

La rupture des graphites

Dominique Rouby, Stéphanie Monchaux et Bernard Tahon

Résumé

Lorsque les graphites industriels polygranulaires subissent une sollicitation mécanique, leur comportement est globalement fragile : une fissure s'amorce sur un défaut préexistant qui devient critique et elle se propage ensuite de façon plus ou moins catastrophique. Ceci a plusieurs implications qui sont décrites dans cet article. Tout d'abord, comme la rupture est amorcée par un défaut critique, la contrainte ultime est dispersée et n'est pas intrinsèque au matériau. Cet effet est décrit par la statistique de Weibull. Ensuite, le procédé d'élaboration du matériau introduit une anisotropie de la microstructure qui intervient directement sur la dispersion de la contrainte ultime. Enfin, la propagation de la fissure est contrôlée par un mécanisme de pontage qui dépend de la microstructure. Cet effet est décrit par la courbe de résistance à la propagation appelée « courbe R ».

Mots-clés

Graphite, fissure, statistique de Weibull, anisotropie, courbe R.

Abstract

The fracture of graphite

By mechanical loading, the behaviour of polygranular graphites for industrial uses is globally brittle: when a pre-existing flaw becomes critical a crack initiates and then propagates more or less catastrophically. This scheme implies several features which are described in the present paper. First, as the crack will be initiated at a critical flaw, the ultimate stress appears as largely dispersed and the strength is not an intrinsic material's parameter. Secondly, the processing route introduces in the material some microstructure anisotropy, largely influencing the strength dispersion. Finally, the crack propagation is controlled by a bridging mechanism of the lips which depends on the microstructure. This effect can be described by the so-called crack growth resistance curve: the R-curve.

Keywords

Graphite, crack, Weibull's statistics, anisotropy, R-curve.

La mécanique de la rupture ne doit pas faire peur...

Les graphites artificiels produits industriellement sont utilisés dans de nombreuses applications thermomécaniques : électrodes de fours à arc d'aciérie, cathodes dans les cuves d'électrolyse pour la fabrication de l'aluminium [1], modérateurs neutroniques de centrales nucléaires [2], récipients pour la chimie à chaud, etc.

Ces matériaux sont polygranulaires et présentent un comportement mécanique relativement fragile car leur rupture est due à l'amorçage et à la propagation d'une fissure. L'objet de

cet article est d'illustrer ce comportement et de décrire les essais mécaniques qui permettent de le caractériser. Pour ce faire, nous nous basons sur des résultats obtenus avec des graphites standards produits par la société SGL Carbon.

Ces matériaux sont constitués de particules dont l'empilement granulométrique est contrôlé et dont la cohésion est assurée par un liant. La première étape de l'élaboration consiste à mélanger, à température modérée, les grains de coke ou de graphite avec un brai. Cette pâte est ensuite mise en forme par filage ou pressage, soit encore par vibrotassage. Le produit cru ainsi obtenu subit alors un premier traitement thermique de carbonisation à une température de 800 à 1 000 °C pour éliminer tous les volatils qui sont présents dans le brai. La structure carbonée est ensuite portée à très haute température (3 000 °C) pour assurer sa graphitisation. Il est important de souligner que les opérations de mise en forme et de carbonisation déterminent la microstructure du matériau, que ce soit en termes d'orientation des particules initiales que de porosité. Cette dernière est elle-même plus ou moins orientée. Le produit final présente donc une certaine anisotropie des propriétés, qu'elles soient physiques ou mécaniques.

Pour illustrer le comportement à la rupture, nous considérons deux nuances de graphites. La première contient des grains de 1,6 mm de taille maximale (notée gros grains), alors qu'elle est de 0,15 mm dans la seconde nuance (notée grains fins). Nous considérons aussi les deux directions d'anisotropie (cf. figure 1).

Dans ce qui suit, nous présentons une démarche progressive de l'approche du comportement à la rupture de ce type

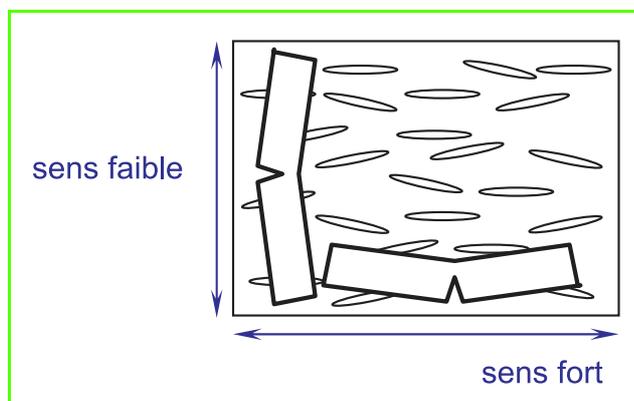


Figure 1 - Schéma de l'anisotropie de la microstructure et de la découpe des barreaux testés.

de matériaux. Le texte comprend un certain nombre d'équations, celles-ci ne sont données qu'à titre d'illustration des outils dont dispose le spécialiste de ce domaine.

L'essai de rupture est très simple, mais pas parlant

Pour caractériser le comportement à la rupture, l'essai le plus simple à mettre en œuvre est l'essai de flexion. L'essai de traction a l'avantage d'être plus facile à analyser, mais il a l'inconvénient majeur d'être très sensible aux défauts d'alignement et les éprouvettes sont aussi nettement plus difficiles à usiner. Dans le cas de l'essai de flexion sur un barreau (de section $B \times W$, *figure 2*), la contrainte à rupture, σ^R , est déduite de la force maximale, P_{\max} , par l'expression classique suivante (où B est la largeur du barreau) :

$$\sigma^R = \frac{3 P_{\max} (S - S')}{2 B W^2} \quad (1)$$

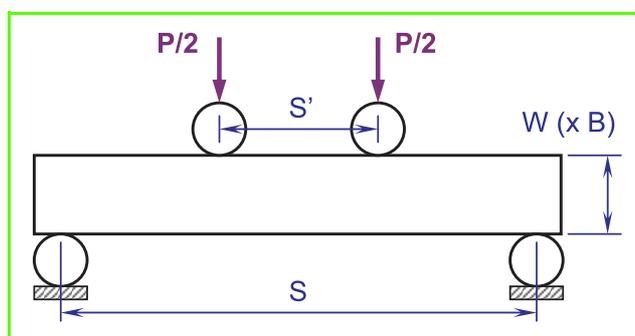


Figure 2 - Essai de flexion 4 points.

On fait croître la force appliquée P jusqu'à P_{\max} où le barreau se rompt, le plus souvent brutalement.

La *figure 3* montre les histogrammes des contraintes ultimes mesurées dans le sens fort (cf. *figure 1*) pour les deux nuances. On constate que les contraintes ultimes sont très dispersées et cela illustre le fait que la rupture est amorcée sur un défaut préexistant qui varie d'une éprouvette à l'autre. On voit aussi que la microstructure à gros grains conduit à une résistance mécanique plus faible. Comme nous le verrons plus loin, ceci provient du fait que les défauts initiaux associés à une microstructure à gros grains sont de plus grande taille et deviennent critiques plus vite.

Pour analyser plus finement ce genre de résultats, on utilise la statistique de Weibull [3]. Cette statistique est basée sur l'hypothèse du maillon le plus faible : si un élément local (un maillon) dans le solide considéré se rompt, l'ensemble du solide est réputé rompu. Dans ces conditions, la probabilité de survie P_S et la probabilité de rupture P_R s'écrivent comme suit :

$$P_S = 1 - P_R = \exp \left[- \int_V \left(\frac{\sigma}{\sigma_0} \right)^m dV \right] \quad (2)$$

avec V : volume du solide, σ_0 : facteur d'échelle et m : module de Weibull.

Le module de Weibull rend compte de la largeur de la distribution : plus m est grand, plus la distribution est resserrée. En résumé, le coefficient de variation (écart-type/moyenne) varie comme l'inverse de m .

Dans le cas d'un chargement en traction où la contrainte est uniforme dans tout le volume, l'équation (2) s'écrit :

$$P_S = 1 - P_R = \exp \left[- V \left(\frac{\sigma}{\sigma_0} \right)^m \right] \quad (3)$$

et la contrainte ultime moyenne est donnée par :

$$\langle \sigma^R \rangle_{\text{traction}} = \frac{\sigma_0}{\sqrt{m}} \Gamma \left(1 + \frac{1}{m} \right) \quad (4)$$

avec $\Gamma(y)$: fonction gamma.

La statistique de Weibull rend compte d'un effet de volume : la résistance mécanique d'un solide est d'autant plus grande que le volume sollicité est petit. Dans le cas de la flexion, l'intégration de l'équation (2) conduit à une résistance ultime moyenne plus grande (flexion avec $S = 2 S'$) :

$$\langle \sigma^R \rangle_{\text{flexion}} = \langle \sigma^R \rangle_{\text{traction}} \left[\frac{4(m+1)^2}{m+2} \right]^{\frac{1}{m}} \quad (5)$$

La résistance en flexion est donc plus grande que celle en traction. Il s'agit encore de l'effet de taille : en flexion, la zone où la contrainte est suffisamment grande pour conduire à la rupture est bien plus petite que le volume du barreau sollicité en traction où la contrainte est uniforme dans tout le volume ($V = S B W$).

Dans la pratique, on teste N éprouvettes identiques. Si n éprouvettes sont rompues à la contrainte σ , on utilise usuellement l'estimateur $(n-0,5)/N$ pour évaluer $P_R(\sigma)$. Conformément à l'équation (3), le tracé de $\ln(\ln(1/P_S))$ en fonction de $\ln(\sigma)$ donne une droite de pente m : c'est le diagramme de Weibull. La *figure 4* montre les diagrammes de Weibull obtenus pour les deux nuances testées suivant les directions forte et faible.

On retrouve la différence de la *figure 3* entre les grains fins et les gros grains. On constate également l'effet de l'anisotropie sur les positions des distributions entre la direction forte et la direction faible (cf. *figure 1*). Dans la direction faible, les défauts préexistants sont de plus grande taille et celle-ci est plus dispersée (module de Weibull plus petit). C'est particulièrement net dans le cas des gros grains.

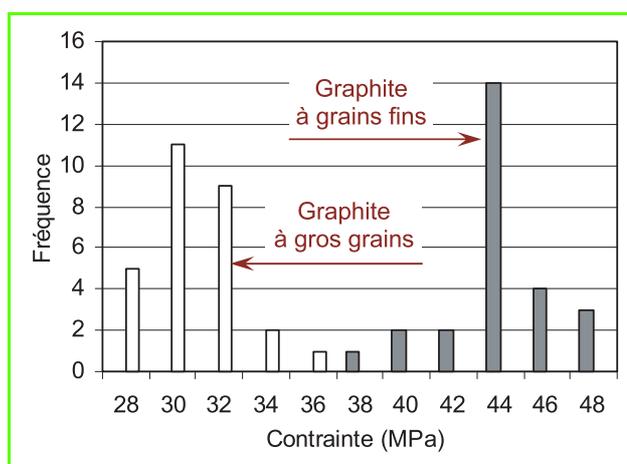


Figure 3 - Histogrammes des contraintes ultimes obtenues en flexion 4 points, pour un graphite à grains fins et un graphite à gros grains dans le sens fort.

La fréquence correspond au nombre de ruptures entre $\sigma - 1$ MPa et $\sigma + 1$ MPa, où σ est la contrainte spécifiée en abscisse.

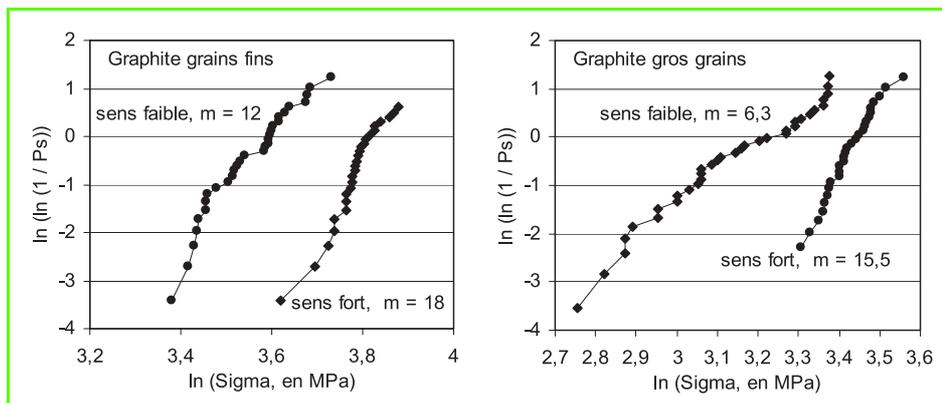


Figure 4 - Diagrammes de Weibull obtenus pour des graphites à grains fins (à gauche) et à gros grains (à droite).

Les positions respectives des courbes illustrent la différence entre les sens faible et fort. La pente de chaque alignement illustre la largeur de la distribution : si la distribution est large, le module de Weibull est petit.

L'analyse de la contrainte ultime *via* la statistique de Weibull donne des informations extrêmement utiles à l'élaborateur sur la taille et l'orientation des défauts introduits lors des étapes de fabrication et d'usinage, et donc sur la qualité du produit. En revanche, nous n'avons pas d'information intrinsèque au matériau quant aux conditions d'amorçage et de propagation d'une fissure.

Comment maîtriser le défaut pour caractériser l'amorçage ?

Pour étudier ces conditions d'amorçage, on introduit dans l'éprouvette une entaille dont on connaît les dimensions. La figure 5 montre une éprouvette entaillée testée en flexion (éprouvette SENB, « single edge notched beam »). L'entaille subit alors un mode de chargement d'ouverture, dit mode I (les modes II et III sont des modes en cisaillement).

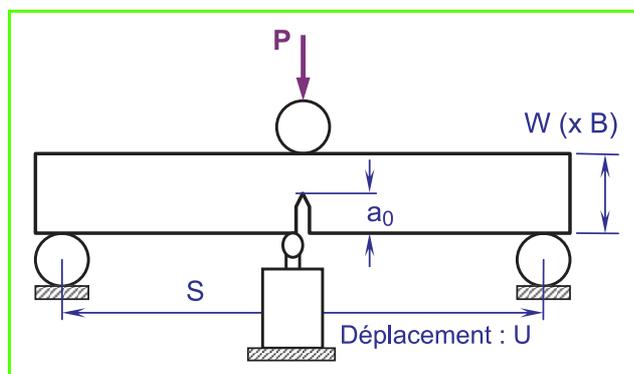


Figure 5 - Schéma de l'éprouvette SENB en flexion 3 points.

Un capteur de déplacement mesure la flèche et donc le déplacement du point d'application de la force.

En fond d'entaille, dont le rayon est supposé tendre vers zéro, la concentration de contrainte est déterminée par un facteur d'intensité de contrainte K_I (mode I). Dans le cas d'un matériau fragile, la rupture a lieu lorsque $K_I = K_{Ic}$, où K_{Ic} est le facteur d'intensité critique en mode I, la ténacité du solide, donné par l'expression suivante [4-5] (figure 5 : $S' = 0$) :

$$K_{Ic} = \frac{3}{2} \frac{P_{\max} (S - S')}{B W^2} Y \sqrt{a_0} \quad (6)$$

Y est un facteur géométrique qui dépend du type de flexion et de S/W et a_0/W . Pour un solide parfaitement fragile,

la ténacité mesurée ne dépend pas de la taille de la fissure. Dans ce cas, une fois amorcée, la fissure se propage de façon instable, conduisant à une rupture brutale.

On peut aussi définir le paramètre G_{Ic} : l'énergie unitaire de propagation de la fissure (appelée souvent de façon ambiguë taux de restitution d'énergie critique). Comme précédemment, la rupture a lieu si $G_I = G_{Ic}$ (G_I est l'énergie potentielle disponible ou la force motrice). Les grandeurs G_I , K_I ou G_{Ic} , K_{Ic} rendent compte du même concept et pour un barreau épais, elles sont reliées entre elles par :

$$G_I = \frac{K_I}{E} (1 - \nu^2) \quad \text{ou} \quad G_{Ic} = \frac{K_{Ic}}{E} (1 - \nu^2) \quad (7)$$

avec E , le module d'élasticité (module d'Young) et ν , le coefficient de Poisson.

Lorsque la fissure progresse, elle rencontre une résistance croissante

Un exemple de courbe force/déplacement obtenue avec le graphite à gros grains est donné figure 6. L'amorçage de la fissure se traduit par un écart à la linéarité. La fissure se propage ensuite de façon stable, ce qui porte à penser que la résistance à la propagation de la fissure croît à mesure qu'elle augmente en taille. La ténacité n'est donc pas constante et on a l'habitude d'utiliser les paramètres de résistance à la propagation R et K_{Rc} (propagation si $G_I = R$ ou, ce qui est équivalent, si $K_I = K_{Rc}$).

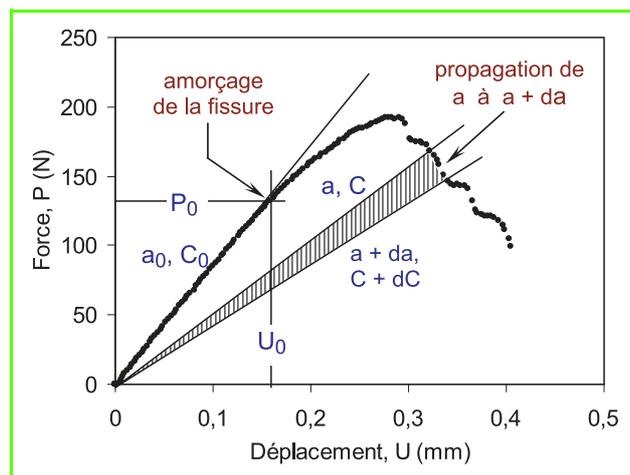


Figure 6 - Courbe force/déplacement obtenue avec $a_0/W = 0,62$ pour le graphite à gros grains.

A mesure que la fissure se propage, la complaisance du barreau ($C = U/P$) augmente. Sous condition de déplacement imposé, l'énergie de propagation provient de la relaxation de l'énergie élastique stockée dans le barreau. Sous charge imposée, le travail de la force appliquée sert pour moitié à accroître l'énergie élastique et pour moitié à fournir l'énergie nécessaire à la propagation. Cette énergie correspond à l'aire triangulaire grisée sur la figure 6, si la fissure voit son aire

augmenter de $B \cdot da$ (la complaisance augmente alors de dC). Dans ces conditions, la résistance à la propagation s'écrit :

$$R = \frac{P^2}{2B} \frac{dC}{da} \quad (8)$$

On fait l'hypothèse ici que le comportement du barreau fissuré est parfaitement élastique : le déplacement rémanent est nul après décharge. Dans la pratique, on observe un déplacement résiduel dont une grande partie est due à un empêchement de fermeture des lèvres de la fissure à cause de débris, frottements locaux, plastification. L'hypothèse élastique conduit à sous-estimer l'énergie de propagation mesurée, ce qui dans une optique de dimensionnement correspond à une option conservatrice.

Une courbe R consiste à tracer la résistance à la propagation de la fissure en fonction de son incrément, $\Delta a = a - a_0$ [5-6] (figure 7). Cette courbe, qui ne dépend pas de la taille a_0 de l'entaille initiale, rend compte de la progression d'une fissure à partir du fond de l'entaille. Sur la figure 7, relative aux deux graphites, on constate que la résistance à la propagation croît à partir d'une valeur d'amorçage R_0 , pour atteindre un plateau. Cet accroissement est nettement plus marqué dans le cas du graphite à gros grains. Pour les nuances étudiées ici, les sens fort et faible ne montrent pas de différence nettement significative de niveau du plateau, que les grains soient gros ou fins.

L'accroissement de résistance entre l'amorçage en fond d'entaille et le plateau traduit l'existence d'un mécanisme de renforcement qui opère en fond de la fissure naturelle et qui est absent en fond d'entaille [7]. Dans les graphites, ce mécanisme est associé à la tortuosité de la fissure naturelle qui génère une interaction mécanique entre les lèvres de la fissure. Ce mécanisme est très schématiquement décrit dans la figure 8.

L'entaille étant usinée, on ne peut pas de ce fait considérer que le rayon en fond de l'entaille macroscopique soit nul (condition pour définir un facteur d'intensité de contrainte K). Néanmoins, des défauts préexistants (pores, microfissures) qui remplissent cette condition sont présents en fond d'entaille. Compte tenu de l'entaille, ces défauts ont une taille effective très peu différente de a_0 . L'amorçage de la fissure se fait lorsque la force motrice atteint K_0 ou R_0 (ces deux grandeurs sont reliées par une expression analogue à l'équation (7)). Dans ces conditions, K_0 représente la ténacité intrinsèque du squelette grains plus liant. Pour les graphites testés ici, elle est de l'ordre de $1 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$. Notons que l'amorçage est difficile à estimer avec précision car il se traduit expérimentalement par l'apparition très progressive d'une non-linéarité.

A mesure que la fissure progresse et devient plus tortueuse, par exemple par contournement des grains, la force motrice est écrantée : le facteur d'intensité de contrainte en fond de fissure est inférieur à celui induit par la force appliquée. Il en résulte donc une augmentation de la résistance à la propagation (figure 8, au milieu). Ce phénomène est essentiellement induit par des forces de frottement entre grains en regard qui se déchaussent dans la zone de pontage.

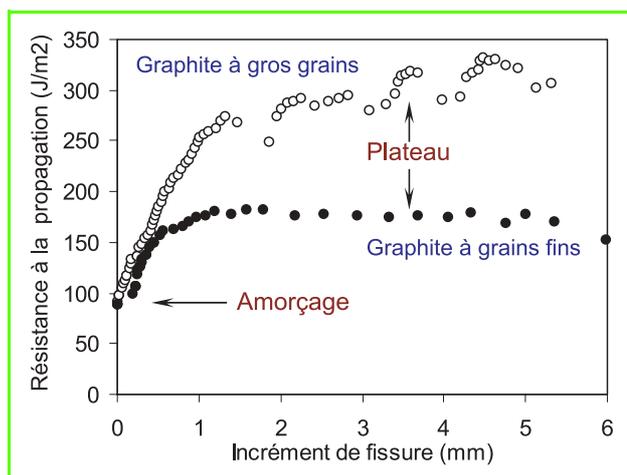


Figure 7 - Exemples de courbes R .

Les éprouvettes sont prélevées suivant la direction forte avec une entaille telle que $a_0/W = 0,5$.

Pour une ouverture de fissure donnée, les grains en regard ne sont plus en contact et cela définit une dimension limite de la zone pontée, qui se déplace alors derrière le fond de fissure de façon stationnaire (figure 8, à droite). Dans cette situation, la résistance à la propagation est constante, c'est le plateau. On conçoit aisément dans ce schéma que le pontage et donc le niveau du plateau sont d'autant plus importants que la taille des grains est grande. Dans le cas des gros grains, cet effet de renforcement revient à multiplier par trois la ténacité d'amorçage.

La figure 9 montre une fissure amorcée à partir du fond d'entaille. La fissure est rendue observable en déposant avant

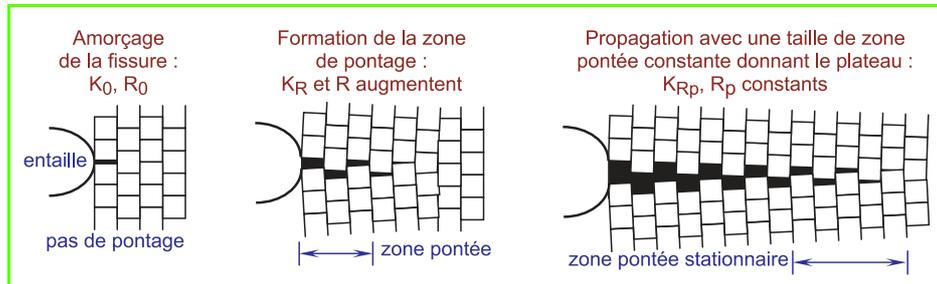


Figure 8 - Schéma du mécanisme de renforcement donnant lieu à l'effet de courbe R , de l'amorçage (à gauche) à la propagation stationnaire de la fissure (à droite).

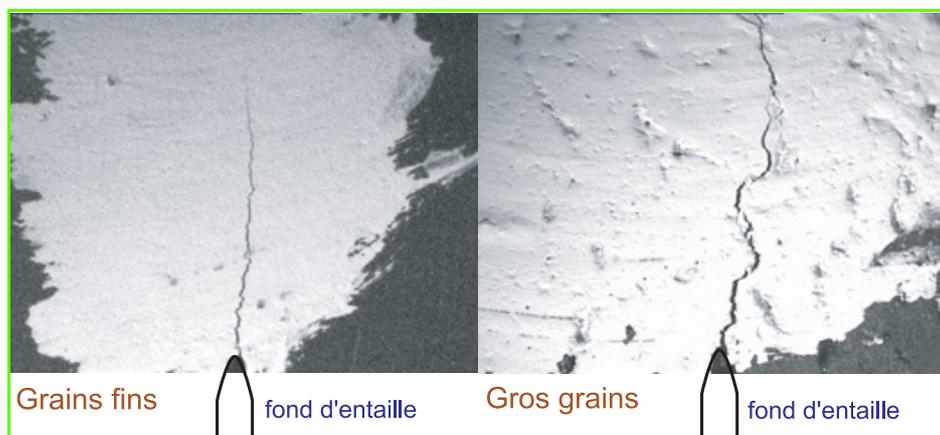


Figure 9 - Exemples de fissures observées sur le chant du barreau entaillé.

A gauche : grains fins ; à droite : gros grains. Avec les gros grains, la fissure demande une plus grande énergie pour se propager.

essai du correcteur blanc liquide de type Tippex. On constate que la fissure est nettement plus tortueuse dans le cas de la microstructure à gros grains. On conçoit aisément que les lèvres de la fissure puissent interagir mécaniquement comme schématisé dans la *figure 8*.

Quelle microstructure faut-il choisir ?

Nous avons donc le dilemme suivant pour optimiser une microstructure : des grains fins donnent une résistance à l'amorçage élevée car les défauts préexistants sont petits, mais en cas de surcharge, la fissure rencontre une faible résistance pour se propager. C'est l'inverse avec les gros grains : l'amorçage est très facile, mais la fissure résultante peut se stabiliser. Notons enfin que le renforcement dû au pontage peut être réduit à long terme par la dégradation du mécanisme de pontage, soit sous l'effet de l'oxydation, soit par effet d'usure aux contacts sous sollicitation cyclique de fatigue. Cela conditionne donc la durée de vie de la structure, mais c'est une autre histoire...

Références

- [1] Allard B., Les matériaux carbonés utilisés dans l'industrie de l'aluminium : élaboration, applications et propriétés, *L'Act. Chim.*, **2006**, 295-296, p. 67.
- [2] Bonal J.-P., Gosmain L., Les graphites pour les applications nucléaires, *L'Act. Chim.*, **2006**, 295-296, p. 23.
- [3] Weibull W., A statistical distribution function of wide applicability, *J. Appl. Mech.*, **1951**, 18, p. 93.
- [4] Munz D., Fett T., *Ceramics. Mechanical Properties, Failure Behaviour, Materials Selection*, Springer, **1999**.
- [5] Broek D., *Elementary Engineering Fracture Mechanics*, Martinus Nijhoff, La Hague, **1986**.
- [6] Steinbrech R.W., R-curve behavior of ceramics, *Fracture Mechanics of Ceramics, Vol. 9*, R.C. Bradt *et al.* (eds), Plenum Press, New York, **1992**, p. 187-205.
- [7] Steinbrech R.W., Toughening mechanisms for ceramic materials, *J. Eur. Ceram. Soc.*, **1992**, 10, p. 131.



D. Rouby



B. Tahon

Dominique Rouby

(auteur correspondant)

est professeur au Groupe d'études de métallurgie physique et de physique des matériaux, INSA Lyon¹.

Stéphanie Monchaux

est étudiante au département Science et génie des matériaux de l'INSA de Lyon².

Bernard Tahon

est directeur du laboratoire SGL Carbon SAS³.



S. Monchaux

¹ GEMPPM UMR CNRS 5510, INSA de Lyon, Bâtiment Blaise Pascal, 69621 Villeurbanne Cedex.

Tél. : 04 72 43 80 64. Fax : 04 72 43 85 28.

Courriel : dominique.rouby@insa-lyon.fr

² Département Science et génie des matériaux, INSA de Lyon, Bâtiment Blaise Pascal, 69621 Villeurbanne Cedex.

³ SGL Carbon SAS, 131 Place Aristide Berges, Chedde, 74190 Passy.

édition
réalisation
de vos supports
éditables

internet
création graphique
de sites efficaces

identité
votre identité
graphique
personnalisée

séminaires
réalisation
de vos séminaires
sur mesure

Mag Design - www.magdesign.info - magdesign@cegetel.net - 06 12 96 20 25

mag
design

conception
graphique
pour l'édition
et le web