

## Mécanismes et modélisation de la rupture intergranulaire-Application à l'IASCC.

### 1. Contexte et objectifs

Les structures d'internes de cuves REP françaises sont élaborées en aciers inoxydables austénitiques, de nuance 304 hypereutectique pour l'enveloppe de cœur et de nuance 316 écroui pour les éléments (vis) assurant les liaisons mécaniques des différents éléments.

Classiquement ces aciers montrent une très bonne résistance à la corrosion sous contrainte. Après irradiation et sous chargement, les aciers austénitiques inoxydables montrent une évolution de leur microstructure qui induit une modification des propriétés mécaniques. On peut citer les défauts d'irradiation (Boucle de Franck et précipités) qui induisent un durcissement du matériau, une ségrégation intergranulaire qui induit in-fine à une fragilisation des joints de grain et la germination et la croissance de cavités et/ou de bulles d'hélium et d'hydrogène intragranulaires (phénomène de gonflement) qui modifient potentiellement la plasticité et les propriétés mécaniques. Cette dégradation des propriétés se traduit par une sensibilité à l'IASCC (corrosion sous contrainte assistée par l'irradiation) des vis d'internes caractérisée par une fissuration intergranulaire. A ce jour, malgré de nombreuses études à l'international, la compréhension des mécanismes de dégradation reste incomplète et ne permet pas de proposer une modélisation prédictive de la durée de fonctionnement de ces structures.

Cela résulte de la complexité des phénomènes liés à l'IASCC et de leur couplage plus ou moins marqué. La compréhension des mécanismes à l'origine de la rupture intergranulaire et des facteurs qui vont l'accélérer apparaît comme une étape clé dans la compréhension de l'IASCC. Pour pallier aux difficultés de caractérisation et de conduite d'essais sur les matériaux irradiés aux neutrons, des expériences analytiques sur des matériaux avec des microstructures représentatives sont développées dans les études amont de compréhension. Trois types de microstructures représentatives sont reportés dans la littérature : les microstructures obtenues par écrouissage à froid qui simulent le durcissement [Karlsen2010], les microstructures obtenues par un trajet de chargement mécanique qui simulent la formation de canaux de localisation [Cissé2013] et les microstructures irradiées aux particules, majoritairement des protons [Was2002, Jiao2007] et plus récemment des ions Fe [Gupta2016], qui permettent d'obtenir une bonne représentativité des phénomènes observés après irradiation aux neutrons. Classiquement l'étude de la fissuration intergranulaire est réalisée à l'échelle du polycristal, par exemple à partir d'essais de traction lente réalisés en autoclave. Les fissures sont observées post mortem, soit sur les faciès de rupture soit sur le fût de l'éprouvette par microscopie électronique à balayage. Ce type d'observations permet de mettre en évidence une sensibilité à l'amorçage et d'avoir accès à une distribution de fissures, informations riches pour la validation des modèles, mais incomplète pour développer une approche prédictive de la rupture intergranulaire. Récemment le développement des outils de micro-préparation (tel que le FIB (Focus Ion Beam)), de sollicitation mécanique et d'observations (MEB et MET) in-situ ont ouvert de nouvelles perspectives notamment vis-à-vis de l'étude de la fissuration intergranulaire. Des essais de micro-traction peuvent ainsi être utilisés pour caractériser le comportement après irradiation aux ions, par exemple aux protons d'un acier 304 [Vo2017] ou d'un monocristal de Ni après irradiation avec des ions He [Reichardt2015]. Ce type d'essais a, par ailleurs, été utilisé pour caractériser le mode et la contrainte de rupture de joint de grains pour différents taux d'implantation d'hélium dans un acier 316 [Miura2015] et l'effet de la fragilisation par hydrogène sur le mécanisme de fragilisation des joints de grains dans [Takahashi2016]. L'effet de l'oxydation en surface sur la contrainte à rupture d'un joint de grain oxydé sur un acier base Nickel non irradié à partir d'essais de flexion sur micro-poutre a été ainsi pu être évalué dans [Dohr2017].

Dans le cadre d'une approche micro-mécanique de la modélisation de la rupture intergranulaire des aciers inoxydables austénitiques, on s'intéresse dans cette étude à la compréhension des mécanismes de rupture des joints de grains et à la détermination d'un critère de rupture (ténacité locale) des joints de grain en fonction de leur état (ségrégré, oxydé, irradié) à partir de caractérisations expérimentales multiéchelles (MEB in-

situ, TEM) et à l'application de ce critère pour simuler la fissuration intergranulaire à l'échelle du polycristal à partir de simulations par éléments finis. Cette étude s'inscrit dans la suite des thèses de J. Gupta (2012-2016) et d'Elie Paccou (2015-2018) consacrées à l'étude expérimentale des mécanismes d'IASCC.

L'objectif de la thèse est de pouvoir prédire, de manière quantitative, l'amorçage de la fissuration intergranulaire des aciers austénitiques inoxydables irradiés, à savoir le seuil d'amorçage, la densité de fissures en fonction du chargement, ainsi que la localisation de celles-ci. Pour cela, le programme technique de la thèse est structuré autour de **deux axes d'études** présentés ci-dessous, à savoir (1) : **Caractérisation expérimentale** de la résistance des joints de grains et (2) **Modélisation de l'amorçage** de la fissuration intergranulaire.

Le matériau de l'étude sera un **acier austénitique inoxydable de nuance 304L**, représentatif des structures internes de cuve, qui a été caractérisé au cours d'études précédentes montrant notamment une sensibilité à la corrosion sous contraintes à la fois à l'état irradié mais aussi non irradié. Le matériau sera décliné sous différents états :

- **Etat de référence** ;
- **Etat laminé** afin de simuler le durcissement d'irradiation ;
- **Etat avec chimie modifiée** afin de simuler la ségrégation aux joints de grains observée après irradiation ;
- **Etat irradié aux protons** représentatif d'une irradiation aux neutrons.

En préliminaire, une **étude bibliographique** sera réalisée visant à réaliser une synthèse exhaustive portant sur les points suivants :

- Effets d'irradiation sur les propriétés des joints de grains des aciers austénitiques inoxydables
- Mécanismes de fissuration intergranulaire des aciers austénitiques inoxydables ;
- Résistance des joints de grains (oxydés) des aciers austénitiques inoxydables ;
- Modélisation de l'amorçage de la fissuration intergranulaire.

### **(1) Caractérisation expérimentale de la résistance des joints de grains**

Pour les différents états du matériau, trois protocoles expérimentaux seront réalisés afin de caractériser la résistance des joints de grains :

#### **a. Expériences sur micro-poutres**

A partir d'échantillons pré-oxydés en milieu représentatif REP, des micro-poutres seront usinées par Focused-Ion-Beam (FIB) au niveau de joints de grains, ce qui permettra de caractériser le comportement mécanique et la fissuration en fonction du type de joints de grains. Ces expériences seront réalisées au CEMES de Toulouse qui dispose d'une expertise dans ce domaine.

#### **b. Expériences de traction lente interrompu**

Des essais de traction lente seront réalisés en milieu représentatif REP, interrompus à différents niveaux de contraintes / déformations plastiques, puis caractérisés par Microscopie Electronique à Balayage (MEB) afin d'obtenir la localisation des fissures (par EBSD) et leurs densités.

#### **c. Caractérisation des pointes de fissures par MET**

Des observations MET seront réalisées au niveau des joints de grains en pointe de fissure à partir des essais réalisés en a et b. Ces observations permettront de caractériser les mécanismes de plasticité et d'endommagement des joints de grains et de valider la pertinence de l'échelle de modélisation.

Ces trois types de caractérisations expérimentales permettront à la fois d'avoir des données statistiques de fissuration intergranulaire (b) et également des données quant aux mécanismes de fissuration et de résistance des joints de grains (a,c), servant de données d'entrée pour la modélisation

## (2) Modélisation de l'amorçage de la fissuration intergranulaire

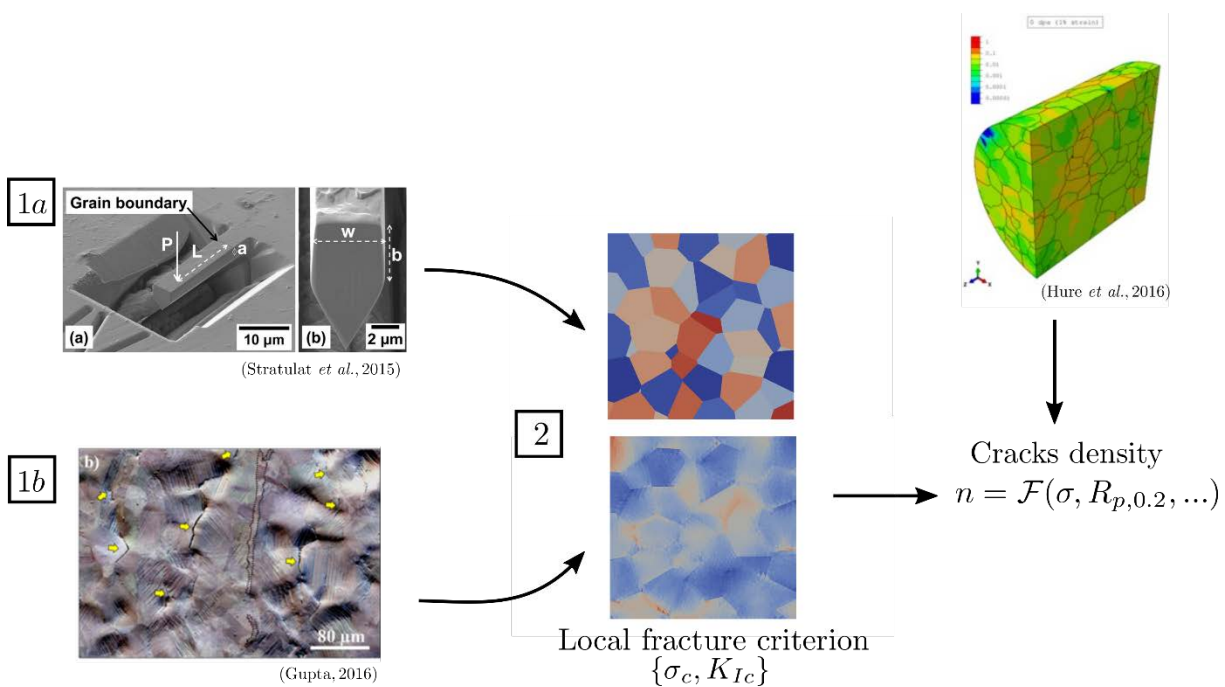
La modélisation se déclinera en deux phases, la première portant sur la simulation numérique des expériences réalisées, la deuxième dans la proposition d'une loi d'amorçage de fissuration intergranulaire.

### a. Détermination d'un critère de rupture

Les expériences de micro-poutre et de traction lente seront simulées par éléments finis en utilisant les lois de plasticité cristallines développées pour décrire les aciers inoxydables non irradié et irradié afin de proposer un critère de rupture qui permet de reproduire le seuil d'amorçage ainsi que la localisation des fissures. La dépendance du critère en fonction des états du matériau (référence, laminé, chimie modifié et irradié) sera étudiée.

### b. Vers une loi d'amorçage de la fissuration intergranulaire

Associé au critère de rupture des joints de grains, les distributions de contraintes intergranulaires proposées dans la littérature seront utilisés pour aboutir à une loi décrivant statistiquement l'amorçage de la fissuration intergranulaire, plus particulièrement la densité de fissures en fonction de l'état du matériau et du niveau de chargement. Des calculs d'agrégats polycristallins complémentaires pourront être réalisés afin d'ajuster les lois proposées.



### Références :

[Karlsen2010] W. Karlsen, G. Diego, B. Devrient, J. Nuc. Mater. 406 (2010) 138-151

- [Vo2017] H.T. Vo, A. Reichardt, D. Frazer, N. Bailey, P. Chou, P. Hosemann, *J. Nuc. Mater.* 493 (2017) 336-342
- [Reichardt2015] A. Reichardt, M. Ionescu, J. Davis, L. Edwards, R.P. Harrison, P. Hosemann, D. Bhattacharyya, *Acta Materialia* 100 (2015) 147–154
- [Dohr2017] J. Dohr, D. E.J. Armstrong, E. Tarleton, T. Couvant, S. Lozano-Perez, *Thin Solid Films* 632 (2017) 17–22
- [Takahashi2016] Y. Takahashi and al., *Materials Science & Engineering A* 661 (2016) 211–216
- [Cissé2013] S. Cissé, L. Laffont, M-C Lafont, B. Tanguy, E. Andrieu, *J. Nuc. Mater.* 433 (2013) 319–328
- [Gupta2016] J. Gupta, J. Hure, B. Tanguy, L. Laffont, M.-C. Lafont, E. Andrieu, *J. Nuc. Mater.* 476 (2016) 82-92
- [Was2002] G.S. Was et al., *J. Nuc. Mater.* 300 (2002) 198–216
- [Jiao2007] Z. Jiao, J.T. Busby, G.S. Was, *J. Nuc. Mater.* 361 (2007) 218–227