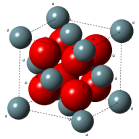
# Les céramiques techniques et leurs applications

**dans le domaine de l'électronique, aéronautique, aérospatiale, automobile, énergies, environnement, optique**

**L. BARRALLIER – Vallauris Golfe-Juan, 4 novembre 2014**

ARTS ET MÉTIERS ParisTech

## Microstructure et propriétés mécaniques des matériaux en terme de durabilité - application à l'oxyde d'uranium



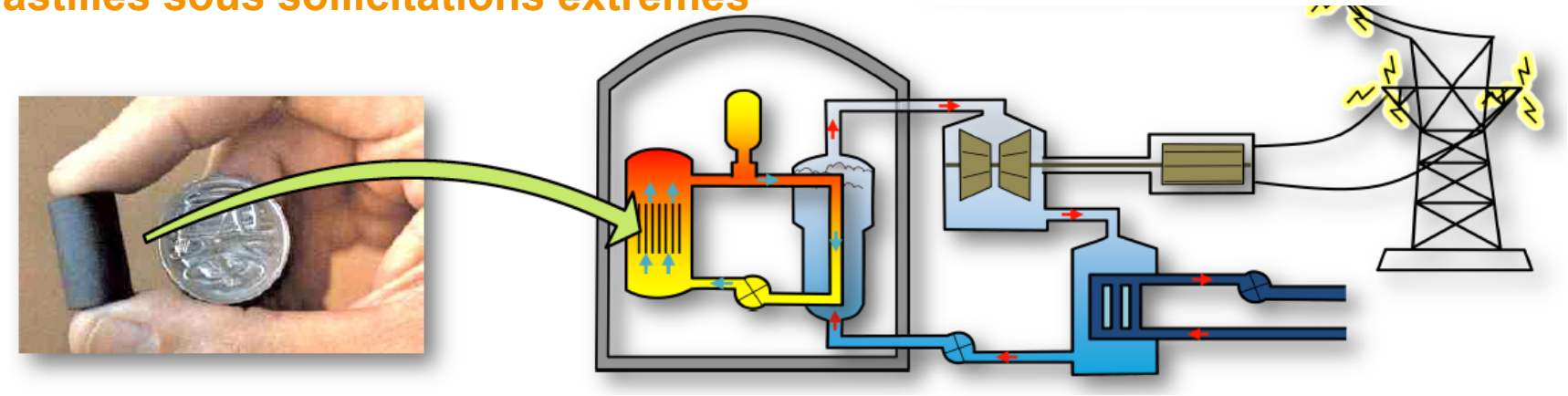
MSMP Mechanics, Surfaces and Materials Processing

CARMA

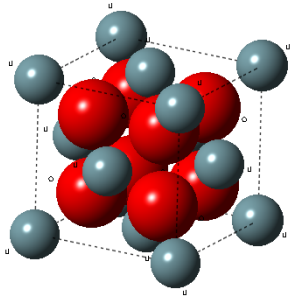
CRT CENTRE DE RESSOURCES TECHNOLOGIQUES

# Oxyde d'uranium – combustible nucléaire

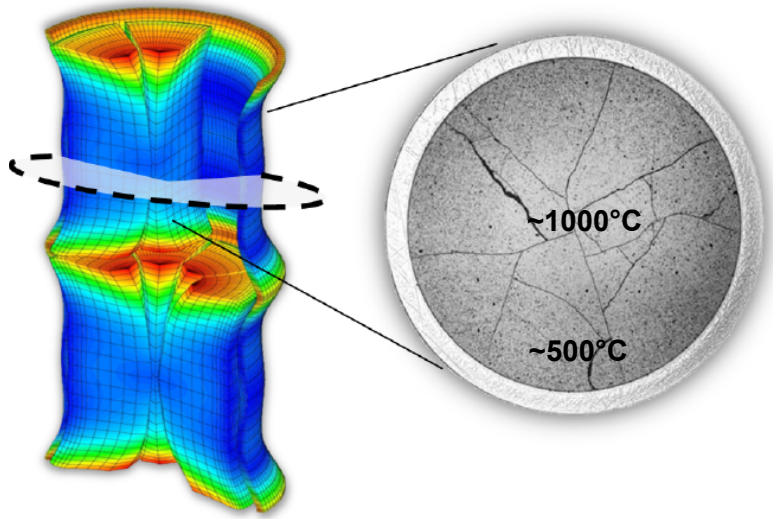
## Pastilles sous sollicitations extrêmes

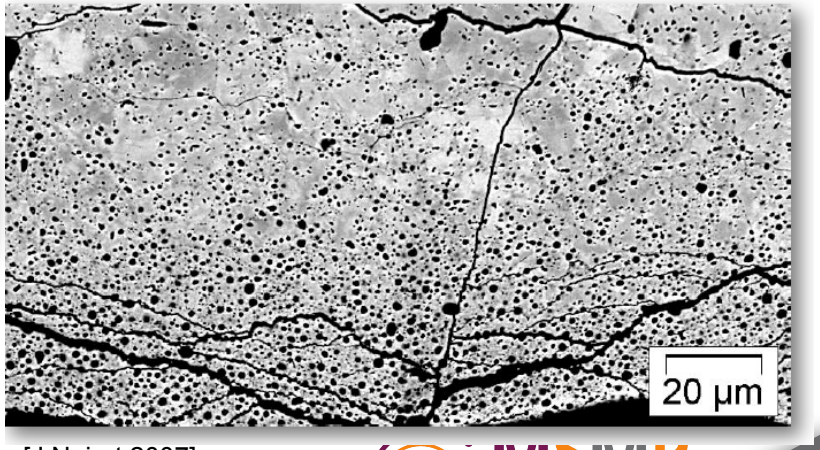


- Les réactions de fissions génèrent :
  - des gradients de température
  - des transmutations générant des gaz de fission
- Fluage de la pastille
- Fissuration fragile inter ou intragranulaire
- Formation de bulles sous haute pression
- Modification de la microstructure



Type Fluorite $CaF_2$
SP 192
a=0,54682 nm



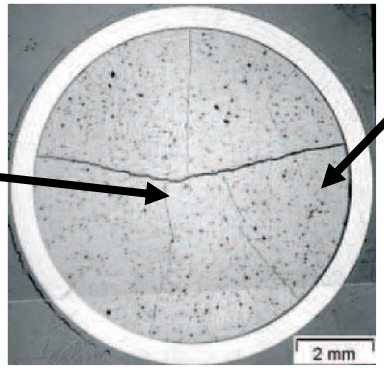

[J.Noirot 2007]

## Un comportement fragile et ductile

- Fort gradient de température environ 500°C sur 4 mm
- Génération d'un champ de contraintes liée aux dilatations différentielles suivant le rayon de la pastille

**Connaissance du mode de rupture macroscopique**

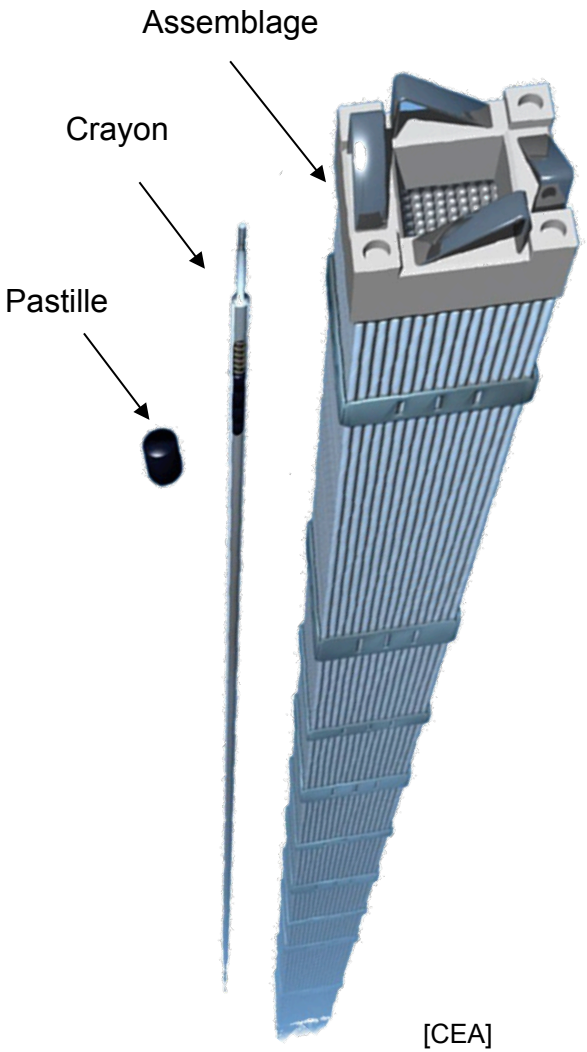
- Fissuration dès le premier cycle en fonctionnement normal
- Fonctionnement incidentel (IPG) -> intégrité de la gaine en zircalloy
- Fonctionnement accidentel (emballement local de la réaction) plus pénalisant




Cœur (~ 1000°C)
Zone en compression

Périphérie (≈ 500°C)
Zone en traction

[CEA] Irradié 1 cycle



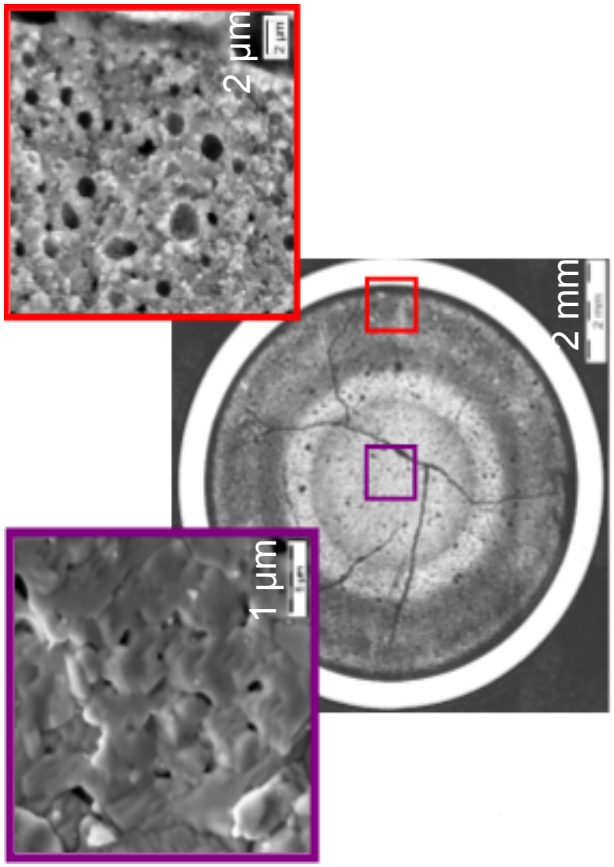

[CEA]

# Bulles sous pression

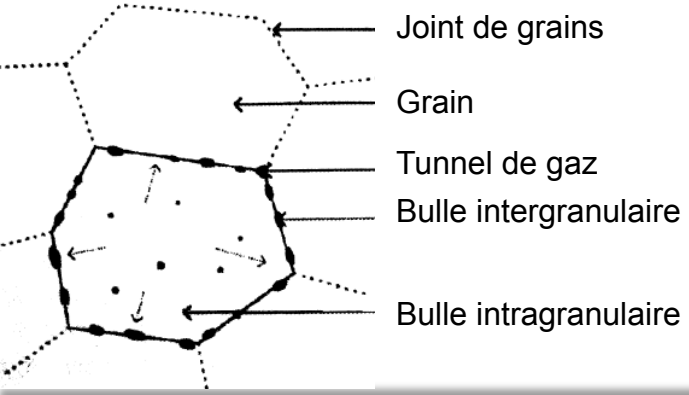
## Des bulles avec tailles / pressions variables

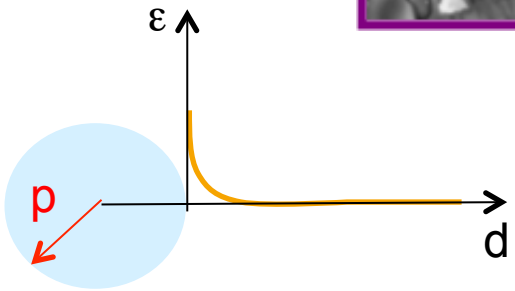
- Gaz de fission : isotopes Xe, Kr, He
- 4 populations de cavités : les pores et les bulles, intragranulaires ou intergranulaires ainsi que toutes les interactions possibles entre ces différentes populations - germination, croissance, coalescence, migration des atomes…
- Diamètre : ~10 nm – ~10 µm
- Pression : ~10 GPa – ~10 MPa

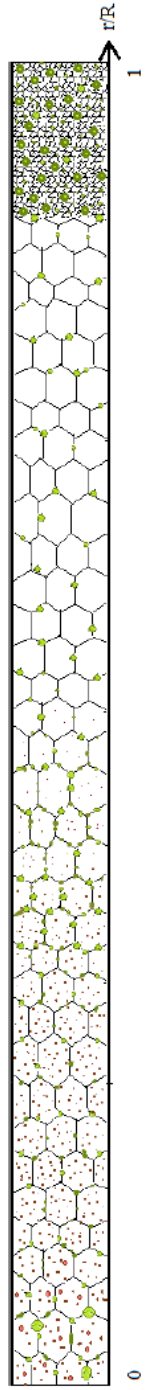
- **Gonflement** du matériaux au cours de son utilisation
- Génération de **contraintes (déformation) internes** de compression
- Modification du **comportement mécanique (fluage, fissuration)**




[CEA]



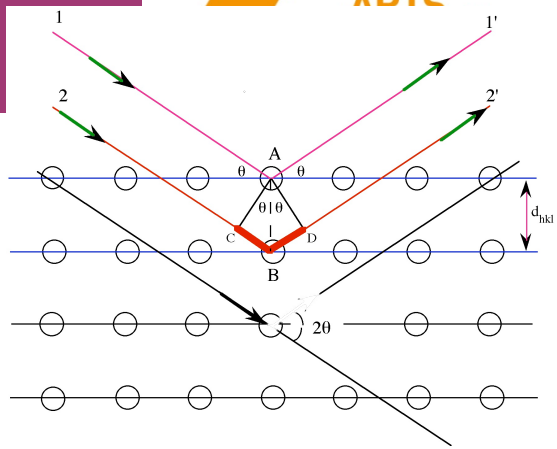



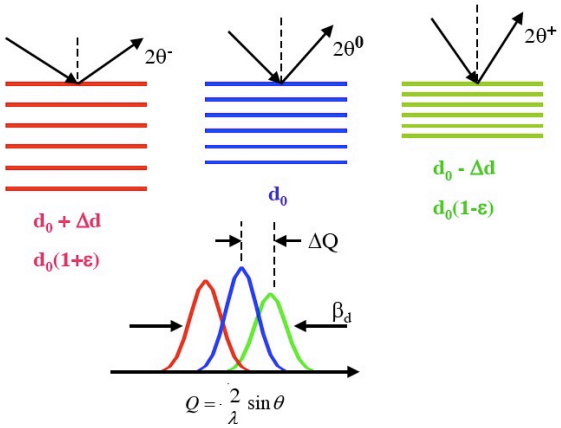



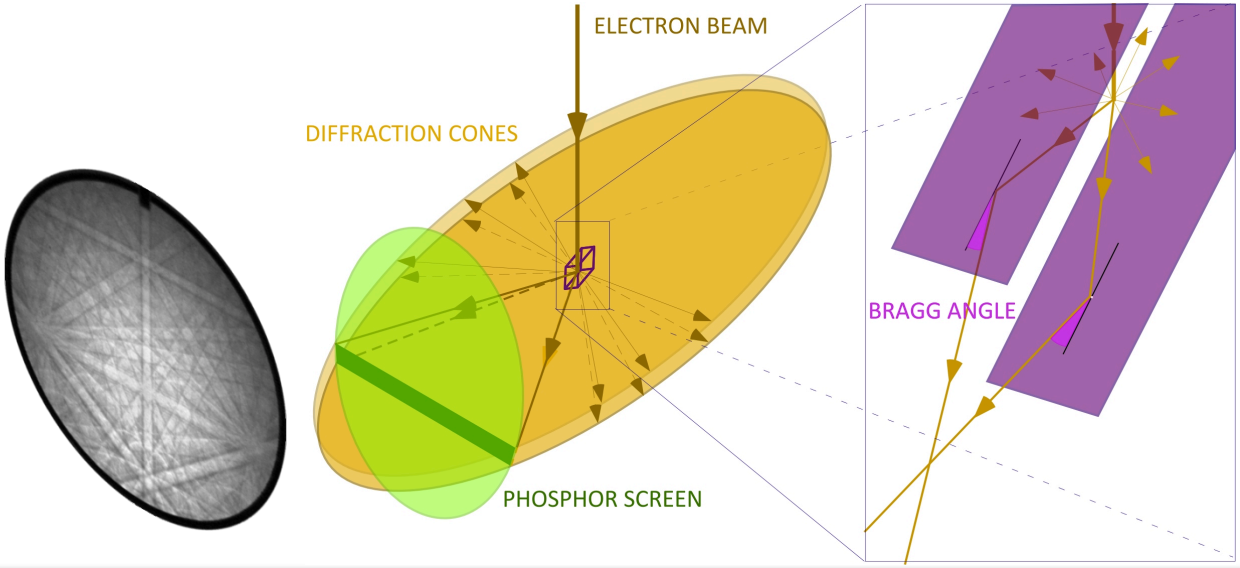
# Méthode diffractométrique

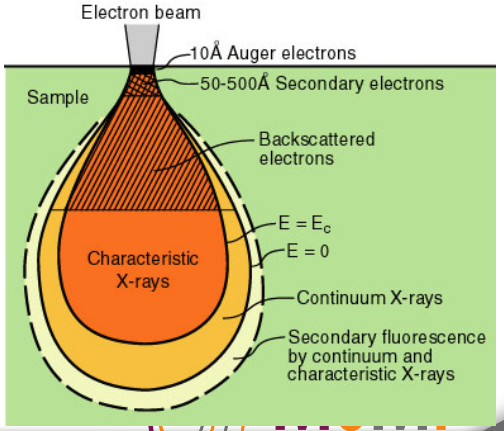
## Analyse des déformations et des contraintes / orientation cristallines

- Diffraction, loi de Bragg : $\lambda=2d_{hkl}\sin\Theta$
- Diffraction des rayons X
  - Volume sonde > 0,5 mm (diffractomètre de laboratoire, ~ 1 µm synchrotron)
  - **Déformation** (**contrainte**), texture cristalline, structure cristalline
- **Diffraction des électrons (EBSD)**
  - Dans le MEB
  - Volume sonde < 1 µm
  - **Orientation cristalline**, **déformation** (**contrainte**)
  - **Précaution** : échantillon conducteur, non écroui superficiellement
- Méthodes non destructives



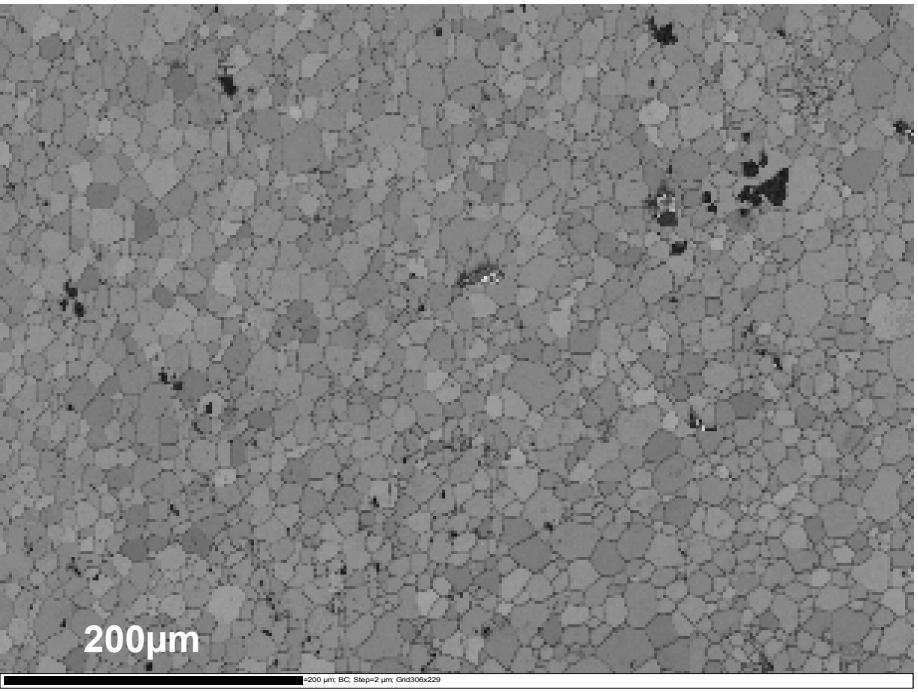



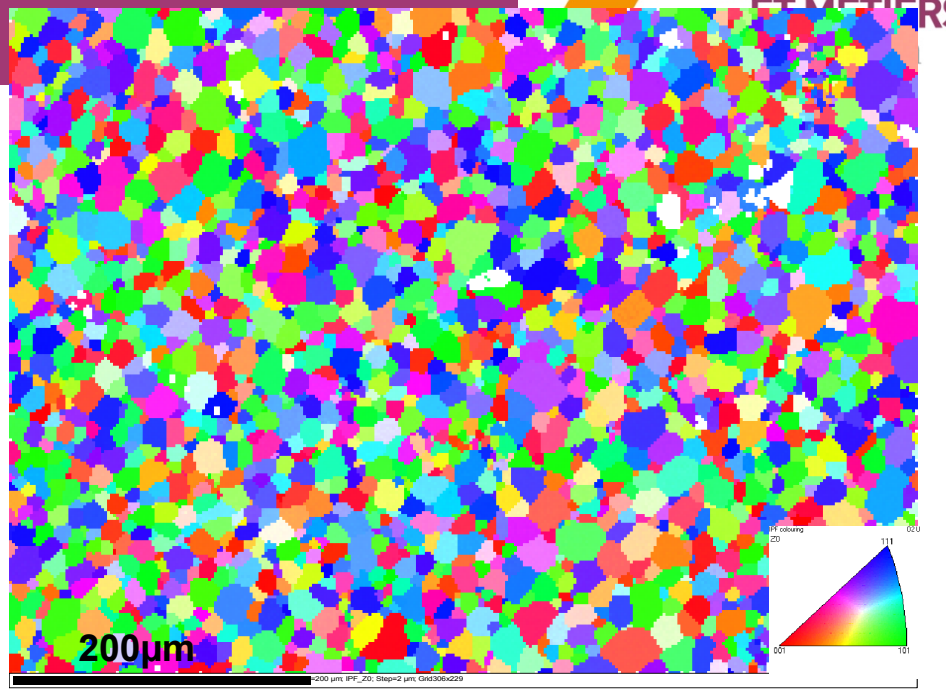



# EBSD

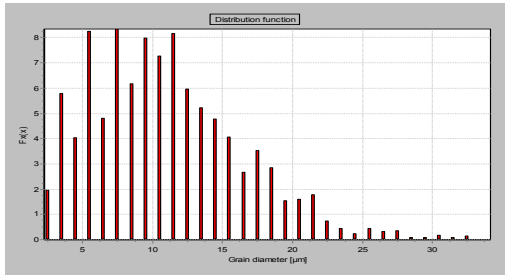
## Cartographies

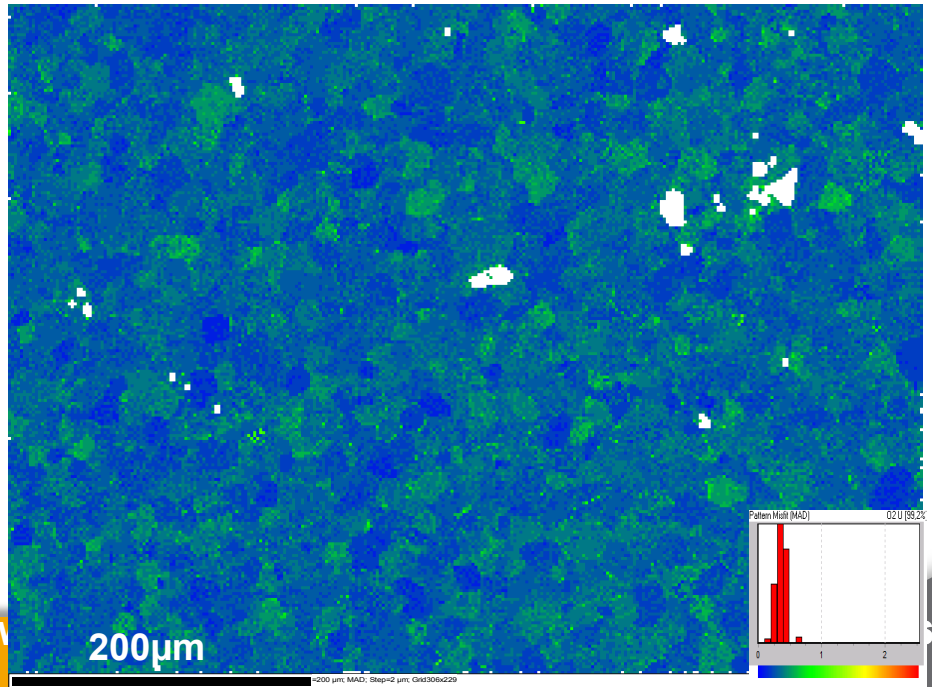



$UO_2$ implanté

Taille 11±5 µm



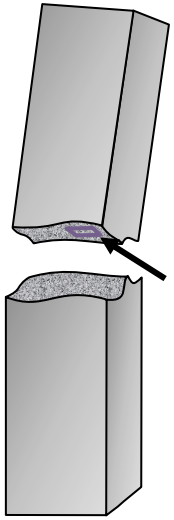




- Orientation, taille des grains, désorientations cristallines, joints de grains, déformation

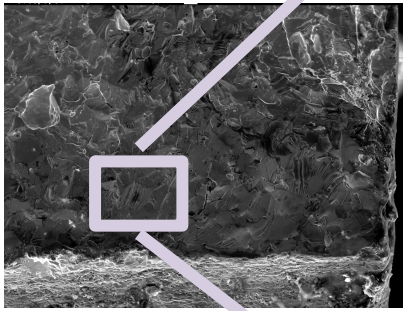
# Comportement fragile de l'$UO_2$

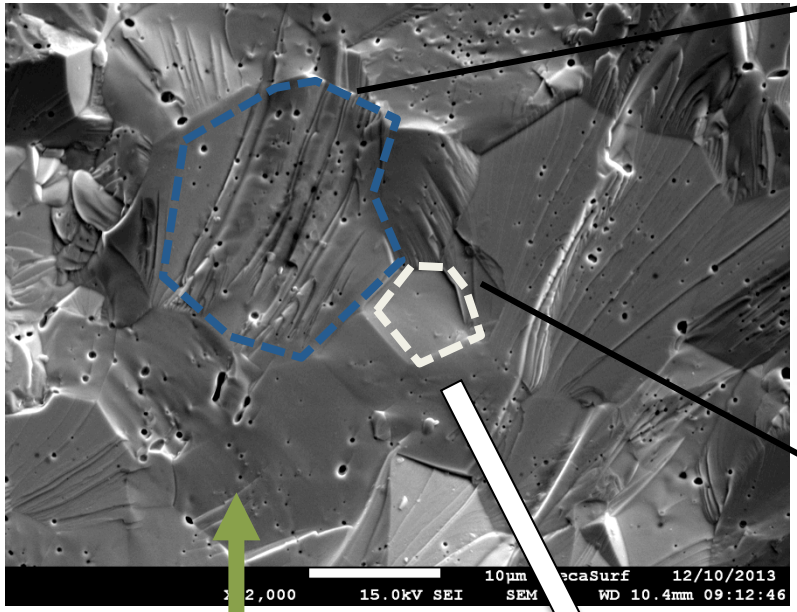
## Rupture inter ou transgranulaire ?

- Essais mécanique sur barreaux entaillés

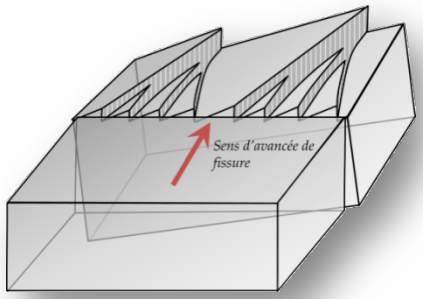


[J.Soulacroix 2014]






Plan « rugueux » = marches et rivières

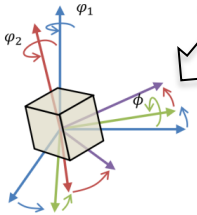



Plan « lisse » = clivage parfait (pas des joints de grains)

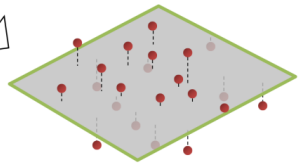
Sens d'avancée de fissure

- Cartographie d'orientation EBSD sur le faciès de rupture

Opération à faire sur les deux faces du faciès de rupture, si orientation identique alors fissuration transgranulaire



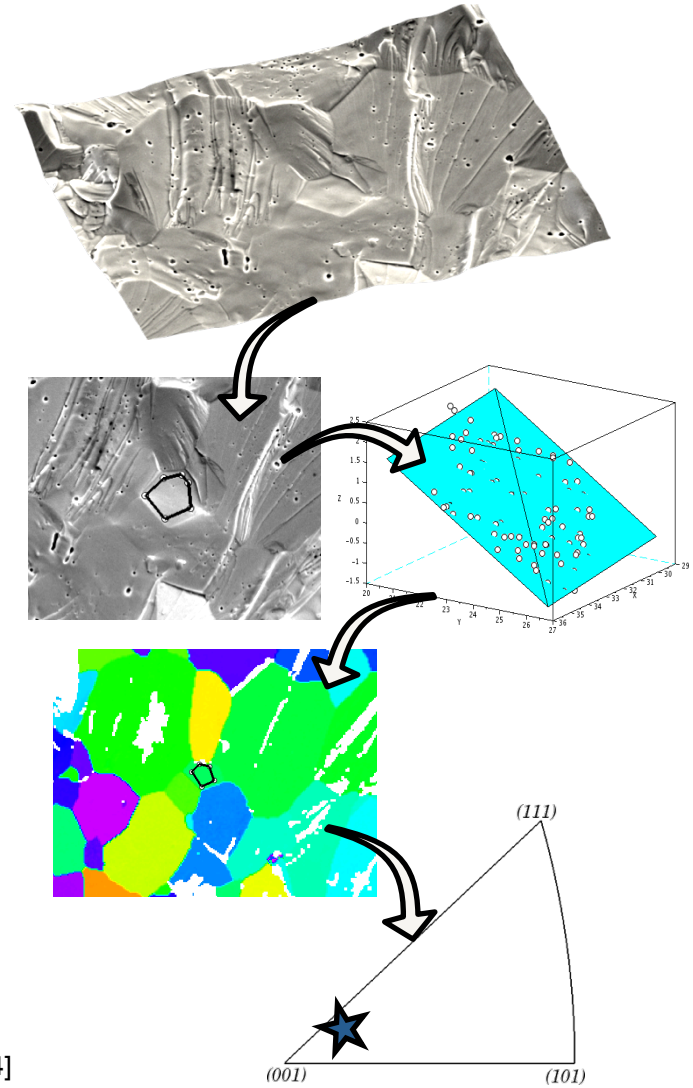

Orientation cristalline (3 angles d'Euler)



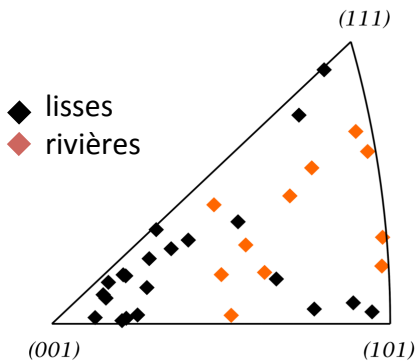
Plan moyen du nuage de points décrivant la surface en 3D

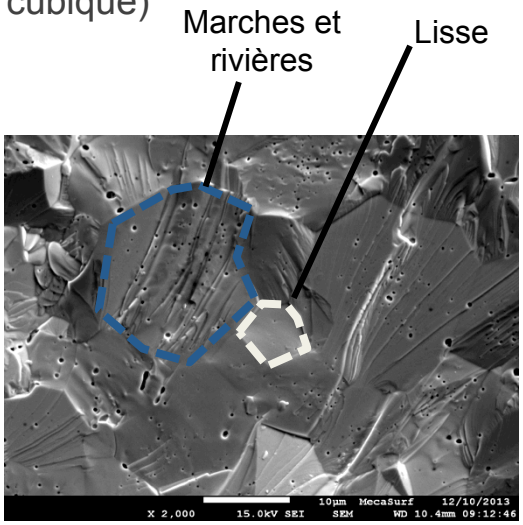
## Méthodologie

- Reconstruire la surface en 3D avec un logiciel (MeX© : stéréophotogrammétrie à partir d'images MEB)
- Extraire une facette et calculer son plan moyen géométrique
- Extraire l'orientation cristalline de la même facette (depuis la carte EBSD réalisée sur le faciès = zone non plane)
- Tracer en figure de pôle inverse l'orientation du plan de clivage (symétrie cubique)




## Résultats



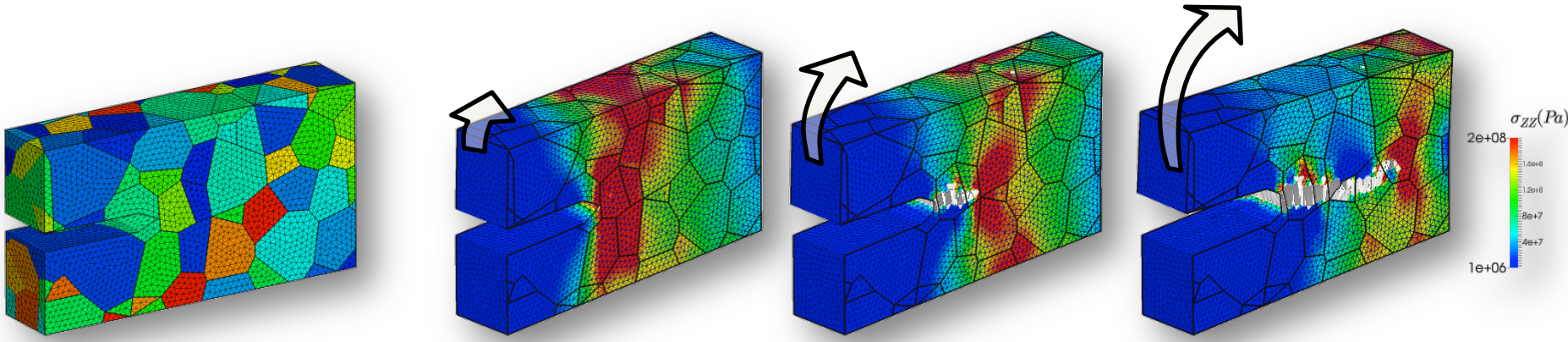




[J.Soulacroix 2014]

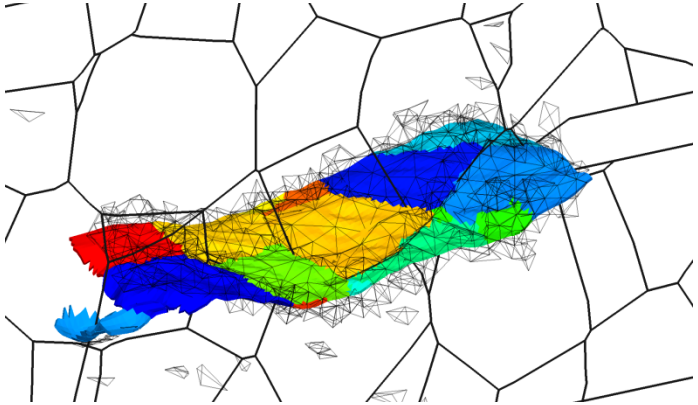
**Plan de clivage préférentiel de l'UO2 ➔ plans {001}**

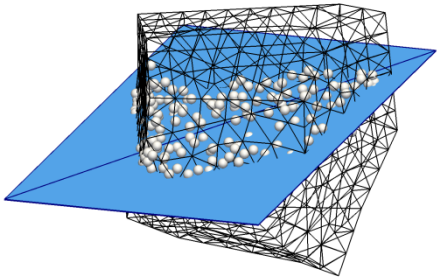
# Fissuration – simulation numérique

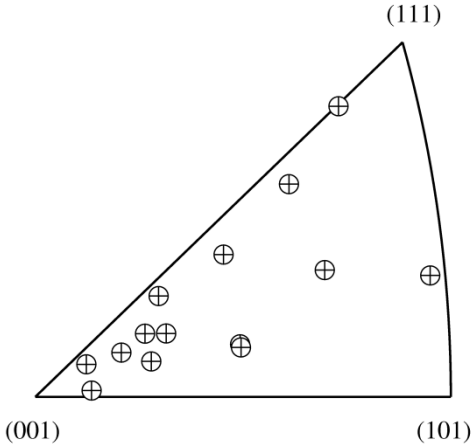
## Ouverture d'un polycristal de (130 grains)




- Fissuration transgranulaire
- Faciès de rupture : la plupart des grains ont été fisuré selon une orientation proche de [001]



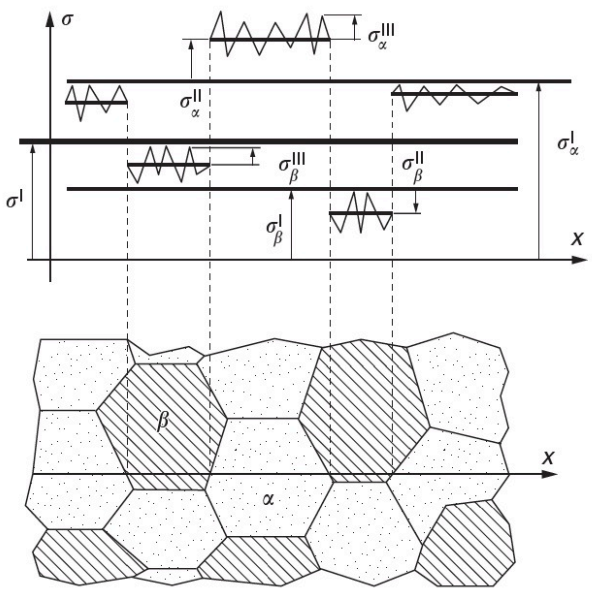




## Ordre des contraintes (déformation)

- Influence sur les pics de diffraction
  - Ordre I, macrocontrainte : décalage du pic de diffraction
  - Ordre II, pseudo-macrocontrainte, effet HDE : élargissement des pics de diffraction
  - Ordre III, microcontrainte ou **microdéformation** : élargissement des pics de diffraction

- DRX : ordre I, II et III
- EBSD : ordre III




[J.M. Sprauel 2004]

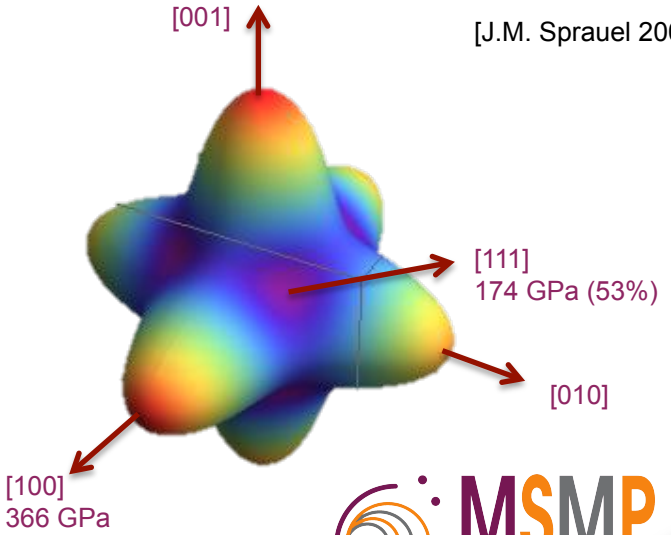
## Relation déformation / contrainte

$$\sigma_{ij}=C_{ijkl}\ \varepsilon_{kl}$$

Mesure

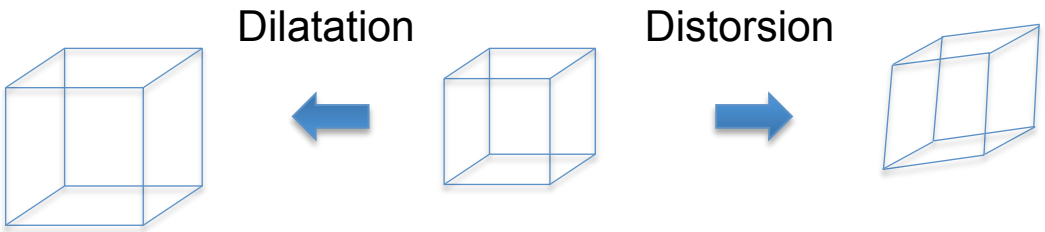
Calcul

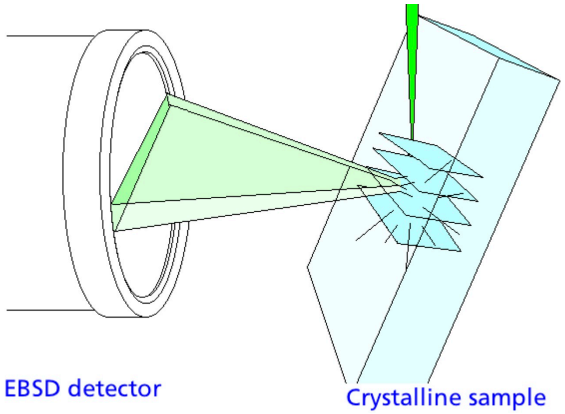
- DRX : constantes d'élasticité cristallographiques (fonction de {hkl})
- EBSD : constantes du monocristal

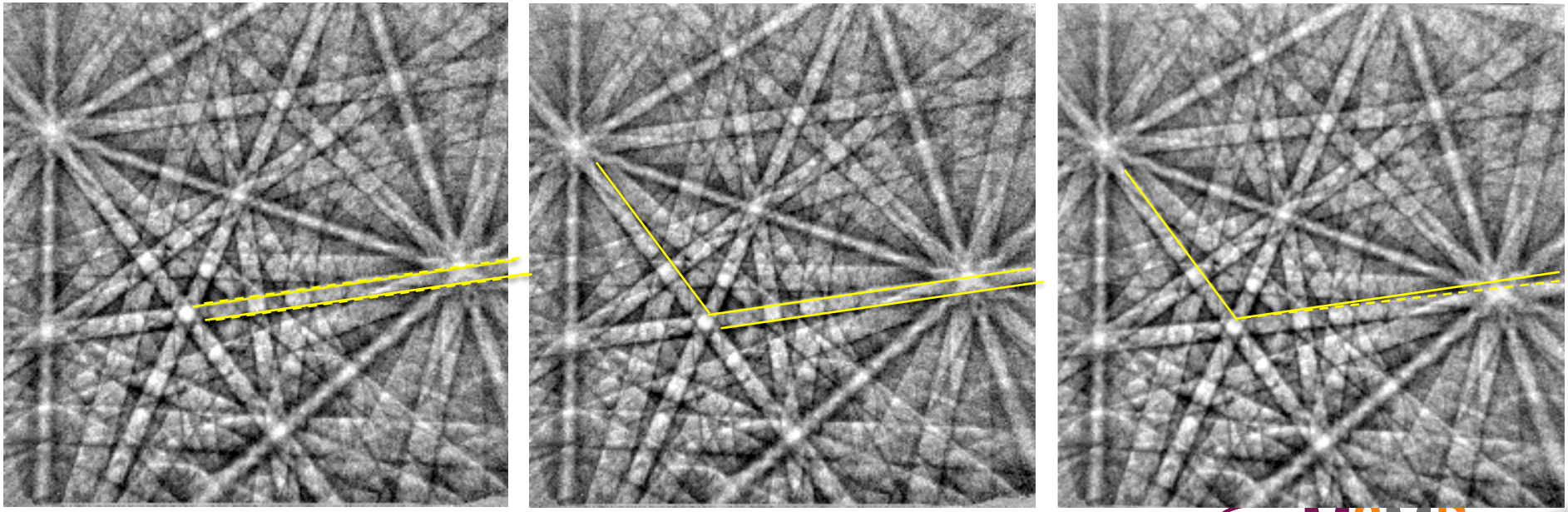


## Modification des paramètres de maille

- Monocristal cubique



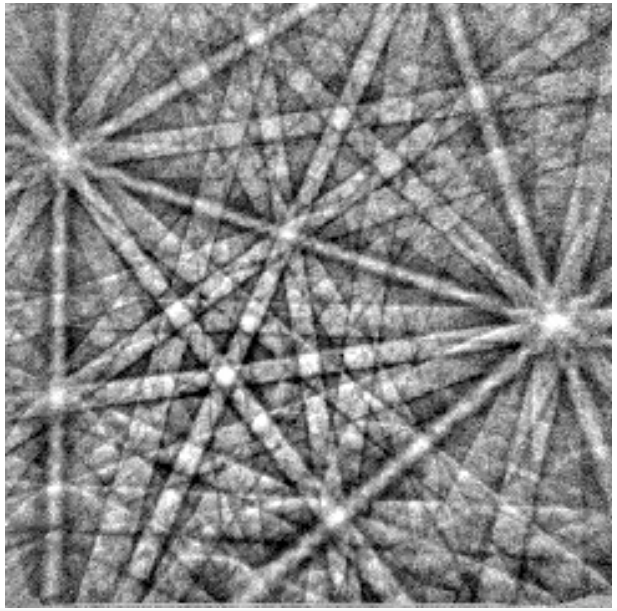



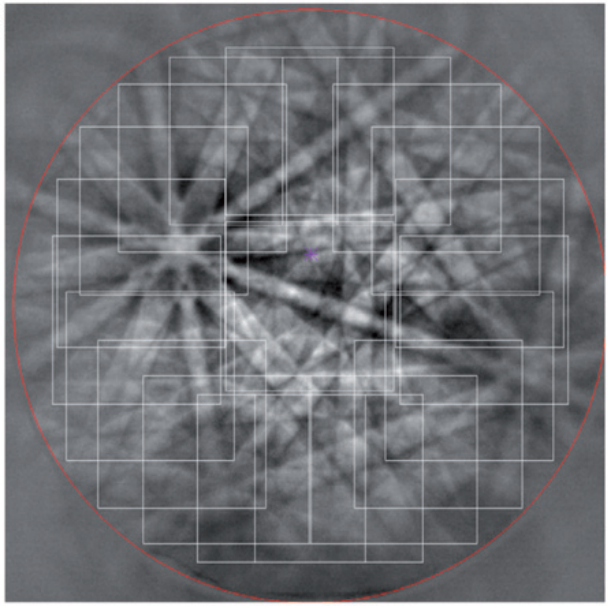
# Cross corrélation (Wilkinson et *al.*, Univ. Oxford)

## Déformation élastique

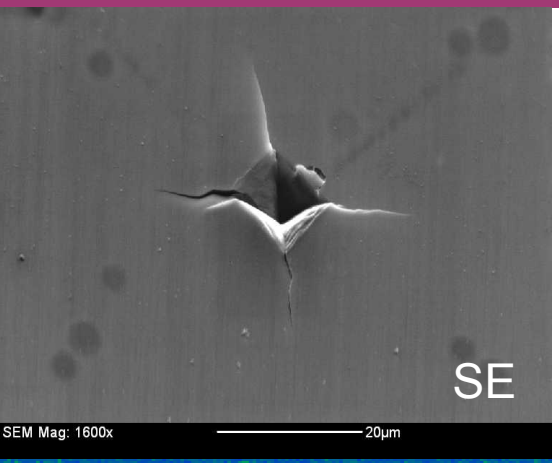
**Rappel**
Kikuchi image 2D du cristal

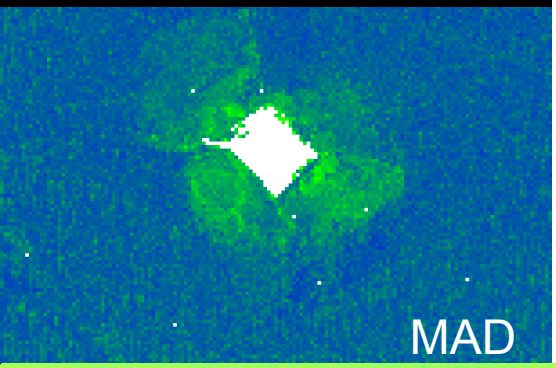
- Analyse fine des champs de déplacement
  - Plusieurs ROI par Kikuchi
  - Transformée de Fourier (fonction de transfert)
  - Kikuchi de référence pour un ensemble de points de même orientation (grain), déformations relatives pour une orientation donnée
  - Précision $<10^{-4}$ (corrélation au 1/10$^{\text{ième}}$ de pixel pour des Kikuchi haute résolution)
  - Calibration de la caméra, des effets de déplacement des Kikuchi,..

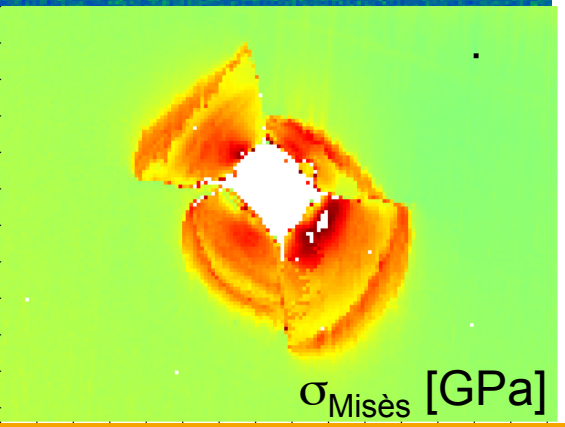


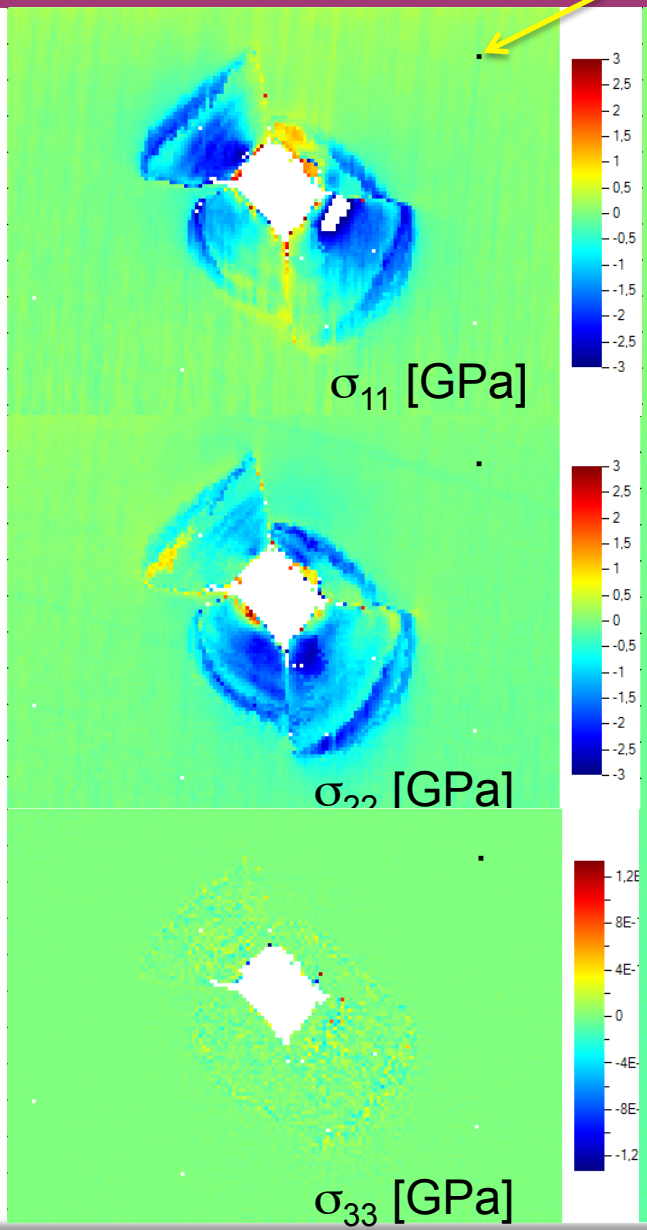


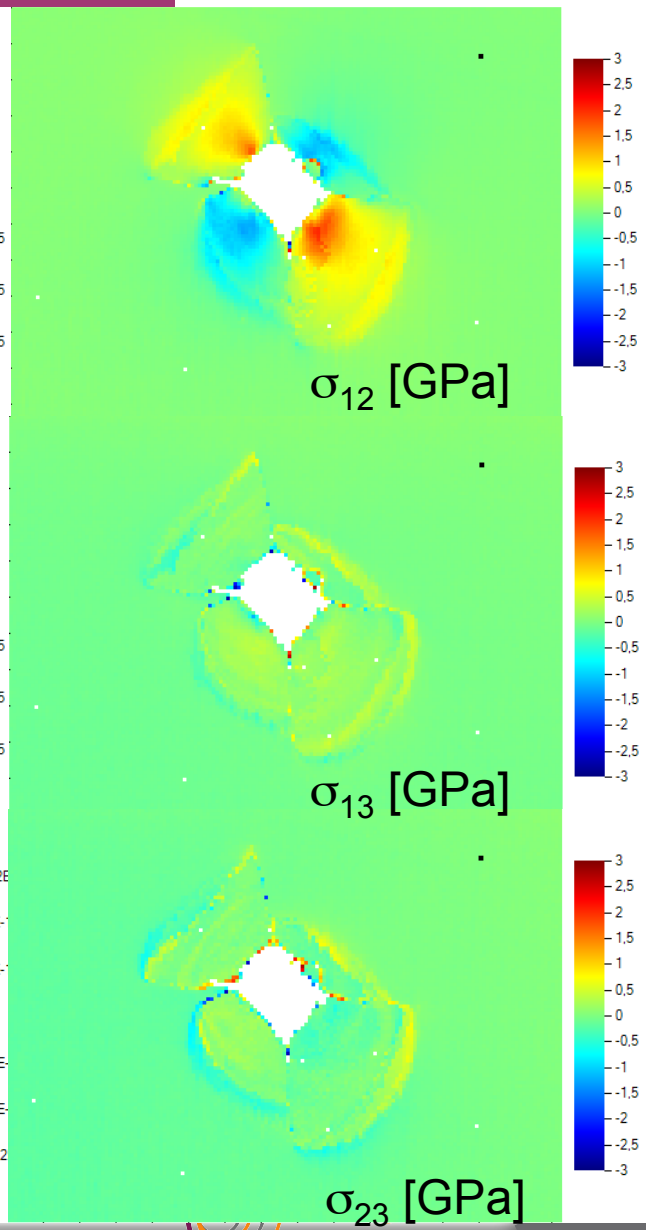
# Exemple : indentation Vickers sur Si {100}



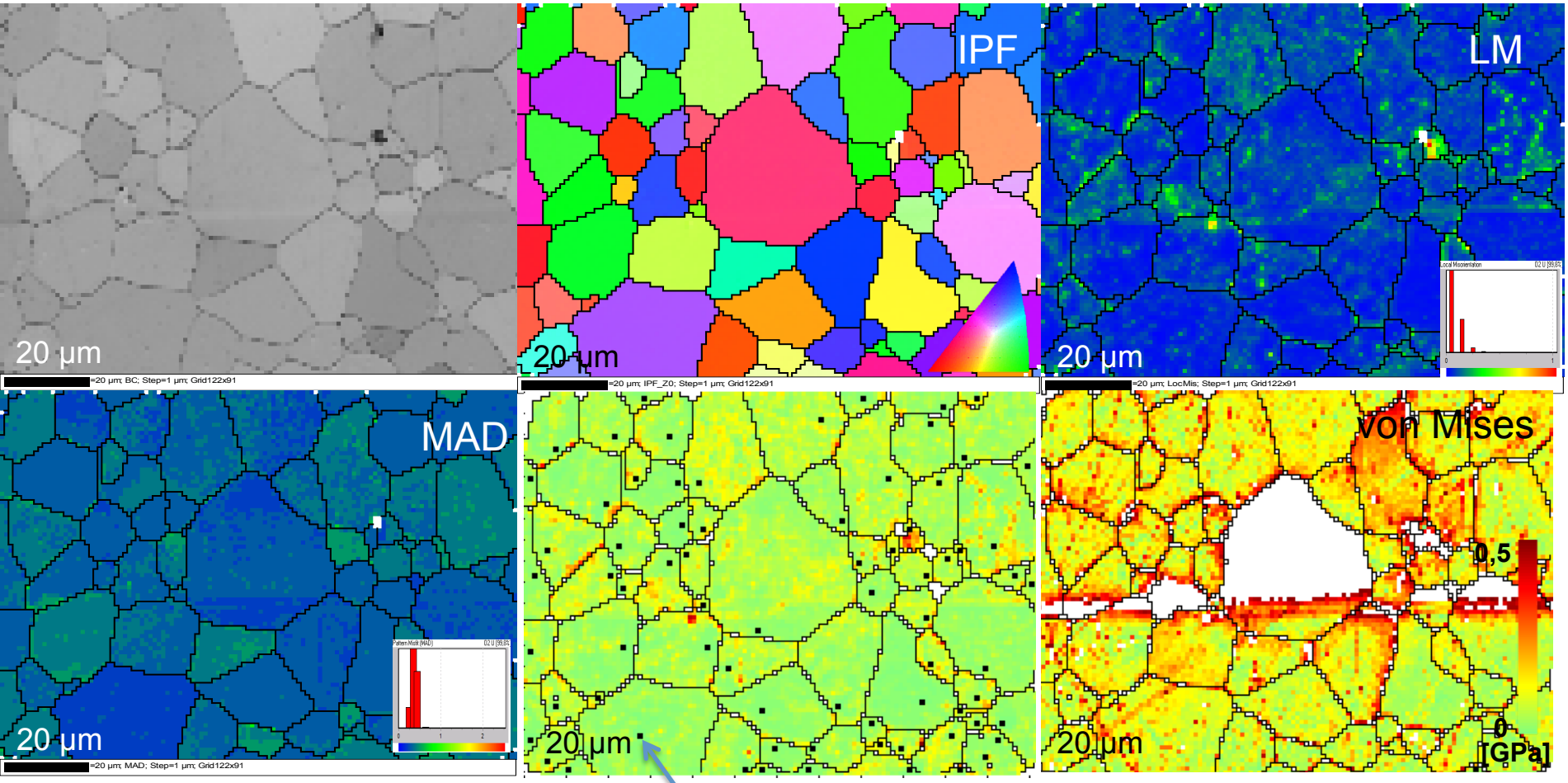



# Exemple : $UO_2$

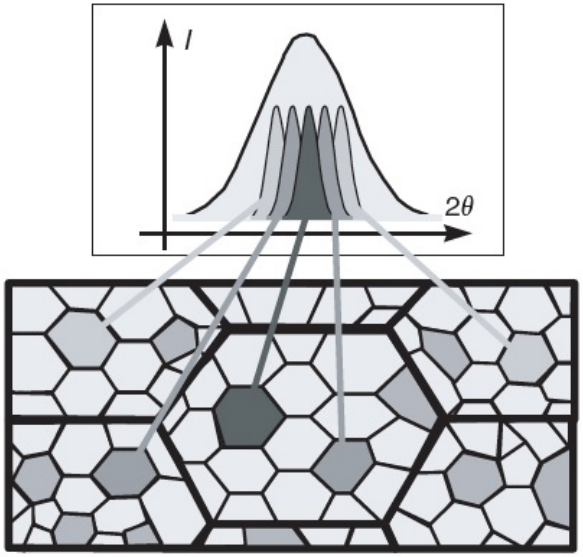
## Implanté




Kikuchi de référence

## Perspectives

- Fissuration
  - Application de la méthode sur d'autres matériaux fragiles
- Mesure des déformations
  - Calibration de la méthode de « cross correlation »
  - Mise au point de la méthode sur des matériaux modèles oxyde de cérium $CeO_2$
  - Analyse plus globale par diffraction des rayons X :
    - contrainte macro (ordre I)
    - élargissement des pics de diffraction :
      - hétérogénéité des contraintes (ordre II)
      - contrainte micro (ordre III)




[J.M. Sprauel 2003]

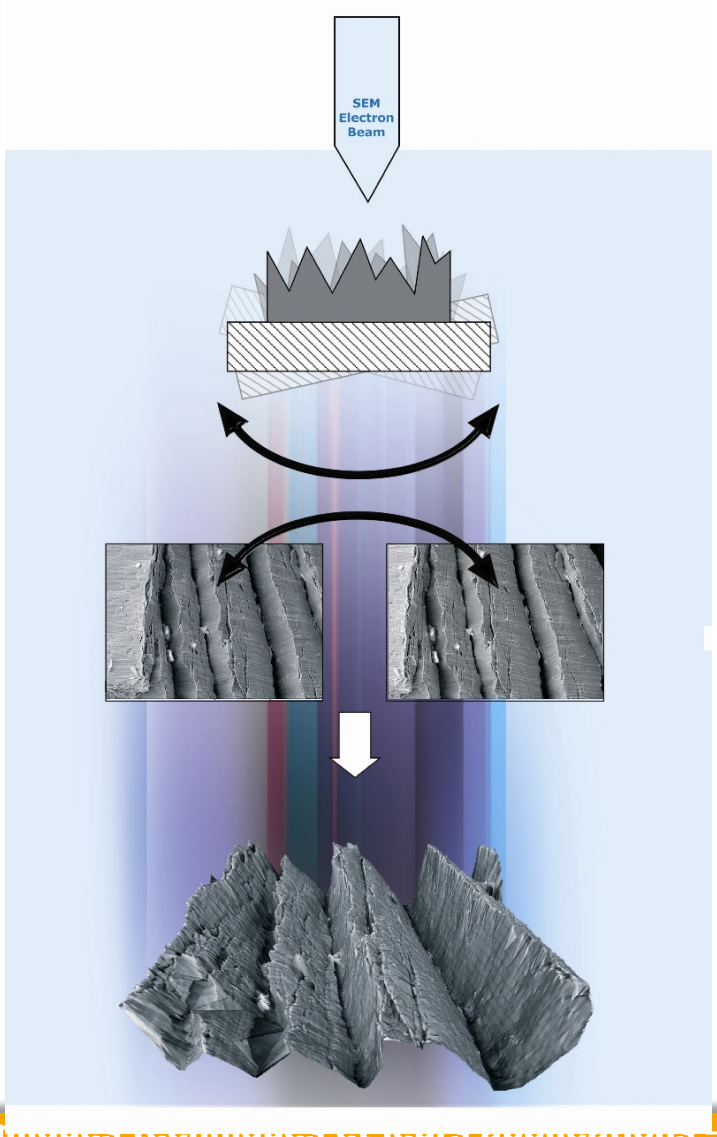
## Conclusion

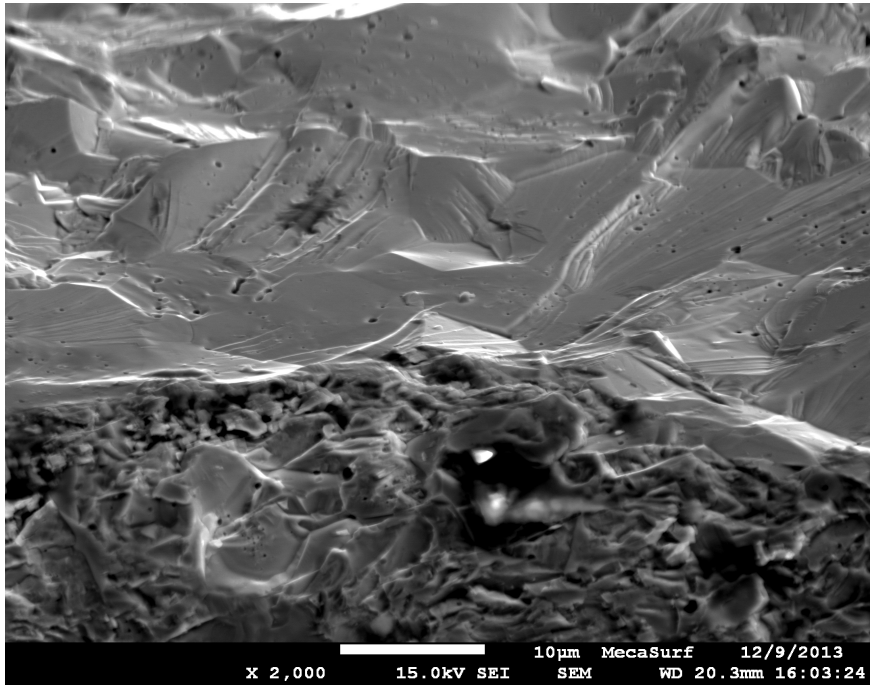
- Le plans {001} sont les plans de clivage préférentiel de l'$UO_2$
- Utilisation de méthodes diffractométriques pour la caractérisation de l'$UO_2$
- Méthodes applicables pour l'$UO_2$ irradié (CEA Cadarache) et pour d'autres céramiques

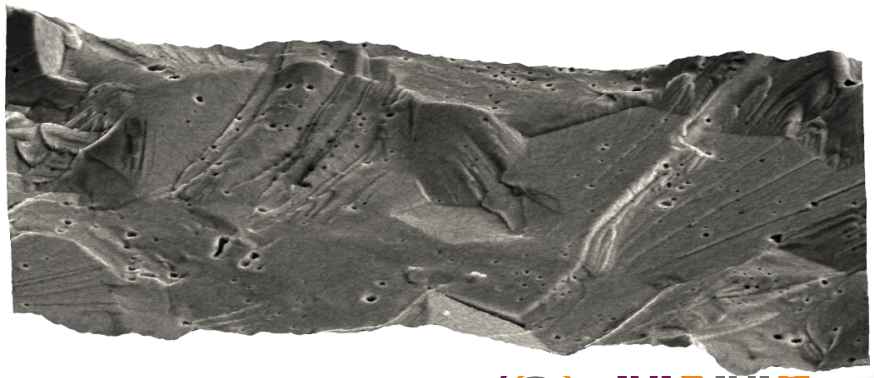
# Merci de votre attention

# Comportement fragile : caractérisation expérimentale

- Stéréocorrélation d'images (MeX)

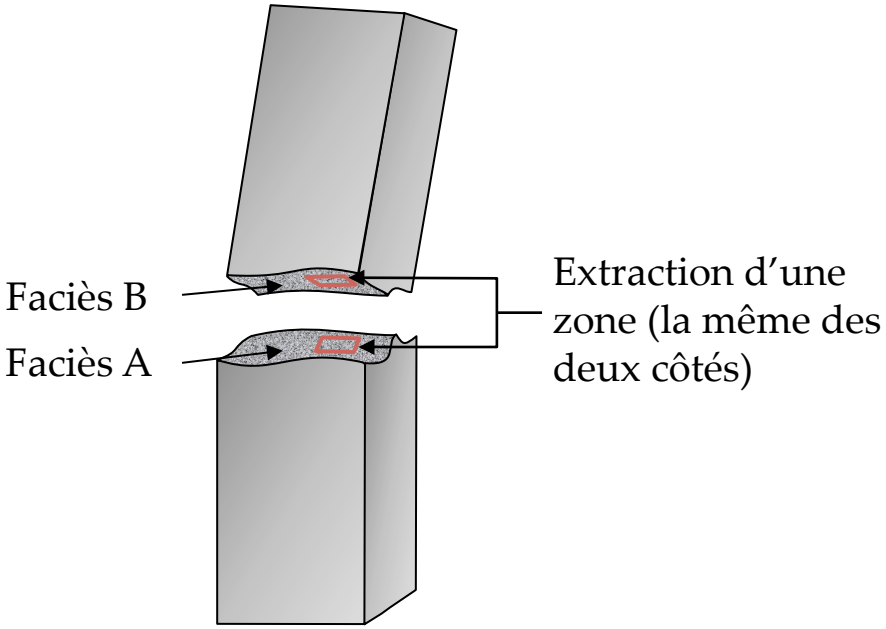


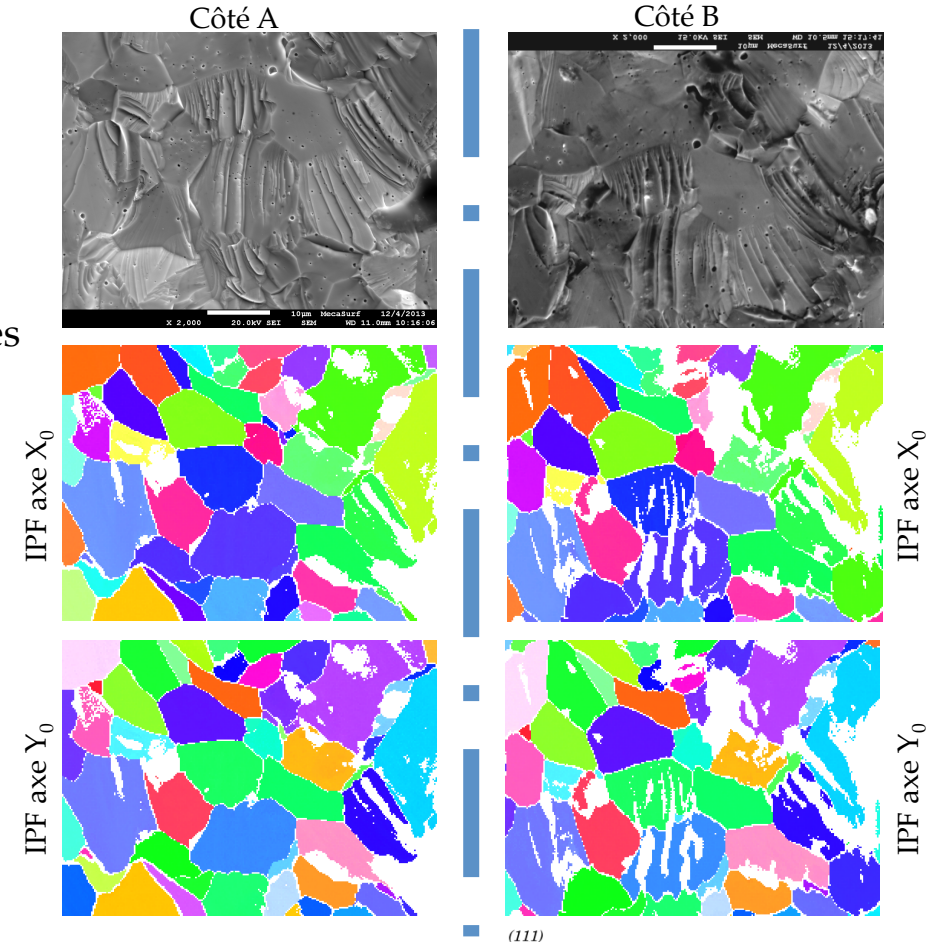



# Comportement fragile : caractérisation expérimentale

- Cartographie EBSD sur 2 zones en vis-à-vis




100% des grains sont présents des 2 côtés → la rupture est entièrement intra-granulaire