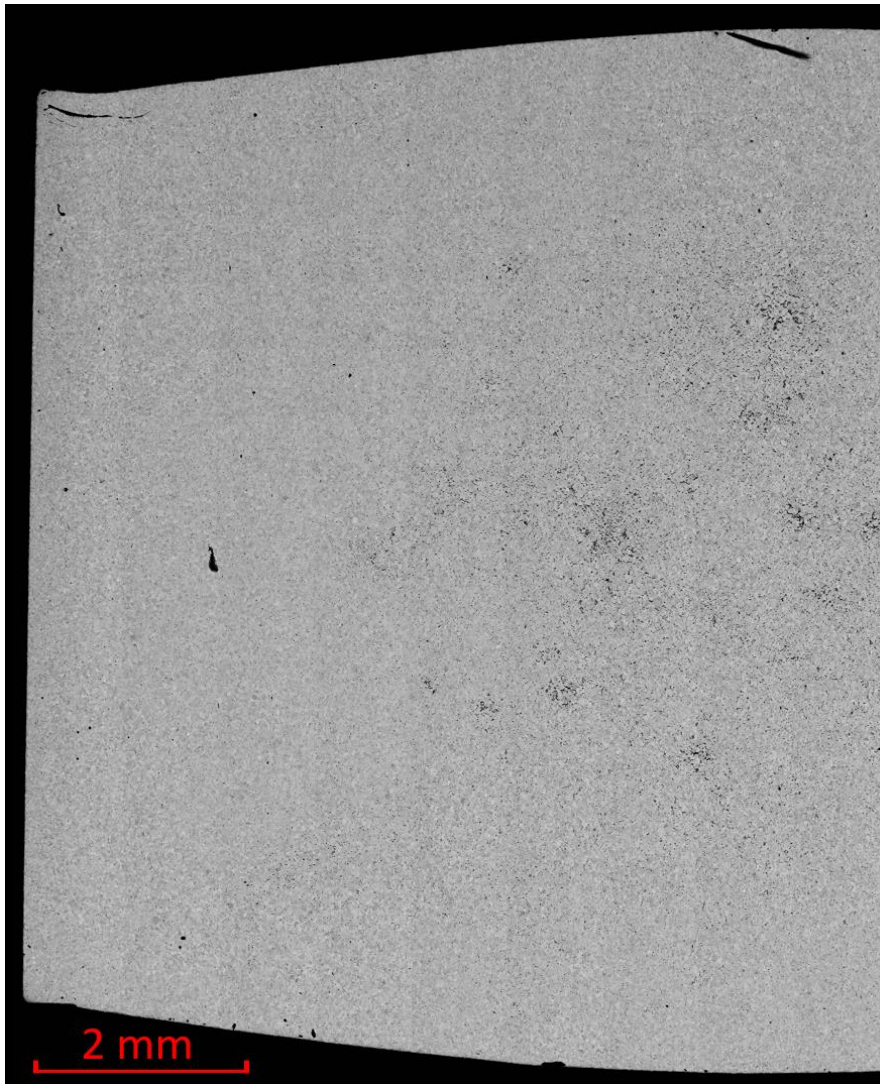


Figure V-30. Montage de micrographies électroniques (MEB, mode : SE), d'une demi-pastille (A11) déformée à 1620°C jusqu'à une déformation de 19 % montrant la présence d'un nombre important de zones de fortes porosité localisées dans la région de contrainte de Von Mises maximale.

La Figure V-31 montre l'une de ces zones, à deux grossissements différents. Ses caractéristiques sont comparables à celles qui ont été observées sur les échantillons déformés à 1520°C : les grains qui la composent sont fortement sous-structurés et les décohésions semblent à peu près alignées parallèlement à l'axe de compression. Les observations réalisées par MEB semblent indiquer que les échantillons A4 et A11 présentent des microstructures voisines en dehors de la région III, qui est la zone de cisaillement maximal. Comme on peut le voir sur la Figure V-32, cette zone présente une large fracture qui décrit grossièrement le cône de cisaillement maximal. Le matériau semble donc moins bien accommoder la déformation en cet endroit, où les contraintes de cisaillement sont les plus élevées.



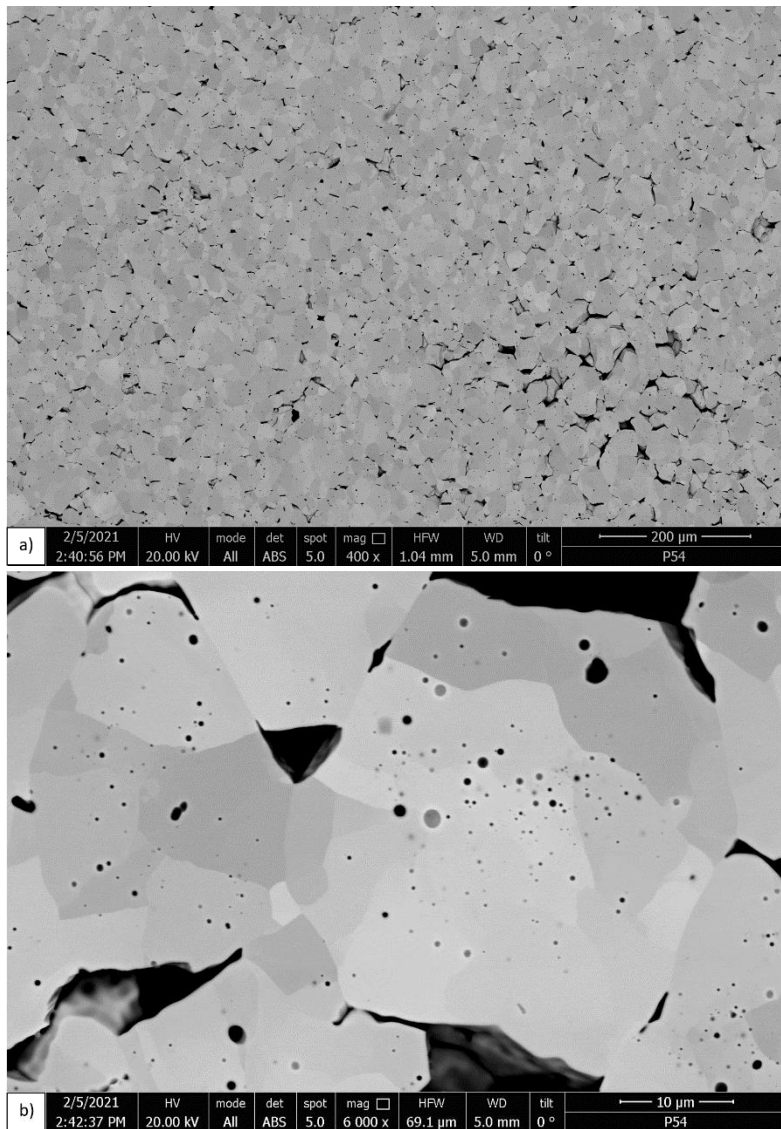


Figure V-31. Micrographies électroniques (MEB, mode : BSE) de l'échantillon A11, testé à 1620°C, acquises dans la région I, dans une zone présentant de nombreuses décohésions intergranulaires.

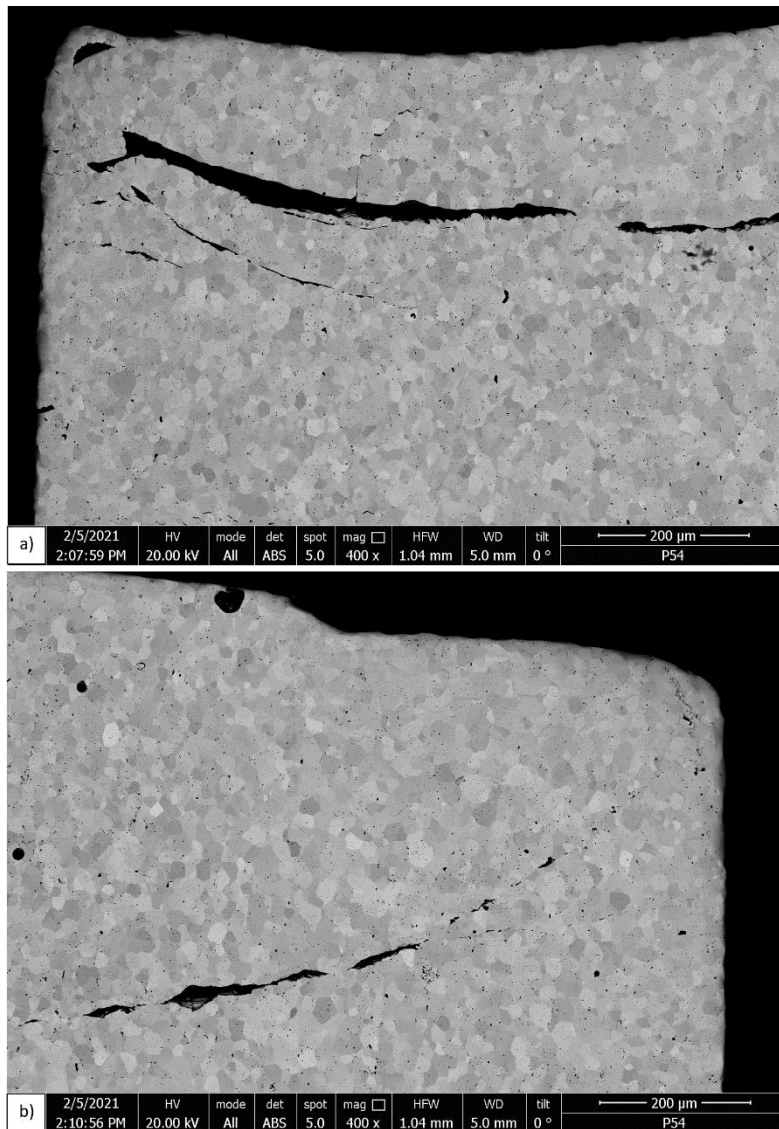


Figure V-32. Micrographies électroniques (MEB, mode : BSE) acquises dans la région III de l'échantillon A11 testé à 1620°C jusqu'à une déformation axiale finale de 19 %.

### **Pastille courte A8 – 1320°C - $pO_2 = 2,2 \cdot 10^{-13}$ atm – Déformation finale = 16%**

La Figure V-33 montre la microstructure d'une zone centrale (région I) de la pastille A8, de faible élanement, qui a été comprimée à 1320°C jusqu'à atteindre une déformation axiale de l'ordre de 16%. On retrouve un contraste intra-granulaire sur ces clichés, caractéristique d'une subdivision des grains d'origine. La taille des sous-grains semble être inférieure à celle observée dans les échantillons testés à plus forte température. Au-delà de cette particularité (qu'il faudrait d'ailleurs vérifier en déterminant précisément la taille des sous-grains), la microstructure de cette pastille présente certaines similitudes avec celle des autres pastilles déjà décrites : les microstructures dans la région II (Figure V-34) et III sont proches de la microstructure d'origine. La région III présente par contre une large fissure. Cet échantillon se distingue principalement des autres par l'absence de zones plus poreuses à forte décohésion intergranulaire que l'on retrouve sur l'ensemble des pastilles longues déformées à plus hautes températures.

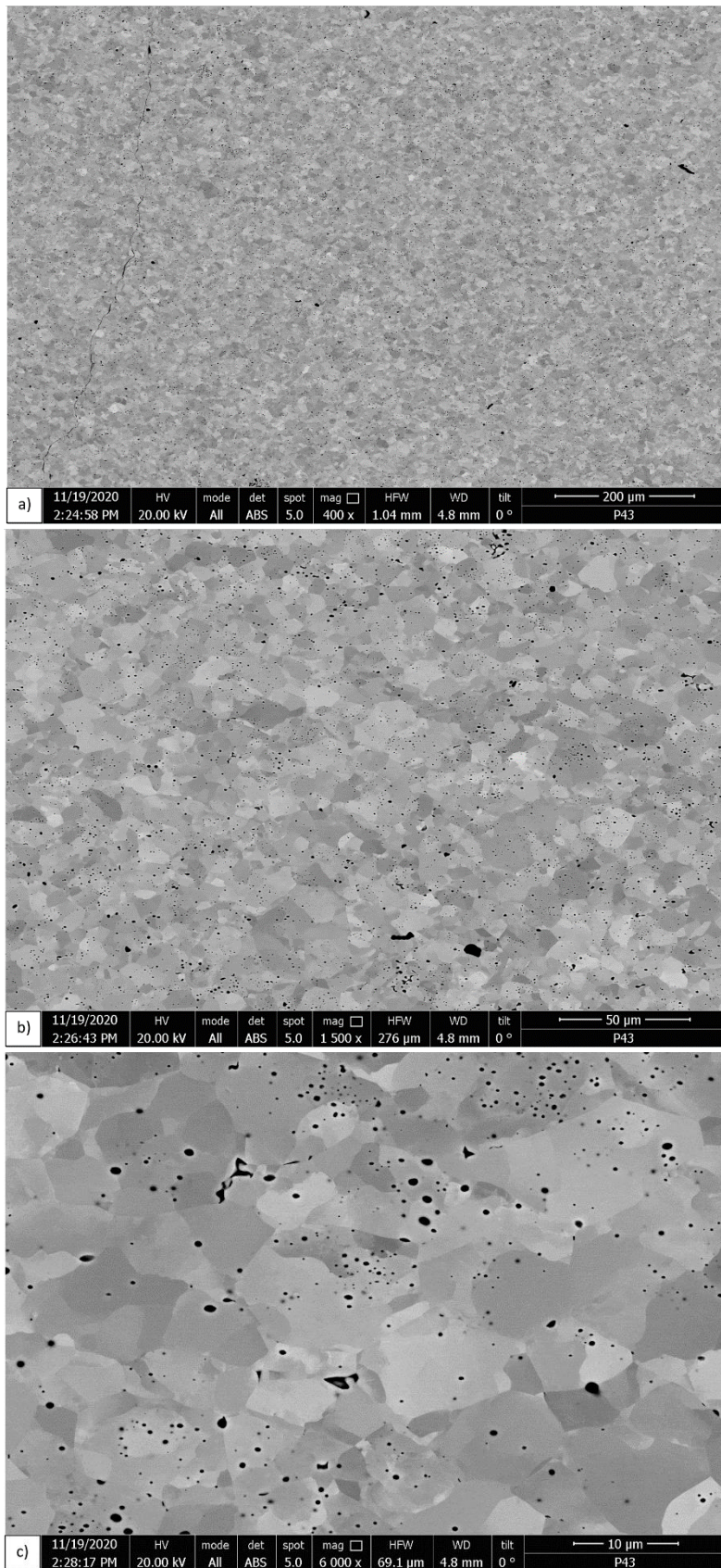


Figure V-33. Micrographies électroniques (MEB, mode : BSE) acquises dans la région I de l'échantillon A8 testé à 1320°C jusqu'à une déformation axiale finale de 16 %.

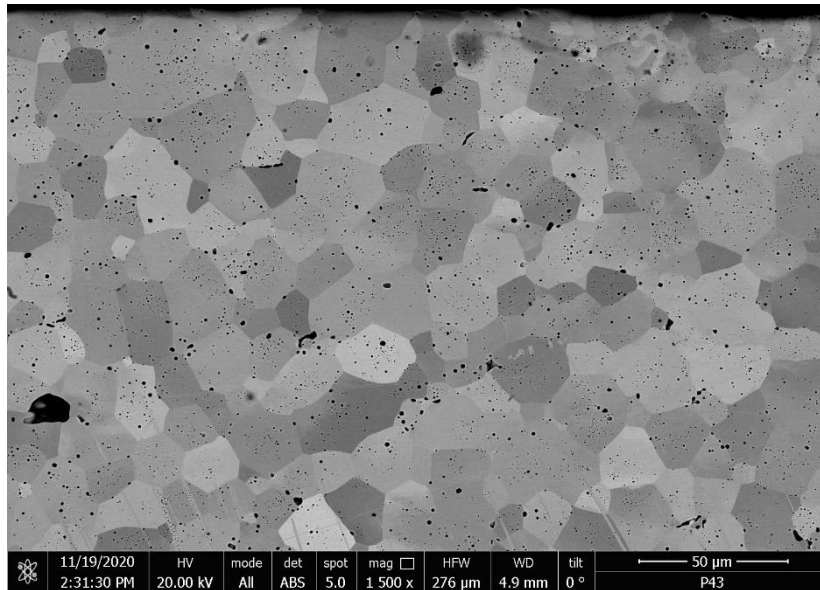


Figure V-34. Micrographie électronique (MEB, mode : BSE) acquise dans la région II de l'échantillon A8 testé à 1320°C jusqu'à une déformation axiale finale de 16 %.

### **Synthèse des examens par MEB réalisés sur les pastilles du lot A**

Les différents examens présentés précédemment mettent en évidence une microstructure qui est, dans l'ensemble, comparable à celles décrites dans différentes études antérieures relatives au dioxyde d'uranium déformé à haute température dans un domaine de fluage-dislocation (Ben Saada, 2017; Dherbey, 2000; Garcia et al., 2021; Ndiaye, 2012; Vivant-Duguay, 1998). Cette microstructure se caractérise par une subdivision des grains d'origines, résultat d'une réorganisation des dislocations en parois qui constituent des sous-joints de grains et permettent des rotations du cristal qui accommodent les incompatibilités de déformation entre grains. On trouve également des zones localisées à l'intérieur des régions de plus forte contrainte qui présentent un plus fort taux de porosité. Ces pores sont dus à une décohésion intergranulaire orientée suivant l'axe de compression de l'échantillon. On note une présence beaucoup plus importante de ces régions dans l'échantillon déformé à 1620°C, et à l'inverse une absence de celles-ci dans celui déformé à 1320°C sans qu'il soit possible de clarifier le rôle de l'éclatement. Pour finir, les examens réalisés à l'échelle de l'ensemble d'une section de l'échantillon sont assez bien corrélés à la distribution de contraintes pendant l'essai de compression. Nous analyserons cette relation plus précisément dans la section 5, en nous appuyant sur la simulation numérique des essais.

#### **V.4.1.3. Cartographies par EBSD**

Nous avons réalisé des cartographies par EBSD sur certains échantillons déformés en compression du lot A. Ces cartes fournissent une caractérisation de la microstructure complémentaire des images obtenues par MEB. Elles fournissent en particulier des informations relatives à la réorganisation des dislocations en sous-joints de grains et les désorientations qu'elle engendre entre les différentes régions du cristal. Les cartographies réalisées concernent des champs allant de 500x350 µm<sup>2</sup>. Elles ont été acquises avec un pas de 500 nm, choisi de façon à assurer un compromis raisonnable entre la durée d'acquisition (de l'ordre de 1h à 2h) et la résolution spatiale nécessaire à une mise en évidence correcte de la subdivision des grains d'origine (dont la taille est de l'ordre d'une dizaine de microns). La

résolution de la caméra ainsi que le mode d'indexation des clichés de diffraction ont eux aussi été choisis de façon à optimiser le temps d'acquisition, tout en garantissant la détection de sous-joints de grains faiblement désorientés (désorientations minimale détectée, au-dessus du bruit de désorientation :  $0,5^\circ$ ). Nous avons appliqué les méthodes de traitement de ces cartographies établies par Ben Saada (Ben Saada, 2017).

Examinons dans un premier temps les cartes réalisées sur la pastille A4, déformée à  $1520^\circ\text{C}$  à une pression partielle d'oxygène relativement élevée et jusqu'à un taux de déformation axiale de 19 %. La Figure V-35 présente une de ces cartes, acquise dans le cœur de la pastille (région I). On observe une microstructure typique d'un échantillon déformé en fluage-dislocation, avec une proportion très importante de sous-joints de grains (colorisés en jaune, cyan ou rose, selon leur classe de désorientation). La Figure V-36 est relative à un champ de même surface situé également dans la région I, mais dans une zone de la pastille présentant de nombreuses décohésions intergranulaires (région II). Il semblerait, à première vue, que la subdivision des grains y soit plus importante que dans la zone ne présentant pas de décohésions intergranulaires. Ces deux figures révèlent aussi assez nettement un allongement des grains dans une direction perpendiculaire à l'axe de compression de la pastille (horizontale).

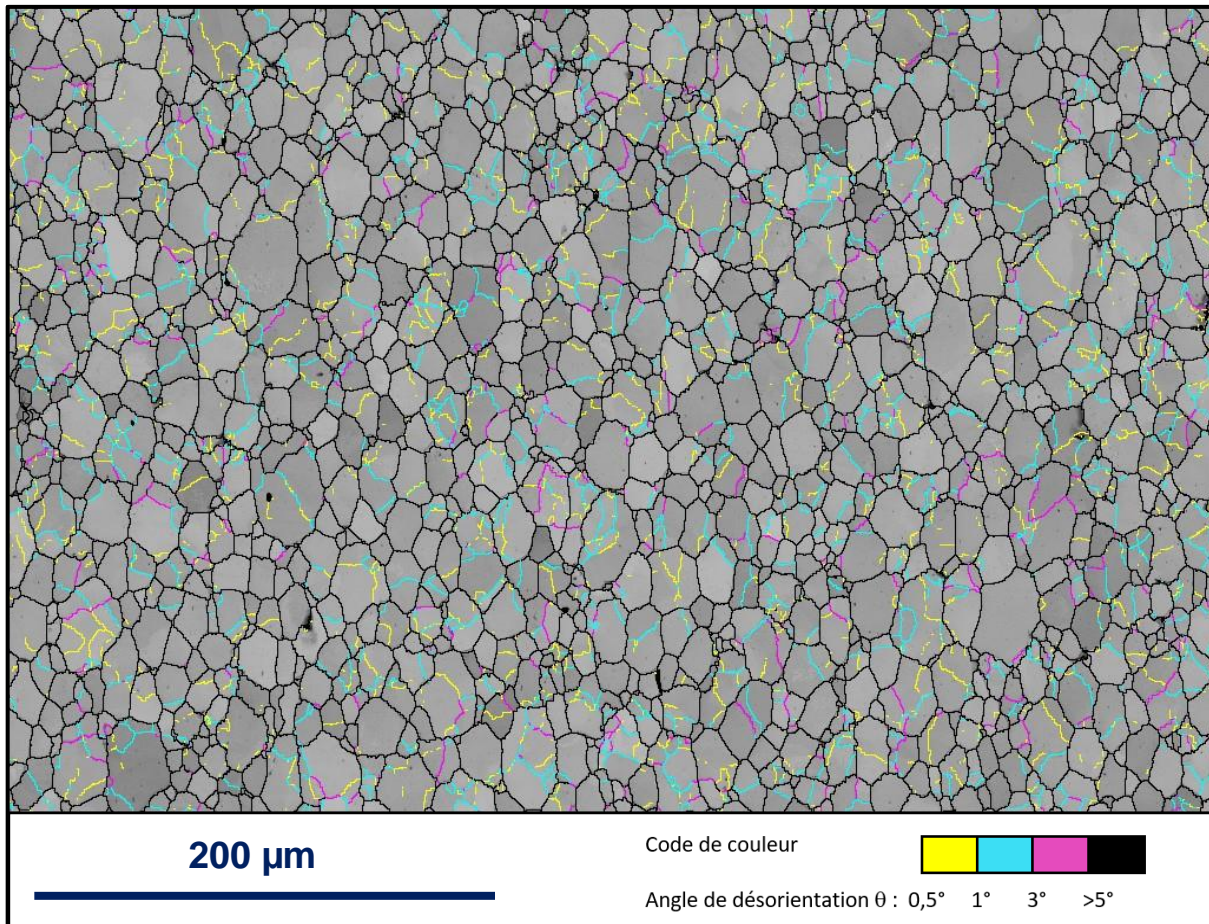


Figure V-35. Carte EBSD d'indice de qualité de diffraction et de désorientation : mise en évidence des joints de grains et sous-joints de grains au sein d'une zone contenue dans une région de type I dans l'échantillon A4 déformé à  $1520^\circ\text{C}$  jusqu'à une déformation axiale de l'ordre de 19 %.

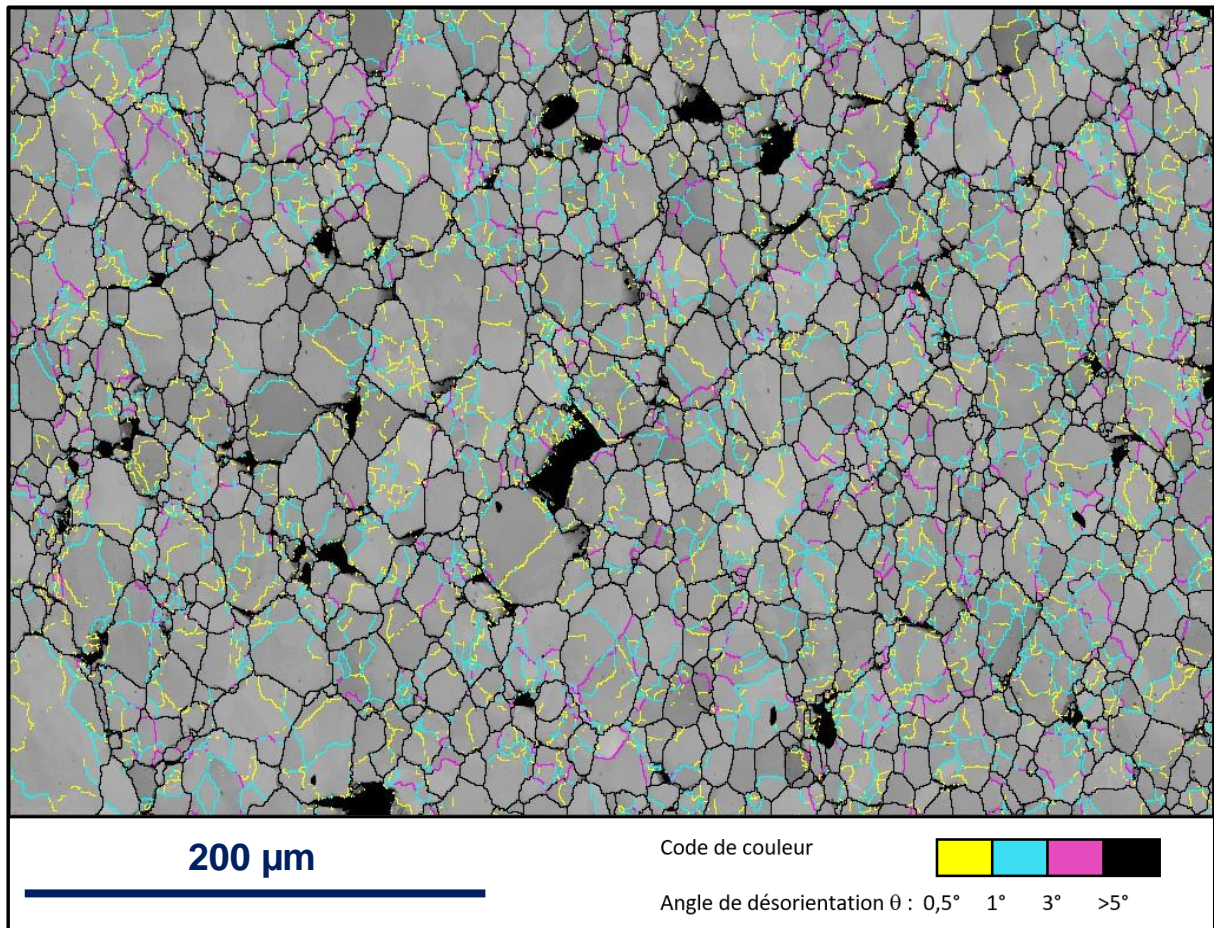


Figure V-36. Carte EBSD d'indice de qualité de diffraction et de désorientation : mise en évidence des joints de grains et sous-joints de grains au sein d'une zone contenue dans une région de type I avec une très forte porosité dans l'échantillon A4 déformé à 1520°C jusqu'à une déformation axiale de l'ordre de 19 %.

Enfin, la Figure V-37, qui concerne une zone proche de l'interface cale-échantillon (**région II**) et à proximité de l'axe de révolution de la pastille, révèle une microstructure qui semble voisine de la microstructure initiale du matériau. Aucune subdivision intra-granulaire n'y est décelable et les grains y paraissent équiaxes, contrairement à ceux des Figure V-35 et Figure V-36.

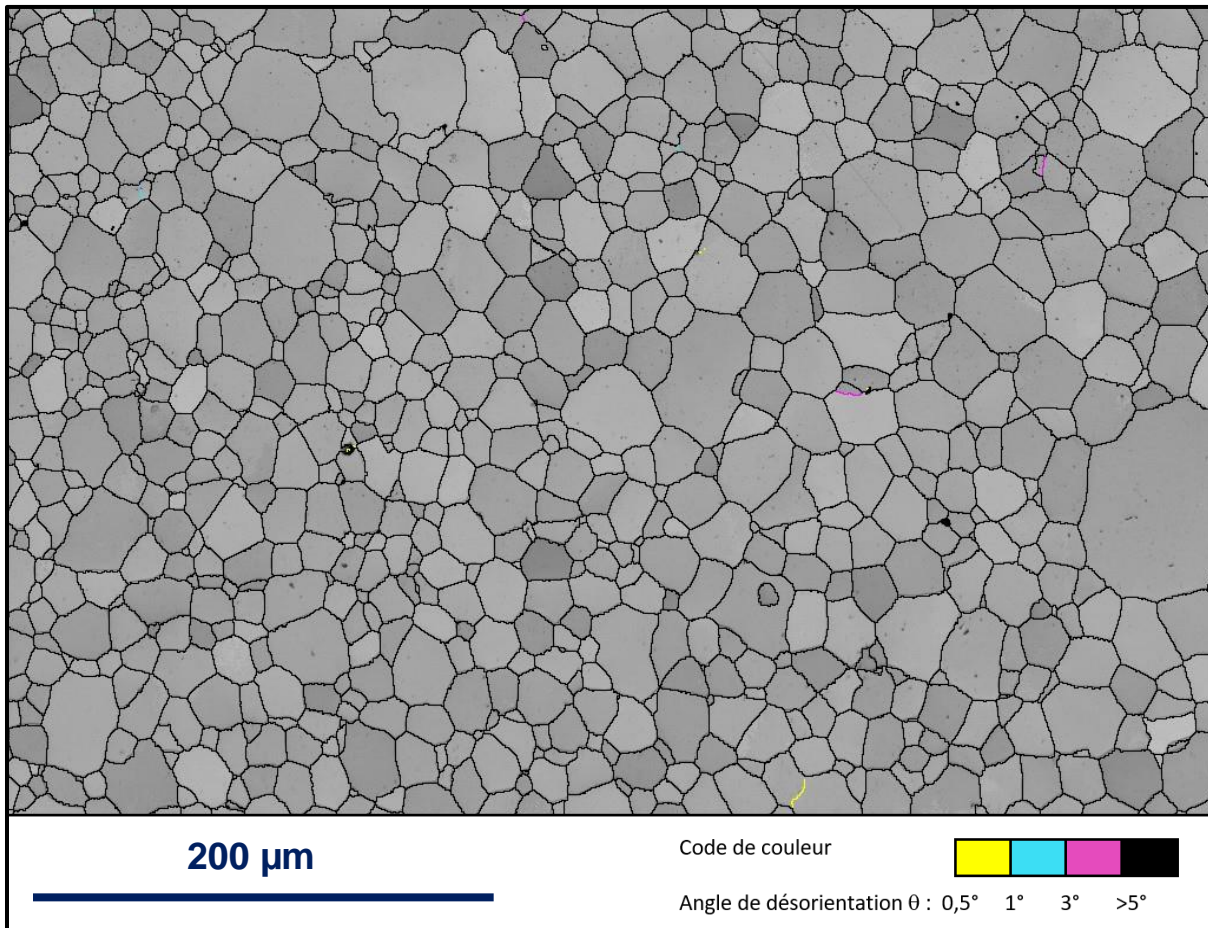


Figure V-37. Carte EBSD d'indice de qualité de diffraction et de désorientation : mise en évidence des joints de grains et sous-joints de grains au sein d'une zone contenue dans une région de type II à proximité de l'interface avec la cale, dans l'échantillon A4 déformé à 1520°C jusqu'à une déformation axiale de l'ordre de 19 %.

Ces observations peuvent être quantifiées en termes de taille et de ratio d'aspect des grains, d'une part, et de fraction linéaire de sous-joints de grains, d'autre part. Alors que l'imagerie par MEB fournit une vision qualitative de la subdivision des grains, l'analyse par EBSD permet de mieux la révéler et de la quantifier. On peut raisonnablement supposer que cette subdivision reflète une accommodation de la déformation par le matériau. Ainsi, la distribution des contraintes et déformations révélées par le calcul doivent pouvoir être corrélées aux analyses EBSD, comme le suggère la comparaison des Figure V-35, Figure V-36, Figure V-37. Dans cet objectif, nous avons réalisé une série de 16 cartes EBSD le long de l'axe de révolution de la pastille, partant de la zone d'interface avec la cale (II) et allant jusqu'au cœur de la région I (ces cartes sont référencées II.1, à II.16). Chacune des cartes, d'une largeur de 500 μm, est traitée et analysée dans le but de déterminer la fraction linéaire de joints de grains par classe d'orientation. La Figure V-38 résume les résultats de cette étude.

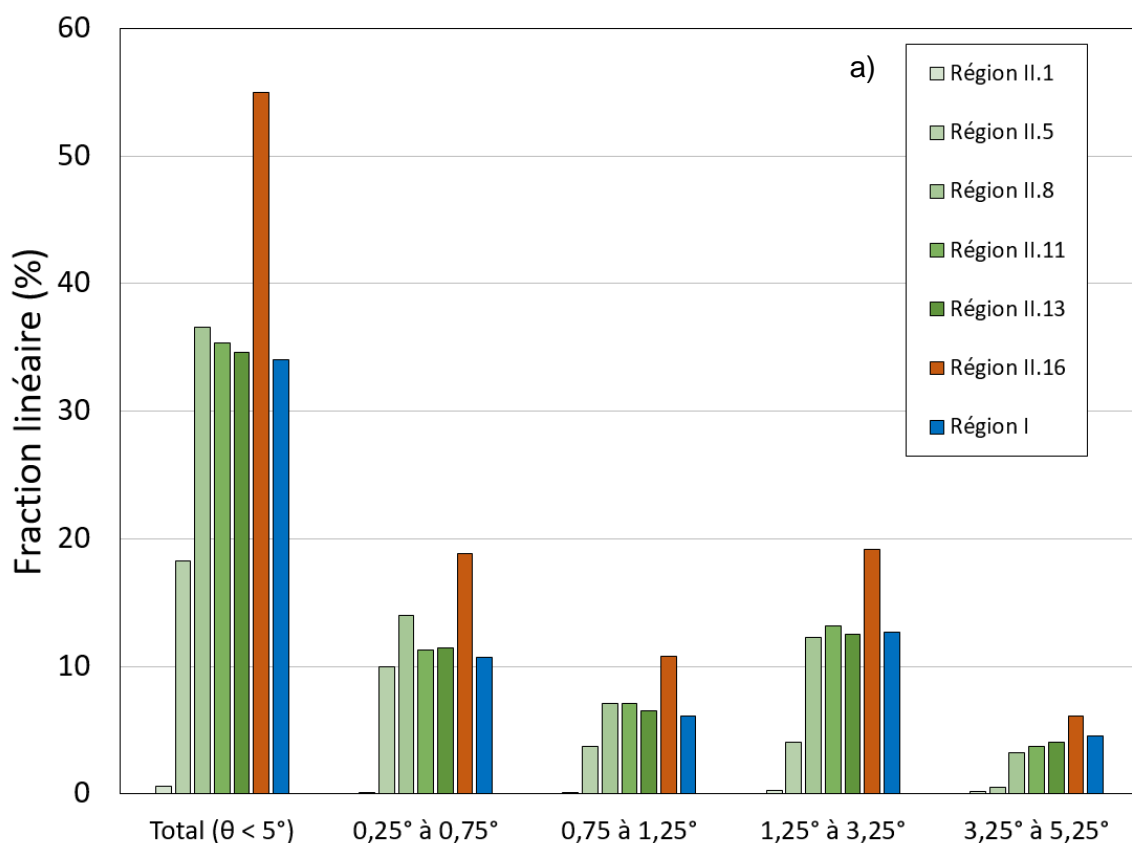
Plusieurs remarques peuvent être faites en complément de cette figure :

i. Tout d'abord, nous avons remarqué que la fraction linéaire de sous-joints augmentait progressivement de 0 jusqu'à une valeur d'environ 35%, en se déplaçant de l'interface avec la cale (carte II.1), à la carte II.8 située à 2,5 mm de l'interface environ. Les histogrammes de sous-joints de grain sont quasiment identiques au-delà d'une distance de 2,5 mm de l'interface (correspondant à la carte II.8).

ii. La carte réalisée dans une zone contenant une forte décohésion intergranulaire (carte II.16, histogramme orange sur la Figure V-38) se caractérise par une fraction linéaire de sous-joints de grains significativement supérieure aux autres cartes acquises dans une zone localisée sensiblement au même endroit (en terme de distance par rapport à l'interface), et ce dans toutes les classes de désorientation, principalement en dessous de  $3,25^\circ$ .

iii. Nous avons rapporté sur cette figure les données correspondant à une zone située dans une région de type I (code couleur bleu) mais cumulant les données relatives à quatre cartes de mêmes dimensions que toutes les autres. Le fait que les fractions linéaires de sous-joints soient sensiblement les mêmes que celles trouvées dans les régions fortement déformées, et ce quelle que soit la classe de désorientation, montre qu'une cartographie de  $500 \times 350 \mu\text{m}^2$  est suffisante pour que les données qui en sont déduites soient statistiquement représentatives.

Il semble donc qu'il soit possible d'identifier les frontières entre les différentes régions précédemment décrites par imagerie au MEB à partir des fractions linéaires de sous-joints de grains caractérisés par EBSD. Ainsi, cette grandeur pourrait constituer un indicateur fiable de l'homogénéité de la déformation dans une pastille.





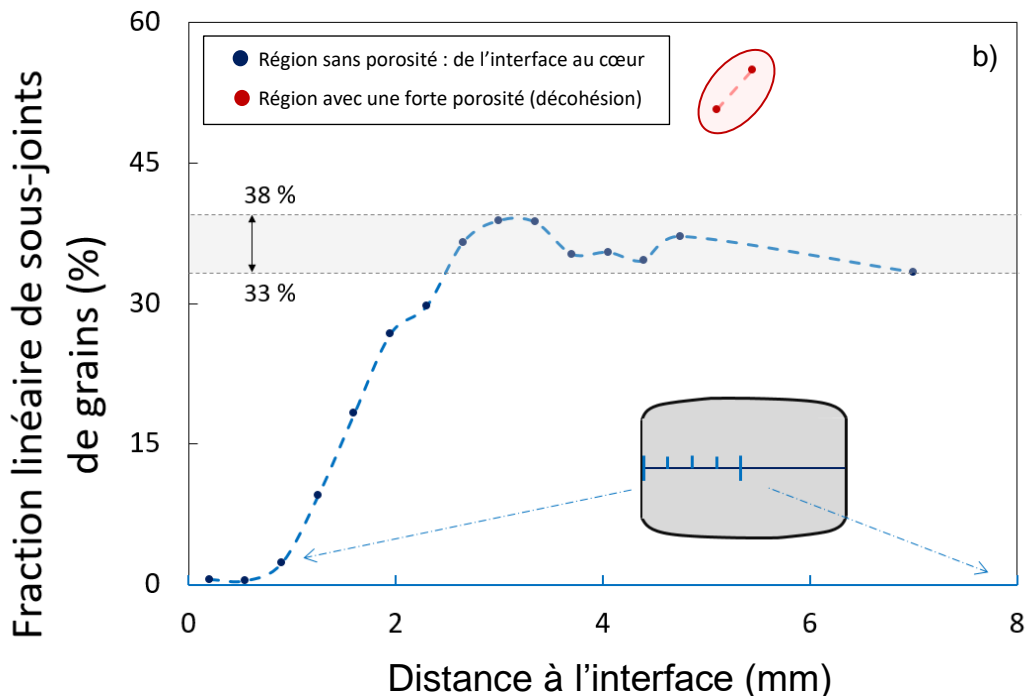


Figure V-38. a) Histogrammes de fractions linéaires de sous-joints de grains déduits des cartes EBSD réalisées le long de l'axe de révolution de l'échantillon A4 - 1520°C - pO<sub>2</sub> haute. b) Evolution de la fraction linéaire totale de sous-joints de grains en fonction de la distance à l'interface avec la cale.

Il peut s'avérer maintenant intéressant d'utiliser la méthode que nous venons de décrire pour comparer différents échantillons entre eux dans le but de caractériser l'influence des paramètres thermodynamiques intensifs tels que la pression d'oxygène, la contrainte ou la température sur la microstructure du matériau déformé.

Outre la pastille A4, nous avons donc réalisé des cartes EBSD sur trois échantillons supplémentaires : la pastille A3 déformée à 1520°C à basse pression partielle d'oxygène, la pastille A11 déformée à 1620°C à forte pression d'oxygène, et enfin la pastille courte A8 déformée à 1320°C. Les pastilles A4 et A11 présentent une déformation axiale finale de 19%. La pastille A3 a été déformée jusqu'à 16 %, et la pastille A8 également à 16%. La Figure V-39 rapporte les histogrammes de fractions linéaires de sous-joints de grains par classe de désorientation pour ces différentes pastilles, dans une zone de la Région I. Ces zones ont été choisies en dehors des régions où la décohésion intergranulaire est importante, à l'exception de la pastille comprimée à 1620°C, compte tenu du fait que dans la région I de cette pastille, cette décohésion est quasi-généralisée. Cette figure amène les commentaires suivants :

i- La fraction totale de sous-joints de grains mesurée dans deux zones de fortes déformations, se situe aux alentours de 35 à 40 % pour les deux échantillons longs déformés à 1520°C, à des vitesses de déformation et jusqu'à des déformations axiales comparables et ce, malgré le fait que les pressions d'oxygène auxquelles les deux essais ont été conduits diffèrent de deux ordres de grandeurs. Malgré tout, il semble difficile de conclure sur la base de ces seules observations, sur l'influence la pression d'oxygène sur la subdivision des grains.

ii- Toujours dans les zones de fortes déformations, l'échantillon A11 déformé à 1620°C présente une fraction linéaire de sous-joints de grains très importante (de l'ordre de 50 à 55%) qui, en comparaison à l'échantillon A4, semble caractériser les régions de fortes décohésions intergranulaires.

iii- La pastille courte du lot A déformée à 1320°C présente également dans sa zone de contrainte maximale une fraction linéaire de sous-joints de grains élevée, alors que la région correspondante ne présente que peu ou pas de décohésion intergranulaire. Cette constatation est à rapprocher des micrographies électroniques correspondantes sur lesquelles on observe une sous-structuration très avancée.

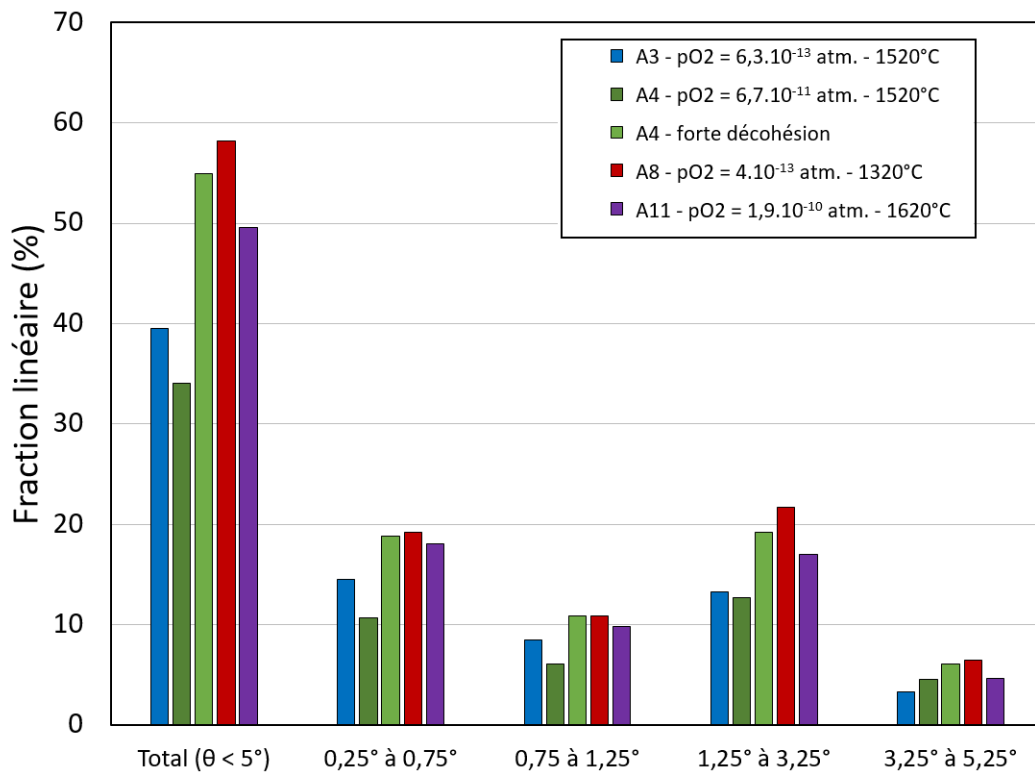
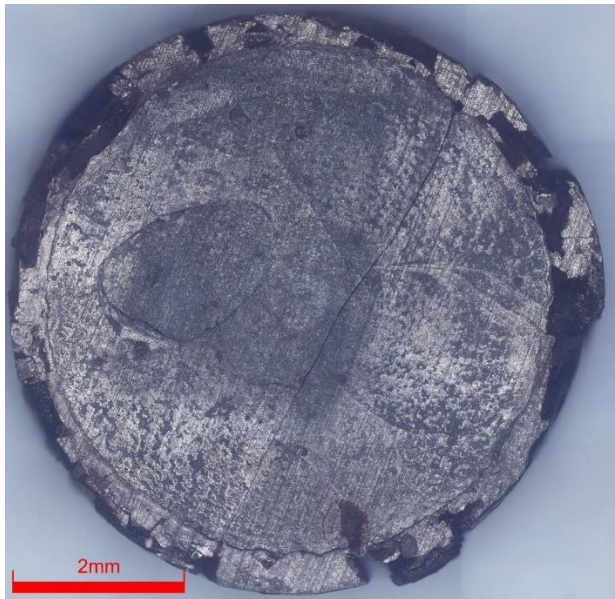


Figure V-39. Histogrammes de fractions linéaires de sous-joints de grains déduits des cartes EBSD réalisées le long de l'axe de révolution des échantillons élancés (A3, A4 et A11) et d'un échantillon court (A8).

## V.4.2. Lot B

### V.4.2.1. Observations macroscopiques

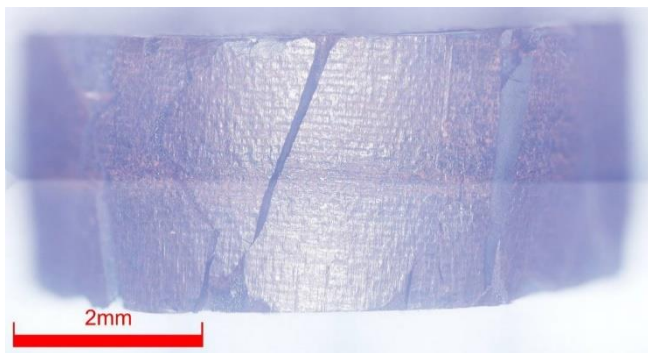
La Figure V-40 présente des images optiques de plusieurs échantillons du lot B à l'issue d'un essai. On constate un endommagement macroscopique significatif avec un délitement de la couronne extérieure de la pastille. Ces observations s'appliquent à tous les essais réalisés sur ces pastilles indépendamment des conditions d'essais. L'observation des surfaces des pastilles B1 et B2 en contact avec les cales en tungstène expliquerait, si cet endommagement a lieu au cours de l'essai, une dispersion substantielle de la charge appliquée d'un essai à l'autre, toutes conditions égales par ailleurs. Cette hypothèse constitue une explication crédible des résultats présentés dans la section V.3.3.2 de ce chapitre. Les effets combinés du mode de fabrication, de la faible température et du faible élancement des échantillons se combinent sans doute pour induire la dégradation observée de l'éprouvette.



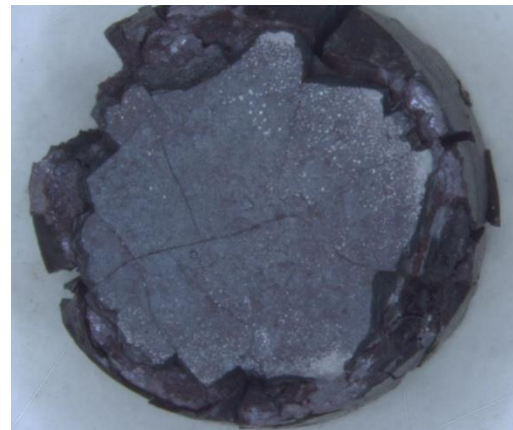
Pastille B1 –  $pO_2 = 3,1 \cdot 10^{-14} \text{atm}$  -  $\dot{\epsilon} = 5 \cdot 10^{-5} \text{s}^{-1}$



Pastille B7 –  $pO_2 = 1 \cdot 10^{-12} \text{atm}$  -  $\dot{\epsilon} = 1 \cdot 10^{-4} \text{s}^{-1}$



Pastille B1



Pastille B2 –  $pO_2 = 2,2 \cdot 10^{-13} \text{atm}$  -  $\dot{\epsilon} = 5 \cdot 10^{-5} \text{s}^{-1}$

Figure V-40. Images optiques de différentes pastilles du lot B à l'issue d'un essai de compression à 1320°C.

Malgré les difficultés à déterminer les paramètres d'une loi de comportement, même phénoménologique, sur la base des essais réalisés sur ces objets, il est intéressant d'examiner l'impact des conditions d'essais sur leur microstructure.

#### V.4.2.2. Examens de coupes radiales et transversales par microscopie optique et électronique

##### V.4.2.2.1. Vues d'ensembles

De la même façon que dans la section précédente, nous référençons les différentes régions des pastilles comme indiqué sur la Figure V-41. On remarque que l'orientation est différente, avec une rotation de 90°. **L'axe de compression sur les figures suivantes est dorénavant suivant l'axe verticale.**

La première région (I) correspond au cœur de la pastille ; la deuxième (II) à l'interface avec les cales inférieure et supérieure à proximité de l'axe de révolution ; la troisième zone (III) correspond à une région autour de la diagonale de la coupe transversale, siège d'un cisaillement important ; et enfin la quatrième (IV) est une vue suivant une coupe radiale de la microstructure.

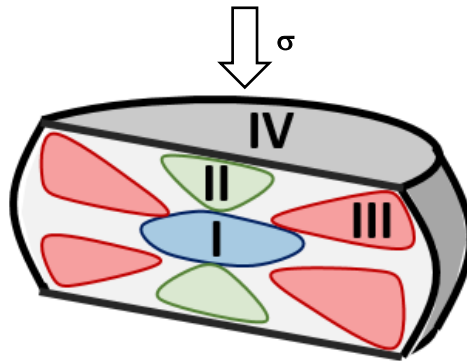


Figure V-41. Représentation schématique d'une tranche de pastille déformée. Illustration des différentes régions : I - centrale ; II - Interface/centre ; III - Interface/bordure ; IV - vue radiale.

Les Figure V-42 et Figure V-43 sont constituées d'un montage de plusieurs micrographies optiques et permettent de visualiser chaque échantillon dans son ensemble. On aperçoit sur ces images de multiples signes d'endommagement tels que : des fissures axiales traversant la pastille dans son épaisseur, une forte fissuration dans la région de type III accompagnée d'un arrachement de matière important, sans doute au moment de la préparation céramographique, signe d'une faible ténacité.

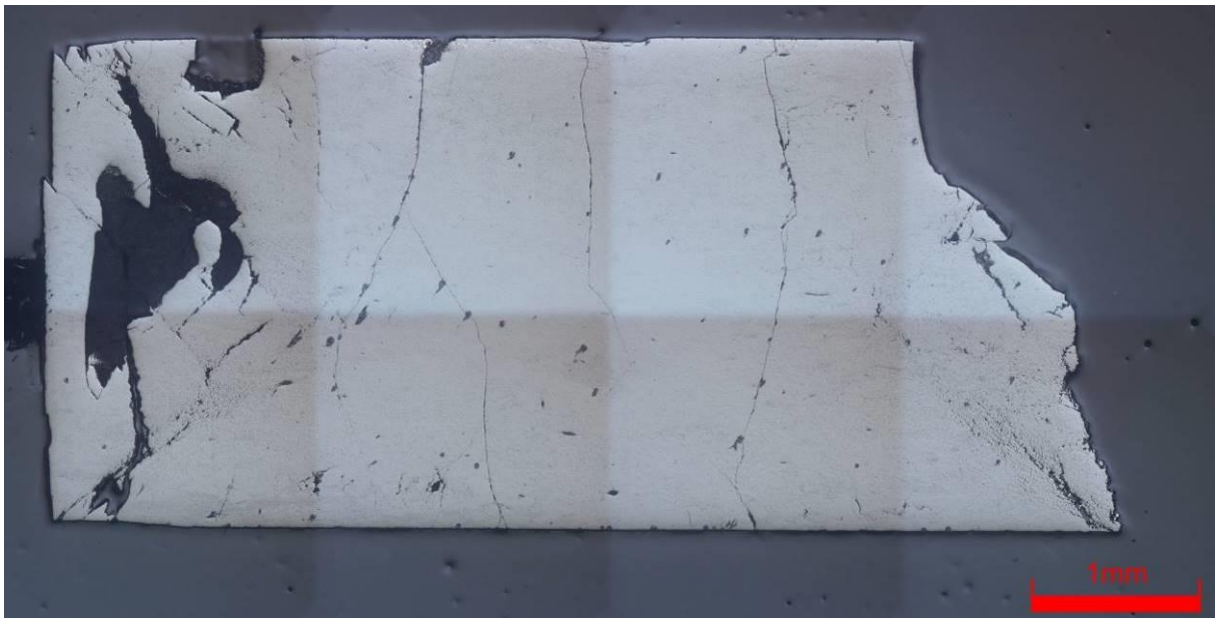


Figure V-42. Montage d'images optiques d'une coupe transversale de la pastille B1 [ $T = 1320^{\circ}\text{C}$  –  $p\text{O}_2 = 3,1 \cdot 10^{-14}$  atm. –  $v = 11 \mu\text{m} \cdot \text{min}^{-1}$ ].



Figure V-43. Montage d'images optiques sur une tranche transversale de la pastille B2 [ $T = 1320^{\circ}\text{C}$  –  $p\text{O}_2 = 2,2 \cdot 10^{-13} \text{ atm.}$  –  $v = 11 \mu\text{m} \cdot \text{min}^{-1}$ ].

#### V.4.2.2.2. Examens par MEB

Les observations réalisées par microscopie électronique à l'issue des essais révèlent des similitudes dans les microstructures avec les échantillons du lot A. Les microstructures relatives aux différentes régions présentent des spécificités qui sont l'image des mécanismes de déformation dont ces régions sont le siège. La Figure V-44, qui montre la région centrale de l'échantillon (région de type I), révèle la présence de grains fortement sous-structurés et substantiellement allongés dans la direction perpendiculaire à l'axe de compression. Cette région ne présente pas de traces d'endommagement de type fissuration, ni de décohésions intergranulaires substantielles. La région II se caractérise par un très faible niveau de déformation, et donc par une microstructure très proche de son état initial. La région III, à l'inverse, est fortement marquée par la présence de décohésions intergranulaires (Figure V-45). On note que les cavités sont grossièrement alignées suivant une diagonale de la coupe transversale, c'est-à-dire qu'elles sont dirigées suivant la direction de cisaillement maximal. De plus, la sous-structuration présente des similitudes avec celle observée dans la première région, mais les grains ne semblent pas s'allonger. La comparaison des Figure V-44b et Figure V-45b, de même grandissement, montre que les grains n'ont pas la même taille : ils sont significativement plus gros dans le cas de la seconde figure. Enfin, la Figure V-46 révèle la microstructure d'une pastille testée en compression telle qu'observée suivant une coupe radiale, c'est-à-dire dans un plan perpendiculaire à l'axe de compression (région IV). Les grains apparaissent équiaxes dans ce plan d'observation, ce qui est cohérent compte tenu des directions de sollicitation et d'observation. De plus, on observe une

importante décohésion intergranulaire à proximité de la couronne externe. Celle-ci reflète des problèmes d'interfaces similaires à ce que l'on peut observer dans la région III.

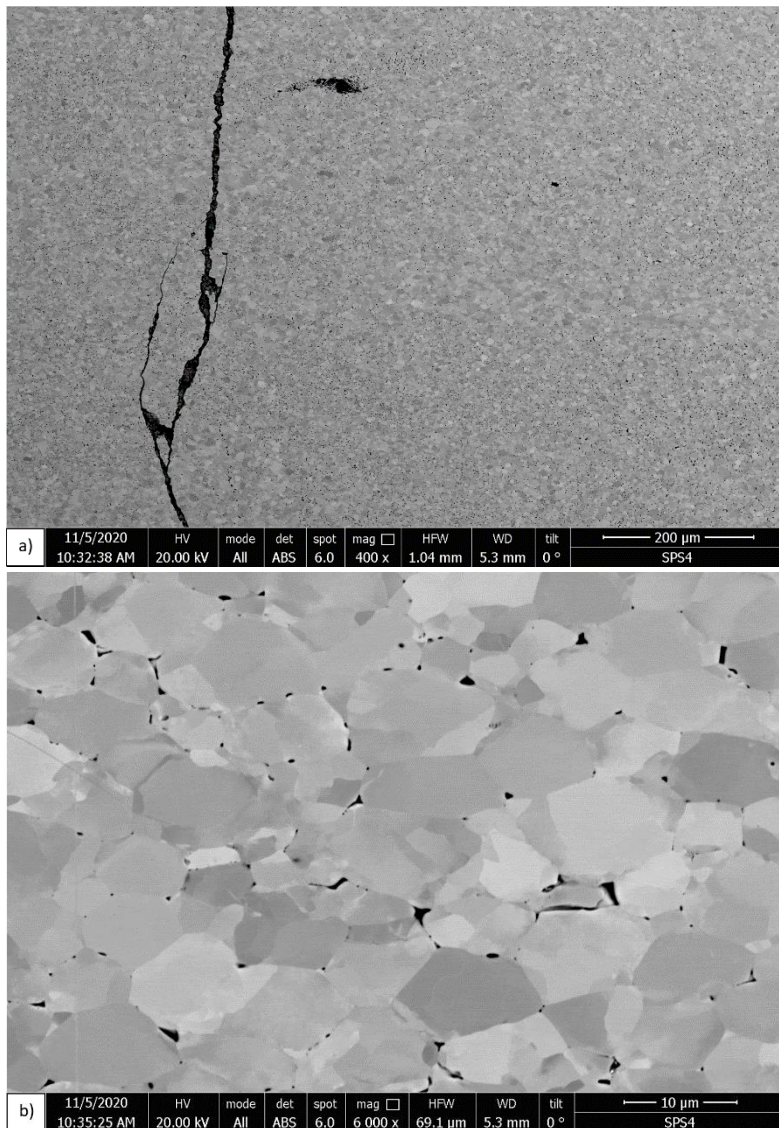


Figure V-44. Micrographies électroniques (MEB, mode : BSE) acquises à plusieurs grossissements sur la pastille B4 [ $T = 1320^{\circ}\text{C}$  –  $p_{\text{O}_2} = 3,1 \cdot 10^{-14}\text{atm}$  –  $v = 5 \mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$ ] - région I, déformation axiale d'environ 13%.

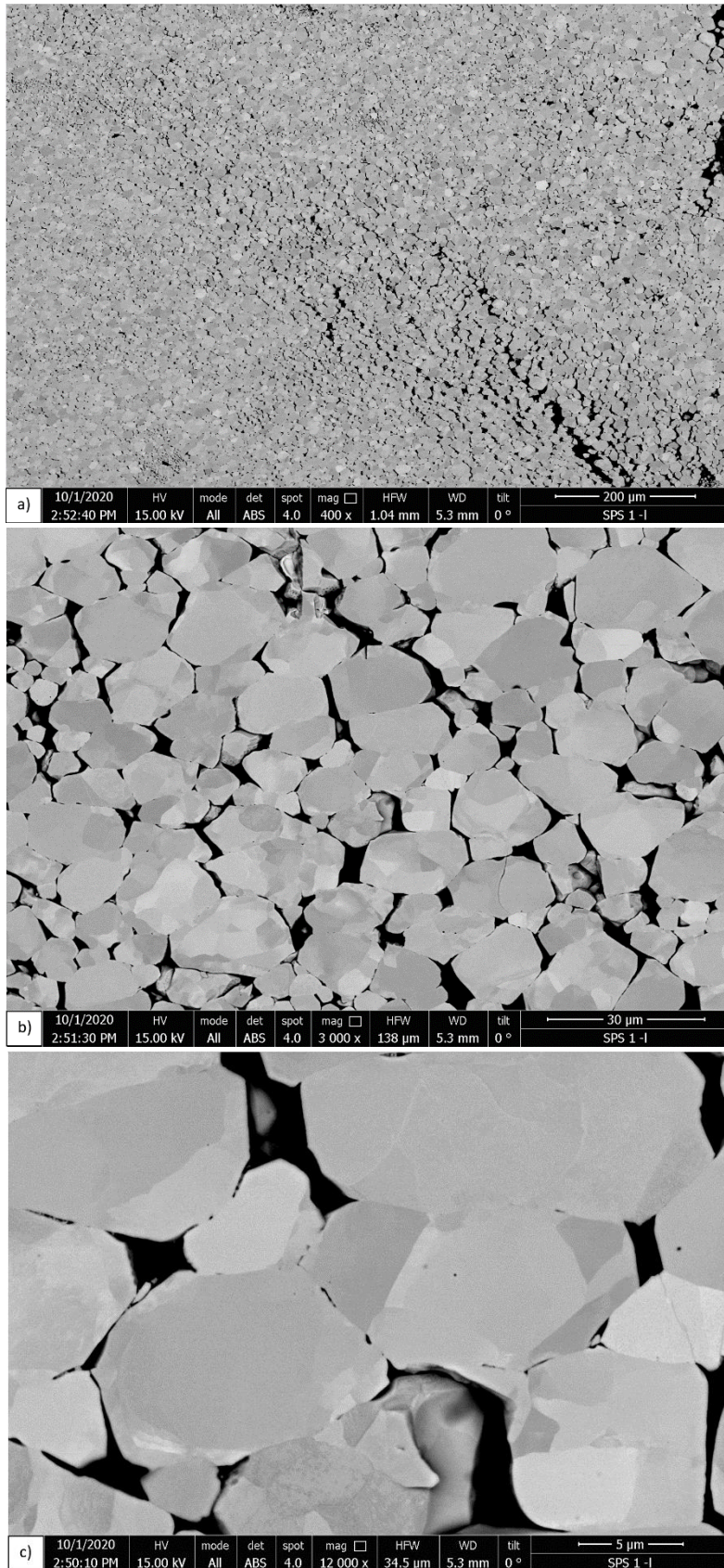


Figure V-45. Micrographies électroniques (MEB, mode : BSE) acquises à plusieurs grandissements sur la pastille B1 [ $T = 1320^{\circ}\text{C} - p_{\text{O}_2} = 3,1 \cdot 10^{-14} \text{ atm.} - v = 11 \mu\text{m} \cdot \text{min}^{-1}$ ] – région III, déformation axiale d'environ 16,6 %.

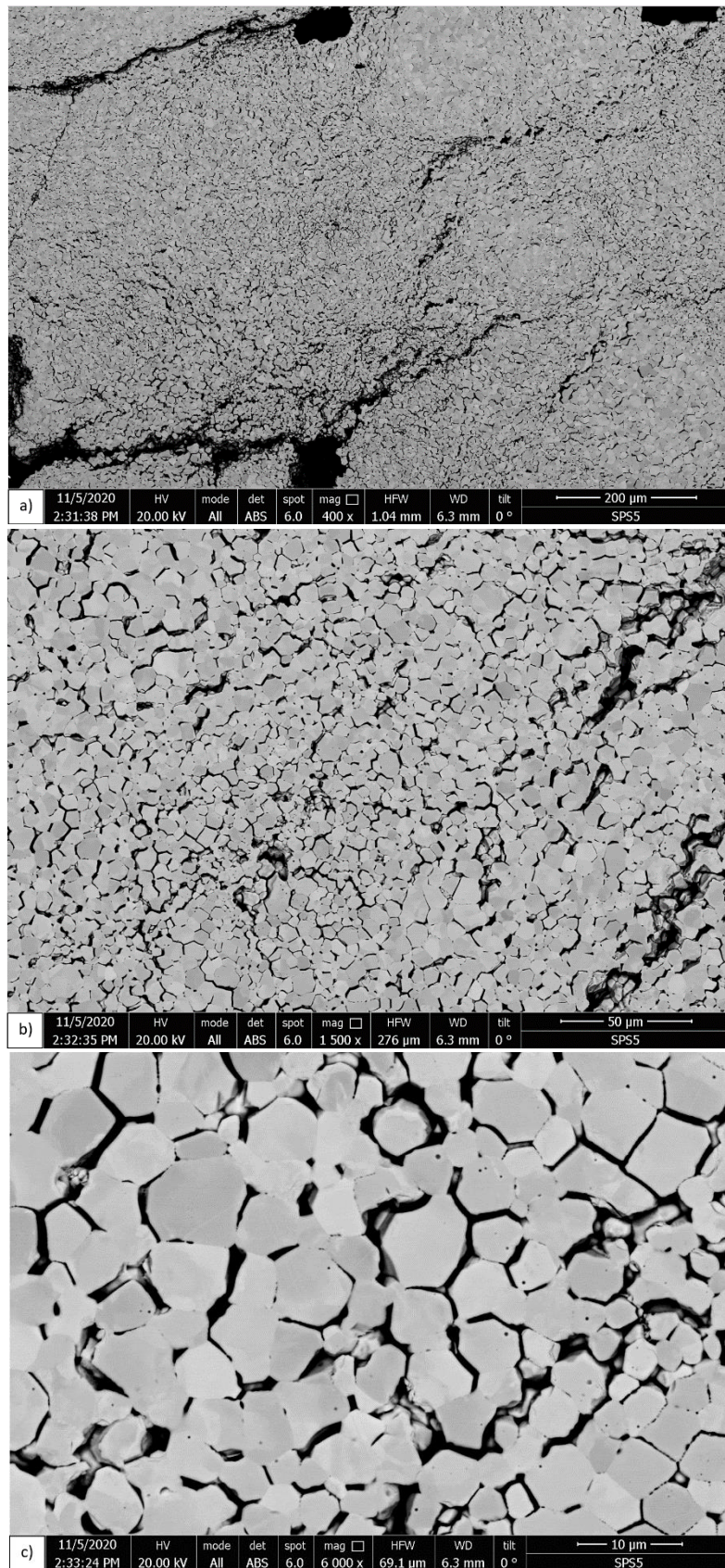


Figure V-46. Micrographies électroniques (MEB, mode : BSE) acquises à plusieurs grandissements sur la pastille B5 [ $T = 1320^{\circ}\text{C}$  –  $p_{\text{O}_2} = 2,2 \cdot 10^{-13}$  atm. –  $v = 5 \mu\text{m} \cdot \text{min}^{-1}$ ] – région IV, déformation axiale d'environ 13,4%.



Les examens par MEB mettent en évidence une microstructure très variable d'une région de la pastille à l'autre, chacune présentant des caractéristiques particulières. À cœur, on observe des grains subdivisés en sous-grains, phénomène caractéristique du fluage-dislocation. Près de l'interface avec la cale en tungstène, on observe une forte décohésion des grains. Cet endommagement important n'a pas été observé dans cette région pour les échantillons du lot A quel que soit leur élancement (pastilles longues à 1520°C et 1620°C ou pastille courte à 1320°C). Cette décohésion est donc peut-être le reflet d'une ténacité très inférieure des pastilles du lot B.

#### V.4.2.3. Cartographies EBSD

Du fait de la petite taille des grains constituant les pastilles du lot B, les conditions d'acquisition des cartes EBSD ont été adaptées de la façon suivante : la taille des champs est de 300x200  $\mu\text{m}^2$  et le pas d'acquisition a été réduit à 140 nm. Par conséquent, les temps d'acquisition par carte ont été significativement augmentés.

Dans un premier temps, intéressons-nous à la taille des grains. En effet, une des raisons pour laquelle nous avons réalisés les essais du lot B à 1320°C était de limiter le plus possible la croissance granulaire. Les cartographies EBSD nous permettent de quantifier cet effet potentiel sur la base de plusieurs milliers de grains.

##### V.4.2.3.1. Taille des grains

Nous avons établi des histogrammes de distribution en nombre de grains dans la zone centrale de chacune des pastilles (région I) sur la base de cartographies EBSD comprenant plusieurs milliers de grains. En analysant plusieurs cartographies contiguës dans cette région centrale, nous avons également vérifié qu'une seule était suffisante pour établir un histogramme statistiquement représentatif. Finalement, nous avons recuit un fragment de la pastille de référence sous atmosphère contrôlée pendant 24 heures à 1320°C, temps généralement retenu pour mettre à l'équilibre l'échantillon avant l'essai mécanique à proprement parler. Ce fragment a ensuite été caractérisé par microscopie dans le but de vérifier qu'un recuit thermique seul dans des conditions proches de celles utilisées pour les essais n'était pas de nature à faire croître les grains de manière significative.

La Figure V-47 compare les histogrammes de distribution en nombre de l'échantillon de référence à l'échantillon ayant subi un essai de compression à 1320°C. Elle montre que les grains du matériau croissent de manière significative pendant l'essai de compression et que cette croissance n'est pas due, pour la raison invoquée ci-dessus, à un effet de température uniquement. Il s'agit donc bien de croissance granulaire assistée par la diffusion dans un gradient de potentiel chimique, lui-même lié à un gradient de contraintes à l'échelle du grain (voir chapitre 1, section I.3.2). Ainsi, à l'issue de l'essai de compression, la taille moyenne des grains augmente et la distribution de taille s'est élargie.

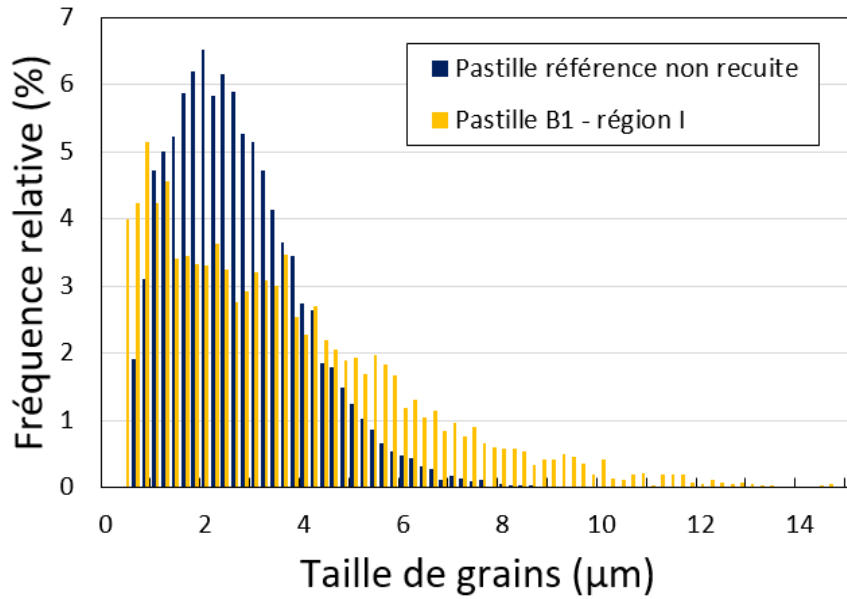


Figure V-47. Histogramme de distribution en nombre en fonction de la taille de grain (DCE) pour l'échantillon B1 (dans la région I). Comparaison avec la distribution de référence.

Une comparaison quantitative de l'allongement des grains a également pu être faite à partir de ces cartes. En assimilant les grains à des ellipses, le rapport entre le grand axe et le petit axe permet de quantifier leur allongement. La Figure V-48 compare ce rapport pour les grains de l'échantillon B1 dans les régions I et II avec l'échantillon de référence. On constate un allongement très prononcé à cœur (région I).

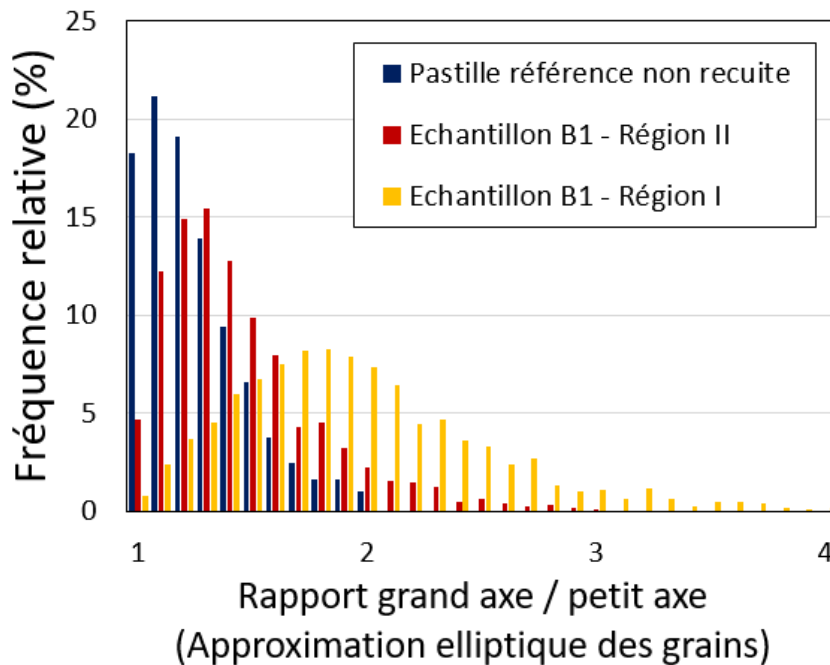


Figure V-48. Histogramme de la fréquence relative du rapport grand axe / petit axe des grains (avec une approximation elliptique). Région I – Echantillon B1.

V.4.2.3.2. Fraction linéaire de sous-joints de grains

Les Figure V-49, Figure V-50 et Figure V-51 sont des cartographies EBSD présentées en indice de qualité de diffraction (niveaux de gris) et en désorientation (selon le code couleur indiqué sur chaque figure, pour la détection des sous-joints de grains et des joints de grains). Les régions sous-structurées (Figure V-49 – région I ; Figure V-50 – région III) laissent apparaître de nombreux sous-joints de grains. A l'inverse, on peut voir sur la Figure V-51 (région IV) une microstructure présentant très peu de sous-joints de grains, signe que la déformation locale y est faible et, en tout état de cause, que les grains qui constituent le matériau ne sont pas le siège de rotations liées à l'émission et à la réorganisation de dislocations. La Figure V-50 met également en évidence une décohérence intergranulaire intense, alignée suivant un angle  $45^\circ$  par rapport à l'extrémité de la pastille.

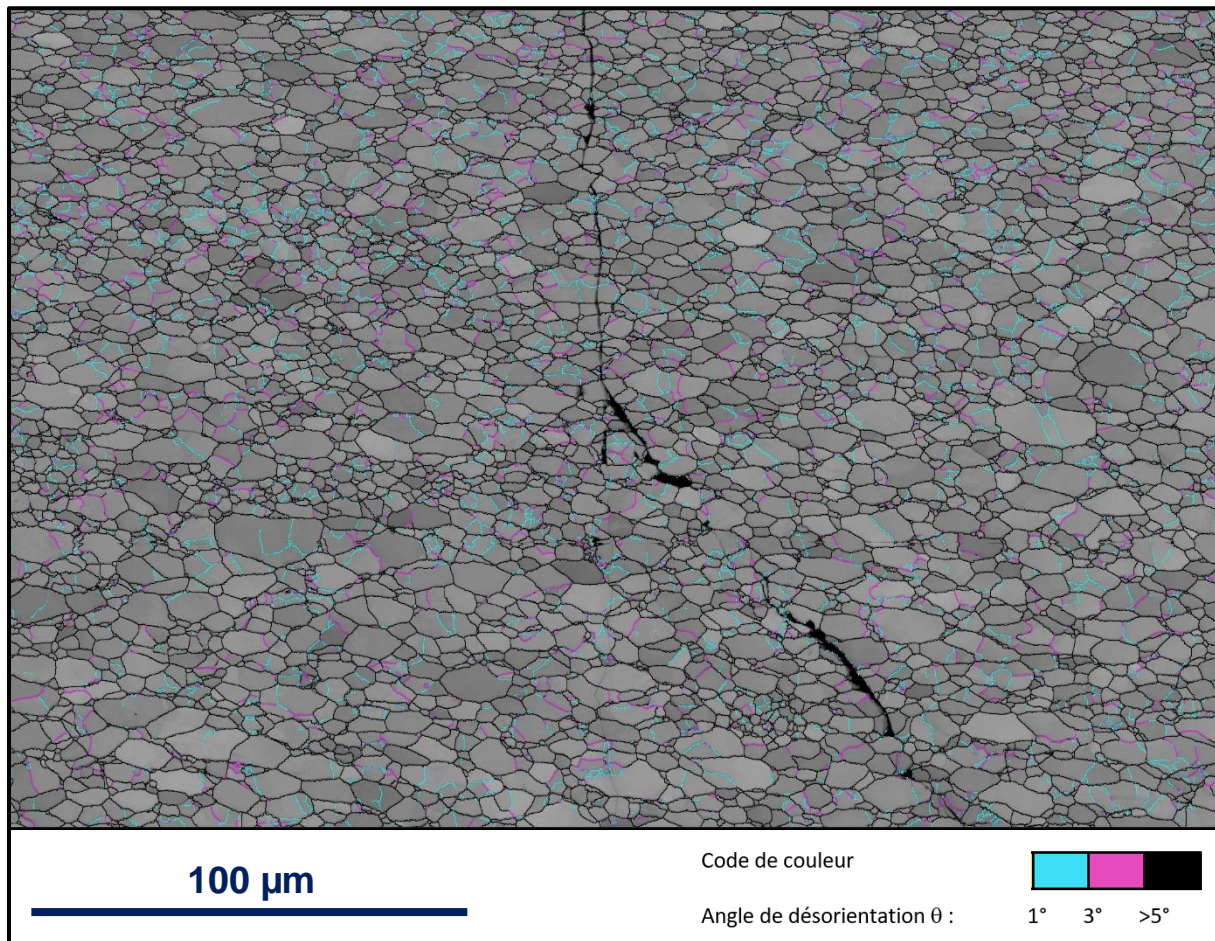


Figure V-49. Cartographie EBSD en indice de qualité et en désorientation. Mise en évidence des joints de grains et sous-joints de grains, selon le code couleur indiqué. Région I - Echantillon B1

Il a été fait le choix, pour ces cartes, de ne pas représenter les désorientations inférieures à  $1^\circ$ , à l'inverse de ce qui a été présenté pour le lot A. En effet les analyses par EBSD réalisées sur les pastilles SPS présentent un bruit numérique plus important dont l'origine n'est pas certaine. Cela pourrait venir des paramètres d'acquisition, de la préparation de la surface ou également d'une quantité plus importante de dislocations statistiquement stockés dans le matériau. Par ailleurs, nous avons vérifié à la fois à partir de l'analyse des données relatives à la Figure V-49 et d'autres cartographies de zones à l'intérieur de la région II, que les distributions de tailles de grains étaient proches de la distribution de l'échantillon de référence. Ces zones (région II) au voisinage des cales en tungstène et à proximité de

l'axe de révolution de la pastille ne sont le siège d'aucune sous-structuration et d'aucun phénomène menant à une déformation permanente.

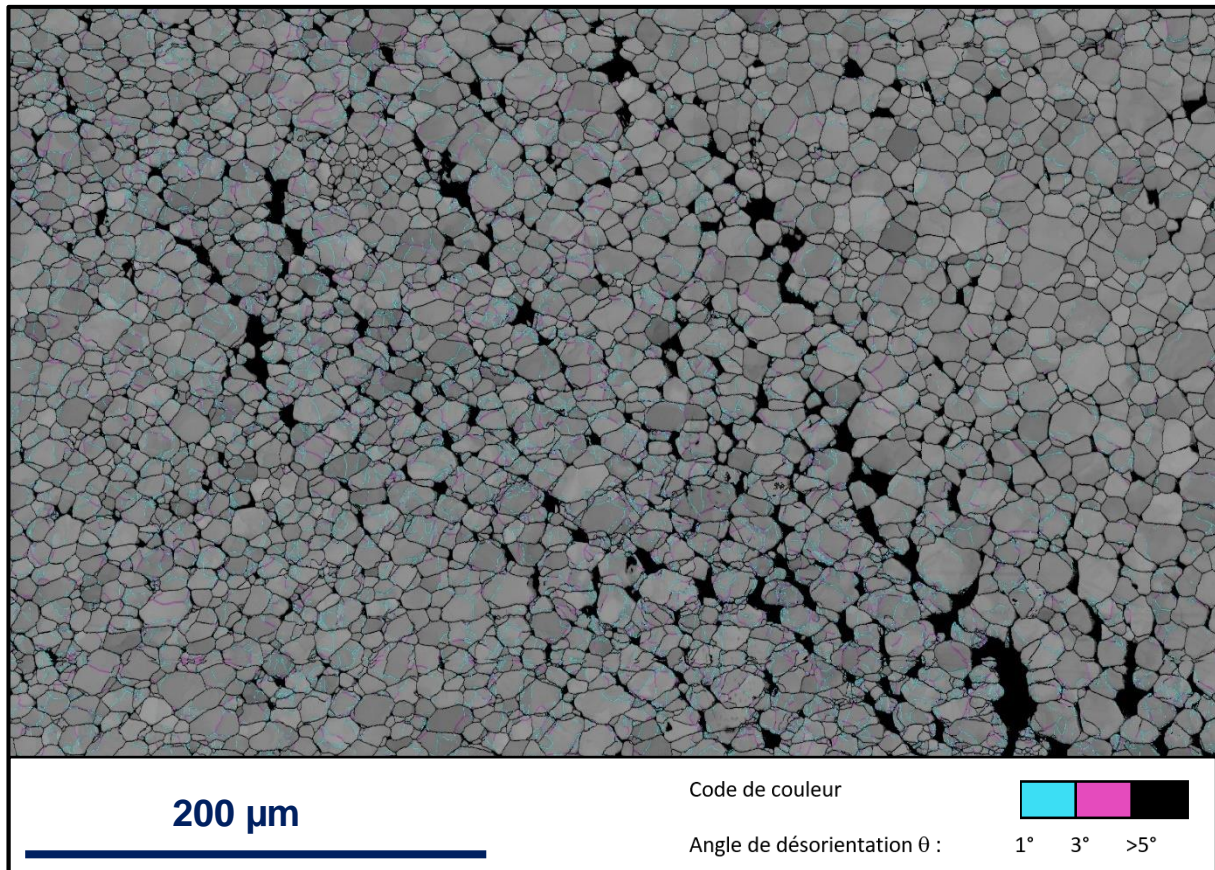


Figure V-50. Cartographie EBSD en indice de qualité et en désorientation. Mise en évidence des joints de grains et sous-joints de grains, selon le code couleur indiqué. Région III - Echantillon B1.

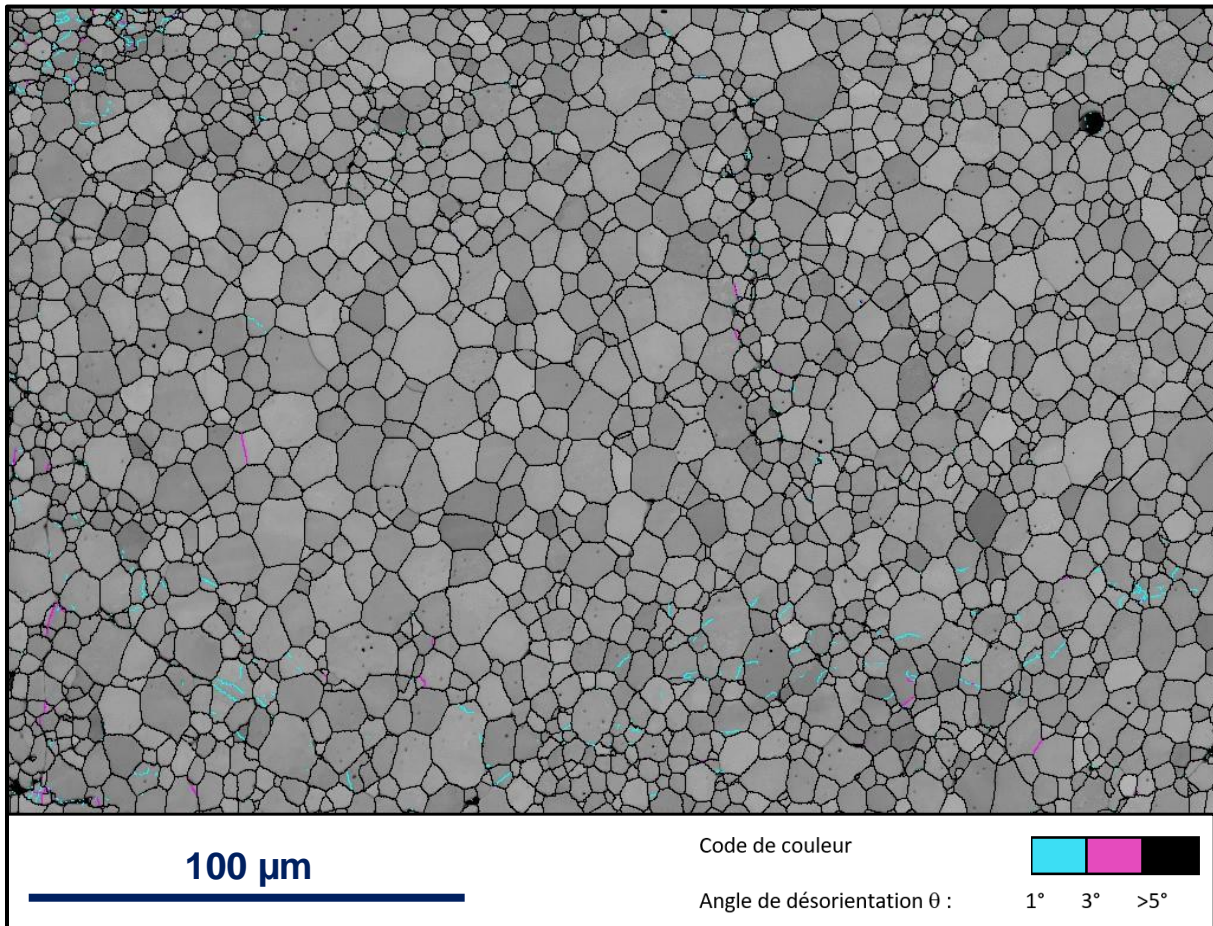


Figure V-51. Cartographie EBSD en indice de qualité et en désorientation. Mise en évidence des joints de grains et sous-joints de grains, selon le code couleur indiqué. Région IV - Echantillon B1

La Figure V-52 présente les fractions linéaires de sous-joints de grains par classe de désorientations pour la majorité des échantillons du lot B ainsi que pour la pastille courte A8. Les cartes EBSD correspondantes ont été réalisées au cœur des pastilles (région I) où le calcul indique une sollicitation homogène à l'échelle du champ de la cartographie. Afin de pouvoir comparer correctement les fractions linéaires de sous-joints de grains entre les divers échantillons du lot B avec la pastille courte du lot, il est primordial que les seuils de détection choisis soient identiques. Nous avons donc fait le choix de conserver un seuil identique à celui utilisé pour le lot A, à  $0,25^\circ$ . Or, comme il a été souligné précédemment, les analyses par EBSD conduites sur le lot B paraissent plus bruitées. Il est donc possible que les fractions linéaires de sous-joints de grains très faiblement désorientés soient sujettes à une forte dispersion causée par un fort bruit numérique. Après examens des résultats, cela ne semble pas être le cas.

D'une manière globale, la constatation la plus frappante, s'agissant de la Figure V-52, est que la fraction linéaire de la pastille A8 est supérieure à celles de tous les autres échantillons du lot B, à conditions d'essais équivalentes et même à une vitesse de déformation supérieure.

Les histogrammes bleus (B1 :  $p\text{O}_2 = 3,1 \cdot 10^{-14}$  atm, B2 :  $p\text{O}_2 = 2,2 \cdot 10^{-13}$  atm et B3 :  $p\text{O}_2 = 1 \cdot 10^{-13}$  atm), correspondant aux pastilles sollicitées à une vitesse de déformation de  $\dot{\epsilon} = 5 \cdot 10^{-5} \text{s}^{-1}$ , ne mettent pas en évidence d'effet simple de la pression d'oxygène. En effet B2 possède une fraction intermédiaire alors que l'essai a été réalisé sous la pression d'oxygène la plus élevée. Par contre, les courbes de charge sont proches pour les échantillons B1 et B3 (Figure V-21), ce qui suggère que ces deux

échantillons présentent des surfaces de contact avec les cales en tungstène comparables. Les histogrammes verts (B6 :  $pO_2 = 3,1 \cdot 10^{-14}$  atm et B7 :  $pO_2 = 1 \cdot 10^{-12}$  atm), correspondant aux pastilles sollicitées à une vitesse de déformation axiale de  $\dot{\epsilon} = 1 \cdot 10^{-4} s^{-1}$ , diffèrent significativement. L'un culmine à 45% (B7) alors que le second se situe près de 28% (B6). Leurs courbes de charge sont comparables et il est possible que l'origine de ces différences soit liée à un effet de la pression partielle d'oxygène même si des doutes subsistent compte tenu de l'hétérogénéité originale du matériau et de sa faible tenue mécanique en comparaison avec les échantillons du lot A. Le dernier histogramme orange (B5), correspondant à une pastille sollicitée à la vitesse de déformation la plus faible de  $\dot{\epsilon} = 2 \cdot 10^{-5} s^{-1}$ , présente la plus faible fraction linéaire totale.

Il est difficile d'établir une tendance relative aux effets sur la microstructure (telle qu'on peut la caractériser par MEB et par MEB/EBSD) de la vitesse de déformation et/ou de la pression partielle d'oxygène compte tenu de la forte dispersion des résultats. Néanmoins, certains des résultats montreraient une propension de la pression partielle d'oxygène et de la vitesse de déformation à induire plus de subdivision.

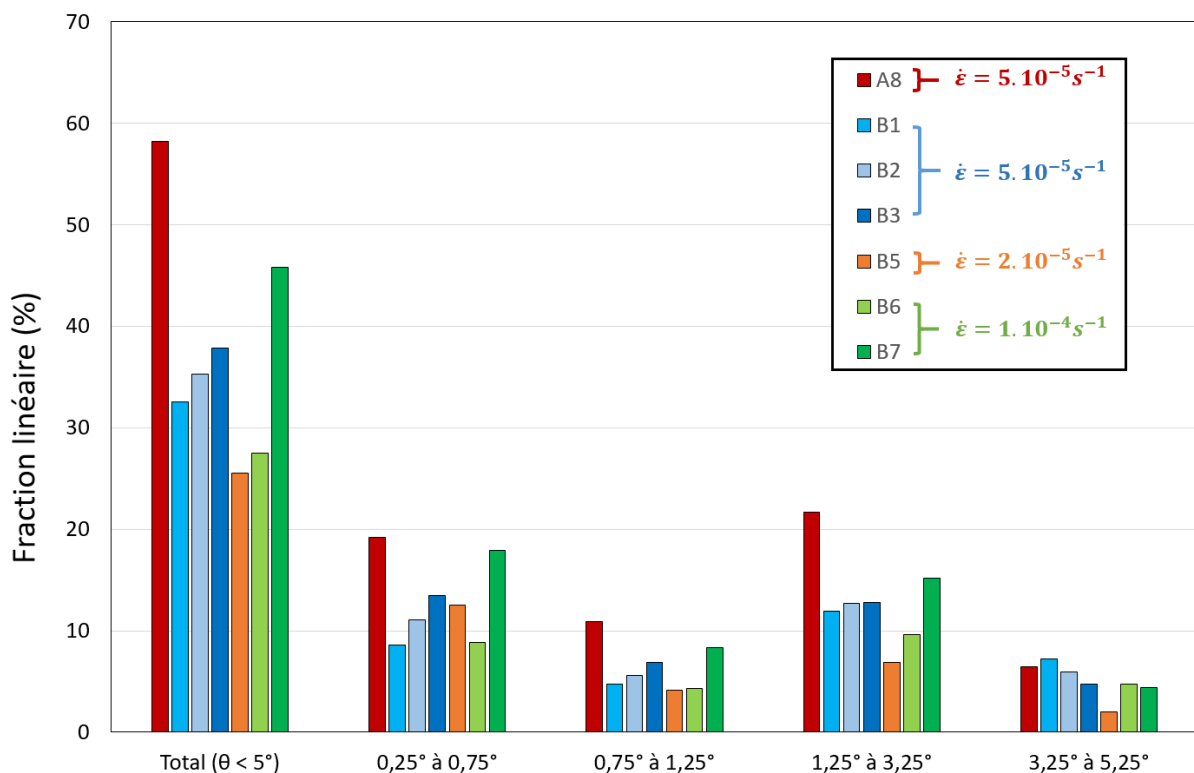


Figure V-52. Histogrammes de fractions linéaires de sous-joints de grains déduits des cartes EBSD réalisées à cœur (région I) dans les échantillons du lot B.

#### V.4.3. Synthèse des examens microstructuraux

Nous pouvons tirer de cette étude les conclusions suivantes relatives aux deux lots :

1- L'analyse de cartographies EBSD permet une étude précise de la fragmentation des grains des échantillons testés mécaniquement en sous-grains. Des cartographies de régions de  $500 \times 350 \mu m^2$  (pour le lot A) et  $300 \times 200 \mu m^2$  (pour le lot B) permettent d'obtenir des données relatives aux fractions linéaires de sous-joints statistiquement représentatives à l'intérieur d'une même région.

2- Dans un même échantillon, on peut ainsi *a priori* caractériser assez finement le lieu où la déformation est localisée, *i.e.* dans la partie centrale de la pastille. À cet endroit, tous les échantillons sont le siège de phénomènes que l'on peut associer explicitement à du fluage-dislocation. En revanche, à proximité des interfaces, le frottement entre l'échantillon et les cales en tungstène modifie le champ de contraintes de manière significative, de sorte que le matériau flue peu. La microstructure reste alors globalement comparable à la microstructure du matériau avant essai.

3- Nous n'avons pas pu mettre en évidence à travers les essais réalisés, d'effet notable de la pression partielle d'oxygène sur la fraction linéaire de sous-joints de grains.

4- L'allongement apparent des grains perpendiculairement à l'axe de compression est manifeste, particulièrement pour les échantillons du lot B.

Concernant spécifiquement les échantillons du lot A, au-delà de la subdivision des grains, l'endommagement du matériau se manifeste par l'apparition de poches de dimensions caractéristiques dans lesquelles de nombreuses décohésions intergranulaires apparaissent préférentiellement dans le sens de la compression. Dans ces zones, la fraction linéaire de sous-joints de grains est élevée. Si nous n'avons pas pu mettre en évidence un effet de l'activité d'oxygène sur ce phénomène, l'effet de la température semble conséquent et se caractérise par l'apparition de telles poches en plus grand nombre.

Pour les échantillons du lot B, les distributions de tailles de grains après essai mécanique témoignent d'une croissance granulaire induite par une combinaison de la température et de la contrainte. La pression partielle d'oxygène pourrait avoir un effet accélérateur sur cette croissance (Harada, 1997). Notons aussi que les pastilles du lot B semblent particulièrement fragiles ce qui contribue à la dispersion des résultats, y compris en terme de microstructure.

## V.5. Discussion des résultats à la lumière de la simulation numérique

### V.5.1. Comportement en fluage du dioxyde d'uranium à haute température

Des simulations uniaxiales ont été menées pour les essais concernant les échantillons A3 et A4, pastilles à fort élanement (voir Tableau 5). Pour ces simulations, nous avons retenu un exposant de la contrainte de 4,5, proche de la valeur déterminée par analyse des données avec la relation phénoménologique (chapitre 1, section I.3.3) et correspondant à la valeur suggérée théoriquement par Weertman (Weertman, 1955) pour un mécanisme de fluage - restauration. Comme nous l'avons rappelé dans le Chapitre 3, cela permet de déterminer à partir d'un seul essai présentant une vitesse de déplacement de traverse unique, les trois autres paramètres de la loi de comportement d'Armstrong-Frederick. Les Figure V-53 et Figure V-54 présentent l'évolution des contraintes mesurée et calculée en fonction du temps pour deux essais réalisés à 1520°C et à des pressions partielles d'oxygène situées aux extrémités du domaine couvert dans cette étude.

Les premières parties de ces essais, correspondant aux premières vitesses de déformation, sont reproduites de manière très satisfaisante par le modèle à écrouissage cinématique. Par ailleurs, ces deux figures montrent que les contraintes d'écoulement correspondant au régime quasi-stationnaire de la seconde phase de l'expérience sont également bien reproduites. Ceci illustre le fait que la puissance de la contrainte retenue est cohérente avec l'analyse établie sur la base de l'expression phénoménologique. Nous avons étudié la variation de la constante K du modèle d'écrouissage cinématique en fonction de la pression partielle d'oxygène dans un diagramme log-log. La pente de la

droite formée de ces deux points, correspondant au rapport  $\alpha/n$ , est de 0,0407. On en déduit une valeur du paramètre  $\alpha$  (0,183) cohérente avec la valeur établie dans la section V.3.3.1, confirmant ainsi la dépendance établie de la vitesse de déformation à la pression partielle d'oxygène.

Nous avons vu dans la section 4 que la sollicitation à laquelle les échantillons étaient soumis conduisait à un mécanisme de fluage dit « dislocation ». Ce mécanisme est confirmé par la valeur de l'exposant de la contrainte qui indique par ailleurs une forme de fluage restauration. Le régime stationnaire qui peut être observé sur la Figure V-54 en particulier, peut donc s'interpréter comme résultant d'un équilibre entre endommagement et restauration, une fois que les dislocations produites se sont réorganisées en sous-joints de grain. La cinétique à laquelle le régime stationnaire s'établit résulte donc de l'établissement d'un tel équilibre. Il semble, à partir des Figure V-53 et Figure V-54, que la cinétique d'établissement du régime permanent soit plus rapide à plus forte pression d'oxygène. La Figure V-14 indique également une cinétique rapide d'établissement de la contrainte d'écoulement stationnaire à 1620°C. Ces observations peuvent s'interpréter comme résultant du fait que la température et la pression partielle d'oxygène sont des activateurs du phénomène de restauration, comme on pourrait s'y attendre si celui-ci est contrôlé par la diffusion du cation.

Sur les Figure V-53 et Figure V-54, on remarque également une reprise du fluage primaire à chaque changement de vitesse de déformation, reprise que la simulation ne reproduit pas de manière satisfaisante. Cette phase transitoire est l'image du fait que la microstructure évolue et est sans doute liée à une réactivation des sources de dislocations qui se réorganisent pour former de nouveaux sous-grains ou consolider ceux formés au cours de la précédente séquence de déformation. Or, dans le modèle, c'est la contrainte interne, ou sa variable interne associée, qui sont censées refléter l'état de la microstructure. Les formes analytiques présentées dans le chapitre 4, section IV.2.2, ainsi que la Figure V-54 montrent que l'approche retenue dans le modèle à écrouissage cinématique n'est pas suffisamment élaborée pour refléter fidèlement ces changements microstructuraux. En effet, on voit sur cette figure que la contrainte interne n'évolue plus au changement de vitesse de déformation imposée. Dans une modélisation reflétant mieux les évolutions microstructurales, la contrainte interne passerait par un maximum lorsque le matériau est écroui au cours de la phase de fluage primaire mais, à mesure que la restauration permet de relaxer les contraintes internes, celles-ci redescendraient vers une valeur proche de zéro ; ce qui est à l'opposé de notre loi de comportement pour laquelle la contrainte interne est une fonction monotone de la déformation (relation 4.14).

Du point de vue de la microstructure des pastilles déformées, l'approche multidimensionnelle apporte des éléments intéressants qui peuvent être corrélés aux évolutions spatiales observées expérimentalement et qui sont présentées dans la section précédente. La distribution de la contrainte de Von Mises (Figure IV-5), montre une forte hétérogénéité de la contrainte dans la pastille. En particulier, au voisinage de l'axe de révolution, celle-ci n'excède pas une quinzaine de méga pascals sur une zone équivalente à celle du cliché le long de l'axe de révolution représenté sur la Figure V-37. Cette dernière montre une microstructure fort semblable à la microstructure initiale du matériau. Ces deux résultats sont donc tout à fait cohérents : le frottement intense entre l'oxyde et les cales contribue à réduire notablement la contrainte équivalente à cet endroit ce qui a pour effet de limiter la contrainte de Von Mises à une valeur qui ne permet pas l'activation de systèmes de glissement dans les grains. Ces derniers ne subissent donc ni subdivision, ni diffusion dans un gradient de contrainte et leurs caractéristiques restent semblables à ce qu'elles sont à l'issue de la fabrication. Une telle constatation ainsi que les résultats présentés dans la section précédente (Figure V-37) mériteraient une analyse détaillée qui aurait pour but de quantifier dans quelle mesure la fraction linéaire de sous-



jointes peut être directement corrélée à la déformation locale telle qu'elle peut être calculée par un modèle de milieu continu.

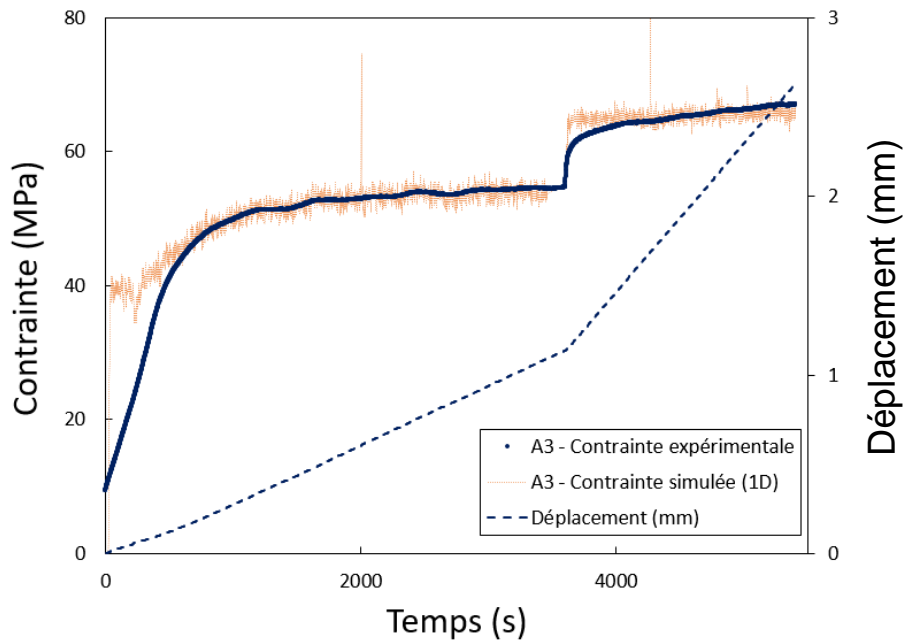


Figure V-53. Comparaison de l'évolution de la contrainte expérimentale et simulée en fonction du temps pour l'essai A3, [T = 1520°C ;  $p_{\text{O}_2} = 6,3 \cdot 10^{-13}$  atm], jeu de paramètres : C = 570.10<sup>6</sup> ; D = 80 ; n = 4,5 ; K = 520.10<sup>6</sup>.

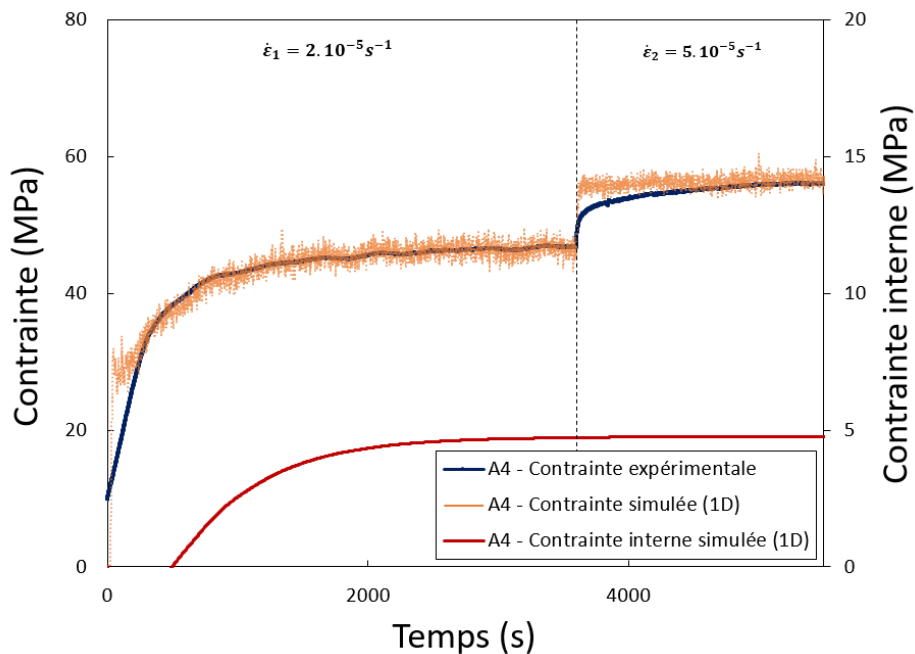


Figure V-54. Comparaison de l'évolution de la contrainte expérimentale et simulée et de la contrainte interne en fonction du temps pour l'essai A4, [T = 1520°C ;  $p_{\text{O}_2} = 6,7 \cdot 10^{-11}$  atm], jeu de paramètres : C = 570.10<sup>6</sup> ; D = 80 ; n = 4,5 ; K = 430.10<sup>6</sup>.

### V.5.2. Comportement en fluage du dioxyde d'uranium à faible température

La Figure V-55 représente l'évolution, pour l'échantillon de fort élanement A9, des contraintes mesurée et calculée en fonction du temps, ainsi que l'évolution calculée de la contrainte interne. Cette figure illustre le fait qu'à cette température, la contrainte d'écoulement stationnaire n'est pas atteinte après près d'une heure d'essai alors qu'à une pression partielle d'oxygène et à une vitesse de déformation équivalentes, la contrainte stationnaire est atteinte après une quarantaine de minutes d'essai à 1520°C (essai A5). Bien que l'essai soit de trop faible durée pour en déterminer la contrainte d'écoulement stationnaire, cette figure montre que nous avons pu déterminer un jeu de paramètres qui permet de reproduire l'essai de manière très satisfaisante. Cet « ajustement » s'est fait au prix d'une modification significative du paramètre D de la loi d'écrouissage cinématique (Chapitre 4, relation 4.14) par rapport aux valeurs retenues à 1520°C. Ce paramètre contrôle en effet la cinétique avec laquelle le fluage stationnaire s'établit, comme le montre la solution analytique présentée dans le chapitre 3 (relation 3.8). Ces remarques corroborent l'observation faite dans le paragraphe précédent selon laquelle la cinétique de restauration, et donc la cinétique d'établissement de la contrainte d'écoulement stationnaire, est particulièrement sensible à la température. Comme attendu, et ainsi que l'illustre la Figure V-55, la contrainte interne continue d'évoluer substantiellement au moment où l'essai est interrompu et la valeur qu'elle atteint, à savoir de l'ordre de 25 MPa en fin d'essai, est substantiellement plus élevée que pour des essais à des températures plus élevées, pour lesquels les valeurs sont de l'ordre de 5 MPa (Figure V-54).

La Figure V-56 montre l'évolution des contraintes calculée et mesurée pour l'échantillon A6, d'élanement élevé, pour une expérience au cours de laquelle il a été soumis successivement à trois vitesses de déformation. L'analyse avec le modèle a été réalisée en supposant un exposant de la contrainte équivalent aux essais réalisés à plus hautes températures. À l'évidence, cette hypothèse n'est pas satisfaisante, ce qui pourrait suggérer un changement de mécanisme de déformation aux plus basses températures. Or, cela va à l'encontre des examens par MEB qui mettent en évidence un mécanisme similaire de sous-structuration des grains (fluage – restauration).

L'étude menée à 1320°C montre que, malgré les évolutions plus lentes de la contrainte d'écoulement attribuables sans doute en partie à une inhibition des mécanismes de restauration, il devrait être possible, au même titre qu'aux températures plus élevées, d'analyser les courbes de charge à la lumière d'un modèle à écrouissage cinématique.

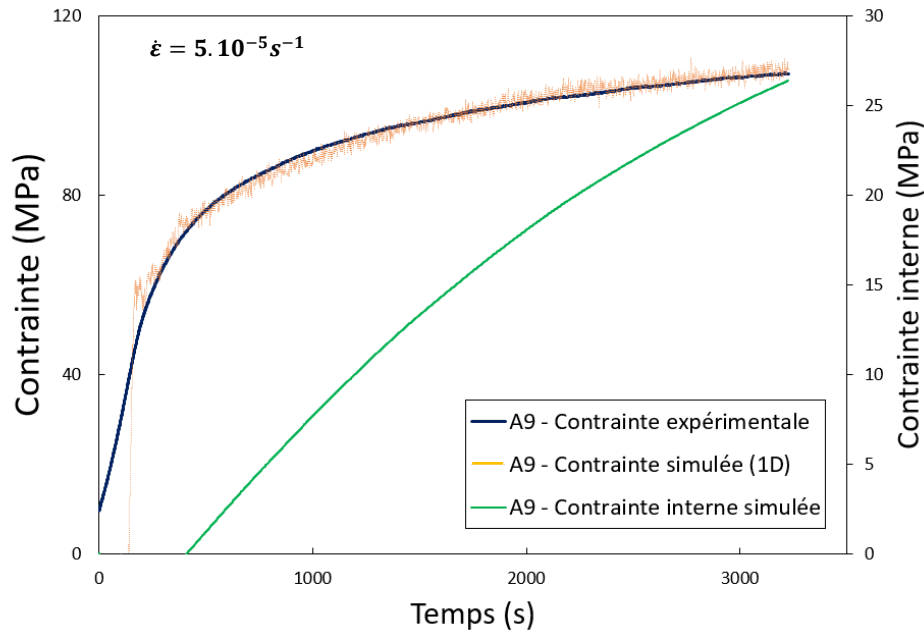


Figure V-55. Comparaison de l'évolution des contraintes expérimentale et simulée et de la contrainte interne en fonction du temps pour l'essai A9, [T = 1320°C ; pO<sub>2</sub> = 4.10<sup>-13</sup>atm], jeu de paramètres : C = 450.10<sup>6</sup> ; D = 17 ; n = 4,5 ; K = 730.10<sup>6</sup>.

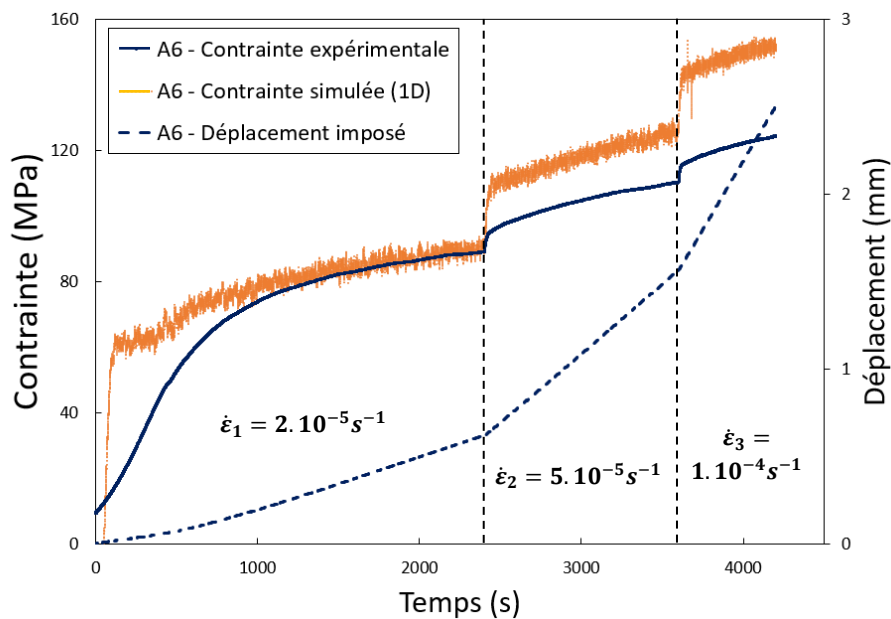


Figure V-56. Comparaison de l'évolution des contraintes expérimentale et simulée en fonction du temps pour l'essai A6, [T = 1320°C ; pO<sub>2</sub> = 3.10<sup>-14</sup>atm], jeu de paramètres : C = 400.10<sup>6</sup> ; D = 17 ; n = 4,5 ; K = 900.10<sup>6</sup>.

### V.5.3. Comportement en fluage d'une pastille courte

Nous avons vu dans la section 3 qu'il était impossible d'estimer les paramètres de l'expression phénoménologique à partir de l'analyse des essais réalisés sur les pastilles du lot B ; les causes probables étant sans doute la faible tenue mécanique des pastilles qui induit une dispersion trop importante des résultats d'essais. Néanmoins le trait distinctif de la réponse de ces échantillons est la présence sur la courbe de charge de ce que d'autres ont appelé un « pic de compression » (Dherbey, 2000; Guérin, 1973; Vivant-Duguay, 1998). Cette particularité, qui distingue le comportement de ces

pastilles de celui des échantillons du lot A, n'est pas due à un effet d'élanement (voir Figure V-20). Par ailleurs, le niveau de contrainte atteint après « adoucissement » pour la pastille SPS est comparable à celle du lot A soumise à un essai équivalent (Figure V-20). L'étude des microstructures de ces pastilles après essai montre qu'elles présentent des signes de subdivision des grains, témoins de mécanismes de fluage-restauration, et un allongement des grains d'origine dans une direction perpendiculaire à l'axe de compression. Ces caractéristiques microstructurales sont également observées de manière systématique sur les pastilles du lot A, ce qui semble à première vue contredire les résultats, rapportés dans la littérature, relatifs au durcissement qu'induirait une diminution de la taille des grains.

L'existence d'un « pic de compression » peut néanmoins être considéré comme un signe de durcissement (Sauter, 2001; Soulacroix, 2014) dans les premiers stades de l'essai. Ce comportement est lié potentiellement soit à la faible taille de grains, soit au mode d'élaboration, soit à une combinaison de ces deux facteurs. En effet, le mode d'élaboration suggère que les joints de grains et les grains formés à l'issue de la fabrication sont « hors équilibre », et le sont donc vraisemblablement aussi à la température à laquelle l'essai a lieu. Il est donc légitime de s'attendre à un niveau de contraintes résiduelles très important dans le matériau, contraintes qui seront susceptibles d'inhiber l'activation des sources de dislocations et de nécessiter d'atteindre un niveau de contrainte important avant que le phénomène de relaxation puisse avoir lieu. Nous avons tenté de simuler un tel essai en faisant l'hypothèse d'une déformation uniaxiale mais en imposant au modèle une contrainte interne non-nulle en début d'essai. Le résultat de cette simulation, présenté sur la Figure V-57, montre qu'il est possible de représenter l'allure générale de la courbe de charge expérimentale avec un jeu de paramètres du modèle proche de celui mis en œuvre pour reproduire les réponses des échantillons du lot A. Pour ces échantillons fabriqués par frittage SPS, des études complémentaires mériteraient d'être menées qui pourraient mettre en jeu une caractérisation par diffraction de rayons X des contraintes résiduelles dans le matériau en comparaison avec un échantillon du lot A. Des examens par microscopie électronique du matériau à différents taux de déformations, notamment avant et après le « pic de compression » seraient sans doute souhaitables. Finalement, une simulation multidimensionnelle de l'essai permettant de tenir compte de manière physique de l'élanement des objets serait également riche d'enseignements.

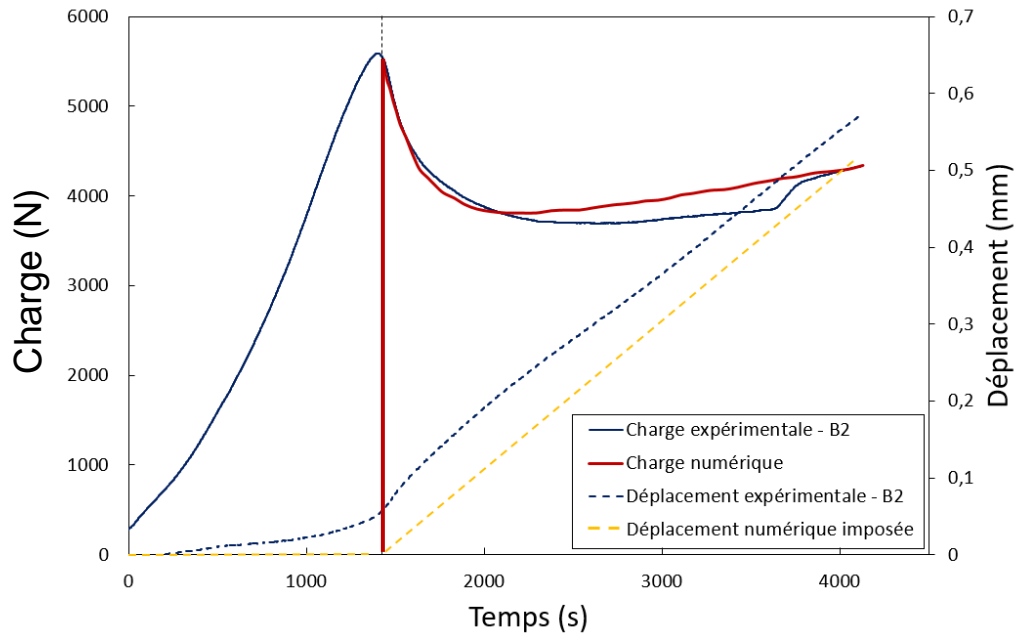


Figure V-57. Comparaison de l'évolution des charges expérimentale et simulée en fonction du temps de l'essai B2. Le déplacement imposé dans la simulation numérique a été modifié pour faire correspondre le pic de compression. Jeu de paramètres :  $C = 1100 \cdot 10^6$  ;  $D = 95$  ;  $n = 5$  ;  $K = 500 \cdot 10^9$  ;  $X(t=0) = 190 \text{ MPa}$ .

L'autre caractéristique qui a pu être mise en évidence sur les micrographies optiques et électroniques est la propension du matériau à se déliter, notamment suivant la surface d'un cône délimitant les différentes régions de la pastille pendant l'essai, comme nous l'avons présenté sur les Figure V-40 et Figure V-42. Nous avons superposé sur la Figure V-58, la contrainte de Von Mises typique d'un essai de fluage en compression sur une pastille courte, à la macrographie d'une pastille SPS après essai. Cette figure met en évidence le fait que la décohérence intergranulaire orientée cette fois suivant une diagonale de la coupe transversale se situe précisément dans la zone de contraintes de Von Mises maximales. Dans les pastilles du lot A, on retrouve une tendance à l'apparition de fissures le long de cette diagonale. Dans la pastille du lot B examinée, la tenue des joints de grains est limitée et les fissures intergranulaires sont généralisées dans cette région. Ce délitement semble être également à l'origine des sauts de charges observés en fin d'essai pour certains échantillons. En effet, une réduction de la surface de contact de la pastille entraînerait une augmentation de la charge afin de conserver un niveau de contrainte équivalent.

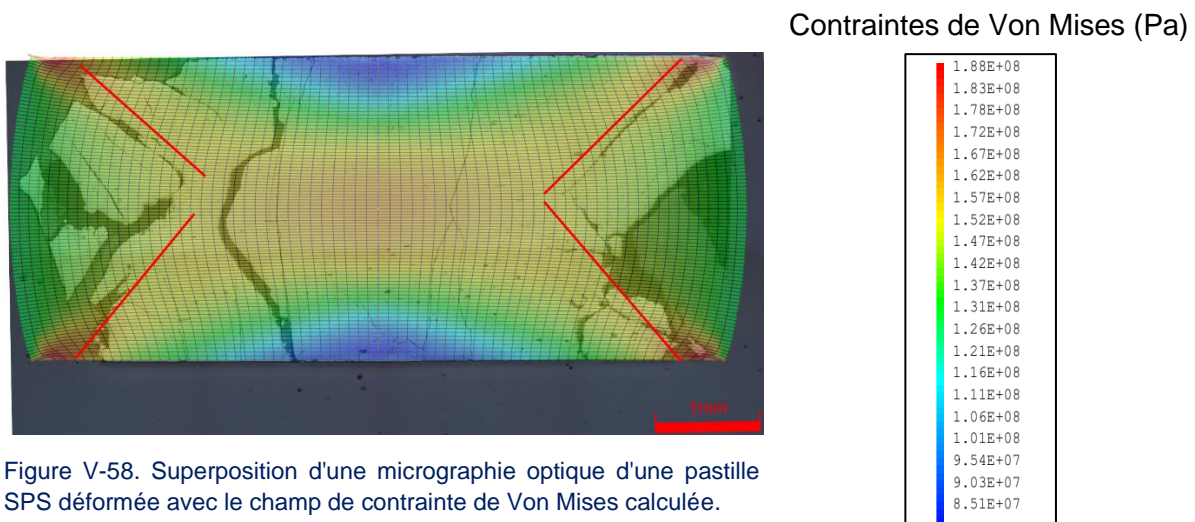


Figure V-58. Superposition d'une micrographie optique d'une pastille SPS déformée avec le champ de contrainte de Von Mises calculée.

## V.6. Conclusion

Le comportement viscoplastique en compression du dioxyde d'uranium a été caractérisé par des essais à vitesse de traverse constante, à travers l'étude de deux lots d'échantillons cylindriques se distinguant par leur microstructure initiale d'une part, et par leur élanement d'autre part. La réalisation d'essais de compression à hautes températures (1320°C, 1520°C, 1620°C) a mis en évidence des réponses viscoplastiques différentes, telles qu'on peut les caractériser sur des courbes de charge.

Concernant les échantillons du premier lot, dit lot A (fabriqué par frittage usuel et dont les grains ont une taille de l'ordre de 11  $\mu\text{m}$ ), nous avons analysé les résultats expérimentaux à la lumière de la relation phénoménologique proposée par Bretheau (Bretheau et al., 1981) qui exprime la vitesse de déformation en régime d'écoulement stationnaire en fonction des grandeurs thermodynamiques pertinentes. Cette déformation peut s'exprimer dans la gamme de températures 1500°C-1600°C de la façon suivante en fonction de la température, de la pression partielle d'oxygène et de la contrainte :

$$\dot{\varepsilon} = \frac{A}{T} \sigma^{4,9} p_{O_2}^{1/6} \exp\left(-\frac{2,9 \text{ eV}/at}{k_b T}\right)$$

Cette relation, et notamment la dépendance à la contrainte, est cohérente avec un mécanisme de fluage-restauration. Ceci est confirmé par les examens micrographiques des échantillons qui montrent plusieurs caractéristiques systématiquement observées :

- i. Une subdivision des grains d'origine en sous-grains de faibles désorientations ;
- ii. Un allongement des grains dans les zones déformées de manière homogène, dans un sens perpendiculaire à la direction de compression ;
- iii. L'apparition de poches occupant des régions de l'ordre du  $\text{mm}^3$  dans lesquelles de nombreuses décohésions intergranulaires apparaissent dans une direction parallèle à l'axe de compression et où les fractions linéaires de sous-joints de grains sont bien supérieures à ce qu'elles sont en dehors de ces zones.

La simulation des essais par un modèle à écrouissage cinématique confirme les dépendances évoquées ci-dessus. Cette approche permet de plus de décrire le fluage primaire du matériau. Néanmoins, lorsque les pastilles sont soumises au cours d'un essai à plusieurs vitesses de déformation successives, le modèle dans son état actuel ne permet pas de reproduire ce qui apparaît comme une reprise du fluage primaire au changement de vitesses de déformation. Un modèle comportant sans doute plus de variables internes ou permettant de simuler une restauration de la microstructure pourrait peut-être permettre de reproduire ces essais de manière plus satisfaisante.

On a également noté que les températures et pressions partielles d'oxygène élevées, conditions propices à l'activation de mécanismes de restauration, semblaient contribuer à l'établissement d'un régime stationnaire de fluage. En particulier, à la plus basse température étudiée (1320°C), le régime de fluage secondaire n'a pas pu être atteint au cours des essais que nous avons réalisés. Par ailleurs, il semblerait que la dépendance à la contrainte de la vitesse de déformation ne suive plus une loi en  $\sigma^{4,9}$  à cette température, sans que l'on sache si cela constitue la signature d'un changement de mécanisme. Ce point mériterait d'être mieux investigué bien que la microstructure à cette température présente des similitudes avec celles observées aux températures les plus hautes (subdivision des grains notamment).

La simulation axisymétrique de ces essais est utile pour permettre d'interpréter les observations microstructurales de coupes transversales notamment. Ainsi, même si une relation quantitative n'a pas pu être établie entre la fraction linéaire de sous-joints de grains déterminée par EBSD et la déformation par fluage calculée, on a noté une certaine corrélation entre les deux qui suggère que les ingrédients essentiels pour décrire ces essais sont présents dans la modélisation que nous avons mise en œuvre.

Les conclusions à tirer de l'étude du comportement des échantillons du lot B, frittés à basse température par le procédé SPS et qui présentent donc des tailles de grains nettement inférieures à celles des échantillons du lot A, sont moins nettes. En effet, il a été impossible d'établir les paramètres d'une loi phénoménologique pour l'écoulement stationnaire du fait de la dispersion observée dans les résultats que nous attribuons à la faible tenue mécanique de ces échantillons. Celle-ci étant liée en partie à la présence de microfissures après fabrication. La particularité de la réponse mécanique de ces objets réside en l'existence d'un « pic de compression » dans la courbe de charge en début d'essai. Nous pensons que cette caractéristique est due à un effet durcissant des joints de grains, potentiellement renforcé par le mode de frittage, à basse température et sur des temps courts, de sorte que les grains et joints de grains du matériau n'atteignent pas un état d'équilibre thermodynamique. La courbe de charge a pu être simulée, de manière qualitative, avec une modélisation uniaxiale en supposant une contrainte interne non nulle en début d'essai. Néanmoins, une description axisymétrique du problème permettant de prendre en compte l'éclatement des pastilles serait plus riche d'enseignements. La faible consolidation des joints de grains supposée est propice à une fissuration intergranulaire que nous avons observée à l'issue de tous les essais. De plus la croissance granulaire également observée en cours d'essai agit comme une source d'endommagement. Des mesures complémentaires de dureté et de ténacité mériteraient d'être menés pour quantifier la tenue mécanique limitée de ces échantillons.

Malgré les différences avec les échantillons du lot A, les échantillons du lot B présentent un certain nombre de similitudes en termes de réponses microstructurales à la sollicitation mécanique. En particulier, la subdivision des grains d'origine en régions faiblement désorientées reste une caractéristique de la réponse du matériau. De plus, l'allongement des grains dans une direction perpendiculaire à l'axe de compression et dans des régions de déformation homogène est particulièrement marqué. Nous avons montré que la température ne suffisait pas à elle seule à expliquer la croissance granulaire qui est due à un effet combiné de la température et du gradient de contraintes.

Nous abordons dans le chapitre suivant l'interprétation des essais de flexion que nous avons mis en œuvre.

# Chapitre 6 : Etude en flexion du comportement viscoplastique de l' $\text{UO}_{2+x}$ à haute température

---

## VI.1. Introduction

Ce chapitre est consacré à l'étude de l'effet du mode de sollicitation sur la réponse de la céramique, en combinant des zones en traction et en compression lors d'essais de flexion 3 et 4-points. Une comparaison des effets de l'atmosphère et de la contrainte est donc conduite avec l'étude réalisée en compression. Une seule microstructure a fait l'objet de cette campagne d'essais (lot C). La structure de ce chapitre est comparable à celle du chapitre précédent : la section 2 est dédiée au mode d'élaboration et à la caractérisation des microstructures initiales de ce lot d'échantillons ; la section 3 présente les essais, les résultats d'essais, et une première interprétation de ceux-ci ; la section 4 concerne les examens microstructuraux réalisés ; et dans la section 5 nous présentons une discussion s'appuyant sur l'ensemble des résultats expérimentaux ainsi que sur la simulation numérique des essais.

## VI.2. Description du matériau d'étude

Les éprouvettes utilisées pour les campagnes d'essais de fluage en flexion 3 et 4-points, ainsi que la campagne d'essais de fluage d'irradiation (présentée dans le chapitre 8) proviennent d'un même lot, appelé lot C. Son mode d'élaboration est proche de celui du lot A dans le but de disposer de microstructures comparables. L'objectif est d'être en mesure de quantifier les similitudes et les différences de comportement en flexion et en compression.

### VI.2.1. Elaboration des éprouvettes de flexion

La poudre de départ provient du même lot que celle utilisée pour les échantillons de type A. Néanmoins, les échantillons du lot C ont subi une étape de broyage avant l'étape de pressage légèrement différente de celle du lot A. A la poudre broyée est ajouté 0,3 % massique d'un lubrifiant, le stéarate de zinc, dont on assure la répartition homogène par agitation du mélange pendant 20 minutes. Les éprouvettes parallélépipédiques sont ensuite mises en forme par pressage à 350 MPa dans une matrice de 38,6 mm de longueur et de 5 mm de largeur que l'on remplit sur une hauteur de 3 mm. Enfin les éprouvettes « crues » sont frittées à 1700°C pendant 4h sous un flux d'hydrogène pur. Cette atmosphère, bien plus réductrice qu'un mélange d'argon – hydrogène, joue donc d'une certaine manière sur le frittage de la poudre, à travers une diffusion légèrement ralentie.

Les éprouvettes frittées brutes ont été utilisées pour les essais de flexion, sans préparations supplémentaires (rectification ou polissage des faces). Elles présentent les dimensions finales suivantes :  $32 \pm 0,5$  mm de longueur,  $4,2 \pm 0,05$  mm de largeur et  $2,6 \pm 0,1$  mm d'épaisseur.

### VI.2.2. Microstructure du lot

La densité du lot a été estimée par pesée hydrostatique à  $97,3 \pm 0,1\%$ , la porosité fermée étant de 2,5% et la porosité ouverte voisine de 0,2%. Dans la suite de cette partie, diverses micrographies sont présentées, ainsi que le résultat d'une analyse EBSD. Ces différentes observations ont été réalisées selon l'orientation illustrée par le rectangle rouge sur la Figure VI-1.



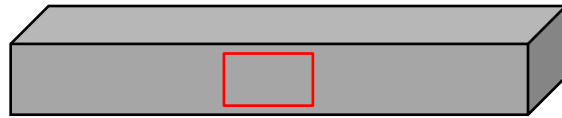


Figure VI-1. Illustration de l'orientation des observations par rapport à l'échantillon.

### VI.2.2.1. Examens en microscopie optique et électronique

On peut voir sur la Figure VI-2 une image prise en microscopie optique de la surface des éprouvettes. Celle-ci met en évidence certaines caractéristiques qui ne se retrouvent pas dans le lot A. Tout d'abord une porosité composée de deux populations distinctes : des pores intergranulaires submicroniques et des cavités allongées dans le sens de la longueur de l'éprouvette, perpendiculaire à la direction de pressage, de quelques dizaines de microns. Ce lot est également caractérisé par la présence de zones qui apparaissent avec un contraste plus sombre, mis en évidence par le contour rouge présent sur la Figure VI-2. Ces caractéristiques distinctives des échantillons du lot C sont visibles sur les différents clichés en MEB présentés sur la Figure VI-3. On y aperçoit avec plus de détails que les poches sombres correspondent à des régions avec des grains de très faibles tailles présentant une porosité plus élevée qu'ailleurs. La présence de ces régions, à la microstructure particulière, est la conséquence possible d'une étape de broyage trop courte, laissant une granulométrie trop hétérogène. A la différence des pores, on ne remarque pas de déformation particulière des grains perpendiculairement à la direction de compression.

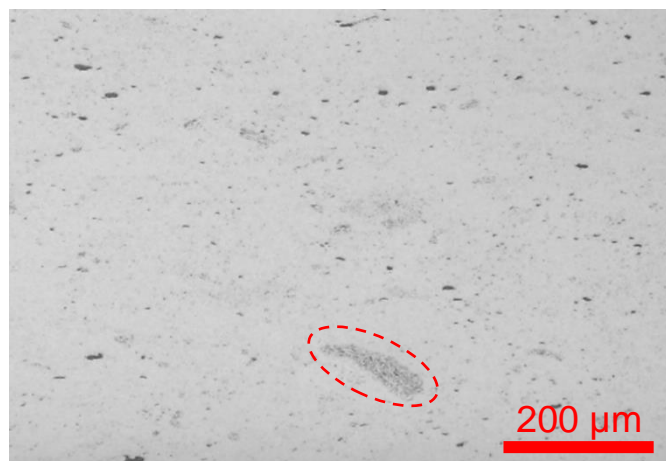


Figure VI-2. Micrographie optique représentative de la microstructure du lot C. En rouge est encerclée une poche de grains fins.

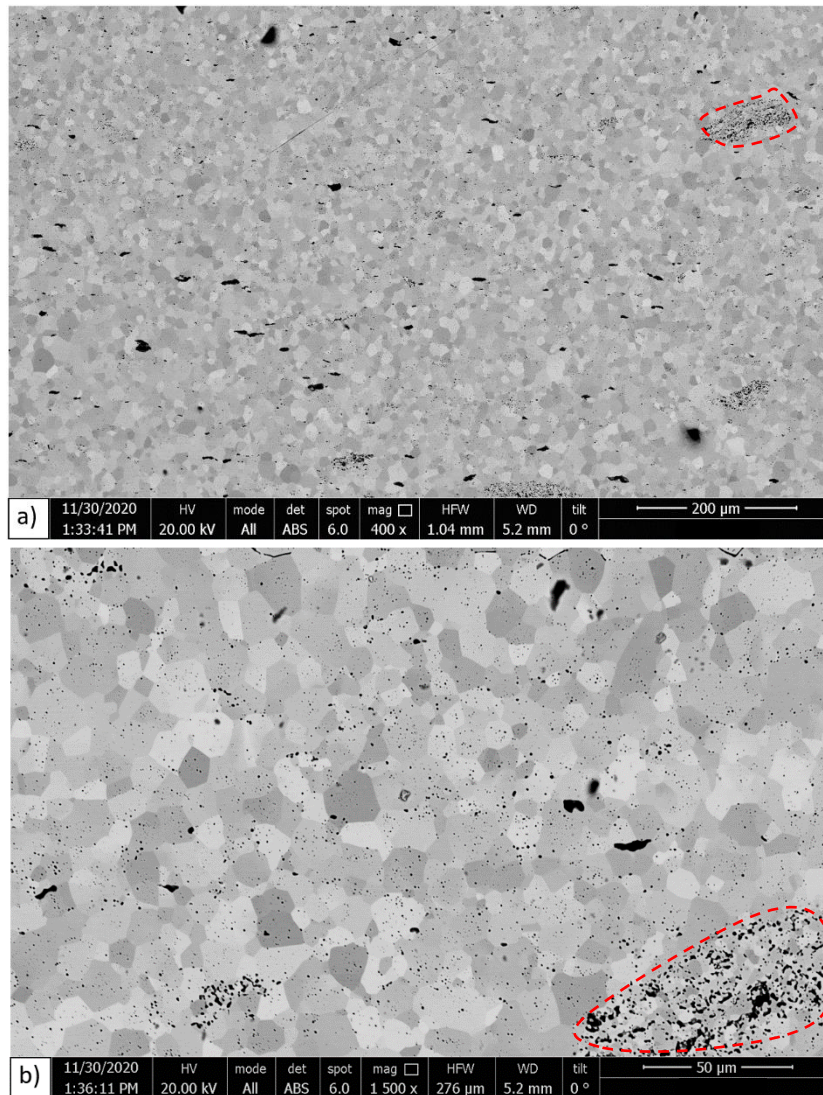


Figure VI-3. Micrographies électroniques (MEB, mode : BSE) représentant la microstructure de référence lot C. Les contours rouges mettent en évidence des poches de grains fins.

#### VI.2.2.2. Analyse EBSD

Pour compléter la caractérisation de la microstructure du lot C, une analyse par EBSD a été réalisée dans le cœur d'une éprouvette. La cartographie d'indice de qualité de diffraction et d'orientation est présentée sur la Figure VI-4. On retrouve les traits caractéristiques du lot C mentionnés précédemment, autrement dit la porosité micrométrique allongée perpendiculairement à l'axe de compression et des poches de grains de faibles tailles. La taille de grains moyenne sur cette carte est estimée à 7 µm (DCE). La Figure VI-5 montre une distribution de taille des populations du lot C et du lot A. On remarque que les deux sont relativement proches. Le lot C se démarque par une sur-représentation des grains dont la taille est de l'ordre de 1 µm. Cela explique en partie la taille de grain moyenne plus faible par rapport au lot A.

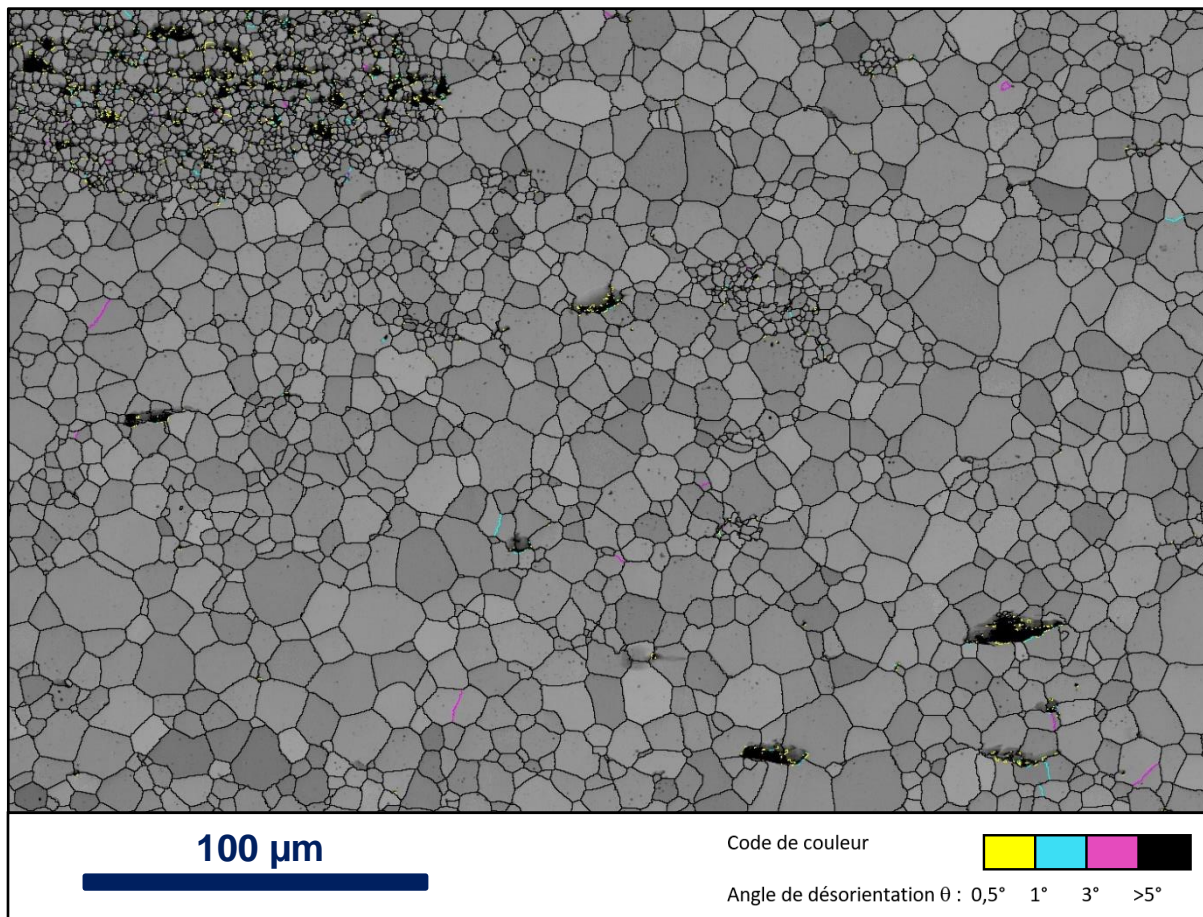


Figure VI-4. Carte d'indice de qualité de diffraction (en niveau de gris) et de désorientations acquise sur l'échantillon de référence du lot C. Les joints de grains sont représentés par des lignes noires, les sous-joints de grains

Notre objectif était d'avoir un lot d'éprouvettes de flexion à la microstructure comparable aux échantillons de compression du lot A, afin de pouvoir comparer la réponse viscoplastique du dioxyde d'uranium à microstructure équivalente, en compression et en flexion. A la lumière de ces quelques examens microstructuraux, ce n'est pas parfaitement le cas. En effet, la distribution de tailles de grains du lot C présente une contribution des faibles tailles plus importante que le lot A. Par ailleurs, la population de pores présente un aspect différent de celle du lot A avec un allongement notable dans le sens perpendiculaire au pressage. Les fractions volumiques de pores restent cependant équivalentes. Il est toutefois peu probable que ces différences soient de nature à modifier fondamentalement les mécanismes de déformation viscoplastiques mis en jeu au cours des essais de flexion par rapport à ceux présent au cours des essais de compression.

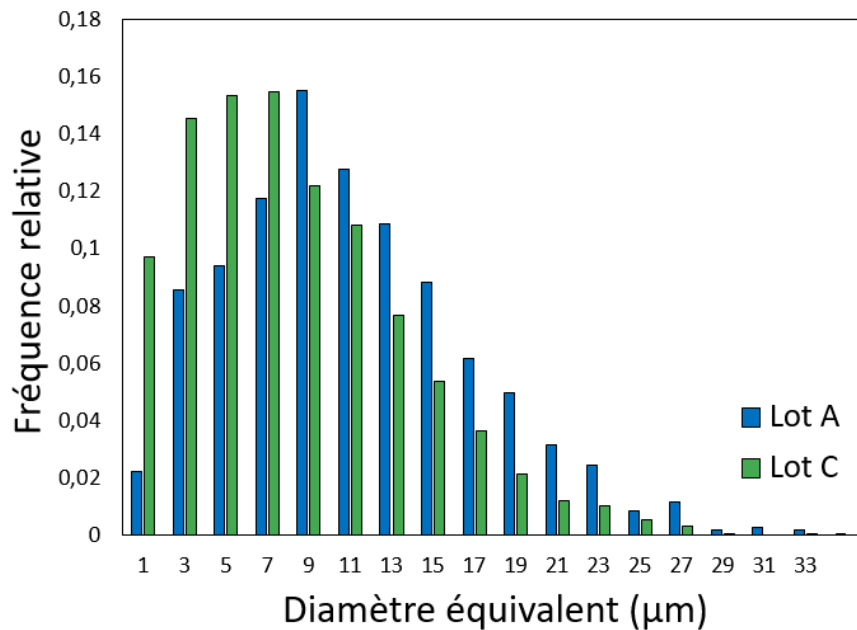


Figure VI-5. Histogramme de distribution de tailles de grains en fonction de la taille (DCE) pour des échantillons des lots A et C.

### VI.3. Campagne expérimentale et résultats

#### VI.3.1. Conditions d'essais

Comme lors des essais de compression au chapitre précédent, les essais de flexion conduits ici visent à étudier et comparer la réponse viscoplastique du dioxyde d'uranium en modifiant la vitesse de déformation et l'atmosphère imposées. Deux campagnes d'essais ont été réalisées, l'une dans une configuration de flexion 3-points, l'autre dans une configuration de flexion 4-points. Les conditions expérimentales retenues sont présentés dans le Tableau 8 (flexion 3-points) et le Tableau 9 (flexion 4-points). 4 vitesses de traverse et 3 à 4 pressions partielles d'oxygène composent la campagne de flexion 3-points. La seconde campagne, en flexion 4-points, comporte malheureusement moins d'essais : 3 vitesses de traverse et 2 à 3 pressions d'oxygène.

**Tableau 8. Essais de flexion 3-points réalisés à 1500°C.**

#	Vitesse de traverse (μm.min <sup>-1</sup> )	Vitesse de déformation max élastique (s <sup>-1</sup> )	Pression d'oxygène à 1500°C (atm.)	Durée de l'essai (min)	Déformation maximale élastique (%)
C1	80	3,34.10 <sup>-5</sup>	2,8.10 <sup>-13</sup>	20	4,1
C1 <sub>a</sub>	80	3,39.10 <sup>-5</sup>	2,8.10 <sup>-13</sup>	29	5,9
C1 <sub>b</sub>	80	3,37.10 <sup>-5</sup>	2,8.10 <sup>-13</sup>	6	1,2
C2	80	3,46.10 <sup>-5</sup>	2,7.10 <sup>-12</sup>	19	3,9
C3	80	3,53.10 <sup>-5</sup>	2,2.10 <sup>-11</sup>	21	4,3
C4	80	3,28.10 <sup>-5</sup>	1,4.10 <sup>-10</sup>	21	4,0
C5	40	1,7.10 <sup>-5</sup>	2,8.10 <sup>-13</sup>	40	4,1
C6	40	1,68.10 <sup>-5</sup>	3,4.10 <sup>-12</sup>	41	4,1

C7	40	$1,72 \cdot 10^{-5}$	$2,7 \cdot 10^{-11}$	42	4,2
C8	40	$1,68 \cdot 10^{-5}$	$2,7 \cdot 10^{-10}$	44	4,6
C9	60	$2,52 \cdot 10^{-5}$	$6,0 \cdot 10^{-13}$	24	3,6
C10	60	$2,58 \cdot 10^{-5}$	$3,3 \cdot 10^{-12}$	29	4,5
C11	60	$2,39 \cdot 10^{-5}$	$2,9 \cdot 10^{-10}$	36	5,2
C12	120	$5,01 \cdot 10^{-5}$	$2,9 \cdot 10^{-10}$	18	5,5

**Tableau 9. Essais de flexion 4-points réalisés à 1500°C.**

#	Vitesse de traverse ( $\mu\text{m} \cdot \text{min}^{-1}$ )	Vitesse de déformation max élastique ( $\text{s}^{-1}$ )	Pression d'oxygène à 1500°C (atm.)	Durée de l'essai (min)	Déformation maximale élastique (%)
C13	30	$9,4 \cdot 10^{-6}$	$2,6 \cdot 10^{-13}$	65	3,7
C14	30	$9,6 \cdot 10^{-6}$	$1,2 \cdot 10^{-10}$	60	3,3
C15	60	$1,8 \cdot 10^{-5}$	$5,5 \cdot 10^{-11}$	36	3,9
C16	45	$1,4 \cdot 10^{-5}$	$2,6 \cdot 10^{-13}$	41	3,5
C17	45	$1,39 \cdot 10^{-5}$	$5,0 \cdot 10^{-11}$	40	3,3
C18	45	$1,36 \cdot 10^{-5}$	$7,0 \cdot 10^{-14}$	40	3,3

### VI.3.2. Résultats des essais et premières interprétations

#### VI.3.2.1. Essais de flexion 3-points

La Figure VI-6 illustre l'évolution de la charge et de la flèche mesurée au cours de l'essai relatif à l'échantillon C7. L'essai est réalisé à une vitesse de traverse imposée de  $40 \mu\text{m} \cdot \text{min}^{-1}$ , sous une pression partielle d'oxygène de  $2,7 \cdot 10^{-11}$  atm. La charge subie par le matériau croît rapidement au cours des premières minutes de l'essai, passe par un maximum, puis s'établit à une valeur stable de l'ordre de 75 N. Des essais de répétabilité ont été réalisés, et sont représentés sur la Figure VI-7. On y aperçoit trois essais de flexion 3-points conduits à une vitesse de traverse de  $80 \mu\text{m} \cdot \text{min}^{-1}$  sous une pression partielle d'oxygène de  $2,8 \cdot 10^{-13}$  atm. Les courbes sont très proches, de plus l'essai C1<sub>a</sub> met en évidence une pseudo-stabilisation de la contrainte au-delà d'un temps de 1200 secondes, correspondant à une déformation maximale élastique de 4%.

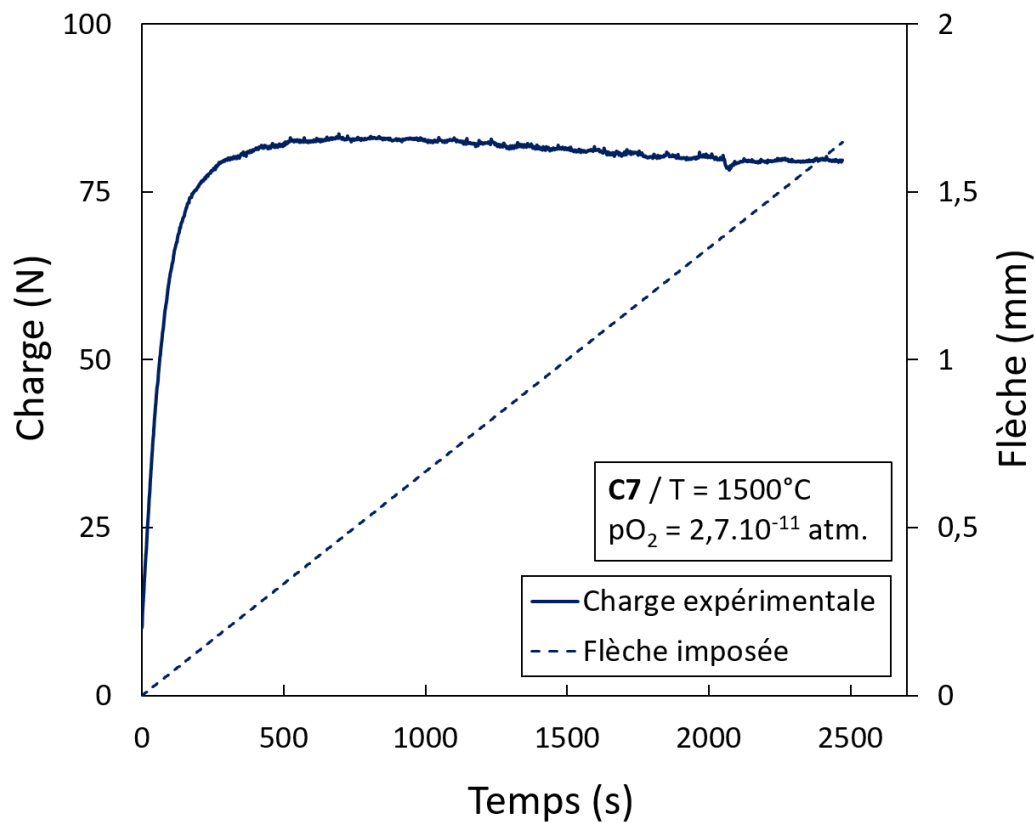


Figure VI-6. Evolution de la charge et de la flèche au cours du temps pour l'essai de flexion 3-points relatif à l'échantillon C7, réalisé à une vitesse de traverse imposée de 40  $\mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$ .

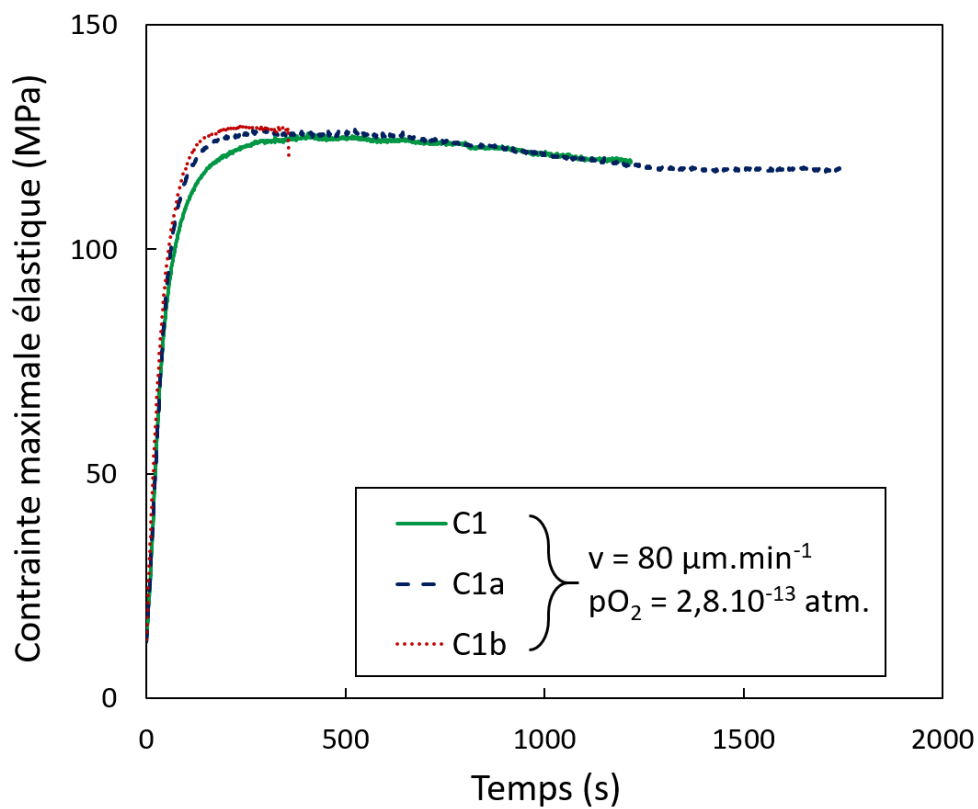


Figure VI-7. Comparaison de l'évolution de la contrainte maximale élastique en fonction du temps pour trois essais de flexion 3-points réalisés dans des conditions identiques.

Un ensemble de résultats d'essais réalisés à vitesse de traverse identique ( $40 \mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$ ) et à pressions partielles d'oxygène croissantes est présenté sur la Figure VI-8 sous la forme de contraintes en fonction des déformations élastiques maximales telles qu'établies à travers les relations (3.12 et 3.14). Toutes les courbes expérimentales présentent la même allure dont la discussion est reportée à la section relative aux examens microstructuraux. La Figure VI-8 illustre l'effet « adoucissant » de la pression partielle d'oxygène tel que nous l'avons observé pour les essais de compression présentés au chapitre précédent. On constate qu'une augmentation de trois ordres de grandeurs de la pression partielle d'oxygène (de  $10^{-13}$  à  $10^{-10}$  atm) entraîne une diminution de la contrainte maximale élastique d'environ 105 MPa à 91 MPa, pour une déformation maximale de l'ordre de 4%. On notera que ces essais ont été réalisés sans précaution particulière vis-à-vis des fluctuations de température de l'eau de refroidissement du procédé.

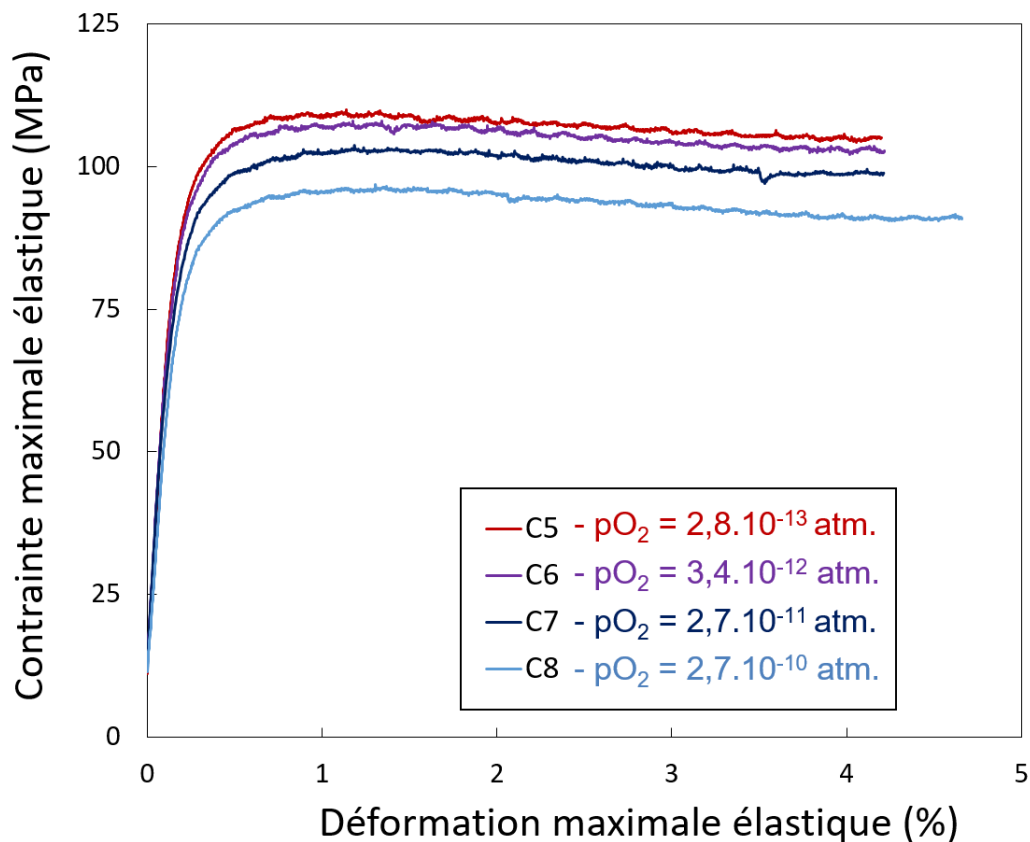


Figure VI-8. Courbes de contrainte-déformation pour quatre essais de flexion 3-points à vitesse de traverse imposée de  $40 \mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$ . Mise en évidence de l'effet de l'atmosphère.

Comme indiqué dans le chapitre 3, (relation 3.15), il existe une relation de proportionnalité entre la contrainte viscoplastique maximale et la contrainte élastique maximale. La constante de proportionnalité, pour une vitesse de déformation donnée, ne dépend que de l'exposant de la contrainte dans la loi de comportement phénoménologique (relation 1.9). Ainsi, quelle que soit la pression partielle d'oxygène considérée, la dépendance à cette grandeur de la contrainte d'écoulement viscoplastique maximale est identique à celle de la contrainte élastique maximale. Si les hypothèses considérées sont exactes, on peut donc s'attendre à ce que dans un diagramme log-log, la contrainte soit une fonction linéaire de la pression partielle d'oxygène et la pente de cette droite soit de l'ordre de grandeur du rapport  $\alpha/n$  dans la relation phénoménologique.

La Figure VI-9 présente la relation entre la contrainte élastique maximale et la pression partielle d'oxygène pour chacune des trois vitesses de traverses investiguées. La contrainte maximale élastique est prise à un taux de déformation fixe de 4%. On estime une incertitude sur la détermination de la contrainte à 1 MPa (entres les variations causées par le système de refroidissement et la précision de la cellule de force) et une imprécision de 10% sur la mesure de la pression d'oxygène. Les données expérimentales s'alignent ainsi relativement bien suivant des droites dont les pentes sont proches :  $-\alpha/n \approx 0,024 \pm 0,002$ . Le fait que l'exposant soit proche d'une vitesse de déformation à l'autre suggère un mécanisme de déformation commun à tous les essais. En suivant une méthodologie similaire à celle conduite pour les essais réalisés en compression, nous pouvons exprimer la vitesse de déformation élastique maximale en fonction de la grandeur  $\sigma \cdot pO_2^{\alpha/n}$ , et placer ces points dans un diagramme log-log. La Figure VI-10 regroupe l'ensemble des essais de flexion 3-points réalisés à des vitesses de traverses allant de 40 à 120  $\mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$ . Les points expérimentaux s'alignent relativement bien.

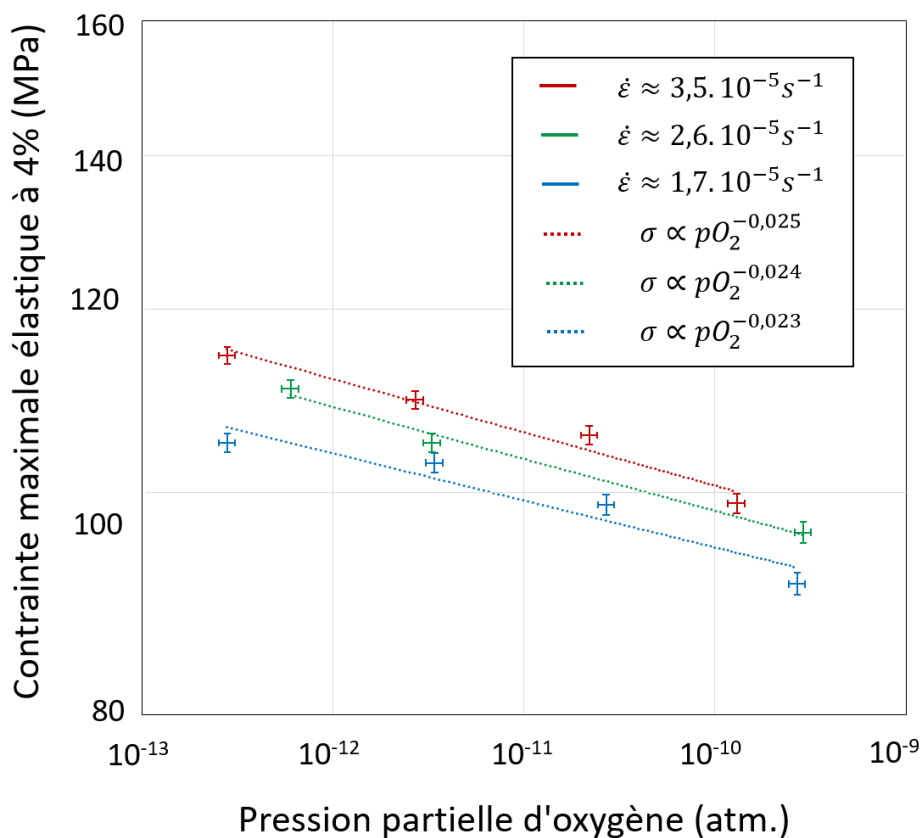


Figure VI-9. Contrainte élastique maximale à 4 % de déformation maximale élastique en fonction de la pression partielle d'oxygène à 1500°C. Vitesses de déformation élastiques maximales : Rouge -  $3,5 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$  ; Vert -  $2,6 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$  ; Bleu -  $1,7 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ .

A partir de la pente définie par les points expérimentaux représentés sur cette figure, on peut estimer le paramètre lié à la dépendance de la vitesse de déformation à la contrainte :  $n = 9,3 \pm 0,1$ .

L'exposant de la pression partielle d'oxygène dans l'expression de la loi de comportement phénoménologique (1.9) s'en déduit aisément :  $\alpha = 0,222 \approx \frac{1}{4,5}$ .

Pour finir, il est à présent possible d'appliquer les formules d'équivalence de Timoshenko (3.15) et (3.16) aux grandeurs élastiques, afin de déterminer les contraintes et déformations viscoplastiques,



images, en principe, plus fidèles de l'état thermomécanique des éprouvettes. En supposant une valeur de  $n$  de 9,3, l'application des relations dites de Timoshenko fournissent :

$$\sigma_{vp}^{max} = 0,7 \cdot \sigma_{élastique}^{max} \text{ et } \varepsilon_{vp}^{max} = 3,7 \cdot \varepsilon_{élastique}^{max}$$

La Figure VI-11 représente ainsi les contraintes élastiques maximales et viscoplastiques en fonction des déformations élastiques maximales et viscoplastiques respectivement. La courbe bleue est relative aux grandeurs élastiques, et la courbe rouge aux grandeurs viscoplastiques.

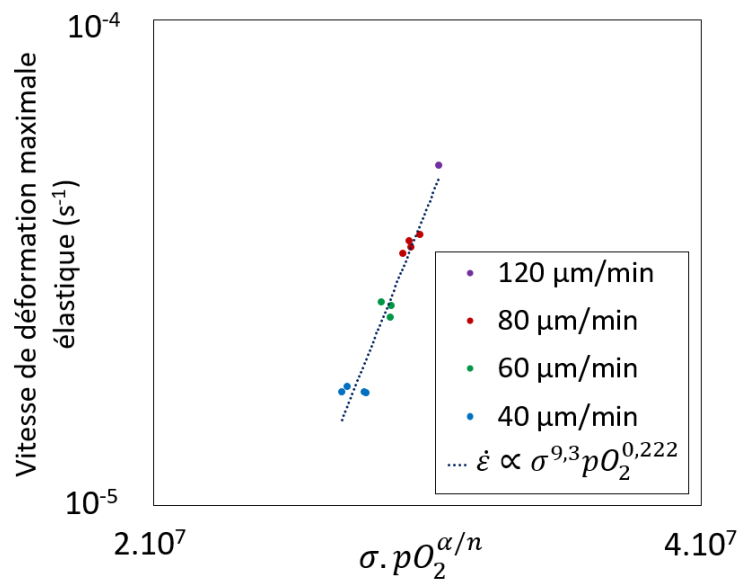


Figure VI-10. Estimation de l'exposant de la contrainte à partir de l'équation (5.2) avec les points expérimentaux de tous les essais de flexion 3-points.  $\alpha/n = 0,024$ .

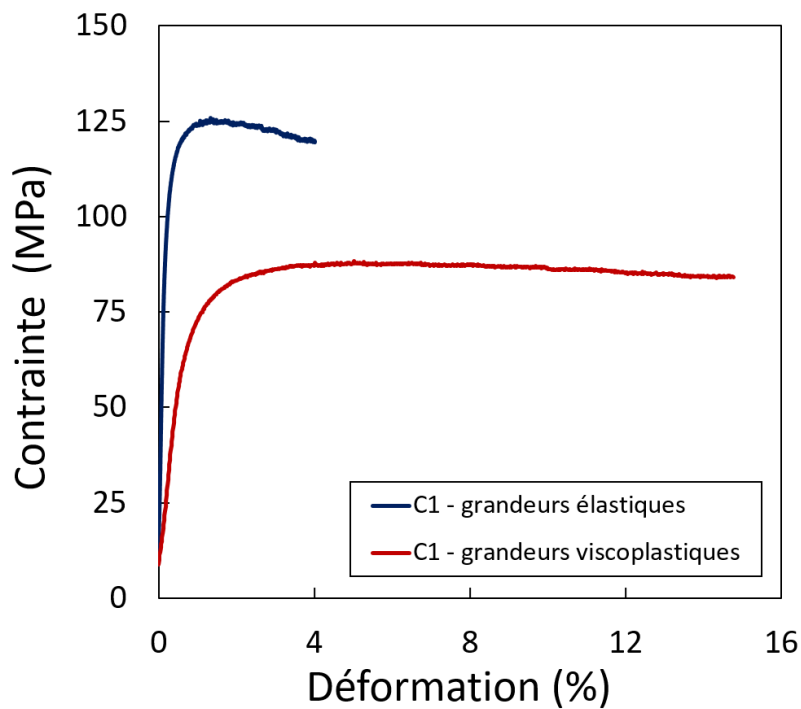


Figure VI-11. Courbes contraintes-déformation de l'essai de flexion 3-points de l'éprouvette C1. Bleu : grandeurs déduites des formules élastiques ; Rouge : grandeurs déduites des formules d'équivalence de Timoshenko.

On note que la déformation maximale viscoplastique est en principe de 16%. Elle est sensiblement plus grande que la valeur élastique estimée. Bien que ces grandeurs soient plus en rapport avec l'état thermomécanique réel du matériau, elles correspondent toujours à des valeurs maximales sur l'ensemble de l'éprouvette, c'est-à-dire sous le point d'appui d'application supérieur (en compression) et au point correspondant sur la surface opposée de l'éprouvette (en traction).

### VI.3.2.2. Essais de flexion 4-points

La Figure VI-12 représente le résultat de l'essai réalisé sur l'éprouvette C15 à une vitesse de traverse de  $60 \mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$ , sous une pression partielle d'oxygène de  $5,5\cdot 10^{-11} \text{ atm}$ . Comme montré aux chapitres 3 et 4, l'évolution de la charge est croissante, puis rapidement linéaire. La flèche maximale est supérieure à celle imposée par le déplacement de la traverse, mais semble légèrement s'infléchir à mesure que l'essai progresse.

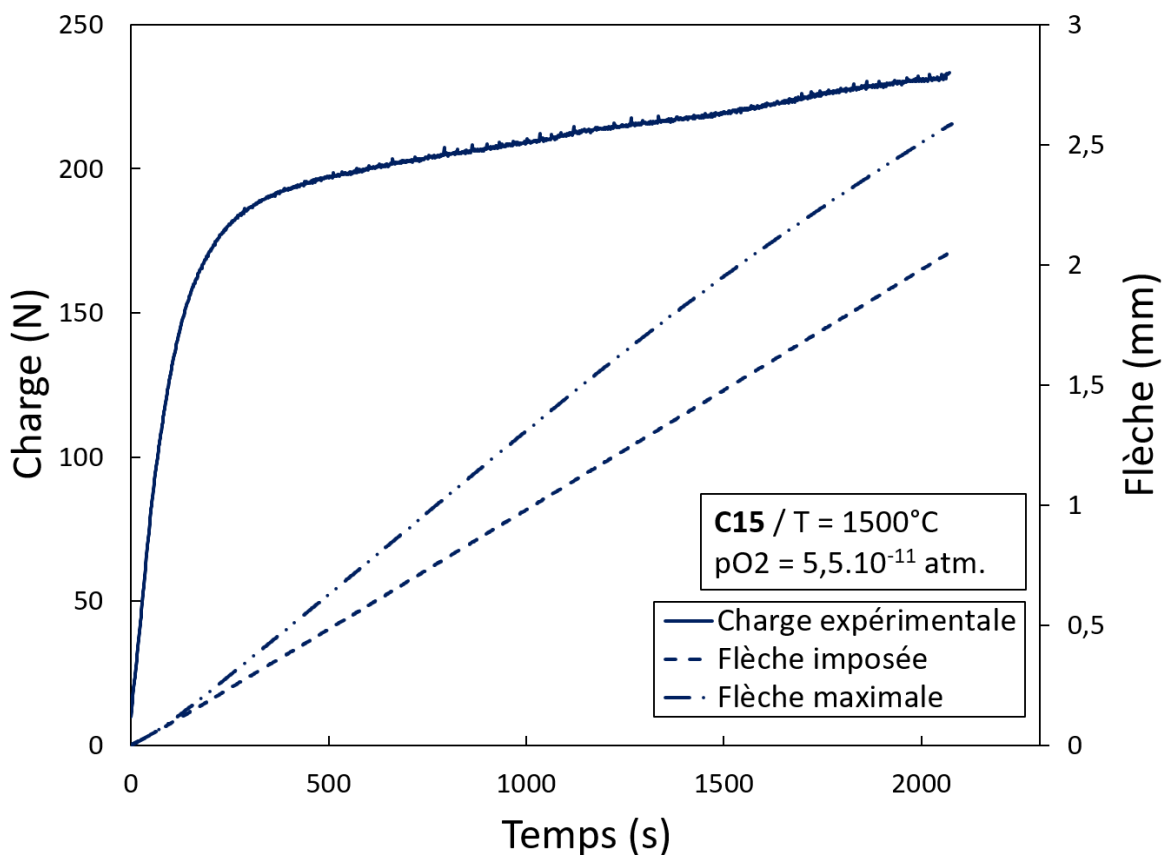


Figure VI-12. Evolution de la charge et de la flèche (imposée et maximale) au cours du temps. Essai de flexion 4-points à vitesse de traverse imposée de  $60 \mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$  – C15.

Les différents essais de flexion 4-points ont permis de mettre en évidence la dépendance de la vitesse de déformation à la contrainte et la pression partielle d'oxygène. Cependant d'avantage d'éprouvettes ont rompu lors de ces essais qu'au cours des essais de flexion 3-points, principalement à la vitesse de déformation maximale utilisée de  $60 \mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$ . Au vue de l'évolution de la charge, lors des essais de flexion 4-points, il nous est impossible d'analyser les données de la même façon que nous l'avons fait pour les essais de compression ou de flexion 3-points. En effet, il semble que la charge, et par conséquent la contrainte viscoplastique maximale, croisse linéairement avec le temps. Cependant, la simulation numérique nous renseigne sur le fait que le régime permanent survient quelques minutes après le début de l'essai, comme l'indique la Figure IV-19, du chapitre 4. Ainsi, le profil de contrainte

en régime permanent ne peut se calculer analytiquement qu'en se basant sur la contrainte estimée au moment où l'évolution de la charge en fonction du temps devient linéaire. Nous quantifions donc l'influence de la contrainte et de l'atmosphère à partir de valeurs expérimentales déterminées à un taux de déformation de l'ordre de 1%. Cette valeur correspond à la déformation à partir de laquelle on peut considérer que le régime stationnaire s'établit. Cela coïncide pour l'ensemble de nos essais au moment où la charge atteint sa pseudo-stabilisation et entame sa montée progressive.

La Figure VI-13 représente les contraintes maximales élastiques définies à un taux de déformation de 1% pour les différents essais de flexion 4-points effectués. En vert sont regroupés les résultats des essais réalisés à une vitesse de traverse de 45  $\mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$ , et en bleu ceux des essais réalisés à 30  $\mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$ .

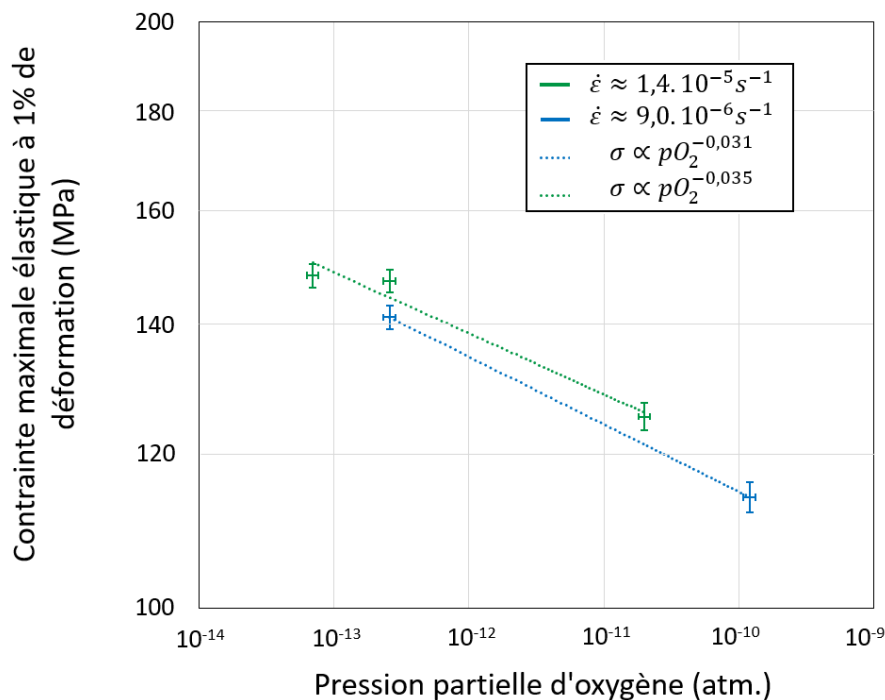


Figure VI-13. Contrainte élastique maximale en fonction de la pression partielle d'oxygène à 1500°C pour différentes vitesses de déformation élastique maximales : vert –  $1,4 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$  ; bleu –  $9,0 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ .

Les points expérimentaux s'alignent approximativement suivant des droites dont la pente  $\alpha/n$  est de  $-0,033 \pm 0,002$ .

L'ensemble des résultats des essais de flexion 4-points est indiqué sur la Figure VI-14 où sont reportés, dans un diagramme log-log, les couples  $(\dot{\epsilon}, \sigma p O_2^{\frac{\alpha}{n}})$ . Le point expérimental correspondant à l'essai réalisé à une vitesse de traverse de 60  $\mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$  présente un comportement singulier par rapport aux autres. Nous avons tenté de réaliser quatre essais à cette vitesse et celui-ci est le seul qui n'ait pas rompu prématurément, ce qui laisse supposer un endommagement prématuré à ce niveau de sollicitation qui nécessiterait un changement de géométrie d'éprouvettes.

L'estimation des paramètres de la loi phénoménologique a été réalisée sans tenir compte de ce point. Les exposants de la contrainte et de la pression partielle d'oxygène intervenant dans cette relation phénoménologique sont donc respectivement de l'ordre de  $7,7 \pm 0,5$  et de  $\frac{1}{4}$ .

Pour finir, à partir de la valeur identifiée de l'exposant de la contrainte et des relations (3.15 et 3.16), les grandeurs viscoplastiques sont estimées à partir des grandeurs élastiques :

$$\sigma_{vp}^{max} = 0,7 \cdot \sigma_{élastique}^{max} \text{ et } \varepsilon_{vp}^{max} = 3,2 \cdot \varepsilon_{élastique}^{max}$$

La Figure VI-15 montre les dépendances de la contrainte à la déformation suivant qu'il s'agit de grandeurs élastiques ou viscoplastiques. La courbe bleue correspond à la relation contrainte – déformation maximales élastiques et la courbe rouge à la relation contrainte – déformation maximales viscoplastiques. On note donc que la contrainte viscoplastique s'établit à 3 % de déformation à une valeur de l'ordre de 80 MPa, et que l'on peut s'attendre à une déformation maximale en fin d'essai en peau interne ou externe d'après cette analyse de l'ordre de +/- 16 %.

Les examens microstructuraux permettront de valider ou d'invalider les niveaux estimés de contraintes et de déformations.

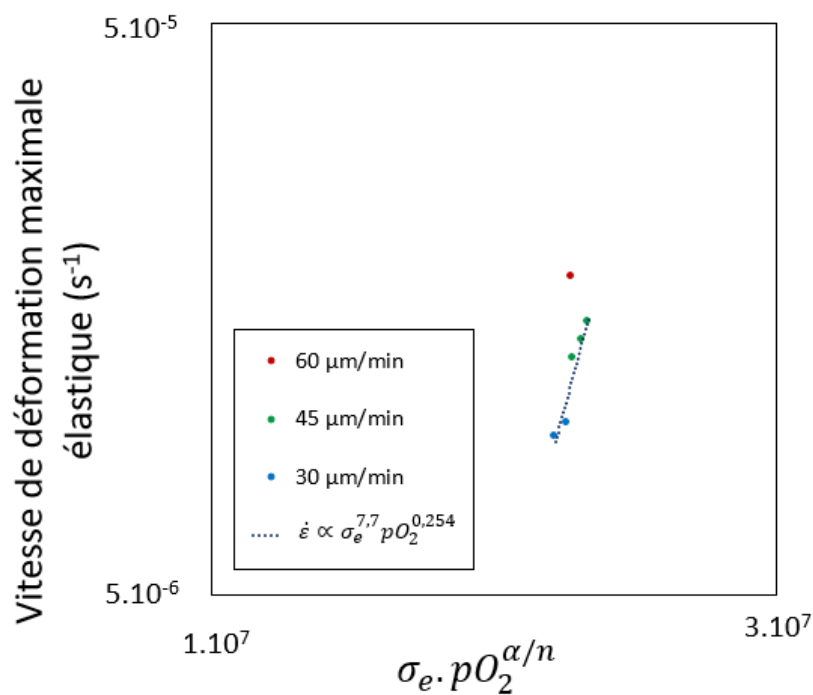


Figure VI-14. Estimation de l'exposant de la contrainte dans la relation phénoménologique en utilisant les points expérimentaux des essais de flexion 4-points.  $\alpha/n = 0,033$ .

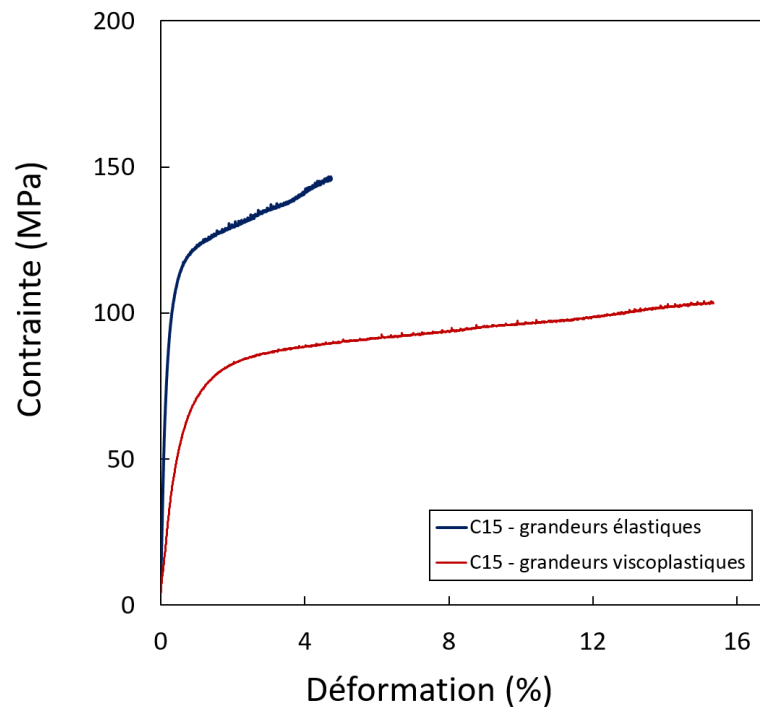


Figure VI-15. Courbes contraintes-déformation pour l'essai de flexion 4-points correspondant à l'éprouvette C15. La courbe bleue représente les grandeurs déduites des formules élastiques ; la courbe rouge les grandeurs déduites des formules d'équivalence de Timoshenko.

### VI.3.3. Conclusions

Deux campagnes expérimentales ont été réalisées à 1500°C et à plusieurs vitesses de déformation et pressions partielles d'oxygène. En utilisant les résultats d'essais à la lumière des calculs de structure réalisés, nous avons pu estimer les paramètres de la loi de comportement phénoménologique liés à l'influence de la contrainte et de la pression partielle d'oxygène sur la vitesse de déformation viscoplastique. Pour les essais de flexion 3-points, à une température de 1500°C, dans une gamme de vitesses de déformation (maximale viscoplastique) allant de  $6,4 \cdot 10^{-5} \text{s}^{-1}$  à  $1,8 \cdot 10^{-4} \text{s}^{-1}$  et pour des pressions partielles d'oxygène comprises entre  $10^{-13}$  et  $10^{-10}$  atm, la vitesse de déformation en régime stationnaire peut s'exprimer de la façon suivante :

$$\dot{\epsilon}_{vp} \propto \sigma_{vp}^{9,3} pO_2^{\frac{1}{3,9}} \quad (\text{Flexion 3 – points : 6.1})$$

En flexion 4-points, à la même température, dans une gamme de vitesse de déformation (maximale viscoplastique) allant de  $3,2 \cdot 10^{-5} \text{s}^{-1}$  à  $4,9 \cdot 10^{-5} \text{s}^{-1}$  et pour des pression partielles d'oxygène comprises entre  $10^{-13}$  et  $10^{-10}$  atm, la vitesse de déformation en régime stationnaire s'exprime de la façon suivante :

$$\dot{\epsilon}_{vp} \propto \sigma_{vp}^{7,7} pO_2^{\frac{1}{4,5}} \quad (\text{Flexion 4 – points : 6.2})$$

Malgré des différences, relatives notamment à l'exposant de la contrainte, les dépendances observées sont du même ordre. Il est clair que des essais complémentaires à d'autres vitesses de déformation et d'autres pressions partielles d'oxygène seraient de nature à rendre ces résultats plus robustes. On peut souligner la très bonne reproductibilité de nos essais, quel que soit le mode de flexion retenu.

## VI.4. Examens microstructuraux post-essai

Cette partie est consacrée à la présentation des examens macroscopiques et microstructuraux réalisés sur les éprouvettes déformées en flexion. Ceux-ci se composent d'examens en microscopie optique et électronique, ainsi que d'analyses EBSD. Notre objectif premier est d'étayer les résultats macroscopiques des essais et l'analyse proposée par des examens qui révèlent les différents mécanismes de déformation dans le volume de l'éprouvette. Nous avons vérifié avant tout, qu'il s'agisse des essais de flexion 3 ou 4 points, que les hypothèses qui sous-tendent l'établissement des relations (3.12, 3.14, 3.15 et 3.16) s'appliquent dans notre cas ; c'est-à-dire que les dimensions des sections des éprouvettes évoluent très peu du fait de l'essai.

Notons également qu'à notre connaissance, il n'existe pas dans la littérature de publications relatives à l'évolution de la microstructure du dioxyde d'uranium (telle qu'on peut la caractériser par EBSD) déformé en flexion dans des conditions où la déformation est viscoplastique.

### VI.4.1. Eprouvettes déformées à l'issue d'essais de flexion 3-points

#### VI.4.1.1. Fissuration des éprouvettes

La Figure VI-16 est l'image d'une éprouvette déformée après un essai de flexion 3-points. On distingue nettement la zone centrale dans laquelle la déformation est localisée ainsi que la marque d'interaction chimique entre le tungstène et le dioxyde d'uranium au niveau des points d'appuis inférieurs. En dehors de la région centrale de l'éprouvette, le matériau paraît intact, avec ses fibres externes, inférieure et supérieure, parfaitement rectilignes.



Figure VI-16. Photographie d'une éprouvette déformée en flexion 3-points. Eprouvette C11 –  $T = 1500^{\circ}\text{C}$  ;  $p_{\text{O}_2} = 2,9 \cdot 10^{-10} \text{ atm.}$  ;  $v = 60 \text{ }\mu\text{m} \cdot \text{min}^{-1}$  ; déformation viscoplastique maximale  $\sim 20\%$ .



Figure VI-17. Micrographie optique de la fibre externe en traction d'une éprouvette déformée en flexion 3-points. Eprouvette C9 –  $T = 1500^{\circ}\text{C}$  ;  $p_{\text{O}_2} = 6,0 \cdot 10^{-13} \text{ atm.}$  ;  $v = 60 \text{ }\mu\text{m} \cdot \text{min}^{-1}$  ; déformation viscoplastique maximale  $\sim 13\%$ .

Les examens micrographiques révèlent dans toutes les éprouvettes observées, des fissures présentes essentiellement dans les zones sollicitées en traction. La Figure VI-17 montre que ces fissures sont équidistantes, trait typique d'éprouvettes de flexion observé dans d'autres matériaux fragiles. La plus longue d'entre elles est située au niveau du plan de symétrie, là où le moment fléchissant est maximal. Celles de moindres extensions sont espacées régulièrement de part et d'autre de la fissure principale. On se propose ici d'évoquer l'origine de ces zones fissurées.

La plupart des essais de flexion 3-points ont pu être menés à leur terme. Cette observation témoigne du fait que la propagation des fissures dans nos conditions d'essais est une propagation stable. On peut comprendre ces observations à la lumière des mécanismes de rupture d'autres matériaux à haute température. La fissuration de telles éprouvettes a lieu en trois phases d'initiation, de propagation et de rupture. Le matériau résistant de toute façon assez peu à la traction et du fait de l'état de surface des échantillons et de la sollicitation très localisée que confère l'essai de flexion 3-points, les conditions d'amorçage de fissures sont toujours remplies. Le mécanisme d'ouverture de fissures au cours de cette phase est sans doute lié à des mécanismes de glissement intergranulaire, eux-mêmes induits, tout comme en compression, par des incompatibilités de déformation entre grains. Sur l'ensemble des observations de fissures réalisées sur des éprouvettes macroscopiquement intègres, l'essentiel des ruptures semble en effet intergranulaire, comme le suggère la Figure VI-18. Au cours de la phase de propagation stable de la fissure, les mécanismes viscoplastiques qui sont activés notamment en pointe de fissure sont de nature à accommoder la surconcentration de contraintes qu'elle engendre, ce qui contribue à une propagation stable de celle-ci. De la même façon, on imagine que si la vitesse de déformation imposée est trop élevée, les mécanismes d'accommodation ne sont plus suffisamment efficaces et les fissures auront tendance à se propager de manière instable.

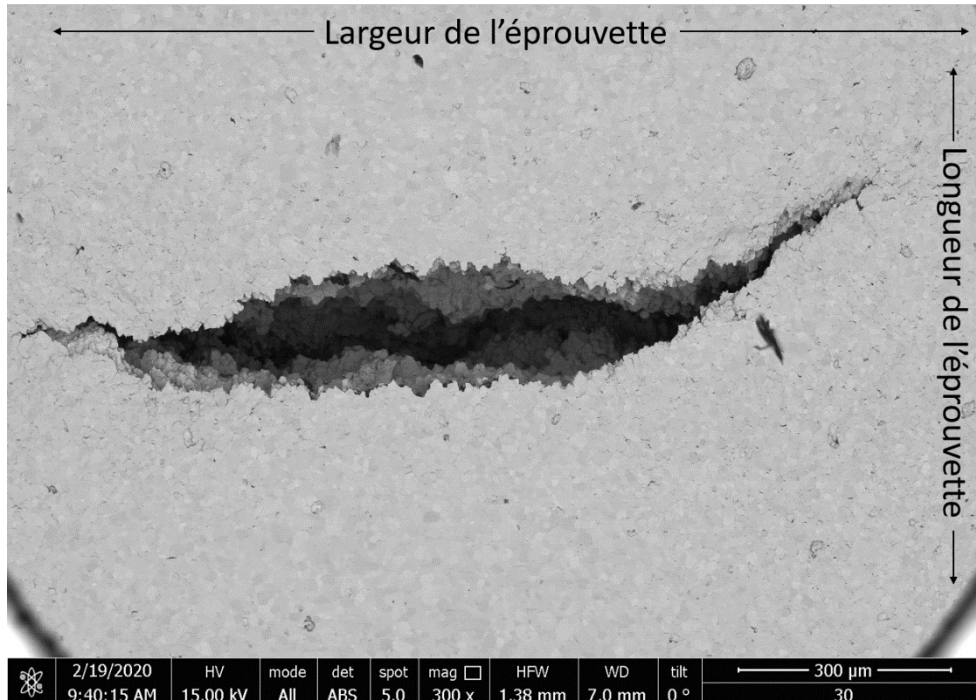


Figure VI-18. Micrographie électronique (MEB, mode : BSE) prise suivant la surface externe de l'éprouvette sollicitée en traction (orientation parallèle à l'épaisseur), présentant une large fissure ouverte. Echantillon C1<sub>a</sub> – T = 1500°C ; pO<sub>2</sub> = 2,8.10<sup>-13</sup> atm.; v = 80 µm.min<sup>-1</sup> - taux de déformation finale de 22%.

Si nous sommes convaincus que les essais réalisés sont très reproductibles (voir Figure VI-8), nous avons pu malgré tout observer une certaine dispersion statistique des résultats. Il est en effet arrivé

que, dans deux essais conduits dans des conditions identiques, l'une des éprouvettes rompe prématurément et que l'autre reste intègre. Ceci témoigne du caractère potentiellement aléatoire de la propagation. Lorsque la fissure rencontre un élément microstructural particulier, comme les poches de grains fins observées précédemment, zones qu'on imagine à plus faible résistance mécanique du fait d'une porosité supérieure, la propagation de la fissure peut devenir instable, menant ainsi à la ruine de l'éprouvette. Cette situation est illustrée plus précisément dans la section 5. La Figure VI-19 est une micrographie optique d'une éprouvette fortement endommagée et déformée jusqu'à un taux de déformation maximal de 5,9 % (déformation viscoplastique maximale estimée de 22%). L'ouverture centrale est large et profonde, et s'étend sur pratiquement un-quart de l'épaisseur totale de l'éprouvette. Deux fissures secondaires sont également visibles. L'éprouvette n'a pas rompu pendant l'essai. Cette éprouvette a été testée dans des conditions strictement identiques à une autre, qui a rompu en début d'essai. La Figure VI-20 nous permet de comparer l'aspect des fissures dans ces deux cas. La Figure VI-20a montre une trajectoire de fissure rectiligne, alors que la Figure VI-20b présente une trajectoire sinueuse caractéristique de fissures intergranulaires. La Figure VI-21, correspondant à l'éprouvette C1<sub>b</sub> qui a rompu prématurément, montre des traces de fissurations transgranulaires, ainsi qu'un passage de la fissure sur une poche de grains très fins (que l'on peut visualiser sur la partie gauche de la micrographie).

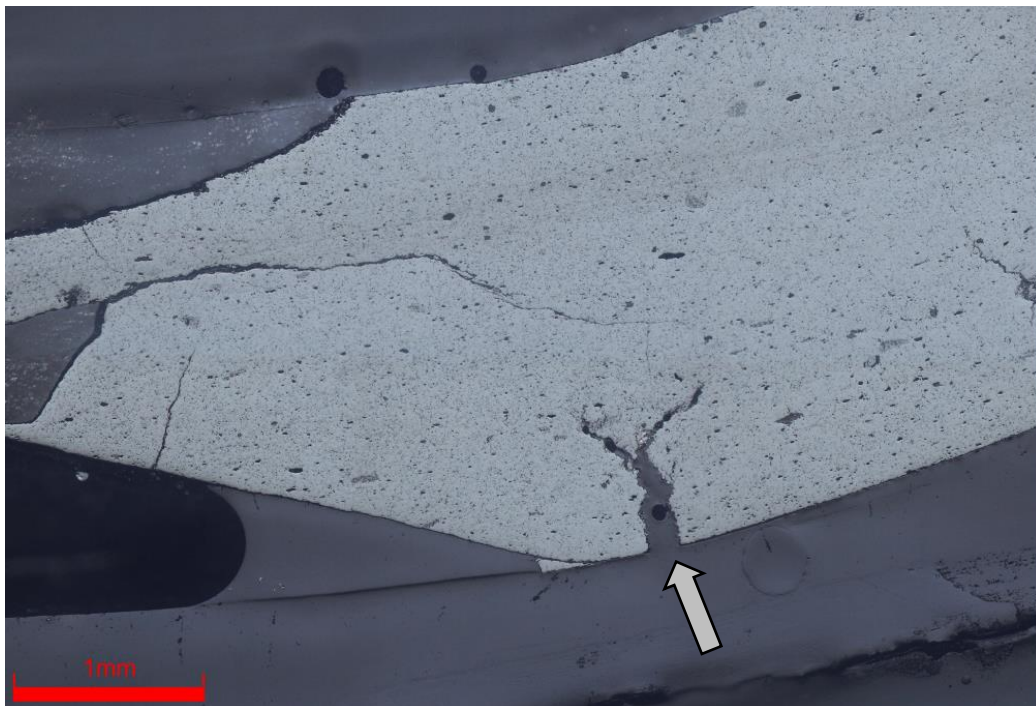


Figure VI-19. Micrographie optique d'une partie d'une éprouvette déformée en flexion 3-points. Mise en évidence d'une large fissure (la flèche indique le sens de l'observation de la micrographie en Figure VI-18). Echantillon C1<sub>a</sub>.



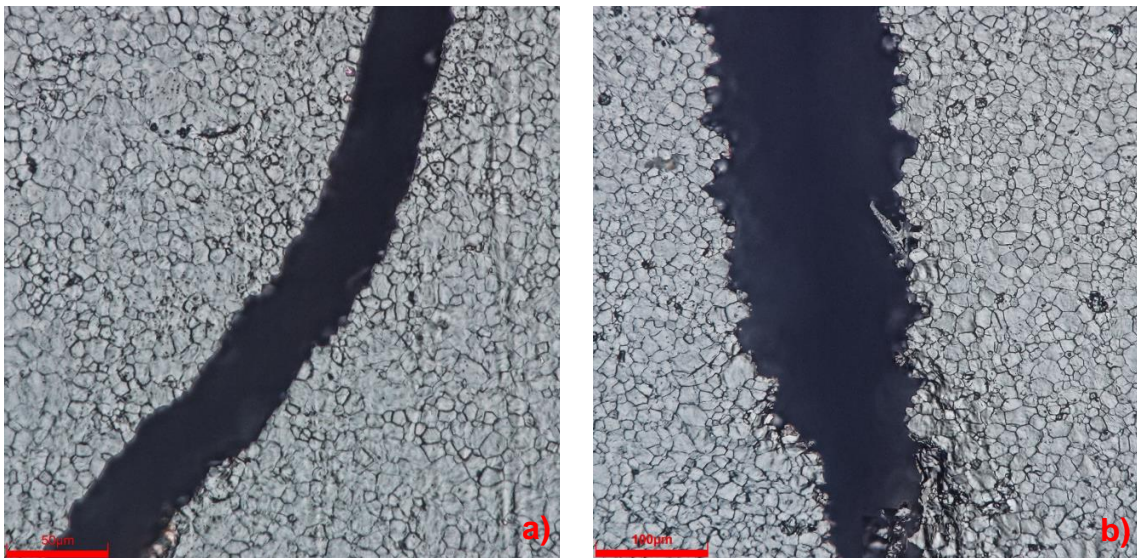


Figure VI-20. Micrographies optiques de deux fissures. a) Caractère transgranulaire - ruine de l'éprouvette C1<sub>b</sub> ; b) caractère intergranulaire - éprouvette intact C1<sub>a</sub>.

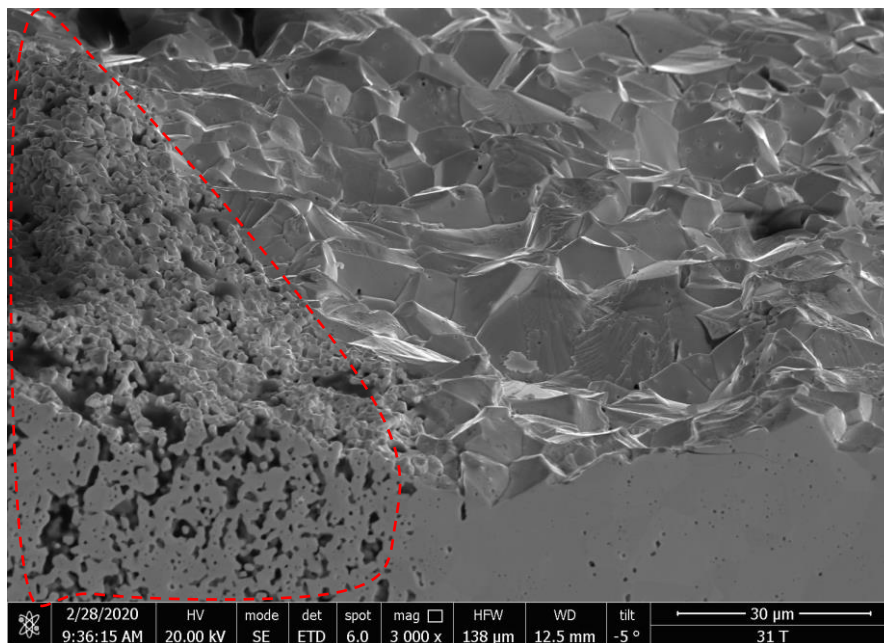


Figure VI-21. Micrographie électronique (MEB, mode : SE) montrant un faciès de rupture. Echantillon C1<sub>b</sub>. Mise en évidence du passage de la fissure sur une poche de grain fins plus poreuses (zone contourée).

Nous pouvons conclure cette section en surlignant les deux points essentiels suivants. Tout d'abord, on voit que nos échantillons n'échappent donc probablement pas aux mécanismes classiques observés sur d'autres matériaux lorsque la fissuration est associée à une déformation viscoplastique. La nature des fissures (intergranulaires, transgranulaires), leur vitesse de propagation au regard des conditions d'essais (température, pression partielle d'oxygène et vitesse de traverse), les conditions d'instabilité, les mécanismes d'ouvertures de celles-ci, sont des caractéristiques qui ont valeur d'études à part entière et que nous n'avons malheureusement pas pu investiguer de manière systématique dans le cadre de ce travail. De plus, si les mécanismes qui sous-tendent l'endommagement par fissuration observé dans nos éprouvettes sont probablement intimement couplés aux mécanismes de déformation viscoplastique du matériau en général, la présence même de ces fissures rend difficile l'application des relations établies précédemment (3.12, 3.14, 3.15 et 3.16) qui n'en tiennent

évidemment pas compte. On voit donc que les lois établies seront difficilement comparables aux lois de comportement phénoménologiques établies pour la compression par exemple.

#### VI.4.1.2. Estimation de la déformation locale par indentation

Nous venons de voir que la présence de fissures dans les zones des éprouvettes sollicitées en traction était de nature à remettre en cause l'analyse de ces essais telle que nous la proposons dans la section 3, et la valeur de la déformation locale réelle du matériau en fin d'essai se pose. Dans le but de l'estimer ainsi que de mettre en évidence une dissymétrie potentielle du comportement du matériau en traction et en compression, nous avons appliqué une méthode qui s'inspire des travaux de Chuang (C.-F. Chen & Chuang, 1990; Chuang, 1986). A partir d'une analyse méticuleuse d'essais de fluage en flexion, il parvient à différencier les comportements en compression et en traction de son matériau. Son raisonnement se base principalement sur la position de la fibre neutre et son éventuel décalage au cours des divers essais. Sa méthode consiste à réaliser un maillage de marqueurs sur la surface de l'éprouvette brute avant essai. Nous avons donc réalisé un motif simple composé de marques d'indentations. La mesure de l'allongement du motif après essai permet de remonter à la déformation locale. La fibre neutre est définie donc par la position dans l'épaisseur de déformation nulle.

Cette méthode s'applique parfaitement à des essais de flexion 4-points du fait de l'uniformité de l'état thermomécanique du matériau entre les deux points d'appuis supérieurs de l'éprouvette. Nous n'avons malheureusement pu la tester qu'en configuration de flexion 3-points. Le réseau a donc été centré avec la plus grande précaution afin qu'il soit positionné le plus proche possible du point d'application supérieur. Bien qu'il soit plus aisé de repérer un maillage d'indents *a posteriori* sur une surface polie, nous avons préféré le réaliser sur la surface brute afin de ne pas modifier les conditions d'essai.

Des marques d'indentation, espacées de  $250 \pm 10 \mu\text{m}$  (voir Figure VI-22), ont donc été réalisées sur les échantillons C11 et C12. La Figure VI-23 est une image optique de l'échantillon C12 après essai de flexion. Les distances entre deux points consécutifs d'une même ligne du maillage sont mesurées, et la déformation locale dans la direction de la fibre neutre est obtenue en divisant la variation de la distance entre deux points par sa valeur avant essai.

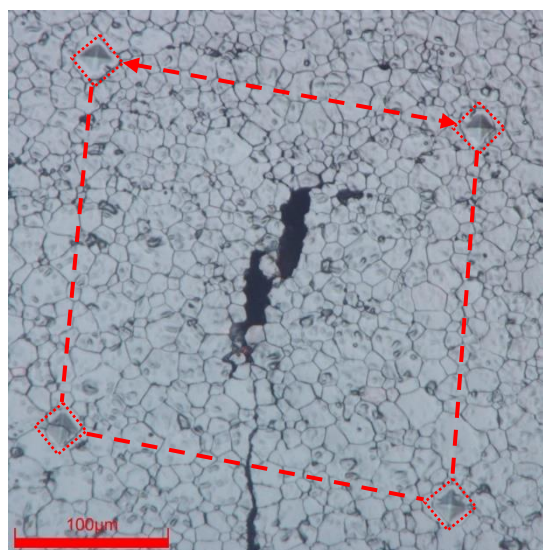


Figure VI-22. Mise en évidence du motif constitué de marques d'indentations sur la surface d'une éprouvette de flexion (C11) après essai.

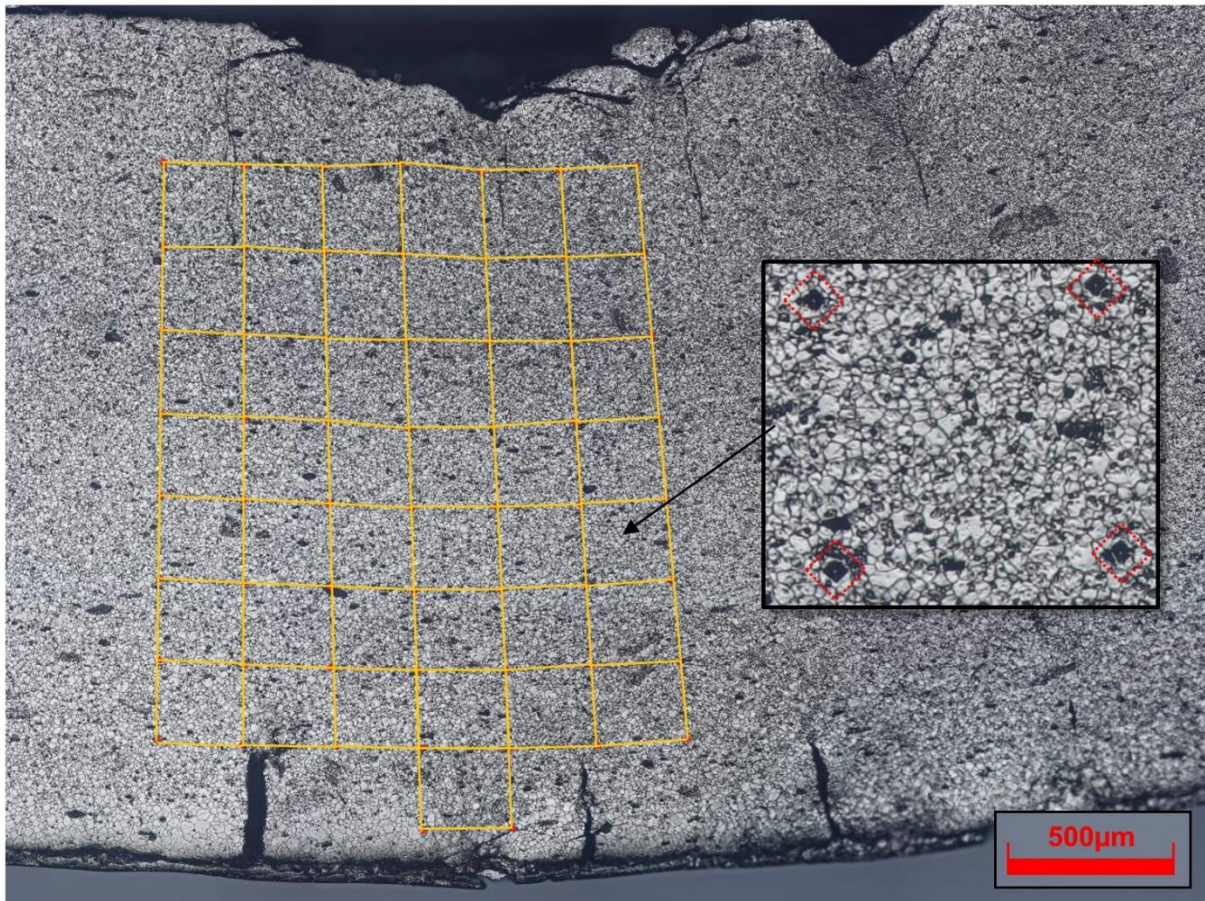


Figure VI-23. Micrographie optique mettant en évidence le maillage déformé. Epreuve C12 – T = 1500°C ; pO<sub>2</sub> = 2,9.10<sup>-10</sup> ; vitesse de traverse de 120 µm.min<sup>-1</sup> ; déformation élastique maximale finale d'environ 5,5%.

Les résultats des deux essais ainsi réalisés sont représentés sur la Figure VI-24. La position relative de chaque point dans l'épaisseur est représentée en abscisse. L'origine ( $h/h_0 = 0$ ) correspond à la zone de compression, la fibre neutre géométrique (le milieu de l'épaisseur) est donc située à l'abscisse  $h/h_0 = 0,5$ . L'observation de cette figure amène plusieurs remarques :

- 1- On constate que le déplacement de la fibre neutre vers la zone en compression est plus important pour l'échantillon C11 que pour l'échantillon C12. Celui-ci est plus prononcé dans le premier cas ( $h/h_0 = 0,38$ ) que dans le second ( $h/h_0 = 0,44$ ). Il est difficile de statuer sur l'origine de ce décalage qui pourrait être induit par une combinaison de facteurs : une dissymétrie du comportement viscoplastique en traction et en compression et/ou la présence de zones fortement fissurées, essentiellement dans la zone de traction.
- 2- La déformation dans l'épaisseur de l'éprouvette présente une variation quasi linéaire comme le prévoit la théorie (chapitre 3, section III.3.2). Par contre, la déformation est relativement homogène dans la direction de la fibre neutre. Les écarts types sont dans l'ensemble relativement faibles, de l'ordre de 0,1%.
- 3- Il est possible d'estimer le taux de déformation maximale, en extrapolant la droite en zéro. Celle-ci s'établit à  $6 \pm 1$  % pour l'échantillon C11 et à  $7 \pm 1$  % pour l'échantillon C12. Ces valeurs sont proches des valeurs élastiques estimées respectivement pour ces deux échantillons à 5,2 % et 5,5 %.

- 4- Dans la zone de traction, on constate une dispersion plus forte qu'ailleurs des mesures de déformation qui peut sans doute être attribuée à la présence de fissures très visibles sur la Figure VI-23. Cela nous empêche d'estimer précisément le taux de déformation sur cette extrémité-ci. Ces fissures vont d'une part induire une relaxation de la contrainte en leur voisinage, mais aussi des déplacements locaux qui ne sont pas strictement liés à la déformation viscoplastique que nous souhaitons estimer. Par ailleurs, la dispersion des déformations dans la zone de traction est plus importante dans le cas de l'échantillon C12, soumis à la vitesse de déformation la plus élevée, probablement du fait d'une densité et de longueurs de fissures plus importantes dans cet échantillon.

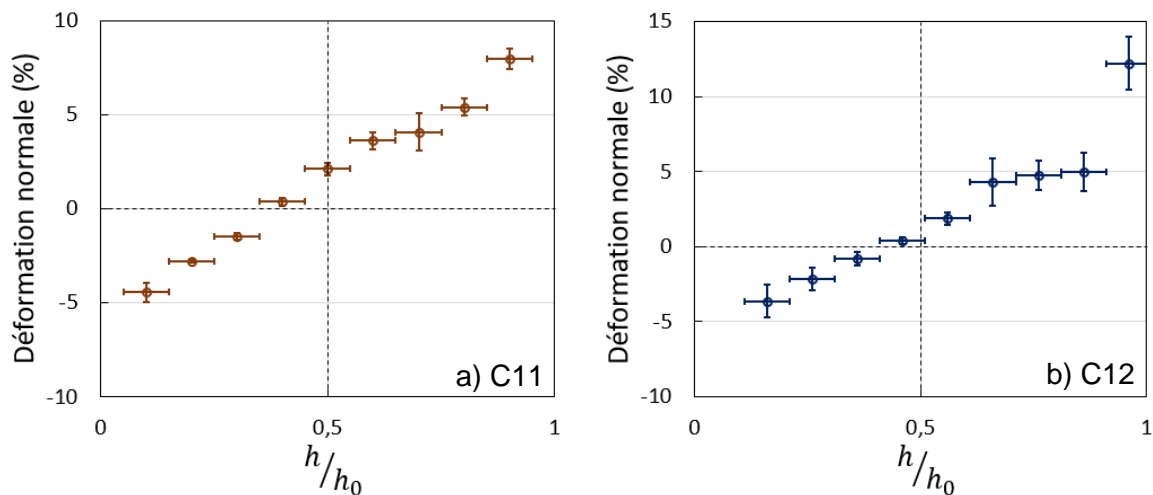


Figure VI-24. Evolution de la déformation normale moyenne, estimée par le rapport de la distance finale à la distance initiale entre deux marques d'indentation consécutives situées sur une même ligne du motif, en fonction de leur position suivant l'épaisseur. a) Epreuve C11 – vitesse de traverse de  $60 \mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$  ; b) Epreuve C12 – vitesse de traverse de  $120 \mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$ .

#### VI.4.1.3. Caractérisation de la subdivision des grains

La Figure VI-25a est une image électronique en électrons rétrodiffusés d'une région à proximité du point d'appui supérieur d'une éprouvette sollicitée jusqu'à un taux de déformation relativement faible. La microstructure présente les mêmes caractéristiques qu'avant essai : i) une porosité allongée dans le sens de la longueur de l'éprouvette ; ii) des poches de grains de plus petites tailles présentant une porosité plus importante ; iii) et des grains équiaxes. Nous ne remarquons pas de traces de déformation ou d'endommagement particulier. Un cliché à plus fort grandissement de cette région révèle quelques changements de contraste au sein des grains, signe d'une subdivision potentielle des grains d'origine (Figure VI-25b). Un histogramme de distribution de taille de grains déterminé à partir d'une cartographie EBSD après essai (déformation élastique maximale de 4%) est présenté et comparé à une distribution avant essai sur la Figure VI-26. La zone est une zone de compression proche de la surface de l'éprouvette qui présente donc *a priori* la déformation la plus importante. Les deux distributions semblent identiques ce qui corrobore l'absence notable de traces de déformation au niveau des grains. Des analyses EBSD ont également été réalisées dans le but de caractériser la subdivision des grains, l'objectif étant d'une part, de mettre en évidence voire quantifier une différence de réponse du matériau en traction et en compression, et d'autre part de corréler la réponse aux conditions d'essais. Les différentes cartographies présentées maintenant ont été réalisées suivant le schéma de la Figure VI-27.

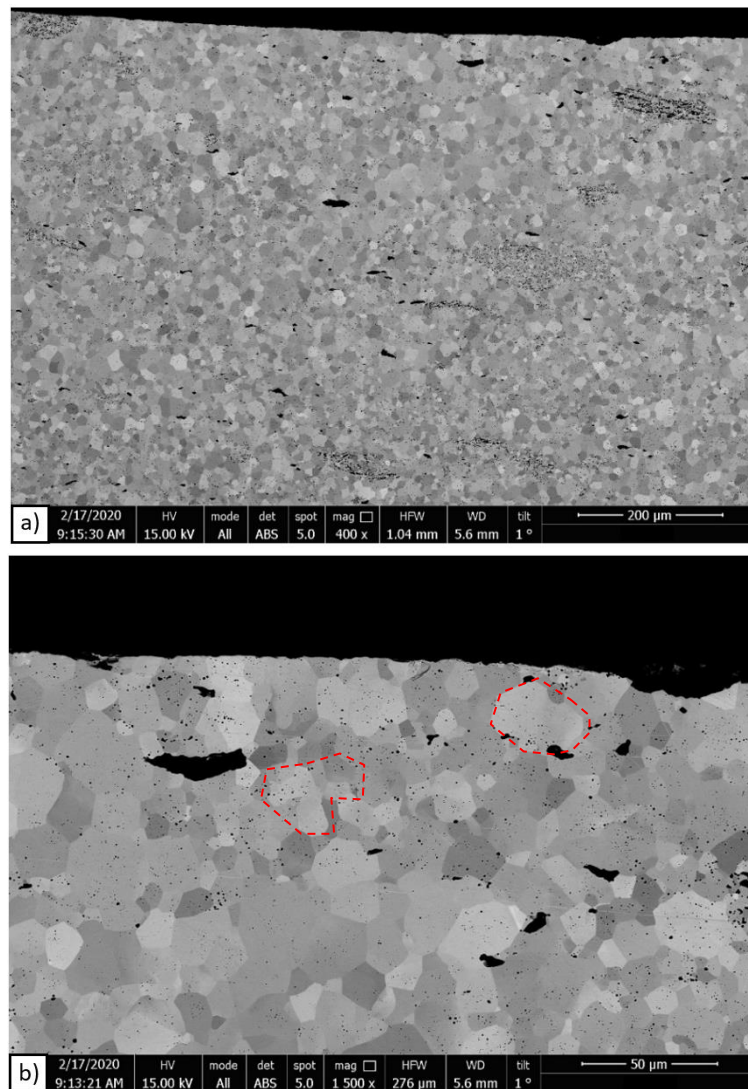


Figure VI-25. Micrographies électroniques (MEB, mode : BSE) présentant la surface à proximité de la zone de plus forte compression. Epruvette déformée en flexion 3-points. Epruvette C9 – T = 1500°C ; pO<sub>2</sub> = 6.10<sup>-13</sup> atm ; déformation élastique maximale d'environ 3,6%. Les contours rouges indiquent des régions avec un changement de contraste notable.

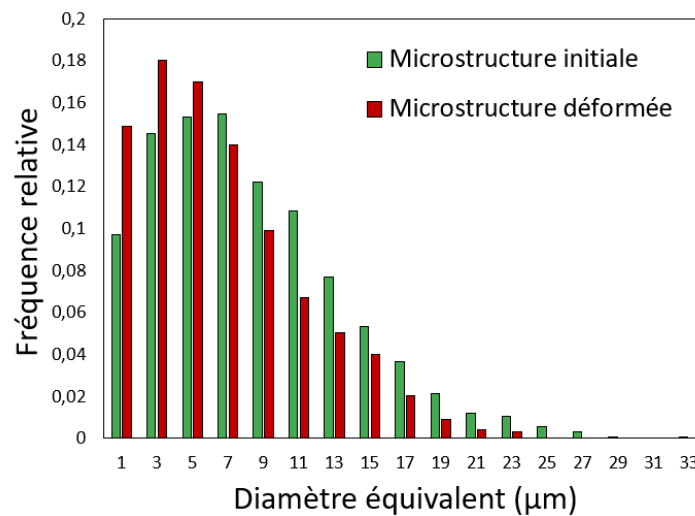


Figure VI-26. Histogramme de la population de taille de grains. Comparaison entre la microstructure initiale et la microstructure après un essai de flexion. Echantillon C7 ; déformation maximale élastique : 4,2%.

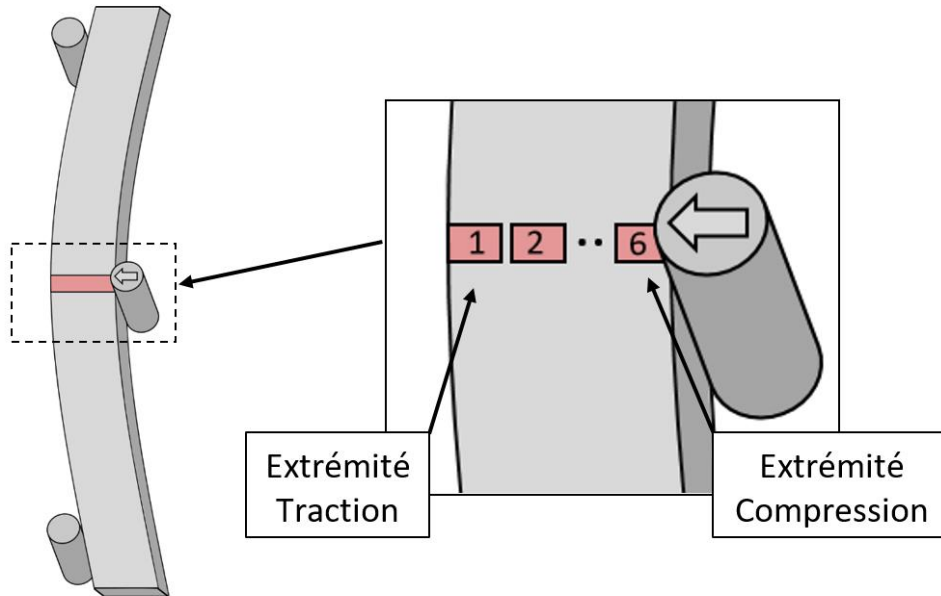


Figure VI-27. Illustration mettant en évidence l'orientation des éprouvettes par rapport aux cartes EBSD.

Une traversée complète, de la fibre externe en traction à celle en compression, a été réalisée en composant 5 à 6 champs EBSD de  $500 \times 350 \mu\text{m}^2$ . La Figure VI-28 correspond à deux de ces cartographies d'indice de qualité de diffraction et de désorientation, respectivement prises dans les zones de traction et de compression maximales de l'échantillon C1. Par ailleurs, la Figure VI-29 représente les fractions linéaires de sous-joints de grains déduites des six cartographies dont la disposition est représentée sur la Figure VI-27, dans toutes les classes de désorientations retenues. La Figure VI-29 permet de confirmer quantitativement l'impression laissée par la Figure VI-28 :

- 1- La zone sollicitée en traction présente une subdivision des grains significativement plus importante que la zone en compression. En outre, la Figure VI-29 montre que la subdivision suit l'évolution de la déformation mise en évidence dans la section précédente et qui est dissymétrique.
- 2- Le degré de subdivision des grains est moindre que celui observé lors d'essais de compression, ce qui confirme l'évaluation réalisée dans la section précédente qui montre que la déformation réelle maximale est plus proche de la valeur élastique que de la valeur estimée à partir des relations de Timoshenko (3.15 et 3.16).

La Figure VI-30 montre les fractions linéaires de sous-joints de grains déterminées à partir de cartographies EBSD prises sur l'éprouvette C7, suivant la disposition indiquée sur la Figure VI-27. Malgré le niveau de déformation finale comparable des échantillons C1 et C7, il semble que la subdivision relative à l'échantillon C7 soit beaucoup moins prononcée. Il est vrai que ces essais ont été réalisés à des vitesses de traverses différentes ( $40 \mu\text{m} \cdot \text{min}^{-1}$  et  $80 \mu\text{m} \cdot \text{min}^{-1}$ ), mais cela ne suffit pas à justifier un tel écart (fraction totale de 35% contre moins de 10%). Il semble plutôt que cette différence soit liée à l'hétérogénéité de la sollicitation qui est telle qu'il est difficile de réaliser des analyses EBSD sur des champs strictement comparables du fait de la variation rapide de la déformation suivant la longueur, en fonction de la distance à l'appui central.

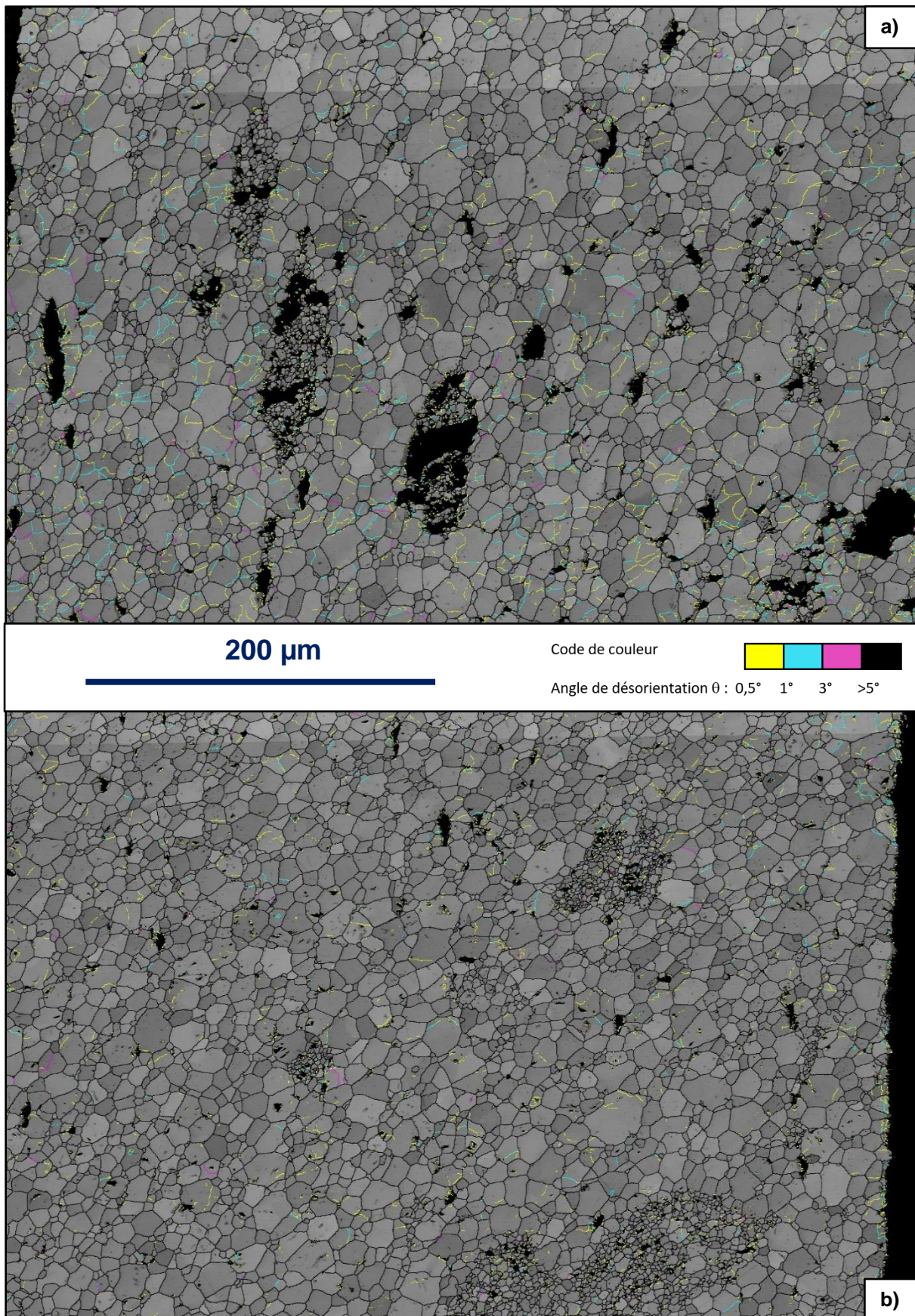


Figure VI-28. Carte d'indice de qualité de diffraction (en contraste de gris) et de désorientations acquises sur l'échantillon C1 [T = 1500°C ; pO<sub>2</sub> = 2,8.10<sup>-13</sup> atm ; v = 80  $\mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$  ; déformation maximale élastique de 4%] a) Région proche de la fibre externe en traction ; b) région proche de la fibre externe en compression.

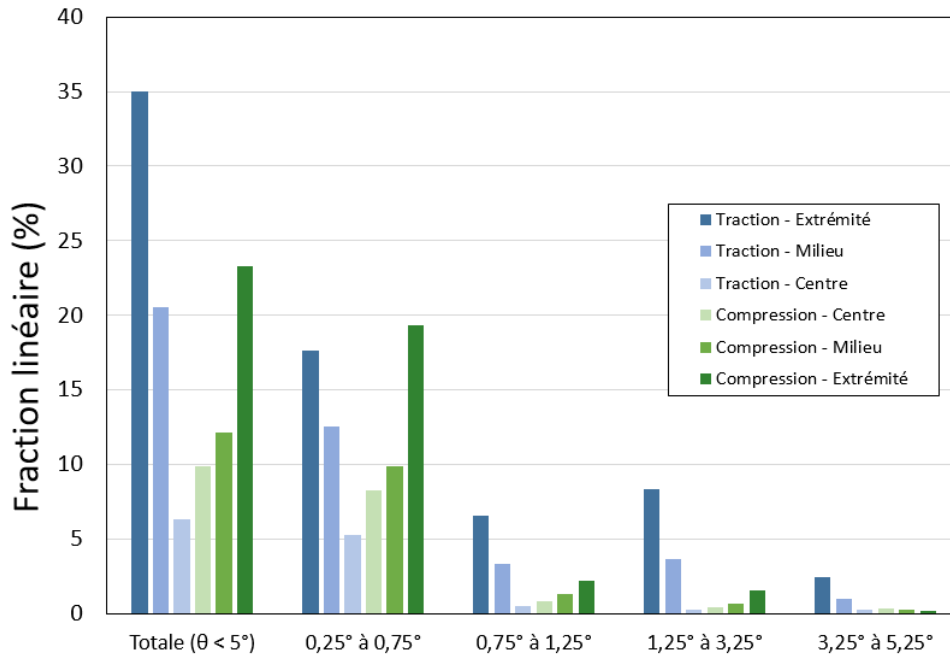


Figure VI-29. Histogramme représentant la fraction linéaire de différentes populations de sous-joints de grains à différentes positions dans l'épaisseur de l'éprouvette (6 clichés EBSD) et pour l'éprouvette C1 –  $T = 1500^\circ\text{C}$  ;  $p_{\text{O}_2} = 2,8 \cdot 10^{-13} \text{ atm}$  ;  $v = 80 \mu\text{m} \cdot \text{min}^{-1}$  (déformation élastique maximale de 4,1 %).

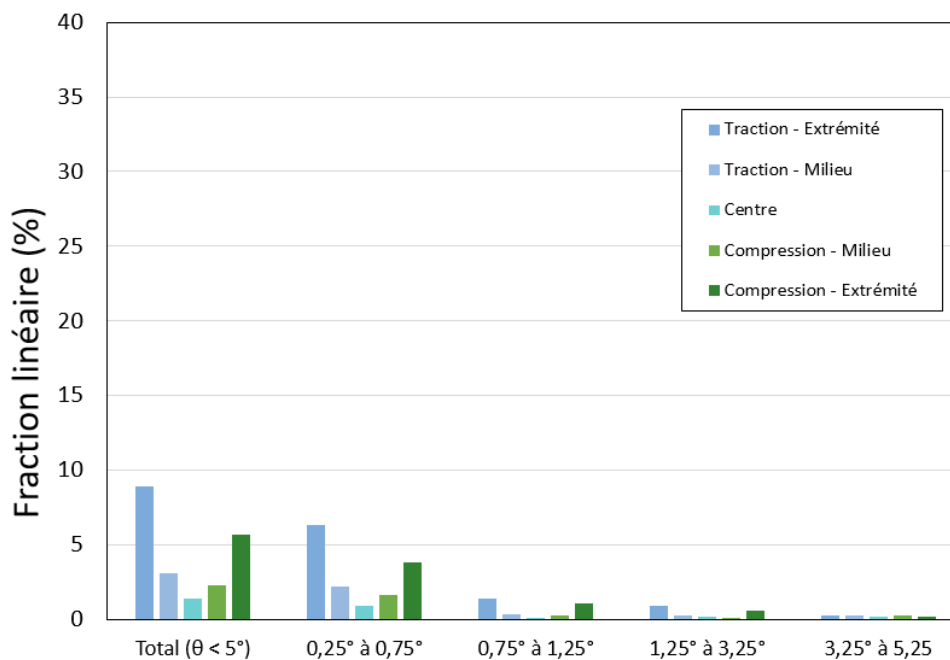


Figure VI-30. Histogramme représentant la fraction linéaire de différentes populations de sous-joints de grains à différentes positions dans l'épaisseur de l'éprouvette (6 clichés EBSD) et pour l'éprouvette C7 –  $T = 1500^\circ\text{C}$  ;  $p_{\text{O}_2} = 2,7 \cdot 10^{-11} \text{ atm}$  ;  $v = 40 \mu\text{m} \cdot \text{min}^{-1}$  (déformation élastique maximale de 4,2 %).



#### VI.4.2. Eprouvettes déformées en flexion 4-points

Les divers examens microstructuraux réalisés sur deux éprouvettes déformées en flexion 4-points sont présentés dans cette section. Les deux éprouvettes (C13 et C14) ont été déformées à la même vitesse de déformation, mais à des pressions partielles d'oxygène aux limites du domaine investigué. La photographie de la Figure VI-31 montre une éprouvette déformée, on retrouve une courbure constante entre les deux points d'appuis centraux (caractéristique de la flexion 4-points).



Figure VI-31. Photographie d'une éprouvette déformée en flexion 4-points jusqu'à une déformation maximale élastique de 3,3%. Echantillon C14 [ $T = 1500^{\circ}\text{C}$  ;  $v = 30 \mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$  ;  $p\text{O}_2 = 1,2 \cdot 10^{-10} \text{ atm}$ ].

La Figure VI-32 représente deux micrographies MEB de l'éprouvette C14 correspondant à des zones proches de la fibre externe sollicitée respectivement en compression (Figure VI-32a) et en traction (Figure VI-32b). Nous retrouvons sur ces clichés les caractéristiques propres à la microstructure du lot C telles que décrites dans la section VI.2.2 de ce chapitre. À l'inverse des éprouvettes déformées en flexion 3-points, aucune trace d'endommagement n'est observée quelle que soit la zone étudiée à la surface de l'échantillon. En effet, nous avons constaté une absence de fissures dans les zones les plus sollicitées, que ce soit en traction ou en compression. Les microstructures observées laissent présager d'un faible niveau de déformation plus cohérent avec l'évaluation élastique de celle-ci qu'avec son équivalent déterminé par les relations 3.15 et 3.16.

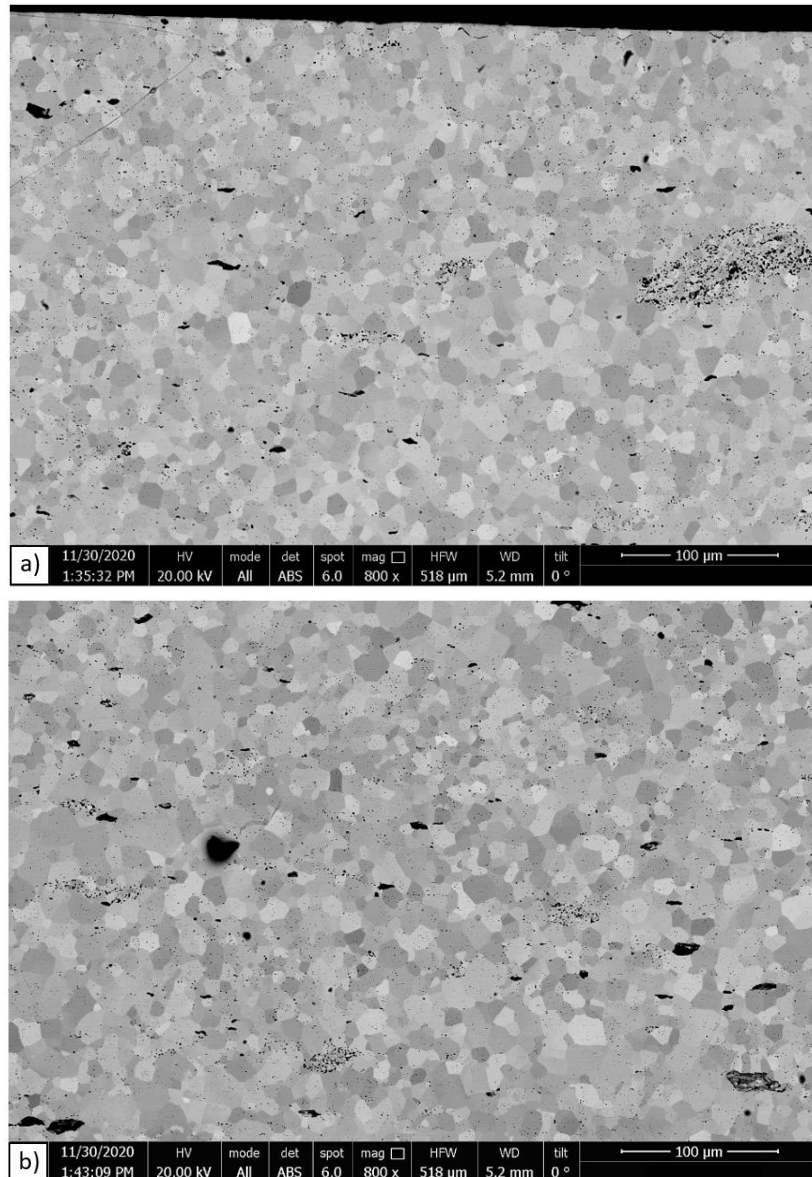


Figure VI-32. Micrographies électroniques (MEB, mode : BSE) acquises sur une éprouvette déformée en flexion 4-points, jusqu'à 3,3%. C14 [T = 1500°C ;  $p_{O_2} = 1,2 \cdot 10^{-10}$  atm ;  $v = 30 \mu\text{m} \cdot \text{min}^{-1}$ ]. a) Région à proximité du bord en compression ; b) Région à proximité du bord en traction.

Des cartographies EBSD composées de 6 champs de  $400 \times 300 \mu\text{m}^2$  ont été réalisées sur des éprouvettes déformées en flexion 4-points. La microstructure paraît homogène en dehors de la présence de quelques poches constituées de grains de faibles tailles. La Figure VI-33 est une cartographie EBSD réalisée au centre de l'éprouvette : on ne distingue pas de sous-joints de grains. La Figure VI-34 présente deux cartographies d'indice de qualité de diffraction et de désorientation correspondant à la région la plus sollicitée en traction (Figure VI-34a), et à une région la plus sollicitée en compression (Figure VI-34b). Cette figure révèle une subdivision des grains très limitée. Sur la carte correspondant à la zone en traction, les sous-joints de grains paraissent plus présents à proximité de la fibre externe. Ils semblent disparaître à mesure que l'on se rapproche du centre de l'éprouvette. Ces cartes suggèrent une déformation limitée des éprouvettes.

La fraction linéaire de sous-joints de grains a été quantifiée pour les deux échantillons. Une comparaison des résultats est donc possible, tout d'abord entre elles puis par rapports aux valeurs

obtenues en flexion 3-points. L'histogramme de la Figure VI-35 représente donc les fractions linéaires de sous-joints de grains estimées à partir de cartes EBSD réalisées le long de l'épaisseur de l'éprouvette C13. L'histogramme de la Figure VI-36 représente une analyse similaire de cartes EBSD relatives à l'éprouvette C14. Ces figures suscitent plusieurs commentaires applicables également aux essais de flexion 3-points :

- 1- La variation de la fraction linéaire de sous-joints dans l'épaisseur est maximale aux deux extrémités de l'éprouvette et minimale à proximité de la fibre neutre.
- 2- Le côté de l'éprouvette sollicitée en traction présente des signes de subdivision plus importants que la zone sollicitée en compression.
- 3- Au contraire des éprouvettes étudiées en flexion 3 points et à plus forte raison des pastilles testées en compression, les fractions de sous-joints de grains estimées sont extrêmement faibles, de l'ordre de 2 % au plus, alors qu'en flexion 3-points ou en compression elles se situent aux alentours de 30 à 40 %, voire 50 % dans le cadre des poches de décohésion intergranulaires.

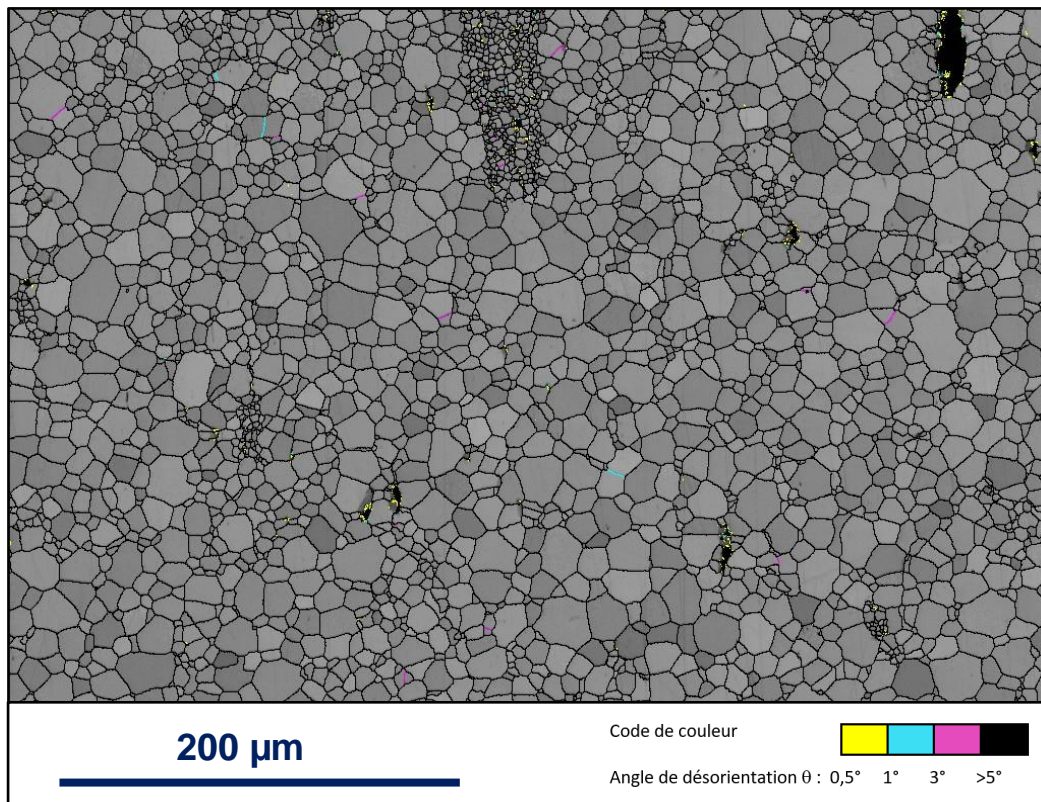


Figure VI-33. Carte d'indice de qualité de diffraction (en niveaux de gris) et de désorientations acquises sur une région située au centre de l'éprouvette C14, à proximité de la fibre neutre. [T = 1500°C ; pO<sub>2</sub> = 1,2.10<sup>-10</sup>atm ; v = 30 µm.min<sup>-1</sup> ; déformation élastique maximale 3,3 %]. Les joints de grains sont représentés par des lignes noires et les sous-joints de grains sont colorisés suivant le code de la légende.

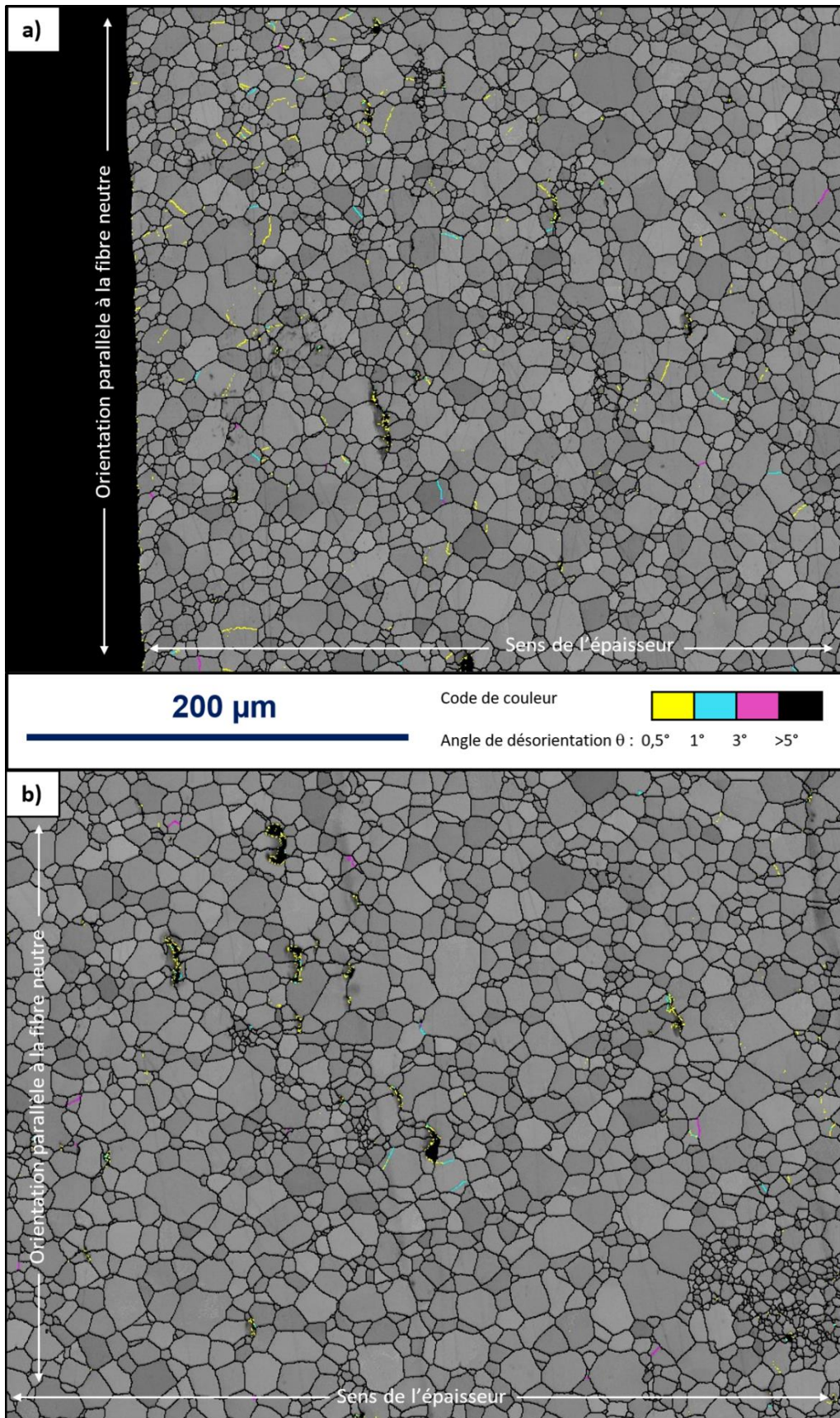


Figure VI-34. Carte d'indice de qualité et de désorientations acquises sur l'échantillon C14 – température 1500°C ; pression partielle d'oxygène  $1,2 \cdot 10^{-10}$  atm ; vitesse de traverse  $30 \mu\text{m} \cdot \text{min}^{-1}$  ; déformation élastique maximale 3,3 % a) Région proche de la fibre externe en traction ; b) région proche de la fibre externe en compression

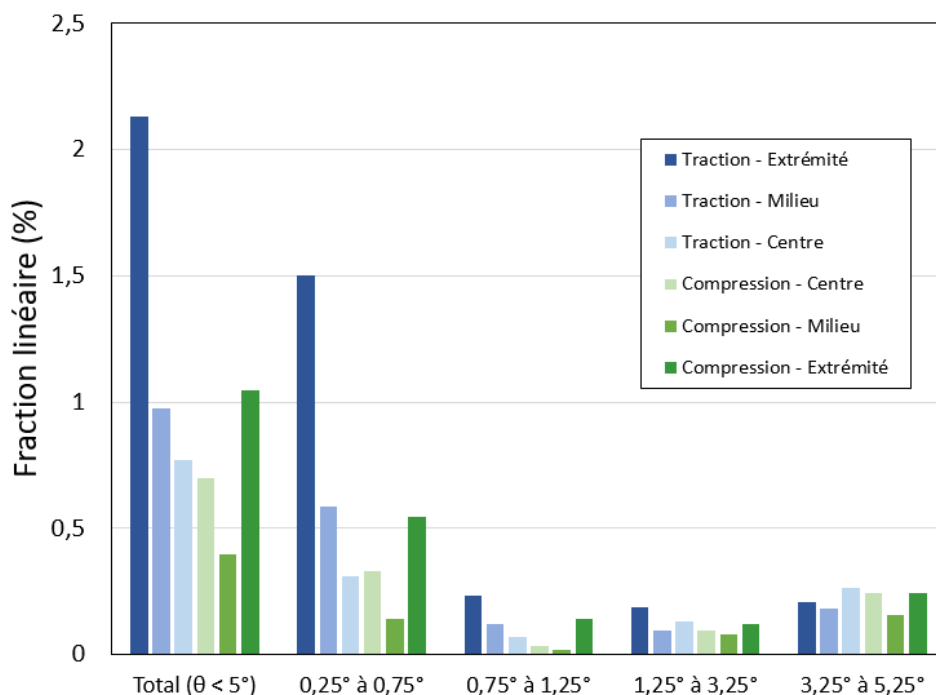


Figure VI-35. Histogrammes par classes de désorientation des fractions linéaires de sous-joints de grains. Comparaison sur une épaisseur complète de l'éprouvette (composée de 6 clichés). Eprouvette C13 – température 1500°C ; pression partielle d'oxygène  $2,6 \cdot 10^{-13}$  atm ; vitesse de traverse  $30 \mu\text{m} \cdot \text{min}^{-1}$  ; déformation élastique maximale 3,7 %

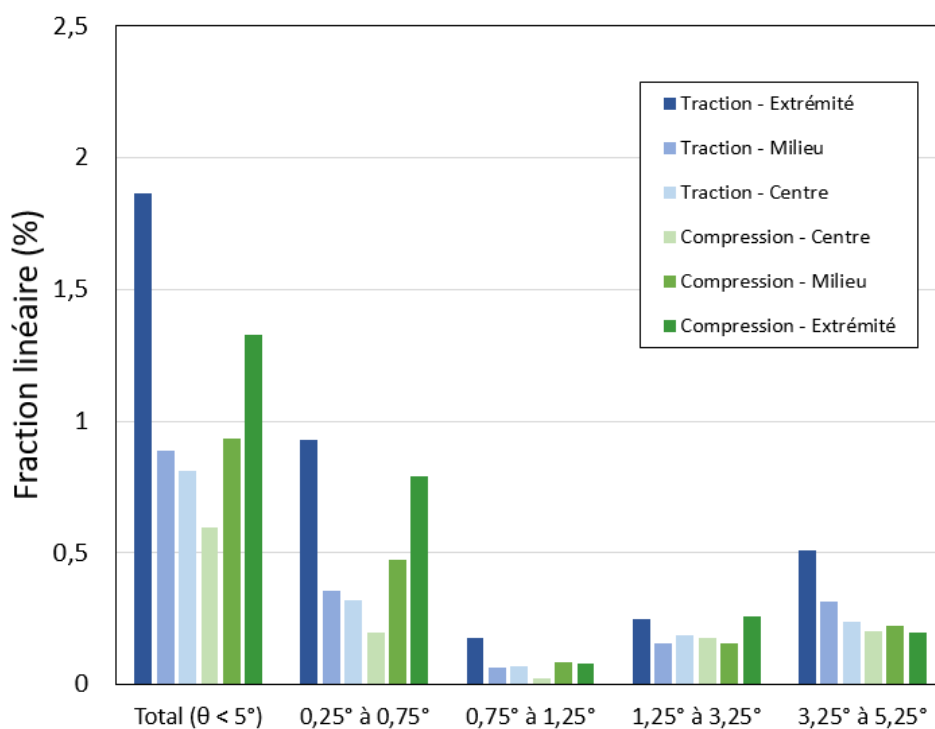


Figure VI-36. Histogrammes par classes de désorientation des fractions linéaires de sous-joints de grains. Evolution dans l'épaisseur de l'éprouvette composée de 6 clichés. Eprouvette C14 – température 1500°C ; pression partielle =  $1,2 \cdot 10^{-10}$  atm ; vitesse de traverse  $30 \mu\text{m} \cdot \text{min}^{-1}$  ; déformation élastique maximale 3,3 %

## VI.5. Synthèse des résultats obtenus en flexion

### VI.5.1. Evolution des courbes de charge et intérêt du calcul

Nous avons vérifié au chapitre 4 que les courbes de charges calculées sont cohérentes avec les caractéristiques des courbes de charge mesurées, qu'il s'agisse des expériences de flexion 3-points ou 4-points.

Si le modèle numérique de flexion 3-points mis en place prévoit l'établissement d'une contrainte stationnaire (chapitre 4, section IV.3.2.3), il ne permet pas néanmoins de reproduire expérimentalement le maximum par lequel passe la charge dans les premières minutes des essais. Nous interprétons ce défaut de la modélisation par le fait que des fissures initiées sur la face sollicitée en traction apparaissent au cours de l'essai, phénomène dont notre modélisation ne tient pas compte. Nous avons remarqué au paragraphe VI.4.1.1 que ces fissures se propageaient de manière stable et que leur mode de propagation était sans doute lié aux phénomènes de déformation viscoplastique dont le matériau est le siège. En traction, les incompatibilités de déformation entre grains se déformant à des vitesses différentes, conduisent inévitablement à l'ouverture de fissures intergranulaires que l'on observe en microscopie. À mesure que ces fissures s'ouvrent la charge nécessaire pour maintenir un déplacement de traverse constant diminue. Lorsque les fissures cessent de se propager, la charge n'évolue plus comme le prévoit le modèle de flexion.

Ce scénario est illustré à partir de deux expériences déjà évoquées dans la section VI.4.1.1 réalisées dans des conditions identiques : une seule de ces deux expériences s'est soldée par la rupture prématurée de l'échantillon au moment où la charge atteignait sa valeur maximale. La Figure VI-37 représente l'évolution des charges au cours du temps pour ces deux expériences (C1<sub>a</sub> et C1<sub>b</sub> du Tableau 8). Les images optiques des éprouvettes à l'issue des essais sont présentées sur la Figure VI-38. Ces deux images confortent le scénario proposé : le temps durant lequel la charge décroît correspond à la phase d'incubation et lorsque les fissures cessent de se propager, la charge se stabilise. En effet l'éprouvette de la Figure VI-38 ne présente aucune autre fissure à l'exception de celle qui a mené à la rupture. D'ailleurs on remarque qu'elle traverse deux poches de grains très fins. On peut donc relier la durée qui sépare le maximum de charge et la stabilisation de celle-ci au temps de propagation des fissures.

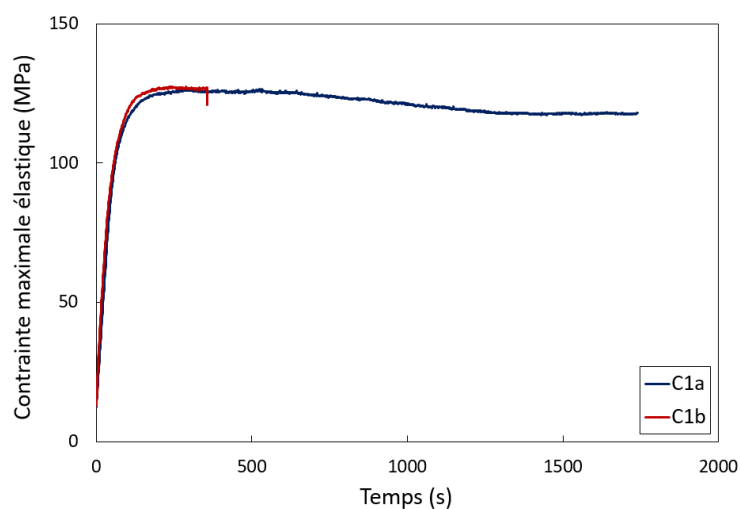


Figure VI-37. Evolution de la contrainte maximale élastique en fonction du temps pour les essais C1a et C1b ;  $p_{O_2} = 2,8 \cdot 10^{-13}$  atm ;  $v = 80 \mu\text{m} \cdot \text{min}^{-1}$  ;  $T = 1500^\circ\text{C}$ .

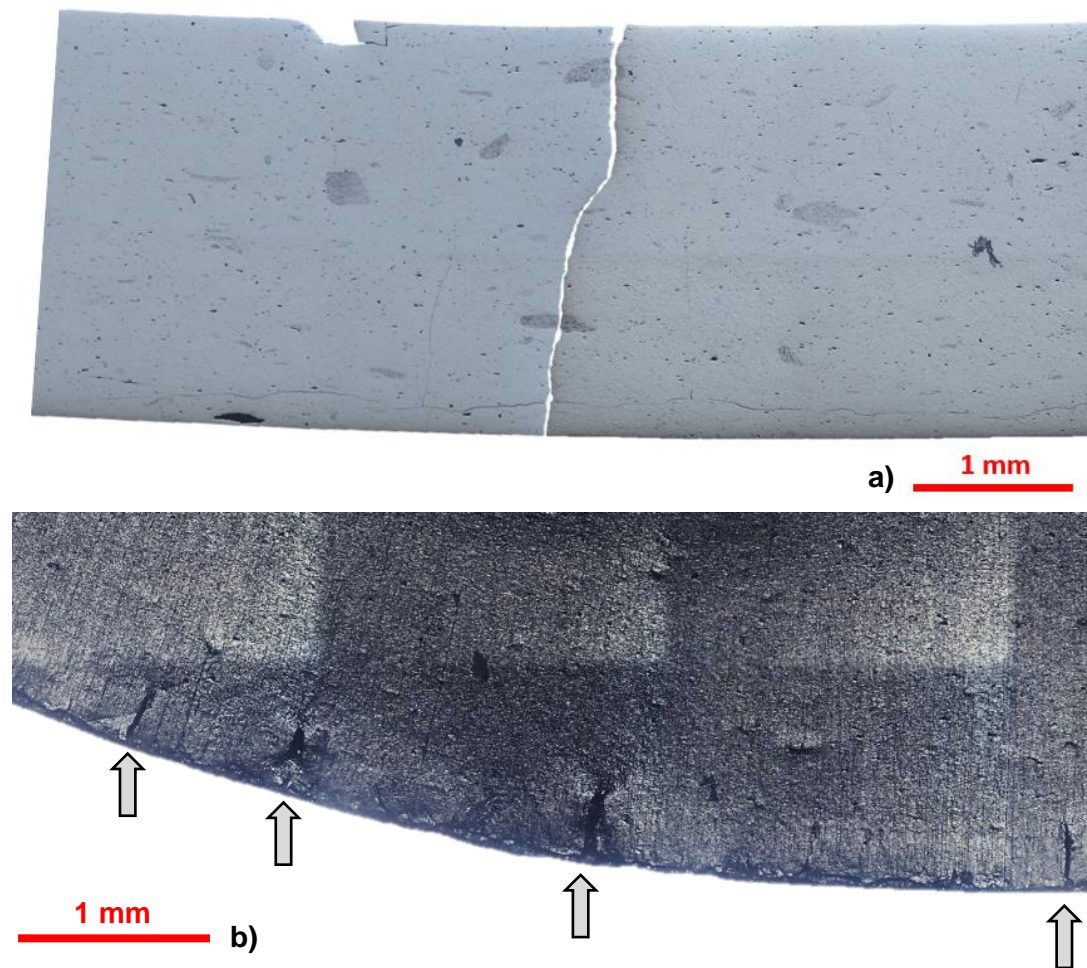


Figure VI-38. Microphotographies de deux éprouvettes déformées en flexion 3-points : a) C1b rupture prématurée à 1,2% ; b) C1a déformation élevée sans rupture à 5,9%.

Il est également possible, par la méthode d'indentation présentée au paragraphe VI.4.1.2, d'évaluer grossièrement la capacité du modèle numérique de flexion 3-points à reproduire le niveau réel de déformation dans l'éprouvette. La déformation dans l'épaisseur de l'éprouvette est présentée dans le cas de l'expérience C11 en regard de cette même grandeur calculée sur la Figure VI-39. Les résultats de simulation sont en adéquation avec les niveaux de déformation mesurées. On note en particulier la linéarité de l'évolution de la déformation dans les deux cas, en dehors de la zone située directement sous l'appui. Aussi, la déformation expérimentale peut être considérée comme présentant deux contributions : l'une d'origine purement viscoplastique et l'autre liée à la fissuration du matériau. Nous avons pu voir au chapitre 4, que le modèle utilisé pour le calcul reproduisait convenablement la courbe de charge macroscopique, avec un jeu de paramètres adéquat (la valeur du paramètre  $n$  étant fixée sur la valeur identifiée à partir de l'analyse phénoménologique des essais). On peut donc considérer que la déformation calculée reproduit raisonnablement bien la déformation totale de l'éprouvette et qu'il est légitime d'utiliser la comparaison de l'expérience au calcul comme moyen d'évaluation de la qualité de notre description. La qualité est à l'évidence satisfaisante avec une modélisation robuste.

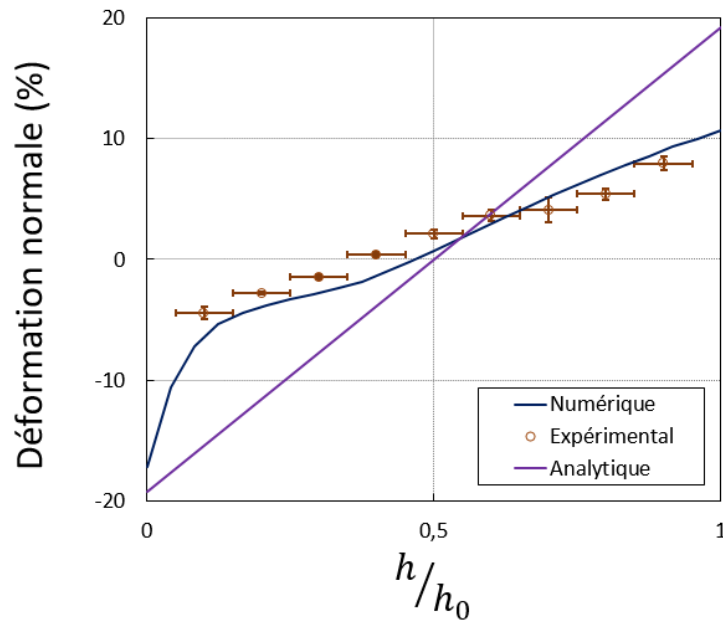


Figure VI-39. Comparaison de l'évolution de la déformation normale, déterminée par la simulation, le calcul analytique ou l'expérience, le long de l'épaisseur de l'éprouvette C11.

Concernant les expériences de flexion 4-points, nous avons constaté (chapitre 4, section IV.3.2.4) que la modélisation était en mesure de reproduire l'augmentation linéaire de la charge après une période de mise en place de l'essai. Du point de vue de la modélisation, cette augmentation linéaire s'explique par un déplacement progressif du contact entre les points d'appui supérieurs et l'éprouvette. Ce résultat montre l'intérêt de ne pas idéaliser la description du contact entre les rouleaux supérieurs et l'éprouvette. Néanmoins, la Figure IV-20 du chapitre 4 montre que la flèche maximale « numérique » surestime la flèche mesurée au cours de l'expérience. On peut penser que cette surestimation conduit à une surestimation de la déformation dans l'épaisseur de l'éprouvette par le calcul et que son origine provient du fait qu'une loi  $\sigma^n$  est utilisée pour décrire l'éprouvette dans son intégralité. Or, la justification de lois de type Norton s'appuie sur un ensemble important d'idéalisations et de simplifications qui ne reflètent sans doute pas la dépendance complexe de la vitesse de déformation à la contrainte. L'hétérogénéité de la sollicitation est telle que des régions du matériau se retrouvent inévitablement dans un domaine de fluage – diffusion. Il paraît alors réducteur de modéliser le comportement à l'aide d'une loi de Norton avec un seul exposant de contrainte, dont la valeur est possiblement surestimée et biaisée de par l'approche analytique employée. En effet, la propagation de fissures ainsi qu'une éventuelle dissymétrie du comportement ne sont pas pris en compte dans notre analyse.

**Cette section souligne qu'il est raisonnable de « se fier » aux estimations par le calcul des déformations dans l'épaisseur de l'éprouvette en gardant à l'esprit les réserves formulées dans le cas de la flexion 4-points. Des essais complémentaires pourraient être mis en œuvre pour quantifier les dépendances aux conditions d'essais des vitesses de propagation de fissures.**

### VI.5.2. Dissymétrie traction-compression

Un des intérêts de réaliser des essais de flexion est de pouvoir solliciter le matériau simultanément en compression et en traction dans le but de développer à terme des modèles qui permettent de distinguer les deux types de comportement (C.-F. Chen & Chuang, 1990; Chuang, 1986). Deux aspects



des expériences évoquées ici suggèrent une dissymétrie du comportement en traction et en compression. Il s'agit, d'une part, de la déformation locale telle que nous l'avons évaluée par indentation (voir Figure VI-24) et, d'autre part, de la subdivision des grains d'origine mise en évidence par EBSD (sections VI.4.1.3 et VI.4.2). Cette technique révèle en effet des fractions linéaires de sous-joints de grains systématiquement plus importantes du côté de la face soumise à la traction. Ces deux observations conjointes suggèrent au moins une corrélation entre subdivision et déformation viscoplastique que nous abordons plus en détail dans la section VI.5.4.

Si ces deux arguments peuvent manquer de poids compte tenu du fait que le phénomène de fissuration est de nature à perturber les analyses en flexion trois points, la subdivision des grains observée préférentiellement dans la zone de traction est bien visible dans les éprouvettes des essais de flexion quatre points, qui eux ne présentent pas de fissures.

**En conclusion, nous sommes donc amenés à considérer que la déformation viscoplastique du matériau présente une légère mais réelle dissymétrie en traction et en compression qui pourrait être caractérisée par des essais systématiques de flexion quatre points.**

### VI.5.3. Relations entre les différentes mesures de la déformation

Contrairement aux essais de compression pour lesquelles la relation entre variation de hauteur de pastille et déformation à l'échelle des milieux continus présente, moyennant certaines hypothèses, une relative simplicité, l'essai de flexion présente au contraire une distribution spatio-temporelle de la déformation plus complexe. Il faut donc procéder avec d'autant plus de prudence si l'on souhaite à terme corréler microstructure et déformation.

Nous avons mis en œuvre différentes méthodes pour caractériser à l'échelle des milieux continus la déformation du matériau. D'un point de vue macroscopique par exemple pour les essais de flexion quatre points, nous pouvons mesurer la courbure de l'éprouvette qui est reliée à la déformation dans la zone située entre les deux appuis supérieurs. Cette mesure fournit une mesure de la déformation quelle que soit son origine. Par ailleurs, dans la section VI.4.1.2, nous avons montré qu'il était possible d'estimer la déformation à l'échelle des milieux continus grâce à un maillage d'indents à la surface des éprouvettes de flexion 3-points. Cette déformation représente à la fois des effets purement viscoplastiques et liés à la fissuration du matériau. Les valeurs obtenues peuvent être comparées aux résultats des calculs éléments finis ou du calcul analytique tel que décrit au chapitre 4.

Pour ce qui est des résultats de flexion trois points et au regard de la Figure VI-39 de la section VI.5.1, il apparaît que les déformations irréversibles mesurées et calculées, par une méthode éléments finis, sont tout à fait cohérentes. Les écarts observés peuvent être attribués aux effets de fissuration. Le calcul ne reproduit pas non plus la dissymétrie observée expérimentalement. Les fractions linéaires de sous-joints de l'échantillon C1 (Figure VI-29), signatures *a priori* d'une déformation viscoplastique en volume, sont également assez cohérentes avec le profil de déformation calculé numériquement ainsi qu'avec les fractions linéaires de sous-joints de grains déterminés en compression pour des niveaux de déformations comparables.

En ce qui concerne la flexion quatre points, la Figure VI-40 présente les déformations viscoplastiques calculées au regard des fractions linéaires de sous-joints de grains caractérisés. Les déformations calculées sont cohérentes avec la déformation macroscopique mesurée à partir de la courbure des éprouvettes. Toutefois à l'évidence, la fraction linéaire de sous-joints de grains ne présente pas la

même corrélation avec la déformation viscoplastique que dans le cas des essais de flexion trois points ou de compression.

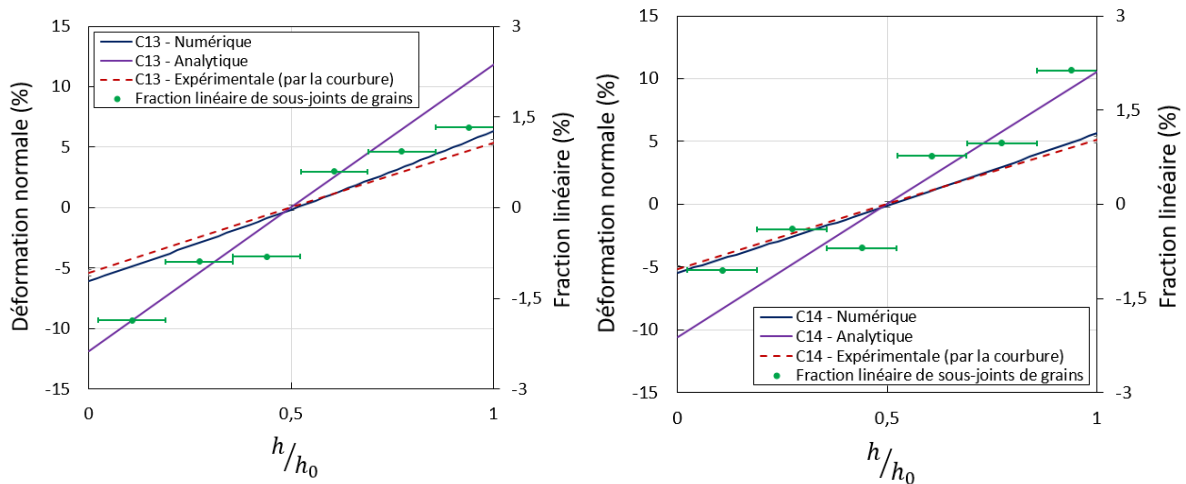


Figure VI-40. Comparaison de l'évolution de la déformation normale, déterminée numériquement, analytiquement et à partir de la courbure, le long de l'épaisseur de l'éprouvette. Représentation de la fraction linéaire de sous-joints de grains avec une échelle proportionnelle (fraction négative lorsque du côté de la compression pour correspondre à la déformation). a) échantillon C13 ; b) échantillon C14.

**Ces observations soulèvent la question de savoir comment le matériau accomode la déformation en flexion quatre points. On peut avancer plusieurs hypothèses dont le rôle des poches de grains de faibles tailles ou éventuellement invoquer des mécanismes de glissement intergranulaire qui ne seraient pas discernables au travers des différents types d'examens réalisés. Une étude plus systématique de cette tendance serait nécessaire.** Le passage à une microstructure plus homogène pourrait s'avérer crucial car nous pensons que c'est la microstructure particulière du lot C qui nous a empêchés d'atteindre des niveaux de déformation conséquents du fait des ruptures prématurées d'éprouvettes. La sollicitation en flexion quatre points étant uniforme sur une large zone de l'éprouvette entre les deux appuis supérieurs, la probabilité est élevée pour qu'il y ait dans cette zone, une poche de grains de faibles tailles et de faible résistance mécanique qui constituerait un point d'amorce de fissure préférentiel instable.

#### VI.5.4. Influences de la contrainte et de la pression partielle d'oxygène

La gamme de conditions d'essais étudiée et les simulations numériques correspondantes ainsi que la nature des examens réalisés ne nous permettent pas de tirer des conclusions définitives sur le rôle de la contrainte ou de la pression partielle d'oxygène, qu'il s'agisse des coefficients de la loi phénoménologique ou du rôle de ces grandeurs sur la microstructure. Néanmoins, certaines tendances émergent à l'issue de cette étude que nous rappelons ici.

Concernant la loi de comportement phénoménologique, il est assez surprenant de constater que les deux types d'essais fournissent des valeurs de  $\alpha/n$  très proches. Cependant les exposants de la contrainte sont différents pour les essais de flexion trois points ou quatre points et élevés, au point d'être incompatibles avec des phénomènes physiques avérés (J.-P. Poirier, 1985). La raison de cela est sans doute à chercher dans le fait que l'analyse s'appuie sur une approche élastique simplifiée dont on sait d'après le paragraphe précédent qu'elle n'est réellement compatible, ni avec la simulation numérique éléments finis, ni avec l'expérience. Malgré cela dans les deux cas, l'analyse (section VI.3.2) montre qu'à vitesse de déformation imposée (stationnaire), la contrainte d'écoulement est une

fonction décroissante de la pression partielle d'oxygène. Par ailleurs, la vitesse d'écoulement stationnaire suit grossièrement une loi en  $\sigma^n$  (avec  $n$  élevé). Ces deux résultats sont cohérents avec un mécanisme de déformation de type fluage - restauration pour lequel la cinétique de restauration est d'autant plus rapide que la pression d'oxygène est élevée comme on pourrait s'y attendre si celle-ci était contrôlée par la diffusion du cation.

Du point de vue de la microstructure, les simples résultats des sections précédentes montrent qu'il existe une forte corrélation entre niveau de déformation et subdivision des grains d'origine à l'intérieur d'un même échantillon. Concernant les essais de flexion trois points, nous n'avons pas pu établir de relation entre microstructure et pression partielle d'oxygène car la procédure pour les caractérisations EBSD aurait nécessité de plus grandes précautions. Lorsqu'un échantillon est soumis à ce mode de sollicitation, les gradients de déformation dans le sens de la fibre sont importants. Il est donc difficile d'être certain de comparer deux échantillons dans des zones de déformations maximales. Dans le cas de la flexion quatre points, cette difficulté ne se pose pas dans la mesure où la déformation reste *a priori* uniforme entre les deux points d'appuis supérieurs. Néanmoins, au vue des faibles niveaux de déformations atteints l'analyse de la subdivision par ESD est délicate, car le phénomène reste très peu prononcé.

## VI.6. Synthèse

Nous avons réalisé des essais de flexion trois et quatre points à 1500°C, à différentes vitesses de traverse et sous différentes pressions partielles d'oxygène sur des matériaux de microstructures légèrement différentes de celles relatives aux essais de compression. Ces essais se sont révélés extrêmement reproductibles, témoignant ainsi de la maîtrise du processus expérimental. Les déformations atteintes sont en général bien plus faibles que lors d'expériences de compression, au moins pour trois raisons :

- 1- Lors de telles expériences, les éprouvettes sont sollicitées dans certaines zones en traction, ce qui les expose au risque de rupture prématurée.
- 2- Nous avons vu au cours de cette étude que la microstructure du lot C était vraisemblablement à l'origine de fragilités, particulièrement pour les expériences de flexion quatre points.
- 3- Les déformations varient de manière monotone dans l'épaisseur l'éprouvette en changeant de signe au niveau de la fibre neutre : elles ne sont maximales qu'en extrême surface d'éprouvette.

Il est *a priori* paradoxal de constater que c'est en flexion 3 points que des fissures intergranulaires apparaissent dans les zones de l'éprouvette sollicitées en traction. Des éléments expérimentaux concordants nous permettent de supposer que les fissures se propagent de manière stable et que la déformation viscoplastique joue un rôle prépondérant pendant cette étape. Nous avons également pu corréliser l'allure des courbes de charge qui présentent systématiquement un maximum, à l'initiation et à la propagation des fissures.

Une étude relative aux essais de flexion trois points nous a permis de corréliser la déformation dans l'épaisseur des éprouvettes, la simulation numérique et une description analytique de l'expérience. Nous montrons en outre que l'analyse numérique fournit un profil de déformation dans l'éprouvette très proche de celle mesurée à l'issue de l'essai. L'approche analytique du problème surestime substantiellement la déformation finale réelle. Ces conclusions n'ont pas pu être vérifiées avec le degré

de précision requis au cours d'expériences de flexion quatre points mais une vérification macroscopique de la déformation des éprouvettes semble le confirmer.

Malgré sa pertinence, la modélisation mise en œuvre ne permet cependant pas de reproduire certaines caractéristiques de l'expérience, comme la fissuration ou la dissymétrie du comportement du matériau en traction et en compression. Cette particularité est établie aussi bien à partir des mesures locales de déformation que de la caractérisation de la subdivision des grains par analyse par EBSD.

Une analyse de la relation entre degré de subdivision des grains et déformation est proposée. Celle-ci montre une certaine corrélation si l'on se cantonne à l'étude du gradient de déformation dans l'épaisseur d'un même échantillon. Par contre, en flexion trois points, nous n'avons pas pu réaliser cette analyse pour 2 échantillons testés dans des conditions différentes. Cette corrélation est *a priori* plus aisée à vérifier pour des essais de flexion 4-points. L'exercice semble montrer que la subdivision des grains n'est pas le seul mécanisme d'accommodation du matériau sans que l'on puisse en identifier un en particulier.

Les paramètres d'une loi phénoménologique sont établis dans les deux cas (flexion trois et quatre points) sur la base d'une approche analytique. Néanmoins les exposants de la contrainte ainsi identifiés sont élevés, ce qui s'explique sans doute par les limites rappelées ci-dessus de l'approche analytique.

Les perspectives de cette étude sont nombreuses. Le choix du type d'essai à réaliser (flexion trois ou quatre points) dépend de la nature du phénomène que l'on souhaite étudier. La flexion trois point semble plus propice à l'étude de propagation stable de fissures, à notre connaissance jamais investiguée pour le dioxyde d'uranium, et qui est régie par une accommodation du matériau par viscoplasticité. La flexion quatre points présente l'avantage de caractérisations post-essais et de comparaison d'un échantillon à un autre beaucoup plus aisées.

D'une manière générale, l'étude détaillée des relations entre microstructure et conditions d'essais s'avère nécessaire et à cette fin, il faut prévoir d'élargir substantiellement les conditions d'essais et généraliser la méthode d'indentation proposée. La flexion quatre points semble la mieux adaptée à cette étude mais nécessite sans doute que les éprouvettes présentent une microstructure plus homogène. Du point de vue de la modélisation, plusieurs champs d'investigation émergent puisque qu'on peut envisager d'une part, l'étude détaillée de la fracturation assistée par la déformation viscoplastique, et d'autre part, le développement d'une loi de comportement qui tienne compte de la dissymétrie traction-compression de la réponse du matériau.

# Chapitre 7 : Mécanismes d'écoulement viscoplastique et d'endommagement - discussion

---

## VII.1. Introduction

L'objet principal de ce chapitre est d'analyser et discuter les mécanismes de déformation viscoplastique et d'endommagement à l'origine des comportements en fluage caractérisés ici en compression et flexion. Cette discussion s'appuie à la fois sur les observations microstructurales conduites ainsi que sur une comparaison avec les résultats rapportés dans la littérature. Nous nous focalisons dans un premier temps (section 2) sur les expressions phénoménologiques de la vitesse de déformation en régime stationnaire établies au cours des deux chapitres précédents. Ces relations sont établies en fonction de la pression partielle d'oxygène, de la contrainte d'écoulement et, bien que de manière très incomplète, de la température. Les mécanismes de déformation sont discutés à la lumière de ces dépendances. Les différences observées entre les essais de compression et de flexion trois et quatre points sont également abordées à cette occasion. Puis, dans la section 3, en s'appuyant sur les résultats d'un essai complémentaire de compression réalisé sur un monocristal, nous revenons sur les caractéristiques microstructurales observées au cours de cette étude et discutons de leur cohérence avec les résultats de la section 2 et avec des études antérieures.

## VII.2. En quoi les lois phénoménologiques en régime stationnaire sont-elles significatives des mécanismes de déformation ou de restauration ?

### VII.2.1. Dispersion des résultats expérimentaux relatifs aux vitesses de déformation stationnaires

Nous avons reporté sur la Figure VII-1 les résultats de cette étude pour les vitesses de déformation stationnaires au cours des essais de compression réalisés à 1520°C, et les comparons à certains résultats de la littérature. Nos essais étant les seuls réalisés sous atmosphère contrôlée, les valeurs de contrainte d'écoulement ont été corrigées par le rapport  $\left(\frac{p_{O_2}}{\overline{p_{O_2}}}\right)^{\alpha/n}$  correspondant à chaque point de mesure, où  $\overline{p_{O_2}}$  représente la moyenne des pressions partielles étudiées à ces vitesses de déformation. Nous avons également indiqué (rectangles colorisés) la plage de contraintes d'écoulement réellement couverte compte tenu des variations sur environ trois ordres de grandeur de la pression partielle d'oxygène dans notre étude. Ces variations correspondent malgré tout à de faibles écarts à la stœchiométrie ; de l'ordre de  $10^{-3}$  (Garcia et al., 2021). De plus, les résultats de Vivant-Duguay, obtenus à partir d'essais réalisés à 1465°C ont été corrigés pour correspondre aux autres.

La première remarque que nous pouvons formuler concerne la dispersion apparente des résultats dont on cherche ici à comprendre les origines. Les points de mesure sous atmosphère contrôlée se situent aux contraintes d'écoulement les plus basses, ce qui reflète l'effet déjà mentionné sur la contrainte d'écoulement de l'augmentation de la pression partielle d'oxygène (voir Figure V-16 (chapitre 5) et les Figure VI-9 et Figure VI-13 (chapitre 6)). En effet, toutes les études relatées sur cette figure en dehors des points référencés comme étant sous atmosphère contrôlée ont été menées soit sous hydrogène (Bohaby et al., 1969), soit sous un mélange d'argon et d'hydrogène généralement à 5% (Ben Saada,

2017; Ndiaye, 2012; Vivant-Duguay, 1998), soit sous vide (Guérin, 1973). Or, ces conditions, excepté peut-être du vide, sont *a priori* plus réductrices que lorsque l'atmosphère est tamponnée par un mélange d'hydrogène et d'humidité en quantités suffisantes. Le cas le plus flagrant est celui de Bohaboy et al. (Bohaboy et al., 1969), pour lesquels les essais ont été menés sous hydrogène pur et dont l'extrapolation à des vitesses de déformation comparables aux autres points de la figure, les place à des contraintes d'écoulement très nettement supérieures à celles des autres études.

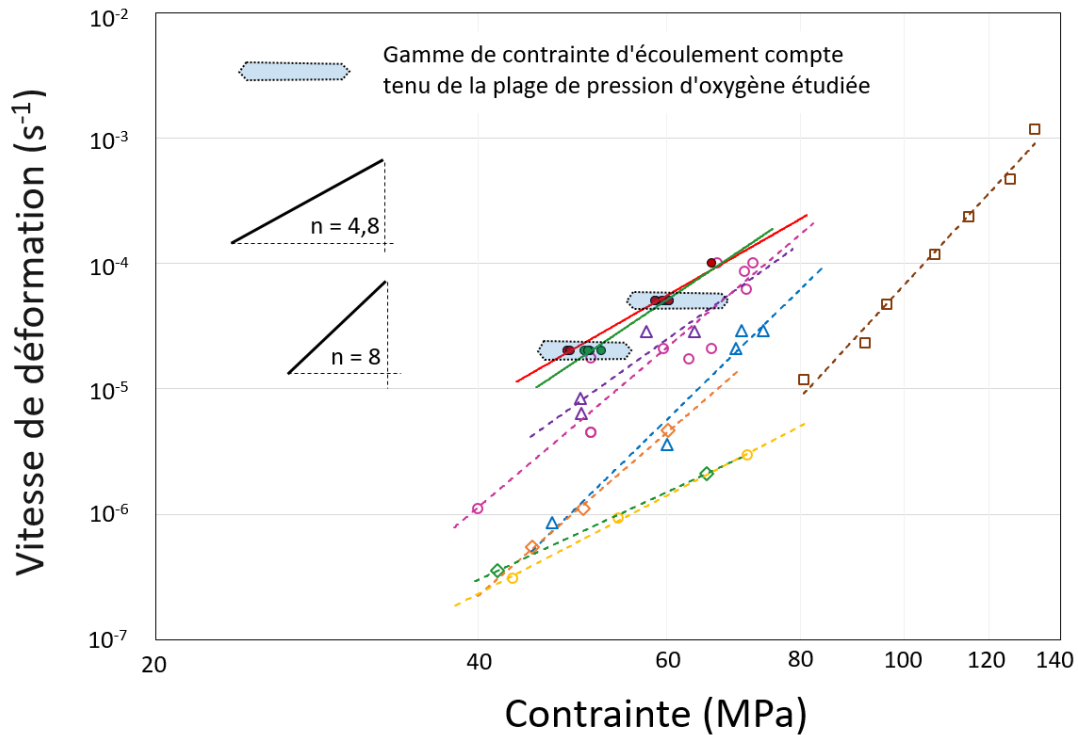


Figure VII-1. Comparaison des différentes études du comportement viscoplastique du dioxyde d'uranium en compression. **Rouge** : notre étude,  $n = 4,9$ ,  $d = 11 \mu\text{m}$  ; **vert** : Garcia et al.,  $n = 6,7$ ,  $d = 11 \mu\text{m}$  ; **violet** : Thèse Ndiaye,  $d = 15 \mu\text{m}$ ,  $n = 6,1$  ; **fuchsia** : Thèse Ben Saada,  $d = 11 \mu\text{m}$ ,  $n = 7,7$  ; **bleu** : Thèse Ndiaye,  $d = 9 \mu\text{m}$ ,  $n = 8,3$  ; **orange** : Thèse Vivant-Duguay,  $d = 11 \mu\text{m}$ ,  $n = 7,4$  ; **vert clair** : Bohaboy et al.,  $d = 12-14 \mu\text{m}$ ,  $n = 4$  ; **jaune** : Poteat et Yust,  $d = 10 \mu\text{m}$ ,  $n = 4,8$  ; **marron** : Thèse Guérin,  $d = 5 \mu\text{m}$ ,  $n = 9,2$ .

Aussi, lorsque le gaz n'est pas humidifié intentionnellement, on s'expose au risque que la pression partielle d'oxygène puisse être fixée par une impureté ou un autre équilibre mettant en jeu les matériaux de structure du four (voir chapitre 3). Il ne serait donc pas étonnant que cet effet puisse induire une dispersion à l'intérieur d'une série de mesures comme cela a l'air d'être le cas notamment pour les études de Ndiaye (Ndiaye, 2012) et de Ben Saada (Ben Saada, 2017). Les points relatifs à cette dernière étude en particulier (cercles fuchsia sur la Figure VII-1) illustrent à la fois le risque de dispersion des points de mesure du fait d'une maîtrise insatisfaisante de la pression partielle d'oxygène et l'effet d'une atmosphère sensiblement plus réductrice que lorsqu'un mélange tamponné est utilisé. En effet, ces points expérimentaux concernent une microstructure et une géométrie de pastilles identiques (voir chapitre 5) aux nôtres, car obtenues par application du même mode de fabrication. Le fait qu'un essai soit réalisé sans mélange tampon ne conduit pas nécessairement à une dispersion des résultats expérimentaux. Les études de Ndiaye aux plus faibles tailles de grain et de Vivant-Duguay (Vivant-Duguay, 1998) le montrent. L'alignement satisfaisant des points expérimentaux dans ces cas suggère simplement que l'atmosphère était la même d'un essai à un autre. Néanmoins, se limiter à quelques points de mesure présente toujours le risque, si une grandeur expérimentale est mal maîtrisée, d'une mauvaise estimation de l'exposant de la contrainte d'écoulement.

Les points expérimentaux de la Figure VII-1 pour lesquels une atmosphère tampon est utilisée semblent indiquer un léger écart, aux plus faibles vitesses de déformation, entre les résultats de l'étude présente et de notre étude antérieure (Garcia et al., 2021). Cette petite différence est liée au protocole de mise en place de l'expérience précédent l'essai en lui-même (une étape de précharge préliminaire) et souligne l'importance d'une part de mettre en œuvre un protocole absolument identique d'un essai à l'autre, et d'autre part de multiplier les points de mesure. Néanmoins, les valeurs du rapport  $\alpha/n$  sont identiques pour les deux campagnes d'essais ( $0,037 \pm 0,004$ ), ce qui traduit l'activation de mécanismes de déformation identiques dans les deux études et ce quelle que soit la vitesse de déformation étudiée.

La dispersion apparente des résultats rapportés sur la Figure VII-1 s'explique aussi au moins en partie par des caractéristiques microstructurales des matériaux testés qui sont assez différentes d'une étude à une autre. Certaines de ces études visaient précisément à caractériser un effet de microstructure, *i.e.* taille de grain (Ben Saada, 2017; Ndiaye, 2012; Vivant-Duguay, 1998). La porosité résiduelle et sa distribution sont également rapportées comme pouvant influencer le comportement viscoplastique du dioxyde d'uranium (Ben Saada et al., 2021). Ces auteurs montrent qu'il est probablement très insuffisant de ramener l'analyse de l'influence de la microstructure à une comparaison de densités ou de tailles de grains « moyennes ». Pour ce qui est de la taille de grains, cette analyse nécessiterait une approche statistique et expérimentale beaucoup plus complète qui sort du cadre de notre étude (Depriester & Kubler, 2019). Malgré tout, on note effectivement sur la Figure VII-1, une augmentation assez nette de la contrainte d'écoulement avec une diminution de la taille de grain sans qu'elle soit précisément quantifiable. De plus, les courbes de charge rapportées par Guérin indiquent toutes l'existence d'un pic de compression tout comme nous l'avons constaté dans l'examen des pastilles fabriquées par SPS. Les tailles de grains rapportées dans l'étude de Guérin sont les plus faibles des études rapportées ici.

Deux autres aspects caractéristiques de ce type d'expérience peuvent constituer une source d'écart entre niveaux de contrainte rapportés mais ne concernent pas la majorité des études présentées sur cette figure. Il s'agit d'une part de l'éclatement des pastilles et d'autre part de la manière dont est évaluée la contrainte d'écoulement par rapport à la charge. Concernant l'éclatement, nous avons vu, au chapitre 4 (Figure IV-8), que l'erreur commise en considérant l'expérience uniaxiale n'augmente substantiellement que pour des éclatements inférieurs à 1. Or, toutes les études rapportées sur la Figure VII-1 ont été réalisées avec des objets dont les éclatements sont de 2 ou proches de 1,5. Par contre, la manière dont est calculée la contrainte à partir de la géométrie des pastilles et la charge peut également constituer une source de dispersion : il est nécessaire de s'assurer que les contraintes que l'on compare ont la même définition. On choisira, comme dans la majorité des cas rapportés sur cette figure, les contraintes de Cauchy ou contraintes vraies plutôt que la contrainte de Piola-Kirchhoff par exemple (voir chapitre 5, section V.3.3.1).

En conclusion, la maîtrise de la pression d'oxygène (donc de la stœchiométrie de l'oxyde) et de la microstructure semble constituer les sources de dispersion les plus grandes pour la caractérisation de la dépendance de la vitesse de déformation à la contrainte. La prise en compte des effets liés à ces deux propriétés du matériau est nécessaire lors d'analyses de données de la littérature car elles sont de nature à induire des écarts substantiels d'une étude à l'autre.

## VII.2.2. Exposant de la contrainte dans la loi de comportement phénoménologique

La Figure VII-2 présente, en échelle logarithmique, l'ensemble des essais de compression et de flexion réalisé dans le cadre de ces travaux, ainsi que l'ensemble des essais réalisés lors d'une étude antérieure (Garcia et al., 2021). Concernant les essais de flexion, sont rapportées sur cette figure à la fois les grandeurs maximales élastiques et les grandeurs maximales viscoplastiques (chapitre 3, relations 3.15 et 3.16).

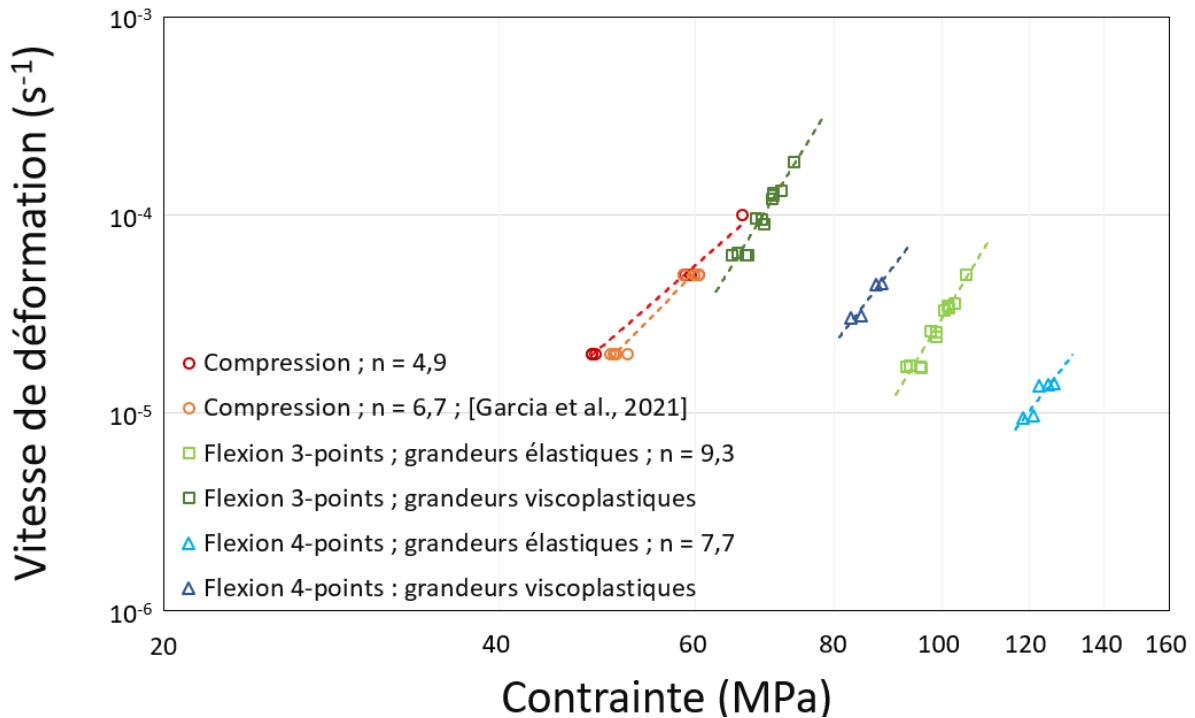


Figure VII-2. Comparaison des essais de compression et de flexion 3 et 4 points présentés dans ce manuscrit et obtenus au cours d'une étude antérieure (Garcia et al., 2021). En abscisse, est reportée la contrainte d'écoulement corrigée de la quantité  $\rho_0^{\frac{1}{n}}$ .

Au-delà des différences substantielles entre points expérimentaux relatifs à la flexion et à la compression, on note aussi un écart notable relatif à la dépendance à la contrainte de la vitesse de déformation. Les points expérimentaux tirés des expériences de compression semblent obéir à une loi puissance de la contrainte avec un exposant de l'ordre de 5, alors que les exposants tirés des résultats des essais de flexion sont nettement plus élevés.

La valeur de l'exposant proche de 5 identifiée en compression suggère que, dans notre domaine d'étude, le dioxyde d'uranium se déforme suivant un mécanisme de type fluage-restauration (Veyssi re & Rabier, 1978; Weertman, 1955). La d formation stationnaire est alors interpr t e comme r sultant d'un  quilibre entre la cin tique d' crouissage, cons quence de la cr ation, du blocage et de la r organisation des dislocations, et la cin tique de restauration permettant l'annihilation des dislocations par mont e ou glissement d vi . Dans l'approche « historique » de Weertmann (voir chapitre 1), le processus de restauration est contr l  par la mont e des dislocations et un mod le microm canique simple permet d'estimer l'exposant de la contrainte   4,5 (J.-P. Poirier, 1985; Weertman, 1955). Suivant les hypoth ses retenues, notamment pour la d pendance   la contrainte de la densit  de sources de dislocations, il est possible d'arriver   des exposants de contrainte de l'ordre de 5 ou m me 6. Poirier sugg re que des valeurs d'exposant de contrainte sup rieures   5 sont



le reflet d'un problème dans l'établissement des relations  $\dot{\epsilon} - \sigma$ . Par ailleurs, on peut regretter que la valeur de l'exposant déterminée ici ne le soit pas à partir d'une plus large gamme et/ou d'un plus grand nombre de vitesses de déformation. Cela permettrait un affinement de l'exposant identifié. **On retiendra cependant que la valeur rapportée est tout à fait compatible avec un mécanisme de fluage-restauration dont la cinétique serait contrôlée par la montée de dislocations et, in fine, la diffusion du cation.**

L'étude en flexion, 3 et 4-points, a fait apparaître une dépendance substantiellement différente, avec un paramètre  $n$  plus élevé compris entre 7,7 (pour la flexion 4-points) et 9,3 (pour la flexion 3-points). Plusieurs hypothèses peuvent être émises pour expliquer un tel écart :

i. Ces paramètres ont été identifiés à partir d'une analyse faisant l'hypothèse que le matériau suit exclusivement une loi de type Norton, c'est-à-dire qu'à une température donnée et pour la vitesse de déformation stationnaire est proportionnelle à  $\sigma^n$ . À l'inverse du problème de compression, pour lequel, moyennant un élanement suffisant, la sollicitation peut être considérée uniaxiale, le problème de flexion est a minima bidimensionnel et résulte en une distribution très fortement hétérogène de la contrainte et de la déformation. On comprend alors que ce type d'essai constitue un test plus exigeant pour la loi de comportement qui doit être le reflet d'un mécanisme de déformation identique sur une gamme de contrainte très large. L'hétérogénéité des contraintes (dans l'épaisseur de l'éprouvette pour la flexion 4-points, et dans la longueur et l'épaisseur de l'éprouvette pour la flexion 3 points) est telle qu'il est probable qu'une fraction volumique de l'éprouvette (proche de la fibre neutre) soit sujette à un mécanisme de déformation de type fluage-diffusion. Modéliser le comportement du matériau à l'aide d'une loi puissance présentant un exposant de la contrainte unique semble constituer une simplification excessive. Une loi de comportement en sinus hyperbolique pourrait potentiellement représenter le comportement de l'éprouvette de manière plus fidèle (Dherbey, 2000). Une loi de ce type permettrait en effet de décrire le comportement viscoplastique du matériau dans les domaines de faibles et de fortes contraintes.

ii. Il a été mis en évidence, aux travers des examens microstructuraux, que les éprouvettes de flexion 3-points étaient sujettes à des phénomènes de fissurations localisés au niveau de la fibre externe en traction. Même s'il semble que la propagation de ces fissures soit stable, elles impactent sans doute substantiellement la répartition des contraintes et déformations dans l'éprouvette. Le rôle de l'ouverture de ces fissures n'a pas été pris en compte dans notre modélisation des essais. Une première approche pourrait consister à considérer une réduction de l'épaisseur des éprouvettes sur la base des examens métallographiques à l'issue de l'essai. Une simulation de l'ouverture progressive des fissures nécessiterait un couplage du phénomène avec le comportement viscoplastique du matériau en traction tel que cela a été réalisé dans les métaux (Arnaud, 1987; Sadananda & Shahinian, 1981; Yatomi et al., 2006).

iii. Pour finir, la dissymétrie générale du comportement du dioxyde d'uranium en traction et en compression, peut sans doute contribuer également à l'écart observé relatif à l'exposant de la contrainte lors des essais de flexion 4-points et des essais de compression. En effet, Chen et Chuang (C.-F. Chen & Chuang, 1990) ont mis en évidence, par l'étude du comportement viscoplastique d'une céramique technique (à base de SiAlON), une importante différence de l'exposant de la contrainte suivant l'analyse employée. Ils obtiennent une valeur de  $n \approx 1,9$ , lorsqu'aucune distinction n'est faite entre la compression et la traction comme c'est le cas dans notre analyse, et des valeurs de  $n_c = 1$  et  $n_t = 14$  lorsque le comportement en compression et en traction est différencié.

### VII.2.3. Dépendance à la pression d'oxygène et à la température

#### VII.2.3.1. Dépendance à la pression partielle d'oxygène

Les campagnes d'essais réalisées ont mis en évidence l'importance de contrôler la pression partielle d'oxygène. En effet, malgré la gamme relativement étroite explorée, qui correspond grossièrement à un écart à la stœchiométrie maximale de  $10^{-3}$  (Markin et al., 1968; Perron, 1968), l'effet sur le comportement viscoplastique et notamment la contrainte d'écoulement est notable. Une analyse de nos essais de flexion identifie une dépendance de la vitesse d'écoulement stationnaire suivant une fonction puissance avec un exposant compris entre  $\frac{1}{3,9}$  et  $\frac{1}{4,5}$ . En compression, l'exposant identifié diffère et est évalué à  $\frac{1}{6}$ . Nous avons vu au paragraphe précédent les raisons qui mènent à penser que la dépendance à la contrainte de la vitesse d'écoulement stationnaire déterminée en compression est tout à fait significative, au contraire des valeurs évaluées en flexion. Etant donné que la dépendance à la pression d'oxygène est fortement liée à cette grandeur, nous n'allons discuter ici que de la valeur déterminée en compression. Une étude antérieure (Garcia et al., 2021), conduite dans le même dispositif de compression, a évalué un exposant compris entre  $\frac{1}{2,8}$  et  $\frac{1}{6,4}$ . D'une manière générale, une augmentation de la pression partielle d'oxygène résulte en une diminution de la contrainte d'écoulement du matériau.

Nous souhaitons tester ici l'hypothèse selon laquelle la diffusion du cation, associée à la montée, fixerait la cinétique de restauration du matériau. Nous établissons, dans un régime de défauts bien déterminé correspondant *a priori* à celui des essais réalisés ici, la dépendance de la concentration en lacunes d'uranium à la pression partielle d'oxygène. Nous ne reprenons pas dans leur intégralité les hypothèses de ce modèle. Nous supposons simplement que le matériau est proche de la stœchiométrie. Les défauts ponctuels sont par conséquent supposés être présents en faibles quantités (activité du défaut donnée par la concentration en défauts) et isolés (pas de défauts complexes), et leur charge est cohérente avec l'hypothèse d'un comportement ionique parfait du matériau.

Le modèle basé sur les trois équilibres quasi-chimiques suivants permet d'évaluer les concentrations en défauts (référence chapitre 2, section II.2.3.2 et (Garcia et al., 2021, Dorado et al. 2012) :

- i. l'oxydation :  $\frac{1}{2}O_2 \Leftrightarrow O_i'' + 2U^{5+}$
- ii. la paire de Frenkel anionique :  $O_i'' + V_o^{\circ\circ} \Leftrightarrow \emptyset$
- iii. le trio de Schottky :  $V_U'''' + 2V_o^{\circ\circ} \Leftrightarrow \emptyset$

Ces équilibres se traduisent, aux faibles concentrations en défauts, par les trois constantes d'équilibre suivantes :

$$\begin{cases} K_{ox} = \frac{\sqrt{pO_2}}{[O_i''] [U^{5+}]^2} \\ K_{FO} = [O_i''] [V_o^{\circ\circ}] \\ K_S = [V_U] [V_o^{\circ\circ}]^2 \end{cases}$$

Avec  $K_{ox}$  la constante d'équilibre de l'oxydation,  $K_{FO}$  la constante d'équilibre de la paire de Frenkel anionique et  $K_S$  la constante d'équilibre du trio de Schottky. Si le matériau est légèrement sur-stœchiométrique, on s'attend à ce que les défauts chargés négativement majoritaires soient les interstitiels d'oxygène et que la relation d'électro-neutralité soit donnée par  $[U^{5+}] = 2[O_i'']$ .

La résolution de ce système permet d'établir l'expression pour la concentration en lacunes d'uranium et en particulier sa dépendance à la pression partielle d'oxygène :

$$[V_U'''''] = \frac{K_S K_{ox}^{2/3}}{4^3 K_{FO}^2} pO_2^{1/3}$$

Ainsi, si le matériau se comportait comme un solide ionique idéal, un mécanisme mettant en jeu des phénomènes de diffusion du cation devrait être proportionnel à une fonction puissance de la pression d'oxygène avec un exposant de l'ordre de 1/3. La valeur de l'exposant estimée à partir des essais de compression est plus faible de moitié, ce qui suggère que, soit la diffusion du cation n'est pas le phénomène limitant, soit le matériau à ces températures ne se comporte pas comme un solide ionique parfait.

La première hypothèse signifierait que la vitesse de déformation du dioxyde d'uranium, dans le régime de fluage – restauration investigué, ne serait pas contrôlée par des phénomènes de diffusion. On peut imaginer, par exemple, que le déblocage des dislocations permettant leur annihilation ne serait pas induit par la montée (processus mettant en jeu la diffusion) mais plutôt par un phénomène de glissement dévié. Poirier (Poirier, 1976) par exemple a proposé un modèle dans lequel la restauration par glissement dévié et par montée dominant dans des gammes de températures différentes mais agissent simultanément. Un tel modèle prédit un exposant de la contrainte de 3, ce qui semble *a priori* écarter notre étude. Ce type d'hypothèse nécessite d'aller au-delà d'essais mécaniques macroscopiques. Des études approfondies ont pu être mises en œuvre pour certains métaux purs (Caillard & Martin, 1982b) par MET *in-situ* pour clarifier le rôle du glissement dévié en particulier. Malheureusement, ces études sur céramiques souffrent des difficultés associées à la mise en traction d'éprouvettes transparentes aux électrons, trop fragiles aux températures accessibles en MET *in situ*.

Le modèle de défaut établi sur la base de nombreuses hypothèses simplificatrices prévoit que la concentration en lacunes d'uranium au cœur des grains suit une fonction puissance de la pression partielle d'oxygène avec un exposant de 1/3. On peut imaginer que ce modèle ne décrit pas complètement, ou avec suffisamment de complexité, les équilibres quasi-chimiques entre défauts dont le matériau est le siège. Notons que nous n'avons pas trouvé d'hypothèses réalistes permettant de justifier l'exposant que nous avons identifié expérimentalement. En effet, quel que soit les hypothèses envisagées relatives 1- à la composition ou la charge effective de défauts oxygène agrégés en défauts plus complexes (chapitre 2, section II.2.3) ou 2- à la charge des lacunes d'uranium dont on sait qu'elle peut diminuer avec l'augmentation de la non-stœchiométrie, l'exposant de la pression partielle reste supérieur ou égal à 1/3.

Compte tenu du faible écart à la stœchiométrie du matériau dans les conditions de nos essais de compression et de la vraisemblance des hypothèses qui sous-tendent le modèle de défaut repris ici, on est en droit de se demander en quoi un exposant de la pression partielle d'oxygène de l'ordre de 1/6 exclut un mécanisme de déformation dont la cinétique serait contrôlée par la diffusion en volume des cations. Il a été rapporté à de nombreuses reprises que les atomes d'oxygène dans le dioxyde d'uranium présentent un comportement anharmonique à mesure que la température augmente (Ma,

2017; Ruello et al., 2004). En particulier, Ruello *et al.* annoncent un écart à la linéarité avec la température du facteur de Debye-Waller à partir de 1000°C environ. Ils corrèlent cet écart à la linéarité avec des évolutions d'autres propriétés telles que la dilatation thermique ou la capacité calorifique du matériau. Ces auteurs suggèrent une augmentation importante du désordre électronique ainsi que du désordre sur le réseau cubique des atomes d'oxygène. Un désordre de Frenkel substantiel est également rapporté à partir d'expériences de diffusion quasi-élastique de neutrons au-delà de 1700°C (Clausen et al., 1984). Une augmentation de la concentration en porteurs de charges à haute température pourrait rendre nécessaire la prise en compte d'interactions Coulombiennes sur la diffusion des défauts, interactions qui sont négligées dans la formulation du problème utilisée ici et qui mène à la dépendance en  $pO_2^{1/3}$ .

La manière la plus simple de vérifier le rôle de la diffusion des cations serait donc de réaliser des expériences de fluage à plus basses vitesses de déformation imposée aux mêmes températures, en prenant soin de vérifier l'influence de la pression partielle d'oxygène sur la vitesse de déformation stationnaire. **Une dépendance identique à celle que nous avons déterminée ici validerait l'hypothèse d'un écart à l'idéalité du comportement des défauts ponctuels chargés lié à la température.**

### VII.2.3.2. Energie d'activation du fluage

Une première estimation de l'énergie d'activation apparente de 265 kJ.mol<sup>-1</sup> (soit 2,8 eV/atome), a pu être effectuée à partir d'essais de compression réalisés à 1520°C et 1620°C. Estimer une énergie d'activation à partir de 2 points n'est évidemment pas l'idéal et s'accompagne d'une large incertitude. Cependant, on peut tout de même noter que l'écart entre l'énergie d'activation que nous avons identifiée, et la valeur communément retenue pour le fluage – restauration du dioxyde d'uranium (entre 470 kJ.mol<sup>-1</sup> et 540 kJ.mol<sup>-1</sup>), est considérable. Une comparaison aux autres résultats de la littérature nécessite que l'on rajoute à l'énergie d'activation estimée dans cette étude, la contribution de la dépendance à la pression partielle d'oxygène évaluée à 0,83 eV/atome ce qui porterait l'énergie d'activation à environ 350 kJmol<sup>-1</sup>.

**Il est clair qu'une étude comparée de l'énergie d'activation dans les domaines du fluage-diffusion et du fluage-dislocation permettrait de lever le doute relatif au mécanisme limitant la cinétique dans le domaine des fortes contraintes, et d'établir pour la première fois, une énergie fiable relative à l'autodiffusion du cation dans le dioxyde d'uranium.**

## VII.3. Etude en compression d'un échantillon monocristallin

Un des objectifs de cette étude est d'apporter un éclairage relatif aux mécanismes de déformation du dioxyde d'uranium dans un régime de fluage – restauration. Les différentes campagnes expérimentales réalisées, en compression et en flexion, ont mis en évidence une grande complexité de la réponse du combustible mais également des évolutions microstructurales concordantes. Une des questions qui demeure concerne le lien entre la déformation des grains individuels constituant le polycristal et la déformation macroscopique de celui-ci. Un essai complémentaire de compression à haute température a été mené sur un échantillon d'UO<sub>2</sub> monocristallin. Divers examens micrographiques ont été menés à l'issue de l'essai, dont des observations par MET. Nous présentons ici les résultats de ces examens sur lesquels nous nous appuyons dans la synthèse (section 4).

L'éprouvette a été préparée à partir d'un échantillon massif obtenu par refroidissement d'un oxyde d'uranium en fusion. Cette méthode permet de récupérer des monocristaux de tailles centimétriques,

mais contenant un taux d'impuretés qui peut être relativement élevé en fonction des interactions avec les matériaux de confinement (Garcia et al., 2010). En l'absence d'un accès à un diffractomètre de Laue pour orienter le monocristal, le critère de découpe a été l'optimisation des dimensions d'un échantillon de forme parallélépipédique. L'échantillon préparé a une hauteur de 7,5 mm et une section de 2,5 x 3,8 mm<sup>2</sup>.

L'essai de compression a été réalisé à 1520°C, sous une pression partielle d'oxygène de  $6.10^{-13}$  atm, à une vitesse de traverse imposée à 20  $\mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$ , ce qui correspond à une vitesse de déformation axiale de  $4,4.10^{-5}$  s<sup>-1</sup>. L'essai, dont les résultats macroscopiques sont rapportés sur la Figure VII-3, n'a pas permis clairement l'observation d'un régime stationnaire de déformation compte tenu du fait que la température de l'eau de refroidissement n'était pas suffisamment maîtrisée. Néanmoins, en fin d'essai, la contrainte d'écoulement atteignait environ 65 MPa et la déformation macroscopique finale était de 10,7%.

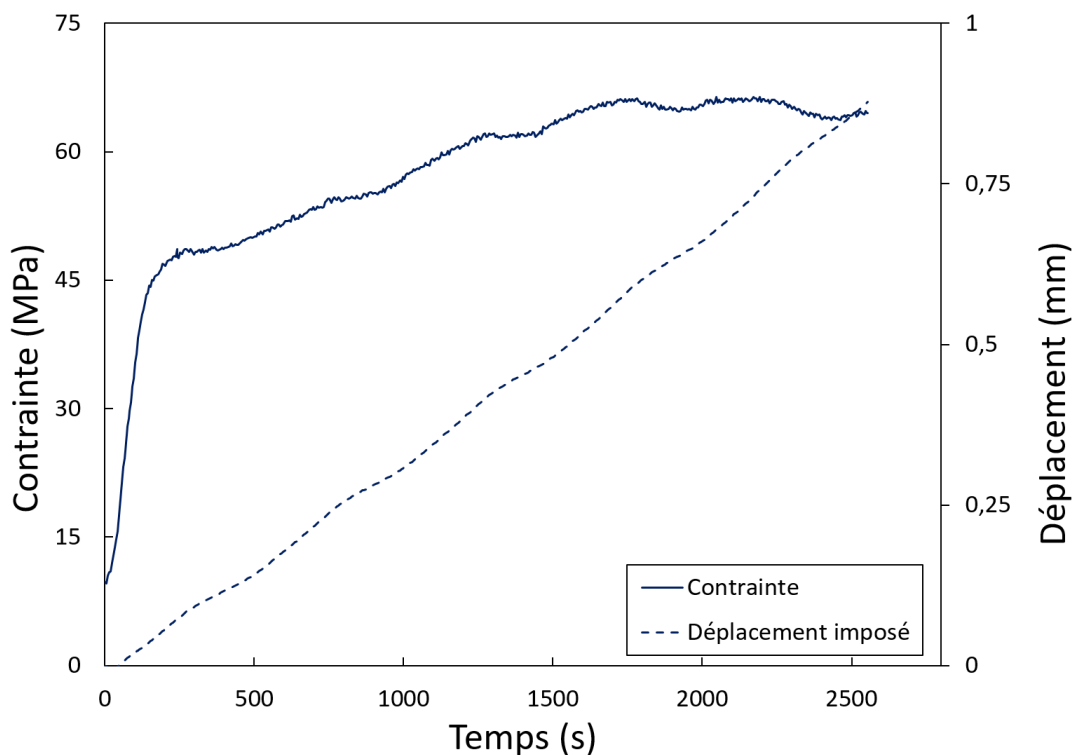


Figure VII-3. Evolution de la contrainte et du déplacement imposé en fonction du temps de l'essai de compression réalisé sur l'échantillon monocristallin.  $T = 1520^{\circ}\text{C}$  ;  $p_{\text{O}_2} = 6.10^{-13}$  atm. ;  $v = 20 \mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}$ .

La Figure VII-4 permet de comparer la forme initiale de l'échantillon (à gauche) avec son profil déformé à l'issue de l'essai (à droite). On constate la très grande hétérogénéité de la déformation au sein de l'éprouvette, avec une très forte localisation de la déformation dans le tiers inférieur de l'éprouvette. De larges fissures apparaissent également dans cette région, ainsi qu'à proximité de l'interface supérieure.

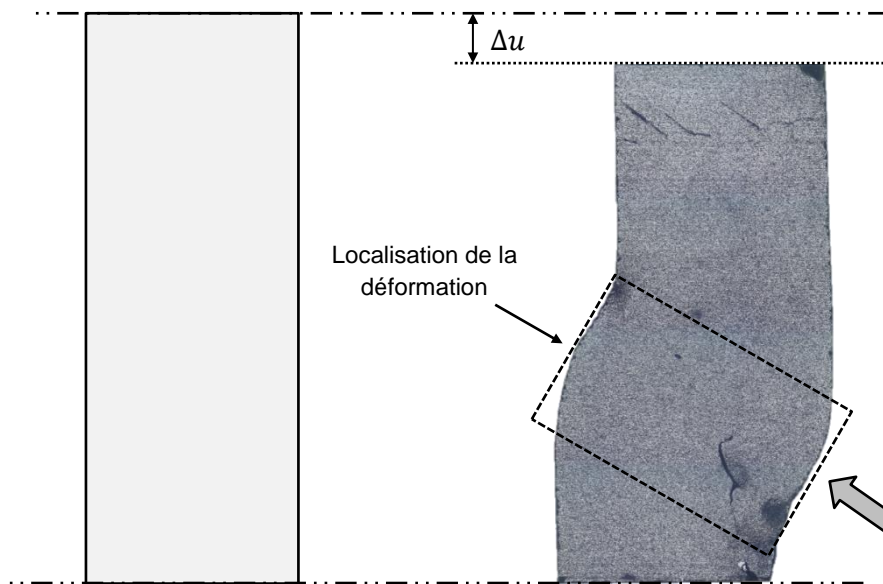


Figure VII-4. Macrographie optique d'une éprouvette monocristalline d' $\text{UO}_2$  déformée ; comparaison avec profil initial. La flèche représente l'orientation de la micrographie électronique de la Figure VII-6.

Ce type de déformation est relativement classique pour les échantillons monocristallins sollicités en compression. On peut voir sur la Figure VII-5 une éprouvette de  $\text{Cu}_2\text{O}$  déformée en compression à  $800^\circ\text{C}$  sous une contrainte de 10 MPa. Les auteurs (Bretheau & Dolin, 1978) expliquent que ce phénomène est influencé par le nombre de systèmes de glissement actifs au cours de la déformation ainsi que par les conditions de frottement aux interfaces entre l'échantillon et les cales. Dans le cas des monocristaux, les conditions d'homogénéité optimale de la déformation sont obtenues pour des conditions d'ancrage parfait de l'échantillon avec les cales martyres. On constate effectivement sur les Figure VII-4 et Figure VII-5 que les faces supérieures et inférieures des échantillons ont subi une translation relative dans une direction perpendiculaire à l'axe de compression, signe que du glissement aux interfaces a pu avoir lieu pendant l'expérience. La localisation de la déformation dans un plan grossièrement à  $45^\circ$  de l'axe de compression, indique l'activation et l'interaction de plusieurs systèmes de glissement (Bretheau et al., 1979).

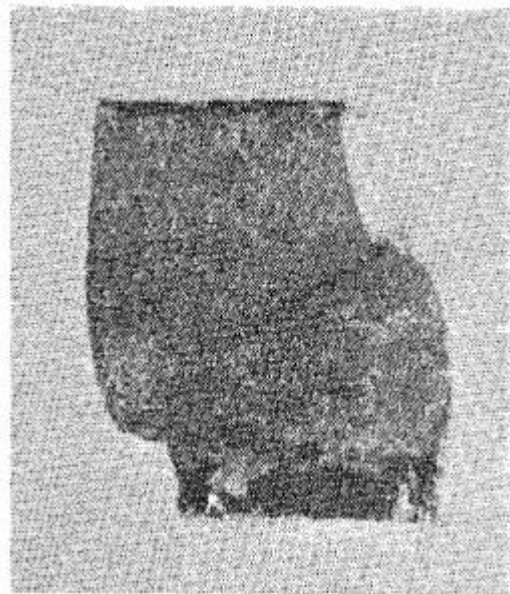


Figure VII-5. Micrographie optique d'un échantillon monocristallin d'oxyde de cuivre déformé en compression à  $800^\circ\text{C}$ . [Bretheau, et al., 1978]

Des examens par microscopie électronique ont été réalisés sur l'échantillon déformé. Tout d'abord les observations par microscopie électronique à balayage ont permis de révéler, avec un certain détail, les régions où la déformation semble localisée. Sur la Figure VII-6 on peut voir les structures émergentes à la surface de l'échantillon qui constituent des marches, signes d'une déformation du matériau par glissement de dislocations (Alamo et al., 1978; Sawbridge & Sykes, 1971).

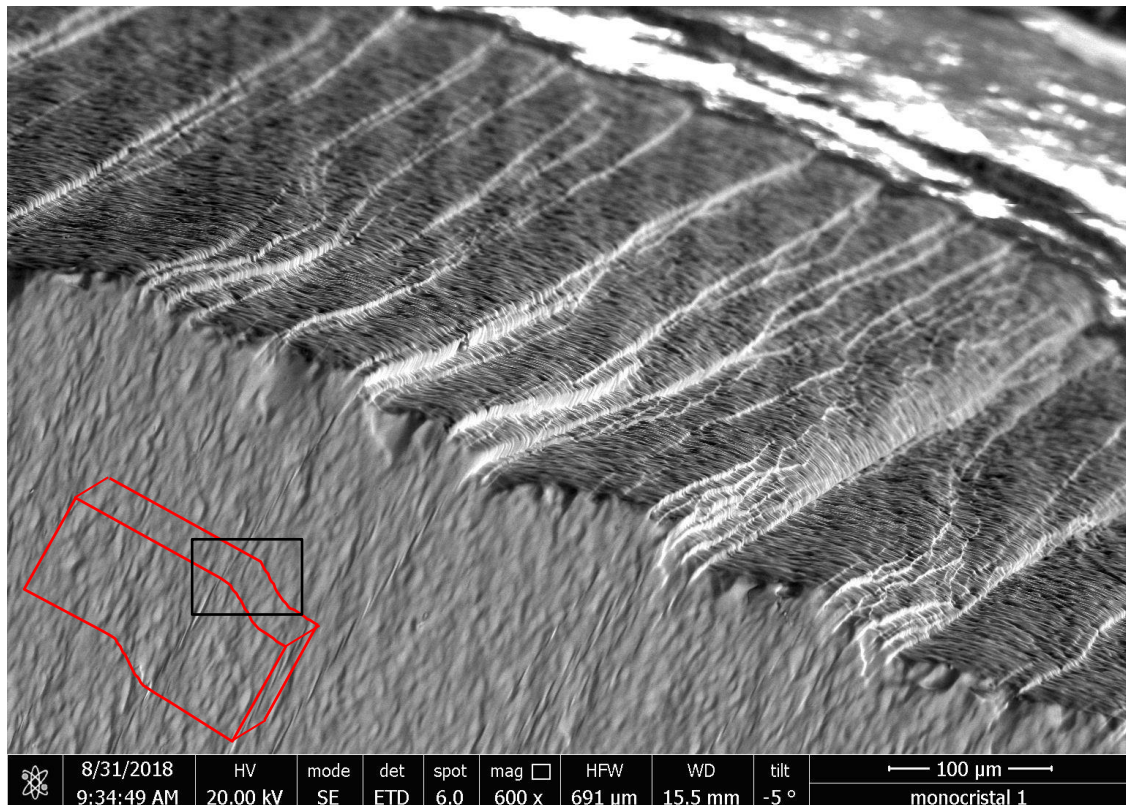
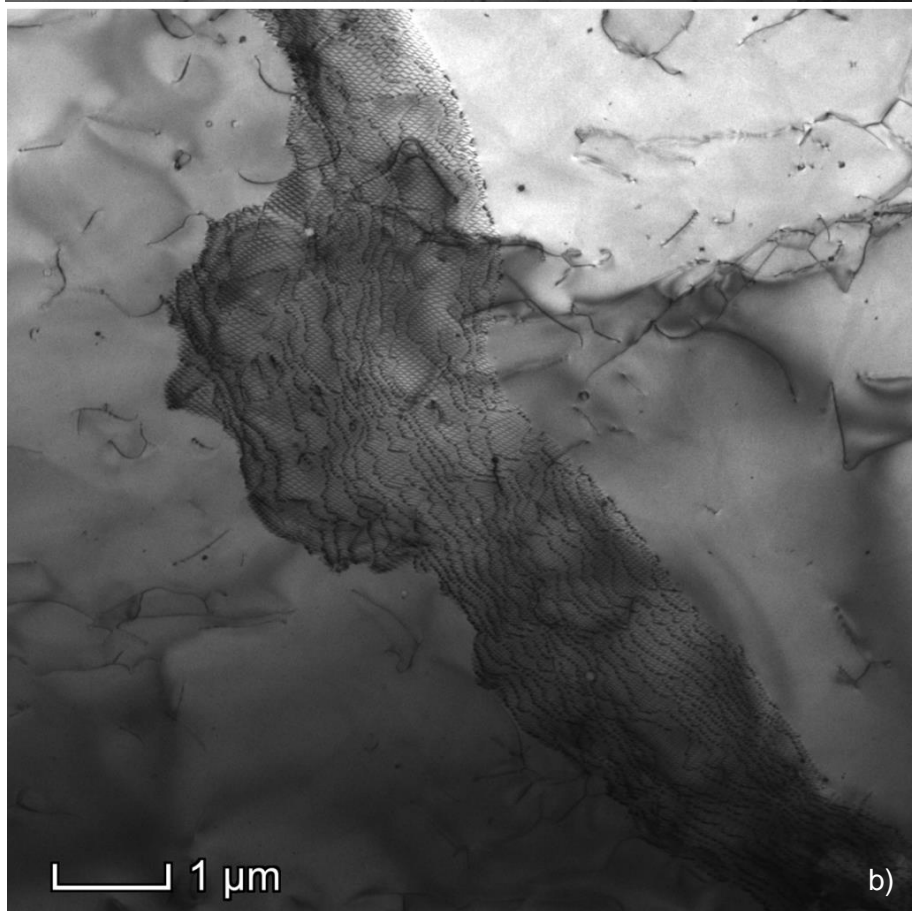
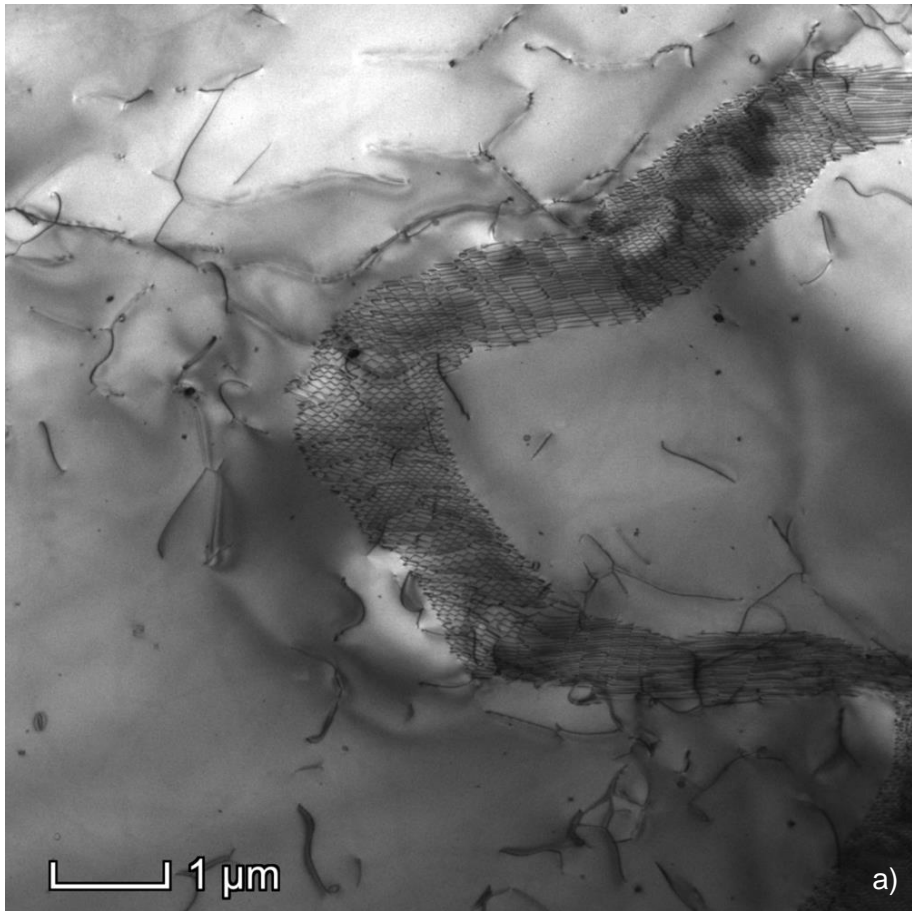


Figure VII-6. Micrographie électronique (MEB, mode : SE) présentant le profil déformé de l'échantillon monocristallin. En rouge est représenté l'orientation de l'échantillon par rapport à la vue de l'image (cadre noir).

Enfin, des examens complémentaires ont été réalisés par microscopie électronique en transmission. Des lames minces ont donc été préparées, par polissage mécanique et attaque chimique, dans la région présentant la déformation macroscopique maximale (représentée par le rectangle noir sur la Figure VII-4) ; dans le but de maximiser les chances que des dislocations soient contenues dans l'échantillon mince. De plus, elles sont obtenues suivant une découpe à 45° de l'axe de compression, afin d'obtenir les éventuelles structures formées par les dislocations dans un plan proche de celui de la lame.

La Figure VII-7 représente deux micrographies réalisées par MET, sur lesquelles on aperçoit de vastes réseaux hexagonaux de dislocations. En dehors de ces structures, on trouve des régions ne contenant que quelques lignes de dislocations libres. On peut également noter la présence de nombreuses boucles de dislocation.





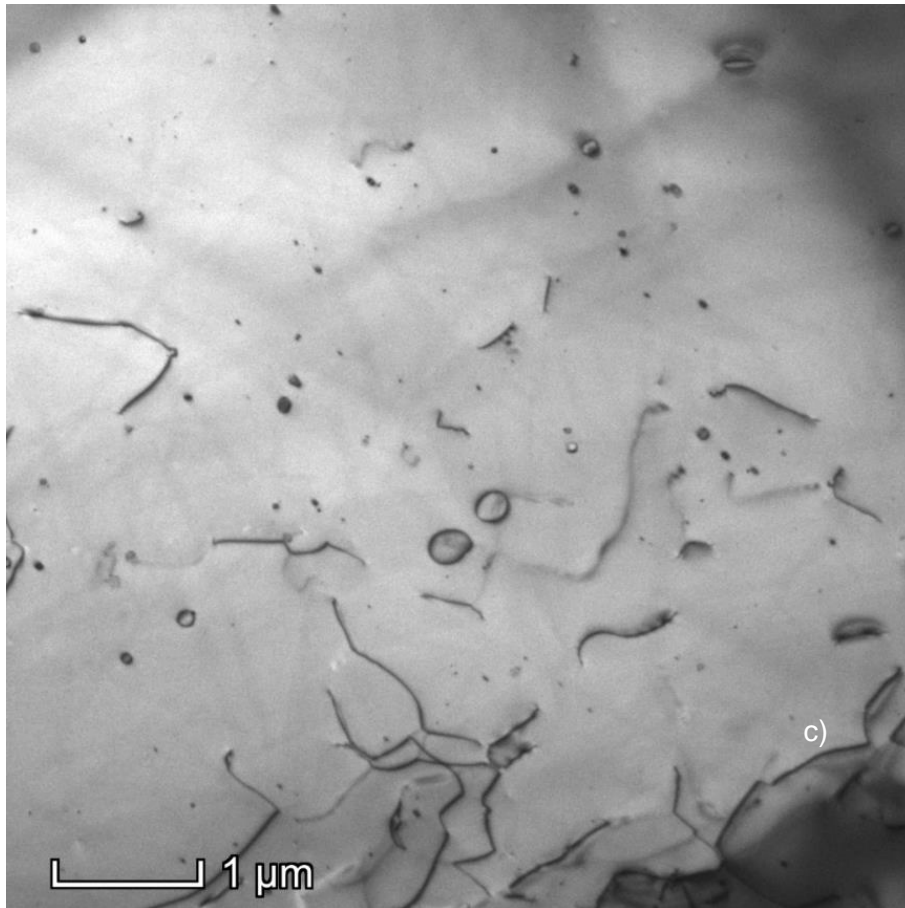


Figure VII-7. Micrographies électroniques (MET, champ clair) du monocristal déformé. Les images ont été obtenues en condition deux ondes, avec un vecteur de diffraction selon une direction  $\langle 220 \rangle$ . Mise en évidence d'importants réseaux de dislocations « tricotés » sur les clichés a) et b), et de larges boucles de dislocations sur le cliché c).

La Figure VII-8 montre un de ces réseaux. Sur le détail constituant l'encart à droite, on distingue nettement chaque cellule du réseau. L'étude des conditions d'extinctions des différentes dislocations ( $\vec{g} \cdot \vec{b} = 0$ ), qui composent ce réseau, a permis d'identifier leur vecteur de Burgers respectif (voir la Figure VII-8). De plus, une analyse de la direction de leur ligne, obtenues grâce à l'utilisation de deux clichés à des angles de tilt du porte-objet différents, a permis de déterminer approximativement leur plan de glissement. Le détail précis des méthodes appliquées peut être trouvé ailleurs dans les thèses suivantes : (Dherbey, 2000; Onofri, 2016).

Le réseau hexagonal principal (représenté par les segments rouges, verts et bleus) est le fruit de l'interaction de deux familles de dislocations ; les familles bleues (type mixte) et rouges (type vis), qui glissent respectivement dans des plans (010) et (100). Le réseau résulte du glissement dévié de ces deux familles qui donne lieu à une troisième famille, la verte (vis), dont le plan de glissement est  $(\bar{1}\bar{1}1)$ . Cette interaction se résume par la relation suivante :

$$\frac{a}{2} [\bar{1}0\bar{1}](010) + \frac{a}{2} [011](100) \rightarrow \frac{a}{2} [\bar{1}10](\bar{1}\bar{1}1)$$

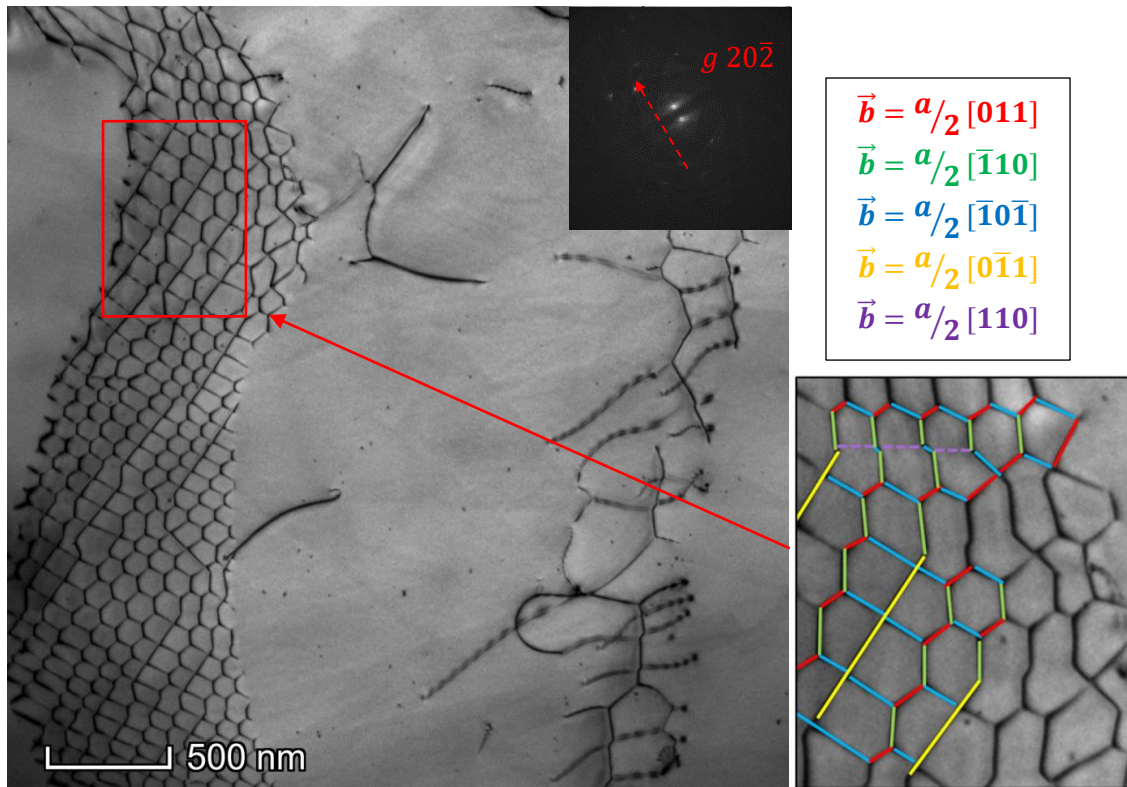


Figure VII-8. Micrographie électronique (MET, champ clair) présentant un réseau hexagonal de dislocations. Les différentes familles qui le composent sont représentées dans l'encart. Leurs vecteurs de Burgers respectifs sont rapportés.

Le réseau hexagonal de la Figure VII-8 met cependant en évidence des irrégularités de motif que nous avons symbolisées dans l'encart par les lignes jaunes et violettes. On peut supposer que les dislocations représentées en jaunes cisailent le réseau composé des dislocations bleues, rouges et vertes. De plus, la réaction des familles de dislocations jaunes et bleues semble conduire à la famille de dislocations violettes (éteintes sur la Figure VII-8). Dherbey observe également ce type d'irrégularités (Dherbey, 2000) et les interprète comme une preuve d'activité des réseaux à travers leur mobilité dans le cristal. Ce type de phénomène peut effectivement être un signe d'une certaine mobilité de ces réseaux ou de leur propension à absorber des dislocations en mouvement.

Pour finir, on aperçoit, sur la partie droite de la Figure VII-8, quelques dislocations enchevêtrées. Certains indices permettent de penser que cet ensemble correspond soit à la formation d'un nouveau réseau, avec les premières interactions entre familles de dislocations, soit à la désintégration d'un réseau avec les dernières dislocations restantes qui le constituaient. On voit que les quelques cellules, bien plus larges que celles qui composent le réseau de gauche, suggèrent une désorientation plus faible encore des deux zones du cristal de part et d'autre de cette structure que dans le cas du réseau bien établi visible sur la gauche de l'image.

#### VII.4. Synthèse : corrélation entre déformations macroscopiques et observations microstructurales

Nous essayons ici de faire la synthèse des principaux résultats obtenus à l'issue des essais de compression et de flexion réalisés, tant du point de vue de la dépendance de la vitesse d'écoulement

stationnaire aux grandeurs thermodynamiques qui la détermine, que du point de vue des observations microstructurales.

### **Essais macroscopiques : vitesses d'écoulement stationnaires**

Les campagnes d'essais de compression et de flexion réalisés sont compatibles avec un mécanisme de fluage restauration. La dépendance à la contrainte de la vitesse de déformation stationnaire en compression en particulier est proche de la valeur proposée à partir de modèles micromécaniques rudimentaires faisant intervenir la montée de dislocation contrôlée par la diffusion en volume comme mécanisme principal de restauration.

Les valeurs d'exposants déterminées à partir d'essais de flexion présentent une signification physique moins claire. Les écarts observés avec les essais de compression sont probablement dus en partie à une dissymétrie du comportement en traction et en compression, et, dans le cas des essais de flexion 3-points au fait que des fissures apparaissent dans les zones sollicitées en traction. Par ailleurs, en compression, la démarche consistant au cours d'un même essai à faire varier la vitesse de déplacement de traverse s'avère pertinente et permet une estimation relativement simple de la dépendance à la contrainte de la vitesse d'écoulement. La caractérisation d'une telle dépendance est nettement moins directe en flexion et nécessiterait en particulier une étude associant une mesure locale de la déformation à une simulation systématique d'essais de flexion 4 points. Le but de cette démarche serait d'identifier le comportement en traction du matériau en utilisant son comportement identifié en compression.

### **Apparition de réseaux de dislocations et mécanismes de restauration**

Les structures hexagonales ont été observées à plusieurs reprises dans le dioxyde d'uranium et sont décrites par plusieurs auteurs (voir chapitre 2, section II.4.3.2) : plus récemment au travers d'examen réalisés par MEB en A-ECCI (Ben Saada, 2017; Mansour et al., 2019), mais aussi par le passé par des observations conduites par MET (Dherbey, 2000; Soullard, 1976, Alamo 1978). Les échantillons ayant fait l'objet des études rapportées par Mansour et Ben Saada, sont des polycristaux et ont été sollicités dans des conditions relativement proches de celles du monocristal dont on fait état ici : compression à 1500°C dans le domaine des fortes contraintes. La ressemblance à l'échelle du MET entre les microstructures observées dans notre étude et celles de polycristaux est frappante.

L'agencement des dislocations suivant des structures hexagonales est typique de la déformation viscoplastique du dioxyde d'uranium par un mécanisme de fluage – restauration, c'est-à-dire dans une gamme de températures et de contraintes élevée. Ces réseaux de dislocations conduisent à la formation de sous-joints de grains dans le matériau et à la fragmentation des grains d'origine. Mansour (Mansour et al., 2019) identifie, à partir d'observations MEB, des sous-joints de grains de caractère mixte (de flexion et de torsion), associés à la présence des deux types de dislocations vis et coin ou mixte (chapitre 2, section II.4.3.2.2).

Cette fragmentation est la conséquence de plusieurs phénomènes susceptibles d'avoir lieu dans des monocristaux ou des polycristaux : l'activation et l'interaction de plusieurs systèmes de glissement d'une part et la localisation de la déformation du fait des incompatibilités de déformation entre deux zones du cristal d'autre part. Dans le cas d'un échantillon monocristallin, on peut imaginer que cette incompatibilité provient de l'ancrage de ses deux extrémités avec les cales martyres. Pour les échantillons polycristallins cette incompatibilité résulte de cinétiques de déformation différentes entre deux grains adjacents. Dans les deux cas cela induit l'apparition de sous-joints de grains qui permettent

la rotation locale du réseau telle qu'observée en EBSD ou MET. Cette rotation à l'échelle des grains, est sans doute une contribution à la déformation macroscopique du matériau telle qu'on l'observe sur la Figure VII-4 et la Figure VII-5.

Quoiqu'il en soit, sur la base des essais de flexion 4-points, le lien entre déformation macroscopique et subdivision des grains n'est pas direct, c'est-à-dire que la fraction linéaire de sous joints n'est pas une grandeur suffisamment précise pour caractériser dans l'absolu, la déformation locale d'un échantillon. En effet, nous avons vu lors des essais de flexion que la fragmentation des grains était moins développée que ce à quoi on pouvait s'attendre, compte tenu de la déformation macroscopique de l'éprouvette, et des résultats obtenus en compression. Cette observation permet de supposer l'existence de mécanismes de déformation à fortes contraintes ne conduisant pas à une fragmentation des grains. Le ou les mécanismes de restauration n'ont pas pu être déterminés de manière indubitable. L'espoir fondé sur la mesure de la dépendance à la pression partielle d'oxygène ne s'est pas révélé entièrement concluant dans la mesure où les résultats expérimentaux ne correspondent à aucun modèle de défauts ponctuels simple. Les prémices d'une identification du mécanisme de restauration sont tout de même posées. Faute de pouvoir mesurer avec les outils expérimentaux dont on dispose, un coefficient d'autodiffusion du cation, il s'agit d'une part de la réalisation d'essais de fluage à faibles contraintes. La dépendance à la pression partielle d'oxygène et à la température de la vitesse d'écoulement stationnaire pourraient être comparée à des résultats établis à plus fortes contraintes. D'un point de vue des caractérisations microstructurales, il est clair que les micrographies du type de la Figure VII-7 présentent des signes de glissement dévié et de montée des dislocations. Si l'essai de traction in situ est difficilement envisageable, un recuit in situ permettrait peut-être de caractériser certains mécanismes de restauration.

### **Signes de phénomènes de diffusion sous contrainte ?**

Nous revenons sur l'observation relative à l'allongement des grains rapportée au chapitre 5, avec les Figure V-35 et Figure V-48, et systématiquement constatée à l'issue des examens en EBSD d'échantillons déformés en compression. En particulier, l'étude des échantillons de type SPS à faibles tailles de grains a montré une croissance substantielle de la taille de grain dans un sens perpendiculaire à l'axe de compression. La croissance orientée des grains est également observée qualitativement mais il est impossible de quantifier cet effet à partir des analyses EBSD. La question se pose de savoir si cette déformation est d'une manière ou d'une autre liée à la formation de sous-joints et à la fragmentation des grains associés ou si un mécanisme de fluage diffusion est à l'œuvre qui « s'ajoute » au phénomène de déformation par fluage-restauration. L'examen de la Figure V-49 du chapitre 5 suggère la première hypothèse même si la fragmentation peut y contribuer. En effet, bon nombre de grains de cette figure ne présentent pas ou très peu de sous-joints mais présentent un allongement substantiel dans une direction perpendiculaire à l'axe de compression. Par ailleurs, cette interprétation serait cohérente avec le fait que l'évolution de l'aspect géométrique des grains apparaît moins nette dans les matériaux à gros grains. Pour deux expériences réalisées dans des conditions semblables, la distance de diffusion devrait être comparable et donc la modification de la forme des grains moins visible dans les matériaux aux tailles de grains plus importantes. Notons enfin que cette observation est nécessairement liée à l'application d'une contrainte puisque notre échantillon témoin de type SPS recuit pendant 24 h n'a montré aucun signe de croissance granulaire (voir chapitre 5).

**En l'absence d'une simulation de la modification des grandeurs thermomécaniques de l'échantillon dans son ensemble à partir d'une modélisation de la déformation à l'échelle des grains, il est difficile**

**de quantifier et distinguer la contribution de la diffusion (en volume ou au joints de grains) de la contribution liée à la fragmentation des grains.** Notons simplement que si l'on se réfère à l'étude de Duguay (Vivant-Duguay, 1998), la taille des grains des matériaux SPS que nous avons étudiés devrait, compte tenu des vitesses de déformation investiguées, favoriser un mécanisme de fluage diffusion. Or, nous observons dans ce cas les deux mécanismes de déformation simultanément. **Enfin, cette étude constitue une piste expérimentale intéressante pour générer des données qui pourraient alimenter un modèle de transport de matière à l'échelle du grain, constituant *in fine*, une mesure de coefficient de diffusion.**

### **Apparition de zones présentant une forte décohésion intergranulaire**

L'apparition de zones de dimensions millimétriques à l'intérieur desquelles on observe une forte décohésion intergranulaire associée à une forte subdivision des grains est une évolution microstructurale notable. La décohésion intergranulaire a été assez couramment rapportée (Dherbey, 2000; Ndiaye, 2012), mais rarement en liaison avec une fragmentation des grains plus forte. On note cependant que tout comme dans l'étude de Dherbey, nous observons une orientation préférentielle de la décohésion dans l'axe de compression de l'échantillon (chapitre 5, section V.4.2.2.2). Ce phénomène, bien entendu spécifique à la déformation des échantillons polycristallins, peut être interprété en s'inspirant du modèle d'Ashby et Verrall (chapitre 1, section I.3.2.3). Nous pensons en effet que le moteur de cet effet est lié aux vitesses de déformation différentes entre grain du fait de leur orientation aléatoire par rapport à l'axe de compression. La déformation plastique des grains procède donc à des vitesses nécessairement différentes et le glissement intergranulaire est susceptible d'accommoder ces différences jusqu'à un certain point. Au-delà d'une déformation locale limite, le glissement des grains les uns par rapport aux autres ne permet plus d'accommodation, conduisant ainsi à l'ouverture des joints de grains, prémisse de la phase tertiaire de la déformation macroscopique. Cette interprétation qualitative du problème mériterait une mise en œuvre micromécanique et numérique.

### **Effet de la pression partielle d'oxygène**

Dans une étude antérieure (Garcia et al., 2021), il a été suggéré une augmentation de la fragmentation des grains avec la pression d'oxygène, toute chose égale par ailleurs, sur la base d'essais de compression. Cette observation n'a pas été confirmée de manière indubitable dans le cadre de cette étude. Sans doute que les essais n'étaient pas optimisés pour le faire : les vitesses de déplacement de traverse dans nos essais étaient variables et les déformations finales relativement importantes. Pour ce qui est des essais de flexion ou de compression sur les matériaux à faibles tailles de grains, des difficultés méthodologiques liées respectivement à la localisation précise de la zone de déformation maximale (essais de flexion) et à la tenue mécanique (échantillons SPS) sont apparues. D'une manière générale, les niveaux de déformation lors des essais de flexion étaient trop faibles. Des essais plus ciblés et plus systématiques seraient nécessaires pour mettre en évidence un effet éventuel sur la microstructure de la pression partielle d'oxygène.

# Chapitre 8 : Effets d'une irradiation aux ions sur le comportement du dioxyde d'uranium en traction

---

## VIII.1. Introduction

Les combustibles nucléaires sont soumis à des rayonnements ionisants très intenses en fonctionnement. Chaque fission d'un noyau d'uranium 235 donne naissance à deux fragments de fission dont les masses sont centrées autour de 140 et 90 u.m.a. respectivement. La majorité de l'énergie libérée par cette fission (environ 80 %) est emportée sous forme d'énergie cinétique des fragments à hauteur d'environ 65 MeV pour le fragment le plus lourd et 95 MeV pour le fragment le plus léger. L'énergie cinétique est ensuite transférée au matériau par des processus inélastiques pour l'essentiel, puis à mesure que les ions ralentissent, par des collisions élastiques. Les mécanismes de transferts d'énergie donnent lieu à un endommagement du matériau par irradiation (boucles de dislocations et défauts ponctuels), qu'il s'agisse de mécanismes liés aux excitations électroniques ou aux collisions élastiques. Les céramiques en particulier peuvent être sensibles aux phénomènes d'excitations électroniques. Cependant, il est rapporté dans la littérature (Sonoda et al., 2010) que le dioxyde d'uranium ne présente de sensibilité à l'excitation électronique qu'au-delà d'une valeur seuil de pouvoir d'arrêt qui est de l'ordre de 20 keV/nm, du même ordre de grandeur que le pouvoir d'arrêt maximal des fragments de fission. Ainsi, l'essentiel du dommage d'irradiation que subit le matériau est dû aux collisions élastiques qui se produisent en fin de parcours lorsque le fragment a perdu l'essentiel de son énergie. Un calcul faisant l'hypothèse de l'approximation des collisions binaires (Soullard, 1976) permet d'estimer à environ 1 dpa/jour, le taux de dommage balistique que subit un combustible  $UO_{2+x}$  irradié dans des conditions standards.

Ce dommage d'irradiation a des conséquences importantes pour le matériau. Sa microstructure va évoluer substantiellement au cours de son séjour en réacteur et en modifier la plupart des propriétés d'usage : densification (Freshley et al., 1976; Garcia et al., 2000), gonflement (Zimmermann, 1978), diffusion (H. Matzke, 1983) et fluage (Perrin, 1971) induits ou accélérés par l'irradiation constituent les phénomènes principaux rapportés dans la littérature. La plupart de ces phénomènes, et en particulier le fluage d'irradiation, a été caractérisée à partir de mesures intégrales telles les évolutions de longueurs de colonnes fissiles. Dans le meilleur des cas, ces informations sont obtenues dans le cadre d'expériences instrumentées en réacteur (Schaaf & Laan, 2007). De ce fait, les grandeurs mesurées, sont généralement obtenues à une échelle que l'on pourrait qualifier de macroscopique (le plus souvent une caractérisation géométrique des objets irradiés) et sont le résultat d'une multitude de phénomènes ayant lieu à des échelles d'espace et de temps très différentes. Par ailleurs, ces phénomènes sont susceptibles d'être couplés : évolution chimique du matériau, création de défauts ponctuels ou agrégés en amas de lacunes ou d'interstitiels, recuit des défauts, formation de bulles de gaz rares...

Le but de l'étude présentée dans ce dernier chapitre est donc de réaliser des expériences qui sont le siège d'un nombre plus limité de phénomènes, permettant de simuler par une irradiation externe homogène l'évolution géométrique d'éprouvettes sous contrainte, sous irradiation et pour laquelle le dommage d'irradiation est contrôlé. Ces expériences ont été menées à bien en collaboration avec Jia-Chao Chen, chercheur spécialiste des effets d'irradiation dans les métaux au Paul Scherrer Institut (PSI) de Villigen en Suisse, et bien sûr avec les équipes du cyclotron du CNRS/CEMHTI à Orléans où ces

expériences ont été réalisées. C'est successivement à Jülich (Jung et al., 1985), au PSI et au CNRS/CEMHTI à Orléans qu'a été développé le dispositif que nous détaillerons ci-dessous. Celui-ci permet de soumettre une éprouvette à des efforts de traction sur une ligne d'irradiation aux ions, tout en suivant avec une très grande sensibilité l'évolution de sa longueur.

Dans une première partie de ce chapitre, nous proposons un rappel succinct de la connaissance actuelle du fluage d'irradiation pour le dioxyde d'uranium et exposons les différentes considérations qui nous ont permis de dimensionner ces expériences. La méthode de préparation des éprouvettes et leur montage dans le dispositif de traction sont ensuite présentés. Nous abordons dans la dernière section le déroulement des expériences ainsi que les conclusions que nous en avons tirées.

## VIII.2. Fluage sous irradiation du dioxyde d'uranium

### VIII.2.1. Fluage sous irradiation

Le fluage d'irradiation a depuis longtemps été identifié comme un phénomène qu'il est nécessaire de décrire afin de mieux rendre compte des évolutions géométriques des éléments combustibles (Clough, 1977; Combette et al., 1977; Milet & Piconi, 1983; Perrin, 1971; Solomon, 1973) et ainsi prévoir leur durée de vie. Avec l'avènement de méthodes de simulation permettant de décrire plus en détails les évolutions de ces éléments (Michel et al., 2013), certaines observations macroscopiques ont pu être interprétées comme étant liées au fluage induit par l'irradiation des oxydes : c'est le cas notamment de la cinétique d'apparition de plis dits « primaires » sur les gaines en alliage de zirconium. Ces marques, visibles sur les gaines après plusieurs mois d'irradiation en réacteur de puissance, sont le résultat de déformations lentes. Elles ont lieu à des températures généralement bien inférieures à celles nécessaires pour activer le fluage de l'oxyde par des phénomènes purement thermiques et à des niveaux de contraintes de l'ordre de grandeur de la pression que peut exercer le réfrigérant sur l'élément combustible, c'est-à-dire environ 15 MPa.

Quelques auteurs (Clough, 1977; Combette et al., 1977; Milet & Piconi, 1983; Perrin, 1971; Solomon, 1973) ont étudié ces phénomènes à partir d'expériences analytiques menées dans des réacteurs expérimentaux, principalement dans les années 1970 à 1990. Leurs expériences ont été réalisées à des températures comprises entre 400°C et 1200°C, typiques de températures rencontrées dans des réacteurs à eau pressurisée en fonctionnement normal, et dans des gammes de contraintes généralement inférieures à 40 MPa. Ces expériences consistaient essentiellement en des essais de compression d'échantillons irradiés en réacteur dont la hauteur est mesurée au cours du temps en fonction des sollicitations : température, contrainte et taux de fission. Des expériences complémentaires, à chargement nul, sont alors nécessaires dans le but de décorrélérer les effets de gonflement ou de densification sous irradiation des effets liés aux phénomènes de fluage qui sont sensés dépendre plus directement de la contrainte exercée.

Les conclusions de ces travaux mettent en évidence les mêmes types de dépendances de la vitesse de déformation du matériau aux sollicitations imposées. Celle-ci semble effectivement :

- proportionnelle à la contrainte pour des niveaux de contraintes inférieurs à environ 40 MPa.
- proportionnelle au taux de fission, et relativement indépendante du taux de combustion atteint qui est une mesure de la fraction d'atomes lourds fissionnés. Seul Clough (Clough, 1977) observe une très forte accélération de la vitesse de fluage pour des taux de combustion supérieurs à 17 GWj/tM (Giga-watts jours par tonne de métal lourd initial).

- relativement indépendante de la température. On parle donc de « fluage athermique » par opposition aux déformations viscoplastiques qui sont observées hors irradiation et qui sont en principe activées par la température, quel que soit le mécanisme de déformation mis en jeu.

Le comportement du fluage stationnaire induit par l'irradiation peut ainsi être décrit par la relation phénoménologique suivant :

$$\dot{\epsilon}_{irradiation} = A\sigma\dot{\phi} \quad (8.1)$$

Où  $\dot{\phi}$  est le taux de fission exprimé en fission/cm<sup>3</sup>/s,  $\sigma$  la contrainte appliquée et  $A$  une constante. Une estimation de cette constante est proposée dans les diverses études sur le sujet:  $A = 5.10^{-27} m^3/MPa$  (Clough, 1977) ;  $A = 1,8.10^{-26} m^3/MPa$  (Combette et al., 1977) et  $A = 9,2.10^{-27} m^3/MPa$  (Solomon, 1973).

Les résultats de ces expériences suggèrent une certaine analogie avec les études relatives à l'autodiffusion sous irradiation aux neutrons. En effet, celle-ci a été partiellement caractérisée par le passé dans le dioxyde d'uranium (Höh & Matzke, 1973) et dans les métaux (Mundy et al., 1978; Sizmann, 1978). Plus récemment, des techniques analytiques, mettant en jeu des irradiations aux ions (Han & Heuser, 2015), ont également permis de mieux comprendre ces propriétés. Les études montrent d'une part une augmentation de plusieurs ordres de grandeurs de l'autodiffusion par rapport à la diffusion d'origine thermique dans la gamme de températures d'intérêt, et d'autre part une proportionnalité du coefficient de diffusion au taux de fission pour l'UO<sub>2+x</sub> ou au flux de neutron pour les matériaux métalliques. D'une manière générale, l'augmentation du coefficient d'autodiffusion sous irradiation est interprétée comme étant due à une présence de défauts induits par l'irradiation à des concentrations très supérieures à ce que prévoit l'équilibre thermodynamique. Des analyses plus étayées de ces études dans les métaux ont été proposées par Sizmann (Sizmann, 1978) sur la base d'équations cinétiques décrivant l'évolution des défauts sous irradiation. Elles suggèrent qu'un coefficient d'autodiffusion accéléré, indépendant de la température et proportionnel au taux d'endommagement tel que rapporté par Matzke (H. Matzke, 1983), est cohérent avec une hypothèse d'élimination des défauts créés par l'irradiation sur des puits présents à fortes concentrations.

Les études analytiques les plus récentes sur céramiques (Han & Heuser, 2015) ne confirment que partiellement une diffusion sous irradiation proportionnelle au taux d'endommagement et indépendant de la température. Il semble transparaître de cette analogie et de la proportionnalité à la contrainte de la vitesse de déformation (chapitre 1, section 1.3.2), que le fluage accéléré par l'irradiation est associé à des mécanismes de fluage assisté par la diffusion. L'idée est donc ici de réaliser des expériences utilisant des irradiateurs externes pour contrôler l'endommagement. Cette démarche ouvre également la perspective de permettre un contrôle accru de la microstructure, de la température et de la charge imposée aux éprouvettes pendant l'essai, ainsi que l'étude détaillée de la microstructure après essai. L'objet de la prochaine section est de présenter la manière dont le protocole expérimental a été conçu.

### VIII.2.2. Choix d'un irradiateur, dimensionnement de l'expérience

La plupart des études analytiques relatives au fluage d'irradiation du dioxyde d'uranium a été réalisée dans des réacteurs nucléaires expérimentaux et constituent des expériences coûteuses qu'il est difficile d'instrumenter de manière satisfaisante. La conception d'une expérience de déformation viscoplastique sous irradiation aux ions, qui présente une alternative originale, nécessite tout d'abord de choisir la nature des ions et donc l'irradiateur. Une solution, mise en œuvre antérieurement (Colin,



2003), a consisté à irradier avec des ions lourds dans le but de créer du dommage d'irradiation dans le matériau. Cet auteur a en effet irradié des éprouvettes d' $\text{UO}_{2+x}$  au GANIL (ligne SME) avec des ions krypton de 780 MeV, et subséquemment réalisé des essais de flexion à haute température.

Un des inconvénients de cette approche est que le flux disponible sur ce type de ligne (sortie SME du GANIL) est assez faible au regard de l'endommagement que subit le matériau en réacteur, ce qui exclut d'atteindre des fluences élevées et donc un endommagement important et homogène. Par ailleurs, le parcours des ions utilisés par Colin est de l'ordre de 50 microns dans l' $\text{UO}_{2+x}$ , ce qui correspond à une faible profondeur d'endommagement par rapport à l'épaisseur des éprouvettes de flexion de 500  $\mu\text{m}$ . Par ailleurs, les ions lourds sont implantés dans l'éprouvette et leur présence complique l'analyse de l'essai. Enfin, l'objectif de cette étude antérieure, à savoir l'effet de l'endommagement d'irradiation sur la déformation viscoplastique d'origine thermique, est différent du nôtre. En effet, nous cherchons ici à caractériser de manière *in situ* la déformation sous irradiation. Cela nécessite le développement d'un dispositif d'essais sur une ligne d'irradiation.

Nous avons donc mis en œuvre une alternative qui consiste à utiliser un dispositif d'essai mécanique, *in situ*, installé sur un accélérateur d'ions légers (He,  $\text{H}^+$ ,  $\text{H}_2^+$ ,  $\text{D}^+$ ,  $\text{D}_2^+$ ...) (J. Chen et al., 2020). L'avantage d'un accélérateur d'ions légers de type cyclotron est l'énergie à laquelle les particules sont susceptibles d'être accélérées. Celle-ci permet l'irradiation d'un échantillon de dioxyde d'uranium sur une profondeur relativement élevée (*e.g.* de l'ordre de 350 microns pour des particules  $\alpha$  de 45 MeV). Les profondeurs atteignables restent tout de même relativement faibles (de l'ordre de grandeur du millimètre ou légèrement inférieure) malgré notre choix d'un faisceau de protons pour endommager le matériau. La manipulation d'échantillons de dioxyde d'uranium de faibles épaisseurs étant délicate du fait de leur fragilité aux basses températures, le choix de l'épaisseur des échantillons résulte d'un compromis. Il est préférable pour la tenue mécanique des éprouvettes de disposer d'échantillons épais, mais cela présente deux inconvénients notables puisque nous souhaitons endommager le matériau de manière uniforme.

Le premier est l'activation des échantillons. En effet, plus ceux-ci sont épais et plus l'énergie des particules incidentes doit être élevée. Or, des protons de hautes énergies induisent des réactions nucléaires par franchissement de la barrière coulombienne, ce qui active la chambre d'irradiation d'une part et les éprouvettes d'autres part. Ce phénomène proscrit une manipulation aisée de celles-ci juste après l'expérience.

Par ailleurs, le profil de dommage présente un quasi-plateau de la surface de l'échantillon à une profondeur qui dépend de l'énergie et un pic centré sur le pic d'implantation, dont la largeur dépend de l'énergie incidente. La Figure VIII-1 montre, d'une part, l'évolution en fonction de la profondeur du pouvoir d'arrêt nucléaire pour des protons de 20 MeV dans le dioxyde d'uranium, et d'autre part le profil d'implantation et de dommage résultants (exprimé en pourcentage atomique d'atomes d'uranium). Cette figure illustre le fait que la concentration en hydrogène implanté est très faible et que l'essentiel du dommage d'irradiation est localisé en fin de parcours. Le pouvoir d'arrêt électronique reste, lui, bien inférieur à la valeur seuil proposée par Sonoda (Sonoda et al., 2010), et ne participe donc pas à l'endommagement.

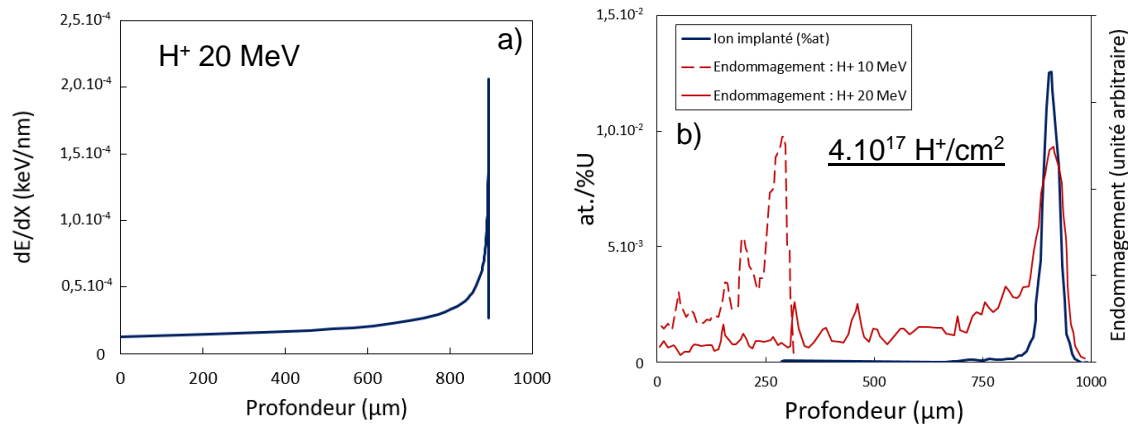


Figure VIII-1. a) Profil de pertes d'énergie nucléaire des protons de 20 MeV, b) profil d'implantation ionique (ordonnée de gauche), obtenus par le calcul avec le logiciel SRIM (à l'aide du modèle de Kinchin-Pease) pour une irradiation aux protons 20 MeV dans le dioxyde d'uranium et profil d'implantation des défauts pour des protons de 10 MeV et de 20 MeV (ordonnée de droite).

Ainsi, pour une fluence d'ions équivalente, deux énergies de protons différentes conduiront grossièrement au même endommagement du matériau mais réparti sur une profondeur qui sera d'autant plus faible que l'énergie incidente est faible. De ce fait, pour une fluence identique, l'endommagement que subit le matériau sera d'autant plus faible que l'épaisseur de celui-ci sera importante. En tout état de cause, le choix de l'épaisseur de l'éprouvette détermine l'énergie des ions protons incidents.

Avec ce souci d'optimisation en tête, plusieurs campagnes expérimentales ont été menées avec des éprouvettes dont l'épaisseur était de 500 μm et des protons de 16 MeV. Celles-ci se sont révélées bien trop fragiles à la manipulation et à l'installation sur le banc d'essai. Puis le choix a été fait de se tourner vers des éprouvettes de 800 μm d'épaisseur, ce qui a fixé l'énergie des protons incidents à 20 MeV. Afin de garantir un endommagement homogène dans l'épaisseur des éprouvettes, un dégradeur en énergie a été dimensionné et installé en amont de l'échantillon (voir la Figure VIII-2). Cette figure donne une vue d'ensemble du dispositif utilisé. On note la présence d'une fenêtre en tantale d'environ 30 μm d'épaisseur (*fenêtre d'isolation* sur la Figure VIII-2) en amont de l'échantillon, qui permet de protéger la ligne d'irradiation contre les effets d'un dégazage au cours de l'expérience. La perte d'énergie des ions dans cette fenêtre transparente aux ions utilisés est prise en compte dans le dimensionnement de l'expérience.

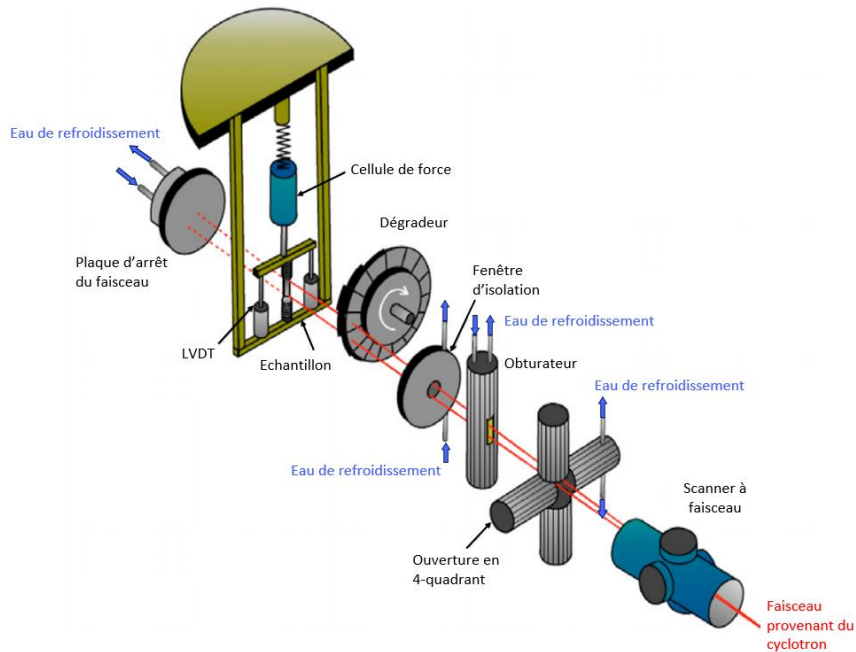


Figure VIII-2. Schéma du dispositif d'irradiation complet. [Chen et al, 2020]

Le dégradeur est constitué de 30 feuillets d'aluminium d'épaisseurs variables atteignant jusqu'à 2000 microns fixées sur une roue tournante. La Figure VIII-3 indique le profil d'endommagement attendu avec ce « dégradeur » d'énergie tel qu'il peut être évalué avec le logiciel SRIM.

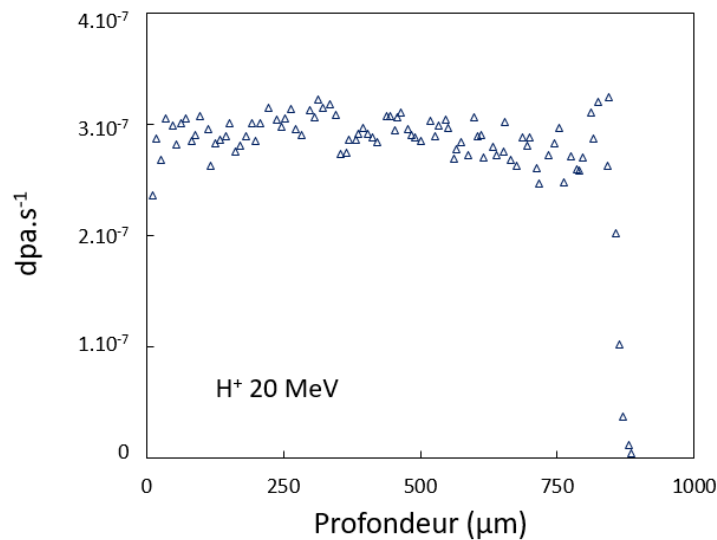


Figure VIII-3. Profil d'endommagement dans l' $UO_{2+x}$  d'un faisceau de protons de 20 MeV. L'homogénéité est obtenue grâce au dégradeur en énergie : roue tournante en amont de l'échantillon qui est composée de feuilles d'aluminium d'épaisseurs différentes.

Rappelons néanmoins que cette approche calculatoire n'est sans aucun doute pas le reflet de l'endommagement réel que subit le matériau. En effet, la simulation Monte-Carlo que le logiciel SRIM met en œuvre repose sur l'approximation des collisions binaires (Stoller et al., 2013). Elle ne tient compte ni de la guérison quasi instantanée des défauts à l'intérieur des cascades (à l'échelle de quelques picosecondes), ni de la diffusion et de l'annihilation de ces défauts sur des échelles de temps plus importantes. Par ailleurs, cette approche Monte-Carlo ne tient pas compte de l'effet d'un

endommagement cumulé : le matériau est supposé exempt de défauts à chaque passage simulé d'un ion. Malgré tout, cette approche reste utile car elle permet la comparaison d'irradiations entre elles.

### VIII.2.3. Synthèse

Nous avons fait le choix d'irradier des éprouvettes de 800  $\mu\text{m}$  d'épaisseur dans un dispositif de traction avec un faisceau de protons de 20 MeV. L'endommagement induit par l'irradiation est quasi-homogène du fait de l'utilisation d'un dégradeur en énergie. Les essais sont réalisés à des températures comprises entre 400 et 900°C afin de rester dans le domaine du fluage athermique.

Dans la prochaine section, une description du dispositif et de la préparation des éprouvettes est proposée, cette dernière étant un point crucial dans la réalisation des expériences.

## VIII.3. Dispositif expérimental et préparation des éprouvettes

### VIII.3.1. Préparation des éprouvettes et montage dans leur porte-échantillon

Les éprouvettes, utilisées pour les expériences de traction sous irradiation, proviennent du même lot que celui ayant fait l'objet des essais de flexion (lot C). Une description de leur microstructure est proposée au chapitre 6, section VI.2 Ces échantillons, d'une épaisseur initiale de 2,6 mm, sont découpés à l'aide d'un fil diamanté pour obtenir des lamelles d'une épaisseur de 800  $\mu\text{m}$  (ou initialement de 500 $\mu\text{m}$ ). Nous avons à cette occasion mis au point une procédure garantissant une maîtrise de l'épaisseur à  $\pm 20 \mu\text{m}$ . La Figure VIII-4 indique l'évolution de l'épaisseur pour un échantillon de 470  $\mu\text{m}$  d'épaisseur moyenne. Il faut souligner que les éprouvettes de ces dimensions restent extrêmement fragiles.

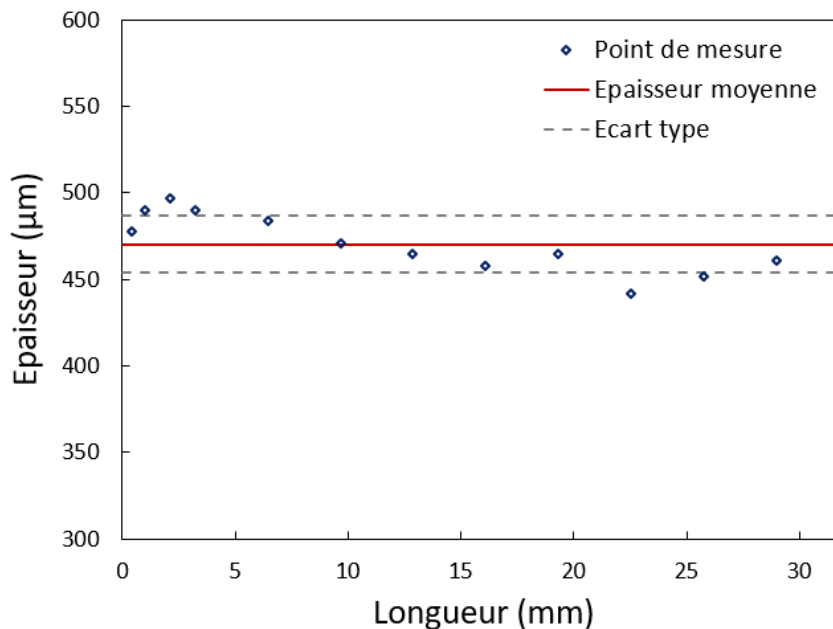


Figure VIII-4. Mesure de l'épaisseur moyenne d'un échantillon sur toute sa longueur.

Parmi les facteurs pouvant fragiliser les éprouvettes, outre la faible épaisseur mentionnée dans la section précédente, nous avons identifié l'état de surface. Après plusieurs essais de traction hors irradiation visant à caractériser l'impact de la préparation de surface, nous avons conclu que la solution optimale consistait à recuire les éprouvettes à 1500°C sous une atmosphère d'argon hydrogéné

pendant 4 heures. En effet, à cette température, les diffusions de surface et de volume permettent d'éliminer substantiellement la rugosité et la microfissuration éventuelle résultant de la découpe.

A l'issue de la préparation des éprouvettes, celles-ci sont montées dans un porte-échantillon. Son rôle est d'une part de permettre le transport des échantillons sans risque de détérioration de ces derniers. D'autre part, le porte-échantillon présente à ses extrémités les fixations qui permettent le montage de l'ensemble (porte-échantillon et échantillon) sur le site de l'irradiateur, dans le dispositif de traction. La Figure VIII-5 montre l'ensemble porte-échantillon-échantillon juste avant son montage.

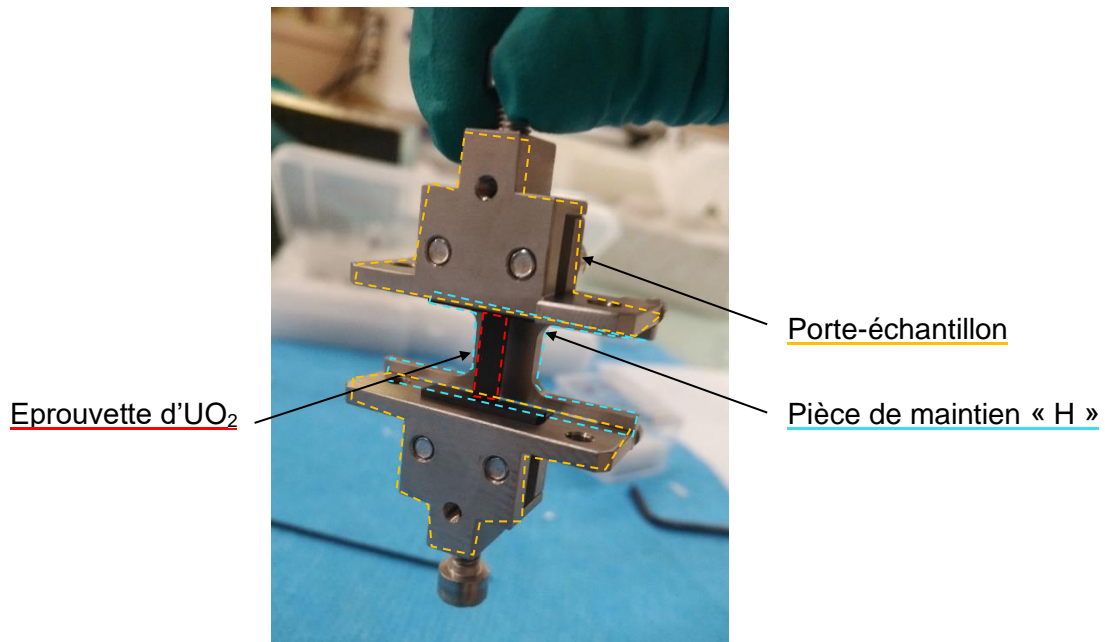


Figure VIII-5. Eprouvette d' $UO_{2+x}$  prête pour un essai de traction. On retrouve le porte-échantillon, les logements en graphite et la pièce de maintien en forme de « H » à l'arrière.

La mise en place des éprouvettes dans les porte-échantillons de traction constitue une étape importante car celles-ci doivent être parfaitement alignées suivant l'axe de traction. Pour réaliser le montage, nous utilisons une plaque-support (Figure VIII-6) qui assure le maintien en position de l'ensemble des pièces. Les éprouvettes sont positionnées et collées dans des logements constitués de pièces en graphite (Figure VIII-6a), ce qui permet de les rendre solidaires du porte-échantillon. Le choix s'est porté sur le graphite principalement grâce à sa propriété de conduire le courant (il est nécessaire d'évacuer les charges sous flux), de plus c'est un matériau relativement aisé à usiner. Deux colles réfractaires sont utilisées pour maintenir les éprouvettes dans leurs logements. Le premier à base d'alumine assure l'adhésion requise entre les pièces en graphite et les échantillons. Le second à base de graphite est choisi pour ses propriétés de conduction électrique qui évite l'accumulation des charges pendant l'irradiation. Ces colles doivent subir un traitement thermique permettant de les sécher complètement et de les durcir. Ainsi l'ensemble des pièces, montées sur la plaque de montage, subit un recuit composé de trois paliers à des températures croissantes, dont le dernier atteint 370°C. Ces traitements thermiques ont été réalisés sous une atmosphère d'argon purifié à l'aide d'une pompe électrochimique identique à celles installées sur nos dispositifs d'essais thermomécaniques. Les mesures de teneurs en oxygène montrent une absence totale d'oxygène dans le gaz vecteur en sortie de dispositif, ce qui garantit que l'échantillon ne s'est pas oxydé pendant le recuit thermique. Une fois les colles recuites et l'éprouvette fixée à ses deux extrémités, deux blocs en

acier inoxydable (Figure VIII-6b) sont vissés par-dessus de sorte qu'ils maintiennent fermement les logements en graphite et l'échantillon jusqu'à ce que l'essai de traction soit terminé.

Pour finir une dernière pièce est montée sur le porte-échantillon. Celle-ci se présente sous la forme d'un « H », comme on peut le voir sur la Figure VIII-6b, et remplit le même rôle que la plaque de montage. Elle présente le double avantage d'être moins encombrante et plus facile à monter et démonter. Cette pièce a un rôle essentiel au cours de la mise en place du porte-échantillon dans le dispositif de traction. Elle permet, notamment, de limiter les efforts de cisaillement subit lors de la mise en place, ainsi que de maintenir l'alignement de l'ensemble porte-échantillon pendant cette étape.

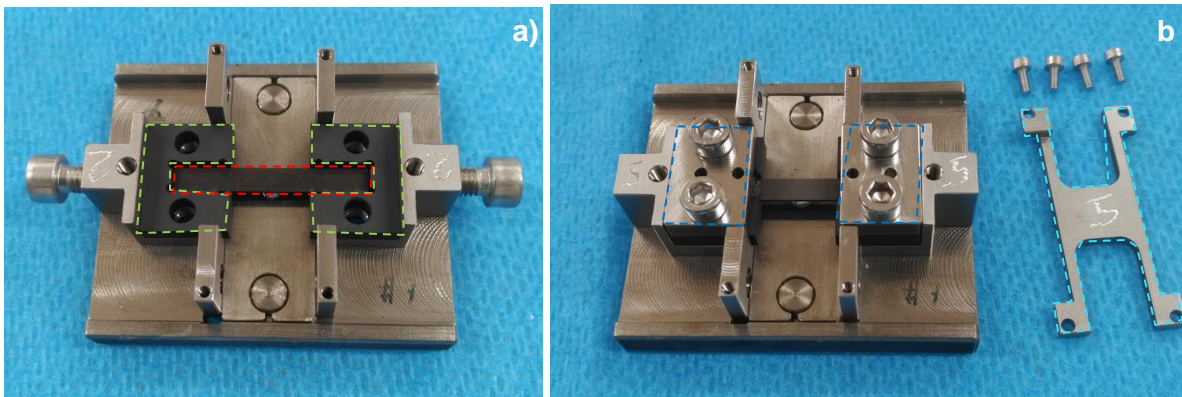


Figure VIII-6. Photographies du montage d'un échantillon (rouge) dans un porte-échantillon de traction. La plaque support, à l'arrière, sert de référence fixe durant l'ensemble de la procédure. a) Installation de la lamelle d' $\text{UO}_{2+x}$  dans les logements en graphite (vert) ; b) Dernière étape : serrage des blocs en acier inoxydable (bleu) et installation de la pièce de maintien en forme de « H » (turquoise).

### VIII.3.2. Dispositif d'essai mécanique sous irradiation

#### VIII.3.2.1. Système de traction *in-situ*

Un dispositif de traction, développé à Jülich (Allemagne) dans les années 80, a été adapté pour fonctionner sur le cyclotron du CNRS/CEMHTI d'Orléans. Il est présenté à la Figure VIII-7. Les flèches rouges indiquent la direction de traction. L'éprouvette d' $\text{UO}_{2+x}$  (dans l'encadrement orange) se situe au centre, orientée suivant l'axe de traction. On retrouve le porte-échantillon (voir aussi la Figure VIII-5), constitué de deux pièces en acier qui maintiennent l'échantillon fermement en position à ses deux extrémités dans les logements en graphite de la Figure VIII-6. Deux capteurs de déplacement LVDT (dans les encadrements verts) permettent une mesure extrêmement précise de l'allongement du matériau. On remonte à la variation de hauteur de l'éprouvette en faisant la moyenne des deux signaux. On aperçoit également, de part et d'autre de l'éprouvette, deux pièces métalliques (encadrements violets), chacune constituée de quatre buses dont la fonction est de limiter la température de l'échantillon par injection, d'un flux d'hélium purifié (par passage dans un bain d'azote liquide).

Deux roulements (encadrements bleus) permettent l'alignement de l'ensemble : le roulement inférieur est solidaire de la structure fixe du dispositif, et le roulement supérieur est solidaire de la partie du dispositif qui impose la charge. Ces roulements permettent un « auto-alignement » de l'ensemble des pièces, en offrant plusieurs degrés de liberté, à travers une liaison rotule. Enfin, la

traction est imposée à l'aide d'un moteur à courant continu qui permet de contrôler la tension d'un ressort. Suivant son sens de rotation, il induit un effort de traction ou de compression à l'éprouvette.

Les capteurs de déplacement permettent une mesure *in situ* de la réponse de l'éprouvette à l'irradiation, la température et à la charge. Cependant, sous irradiation, le signal de ces capteurs est très bruité. Ainsi chaque point de mesure d'allongement est réalisé hors irradiation, à température ambiante. Dans de telles conditions, la précision relative à l'allongement de l'échantillon est précise au dixième de micron (J. Chen et al., 2020).

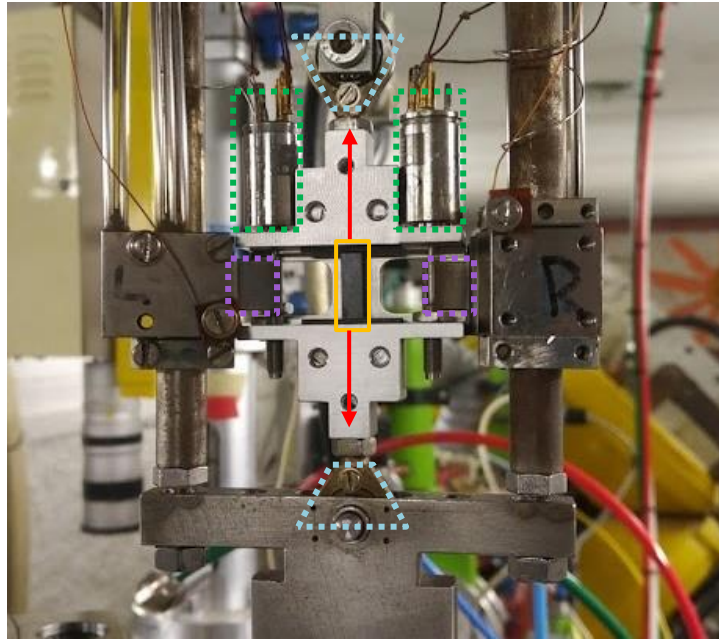


Figure VIII-7. Photographie du dispositif de traction prêt à être installé dans la chambre d'irradiation. La flèche rouge indique l'axe de traction ; Les zones colorées représentent : l'éprouvette  $UO_{2+x}$  (encadrement orange) ; les deux capteurs LVDT (encadrements verts) ; les pièces comportant les quatre buses d'hélium (encadrements violets) et les deux roulements d'attache (encadrements bleus).

### VIII.3.2.2. Procédure de montage

La procédure de montage des éprouvettes d' $UO_{2+x}$  dans le dispositif de traction est également une opération cruciale et délicate, ayant nécessité un effort d'optimisation considérable. La première étape consiste à attacher les roulements inférieur et supérieur ainsi que les deux capteurs de déplacement. L'ensemble est ensuite suspendu au dispositif de traction, auquel on applique immédiatement un léger effort de traction, de quelques newtons, qui permet de rattraper les différents jeux mécaniques. Enfin, les capteurs de déplacement sont raccordés électriquement. Il est à noter que toutes ces phases sont réalisées avec la pièce de maintien, en forme de « H », en place. Il n'y a donc pas de risque de rupture de l'éprouvette puisque tous les efforts sont accommodés par cette pièce dont le dévissage constitue la dernière phase du montage.

### VIII.3.2.3. Conditions d'irradiation et maîtrise de la température

Le cyclotron du CEMHTI/Orléans est utilisé pour délivrer un faisceau de protons de 20 MeV. On peut retrouver une représentation schématique de la ligne d'irradiation sur la Figure VIII-2. En complément du dégradeur en énergie évoqué dans la section VIII.2.2, l'homogénéité de l'endommagement est assurée par un balayage horizontal et vertical du faisceau incident ( $10 \times 6 \text{ mm}^2$ ).

Le taux d'endommagement dépend directement de l'intensité du faisceau mesuré en ampères. Pour cette expérience, une intensité de l'ordre de 1 à 5  $\mu\text{A}$  est envisageable. Le chauffage de l'échantillon à la température souhaitée est dû à l'énergie déposée dans l'éprouvette par le faisceau pendant l'irradiation. La température de l'éprouvette augmente donc avec l'augmentation de l'intensité du faisceau. Ainsi, pour éviter de soumettre l'éprouvette à un choc thermique, l'intensité du faisceau augmente progressivement. Un pyromètre, situé à l'extérieur de la chambre d'irradiation, fournit une mesure de la température de l'échantillon au cours de l'expérience. Un balayage horizontal et vertical de la visée du pyromètre permet d'accéder à la distribution de la température sur l'ensemble de l'échantillon. Plusieurs buses, situées de part et d'autre de l'éprouvette (voir la Figure VIII-7), permettent un contrôle de la température par projection d'un jet d'hélium préalablement purifié et équilibré à température ambiante par passage dans un bain thermostaté. Pour une intensité de faisceau donnée, le contrôle de la température de l'éprouvette s'effectue en ajustant le débit d'hélium.

Notons aussi qu'avant chaque expérience, un papier millimétré est positionné sur la pièce en « H » centrée sur l'échantillon et une irradiation de quelques secondes est réalisée. Cette étape permet d'une part de vérifier le bon alignement du faisceau par rapport à l'échantillon et d'autre part de mesurer la surface balayée par le faisceau.

## VIII.4. Déroulement des expériences, résultats et discussion

### VIII.4.1. Déroulement des expériences

L'expérience consiste à mettre en traction une éprouvette de dioxyde d'uranium de faible épaisseur, soumise à un faisceau de protons de 20 MeV. L'objectif étant d'investiguer le phénomène décrit comme du fluage induit par l'irradiation, la contrainte imposée visée est comprise entre 10 et 20 MPa. Le phénomène étant athermique, la température de l'échantillon visée reste inférieure à 1000°C.

La réalisation d'un essai suit une procédure précise, décrite ci-après. L'éprouvette d' $\text{UO}_{2+x}$  est mise en place dans le dispositif de traction et soumise à une légère tension. Le dispositif dans son ensemble est déplacé à l'intérieur d'une chambre d'irradiation. La chambre est ensuite mise sous vide et le dégradeur en énergie mis en rotation. L'intensité du faisceau est augmentée progressivement ce qui provoque une augmentation de la température de l'éprouvette et une dilatation thermique de celle-ci. L'ajustement du débit d'hélium permet de maîtriser la température de l'éprouvette au cours de cette phase transitoire. En raison de la dilatation thermique de l'éprouvette, la tension qui lui est imposée a tendance à diminuer à mesure qu'elle se dilate et une tension minimale de 2 MPa est maintenue au cours de cette phase. L'intensité visée et la température étant atteintes, le profil de température à la surface de l'éprouvette est caractérisé à l'aide du pyromètre. A ce stade, la charge appliquée est augmentée.

Les conditions d'irradiation, de température et éventuellement de charge étant stabilisées, l'échantillon est maintenu dans cet état pour une durée déterminée. La mesure de l'allongement est cependant réalisée à basse température, faisceau éteint. L'allongement de l'échantillon est caractérisé pendant l'intégralité de la période de refroidissement après coupure du faisceau. Après une période de refroidissement suffisante, le faisceau est rétabli pour une nouvelle période d'irradiation.

Le résultat d'une expérience se compose donc de multiples points d'allongement, réalisés à des fluences d'irradiation croissantes. La fluence se déduit à partir de l'intégrale du courant au temps considéré :



$$\phi = \frac{1}{Se} \int I(t) dt \quad (8.2)$$

$S$  étant la surface balayée par le faisceau et  $e$  la charge électrique élémentaire.

Le courant vu par l'échantillon est supposé proportionnel au courant mesuré en continu sur le quatre-quadrant (voir la Figure VIII-2). Le coefficient de proportionnalité est estimé avant et après chaque expérience en interposant entre le quatre-quadrant et l'échantillon une cage de Faraday permettant de mesurer l'intégralité du flux de particules.

## VIII.4.2. Résultats et discussion

### VIII.4.2.1. Expériences réalisées hors irradiation

Des essais mécaniques à température ambiante ont été réalisés dans le but de :

- Vérifier la tenue mécanique de l'ensemble échantillon et porte-échantillon. En effet, la réalisation d'essai de traction sur un matériau céramique aussi fragile nécessite, entre autre, que la sollicitation soit parfaitement uniaxiale.
- Tester la résistance des éprouvettes hors irradiation, comparer les résultats à la littérature sur le sujet et en tout état de cause, s'assurer que leur contrainte à rupture hors irradiation est bien supérieure à la valeur de contrainte à laquelle les expériences de fluage d'irradiation sont envisagées.

Cette étape a conduit à l'optimisation de la préparation des échantillons et de leur montage dans les porte-échantillons. La Figure VIII-8 illustre l'évolution de la contrainte imposée à des éprouvettes de 800  $\mu\text{m}$  d'épaisseur en fonction du déplacement mesuré par les capteurs LVDT lors de quatre essais de traction. On remarque tout d'abord que l'éprouvette non recuite (courbe orange) a rompu à la contrainte la plus faible (environ 30 MPa), correspondant à une charge de traction d'environ 100 N. Les trois autres éprouvettes, toutes recuites à 1500°C dans un flux d'argon hydrogéné après découpe, ont rompu à des contraintes de l'ordre de 45 MPa. De plus, ces essais ont mis en évidence un phénomène de glissement des éprouvettes dans leurs logements en graphite à partir d'une charge de 70 N (voir les courbes orange et violette). Cela a pu être corrigé par la suite par une plus grande maîtrise du moment utilisé pour resserrer les vis maintenant les mors en acier et logements en graphite, avant la réalisation de l'essai (voir les courbes bleue et verte). Il est intéressant de voir la très bonne reproductibilité des courbes de traction jusqu'à une charge de l'ordre 60 N (environ 18 MPa). Les contraintes à rupture atteintes, de 32 à 46 MPa, sont largement supérieures aux contraintes envisagées sous irradiation (10 MPa). En revanche, elles sont nettement inférieures aux valeurs rapportées dans la littérature (Evans & Davidge, 1969a), de 150 MPa, à partir d'essais de flexion sur des polycristaux, elles-mêmes un ordre de grandeur inférieures aux valeurs obtenues à partir d'essais micromécaniques (micro flexion, et nano-indentation, Henry et al., 2020). Ces écarts pourraient s'expliquer par la dimension des défauts critiques du matériau. En effet, pour un matériau fragile à comportement élastique linéaire, la théorie de Griffith fournit une relation entre la taille du défaut critique, la ténacité et la contrainte à rupture :

$$D_c = \frac{K^2}{\pi\sigma_r^2} \quad (8.1)$$

Avec  $K$  la ténacité,  $D_c$  la taille du défaut critique et  $\sigma_r$  la contrainte à rupture.

Pour une ténacité de  $1 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$  (qui est l'ordre de grandeur de valeurs mesurées par indentation Vickers au laboratoire), une contrainte à rupture de 40 MPa suggère une taille de défaut de plusieurs centaines de microns, c'est-à-dire de l'ordre de grandeur de la dimension des poches de petits grains observées dans la microstructure initiale (voir le chapitre 6).

On note également que la pente à l'origine des courbes contraintes-déplacement sont très largement inférieures à celles auxquelles on pourrait s'attendre si celles-ci étaient déterminées par l'élasticité du matériau. On obtient un module d'Young apparent de l'ordre de 30 GPa, bien inférieur à celui du dioxyde d'uranium à température ambiante qui se trouve aux alentours de 200 GPa. Ces courbes illustrent donc la rigidité du dispositif dans son ensemble. Une représentation en fonction du déplacement est choisie plutôt que selon une déformation car celle-ci ne correspond pas au réel état de l'éprouvette.

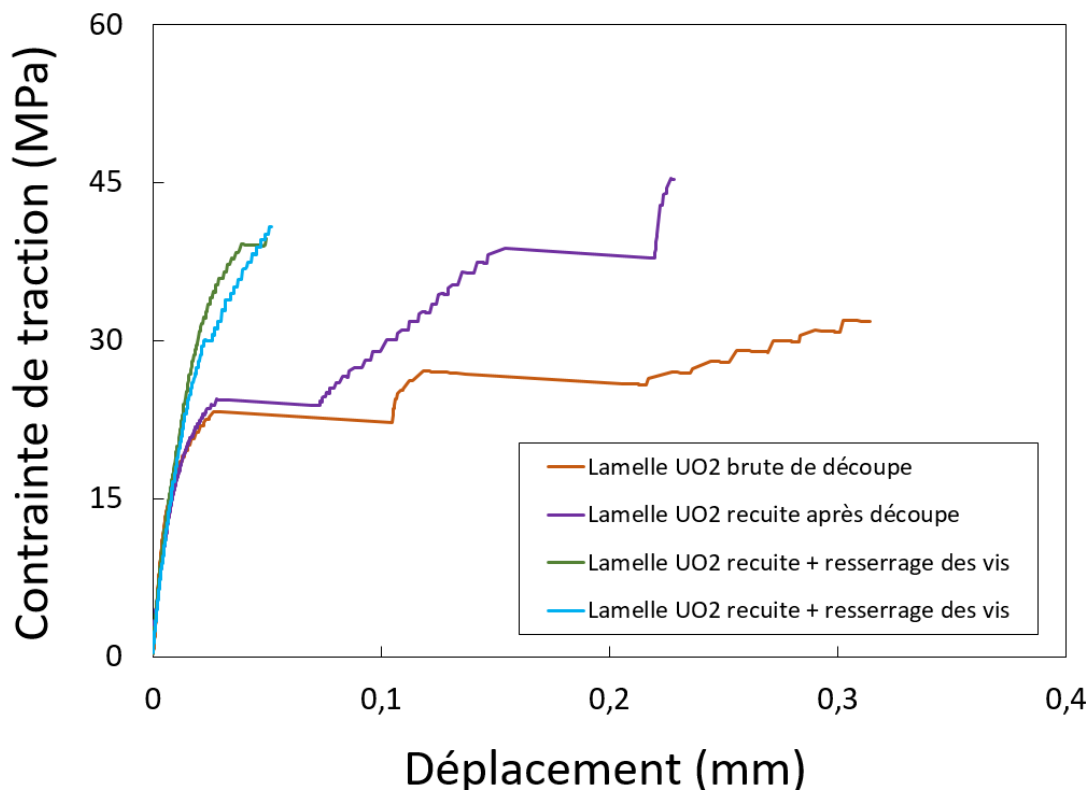


Figure VIII-8. Evolution de la contrainte appliquée en fonction du déplacement mesuré par les capteurs LVDT pour 4 essais de traction réalisés sur des éprouvettes d'UO<sub>2+x</sub> à température ambiante. La légende spécifie les différences de traitements et de préparations que les échantillons ont subis.

#### VIII.4.2.2. Expériences réalisées sous irradiation et sous charge

Toutes les expériences au cours desquelles une charge a été imposée sous irradiation ont mené à une rupture prématurée des éprouvettes avant même d'atteindre le niveau de contrainte visé de 10 MPa. Il s'avère que quel que soit le flux d'ions utilisé ou la température visée entre 200°C et 900°C, les éprouvettes rompent pour une valeur de contrainte entre 2 et 3 MPa.

Plusieurs modifications des séquences décrites dans la section VIII.4.1 ainsi que des températures maximales d'essais ont été investiguées sans succès. En particulier, il semble indifférent d'inverser les séquences d'irradiation-chauffage d'une part et de mise en traction des éprouvettes d'autre part. La Figure VIII-9 présente deux photographies d'échantillons rompus lors de tels essais. On remarque que

les fractures se sont faites à deux endroits différents (Figure VIII-9a) (Figure VIII-9b) au centre de l'éprouvette ou près d'une des extrémités.

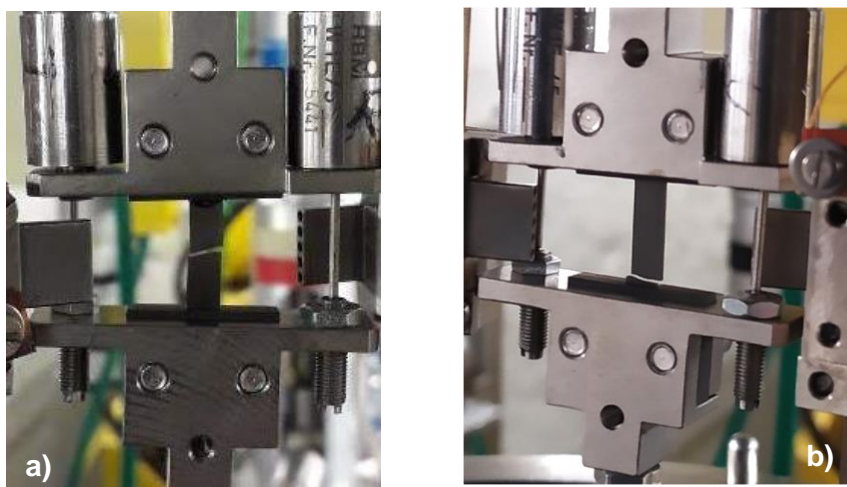


Figure VIII-9. Photographies mettant en évidence la rupture d'échantillons lors d'essais de traction sous irradiation. a) fracture centrale ; b) fracture à proximité d'une extrémité.

#### VIII.4.2.3. Expérience réalisée sous irradiation sans charge

L'expérience décrite dans cette section concerne un échantillon irradié qui n'a été soumis qu'à une charge négligeable visant à maintenir l'ensemble du système sous faible tension correspondant à une contrainte sur l'échantillon de l'ordre de 2 MPa (5 N). Cet échantillon n'a pas subi de rupture pendant toute la phase d'irradiation d'une durée cumulée de 4 heures environ.

La Figure VIII-10 représente la distribution de température sur la largeur et la hauteur de l'éprouvette sous irradiation, mesurée par un déplacement horizontal (Figure VIII-10a) et vertical (Figure VIII-10b) du pyromètre. On constate que le gradient de température sur l'échantillon varie jusqu'à 500°C/mm. Les températures sont maximales au centre de l'échantillon et de l'ordre de 600°C. Elles sont minimales aux extrémités avec des valeurs comprises entre 300 et 350°C. De plus, en dehors de la zone irradiée, l'éprouvette n'est pas chauffée et on estime que sa température reste bien en-dessous de 100°C. Cette distribution de température pourrait donc induire des contraintes thermiques dans le matériau notamment aux extrémités de l'échantillon, au voisinage des pièces graphites dont l'échantillon est solidaire. Cet effet pourrait expliquer pourquoi certaines fissures sont apparues dans cette zone au cours d'autres expériences pour lesquelles l'éprouvette était sollicitée en traction (voir la Figure VIII-9b).

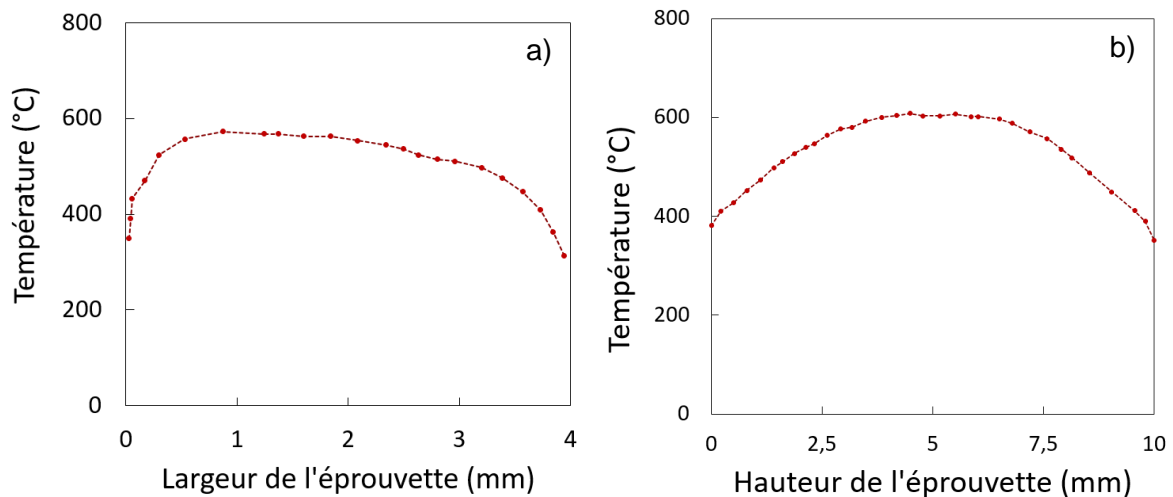


Figure VIII-10. Distribution de la température sur la surface de l'échantillon sous irradiation ( $I = 3\mu\text{A}$ ), a) sur la largeur - balayage horizontal ; b) sur la hauteur - balayage vertical.

Cette expérience permet :

- De démontrer la résistance vis-à-vis de la rupture face à l'irradiation et au chargement en température de nos échantillons. Ainsi, on peut considérer que les ruptures dont il est fait état dans la section VIII.4.2.2 n'auraient pas eu lieu si une charge n'avait pas été imposée aux éprouvettes pendant l'irradiation.
- D'estimer un effet potentiel de l'irradiation en température sur l'allongement des échantillons, traduisant ainsi un effet de gonflement sous irradiation.
- De tester, après irradiation, la résistance mécanique à l'irradiation d'échantillons irradiés en comparaison aux essais rapportés dans la section VIII.4.2.1.

Cette irradiation, d'une durée de plus de 4h à une intensité de  $3\mu\text{A}$  (flux d'ions de l'ordre de  $3 \cdot 10^{13}$  ions. $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ ), a donc atteint une fluence totale de  $4 \cdot 10^{17}$   $\text{H}^+/\text{cm}^2$ , répartie suivant 11 cycles (montées – descentes). Elle a été réalisée à une température nominale de  $600^\circ\text{C}$  (voir Figure VIII-10).

La Figure VIII-11 présente l'évolution de l'allongement de l'échantillon tel qu'il est mesuré par les capteurs de déplacement sur 1 cycle complet d'irradiation. Celle-ci peut se décomposer en 4 phases : la première (I) correspond à la mise en place de l'éprouvette en l'absence de faisceau et à température ambiante. La seconde phase (II) est associée à une augmentation progressive de l'intensité du faisceau et est représentative de toute la période transitoire jusqu'à ce que les paramètres nominaux de l'essai soient atteints. La troisième phase (III) correspond à la période d'irradiation nominale pour laquelle on retrouve un bruit important du signal des capteurs LVDT. Enfin la dernière phase (IV) survient avec l'arrêt du faisceau. Hors irradiation, le signal et son évolution est directement liée à la température de la chambre qui tend vers un nouvel équilibre thermique (J. Chen et al., 2020), c'est pour cela que l'on observe un déplacement qui augmente avec le temps.

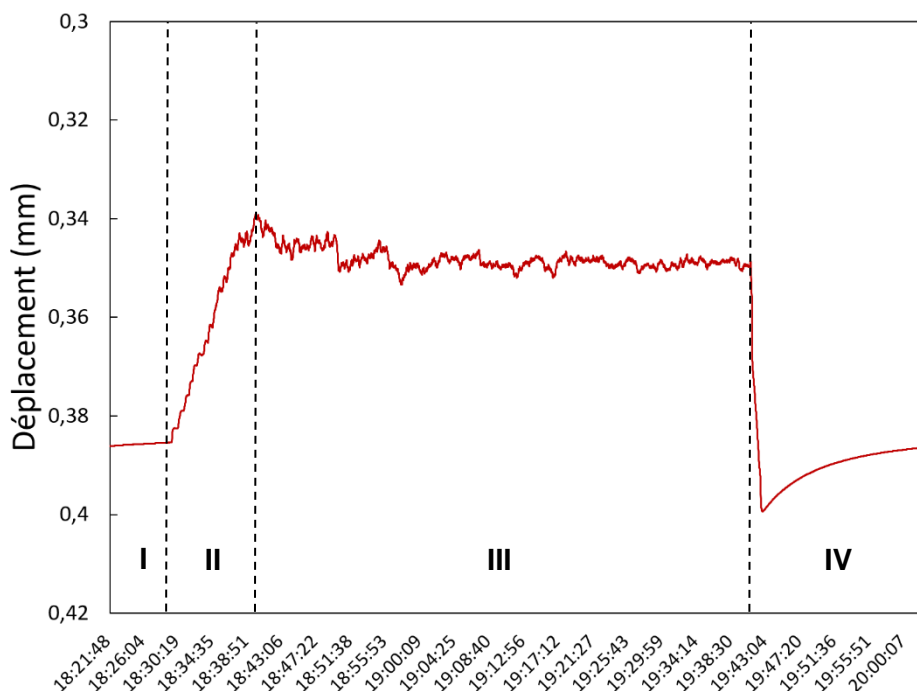


Figure VIII-11. Evolution de la longueur de l'éprouvette telle qu'elle est mesurée par les capteurs LVDT en fonction du temps lors d'un cycle complet d'irradiation.

La dilatation et la contraction au cours des phases **II** et **IV** respectivement découlent des changements de température de l'échantillon. La mesure de l'allongement finale est réalisée au cours de la phase **IV** à une température identique pour tous les cycles. La Figure VIII-12 représente la moyenne des deux mesures de déplacement (des deux LVDT situés à gauche et à droite de l'éprouvette) en fonction de la température de la chambre au cours de la phase **IV** de chacun des 11 cycles d'irradiation. Cette figure montre l'augmentation de la longueur de l'éprouvette à mesure que la dose d'irradiation augmente, ce que l'on peut attribuer à un gonflement induit par l'irradiation de l'échantillon. À une température de 34°C, la Figure VIII-12 indique un allongement de l'échantillon d'environ 4 microns.

La Figure VIII-13 représente l'évolution du gonflement de l'éprouvette en fonction de l'endommagement calculé dans l'approximation des collisions binaires. Ce gonflement est estimé par la relation :  $\varepsilon_{\text{gonflement}} \sim 3 \frac{\Delta l}{l}$ , où  $l$  est la longueur de l'éprouvette soumise à l'irradiation et  $\Delta l$  est la variation de longueur à un cycle donné. Ces déformations sont évaluées pour des températures comprises entre 34 et 37 °C. Cette figure amène deux remarques :

1- Le gonflement semble évoluer presque linéairement avec la dose d'irradiation. Il est toutefois possible qu'un régime permanent ne soit pas atteint au cours de cette irradiation. Le taux de gonflement en régime stationnaire serait donc nettement plus faible. Il faudrait prolonger l'irradiation pour le vérifier.

2- Le taux de gonflement en fonction du taux d'endommagement estimé est très élevé, de l'ordre de 16%/dpa. A titre de comparaison grossière, les estimations faites en réacteur relatives au gonflement sous irradiation se situent à des valeurs inférieures de trois ordres de grandeurs  $3 \cdot 10^{-3}\%$ /dpa.

Les différences entre conditions d'irradiation en réacteur et au cours de l'expérience que nous venons de décrire sont bien sûr très nombreuses : type de dommage, évolution chimique du combustible irradié en réacteur, précipitation de phases séparées, températures et gradient de température, taux d'endommagement, durée d'irradiation... La valeur de 16%/dpa est néanmoins très importante et

serait donc à confirmer soit en prolongeant l'irradiation sur une durée plus importante, soit en indentant la surface des éprouvettes ce qui permettrait de confirmer que l'allongement mesuré provient bien d'une déformation de la zone irradiée.

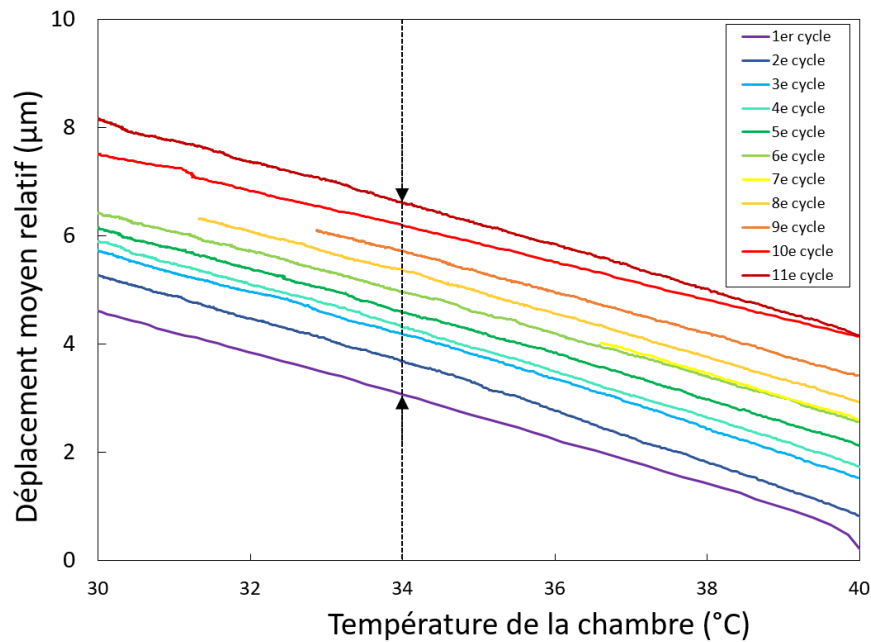


Figure VIII-12. Evolution du déplacement moyen mesuré en fonction de la température de la chambre. Superposition de la mesure des 11 cycles d'irradiation à fluence croissante.

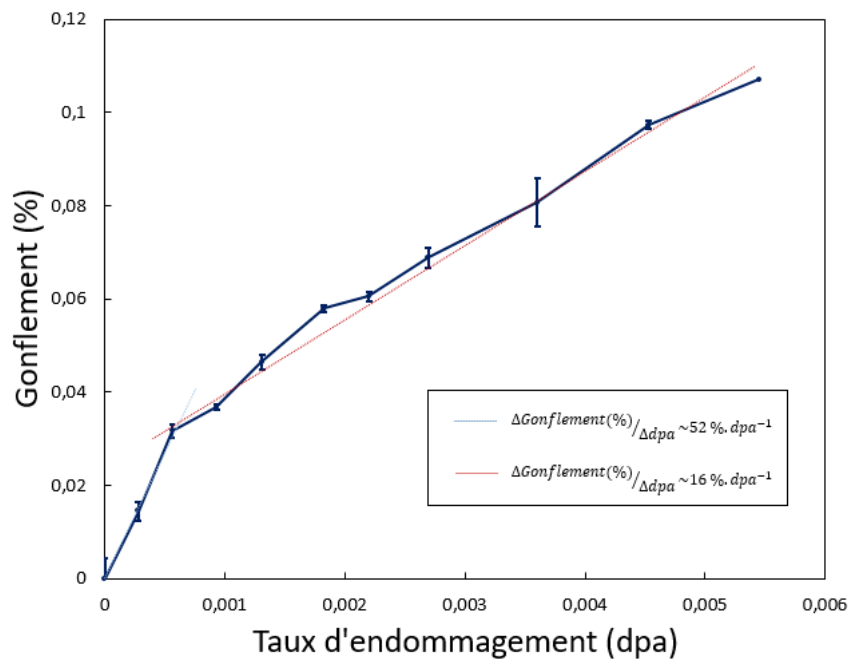


Figure VIII-13. Evolution du gonflement volumique (estimé à partir de l'allongement) de l'échantillon en fonction du taux d'endommagement (grandeur proportionnelle à la fluence).

#### VIII.4.2.4. Expérience de traction sur éprouvette irradiée

Enfin, un essai de traction à température ambiante a été réalisé sur l'éprouvette irradiée afin de confirmer la fragilisation du matériau du fait de l'irradiation. La courbe de charge correspondante est

indiquée sur la Figure VIII-14, et comparée à celles relatives aux éprouvettes non irradiées (Figure VIII-8). La rupture intervient pour une valeur de charge bien plus faible, située aux alentours de 30 N. Cela conduit à une contrainte à rupture de l'ordre de 8 MPa. On constate que la fracture s'est propagée dans la zone irradiée de l'éprouvette. Notons que cette éprouvette avait subi un chargement de 10 MPa avant l'essai sans qu'elle ne s'endommage.

La relation (8.1) suggère qu'une telle diminution de la contrainte à rupture pourrait être imputée soit à une augmentation substantielle de la taille de défaut critique, soit à une diminution importante de la ténacité. Il est difficile d'imaginer en quoi l'irradiation seule pourrait induire une telle augmentation de la taille de défaut critique (de l'ordre de grandeur des dimensions de l'éprouvette). La vérification de la seconde hypothèse nécessiterait une mesure de ténacité par indentation avant et après irradiation. On note aussi que des publications récentes relatives à des mesures de ténacité sur des échantillons irradiés en réacteur de puissance (Henry et al., 2020; Zacharie-Aubrun et al., 2021) suggèrent que celle-ci évolue peu avec l'irradiation. Une fois encore, les conditions et effets microstructuraux de l'irradiation sont très différents dans les deux situations. Par ailleurs, si ces auteurs rapportent peu d'effet de l'irradiation sur la ténacité à l'intérieur des grains d' $UO_{2+x}$ , ils soulignent la fragilisation des joints de grains. Finalement, un effet de sur-contrainte lié à un gradient de déformation très important entre la zone irradiée et non irradiée n'est pas à exclure.

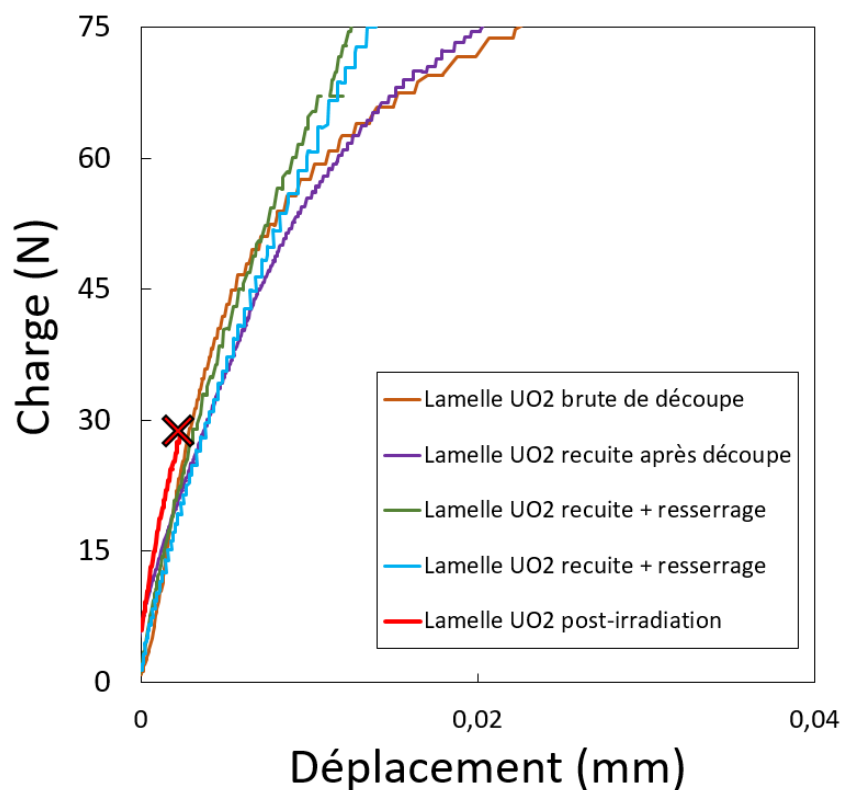


Figure VIII-14. Evolution de la charge en fonction du déplacement pour l'essai de traction réalisé sur l'éprouvette après irradiation (rouge). Comparaison avec les résultats présentés sur la Figure VIII-8.

### VIII.5. Conclusion et perspectives

Cette étude avait pour objet la caractérisation des effets de l'irradiation sur le fluage du dioxyde d'uranium polycristallin, comme cela a été déjà entrepris sur du carbure de silicium de diverses microstructures (J. Chen et al., 2020). À cette fin, nous avons optimisé un procédé d'élaboration

d'éprouvettes de dioxyde d'uranium polycristallin pour des essais de traction, dimensionné une expérience d'irradiation aux protons sur le cyclotron du CNRS/CEMHTI d'Orléans permettant d'induire un endommagement uniforme dans les éprouvettes, et mis en œuvre un dispositif de traction *in situ* complexe, conçu et développé à PSI. La caractérisation envisagée n'a pu être menée à bien principalement du fait de l'extrême fragilité des éprouvettes. Malgré tout, des conclusions inattendues et des perspectives intéressantes émergent de cette étude.

Il semble en effet que l'irradiation utilisée (protons de 20 MeV) induise une fragilisation des éprouvettes. En effet, les éprouvettes soumises à un effort de traction sous irradiation ont toutes rompu à de très faibles valeurs de contraintes, bien en-deçà des valeurs auxquelles elles sont susceptibles de rompre à température ambiante avant d'être irradiées. L'effet du gradient thermique dans les éprouvettes au cours de l'irradiation, qui est inévitable, ne doit pas jouer un rôle majeur dans le processus de rupture dans la mesure où une irradiation a pu être menée à bien sur une durée de quatre heures sans mettre en traction l'éprouvette. A l'issue de cette irradiation, un essai de traction a été réalisé à température ambiante et l'éprouvette a rompu à un niveau de contrainte très bas, confirmant l'effet fragilisant de l'irradiation. Par ailleurs, cette dernière expérience a été l'occasion de vérifier *in-situ* l'effet de l'irradiation sur l'évolution géométrique de l'éprouvette. Celle-ci a été le siège d'un gonflement très important.

Ces deux observations, *i.e.* la diminution apparente de la résistance à la rupture du fait de l'irradiation et le gonflement de l'éprouvette très important au regard du faible taux d'endommagement, semblent contredire la littérature relative au comportement du combustible en réacteur. Ceux-ci indiquent un gonflement bien inférieur pour des taux d'endommagement équivalents et une ténacité qui évolue peu avec l'irradiation. Du fait de la très grande diversité d'effets rencontrés en réacteur, nos résultats constituent sans doute une piste intéressante pour mieux comprendre les effets de l'irradiation en liaison avec ces deux propriétés : ténacité et gonflement. À l'avenir, de nombreuses expériences pourraient être menées à la fois pour conforter ces résultats qui à notre connaissance sont originaux, et mieux caractériser les effets de l'irradiation. Nous en citons quelques-unes :

- Caractérisation de la ténacité des échantillons par indentation après irradiation aux ions. Le rôle de la présence d'hydrogène même en quantités faibles devrait également être clarifié de même que le gradient de gonflement entre les zones irradiées et non-irradiées de l'éprouvette.
- Irradiations permettant d'explorer des niveaux d'endommagement plus importants. Pour cette expérience, les échantillons pourraient être indentés au préalable dans le but de confirmer qu'ils s'allongent dans la zone de l'échantillon qui est irradiée.
- Essais de flexion à haute température sur éprouvettes irradiées pour caractériser l'effet des modifications de la microstructure qu'induit l'irradiation sur les propriétés de déformation viscoplastique du matériau.
- Réalisation de ces expériences d'irradiation sur des microstructures plus homogènes.

Bien entendu, les éprouvettes ayant fait l'objet de ces essais devraient faire l'objet d'études par microscopie électronique à balayage et à transmission afin, en particulier, d'examiner les faciès de rupture.



# Conclusion générale et perspectives

---

Cette étude avait pour objectif d'identifier et d'analyser certains des mécanismes de déformation viscoplastique du dioxyde d'uranium polycristallin et de contribuer au développement de lois de comportement macroscopiques. La compréhension des différents phénomènes mis en jeu, hors et sous irradiation, constitue en effet un enjeu opérationnel important. D'un point de vue plus fondamental, la maîtrise des mécanismes de déformation doit ouvrir la voie à une compréhension et une optimisation, avec l'apport de la simulation numérique, du comportement des éléments combustibles. C'est dans ce contexte que cette étude a été menée. L'essentiel de ce travail s'appuie sur la réalisation d'essais de compression et de flexion à hautes températures (entre 1320°C et 1620°C), à fortes contraintes (plusieurs dizaines de MPa) et sous atmosphère contrôlée. Au cours de ces essais réalisés à vitesses de traverse constantes, la charge à laquelle les éprouvettes étaient soumises ainsi que leurs évolutions géométriques furent caractérisées à tout instant. Nous montrons que les essais macroscopiques, qu'il s'agisse de la flexion ou de la compression, sont très reproductibles. Des échantillons provenant de trois lots différents ont été étudiés. Les deux premiers lots, de forme cylindrique, se distinguaient par leur microstructure (i.e. taille de grain) et présentaient des élancements variables. Leur comportement viscoplastique a été caractérisé et comparé lors d'essais de compression. Le troisième lot, élaboré sous forme de barreaux de section rectangulaire, a fait l'objet d'essais de flexion 3 et 4-points dans le but d'analyser la réponse du dioxyde d'uranium soumis à un mode de sollicitation plus complexe, faisant intervenir simultanément la traction et la compression.

L'analyse bibliographique a permis de mettre en évidence les limites actuelles de l'état de la connaissance. Malgré les nombreuses études réalisées sur ce sujet, les mécanismes associés à la déformation viscoplastique à hautes températures (supérieures à 1000°C) et à fortes contraintes sont encore mal connus. Cette méconnaissance est à mettre en rapport avec la dispersion importante des résultats expérimentaux rapportés, principalement les vitesses de déformation stationnaires. Dans le cas d'une céramique oxyde non-stœchiométrique, le nombre de variables thermodynamiques d'environnement rajoute un degré de complexité à l'étude. En effet, si par le passé, la température et la contrainte ont déjà fait l'objet d'investigations paramétriques, l'effet de la pression partielle d'oxygène, ou plutôt de l'activité de l'oxygène en phase solide, avait jusqu'ici suscité beaucoup moins d'intérêt. Or, d'un point de vue thermodynamique, la variance du système  $UO_{2+x}$  exige un contrôle de ces trois grandeurs intensives. Ainsi, d'une manière générale, pour espérer contribuer significativement au problème, toute étude devrait s'appuyer sur : une maîtrise très stricte des conditions expérimentales ; une modélisation numérique des essais réalisés ; une caractérisation des évolutions microstructurales des éprouvettes résultant de l'essai mécanique. Peu d'études ont combiné ces trois aspects du problème jusqu'ici.

Si la bibliographie suggérait l'activation d'un mécanisme de fluage-restauration dans les conditions indiquées ci-dessus, un doute important subsistait relatif au mécanisme exact de restauration. Parmi ceux qui sont le plus souvent cités, on trouve le glissement dévié et la montée des dislocations. Dans ce dernier cas, et pour une contrainte d'écoulement donnée, la vitesse de déformation en régime stationnaire est a priori proportionnelle au coefficient d'autodiffusion en volume des cations, espèce constitutive du matériau dont le coefficient de diffusion est le plus faible. Cette propriété est mal

connue pour  $UO_{2+x}$ , mais il est possible de montrer que, sous certaines hypothèses, notamment de comportement ionique du matériau, le coefficient d'autodiffusion du cation présente une dépendance caractéristique à la pression partielle d'oxygène.

C'est donc à la fois dans un souci de maîtrise des conditions d'essais mais aussi dans l'espoir que l'analyse de la dépendance des vitesses de déformation à la pression partielle d'oxygène révèle le mécanisme de restauration impliqué, qu'un dispositif a été mis en place visant à contrôler la stœchiométrie du matériau en cours d'essais. La maîtrise de l'activité d'oxygène dans le solide est réalisée par mise à l'équilibre avec une phase gazeuse chimiquement active, composée de mélanges contrôlés d'hydrogène et de vapeur d'eau obtenus par application de méthodes électrochimiques éprouvées. La gamme de températures étudiée (1320°C à 1620°C) et le risque d'interaction chimique avec les matériaux de structure des fours concourent à réduire le domaine de pressions partielles et donc d'écart à la stœchiométrie accessibles au cours d'une telle étude. Ainsi, il n'a pas été possible d'explorer des compositions en oxygène très éloignées de la stœchiométrie exacte. Toujours sur le thème de la maîtrise des conditions expérimentales, une analyse des performances des équipements a montré que le système de refroidissement des fours rendait difficile la détermination précise des contraintes d'écoulement viscoplastiques. Un nouveau système de refroidissement complémentaire a donc été conçu et installé de manière à fournir aux essais des conditions aux limites thermomécaniques stables. **Ces sujets ont fait l'objet du chapitre 3.**

**Simulation numérique et « effets de structure » (chapitre 4).** Les essais relatifs au comportement viscoplastique de  $UO_{2+x}$  mettent couramment en jeu des niveaux de déformations élevés qui peuvent aller du pourcent à la dizaine de pourcents. La question se pose alors inévitablement du choix d'une cinématique, c'est-à-dire de la description des mouvements des corps matériels indépendamment des causes et des lois qui les régissent. Cela nous a conduit à retenir une analyse de nos essais en grande transformation et une mesure de la déformation dans le cadre des déformations logarithmiques.

Nous montrons alors que, sous l'hypothèse d'une déformation uniaxiale et d'un mécanisme de déformation isochore (en général caractéristique d'une déformation viscoplastique), la contrainte associée à la déformation logarithmique est précisément la contrainte de Cauchy, autrement connue sous le nom de contrainte vraie ou rationnelle. Par ailleurs, on montre qu'en « choisissant » les déformations logarithmiques, la trace du tenseur de déformation est nulle pour une transformation isochore, ce qui permet de réutiliser les formalismes relatifs aux lois formulées en « petites perturbations » (HPP). Sur cette base, une modélisation des trois types d'essais subséquentment réalisés (essais de compression et de flexion 3 et 4-points) est proposée, associée à une loi de comportement de type Frederick-Armstrong.

Concernant les essais en compression sur des pastilles cylindriques, une modélisation uniaxiale et axisymétrique est mise en œuvre. Nous avons ainsi pu établir, grâce à cette modélisation et à la prise en compte du frottement entre les échantillons et les cales, le rôle essentiel de l'élancement des pastilles vis-à-vis de l'analyse thermomécanique du problème. Un critère fondé sur ce paramètre géométrique est proposé. Il permet de s'assurer du degré d'uniaxialité de l'expérience de compression. Des simulations numériques d'essais conduits sur des éprouvettes présentant un élancement de deux ont ainsi permis de démontrer la capacité des modèles uniaxiaux et axisymétriques à reproduire fidèlement les données expérimentales, moyennant des ajustements mineurs des paramètres de la loi de comportement. La représentation axisymétrique a permis en outre de décrire la déformation « en tonneau » des pastilles à l'issue des essais, avec des conditions d'ancrage unilatéral à l'interface entre

les pastilles et les pièces du dispositif en tungstène qui les compriment ; hypothèse qui semble donc réaliste.

**Des essais de compression à vitesse de traverse constante (chapitre 5)** ont été menés sur des pastilles de fort élanement obtenues au laboratoire par métallurgie des poudres et présentant des tailles de grains élevées (taille de grain DCE de  $11\ \mu\text{m}$ ). Ces essais ont été conduits à différentes températures, pressions partielles d'oxygène et vitesses de traverse. D'un point de vue expérimental et méthodologique, nous avons vérifié deux points essentiels lors de cette étude. En premier lieu, l'analyse uniaxiale du problème fondée sur l'utilisation de la contrainte de Cauchy permet, au moins à partir de  $1500^\circ\text{C}$ , de bien mettre en évidence les deux premiers stades du fluage associés habituellement à la déformation viscoplastique : un durcissement initial suivi d'une période d'écoulement stationnaire, étapes qualifiées couramment de fluages primaire et secondaire. En second lieu, nous nous sommes assurés que la mise en œuvre d'une sollicitation plus complexe, mettant en jeu des vitesses de traverse croissantes, ne modifiait pas les contraintes d'écoulement en régimes stationnaires. Ce dernier point suggère que la microstructure stationnaire pour des conditions expérimentales données est indépendante « du chemin emprunté » pour l'atteindre.

À  $1520^\circ\text{C}$ , nous montrons que la vitesse de déformation en régime stationnaire est correctement représentée par le produit d'une loi puissance de la contrainte par une loi puissance de la pression partielle d'oxygène. L'exposant de la contrainte est voisin de 5, alors que celui de la pression d'oxygène est voisin de  $1/6$ . Le premier exposant suggère bien un mode de déformation de type fluage-restauration et n'est pas incompatible avec les analyses micromécaniques fondées sur l'hypothèse d'une cinétique de déformation contrôlée par la diffusion en volume du cation. En revanche, l'exposant identifié de la pression partielle d'oxygène est incompatible avec un modèle de défaut dans lequel les défauts ponctuels et leurs charges formelles correspondent à un comportement essentiellement ionique du matériau. Nous revenons sur ce point important au moment d'établir les perspectives de ce travail.

Des essais de compression ont également été réalisés à  $1320^\circ\text{C}$  sur des pastilles obtenues par frittage SPS et présentant de faibles tailles de grains (diamètre DCE de  $2,8\ \mu\text{m}$ ) et un élanement de l'ordre de 0,6. Les essais macroscopiques n'ont pas permis de déterminer des dépendances des vitesses de déformation stationnaires à la contrainte ou à la pression partielle d'oxygène, probablement du fait de la mauvaise tenue mécanique des éprouvettes. Cependant, contrairement aux essais réalisés sur matériaux à tailles de grains plus importantes, la charge passe systématiquement par un maximum avant d'atteindre un régime stationnaire. Cette observation illustre le caractère durcissant rapporté dans la littérature et associé à la présence de grains de faibles tailles. Une simulation très préliminaire de ces essais montre qu'il est possible de reproduire le maximum de contrainte avec un modèle de comportement de type Frederick-Armstrong en supposant que la contrainte interne est non-nulle en début d'essai. Cette hypothèse est qualitativement compatible avec l'existence de forces élastiques à longue distance que les grains de faibles tailles sont susceptibles de créer et qui agissent potentiellement sur le processus de multiplication des dislocations.

**Une campagne d'expériences de flexion 3 et 4-points a complété cette étude (chapitre 6).** Les essais sont réalisés sur des échantillons obtenus par métallurgie des poudres mais dont la microstructure est légèrement différente de celle des pastilles qui font l'objet de l'étude en compression. Ces échantillons de flexion se distinguent par la présence de poches de grains fins à forte porosité (les fractions volumiques totales de pores demeurant cependant équivalentes). Ces essais de flexion ont, pour une

partie d'entre eux, fait l'objet d'une simulation bi voire tridimensionnelle. Bien que n'étant pas aussi aboutie que pour les essais de compression, la démarche a permis de consolider l'analyse macroscopique des essais en pointant les particularités que cette modélisation est ou n'est pas en mesure de reproduire dans son état actuel. En particulier, tous les essais de flexion 4-points réalisés indiquent, après une augmentation rapide de la charge, une période de croissance quasi linéaire de celle-ci. Cette croissance linéaire qui est reproduite par la simulation numérique peut être raisonnablement attribuée à une évolution du point de contact entre l'éprouvette et les appuis supérieurs du dispositif. Concernant les essais de flexion 3-points, les courbes de charges obtenues présentent toutes un maximum avant qu'un régime stationnaire d'écoulement ne s'établisse. Les analyses micrographiques d'essais interrompus à différents instants suggèrent que ce maximum est dû à la propagation de fissures intergranulaires initiées dans les zones des éprouvettes sollicitées en traction. Leur propagation semble stable et s'apparente à un mécanisme couplé d'endommagement par fluage-fissuration qui à notre connaissance n'a jamais été mis en évidence sur  $UO_{2+x}$  aussi clairement.

Une des richesses mais aussi des difficultés associées à la compréhension des essais de flexion réside en la nature hétérogène des contraintes et des déformations. Nous avons donc appliqué une méthode d'indentation dans le but de caractériser la déformation locale dans l'épaisseur de l'éprouvette induite par l'essai mécanique. Bien que cette méthode n'est appliquée qu'à un nombre limité d'essais de flexion 3-points, elle révèle néanmoins une légère dissymétrie dans le comportement mécanique du matériau qui présente une déformation plus marquée dans les zones sollicitées en traction. Même si la loi de comportement implémentée ne traduit pas la dissymétrie de comportement traction-compression observée, la simulation bidimensionnelle reproduit dans l'ensemble assez bien le profil de déformation dans l'éprouvette. La dissymétrie observée à partir des marques d'indentation est corroborée par les examens au MEB/EBSD réalisés à différents endroits dans l'épaisseur de l'éprouvette : ils montrent une fragmentation des grains d'origine, signature de mécanismes associés au fluage-dislocation, plus marquée dans les régions soumises à la traction. Cette observation microstructurale est également constatée dans des éprouvettes sollicitées en flexion 4-points qui elles ne présentent pas de signes de fissuration.

Ces modèles ont permis de définir une approche permettant d'interpréter analytiquement les essais en termes de vitesse de déformation stationnaire, suivant une démarche comparable à l'analyse proposée pour les essais de compression. Nous montrons effectivement que la distribution de contraintes dans l'épaisseur de l'éprouvette peut être calculée analytiquement avec une précision raisonnable par rapport au calcul bidimensionnel, à partir de la connaissance de la charge à laquelle l'éprouvette est soumise. En revanche, la déformation est mal évaluée à partir de relations analytiques en supposant que le matériau obéit à une loi de Norton simple. La détermination de l'exposant de la contrainte et de la pression partielle d'oxygène à partir des contraintes et vitesses de déformation maximales et de ces relations analytiques s'en trouve affectée : les exposants de la contrainte identifiés sont différents en flexion 3-points et en flexion 4-points, et sont supérieurs à la valeur déterminée en compression. Les exposants de la pression partielle d'oxygène diffèrent également, même si on observe clairement un adoucissement du matériau avec la pression partielle d'oxygène durant les essais de flexion.

**Analyse de la microstructure (chapitres 5, 6 et 7).** En parallèle des essais et modélisations conduites à l'échelle macroscopique, des examens microstructuraux, réalisés majoritairement par MEB/EBSD, ont été conduits afin d'apporter un éclairage complémentaire vis-à-vis des mécanismes de déformation

locaux mis en jeu. Ceux-ci ont confirmé, comme d'autres études avant la nôtre, que la déformation viscoplastique du matériau dans le domaine du fluage dit « dislocation » s'accompagne d'une fragmentation des grains d'origine. Cette fragmentation est le résultat des interactions entre familles de dislocations qui se constituent en réseaux géométriques réguliers pour former des sous-joints de grains séparant deux zones du cristal initial d'orientations légèrement différentes (rotations inférieures à 5°). Ce phénomène, identifié dans la présente étude par un examen MET d'un monocristal déformé en compression (chapitre 7), est une réponse microscopique à la déformation imposée au matériau typique d'un mécanisme de type fluage-restauration. Il est sans doute induit dans les polycristaux par les incompatibilités de déformation entre grains adjacents qui se déforment à des vitesses différentes. Notre étude a également révélé d'autres évolutions microstructurales associées au comportement des polycristaux en compression : si l'ouverture des joints de grains dans une direction grossièrement parallèle à l'axe de compression a déjà été rapportée dans la littérature, il a moins souvent été signalé que ces zones d'endommagement apparaissent dans des régions de dimensions millimétriques et que l'augmentation de la déformation semblait associée à une augmentation de la densité de ces régions. Par ailleurs, à l'intérieur de ces zones, on note une fraction linéaire de sous-joints de grains substantiellement plus importante qu'à l'extérieur.

La fragmentation des grains et l'ouverture de cavités intergranulaires n'est pas le seul mode de réponse du matériau à la sollicitation mécanique. L'examen microstructural de pastilles SPS déformées en compression a révélé très nettement un mécanisme de déformation qui semble s'apparenter à du fluage-diffusion, mécanisme qui résulte de phénomènes de diffusion dans un gradient de contraintes. Ce phénomène, qui se traduit par un allongement des grains dans un sens perpendiculaire à l'axe de compression, est visible dans une moindre mesure dans les matériaux à plus gros grains.

**Les perspectives à ce travail sont très nombreuses et nous essayons maintenant d'en résumer différents aspects.** Cette étude n'a malheureusement pas permis de statuer définitivement sur la nature du mécanisme de restauration qui est actif dans les conditions de déformation viscoplastique étudiées. L'élargissement substantiel de la gamme de températures et de vitesses de déformation permettrait de vérifier qu'il existe un mécanisme de déformation unique dans les conditions étudiées et très probablement de consolider les grandeurs physiques identifiées ici, telles que la dépendance de la vitesse de déformation stationnaire à la pression partielle d'oxygène et l'énergie d'activation. Paradoxalement, c'est en réalisant des essais à plus faibles vitesses, dans des conditions où seule une déformation par diffusion est active, que le mécanisme de restauration à plus forte vitesse pourra être identifié. En effet, une dépendance identique à la pression partielle d'oxygène ou à la température témoignerait d'une cinétique contrôlée par le même phénomène. Elle indiquerait aussi clairement les limites de l'approche qui consiste à négliger les interactions coulombiennes entre défauts ponctuels et à traiter le problème par de simples lois d'action de masse. Si cette démarche paraît simple, elle constitue cependant un défi important vis-à-vis de la fiabilité et de la stabilité de l'équipement de compression puisqu'elle nécessitera un fonctionnement très stable sur des périodes prolongées. La réalisation d'essais mécaniques in situ est difficile à imaginer au moins dans un avenir proche compte tenu de la fragilité du matériau. En revanche, des études de recuits en MET in situ devraient être associées à cette démarche d'identification des mécanismes de restauration, dans l'espoir de mettre en évidence de façon directe les phénomènes pressentis que sont la montée ou le glissement dévié de dislocations.

La question du lien entre déformation à l'échelle des grains et déformation macroscopique est essentielle et n'a été traitée que de manière très parcellaire. Dans l'étude de pastilles de dioxyde

d'uranium d'élanement important sollicitées en compression, nous avons constaté que la distribution de contraintes et de déformations suit assez fidèlement la fraction linéaire de sous-joints de grains telle qu'on peut la caractériser en EBSD. De la même façon, la fraction linéaire de sous-joints passe par un minimum lorsqu'on se déplace de la face en traction à la face en compression des éprouvettes sollicitées en flexion. Il est donc tentant d'essayer d'établir un lien quantitatif entre sous-structuration et déformation locale. Or plusieurs éléments indiquent que cet aspect de la microstructure n'est pas suffisant pour définir la déformation locale. La température semble effectivement jouer un rôle essentiel comme en témoigne un essai réalisé à 1300°C en compression (chapitre 5). Par ailleurs, les éprouvettes déformées en flexion 4-points que nous avons examinées présentent bien une déformation maximale de l'ordre de 5 % (chapitre 6) alors que le degré de sous-structuration caractérisé par EBSD reste minime. On peut donc légitimement se demander quels sont les mécanismes ayant lieu à l'échelle du grain qui permettent une déformation macroscopique du matériau : création et réarrangement de dislocations en réseau permettant une rotation des grains, transport de matière par diffusion, glissement... Un moyen d'aborder ce sujet pourrait être de généraliser des essais de flexion 4-points sur une microstructure à gros grains mieux maîtrisée, en pratiquant de manière systématique la méthode d'indentation préalable que nous avons expérimentée. Cette méthode pourrait par ailleurs être raffinée en identifiant des régions composées de plusieurs grains ou dizaines de grains dont on suivrait la déformation à l'issue des essais. Une modélisation numérique des expériences et une caractérisation microstructurale systématiques permettraient sans doute d'apporter des éléments de réponse. Par ailleurs, ce travail a révélé des conditions d'essais idéales en flexion 3-points pour étudier le couplage entre propagation d'une fissure dans un régime stable et phénomène d'endommagement viscoplastique. D'une manière générale, cette démarche serait l'occasion de générer des données expérimentales essentielles à l'élaboration de lois de comportement distinguant traction et compression.

Finalement, il semble intéressant de revenir sur la modélisation des essais et la loi de comportement que nous avons utilisées pour les simuler. Si lors d'un essai de compression simple la modélisation dans son ensemble permet de reproduire de manière satisfaisante les grandeurs thermomécaniques associées aux expériences, au moins deux aspects de cette modélisation semblent déficients. Ils concernent essentiellement les phénomènes transitoires, c'est-à-dire associés à un fluage primaire et donc à une évolution notable de la microstructure. On les observe bien sûr dans les premiers stades des essais de compression mais aussi lors des expériences au cours desquelles on impose deux vitesses de déformation successives. Celles-ci montrent en effet « une reprise du fluage primaire » aux changements de vitesses, qui, si on l'analyse à travers le modèle de Frederick-Armstrong, témoignerait d'une évolution importante de la contrainte interne que le modèle dans son état actuel n'est pas capable de simuler. Une meilleure prise en compte de la complexité de la microstructure permettrait peut-être de pallier ces défauts de la simulation mais nécessiterait du fait de l'implémentation d'une loi plus complexe, présentant plus de paramètres, la réalisation d'expériences spécifiques pour les identifier. Cette démarche permettrait sans doute également une meilleure description des premiers stades de fluage associés aux essais de flexion.

Concernant nos tentatives d'études des phénomènes de fluage sous irradiation, nous renvoyons le lecteur au chapitre 8 où nous proposons une synthèse des résultats et résumons les perspectives dans ce domaine. Rappelons simplement que les efforts réalisés dans le cadre de notre étude incitent à poursuivre la réflexion dans l'objectif de développer un outil qui constituerait un moyen précieux, permettant de comprendre et modéliser ce phénomène opérationnel de premier ordre.

## Références bibliographiques

---

- Afzal Jalali, S. I., Kumar, P., & Jayaram, V. (2020). High Throughput Determination of Creep Parameters Using Cantilever Bending: Part II - Primary and Steady-State through Uniaxial Equivalency. *Journal of Materials Research*, 35(4), 362-371. <https://doi.org/10.1557/jmr.2020.37>
- Alamo, A., Lefebvre, J. M., & Soullard, J. (1978). Deformation plastique du bioxyde d'uranium : Observation des sous-structures de dislocations. *Journal of Nuclear Materials*, 75(1), 145-153. [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(78\)90038-7](https://doi.org/10.1016/0022-3115(78)90038-7)
- Alcock, C. B., Hawkins, R. J., Hills, A. W. D., & McNamara, P. (1966). A study of cation diffusion in stoichiometric UO<sub>2</sub> using  $\alpha$ -ray spectrometry. In *Thermodynamics. Vol II. Proceedings of the Symposium on thermodynamics with emphasis on nuclear materials and atomics transport in solids*.
- Alexander, H., & Haasen, P. (1969). Dislocations and plastic flow in the diamond structure. *Solid State Physics*, 22, 27-158.
- Andersson, D. A., Garcia, P., Liu, X. Y., Pastore, G., Tonks, M., Millet, P., & Stanek, C. R. (2014). Atomistic modeling of intrinsic and radiation-enhanced fission gas (Xe) diffusion in UO<sub>2+x</sub>: Implications for nuclear fuel performance modeling. *Journal of Nuclear Materials*, 451(1-3), 225-242.
- Andrade, C. (1910). *On the viscous flow in metals and allied phenomena*. Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character, 84(567), 1-12
- Armstrong, P. J., & Frederick, C. O. (1966). *A mathematical representation of the multiaxial Bauschinger effect (Vol. 731)* (Central Electricity Generating Board and Berkeley Nuclear Laboratories).
- Armstrong, W. M., Causey, A. R., & Sturrock, W. R. (1966). Creep of single-crystal UO<sub>2</sub>. *Journal of Nuclear Materials*, 19, 42-49.
- Armstrong, W. M., Irvine, W. R., & Martinson, R. H. (1962). Creep deformation of stoichiometric uranium dioxide. *Journal of Nuclear Materials*, 7(2), 133-141. [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(62\)90158-7](https://doi.org/10.1016/0022-3115(62)90158-7)
- Arnaud, J. C. (1987). *Etude de l'endommagement par fluage des aciers inoxydables austénitiques entre 550°C et 650°C*. Thèse - Ecole Nationale Supérieure des Mines de St-Etienne.
- Ashbee, K. H., & Frank, F. C. (1970). Dislocations in the fluorite structure. *Philosophical Magazine*, 21(169), 211-213.
- Ashbee, K. H. G. (1964). Stacking faults in uranium dioxide. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, 280, 37-46.
- Ashby, M. F., & Verrall, R. A. (1973). Diffusion-accommodated flow and superplasticity. *Acta Metallurgica*, 21(2), 149-163.
- Ashby, MF. (1972). A first report on deformation-mechanism maps. *Acta Metallurgica*, 20(7), 887-897.
- Auskern, A. R., & Belle, J. (1961a). Oxygen ion self-diffusion in uranium dioxide. *Journal of Nuclear Materials*, 3(3), 267-276.
- Auskern, A. R., & Belle, J. (1961b). Uranium self-diffusion in UO<sub>2</sub>. *Journal of Nuclear Materials*, 3(3), 311-319.
- Baichi, M., Chatillon, C., Ducros, G., & Froment, K. (2006). Thermodynamics of the O-U system: III-Critical assessment of phase diagram data in the U-UO<sub>2+x</sub> composition range. *Journal of Nuclear Materials*, 349(1-2), 57-82.

- Bailey, R. W. (1935). The Utilization of Creep Test Data in Engineering Design. *Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers*, 131(1), 131-349. [https://doi.org/10.1243/PIME\\_PROC\\_1935\\_131\\_012\\_02](https://doi.org/10.1243/PIME_PROC_1935_131_012_02)
- Belle, J. (1969). Oxygen and uranium diffusion in uranium dioxide. *Journal of Nuclear Materials*, 30, 3-15.
- Belytschko, T., Liu, W. K., Moran, B., & Elkhodary, K. (2013). *Nonlinear finite elements for continua and structures*. John Wiley & sons.
- Ben Saada, M. (2017). *Etude du comportement viscoplastique du dioxyde d'uranium : Quantification par analyse EBSD et ECCI des effets liés aux conditions de sollicitation et à la microstructure initiale*. Thèse - Université de Lorraine.
- Ben Saada, M., Iltis, X., Gey, N., Beausir, B., Miard, A., Garcia, P., & Maloufi, N. (2019). Influence of strain conditions on the grain sub-structuration in crept uranium dioxide pellets. *Journal of Nuclear Materials*, 518, 265-273. <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2019.02.052>
- Ben Saada, M., Iltis, X., Gey, N., Miard, A., Garcia, P., & Maloufi, N. (2021). Influence of intra-granular void distribution on the grain sub-structure of UO<sub>2</sub> pellets after high temperature compression tests. *Journal of Nuclear Materials*, 545.
- Besson, J., Cailletaud, G., Chaboche, J.-L., & Forest, S. (2010). *Non-Linear Mechanics of Materials* (Vol. 167). Springer Netherlands. <https://doi.org/10.1007/978-90-481-3356-7>
- Bird, J. E., Mukherjee, A. K., & Dorn, J. E. (1969). *Correlations between high-temperature creep behavior and structure*. Lawrence Radiation Laboratory, University of California, Berkeley. 189p.
- Bohaby, P. E., Asamoto, R. R., & Conti, A. E. (1969). *Compressive creep characteristics of stoichiometric uranium dioxide*. U.S. Atomic Energy Commission.
- Bretheau, T., Castaing, J., Rabier, J., & Veyssi re, P. (1979). Mouvement des dislocations et plasticit    haute temp rature des oxydes binaires et ternaires. *Advances in Physics*, 28(6), 835-1014. <https://doi.org/10.1080/00018737900101465>
- Bretheau, T., & Dolin, C. (1978). Heterogeneous deformation of Cu<sub>2</sub>O single crystals during high temperature compression creep. *Journal of Materials Science*, 13(3), 587-593.
- Bretheau, T., Pellissier, B., & Sieber, B. (1981). Plastic properties of Cu<sub>2</sub>O, mechanical tests and transmission electromicroscopy—II. High temperature. *Acta Metallurgica*, 29, 1617-1629.
- Brouwer, G. (1954). A general asymptotic solution of reaction equations common in solid-state chemistry. *Philips Res. Rep*, 9(5), 366-376.
- Burton, B. (1977). *Diffusional creep of polycrystalline materials*. 119p.
- Burton, B., & Reynolds, G. L. (1973). The influence of deviations from stoichiometric composition on the diffusional creep of uranium dioxide. *Acta Metallurgica*, 21(12), 1641-1647. [https://doi.org/10.1016/0001-6160\(73\)90107-7](https://doi.org/10.1016/0001-6160(73)90107-7)
- Burton, B., Reynolds, G. L., & Barnes, J. P. (1973). The influence of grain size on the creep of uranium dioxide. *Journal of Materials Science*, 8(12), 1690-1694.
- Byron, J. F. (1968). The yield and flow of single crystals of uranium dioxide. *Journal of Nuclear Materials*, 28(1), 110-114.
- Cabrera-Cano, J., & Castaing, J. (1980). Point defects and high temperature creep of NiO single crystals. *Journal de Physique Lettres*, 41(5), 119-122.
- Caillard, D., & Martin, J. (1982a). Microstructure of aluminium during creep at intermediate temperature. I- dislocation networks after creep. *Acta Metallurgica*, 30(2), 437-445.



- Caillard, D., & Martin, J. (1982b). Microstructure of aluminium during creep at intermediate temperature. II- In situ study of subboundary properties.» *Acta Metallurgica. Acta Metallurgica*, 30(4), 791-798.
- Cannon, W. R., & Langdon, T. G. (1983). Creep of ceramics—Part 1 Mechanical characteristics. *Journal of Materials Science*, 18, 1-50.
- Cannon, W. R., & Langdon, T. G. (1988). Creep of ceramics—Part 2 An examination of flow mechanisms. *Journal of Materials Science*, 23, 1-20.
- Chen, C.-F., & Chuang, T.-J. (1990). Improved Analysis for Flexural Creep with Applications to Sialon Ceramics. *Journal of the American Ceramic Society*, 73(8).
- Chen, J., Jacques, S., Barthe, M. F., Zhang, C., & Desgardin, P. (2020). In-beam creep of SiCf/siC minicomposites under uniaxial tensile loading. *Journal of Nuclear Materials*, 533.
- Chin, B. A., Pound, G. M., & Nix, W. D. (1977). The role of diffusion in determining the controlling creep mechanisms in Al-Zn solid-solutions : Part 1. *Metallurgical Transactions A*, 8, 1517-1522.
- Chokshi, A. H. (2002). Diffusion creep in oxide ceramics. *Journal of the European Ceramic Society*, 22(14-15), 2469-2478.
- Chuang, T.-J. (1986). Estimation of power-law creep parameters from bend test data. *Journal of Materials Science*, 21(1), 165-175.
- Chung, T. E., & Davies, T. J. (1979a). The superplastic creep of uranium dioxide. *Journal of Nuclear Materials*, 79(1), 143-153. [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(79\)90441-0](https://doi.org/10.1016/0022-3115(79)90441-0)
- Chung, T. E., & Davies, T. J. (1979b). The low-stress creep of fine-grain uranium dioxide. *Acta Metallurgica*, 27(4), 627-635. [https://doi.org/10.1016/0001-6160\(79\)90014-2](https://doi.org/10.1016/0001-6160(79)90014-2)
- Clausen, K., Hayes, W., Macdonald, J. E., Osborn, R., & Hutchings, M. T. (1984). Observation of oxygen Frenkel disorder in uranium dioxide above 2000K by use of neutron-scattering techniques. *Physical review letters*, 52(4), 1238.
- Clough, D. J. (1977). Creep properties of oxide and carbide fuels under irradiation. *Nuclear Materials*, 24-36.
- Coble, R. L. (1963). A model for boundary diffusion controlled creep in polycrystalline materials. *Journal of Applied Physics*, 34(6), 1679-1682.
- Colin, C. (2003). *Etude du fluage du dioxyde d'uranium : Caractérisation par essais de flexion et modélisation mécanique*. Thèse - Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris.
- Colle, J. Y., Hiernaut, J. P., Wiss, T., Beneš, O., Thiele, H., & Papaioannou, D. (2013). Fission product release and microstructure changes of irradiated MOX fuel et high temperatures. *Journal of Nuclear Materials*, 442(1-3), 330-340.
- Cologna, M., Tyrpekl, V., Ernstberger, M., Stohr, S., & Somers, J. (2016). Sub-micrometer grained UO<sub>2</sub> pellets consolidated from sol gel beads using spark plasma sintering (SPS). *Ceramics International*, 42(6), 6619-6623. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2015.12.172>
- Combette, P., Milet, C., Tanis, G., Crouzet, J., & Masson, M. (1977). In-pile creep study on mixed oxide (U, Pu)O<sub>2</sub>. *Nuclear Materials*, 37-47.
- Contamin, P., Bacmann, J. J., & Marin, J. F. (1972). Autodiffusion de l'oxygène dans le dioxyde d'uranium surstoéchiométrique. *Journal of Nuclear Materials*, 42(1), 54-64.
- Cooper, R. I., & Willis, B. T. M. (2004). Refinement of the structure of  $\beta$ -U<sub>4</sub>O<sub>9</sub>. *Acta Crystallographica Section A: Foundations of Crystallography*, 60(4), 322-325.

- Cormier, J., Jouiad, M., F, V., Hamon, P., & Milhet, X. (2010). Very high temperature creep behavior of a single crystal Ni-based superalloy under complex thermal cycling conditions. *Philosophical Magazine Letters*, *90*, 611-620.
- Crocombette, J.-P. (2012). First-principles study with charge effects of the incorporation of iodine in UO<sub>2</sub>. *Journal of Nuclear Materials*, *429*(1-3), 70-77. <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2012.05.037>
- De Bilbao, E., Blond, E., Michel, C., Cutard, T., Schmitt, N., & Poirier, J. (2010). *Identification du module d'Young de matériaux réfractaires à base SiC*. Matériaux 2010, Nantes.
- Depriester, D., & Kubler, R. (2019). Resolution of the Wicksell's equation by Minimum Distance Estimation. *Image Analysis and Stereology*, *38*, 213-226.
- Dherbey, F. (2000). *Déformation à chaud du dioxyde d'uranium polycristallin : Des mécanismes microscopiques au comportement macroscopique*. Thèse - Institut National Polytechnique de Grenoble.
- Dherbey, F., Louchet, F., Mocellin, A., & Leclercq, S. (2002). Elevated temperature creep of polycrystalline uranium dioxide : From microscopic mechanisms to macroscopic behaviour. *Acta Materialia*, *50*(6), 1495-1505. [https://doi.org/10.1016/S1359-6454\(02\)00007-1](https://doi.org/10.1016/S1359-6454(02)00007-1)
- Dominguez-Rodriguez, A., Sanchez, M., Marquez, R., Castaing, J., Monty, C., & Philibert, J. (1982). Point defects and high-temperature creep of non-stoichiometric NaCl-type oxide single crystals. II. CoO. *Philosophical Magazine A*, 411-418.
- Dorado, B., Garcia, P., Carlot, G., Davoisne, C., Fraczkiewicz, M., Pasquet, B., Freyss, M., Valot, C., Baldinozzi, G., Siméone, D., & Bertolus, M. (2011). First-principles calculation and experimental study of oxygen diffusion in uranium dioxide. *Physical Review B*, *83*(3), 035126. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.83.035126>
- Duclos, R. (1981). High temperature deformation of MgO<sub>1.8</sub>Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> spinel single crystals of <111> axial orientation. *Le journal de Physique Colloques*, *42*, 3-49.
- Duclos, R., Doukhan, N., & Escaig, B. (1978). High temperature creep behaviour of nearly stoichiometric alumina spinel. *Journal of Materials Science*, *13*, 1740-1748.
- Edington, J. W., Melton, K. N., & Cutler, C. (1976). Superplasticity. *Progress in Materials Science*, *21*(2), 61-170.
- Evans, A. G., & Davidge, R. W. (1969a). The strength and fracture of stoichiometric polycrystalline UO<sub>2</sub>. *Journal of Nuclear Materials*, *33*(3), 249-260.
- Eyring, H. (1936). Viscosity, plasticity, and diffusion as examples of absolute reaction rates. *The Journal of Chemical Physics*, *4*, 283-291.
- Fink, J. K. (2000). Thermophysical properties of uranium dioxide. *Journal of Nuclear Materials*, *279*(1), 1-18.
- Firestone, R. F., & Heuer, A. H. (1976). Creep deformation of 0 Sapphire. *Journal of the American Ceramic Society*, *59*(1-2), 24-29.
- Forest, S., Amestoy, M., Damamme, G., Kruch, S., Maurel, V., & Mazière, M. (2020). *Mécanique des milieux continus*. Ecole des Mines de Paris.
- Freshley, M. D., Brite, D. W., Daniel, J. L., & Hart, P. E. (1976). Irradiation-induced densification of UO<sub>2</sub> pellet fuel. *Journal of Nuclear Materials*, *62*(2-3), 138-166.
- Friedel, J. (1977). Sur le fluage par déviation. *Revue de Physique Appliquée*, *12*(10), 1649-1654.

- Garcia, P., Fraczkiewicz, M., Davoisne, C., Carlot, G., Pasquet, B., Baldinozzi, G., & Petot, C. (2010). Oxygen diffusion in relation to p-type doping in uranium dioxide. *Journal of Nuclear Materials*, 400(2), 112-118.
- Garcia, P., Miard, A., Helfer, T., Parise, J.-B., Iltis, X., & Antou, G. (2021). The effect of oxygen partial pressure on dislocation creep in polycrystalline uranium dioxide. *Journal of European Ceramic Society*, 41(3), 2124-2133.
- Garcia, P., Pizzi, E., Dorado, B., Andersson, D., Crocombette, J.-P., Martial, C., Baldinozzi, G., Siméone, D., Maillard, S., & Martin, G. (2017). A defect model for  $\text{UO}_{2+x}$  based on electrical conductivity and deviation from stoichiometry measurements. *Journal of Nuclear Materials*, 494, 461-472. <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2017.03.033>
- Garcia, P., Struzik, C., & Agard-Moyne, M. (2000). *The effect of fission gas swelling on cladding strain during power ramp tests* (IAEA-TECDOC-1179).
- Garrido, F., Ibberson, R. M., Nowicki, L., & Willis, B. T. M. (2003). Cuboctahedral oxygen clusters in  $\text{U}_3\text{O}_7$ . *Journal of Nuclear Materials*, 322(1), 87-89.
- Gerdanian, P., & Dodé, M. (1965). Etude thermodynamique des oxydes  $\text{UO}_{2+x}$ . *Journal de Chimie Physique*, 62, 171-184.
- Grønvold, F. (1955). High-temperature X-ray study of Uranium Oxides in the  $\text{UO}_2$ - $\text{U}_3\text{O}_8$  Region. *Inorganic and Nuclear Chemistry*, 1, 357-370.
- Guéneau, C., Baichi, M., Labroche, D. A. A., Chatillon, C., & Sundman, B. (2002). Thermodynamic assessment of the uranium-oxygen system. *Journal of Nuclear Materials*, 304(2-3), 161-175.
- Guérin, Y. (1973). *Etude par compression à hautes températures de la déformation plastique du bioxyde et du monocarbure d'uranium*. Thèse - Université Claude Bernard - Lyon.
- Han, X., & Heuser, B. J. (2015). Radiation enhanced diffusion of Nd in  $\text{UO}_2$ . *Journal of Nuclear Materials*, 466, 588-596.
- Harada, Y. (1997).  $\text{UO}_2$  sintering in controlled oxygen atmospheres of three-stage process. *Journal of Nuclear Materials*, 245, 217-223.
- Hawkins, R. J., & Alcock, C. (1966). A study of cation diffusion in stoichiometric  $\text{UO}_2$  using alpha-ray spectrometry. In *Thermodynamics. Vol. II. Proceedings of the Symposium on Thermodynamics with Emphasis on Nuclear Materials and Atomic Transport in Solids*.
- Helfer, T. (2015). Extension of monodimensional fuel performance codes to finite strain analysis using a lagrangian logarithmic strain framework. *Nuclear Engineering and Design*, 288, 75-81.
- Helfer, T., & Hure, J. (2017). *How to implement an isotropic viscoplastic behaviour combining isotropic hardening and multiple kinematic hardenings following an Armstrong-Frederick evolution of the back stress*. TFEI/Mfront. <http://tfel.sourceforge.net/isotropicplasticityarmstrongfrederickkinematchardening.html>
- Helfer, T., Michel, B., Jean-Michel, P., Salvo, M., & Sercombe, J. (2015). Introducing the open-source mfront code generator : Application to mechanical behaviours and material knowledge management within the PLEIADES fuel element modelling platform. *Computers & Mathematics with Applications*, 70(5), 994-1023.
- Henry, R., Zacharie-Aubrun, I., Blay, T., Chalal, S., Gatt, J. M., Langlois, C., & Meille, S. (2020). Fracture properties of an irradiated PWR  $\text{UO}_2$  fuel evaluated by micro-cantilever bending tests. *Journal of Nuclear Materials*, 536.
- Herring, C. (1950). Diffusional Viscosity of a Polycrystalline Solid. *Journal of Applied Physics*, 21(5), 437-445. <https://doi.org/10.1063/1.1699681>

- Heuer, A. H., Tighe, N. J., & Cannon, R. M. (1980). Plastic deformation of Fine-Grained Alumina ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ): II. Basal slip and nonaccommodated Grain-Boundary Sliding. *Journal of the American Ceramic Society*, 63, 53-58.
- Höh, A., & Matzke, H. (1973). Fission-enhances self-diffusion of uranium in  $\text{UO}_2$  and UC. *Journal of Nuclear Materials*, 48(2), 157-164.
- Hough, A. (1988). Compressive creep in nuclear oxides. (No. AERE-R-- 13232). UKAEA Harwell Lab. (UK). chemistry Div.
- Jalali, S. I. A., Kumar, P., & Jayaram, V. (2019). Creep of Metallic Materials in Bending. *Journal of the Minerals, Metals & Materials Society*, 71(10), 3565-3583. <https://doi.org/10.1007/s11837-019-03707-1>
- Jalali, S. I. A., Kumar, P., & Jayaram, V. (2020). Microstructural equivalence between bending and uniaxial creep. *Scripta Materialia*, 186, 99-103. <https://doi.org/10.1016/j.scriptamat.2020.04.033>
- Jung, P., Schwarz, A., & Sahu, H. K. (1985). An apparatus for applying tensile, compressive and cyclic stresses on foil specimens during light ion irradiation. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 234(2), 331-334.
- Keller, R. J., Mitchell, T. E., & Heuer, A. (1988a). Plastic deformation in nonstoichiometric  $\text{UO}_{2+x}$  single crystals- II. Deformation at high temperatures. *Acta Metallurgica*.
- Keller, R. J., Mitchell, T. E., & Heuer, A. H. (1988b). Plastic deformation in nonstoichiometric  $\text{UO}_{2+x}$  single crystals. -I. Deformation at low temperatures. *Acta Metallurgica*, 36(4), 1061-1071.
- Knorr, D. B., Cannon, R. M., & Coble, R. L. (1989). An analysis of diffusion and diffusional creep in stoichiometric and hyperstoichiometric uranium dioxide. *Acta Metallurgica*, 37(8A), 2103-2123.
- Koch, F., & Cohen, J. B. (1969). The defect structure of  $\text{Fe}_{1-x}\text{O}$ . *Acta Crystallographica Section B: Structural Crystallography and Crystal Chemistry*, 25, 275-287.
- Kröger, F. A. (1966). Search for a Defect Model for  $\text{UO}_2$ . *Zeitschrift für Physikalische Chemie*, 49(3-5), 178-197.
- Kröger, F. A., & Vink, H. J. (1956). Relations between the concentrations of imperfections in crystalline solids. *In Solid State Physics*, 3, 307-435.
- Kubaschewski, O., Evans, A. L., & Alcock, C. B. (1967). *Metallurgical thermochemistry*.
- Langdon, T. G., & Pask, J. A. (1970). Mechanical Behavior of Single-Crystal and Polycrystalline MgO. In *Refractory Materials* (Vol. 5, p. 53-127).
- Lefebvre, J. M. (1976). *Contribution à l'étude de la déformation plastique d'une céramique de structure fluorite : Le bioxyde d'uranium*. Thèse - Université de Poitiers.
- Lemaitre, J., & Chaboche, J. L. (1988). *Mécanique des matériaux solides*. Edition Dunod.
- Li, C.-Y., Blakely, J. M., & Feingold, A. H. (1966). Mass transport analysis for ostwald ripening and related phenomena. *Acta Metallurgica*, 14, 1397-1402.
- Lindroos, V. K., & Miekko-Oja, H. M. (1968). Knitting of dislocation networks by means of stress-induced climb in an aluminium-magnesium alloy. *The Philosophical Magazine: A Journal of Theoretical Experimental and Applied Physics*, 119-133.
- Ma, Y. (2017). *A study of point defects in  $\text{UO}_{2+x}$  and their impact upon fuel properties*. Thèse - Université d'Aix-Marseille.

- Ma, Y., Garcia, P., Lechelle, J., Miard, A., Desgranges, L., Baldinozzi, G., Simeone, D., & Fischer, H. (2018). Characterization of Oxygen Defect Clusters in  $UO_{2+x}$  using Neutron Scattering and PDF Analysis. *Inorganic Chemistry*, 57, 7064-7076.
- Mansour, H., Crimp, M. A., Gey, N., Iltis, X., & Maloufi, N. (2019). Dislocation analysis of a complex sub-grain boundary in  $UO_2$  ceramic using accurate electron channeling contrast imaging in a scanning electron microscope. *Ceramics International*, 45(15), 18666-18671.
- Marin, J. F., & Contamin, P. (1969). Uranium and oxygen self-diffusion in  $UO_2$ . *Journal of Nuclear Materials*, 30(1-2), 16-25. [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(69\)90164-0](https://doi.org/10.1016/0022-3115(69)90164-0)
- Markin, T. L., & Bones, R. J. (1962). *The determination of changes in free energy for uranium oxides using a high temperature galvanic cell. Part I* (AERE-R-4042; United Kingdom Atomic Energy Authority).
- Markin, T. L., Wheeler, V. J., & Bones, R. J. (1968). High temperature thermodynamic data for  $UO_{2+x}$ . *Journal of Inorganic Nuclear Chemistry*, 30, 807-817.
- Matzke, H. (1983). Radiation enhances diffusion in  $UO_2$  and  $(U, Pu)O_2$ . *Radiation effects*, 75(1), 317-325.
- Matzke, H. (1987). Atomic transport properties in  $UO_2$  and mixed oxides  $(U,Pu)O_2$ . *Journal of the Chemical Society*, 83, 1121-1164.
- Matzke, H. (1969). On uranium self-diffusion in  $UO_2$  and  $UO_{2+x}$ . *Journal of Nuclear Materials*, 30, 26-35.
- Matzke, H. (1992). *Diffusion processes in nuclear fuels*. Elsevier Science Publishers.
- McCullough, G. H. (1933). *Trans. A.S.M.E.*, 55(55).
- Michel, B., Nonon, C., Sercombe, J., Michel, F., & Marelle, V. (2013). Simulation of pellet-cladding interaction with the pleiades fuel performance software environment. *Nuclear Technology*, 182(2), 124-137.
- Milet, C., & Piconi, C. (1983). Fluage en pile de l'oxyde mixte  $UO_2$ - $PuO_2$ . *Journal of Nuclear Materials*, 1116(2), 195-199.
- Monerie, Y., & Gatt, J.-M. (2006). Overall viscoplastic behavior of non-irradiated porous nuclear ceramics. *Mechanics of Materials*, 38(7), 608-619.
- Mundy, J. N., Rothman, S. J., Lam, N. Q., Nowicki, L. J., & Hoff, H. A. (1978). Self-diffusion in tungsten. *Journal of Nuclear Materials*, 69-70, 526-528.
- Nabarro, F. R. N. (1948). Report on the strength of solids. In *The physical Society*.
- Nadeau, J. S. (1969). Dependence of Flow Stress on Nonstoichiometry in Oxygen-Rich Uranium Dioxide at High Temperatures. *Journal of the American Ceramic Society*, 52(1), 1-7. <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1968.tb11863.x-i1>
- Ndiaye, A. (2012). *Microstructures d' $UO_{2+x}$  à propriétés pilotées : Compréhension des mécanismes d'élaboration et du comportement mécanique en température*. Thèse - Université de Grenoble.
- Norton, F. H. (1929). *The creep of steel at high temperatures* (McGraw-Hill Book Company, Inc.).
- Onofri, C. (2016). *Etude des défauts étendus induits par irradiation dans  $UO_2$  par microscopie électronique en transmission*. Thèse - Université de Toulouse 3 - Paul Sabatier.
- Papin, J., Cazalis, B., Frizonnet, J. M., Desquines, J., Lemoine, F., Georgenthum, V., Lamare, F., & Petit, M. (2007). Summary and Interpretation of the CABRI REP-Na Program. *Nuclear Technology*, 157(3), 230-250. <https://doi.org/10.13182/NT07-A3815>
- Pauling, L. (1960). The nature of chemical bond. *Ithaca NY : Cornell university press*, 3175-3187.

- Perinet, F., Barbezat, S., & Monty, C. (1980). Transport in oxides. New investigation of oxygen self-diffusion in Cu<sub>2</sub>O. *Le journal de Physique Colloques*, 41, 6-315.
- Perrin, J. S. (1971). Irradiation-induced creep of uranium dioxide. *Journal of Nuclear Materials*, 39(2), 175-182.
- Perron, P. O. (1968). *Thermodynamics of non-stoichiometric uranium dioxide*. Atomic Energy of Canada.
- Philibert, J. (1984). Creep and diffusion. *Solid State Ionics*, 12, 321-336.
- Philibert, J. M. (2012). *Atom movements—Diffusion and mass transports in solids* (EDP Sciences).
- Poirier, J. P. (1976). On the symmetrical role of cross-slip of screw dislocations and climb of edge dislocations as recovery processes controlling high-temperature creep. *Revue de Physique Appliquée*, 11(6), 731-738.
- Poirier, J. P. (1978). Is power-law creep diffusion-controlled? *Acta Metallurgica*, 26(4), 629-637. [https://doi.org/10.1016/0001-6160\(78\)90115-3](https://doi.org/10.1016/0001-6160(78)90115-3)
- Poirier, J. P., Peyronneau, J., Gesland, J. Y., & Brebec, G. (1983). Viscosity and conductivity of the lower mantle ; an experimental study on a MgSiO<sub>3</sub> perovskite analogue : KZnF<sub>3</sub>. *Phys. Earth Planet Int*, 32, 273-287.
- Poirier, J.-P. (1985). *Creep of crystals*. Cambridge University Press.
- Popov, E. P. (1949). Bending of Beams with Creep. *Journal of Applied Physics*, 20(3), 251-256. <https://doi.org/10.1063/1.1698351>
- Raj, R., & Ashby, M. (1971). On grain boundary sliding and diffusional creep. *Metallurgical Transactions*.
- Rapperport, E. J., & Huntress, A. (1960). *Deformation modes of single crystal uranium dioxide from 700°C to 1900°C* (Office of Technical Information, Vol. 1242).
- Reppich, et W. Hüther., B. (1974). Formation and structure of dislocation networks developed during high-temperature deformation of MgO. *Philosophical Magazine*.
- Reynolds, G. L., & Burton, B. (1979). Grain-boundary diffusion in uranium dioxide : The correlation between sintering and creep and a reinterpretation of creep mechanism. *Journal of Nuclear Materials*, 82(1), 22-25. [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(79\)90035-7](https://doi.org/10.1016/0022-3115(79)90035-7)
- Ruello, P., Chrilesan, G., & Petot-Ervas, G. (2004). Chemical diffusion in uranium dioxide—Influence of defect interactions. *Journal of Nuclear Materials*.
- Sabioni, A. C. S., Ferraz, W. B., & Millot, F. (2000). Effect of grain-boundaries on uranium and oxygen diffusion in polycrystalline UO<sub>2</sub>. *Journal of Nuclear Materials*, 278(2-3), 364-369.
- Sadananda, K., & Shahinian, P. (1981). Creep crack growth behaviour and theoretical modelling. *Metal Science*, 15(10), 425-432.
- Salvo, M. (2014). *Etude expérimentale et modélisation du comportement mécanique du combustible UO<sub>2</sub> en compression à haute température et forte vitesse de sollicitation*. Thèse - Université Aix-Marseille.
- Salvo, M., Sercombe, J., Helfer, T., Sornay, P., & Desoyer, T. (2015). Experimental characterization and modelling of UO<sub>2</sub> grain boundary cracking at high temperatures and high strain rates. *Journal of Nuclear Materials*, 460, 184-199.
- Salvo, M., Sercombe, J., Ménard, J.-C., Julien, J., Helfer, T., & Desoyer, T. (2015). Experimental characterization and modelling of UO<sub>2</sub> behavior at high temperatures and high strain rates. *Journal of Nuclear Materials*, 456, 54-67.

- Sauter, F. (2001). *Comportement viscoplastique du dioxyde d'uranium à haute température*. Thèse - Institut National Polytechnique de Lorraine.
- Sawbridge, P. T., & Sykes, E. C. (1970). Electrostatic charges on dislocations in uranium dioxide. *Journal of Nuclear Materials*, 35, 122-125.
- Sawbridge, P. T., & Sykes, E. C. (1971). Dislocation glide in UO<sub>2</sub> single crystals at 1600°K. *Philosophical Magazine*, 24, 33-53.
- Schaaf, B., & Laan, J. (2007). *Irradiation devices for fission and fusion materials testing in the HFR, Petten* (IAEA-TECDOC-1545).
- Scott, R., Hall, A. R., & Williams, J. (1959). The plastic deformation of uranium oxides above 800°C. *Journal of Nuclear Materials*, 1(1), 39-48. [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(59\)90009-1](https://doi.org/10.1016/0022-3115(59)90009-1)
- Seltzer, M. S., Clauer, A. H., & Wilcox, B. A. (1972). The influence of stoichiometry on compression creep of uranium dioxide single crystals. *Journal of Nuclear Materials*, 44(1), 43-56. [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(72\)90127-4](https://doi.org/10.1016/0022-3115(72)90127-4)
- Seltzer, M. S., Perrin, J. S., & Clauer, A. (1971). *A review of creep behavior of ceramic*. Reactor Technology.
- Sercombe, J., Fédérici, E., Le Saux, M., Michel, B., & Poussard, C. (2010). *1D and 3D modeling of PCMI during a RIA with ALCYONE v1.1*. Top Fuel.
- Sizmann, R. (1978). The effect of radiation upon diffusion in metals. *Journal of Nuclear Materials*, 69-70, 386-412.
- Solomon, A. A. (1973). Radiation-induced creep of UO<sub>2</sub>. *Journal of the American Ceramic Society*, 56, 164-171.
- Sonoda, T., Kinoshita, M., Ishikawa, N., Sataka, M., Iwase, A., & Yasunaga, K. (2010). Clarification of high density electronic excitation effects on the microstructural evolution in UO<sub>2</sub>. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 268(19), 3277-3281.
- Soulacroix, J. (2014). *Approche micromécanique du comportement du combustible dioxyde d'uranium*. Ecole Nationale Supérieure d'Arts et Métiers.
- Soulié, A., Crocombette, J. P., Kraych, A., Garrido, F., Sattonnay, G., & Clouet, E. (2018). Atomistically-informed thermal glide model for edge dislocations in uranium dioxide. *Acta Materialia*, 150, 248-261.
- Soulié, Aurélien. (2018). *Etude à l'échelle atomique de la plasticité et de la sur-stoechiométrie dans le dioxyde d'uranium*. Thèse - Université de Paris-Saclay.
- Soullard, J. (1976). *Contribution à l'étude des défauts de structure dans le bioxyde d'uranium*. Thèse - Université de Poitiers.
- Stiglich, J. J., Whitmore, D. H., & Cohen, J. B. (1973). Defect structure of NiO-CoO solid solutions. *Journal of the American Ceramic Society*, 56, 211-213.
- Stoller, R. E., Toloczko, M. B., Was, G. S., Certain, A. G., Dwaraknath, S., & Garner, F. A. (2013). On the use of SRIM for computing radiation damage exposure. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 310, 75-80.
- Tapsell, H. J., & Johnson, A. E. (1940). Properties of Steels as a Basis for Design for High-Temperature Service. Part I : Carbon Steels. *Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers*, 144(1), 97-106.
- Timoshenko, S. (1930). *Strength of Materials* (D. Van Nostrand).

- Timoshenko, S. (1970). *Theory of Elasticity 3rd edition* (McGraw and Hill).
- Veyssière, P. (1977). *Dislocations et fautes d'empilement dans la structure spinelle. Application à l'étude de la déformation et des transformations de phase d'une variété monocristalline de ferrite de nickel : NiO.66Fe2.34O4*.
- Veyssière, P., & Rabier, J. (1978). Dislocations dans les oxydes métalliques. *Journal de Physique*, 2-86.
- Veyssière, P., Rabier, J., & Garem, H. (1978). Influence of temperature on dissociation of dislocations and plastic deformation in spinel oxides. *Philosophical Magazine*, 38, 61-79.
- Vivant-Duguay, C. (1998). *Contribution à l'étude du fluage du dioxyde d'uranium : Rôle des activateurs de croissance cristalline*. Thèse - Université de Lyon.
- Weertman, J. (1955). Theory of steady-state creep based on dislocation climb. *Journal of Applied Physics*, 1213-1217.
- Weertman, J. (1968). Dislocation climb theory of steady-state creep. *Trans. A.S.M.*, 61, 681-694.
- Weertman, J. (1970). The creep strength of earth's mantle. *Rev. Geophys. Space Phys*, 8, 145-168.
- Weertman, J. (1972). High temperature creep produced by dislocation motion. *Dorn Memorial Symposium*.
- Willis, B. T. M. (1978). The defect structure of hyper-stoichiometric uranium dioxide. *Acta Crystallographica Section A*, 34(1), 88-90. <https://doi.org/10.1107/S0567739478000157>
- Wolfe, R. A., & Kaufman, S. F. (1967). *Mechanical properties of oxide fuels* (WAPD-TM--587, 4511674; p. WAPD-TM--587, 4511674). <https://doi.org/10.2172/4511674>
- Yatomi, M., O'Dowd, N. P., Nikbin, K. M., & Webster, G. A. (2006). Theoretical and numerical modelling of creep crack growth in a carbon-manganese steel. *Engineering fracture mechanics*, 73(9), 1158-1175.
- Yust, C. S., & McHargue, C. J. (1969). Dislocation substructures in deformed uranium dioxide single crystals. *Journal of Nuclear Materials*, 31, 121-137.
- Yust, C. S., & McHargue, C. J. (1971). Deformation of hyperstoichiometric UO<sub>2</sub> single crystals. *Journal of the American Ceramic Society*, 54(12), 628-635.
- Yust, C. S., & McHargue, C. J. (1973). Model for the deformation of hyperstoichiometric UO<sub>2</sub>. *Journal of the American Ceramic Society*, 56(3), 161-164.
- Zacharie-Aubrun, I., Henry, R., Blay, T., Brunaud, L., Gatt, J. M., Noirot, J., & Meille, S. (2021). Effects of irradiation on mechanical properties of nuclear UO<sub>2</sub> fuels evaluated by Vickers indentation at room temperature. *Journal of Nuclear Materials*, 547.
- Zimmermann, H. (1978). Investigations on swelling and fission gas behaviour in uranium dioxide. *Journal of Nuclear Materials*, 75(1), 154-161.



# Annexe 1 - Tableau récapitulatif des études du comportement en fluage du dioxyde d'uranium - liste non exhaustive.

C : Compression ; F : Flexion ; X : données non renseignées ; Séparateur / : résultats pour fluage-diffusion et fluage-dislocation

Etude	Température (°C)	Taille de grains (µm)	Densité (%)	Sollicitation (MPa)	Type	Atmosph.	Influence contrainte n	Influence taille de grains : p	Energie d'activation (kJ.mol <sup>-1</sup> )
<b>Scott <i>et al.</i> (1959)</b>	860 à 1650	2 à 10	95	5,5 à 45	F	H <sub>2</sub> , Ar	X	X	270 à 400
<b>Armstrong <i>et al.</i> (1962)</b>	1250	6	94,5	25 à 55	F	H <sub>2</sub>	1 à 4	2	380
<b>Armstrong et Irvine (1963)</b>	1400	13 à 40	96	7 à 50	F	Ar / O <sub>2</sub>	1	0	235 à 265
<b>Wolfe et Kaufman (1967)</b>	1600 à 2000	18 à 55	97,5 à 98,5	7 à 110	C	X	1 / 4,8	X	300
<b>Poteat et Yust (1968)</b>	1430 à 1666	10	97,5	14 à 76	C	X	1 / 5	X	X
<b>Bohaboy (1969)</b>	1475 à 1625	22 à 25	88 à 95	7 à 105	C	H <sub>2</sub>	1 / 4,5	2	375 / 555
<b>Nadeau (1969)</b>	1100 à 1600	Monocristaux et 4	95	X	C	CO/CO <sub>2</sub>	X	X	X
<b>Seltzer <i>et al.</i> (1970)</b>	1430 à 2000	5 à 55	95 à 99	7 à 70	C	X	1 / 4,5	X	X
<b>Canon <i>et al.</i> (1971)</b>	500 à 1800	8 à 31	97	20 à 140	C	Vide	4,2	X	345 à 365
<b>Roberts (1971)</b>	1320 à 1800	9	X	20 à 200	F	Vide	X	X	X
<b>Langdon (1971)</b>	1430 à 1660	10	97,5	14 à 70	C	X	1 / 4,5	X	X

<b>Sawbridge et Sykes (1971)</b>	1327	Monocristaux	X	X	C	Ar	X	X	X
<b>Seltzer <i>et al.</i> (1972)</b>	1300	27	97,8	1 à 50	C	CO/CO <sub>2</sub>	1 à 7	X	220 à 490
<b>Seltzer <i>et al.</i> (1972)</b>	1100 à 1300	Monocristaux	X	38 à 124	C	H <sub>2</sub> , CO/CO <sub>2</sub>	1,7 / 17	-	230 / 560
<b>Burton et Reynolds (1973a)</b>	1150 à 1450	5 à 7	X	8 à 150	C	H <sub>2</sub> , Ar	1 / 5	X	X
<b>Burton et Reynolds (1973b)</b>	1250 à 1400	7	97	4 à 100	C	CO/CO <sub>2</sub>	1 / 5	X	225 / 380
<b>Lefebvre (1976)</b>	700 à 1400	Monocristaux	X	X	C	H <sub>2</sub> , Ar	6,2 à 8,5	-	X
<b>Chung et Davies (1979)</b>	1377 à 1477	2 à 10	95 à 97	4 à 50	C	H <sub>2</sub> /H <sub>2</sub> O	1	2 à 3	250 à 350
<b>Sawbridge <i>et al.</i> (1970)</b>	1150 à 1300	12 à 43	X	6 à 80	C	Ar	4,4	X	440 à 755
<b>Vivant – Duguay (1998)</b>	1300 à 1630	4,5 à 26	98	20 à 100	C	H <sub>2</sub> , Ar	2 à 3,2 / 5,1 à 9,8	2 à 3 / -2	361 à 384 / 474 à 530
<b>Dherbey (2000)</b>	1100 à 1575	9 à 36	98,3 à 99,2	30 à 70	C	H <sub>2</sub> , Ar	2,6 / 6,2	x	359 à 524
<b>Colin (2003)</b>	1350 à 1500	14	94,7	20 à 90	F	X	1,7	X	540
<b>Ndiaye (2012)</b>	1400 à 1600	8 à 24	98	10 à 70	C	H <sub>2</sub> , Ar	1,8 à 2,3 / 7 à 8	X	415 à 557 / 480 à 976
<b>Salvo (2014)</b>	1100 à 1700	10	96,4	50 à 270					
<b>Garcia (2021)</b>	1500	13	98	48 à 68	C	H <sub>2</sub> , Ar (pO <sub>2</sub> )	6,7	X	X

# Annexe 2 – Mesure et étalonnage de la température des dispositifs d’essais

---

## I. Mesure de la température

La température de notre échantillon au cours des essais est une des grandeurs physiques les plus importantes à maîtriser. Le champ de température dans l’enceinte est cependant complexe. Au cœur du dispositif se trouvent deux éléments chauffants en tungstène qui utilisent l’effet Joule et qui permettent d’imposer à l’échantillon de très hautes températures. Les dispositifs présentent une double paroi à l’intérieur de laquelle circule une eau refroidie par un groupe froid.

Les deux dispositifs sont chacun équipés de trois thermocouples dont les fonctions sont différentes. Ce sont des thermocouples de type C (Tungstène-Rhénium 5% / Tungstène-Rhénium 26%) adaptés à des mesures dans une gamme de température allant de 50 à 1820°C.

Le premier est associé au régulateur de température (Eurotherm) et gère la consigne. Il est situé à proximité des éléments chauffants. Le second correspond à la température de contrôle et est positionné au plus proche de l’échantillon. C’est à partir de la valeur de température indiquée par celui-ci que la température de l’échantillon est évaluée. Le troisième est le thermocouple de sécurité et est placé derrière les éléments chauffants. Il déclenche l’arrêt du four si une élévation anormale de la température est détectée.

Nos essais mécaniques nécessitent un contrôle précis de la température de l’échantillon. Ainsi, un étalonnage du thermocouple associé à la température de l’échantillon est réalisé régulièrement. Nous allons décrire la procédure d’étalonnage relative aux deux fours.

Procédure d’étalonnage sur le dispositif de compression

Pour le dispositif de compression, l’étalonnage est réalisé à l’aide d’un thermocouple additionnel de type Platine – Platine Rhodié 10%. Ce type de thermocouple possède une précision accrue par rapport au thermocouple de type C. Il est inséré au cœur du dispositif dans une pastille factice percée en son centre. Son positionnement permet ainsi une mesure précise de la température de l’échantillon. La température de l’échantillon est évaluée ultérieurement à partir de la corrélation établie entre le signal du thermocouple placé au cœur de la pastille et la sonde de régulation décrite ci-dessus. On balaie la gamme de température correspondant à la plage nominale du thermocouple platine, en respectant des paliers d’1h pour que le régime permanent s’établisse.

Sur la Figure 2-1 on peut voir le résultat de la corrélation entre les températures fournies par le thermocouple placé à proximité de l’échantillon ( $T_{\text{échantillon}}$ ) et celles fournies au cours de l’expérience d’étalonnage dédiée ( $T_{\text{consigne}}$ ). Le résultat de la régression linéaire permet d’estimer lors de chaque expérience la température de l’échantillon :

$$T_{\text{échantillon}} = 1,1022 T_{\text{consigne}} - 94,574 \quad (3.1)$$

Ce type d’expérience est nécessaire lorsque certains des éléments internes du four sont déplacés ou modifiés (écrans, éléments chauffants, ...). On estime connaître la température de l’échantillon à 25°C près avec une telle méthode d’étalonnage.

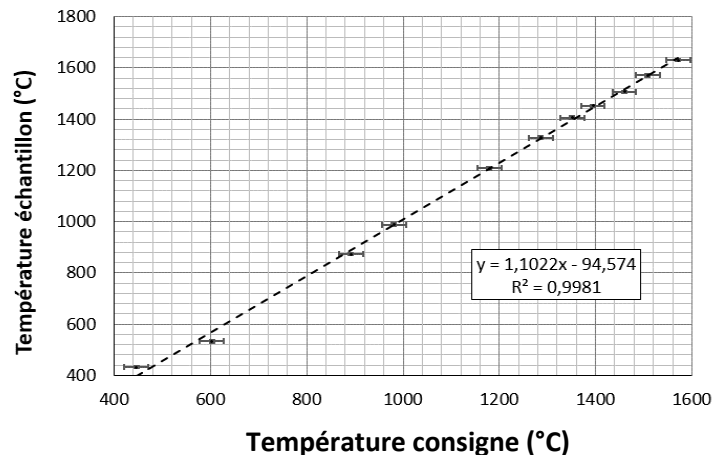


Figure 2-1. Estimation de la température de l'échantillon à partir d'une mesure déportée – PRECOCE.

## II. Procédure d'étalonnage sur le dispositif de flexion

Aucune procédure d'étalonnage semblable à celle du dispositif de compression n'avait été établie pour le dispositif de flexion. Nous avons donc réalisé un étalonnage à l'aide d'anneaux PTCR (Process Temperature Control Rings). Ce sont des anneaux partiellement frittés en alumine dont on connaît très précisément les cinétiques de frittage. L'anneau est placé à l'endroit où est localisé habituellement l'échantillon et il subit un cycle thermique spécifique. Celui-ci se compose de rampes de montée et de descente très lentes – 3°C/min – et d'un palier d'une heure à la température que l'on souhaite déterminer. Une fois revenu à température ambiante, le diamètre de l'anneau fournit une estimation de la température de palier. Cette méthode simple permet de déterminer avec une bonne précision la température, à +/- 6°C. Une série d'expériences nous a permis de corréler la température de l'échantillon à la température du thermocouple placé à proximité de celui-ci. La corrélation ainsi établie est reportée sur la Figure 2-2, d'où l'on déduit la régression linéaire suivante :

$$T_{\text{échantillon}} = 1,1279 T_{\text{consigne}} + 30,192 \quad (3.2)$$

L'étalonnage est par contre réalisé sur une plage de température restreinte (entre 1250 et 1500°C), définie par la gamme des PTCR utilisés.

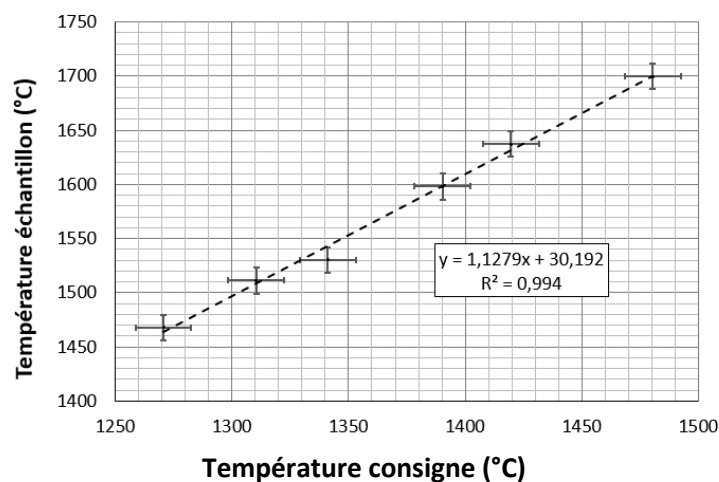


Figure 2-2. Estimation de la température échantillon à partir de la mesure de diamètre des anneaux PTCR – MECAFLEX.

## **Etude des mécanismes de déformation viscoplastiques du dioxyde d'uranium polycristallin au voisinage de la stœchiométrie : influence de l'activité d'oxygène et de la microstructure**

Cette étude contribue à la compréhension des mécanismes de déformation viscoplastiques du dioxyde d'uranium polycristallin, avec une attention particulière portée aux effets de la microstructure initiale et de la pression partielle d'oxygène en équilibre avec le solide. La caractérisation de la réponse viscoplastique du matériau s'est appuyée sur la réalisation d'essais mécaniques à haute température et sous atmosphère contrôlée, combinée à la simulation numérique de ces essais et à la caractérisation microstructurale des échantillons déformés (par MEB/EBSD et MET).

Trois microstructures polycristallines ont été étudiées et sollicitées en compression et en flexion trois et quatre points. La simulation numérique de ces trois types d'essais a été mise en œuvre en grandes transformations, sous l'hypothèse des déformations logarithmiques, en intégrant une loi de comportement de type Frederick-Armstrong. Appliquée à la compression, elle a permis de préciser les conditions requises pour que ces essais puissent être considérés comme uniaxiaux. Ainsi, pour des échantillons du premier lot présentant une taille moyenne de grains de 11  $\mu\text{m}$  (élaborés par métallurgie des poudres), une interprétation de la vitesse d'écoulement stationnaire à l'aide d'une loi de fluage phénoménologique ( $\dot{\epsilon} = A(T)\sigma^n pO_2^\alpha$ ) indique des exposants de la contrainte et de la pression partielle d'oxygène de l'ordre de 5 (caractéristique du fluage restauration) et de 1/6 respectivement. Les examens microstructuraux post-essais ont confirmé une microstructure typique du fluage restauration, caractérisée par une subdivision des grains d'origine en sous-grains faiblement désorientés les uns par rapport aux autres. En revanche, la dépendance identifiée à la pression partielle d'oxygène ne permet pas à ce stade, en se limitant à de simples lois d'action de masses et en négligeant les interactions coulombiennes entre défauts ponctuels, de statuer sur le fait que la cinétique de restauration pourrait être associée, comme attendu, à la diffusion en volume du cation.

Les essais de compression, réalisés sur le second lot d'échantillons à microstructure plus fine (taille de grains moyenne de 3  $\mu\text{m}$ ) produits au JRC-Karlsruhe par frittage SPS, ont montré un effet de durcissement du matériau attribué à la faible taille des grains, et la concomitance de mécanismes de déformation de type fluage-dislocation et fluage-diffusion. Les essais de flexion menés sur les derniers échantillons du dernier lot, obtenus par métallurgie des poudres, ont permis de mettre en évidence une dissymétrie de la réponse du dioxyde d'uranium en traction et en compression. Les analyses microstructurales post-essais montrent une fragmentation des grains d'origine, signature de mécanismes associés au fluage-dislocation, plus marquée dans les régions soumises à la traction. Par ailleurs, l'allure caractéristique des courbes de charge en flexion trois-points, marquée par un maximum avant l'établissement d'un régime stationnaire d'écoulement, est attribuée à la propagation stable de fissures intergranulaires dans les zones en traction.

Finalement, une étude originale de la réponse du matériau sous l'effet conjugué de la température, de la contrainte et d'une irradiation externe aux portons, n'a pas permis de mettre en évidence une déformation viscoplastique des échantillons. En revanche, ces expériences ont montré une fragilisation et un fort gonflement du matériau du fait de l'irradiation.

---

## **A study of viscoplastic deformation processes in polycrystalline uranium dioxide in the near stoichiometric region: influence of oxygen activity and microstructure**

This study contributes to our understanding of high temperature viscoplastic deformation processes in polycrystalline uranium dioxide, with particular attention paid to the influence of the initial material microstructure and the equilibrium partial pressure of oxygen. The material response to stress was characterised through high temperature mechanical tests, carried out in a controlled gaseous atmosphere, combined with numerical modelling of these tests and microstructural characterisations of deformed samples using SEM/EBSD and TEM.

Three polycrystalline microstructures were examined in compression and three and four point bending. Logarithmic strains were implemented in a finite strain framework to model all three types of tests. A Frederick-Armstrong material behaviour law was further assumed. When applied to compression tests, the modelling enabled us to determine the conditions in which tests can be considered uniaxial. The interpretation of the stationary strain rates with a phenomenological behaviour law ( $\dot{\epsilon} = A(T)\sigma^n pO_2^\alpha$ ) for samples from the first set with an 11  $\mu\text{m}$  average grain size (manufactured from a powder metallurgy route), indicates a stress exponent of 5, which is characteristic of restoration creep, and an oxygen partial pressure exponent of 1/6. The destructive characterisation of samples subsequent to testing reveals a microstructure typical of restoration creep, in which the original grains fragment into subgrains separated by low angle boundaries. However, using the laws of mass action which assume an infinitely diluted, non-interacting population of point defects, the dependence of stationary strain rates to the partial pressure of oxygen does not enable us, at this stage, to conclude to a restoration mechanism controlled by cation volume diffusion.

Compression tests carried out on the second set of samples produced by SPS at JRC-Karlsruhe, reveal a hardening effect attributed to their smaller grain size (3  $\mu\text{m}$  average grain size), and the concomitance of both dislocation creep and diffusional creep deformation mechanisms. Bending tests carried out on the last set of samples, produced via a powder metallurgy route, reveal a compression and tensile response which is asymmetric. Post-test microstructural analyses indicate that grain fragmentation, characteristic of dislocation creep, occurs to a greater extent in regions of the specimens subjected to tensile loading. Further, three point bending response curves systematically go through a maximum prior to the establishment of a stationary regime. This phenomenon is attributed to the stable propagation of intergranular cracks in tensile loaded regions.

Finally, an original study was carried out of the material response under the combined influence of temperature, stress and external proton irradiations. The experiments did not enable us to induce any measurable viscoplastic strain, but did reveal substantial swelling and embrittlement of the material as a result of the irradiation.