

ETUDE DE LA CAVITATION PRODUITE PAR ETIRAGE DE BARRES DE ZIRCONIUM
- APPLICATION DE LA DIFFUSION DES NEUTRONS AUX PETITS ANGLES -

A. R. DA COSTA^{*}, M. PERNOT^{*}, C. SERVANT et R. PENELLE^{*}

^{*}GRECO "Grandes Déformations Endommagement"
Laboratoire de Métallurgie Structurale de l'Université Paris-Sud,
U.A. 1107 du CNRS, 91405 Orsay Cédex, France

(Received October 1, 1985)

INTRODUCTION

Nous avons étudié la cavitation accompagnant la déformation plastique par étirage de barres de zirconium polycristallines à l'aide de la technique de diffusion des neutrons aux petits angles (DNPA).

Ces dernières années, plusieurs travaux de recherche ont été entrepris à l'aide de la DNPA, sur les phénomènes de cavitation se produisant soit sous irradiation à fortes doses [1, 2], soit au cours d'essais de fatigue à chaud [3, 4].

Par rapport à ces études, notre travail, classique dans sa démarche expérimentale d'utilisation de la DNPA, présente par contre l'avantage de suivre l'endommagement d'un matériau dont le mode de déformation correspond à une opération industrielle de mise en forme par étirage.

METHODES EXPERIMENTALES

Le zirconium considéré dans cette étude était de pureté nucléaire. Trois états différents par leur déformation ont été soumis à l'analyse par DNPA. L'état dit "initial" correspond à celui de barres de 50mm de diamètre filées à chaud. Le diamètre de ces barres est ensuite amené par usinage à 25mm, puis par martelage à 18mm (déformation équivalente: $\bar{\epsilon} = 0,66$). Ces barres subissent alors un recuit de recristallisation pendant 7h à 650°C. Une première réduction de diamètre de 18 à 16,5mm ($\bar{\epsilon} = 0,17$) par étirage conduit à l'état dit "intermédiaire", une deuxième réduction de 16,5 à 13mm ($\bar{\epsilon} = 0,48$) par filage sous gaine d'acier inoxydable conduit à l'état dit "final".

Les expériences de DNPA ont été réalisées au Laboratoire Léon BRILLOUIN (CNRS-CEA, Saclay, France) et les résultats obtenus ont été traités à l'aide des programmes standards qui y sont disponibles. En utilisant deux longueurs d'onde différentes ($\lambda = 0,96\text{nm}$ et $1,48\text{nm}$), pour une distance échantillon-détecteur de 5 mètres, les inconvénients dus à la diffraction multiple ont pu être minimisés. Le domaine de diffusion ainsi accessible est tel que $3 \cdot 10^{-3}\text{nm}^{-1} < q < 5 \cdot 10^{-2}\text{nm}^{-1}$; q étant le vecteur de diffusion défini par $q = 4\pi \sin \theta \cdot \lambda^{-1}$, où 2θ est l'angle de diffusion. Les intensités diffusées ont été enregistrées à l'aide d'un détecteur bidimensionnel et ont été transformées en section efficace différentielle cohérente ($d\sigma/d\Omega$) par calibration par rapport au spectre de diffusion de l'eau par l'équation de base suivante:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(q) = \frac{(I_E - T_E I_R) T_E}{(I_{H_2O} - T_{H_2O} I_{CV}) T_{H_2O}} \cdot \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{H_2O} \quad (1)$$

dans laquelle:

- σ représente la section efficace de diffusion cohérente;
- Ω l'angle solide dans lequel s'opère la diffusion
- T le facteur de transmission, de l'eau: T_{H_2O} , de l'échantillon considéré: T_E ,
- I l'intensité diffusée, par l'échantillon: I_E , par l'eau: I_{H_2O} , par le dispositif expérimental (y compris le porte échantillon vide): I_R , par la cellule d'eau de calibration vide: I_{CV} .

Nos échantillons avaient la forme de cylindres de 50mm d'épaisseur et le volume de matière

Irradié était de 2268mm^3 , le diamètre du faisceau étant de 7,6mm. L'axe de révolution de ces cylindres, qui a été placé parallèlement à la direction du faisceau de neutrons, coïncidait avec la direction d'étrépage du matériau.

RESULTATS ET DISCUSSION

Les Intensités diffusées se présentaient distribuées de manière isotrope dans le plan d'observation, ce qui nous a permis de les regrouper et de les traiter à l'aide des programmes isotropes. Ce fait nous a donc suggéré d'utiliser les modèles les plus simples considérant des cavités de forme sphérique. L'utilisation de l'approximation exponentielle de GUINIER [4], applicable en système dilué, aux courbes de diffusion obtenues à l'aide des deux longueurs d'onde différentes, nous a permis:

- d'une part, de mettre en évidence l'existence d'une distribution de la taille des cavités quel que soit l'état de déformation, car les points des diagrammes de GUINIER (Fig. 1 et 2) ne sont pas alignés sur des droites;
- d'autre part, d'accéder avec la plus grande longueur d'onde ($\lambda = 1,48\text{nm}$) à des cavités un peu plus grosses dans la distribution en taille ($R_G \approx 40\text{nm}$) que celle ($R_G \approx 30\text{nm}$) accessibles avec $\lambda = 0,96\text{nm}$ (cf. Tableau I), et dont la fraction volumique semble être peu différente compte tenu de la valeur extrapolée de $d\sigma/d\Omega$ (pour $q \rightarrow 0$) dans le cas des deux longueurs d'onde.

Les diamètres des cavités ont été calculés en supposant des particules diffusantes uniformément distribuées dans le volume analysé. Dans cette hypothèse le diamètre des sphères correspondantes, D, vaut $2R_G$ (R_G étant le rayon de GUINIER). $R_G = R_g \sqrt{5/3}$ où R_g est le rayon de giration.

Tableau I

Echantillon	$\bar{\epsilon}$	$R_g(\text{nm})$ 0,96/1,48	D (nm) 0,96/1,48	$\Delta S/V(\text{nm}^{-1})$ 0,96/1,48	$R_p(\text{nm})$ 0,96/1,48	$-\Delta d/d \cdot 10^{-6}$	Df 0,96/1,48
INITIAL	0,66	32/41	82/106	344/183	15/30	3,73	2,34/2,48
INTERMED.	0,17	32/40	82/103	852/341	15/30	114	2,27/2,28
FINAL	0,48	30/42	77/108	1126/239	15/30	495	2,21/2,02

Afin de comparer ces résultats avec ceux obtenus par une autre approche de l'endommagement, nous avons effectué des observations en microscopie électronique à balayage sur l'état final (fig. 3). Les cavités qui sont détectées ont des tailles de l'ordre de $0,25\mu\text{m}$ à $3\mu\text{m}$. Il n'y a pas là contradiction mais confirmation du fait que la distribution en taille des cavités s'étale sur une très large bande, les domaines de détection des deux techniques (DNPA et MEB) étant sensiblement adjacents avec peu ou pas de recouvrement.

Dans la figure 4, nous avons représenté l'évolution de la surface totale des cavités diffusantes dans le volume irradié ($\Delta S/V$ dans le Tableau I), pour les deux longueurs d'onde considérées dans ce travail. Rappelons que $\Delta S/V$ est obtenu à partir de l'approximation asymptotique de POROD [4] suivant l'équation:

$$\frac{\Delta S}{V} = \frac{d\sigma}{d\Omega} \Big|_{q \rightarrow \infty} \cdot \frac{q^4}{2\pi (\Delta\rho)^2} \quad (2)$$

dans laquelle $\Delta\rho$ représente la différence de longueur de diffusion cohérente entre le matériau ($\rho_{Zr} = 0,71 \cdot 10^{-12}\text{cm}$) et le vide ($\rho = 0$). Pour $\lambda = 0,96\text{nm}$, nous constatons une augmentation de ($\Delta S/V$) de l'état initial à l'état final. Compte tenu que les rayons de POROD (Tableau I) des cavités diffusantes sont similaires, on peut conclure que le nombre de ces cavités augmente nettement avec le taux de déformation imposé au cours des deux réductions de section des barres filées.

Par contre pour $\lambda = 1,48\text{nm}$, on note que ($\Delta S/V$) n'évolue pas de façon significative. Dans le Tableau I, nous avons porté les densités relatives des échantillons ($-\Delta d/d$), on observe une chute importante de la densité. Donc si l'on analyse simultanément tous les résultats, on note la présence de grosses cavités ($\sim 1\mu\text{m}$) "invisibles" en DNPA, que la population de moyennes cavités ($\sim 0,1\mu\text{m}$) reste stable, et que la population de petites cavités ($< 0,1\mu\text{m}$) augmente fortement, toutes ces cavités contribuant à la chute de la densité. On peut donc supposer qu'il y a deux phénomènes: le grossissement des cavités (croissance) et l'apparition de nouvelles cavités de petites tailles

(germination).

Ces résultats sont en bon accord avec les conclusions de R. PAGE, J. R. WEERTMAN et M. ROTH [3] qui ont étudié la cavitation dans les joints de grain du cuivre de haute pureté, induite lors d'essais de fatigue effectués à haute température. Ces auteurs ont en effet montré, qu'en fonction du nombre croissant de cycles, il se produit d'une part un déplacement vers les diamètres plus grands et d'autre part une nette augmentation du nombre de ces cavités. Les rayons de GUINIER et de POROD restent respectivement pour les trois états identiques à 5% près.

En appliquant la loi de POROD ($d\sigma/d\Omega = C_4/q^4$ avec $C_4 =$ constante de POROD), nous avons constaté une variation de l'exposant théorique -4 de cette loi, Fig. 5 et 6.

En effet, en passant de l'état initial à l'état final, la valeur de cet exposant évolue entre -3 et -4. Signalons que BOEUF et al. [6], dans l'étude de la précipitation des carbures $M_{23}C_6$ dans les aciers AISI 304, ont trouvé une pente de -3,7 dans le graphe de POROD pour l'échantillon vieilli à 700°C pendant 5 jours. Ces auteurs ont conclu à une bonne vérification de la loi de POROD (avec un exposant de -4) sans entrer dans le détail de la considération de la netteté de l'interface précipités-matrice sur le plan de la rugosité ou des fluctuations de la distribution des atomes. Alors qu'une variation semblable à celle obtenue sur le zirconium a été trouvée par H. D. BALE et P. W. SCHMIDT [7], dans l'étude de certains charbons, du type lignites. Ces auteurs ont proposé d'expliquer ce fait à l'aide d'un modèle qui considère la qualité de l'interface cavité-matrice. Dans cette nouvelle approche, $d\sigma/d\Omega = f(q^{-\alpha})$ où $\alpha = (6 - D_f)$ étant un coefficient dont les valeurs atteintes sont liées à la rugosité de l'interface séparant la particule diffusante de la matrice; ceci est traduit par les valeurs du coefficient D_f (dimension fractale). Pour $D_f = 2$, l'interface est supposée lisse et on retrouve alors la valeur -4 de l'exposant de la loi de POROD.

Les figures 5 et 6 présentent les diagrammes de POROD, ainsi que les valeurs expérimentales de l'exposant de la loi de POROD. Les valeurs de D_f qui s'en déduisent sont portées dans le Tableau I. On constate dans les deux cas que D_f se rapproche de 2 de l'état initial vers l'état final, donc que la qualité de l'interface s'améliorerait statistiquement.

On peut émettre deux types d'hypothèses:

- soit les mécanismes de formation et de croissance des cavités sont différents. Le premier correspondant à la création d'une interface rugueuse à cause de la cristallographie de la déformation particulièrement sélective dans le cas du zirconium, ceci dans des zones de concentrations de contraintes: interfaces précipité-matrice, joints de grains, etc... [8]. Le second provoquant un lissage statistique de l'interface. En effet, le caractère fractal est surfacique, alors que la croissance et la coalescence induisent une réduction du rapport surface-volume.

- soit le mécanisme de germination évolue de telle façon que les cavités qui "naissent" soient de moins en moins fractales. Cette seconde hypothèse pourrait correspondre au fait que les cavités qui "naissent" en premier apparaissent sur des défauts (incompatibilités de déformation) alors qu'ensuite des cavités "naissent" au milieu des grains.

Ces aspects sont à approfondir par des observations en microscopie électronique en transmission sur des répliques des surfaces des échantillons, ainsi que par des simulations d'évolutions de populations avec comme paramètres les cinétiques de germination et de croissance.

REMERCIEMENTS

Nous remercions vivement Mesdames A. BRULET, M. HENNION et M. B. FARNOUX du Laboratoire Léon Brillouin de Saclay d'avoir mis à notre disposition leur appareillage de diffusion neutronique aux petits angles et M. J. H. SCHMITT, chercheur au Laboratoire de Génie Physique et Mécanique des Matériaux de l'ENSIE de Grenoble, pour les mesures de densités relatives.

REFERENCES

- [1] J. E. EPPERSON, R. W. HENDRICKS et K. FARREL, *Philos. Mag.*, (1974), 30, 803-817.
- [2] C. HOFMEYER, K. ISEBECK et R. M. MAYER, *J. Appl. Cryst.* (1975), 8, 193-194.
- [3] R. PAGE, J. R. WEERTMANN et M. ROTH, *Acta Metall.* (1982), 30, 1357.
- [4] M. H. YOO, J. C. OGLE, B. S. BORIE, E. H. LEE et R. W. HENDRICKS, *Acta Metall.* (1982) Vol. 30, 1733-1742.
- [5] A. GUINIER, G. FOURNET, C. B. WALKER et K. L. YUDOWITCH, *Small-angle Scattering of X-rays* (Wiley, N. York 1955), p. 25, Eq (39).
- [6] A. BOEUF, R. G. M. CACIUFFO, R. COPPOLA, S. CRICO, S. MELONE, P. PULITI, R. REBONATO et F. RUSTICHELLI, *J. Nucl. Mat.*, (1984) p. 9, 127.
- [7] H. D. BALE et P. W. SCHMIDT, *Phys. Rev. Letters*, (1984) 53, 6, 596.
- [8] S. H. GOODS et L. M. BROWN, *Acta Metall.* (1979) 27, 1-15.

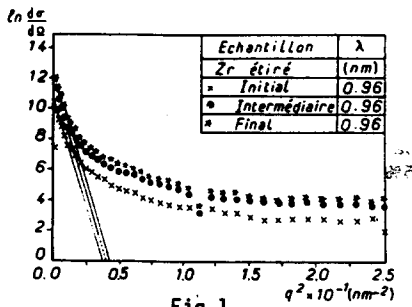


Fig.1

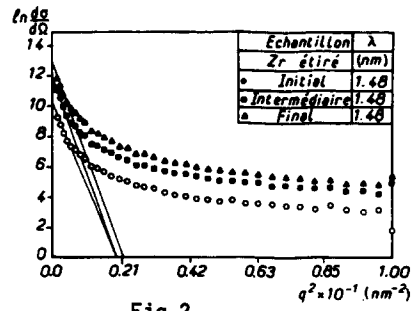


Fig.2

Diagrammes de GUINIER des résultats obtenus par DNPA pour les trois états déformés et les deux longueurs d'ondes utilisées.

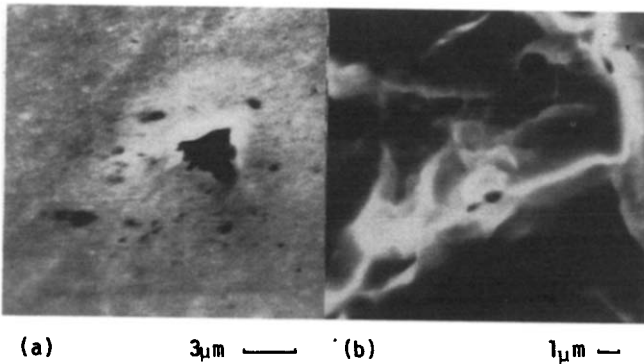


Fig.3 : Micrographies électroniques à balayage d'échantillons prélevés dans l'état final ayant subi un polissage ionique (a), ayant été rompu à l'azote liquide (b).

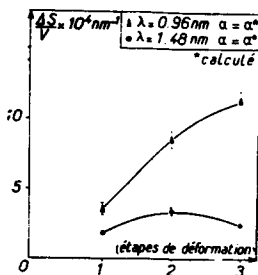


Fig.4: Graphes traduisant la variation de la surface spécifique des cavités diffusantes pour les trois états déformés et les deux λ considérées.

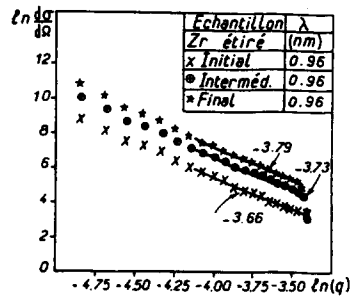


Fig.5 : Diagrammes de POROD des résultats obtenus par DNPA pour les trois états déformés étudiés avec $\lambda = 0.96$ nm.

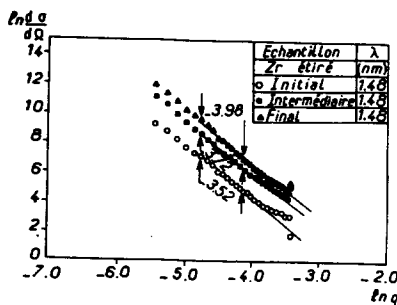


Fig.6 : Diagrammes de POROD des résultats obtenus par DNPA pour les trois états déformés avec $\lambda = 1.48$ nm.