



**HAL**  
open science

# Approche micromécanique et modélisation de la rupture intergranulaire : application à la corrosion sous contrainte assistée par l'irradiation

Rachma Azihari

► **To cite this version:**

Rachma Azihari. Approche micromécanique et modélisation de la rupture intergranulaire : application à la corrosion sous contrainte assistée par l'irradiation. Matériaux. Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2023. Français. NNT : 2023TOU30115 . tel-04266108

**HAL Id: tel-04266108**

**<https://theses.hal.science/tel-04266108>**

Submitted on 31 Oct 2023

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



# THÈSE

En vue de l'obtention du

**DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE**

Délivré par : *l'Université Toulouse 3 Paul Sabatier (UT3 Paul Sabatier)*

---

---

Thèse soutenue le 17/05/2023 par :

**Rachma AZIHARI**

**Approche micromécanique et modélisation de la rupture intergranulaire -  
Application à la corrosion sous contrainte assistée par l'irradiation**

---

---

## JURY

ERIC ANDRIEU  
CÉCILIE DUHAMEL  
GUILLAUME KERMOUCHE  
PHILIPPE PAREIGE  
JEAN-MARIE GATT  
MARC LEGROS  
JÉRÉMY HURE  
BENOÎT TANGUY

Président de jury  
Rapporteur  
Rapporteur  
Examineur  
Examineur  
Directeur de thèse  
Co-directeur de thèse  
Encadrant

---

**École doctorale et spécialité :**

*SDM : Physique de la matière - CO090*

**Unité de Recherche :**

*CEMES-Centre d'élaboration de Matériaux et d'Études Structurales*



# Table des matières

<b>I. Étude bibliographique</b>	<b>9</b>
1. Mécanismes et modélisation de l'IASCC . . . . .	11
1.1. Mécanismes de l'IASCC . . . . .	12
1.1.1. Effet de l'irradiation sur la microstructure . . . . .	12
1.1.2. Effet de l'irradiation sur les propriétés mécaniques et les mécanismes de déformation . . . . .	16
1.1.3. Effet de l'irradiation sur l'état de contrainte . . . . .	18
1.1.4. Effet de l'irradiation sur la corrosion intergranulaire . . . . .	19
1.1.5. Effet de l'irradiation sur la sensibilité à la fissuration des joints de grains	20
1.1.6. Facteurs prépondérants . . . . .	21
1.2. Modélisation de l'IASCC . . . . .	26
1.2.1. Modélisation à l'échelle macroscopique . . . . .	26
1.2.2. Modélisation à l'échelle microscopique . . . . .	26
2. Caractérisation expérimentale du comportement intragranulaire . . . . .	31
2.1. Essai de nano-indentation . . . . .	31
2.1.1. Principe de l'essai . . . . .	31
2.1.2. Résultats et interprétations . . . . .	31
2.1.3. Contraintes de réalisation et d'interprétation de l'essai . . . . .	33
2.1.4. Résultats disponibles dans la littérature . . . . .	34
2.2. Essai de compression de micro-piliers . . . . .	36
2.2.1. Principe de l'essai . . . . .	36
2.2.2. Contraintes de réalisation et d'interprétation de l'essai . . . . .	36
2.2.3. Résultats disponibles dans la littérature . . . . .	40
2.3. Essai de flexion de micro-poutres . . . . .	42
2.3.1. Principe de l'essai . . . . .	42
2.3.2. Contraintes de réalisation et d'interprétation de l'essai . . . . .	42
2.3.3. Résultats disponibles dans la littérature . . . . .	43
2.4. Essai de traction sur micro-éprouvettes . . . . .	45
2.4.1. Principe de l'essai . . . . .	45
2.4.2. Contraintes de réalisation et d'interprétation de l'essai . . . . .	45
2.4.3. Résultats disponibles dans la littérature . . . . .	45
2.5. Discussion sur les techniques adaptées . . . . .	46
2.6. Conclusion . . . . .	47
3. Caractérisation expérimentale du comportement intergranulaire . . . . .	48
3.1. Essai de flexion de micro-poutres bi-cristallines . . . . .	48
3.1.1. Principe de l'essai . . . . .	48
3.1.2. Contraintes de réalisation et d'interprétation de l'essai . . . . .	49
3.1.3. Résultats disponibles dans littérature . . . . .	50
3.2. Essai de traction sur micro-éprouvettes bi-cristallines . . . . .	53
3.2.1. Principe de l'essai . . . . .	53
3.2.2. Contraintes de réalisation de l'essai . . . . .	53
3.2.3. Résultats disponibles dans la littérature . . . . .	53
3.3. Essai de micro-compression sur micro-pilier bicristallin . . . . .	55
3.4. Discussion sur les techniques adaptées . . . . .	55
3.5. Conclusion . . . . .	55
4. Conclusions et plan de l'étude . . . . .	56

<b>II. Étude du comportement intragranulaire d'un acier austénitique 304L à l'état non irradié et irradié</b>	<b>67</b>
1. Matériau de l'étude 304L . . . . .	70
1.1. Composition chimique . . . . .	70
1.2. Fabrication des échantillons et préparation métallographique . . . . .	70
1.3. Caractérisations microstructurales . . . . .	71
1.4. Propriétés mécaniques macroscopiques . . . . .	75
1.5. Irradiation . . . . .	75
1.5.1. Choix des paramètres et réalisation de l'irradiation . . . . .	75
1.5.2. Caractérisations microstructurales post-irradiation . . . . .	76
2. Quantification des propriétés mécaniques intragranulaires . . . . .	78
2.1. Protocole d'usinage des micro-piliers . . . . .	78
2.2. Description des essais de micro-compression . . . . .	83
2.3. Etude de sensibilité des essais de micro-compression . . . . .	85
2.3.1. Mise en données . . . . .	86
2.3.2. Résultats des simulations . . . . .	89
2.4. Résultats des essais de compression de micro-piliers . . . . .	94
2.4.1. Courbes contrainte - déformation . . . . .	94
2.4.2. Détermination des propriétés mécaniques . . . . .	100
3. Modélisation du comportement mécanique intragranulaire à l'état non irradié . . . . .	104
3.1. Géométrie des piliers . . . . .	104
3.2. Loi de comportement . . . . .	104
3.3. Maillage des piliers . . . . .	105
3.4. Chargement mécanique . . . . .	106
3.5. Post-traitement et étude de sensibilité . . . . .	106
3.6. Résultats . . . . .	107
4. Modélisation du comportement mécanique intragranulaire à l'état irradié . . . . .	109
4.1. Loi de comportement . . . . .	109
4.2. Résultats . . . . .	109
5. Conclusions et perspectives . . . . .	110
<b>III. Étude de la fissuration intergranulaire d'un acier austénitique FeCr<sub>12</sub>Ni<sub>26</sub>Si<sub>3</sub> oxydé en milieu REP</b>	<b>115</b>
1. Matériau de l'étude FeCr <sub>12</sub> Ni <sub>26</sub> Si <sub>3</sub> . . . . .	118
1.1. Composition chimique . . . . .	118
1.2. Fabrication des échantillons et préparation métallographique . . . . .	118
1.3. Caractérisations microstructurales . . . . .	119
1.4. Propriétés mécaniques macroscopiques . . . . .	121
1.5. Comportement en corrosion . . . . .	122
1.5.1. Conditions d'oxydation . . . . .	122
1.5.2. Caractérisation des oxydes en Microscope Électronique à Balayage . . . . .	123
1.5.3. Caractérisations des oxydes en Microscope Électronique en Transmission . . . . .	127
1.6. Sensibilité à la fissuration intergranulaire de l'acier FeCr <sub>12</sub> Ni <sub>26</sub> Si <sub>3</sub> en milieu REP . . . . .	133
1.6.1. Essai de traction lente en milieu REP . . . . .	133
1.6.2. Observations en Microscopie Électronique à Balayage . . . . .	134
2. Quantification des propriétés de rupture des oxydes intergranulaires . . . . .	135
2.1. Etude de dimensionnement des micro-poutres . . . . .	136
2.1.1. Protocole d'usinage des micro-poutres bi-cristallines . . . . .	143
2.1.2. Description des essais de micro-flexion . . . . .	147
2.2. Résultats des essais de flexion de micro-poutres bi-cristallines . . . . .	149
2.2.1. Courbes force - déplacement . . . . .	149
2.2.2. Détermination de la surface de rupture . . . . .	153

2.3.	Détermination des propriétés de rupture . . . . .	157
2.3.1.	Détermination de l'énergie à rupture . . . . .	158
2.3.2.	Détermination de la contrainte à rupture de manière analytique . . .	159
2.3.3.	Détermination de la contrainte à rupture par simulation numérique .	163
2.4.	Simulation de la rupture intergranulaire avec la méthode des zones cohésives .	167
3.	Conclusion et perspectives . . . . .	172

#### **IV. Étude de la fissuration intergranulaire d'un acier 304L à l'état non irradié et irradié oxydé en milieu REP** **175**

1.	Rappels des caractéristiques de l'acier austénitique 304L et caractérisation du comportement en oxydation et en fissuration . . . . .	178
1.1.	Propriétés du matériau . . . . .	178
1.2.	Irradiation . . . . .	178
1.3.	Comportement en corrosion . . . . .	179
1.3.1.	Conditions d'oxydation . . . . .	179
1.3.2.	Caractérisation des oxydes en Microscopie Électronique à Balayage .	180
1.3.3.	Sensibilité à la fissuration intergranulaire de l'acier 304L . . . . .	182
2.	Quantification des propriétés de rupture des oxydes de l'acier 304L . . . . .	183
2.1.	Essais de flexion sur micro-poutres bi-cristallines . . . . .	183
2.1.1.	Fabrication des micro-poutres . . . . .	183
2.1.2.	Résultats des essais . . . . .	186
2.1.3.	Détermination de la surface de rupture . . . . .	191
2.2.	Détermination des propriétés de rupture des oxydes . . . . .	192
2.2.1.	Détermination de l'énergie de rupture . . . . .	192
2.2.2.	Détermination de la contrainte à rupture . . . . .	193
2.2.3.	Simulation de la rupture intergranulaire avec la méthode des zones cohésives . . . . .	194
2.3.	Comparaison des propriétés de rupture entre l'acier 304L et $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$ . . .	195
3.	Conclusions et perspectives . . . . .	196

#### **V. Conclusions et perspectives** **201**

#### **VI. Annexes** **209**

## Introduction générale

Ces travaux de thèse portent sur la fissuration intergranulaire des aciers inoxydables austénitiques (304(L), 316(L)) causée par le phénomène de corrosion sous contraintes assistée par l'irradiation (Irradiation Assisted Stress Corrosion Cracking IASCC) dans les milieux REP (Réacteur à Eau Pressurisée). Ce mode d'endommagement a été observé sur les constituants internes en acier inoxydable austénitique des cuves de réacteurs nucléaires à eau légère depuis une quarantaine d'années. Tout d'abord apparu dans les Réacteurs à Eau Bouillante (REB), le phénomène s'est ensuite manifesté en milieu REP sur les vis qui permettent de maintenir les cloisons et les renforts des internes de la cuve contenant les assemblages combustibles. Ainsi, à la fin des années 80, des inspections ont révélé des fissures sur les vis maintenant les cloisons internes (Fig. 1) sur les renforts des centrales Bugey et Fessenheim [1]. Ce mode d'endommagement est toujours observé de nos jours dans les REP sur le palier CP0 en France et à l'étranger comme aux États-Unis [2].

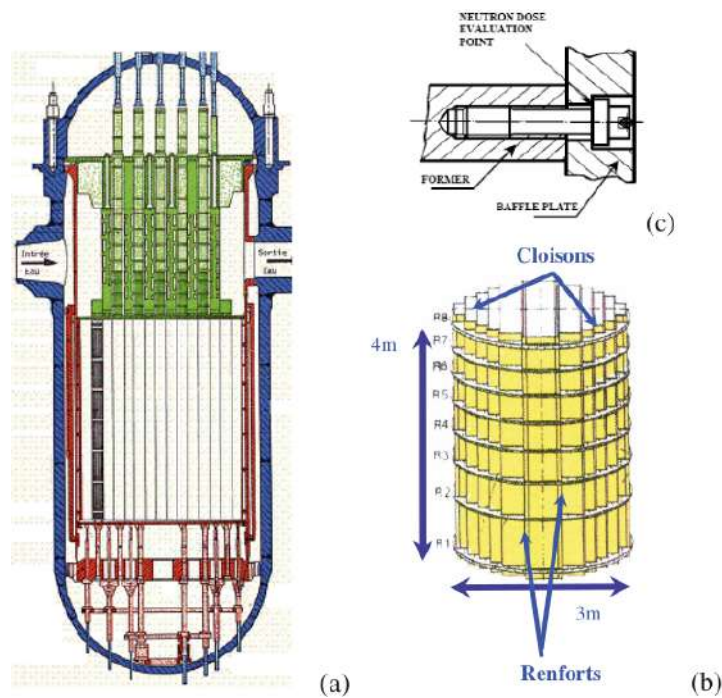


FIGURE 1. – Représentation schématique d'une cuve de réacteur REP. a) cuve (en bleu) et internes de cuves inférieurs (en rouge) b) cloisons internes et renforts c) vis maintenant les cloisons sur les renforts [3]

Comme montré sur la Fig. 2, les fissures s'amorcent au niveau du congé et avancent vers l'intérieur de la tête de la vis [4, 5, 6].

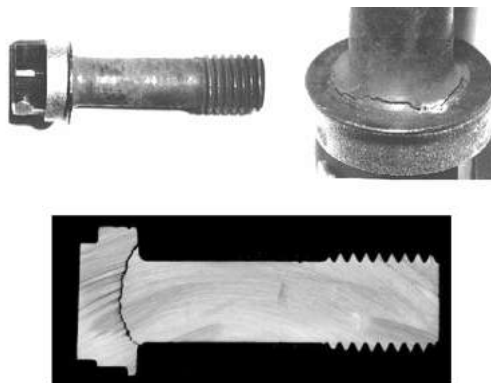


FIGURE 2. – Vis fissurées au niveau du congé [6]

Ces fissures sont attribuées au phénomène de corrosion sous contraintes assistée par l'irradiation [7, 8].

La corrosion sous contraintes est connue comme résultant de la synergie entre un matériau sensible à la corrosion, un environnement corrosif et la présence d'un chargement mécanique. La présence de l'irradiation provoquant des changements dans le matériau, le milieu et/ou l'état de contrainte, cela peut avoir pour effet d'augmenter la sensibilité à la fissuration du matériau. Le milieu REP est en effet un environnement extrême pour le matériau où se côtoient une haute température (300-350°C), une haute pression (150 bars), une chimie de l'eau modifiée (ajout H, B, Li) et un flux de neutrons. Le mode d'endommagement résultant est donc appelé corrosion sous contraintes assistée par l'irradiation. En plus de la compréhension du phénomène, le but des études réalisées sur la thématique de l'IASCC est de prédire l'amorçage de la fissuration en temps, en contrainte et selon les mécanismes de déformation à l'œuvre. Cette prédiction apparaît nécessaire notamment pour l'optimisation de la stratégie de maintenance des exploitants nucléaires qui consiste à ce jour à réaliser des inspections ultra-sonores des vis et à changer celles qui présentent des indications de fissuration. La fissuration due à l'IASCC est majoritairement intergranulaire [9] comme montré sur la Fig. 3. Cette étude se concentrera donc sur la fissuration intergranulaire des aciers austénitiques inoxydables en milieu REP et plus spécifiquement à l'amorçage qui se fait en surface (Fig. 2). De plus, l'effet de l'irradiation étant complexe, l'approche de cette thèse consiste à s'intéresser non pas au phénomène se produisant sous irradiation mais au phénomène de CSC sur un matériau représentatif du matériau irradié car les deux phénomènes présentent des mécanismes similaires de fissuration intergranulaire. Ces travaux de thèse portent donc sur l'amorçage de la corrosion sous contraintes intergranulaire en milieu REP des aciers inoxydables austénitiques irradiés dont la compréhension, la modélisation et la simulation apparaissent comme un pré-requis indispensable à l'étude de l'IASCC.

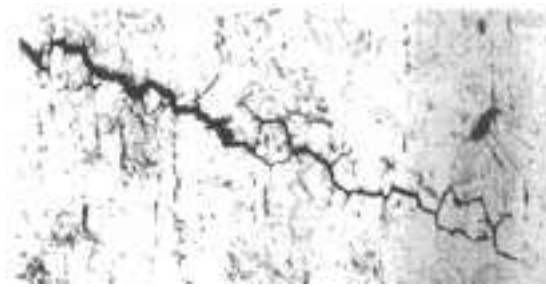


FIGURE 3. – Fissuration intergranulaire des vis [6]

Dans le chapitre suivant, une étude bibliographique est réalisée. Cette étude présente d'une part les mécanismes associés à l'IASCC et les changements induits par l'irradiation qui peuvent mener à cet endommagement. Les travaux visant à modéliser la rupture intergranulaire des aciers austénitiques sont présentés. Ces études s'inscrivant dans une approche micro-mécanique, un état de l'art est réalisé sur les principales méthodes utilisées pour caractériser mécaniquement un matériau irradié à l'échelle du grain et du joint de grains. Les essais micro-mécaniques les plus largement utilisés - compression de micro-piliers, nanoindentation, flexion de micro-poutres et micro-traction - sont présentés en mettant en avant leurs avantages et inconvénients. L'accent est également mis sur la synthèse des données disponibles et manquantes en ce qui concerne la modélisation de la fissuration intergranulaire en milieu REP des aciers inoxydables austénitiques irradiés.





# **Chapitre 1**

## **Étude bibliographique**



## 1. Mécanismes et modélisation de l'IASCC

Le phénomène d'IASCC est l'apparition de la sensibilité à la corrosion sous contrainte (CSC ou Stress Corrosion Cracking SCC) suite à l'irradiation. Il a été observé dans les aciers inoxydables austénitiques constitutifs des internes de cuves en milieu REP. C'est un problème multi-factoriel combinant la sensibilité du matériau, un milieu corrosif, la présence de contraintes internes ou appliquées sur le matériau et l'irradiation comme montré sur la Fig. 4.

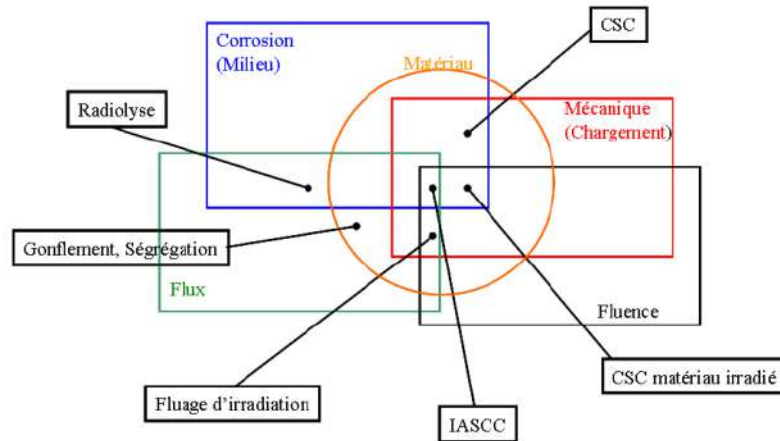


FIGURE 4. – Facteurs contribuant à l'IASCC [3]

Pour enrayer le phénomène de CSC, il est possible de changer la microstructure du matériau, de rendre le milieu moins agressif, de changer l'état de contrainte ou encore d'effectuer les trois actions simultanément. Cependant, les évolutions dans le matériau et/ou dans l'environnement provoquées par l'irradiation peuvent faire apparaître de la CSC alors que les conditions avaient été étudiées pour l'éviter. Il s'agit alors du phénomène d'IASCC dont les principaux contributeurs sont présentés sur la Fig. 5. Les différents facteurs présentés comme participant à l'IASCC sont le changement de microstructure dû aux défauts d'irradiation (ce qui entraîne une modification des propriétés mécaniques ainsi que des mécanismes de plasticité), la ségrégation élémentaire au niveau des joints de grains, l'évolution de la chimie de l'eau et la réaction d'oxydo-réduction sur les joints de grains émergents.

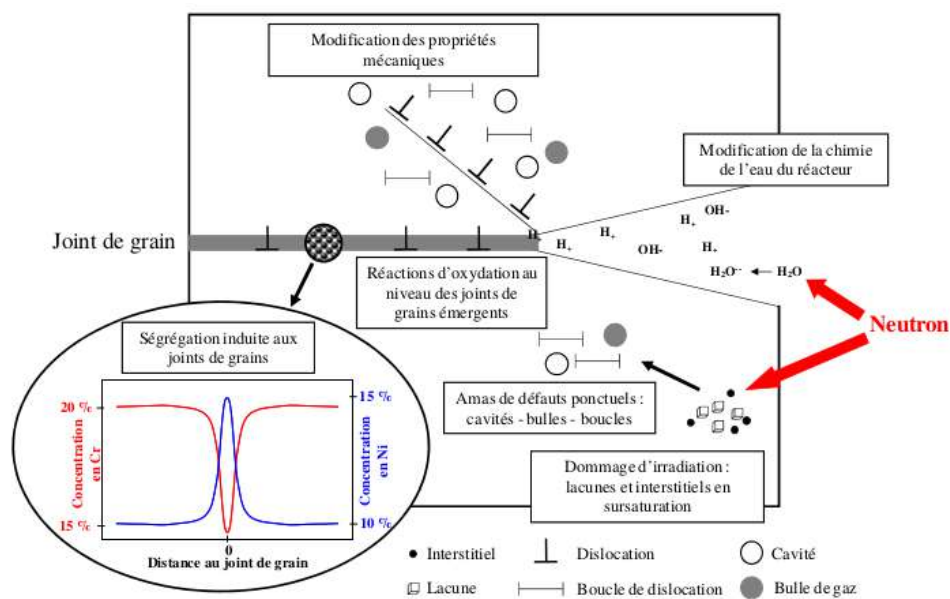


FIGURE 5. – Mécanismes de l'IASCC mis en avant pour expliquer la rupture par CSC des aciers inoxydables austénitiques irradiés [10]

## 1.1. Mécanismes de l'IASCC

Dans cette partie, les mécanismes associés au phénomène d'IASCC sont détaillés en s'intéressant plus particulièrement à l'effet de l'irradiation sur le matériau, le milieu et le chargement mécanique.

### 1.1.1. Effet de l'irradiation sur la microstructure

L'irradiation aux neutrons, issus du cœur du réacteur, induit des changements microstructuraux dans l'acier austénitique inoxydable. Ce bombardement neutronique provoque des collisions entre neutrons et atomes qui peuvent éjecter ces derniers de leurs sites cristallins. L'atome éjecté de son site se met sur un site interstitiel et est alors appelé PKA (primary knocked atom). La combinaison de la lacune créée par le départ de l'atome et l'interstitiel formé est une paire de Frenkel. Si l'atome éjecté a encore assez d'énergie et entre en collision avec un autre atome, il se produit alors une cascade de collisions. Le résultat de cette succession de collisions et déplacements est mesuré par le dpa (displacement per atom) qui correspond en moyenne au nombre de fois où un atome aura changé de site cristallin mais aussi au nombre de paires de Frenkel créées. Ce nombre de déplacements par atome peut atteindre 80 dans les structures d'internes de cuves REP les plus irradiées pour une durée de fonctionnement de 40 ans.

Les défauts (lacunes et interstitiels) primaires créés par les cascades de déplacements peuvent, sous l'effet de l'agitation thermique, se recombiner, s'éliminer en surface ou sur un puits de défauts (joints de grains, dislocations) [5]. L'apparition et la densité de ces défauts dépendent de la fluence (nombre de neutrons incidents par unité de surface), du flux de neutrons, de la température mais aussi de l'énergie des neutrons. En effet, il existe des neutrons dit "rapides" à forte énergie cinétique ( $E > 1\text{MeV}$ ) et des neutrons "thermiques" d'énergie cinétique plus basse ( $E < 1\text{eV}$ ). Le spectre neutronique (i.e. le flux de neutrons en fonction de leur énergie cinétique) d'un REP est présenté sur la Fig. 6 aux côtés de spectres de réacteurs à neutrons "rapides" (BOR-60 et EBR-II) et du spectre du réacteur expérimental OSIRIS. Pour les réacteurs REP et OSIRIS, le spectre neutronique est dit mixte car il couvre le domaine des neutrons thermiques et des neutrons rapides.

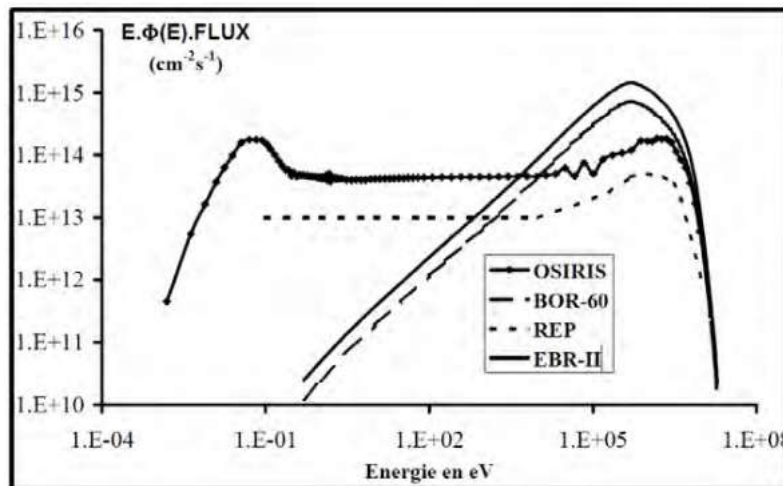


FIGURE 6. – Spectre neutronique d'un réacteur à eau pressurisée, d'un réacteur expérimental (OSIRIS) et de réacteurs expérimentaux à neutrons rapides (BOR-60 et EBR-II) [11].

Il est à noter que l'irradiation aux neutrons subie par les matériaux proches du cœur des réacteurs nucléaires peut être simulée en réalisant des irradiations avec d'autres particules énergétiques. Les protons  $\text{H}^+$  sont très utilisés dans le cadre des études de l'IASCC pour simuler les dommages dus au bombardement neutronique [12]. L'énorme avantage de ce changement de particule est la faible activation de la matière après irradiation. De plus, du fait de leur faible taille par rapport à d'autres ions, les protons peuvent pénétrer profondément dans la matière. Pour une énergie de quelques MeV, il est possible d'obtenir une couche irradiée assez épaisse ( $\sim$  dizaine de microns) permettant de caractériser

la fissuration intergranulaire.

Les flux typiques utilisés avec les protons sont très supérieurs aux flux de neutrons, ce qui influe sur les défauts créés. Les irradiations aux protons sont réalisées à plus haute température pour compenser cet effet de flux [13]. Il est aussi possible d'utiliser les ions lourds (Fe, Ni, etc.) pour simuler les dommages de l'irradiation aux neutrons mais ils produisent une couche irradiée moins profonde, pour les énergies typiques utilisées (de l'ordre du micron), que les neutrons et les protons [4].

Quel que soit le type d'irradiation, du fait de l'agitation thermique, les défauts se réarrangent pour former des structures plus importantes comme les boucles de Frank, les cavités, etc. (Fig. 7) qui sont celles observées après irradiation notamment par Microscopie Electronique en Transmission (MET).

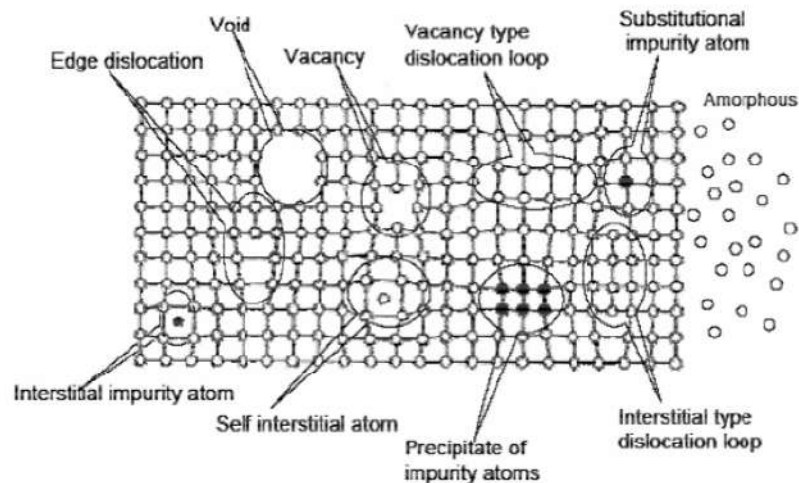


FIGURE 7. – Illustration des différents défauts d'irradiation observés dans les matériaux métalliques irradiés [14]

### *Boucles de Frank*

Les boucles de Frank sont des boucles de dislocations qui se forment sur les plans denses (111) suite à la coalescence de lacunes ou d'interstitiels. Contrairement aux boucles de dislocations parfaites qui ont un vecteur de Burgers  $\frac{a}{2}[110]$ , les boucles de Frank sont fautées avec un vecteur de Burgers  $\frac{a}{3}[111]$  et sont de nature sessile [15]. Elles agissent donc comme des obstacles au mouvement des dislocations provoquant ainsi un durcissement du matériau. Ce sont les principaux défauts d'irradiation présents dès les faibles doses pour des températures proches de celles du fonctionnement du réacteur REP (350°C). Selon Zinkle et al. [16], le pic de densité est atteint pour des doses supérieures à 10dpa pour ces températures.

### *Black dots*

Nommés ainsi du fait de leur contraste au MET en champ clair, la nature de ces défauts de quelques nanomètres est encore sujette à débat. En effet leur taille s'approche de la résolution du MET. Cependant Zinkle et al. [16], Edwards et al. [17] et Fukuya et al. [18] les ont identifiés comme étant des amas d'interstitiels alors que Bruemmer et al. [10] décrivent plutôt des amas lacunaires. Ces défauts d'irradiation sont majoritaires pour une température d'irradiation inférieure à 300°C et participent au durcissement après irradiation [4, 18]. Les images de blacks dots et boucles de Frank ainsi que leur taille et densité caractéristiques sont présentées sur la Fig. 8.

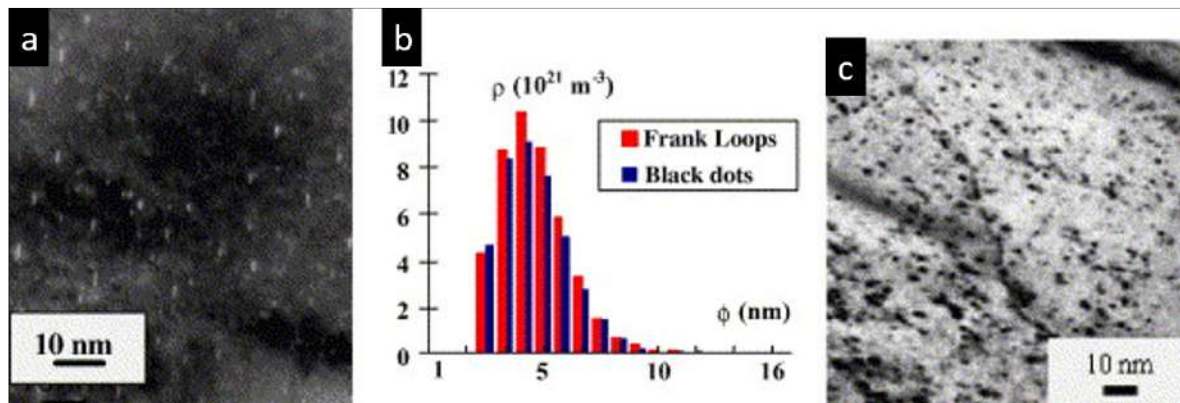


FIGURE 8. – a) Micrographie MET des boucles de Frank (tâches claires) en champ sombre b) Taille et densité des boucles de Frank et "black dots" et c) Black dots observés en champs clair au MET sur un alliage 304L irradié 0.8dpa aux neutrons à 330°C dans le réacteur OSIRIS [19]

### Ségrégation induite par l'irradiation

La ségrégation est provoquée par la diffusion de lacunes ou d'interstitiels créés sous l'effet de l'irradiation. La ségrégation élémentaire peut s'expliquer premièrement par le mécanisme de Kirkendall inverse (Fig. 10). Un flux de lacunes arrive alors au niveau d'un puits de défauts comme le joint de grains, provoquant ainsi le départ des atomes les plus rapides à diffuser : Cr et Fe dans les aciers. Le joint de grains s'appauvrit donc en chrome et en fer et voit sa concentration en nickel augmenter [17, 20, 21]. Ce changement d'espèces chimiques (Fig. 9) conduit à un changement local de la résistance à l'oxydation du joint de grains.

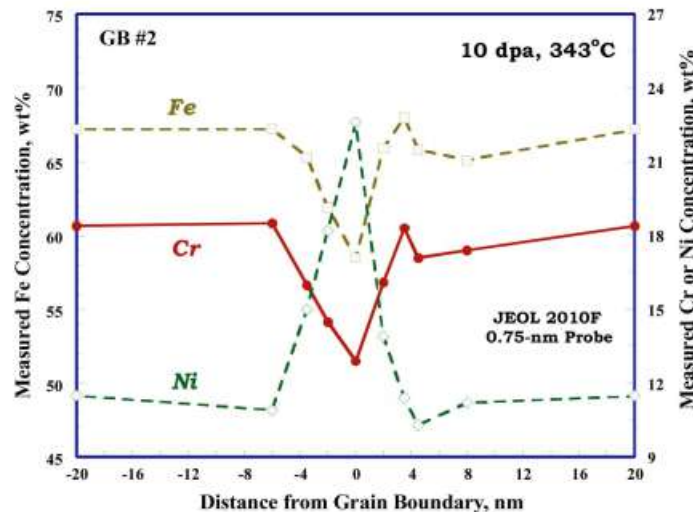


FIGURE 9. – Ségrégation de Ni et appauvrissement en Cr et Fe au joint de grains dans un acier inoxydable austénitique [22]

Un autre mécanisme pouvant expliquer l'enrichissement autour des puits de défauts (joints de grains, dislocations, boucles de Frank, cavités) en certains éléments est la diffusion d'interstitiels (Fig. 10). Un atome de taille importante migrant vers le puits de défauts entraîne avec lui un atome plus petit. Fukuya et al. ont ainsi observé une ségrégation de Si aux bords des boucles de Frank [18].

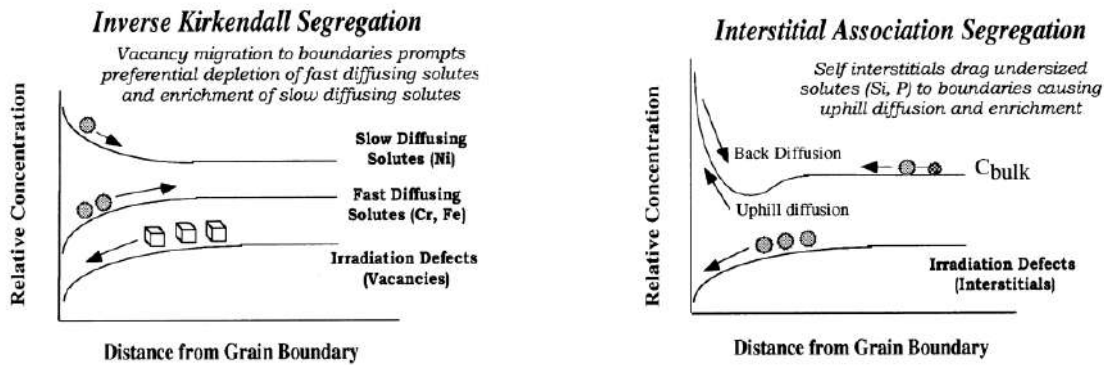


FIGURE 10. – Phénomènes de diffusion entraînant une ségrégation aux puits de défauts [10]

### Précipitation

La ségrégation élémentaire induite par l'irradiation provoque des changements locaux de composition chimique. Cela peut aboutir à la précipitation de nouvelles phases, à un changement dans l'ordre d'apparition des phases ou bien à la modification des éléments chimiques d'une phase existante. Ainsi dans les aciers austénitiques, il est possible d'observer l'apparition de phase comme  $Ni_3Si$  ( $\gamma'$ ). L'apparition des carbures semble retardée et un changement d'élément est constaté dans les carbures  $M_6C$  et les phosphures  $M_2P$  sans modification de la structure cristalline [16].

### Cavités et bulles

L'irradiation provoque aussi la formation de bulles et de cavités [23].

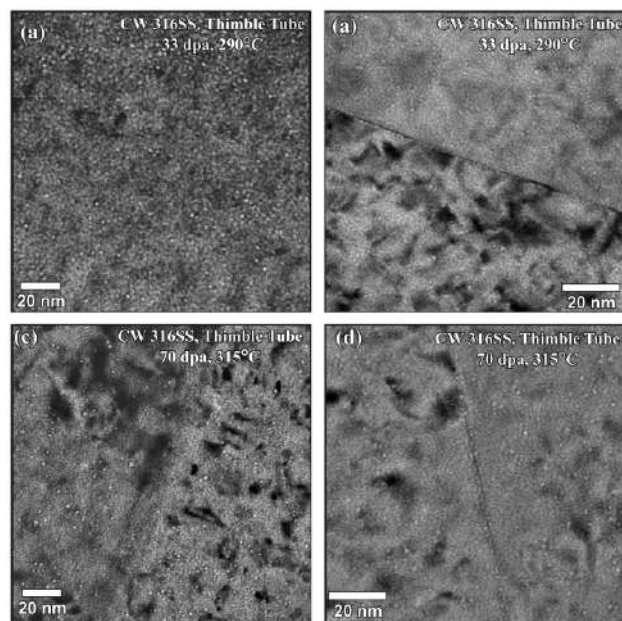


FIGURE 11. – Observation au MET de cavités présentes sur un acier 316 irradié 33dpa à 290°C et 70dpa à 315°C aux neutrons en milieu REP [24]

Les bulles seraient remplies de gaz, notamment de l'hydrogène ou bien d'hélium issu de la transmutation des atomes de nickel. L'hélium étant très peu soluble dans l'acier, des bulles sont alors créées et stabilisées par la pression interne du gaz [25]. Contrairement aux bulles, les cavités sont vides et sont issues de la coalescence de lacunes provoquées par l'irradiation [23].

La présence de ces bulles et cavités, donc l'ajout de volume supplémentaire dans la pièce, conduit à



un changement dimensionnel macroscopique appelé "gonflement". L'importance de ce phénomène apparaît néanmoins faible dans les composants expertisés des réacteurs REP où typiquement la densité des cavités est de  $10^{19}$ - $10^{22}\text{m}^{-3}$  et leur taille varie de quelques nanomètres à plusieurs dizaines de nanomètres [26, 27].

Les modifications de la microstructure induites par l'irradiation ont des conséquences sur les propriétés mécaniques et les mécanismes de déformation qui sont détaillés dans le paragraphe suivant.

### 1.1.2. Effet de l'irradiation sur les propriétés mécaniques et les mécanismes de déformation

La microstructure d'irradiation des aciers inoxydables austénitiques en condition REP conduit à des propriétés mécaniques différentes de l'état non-irradié. Une augmentation de la dureté et de la limite d'élasticité au détriment de la ductilité est alors observée. Les courbes de traction typiques sont présentées sur la Fig. 12, permettant de visualiser ces changements dans deux aciers austénitiques de la série 300 testés avant et après irradiation aux neutrons.

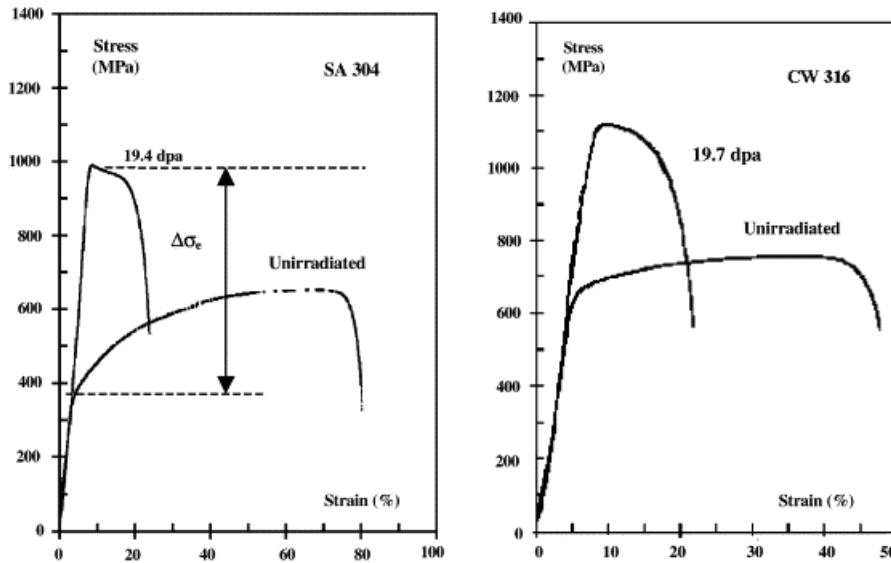


FIGURE 12. – Evolution des courbes de traction conventionnelles pour deux aciers de la série 300 après irradiation aux neutrons [19]

La présence des défauts d'irradiation entravant le mouvement des dislocations est à l'origine de l'augmentation de la limite d'élasticité. Celle-ci résulte donc de la somme des effets de tous les défauts d'irradiation. Différentes relations sont proposées pour calculer ce durcissement. L'une d'elles, très utilisée dans la littérature, est issue du modèle de barrière dispersée en considérant une moyenne quadratique en présence de plusieurs populations de défauts [28] :

$$\Delta\sigma_{ys} = \left( \sum \Delta\sigma_k^2 \right)^{\frac{1}{2}} \quad \text{avec} \quad \Delta\sigma_k = \alpha M \mu b (N_k d_k)^{\frac{1}{2}} \quad (1)$$

où  $k$  désigne le type de défaut (boucle, cavité etc.),  $\alpha$  le coefficient de durcissement du défaut,  $M$  le facteur de Taylor (3.06 pour les métaux CFC),  $\mu$  le module de cisaillement,  $b$  la norme du vecteur de Burgers et  $N$  et  $d$  respectivement la densité et le diamètre moyen du défaut considéré. D'autres relations existent, comme celle de Friedel-Kroupa-Hirsch (FKH) (Eq. 30) :

$$\Delta\sigma_k = \alpha M \mu b (N_k d_k)^{\frac{2}{3}} \quad (2)$$

Cependant il semblerait que cette formule soit plus appropriée pour les défauts de faible taille ayant un pouvoir durcissant moindre [29]. Ces formules de  $\Delta\sigma_k$  sont utilisées pour calculer l'augmentation de la limite d'élasticité si la quantité de dislocations estimée après irradiation est négligeable par rapport à la densité de défauts d'irradiation. Cela est valide pour l'état après traitement thermique hypertrempé.

Pour les aciers écrouis, des extensions de l'Eq. 1 sont proposées :

$$\Delta\sigma_k = M\mu b \left[ \alpha_k (N_k d_k)^{\frac{1}{2}} + \alpha \rho_d^{\frac{1}{2}} - \alpha \rho_o^{\frac{1}{2}} \right] \quad (3)$$

avec  $\rho_o$  la densité de dislocations initiale et  $\rho_d$  celle après irradiation. Les phénomènes physiques sous-jacents à ces Eq.s sont toujours actuellement à l'étude. Cependant ces Eq.s permettent de bien décrire l'augmentation de la limite d'élasticité en calibrant les paramètres  $\alpha$  [30] comme montré sur la Fig. 13.

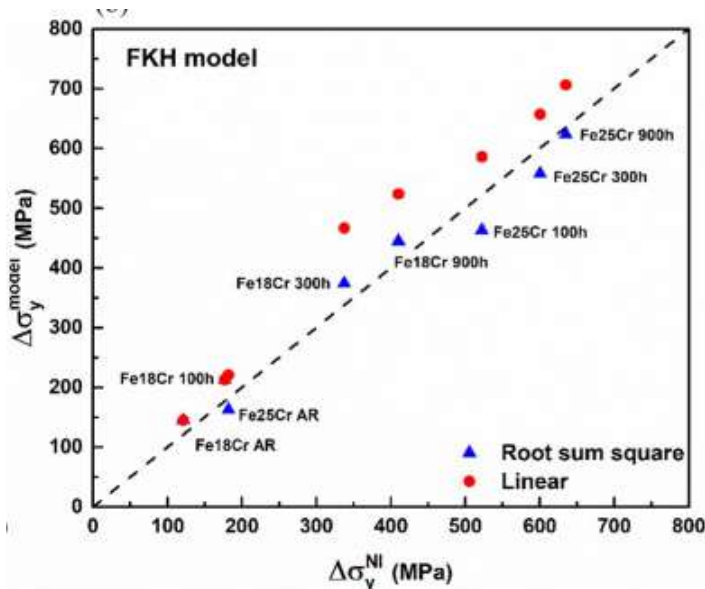


FIGURE 13. – Comparaison entre les limites d'élasticité estimées par nanoindentation et les limites d'élasticité calculées grâce au modèle de barrière dispersée en supposant une superposition linéaire ou des racines carrées des contributions des différents défauts pour un acier Fe-Cr [31]

Cette augmentation de la limite d'élasticité s'accompagne aussi d'une évolution de la dureté. Les deux pouvant être reliées par le modèle phénoménologique de Busby [32] :

$$\Delta\sigma_{ys} = 3.03\Delta H_v \quad (4)$$

où  $\Delta\sigma_{ys}$  s'exprimant en MPa et  $\Delta H_v$  en Vickers.

Les mécanismes de déformation sont aussi affectés par la présence des défauts d'irradiation. A l'état non irradié, un acier de type 304 ou 316 se déforme par glissement des dislocations à la température de fonctionnement des REP. Ces dislocations se déplacent dans les 12 systèmes de glissement de type  $111\langle 011 \rangle$  dans un métal de structure CFC. Les observations en surface d'échantillons montrent une déformation homogène à l'échelle de la taille de grains (Fig. 14a) [33] résultant de la présence d'un grand nombre de bandes de glissements.

Pour un acier de type 304 ou 316 irradié, la déformation se fait majoritairement via le glissement des dislocations dans des canaux. Ces canaux sont créés lorsque la contrainte devient assez élevée pour permettre le mouvement des dislocations à travers les défauts d'irradiation et sont constitués d'un ensemble de plans de glissement parallèles [34]. La déformation est alors hétérogène à l'échelle intragranulaire [10] et se localise sur certaines bandes (Fig. 14b). Le passage successif des dislocations sur un plan aura pour effet d'annihiler les défauts d'irradiation qui s'y trouvent. Ce plan exempt de défauts, qui sera alors privilégié pour le mouvement des dislocations, est parfois appelé bande claire du fait de son contraste au MET.

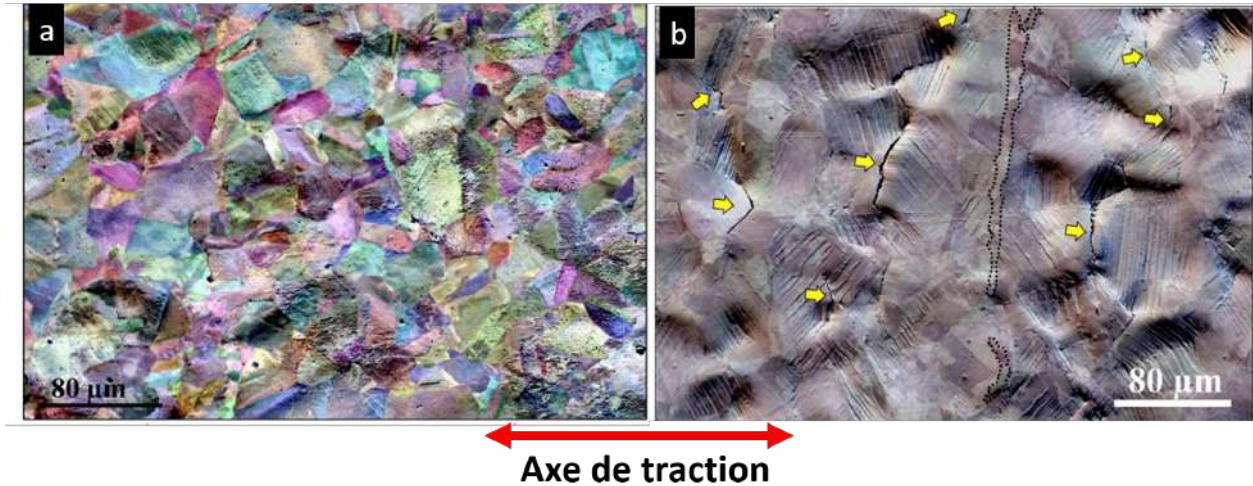


FIGURE 14. – Cartographie EBSD après 4% de déformation plastique par essai SSRT en milieu REP (axe traction en rouge) sur un acier 304 a) non irradié et b) irradié 2 dpa  $H^+$  [35]

### 1.1.3. Effet de l'irradiation sur l'état de contrainte

Les vis affectées par le phénomène d'IASCC en REP sont soumises à diverses contraintes mécaniques [36] en service. Ces contraintes sont soit internes au matériau (de type contraintes résiduelles) ou imposées par la structure et l'environnement. Parmi les sollicitations externes, il y a tout d'abord une contrainte initiale due au couple de serrage de la vis. Ensuite à haute température, il peut exister une dilatation thermique différentielle entre la vis et la cloison et/ou le renfort. Si la température de la vis est plus élevée que celle des autres parties, cela peut conduire par exemple à une contrainte de compression sur la vis. Ces contraintes d'origine thermique peuvent être atténuées en ajoutant des cavités autour de la vis qui permettent de faire circuler de l'eau [37]. Dans le cas où le réacteur est en configuration dite "down flow", il existe une différence de pression entre les faces interne et externe des cloisons maintenues par les vis. Une contrainte supplémentaire s'applique alors sur la vis. Elle peut être supprimée en minimisant la différence de pression, ce qui revient à changer la direction de circulation de l'eau dans la cuve (configuration "up flow"). L'irradiation pourrait induire un gonflement du matériau pour des fortes doses en conditions REP (au-delà de 80 dpa). Ce changement de dimension entraînerait une contrainte de traction supplémentaire [38]. L'irradiation provoque également une relaxation des contraintes. Cette relaxation diminue les contraintes de serrage (Fig. 15) [39, 40] et peut participer à retarder la fissuration [41]. En effet en diminuant la contrainte dans le matériau, cela pourrait éviter d'atteindre la contrainte seuil de rupture.

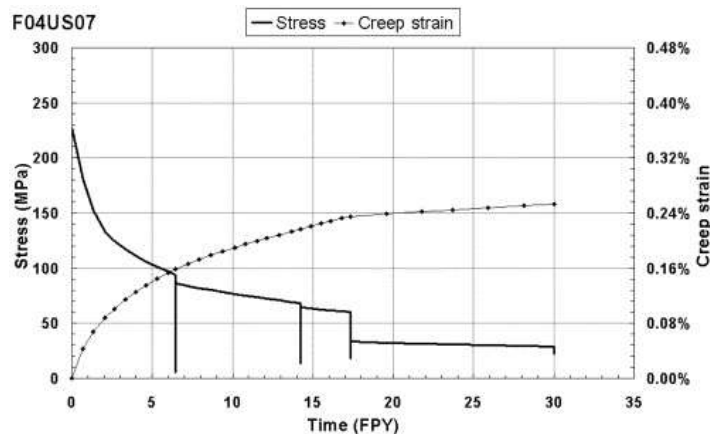


FIGURE 15. – Diminution de la contrainte axiale de la vis due au fluage d'irradiation au cours du temps (Full Power Year FPY) [39].

#### 1.1.4. Effet de l'irradiation sur la corrosion intergranulaire

La chimie de l'eau en contact avec le matériau peut aussi changer du fait de l'irradiation. En effet la molécule d'eau peut se dissocier lors d'un phénomène appelé radiolyse. Les radicaux libérés peuvent alors réagir pour donner  $H_2$ ,  $O_2$  augmentant donc le potentiel de corrosion du fer. Cependant d'après Was et al. [9], cette élévation est très faible. De plus, de l'hydrogène est ajouté en milieu REP dans l'eau afin d'éviter le phénomène de radiolyse ( $\sim 25\text{-}35\text{cc/kgH}_2\text{O}$ ).

L'oxydation des aciers inoxydables austénitiques en milieu REP conduit à la formation d'une couche d'oxyde duplex (formée d'une couche interne et d'une couche externe). La couche interne est généralement présentée comme un oxyde riche en Cr de type spinelle continu et compact qui joue un rôle protecteur. La couche externe est quant à elle constituée de larges particules d'oxyde riche en fer [42, 43, 44]. La composition exacte des couches et leurs structures dépendent de la composition de l'alliage mais aussi de celle du milieu ainsi que des conditions d'oxydation. La pénétration de l'oxyde interne dans l'alliage peut être plus profonde au niveau des joints de grains [45] comme le montre la Fig. 16. Cependant cette pénétration dépend de la nature du joint de grains comme le montre l'étude de Sakaguchi et al. [46]. Certains types de joints de grains (par exemple  $\Sigma 3$ ) sont moins sensibles à l'oxydation que d'autres.

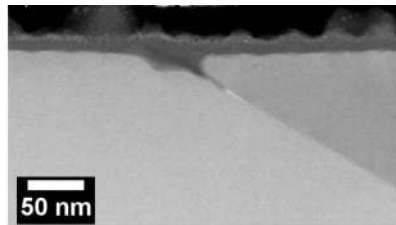


FIGURE 16. – Pénétration de la couche d'oxyde au niveau du joint de grains dans un acier 316L oxydé en milieu REP simulé pendant 24h [27]

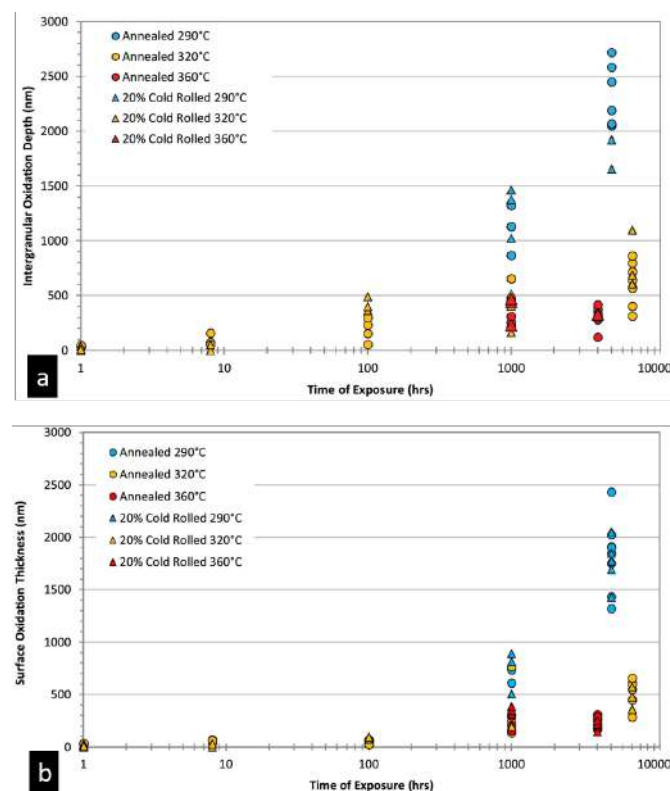


FIGURE 17. – a) Pénétration de l'oxyde intergranulaire et b) épaisseur de la couche d'oxyde de surface pour un acier 316L oxydé en milieu REP à différentes durées d'oxydation [47]

Cette pénétration est d'ailleurs de plus en plus importante à mesure que la durée d'oxydation augmente comme le montre l'étude de Matthews et al. [47] sur la Fig. 17.

Sur matériaux irradiés, la couche d'oxyde garde son caractère duplex et la pénétration de l'oxyde est toujours plus profonde au niveau du joint de grains. Cependant, l'état irradié du matériau semble provoquer une oxydation plus importante. Dans les études de Gupta [35], Boisson et al. [27] ou bien Deng et al. [48], la couche d'oxyde (interne et externe) formée après irradiation est plus épaisse qu'à l'état non irradié. L'explication avancée est que les défauts introduits par l'irradiation agissent comme des court-circuits de diffusion pour les cations métalliques et l'oxygène. Cela accélère la corrosion et aboutit à la formation d'une couche d'oxyde interne à petits grains. Dans l'étude de Deng et al. [48], plus la dose d'irradiation augmente, plus l'oxyde interne présente une faible taille de grains. Les nombreux joints de grains de cette couche interne vont aussi servir de court-circuits de diffusion aux cations et à l'oxygène conduisant à la croissance de larges particules d'oxyde de fer dans la couche externe. Ainsi dans la même étude [48], les auteurs ont observé que plus la dose d'irradiation est élevée et plus les particules d'oxyde en surface sont larges et nombreuses. Ils en concluent que la couche d'oxydation interne créée sur le matériau pré-irradié a un caractère moins protecteur. En effet, celle-ci serait perméable aux cations métalliques provenant de l'alliage, ce qui permet au phénomène de corrosion de se poursuivre et d'aboutir à une plus grande taille de particule de l'oxyde en surface. Une des conséquences est qu'au niveau du joint de grains, la pénétration de l'oxyde est plus profonde à l'état irradié par rapport à l'état non irradié (respectivement 120nm contre 15nm). En plus de l'oxyde moins protecteur, le joint de grains est sujet à de la ségrégation élémentaire induite par l'irradiation qui conduit à un appauvrissement en Cr. Cet appauvrissement a plusieurs conséquences. Premièrement, le chrome n'est plus disponible au joint de grains pour former un oxyde protecteur alors que l'oxygène continue de diffuser dans le joint grâce à tous les court-circuits de diffusion. De plus l'appauvrissement en Cr provoque un flux de lacunes vers le joint de grains. La présence de ces lacunes de chrome au joint peut permettre la diffusion de cations métalliques de l'alliage vers l'oxyde du joint de grains entretenant donc le phénomène d'oxydation. Ces lacunes peuvent potentiellement coalescer et former des nanopores qui diminuent encore plus la cohésion du joint de grains [49][50]. La concentration d'autres éléments aux joints de grains comme le soufre peut conduire à une corrosion intergranulaire plus importante [51].

D'autres travaux viennent néanmoins contredire le fait que l'irradiation augmente le taux de corrosion et notamment l'augmentation de l'épaisseur de l'oxyde interne comme vu précédemment. Ainsi l'étude Jiao et al. [52] sur un acier 316L irradié aux protons n'a pas montré d'effet de l'irradiation sur l'oxydation en milieu REB. Les travaux de Perrin et al. [53] sur du 316L irradié aux protons ont même montré qu'après irradiation, la couche d'oxyde formée était plus fine donc que l'oxydation était moins importante. Les mêmes observations ont été rapportées dans la thèse de Bach sur un 316L irradié aux ions Fe [54]. Ces différences de comportement pourraient s'expliquer par la durée d'oxydation qui diffère selon les études. En effet dans la thèse de Bach [54], l'auteure observe une dépendance de l'épaisseur de la couche d'oxyde en fonction du temps d'oxydation.

### 1.1.5. Effet de l'irradiation sur la sensibilité à la fissuration des joints de grains

Le phénomène d'IASCC se manifestant par une rupture principalement intergranulaire, il se pose la question de l'effet de l'irradiation sur la résistance des joints de grains. Celle-ci est affectée de manière indirecte du fait des évolutions décrites dans les paragraphes précédents. En effet, le changement local de la composition chimique provoqué par la ségrégation induite par l'irradiation est susceptible de diminuer la résistance intrinsèque du joint à l'oxydation. Ainsi la diminution du taux de chrome conduirait à une corrosion intergranulaire plus importante et accélérée. La résistance mécanique du joint de grain pourrait alors diminuer du fait de la présence de cet oxyde et rompre à des niveaux de contraintes plus bas qu'un joint de grain non oxydé.

A ce potentiel changement de résistance mécanique pourrait s'ajouter l'effet de la réponse mécanique à une sollicitation. Après l'irradiation, la déformation plastique de l'acier a tendance à être localisée dans des canaux de déformation (bandes claires) qui charrient un nombre important de dislocations jusqu'au

joint de grains. Le joint de grains peut répondre de différentes manières selon l'interaction qu'il a avec les dislocations. Il peut soit accommoder la déformation par transmission des dislocations, soit être résistant au passage des dislocations. Dans ce dernier cas, il se crée un empilement de dislocations au joint de grains qui peut augmenter les niveaux de contraintes intergranulaires ou bien provoquer un glissement du joint de grains [55]. La transmission de la déformation - et donc des bandes de glissement - est donc un élément important à prendre en compte pour comprendre la fissuration d'un matériau irradié déformé plastiquement [56]. Il s'agit alors de la capacité du joint de grains à absorber les dislocations et les émettre dans le grain adjacent [57]. S'il n'y a pas transmission des dislocations et qu'un empilement se forme conduisant à une contrainte normale au plan du joint de grains supérieure à la contrainte de cohésion, une ouverture du joint de grains peut se produire [58]. L'étude de Gertsman et al. [59] a montré que les joints de grains de forte désorientation avait plus tendance à fissurer du fait d'une faible énergie de cohésion contrairement aux joints de grains de faible désorientation ou joints de grains spéciaux comme les macles. Les travaux ont aussi montré que les joints de grains dont la normale au plan forme un faible angle ( $\alpha$ ) avec l'axe de sollicitation (Fig. 18) sont aussi plus sujets à la fissuration. Ce dernier point met en lumière l'importance de la contrainte normale au plan du joint [56] [58] [60]. En effet, les joints de grains dont le plan est perpendiculaire à l'axe de traction sont les premiers à fissurer [60].

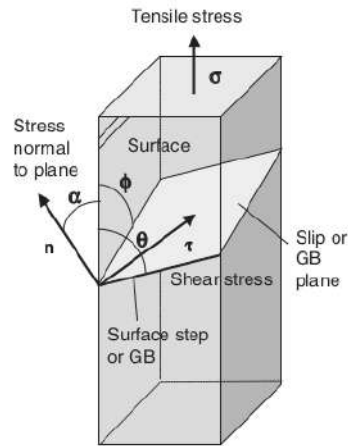


FIGURE 18. – Schématisation de l'angle  $\alpha$  entre la normale au plan du joint de grains et la direction de sollicitation [58].

Il faut aussi noter que le glissement du joint pouvant être provoqué par l'empilement de dislocations peut déboucher sur une rupture du film passif en surface ou de l'oxyde intergranulaire et donc être à l'origine de la fissuration [57].

Le changement de composition chimique dû à la ségrégation induite par l'irradiation au joint de grains s'accompagne d'une modification de l'énergie de faute d'empilement (Stacking Fault Energy SFE) [61]. Cette dernière se définit comme l'énergie par unité de surface d'une faute dans l'empilement ABAB. Cette énergie tend à rapprocher deux dislocations partielles de Shockley issues de la dissociation d'une dislocation parfaite. Comme il sera détaillé plus tard dans ce chapitre, ce paramètre a un impact sur la localisation de la déformation.

### 1.1.6. Facteurs prépondérants

Les paragraphes précédents ont montré les différents effets de l'irradiation sur les facteurs influençant la corrosion sous contraintes, susceptibles d'expliquer le phénomène d'IASCC. Une question essentielle est de déterminer quels sont les facteurs prépondérants sur l'amorçage de l'IASCC.

Malgré une dispersion des données inhérente au phénomène d'IASCC, des études [4, 57, 62, 63] ont été réalisées afin de pouvoir prédire l'amorçage de la fissuration (définie à une échelle millimétrique) due à l'IASCC en prenant en compte divers critères. La synthèse des travaux sur l'IASCC réalisée



par Chopra et al. [21] présente le temps correspondant à l'amorçage de la fissuration comme étant fonction de la dose d'irradiation et de la contrainte appliquée. Pour une dose donnée, il est possible de déterminer une durée critique en deçà de laquelle l'amorçage n'est pas observé en fonction de la contrainte (Fig. 19a). Si par contre le temps de l'essai est fixé mais que la dose et la contrainte varient les courbes d'amorçage de la fissuration sont obtenues à court (environ 100h) et long terme (Fig. 19b).

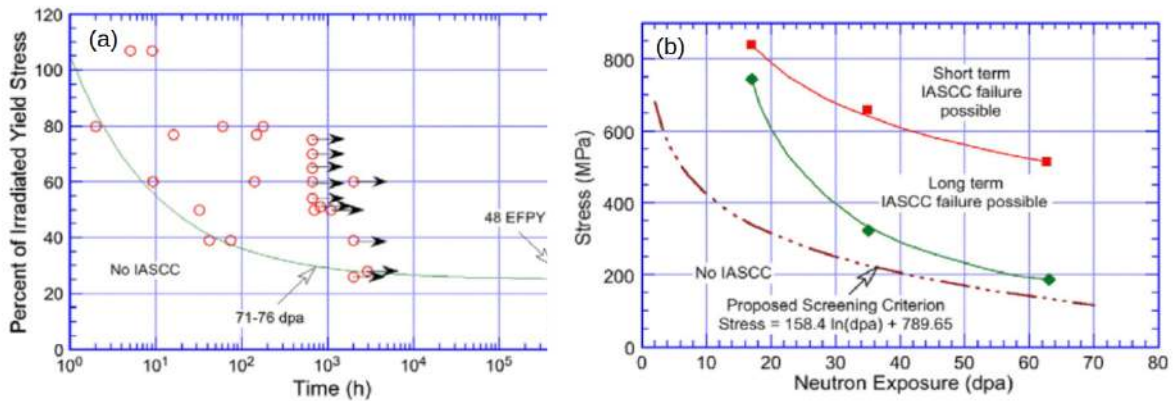


FIGURE 19. – a) Temps d'amorçage de la fissuration dans un acier austénitique irradié à 71-76 dpa en milieu REP en fonction de la contrainte appliquée. b) Contrainte à rupture en fonction de la dose d'irradiation [21]

Ces résultats montrent en particulier qu'il existe une valeur seuil de dose ( $\sim 3$  dpa) en dessous de laquelle il est peu probable d'observer de la fissuration quelle que soit la contrainte et une contrainte seuil ( $\sim 40\%$  de la limite d'élasticité [21]) en dessous de laquelle il est peu probable d'observer de la fissuration sous chargement constant quelle que soit la dose dans les aciers austénitiques en milieu REP [21]. Si ces résultats sont en accord avec les effets de l'irradiation décrits précédemment - conduisant à une sensibilité accrue à la fissuration pour les plus fortes doses - ils ne permettent pas de déterminer les mécanismes physiques prépondérants.

À partir d'essais de type traction lente SSRT en milieu REP, Was et al. [57] ont réalisé une étude paramétrique pour déterminer quel changement induit par l'irradiation a le plus d'impact sur la fissuration en prenant comme paramètre le durcissement, la ségrégation élémentaire (Radiation Induced Segregation RIS), la localisation de la déformation et l'énergie de faute d'empilement SFE. Parmi les éléments étudiés, la localisation de la déformation possède le facteur de corrélation le plus élevé (Fig. 20) avec la fissuration. Il s'agit donc d'après cette étude du facteur qui influence le plus l'amorçage de la fissuration lorsque le matériau subit une déformation plastique.

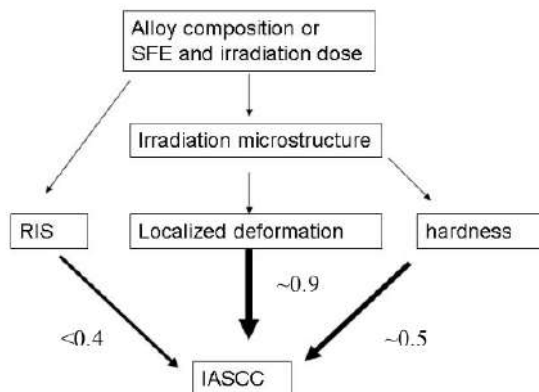


FIGURE 20. – Schéma des facteurs de corrélation entre la fissuration par IASCC et le durcissement, la RIS, la SFE et la localisation de la déformation [57].

Gupta [4] a considéré la désorientation du joint de grains, l'orientation du plan du joint par rapport à l'axe de sollicitation et la valeur du facteur de Schmid pour prédire la rupture. D'après les autres résultats de la littérature, il était attendu que les joints de grains de forte désorientation, formant un angle de plus de  $70^\circ$  avec l'axe de sollicitation et étant adjacent à un grain avec un faible facteur de Schmid soient les premiers et les plus nombreux à fissurer. Cependant seuls 32% des joints de grains fissurés dans cette étude respectent ces trois critères simultanément. La concomitance de ces critères n'est donc pas nécessaire à la fissuration et leur caractère suffisant n'a pas été évalué.

Johnson et al. [62] se sont spécifiquement intéressés à la contrainte normale au joint de grains comme critère de rupture. En combinant des essais de traction lente sur un acier irradié avec des simulations d'essai de traction sur un agrégat polycristallin de 6 grains en dynamique moléculaire, les auteurs ont réussi à déterminer une contrainte normale au joint de grains de 900MPa en dessous de laquelle aucune fissuration intergranulaire n'est observée. Au dessus de cette valeur (dont le maximum rapporté est 3.7GPa), la sensibilité à la fissuration augmente. D'après les auteurs, un tel niveau de contrainte est atteignable du fait de la localisation de la déformation due à l'irradiation.

À partir de l'ensemble de ces études, il est possible de proposer un mécanisme pour expliquer la fissuration des matériaux irradiés déformés plastiquement. Le passage des dislocations dans un plan annihile les défauts d'irradiation qui s'y trouvent, facilitant donc le déplacement des dislocations suivantes donnant naissance aux bandes claires. En ce qui concerne la création de ces bandes claires/canaux de dislocation, les dislocations en question sont émises sur certains sites du joint de grains [57]. Pour créer une bande claire, il faut que le site émette assez de dislocations pour tout d'abord effacer les défauts d'irradiation puis émette les suivantes qui suivront ce chemin "nettoyé". Les sites du joint de grains capables d'émettre autant de dislocations ne sont pas distribués de manière homogène d'où l'hétérogénéité de la déformation et la localisation sur certaines bandes [57]. Une fois le canal de dislocation créé, celui-ci débouche au joint de grains. Si les dislocations ne sont pas transmises, elles vont s'empiler et faire augmenter la contrainte localement. Dans ce cas le joint de grains peut rompre et s'il est relié à la surface entraîne la rupture du film passif (Fig. 21). Cependant, contrairement au scénario élaboré par Scott et al. [64] sur la Fig 21 - plutôt sur les alliages à base Ni - il n'y a pas eu d'observation de particules d'oxydes aux joint de grain en avant de la fissure dans les aciers austénitiques inoxydables. Le joint de grains peut aussi glisser et dans ce cas s'il débouche aussi sur la surface, il peut y avoir une rupture du film passif protecteur comme montré sur la Fig. 22 [4, 9, 57, 65].

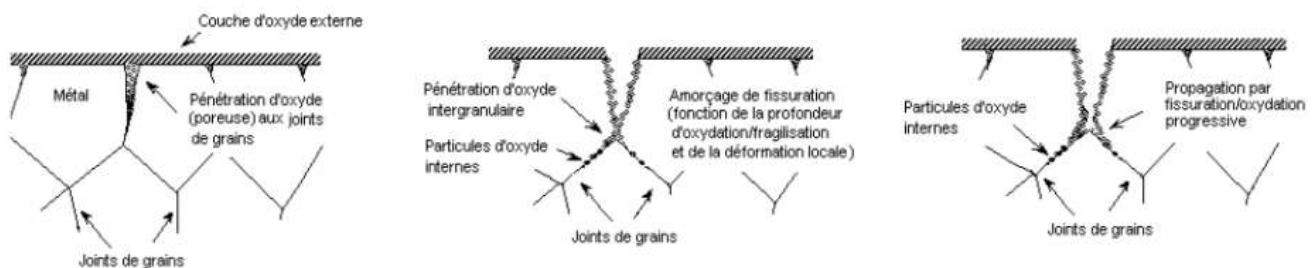


FIGURE 21. – Mécanisme de fissuration avec rupture d'un joint de grains oxydé relié à la surface [64].

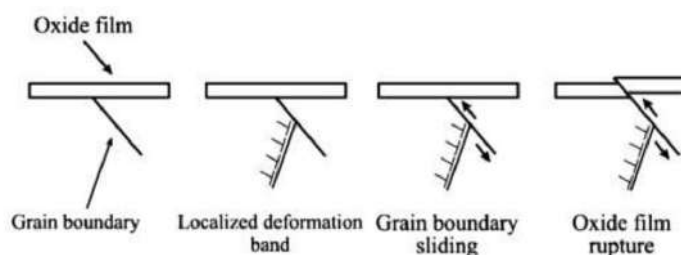


FIGURE 22. – Rupture du film passif par glissement d'un joint de grains relié à la surface [9].



Plusieurs facteurs jouent sur la localisation de la déformation comme la microstructure d'irradiation bien sûr, mais aussi l'énergie de faute d'empilement (Stacking Fault Energy SFE). Si cette dernière est faible, le glissement planaire des dislocations est privilégié alors que si elle est élevée le glissement dévié devient possible et les dislocations peuvent ainsi changer de plan de glissement [9, 57, 65, 66, 67]. Du point de vue de la microstructure d'irradiation, les défauts tels que boucles de Frank, black dots, etc., de par leur interaction (annihilation) avec les dislocations, permettent la création de bandes claires. De plus, puisque la dureté de la matrice est plus élevée (du fait de la présence des défauts d'irradiation) que celle de la bande claire, les dislocations se cantonneront à cette bande puisque leur mouvement y est plus facile [57, 68]. Ce n'est donc pas le durcissement seul qui importe mais bien la microstructure spécifique induite par l'irradiation et plus précisément par l'interaction entre les dislocations et la microstructure d'irradiation. Contrairement aux boucles de Frank et aux black dots, les cavités ne s'annihilent pas au passage des dislocations. Pour Jiao et al. [66], cela aurait pour effet d'induire du glissement dévié car les cavités rendraient plus difficile le glissement planaire. Ces auteurs supposent donc que la localisation de la déformation a tendance à diminuer [66] en présence de cavités. Le type de défauts jouerait donc sur la localisation de la déformation mais leur densité aussi a un rôle. Cette dernière a un effet sur la largeur des canaux de dislocations : plus la densité est élevée, plus les canaux sont larges [65]. Un canal large permet la présence d'un plus grand nombre de dislocations et donc participe à une augmentation de la localisation [57, 68]. Cette augmentation de la localisation est mise en lien avec la sensibilité à la fissuration par IASCC comme énoncé au début de cette section [69]. En effet à l'intersection entre la bande de glissement où est localisée la déformation et le joint de grain, l'empilement de dislocations entraîne une élévation de la contrainte locale au joint de grains. Le joint de grains peut dans ce cas rompre, glisser ou migrer et s'il est relié à la surface, une rupture du film passif peut avoir lieu. C'est alors qu'intervient le milieu oxydant [58, 66, 70] et le métal mis à nu est oxydé. C'est à ce moment que la fissure s'amorce. Le métal peut se repassiver mais ce deuxième film protecteur peut être rompu du fait de l'état de contrainte (macroscopique et du fait de l'empilement des dislocation au niveau de la fissure). La fissure peut donc se propager par repassivation et ruptures successives de l'oxyde [66]. Le joint de grains peut aussi être préalablement oxydé et lors du chargement, la localisation de la déformation conduit à sa fissuration, sachant que l'oxydation l'a fragilisé. La propagation se fait alors via l'interface matrice/oxyde [71]. Il apparaît donc que la localisation de la déformation est elle-même fonction du durcissement, de la SFE (la SFE étant elle-même dépendante de la ségrégation élémentaire puisque qu'elle est fonction de la composition chimique). Son facteur de corrélation traduit donc la combinaison des effets des autres paramètres. Ce scénario de fissuration permet d'expliquer la corrélation entre localisation de la déformation dans des bandes et fissuration. Cependant, d'autres scénarios sont également possibles. Dans des conditions où la résistance des joints de grains est fortement affaiblie - par exemple par des pénétrations d'oxydes intergranulaires étendues et / ou de fortes ségrégation induite par l'irradiation, la fissure pourrait se produire sans déformation plastique des grains adjacents.

### Synthèse sur les mécanismes physiques en jeu dans l'IASCC

Le bombardement du matériau par des neutrons lors de l'irradiation provoque la création d'interstitiels et de lacunes qui peuvent se combiner pour former des défauts de tailles plus importantes. En conditions REP, ces défauts sont principalement des boucles de Frank, des black dots, de la ségrégation élémentaire aux joints de grains, et dans une moindre mesure des précipités et des cavités / bulles. Cette évolution de la microstructure conduit à une évolution des propriétés mécaniques dont un durcissement bien prédit par des modèles prenant en compte les tailles et densités de défauts (modèle de barrière dispersée). L'irradiation induit aussi un changement du mode de déformation qui se traduit par une localisation de la déformation dans des bandes dans lesquelles les défauts d'irradiation ont été partiellement nettoyés par le passage des dislocations, parfois appelées "bandes claires".

La ségrégation élémentaire induite par l'irradiation et l'oxydation intergranulaire peuvent fragiliser les joints de grains et les rendre plus sensibles à la fissuration. Cependant, l'impact de l'irradiation sur la corrosion intergranulaire est un sujet encore à l'étude. Des études montrent qu'après irradiation, la couche d'oxyde formée est plus importante et la pénétration de l'oxyde au joint de grains est plus profonde. Cependant, certains auteurs semblent observer une différence minimale entre l'oxydation à l'état irradié et non irradié voire même une diminution de l'oxydation après irradiation.

L'amorçage de la fissuration intergranulaire dépend du niveau de contrainte appliqué, et plus particulièrement des contraintes au niveau des joints de grains comme le montre l'effet de l'orientation du joint. Il existe un niveau minimal de contrainte à atteindre pour avoir de la fissuration. A noter que l'irradiation provoque une relaxation des contraintes qui pourrait retarder l'apparition de la fissuration en diminuant le niveau de contrainte.

Parmi tous les changements provoqués par l'irradiation, des auteurs ont cherché à déterminer le ou lesquels ont le plus grand impact sur la fissuration intergranulaire par IASCC. D'après le scénario proposé par Was et al. [57], en présence de déformation plastique, la localisation de la déformation serait un paramètre très important dans l'amorçage de la fissuration.

**En conclusion, le phénomène de fissuration intergranulaire des aciers inoxydables austénitiques irradiés résulte de l'interaction complexe entre le comportement des grains (via le durcissement d'irradiation et / ou la localisation de la déformation) et la résistance des joints de grains (affectée via l'effet de l'irradiation sur l'oxydation).**

## 1.2. Modélisation de l'IASCC

Un certain nombre d'études a porté sur la modélisation du phénomène d'IASCC, et plus spécifiquement sur l'amorçage de la fissuration intergranulaire des aciers inoxydables austénitiques irradiés.

### 1.2.1. Modélisation à l'échelle macroscopique

Une partie de ces études porte sur la prédiction des contraintes et du temps d'amorçage, à savoir les courbes présentées sur la Fig. 19. Ainsi Konstantinovic [71] a employé une approche probabiliste pour prédire en temps la rupture. La donnée d'entrée du modèle est la contrainte à rupture obtenue via des essais macroscopiques. Étant donné que solliciter le matériau avec une certaine contrainte  $\sigma$  ne conduit pas toujours à de la fissuration, une probabilité de rupture est associée à chaque niveau de contrainte  $\sigma$  conduisant à une distribution statistique de Weibull de la contrainte à rupture :

$$P_s(\sigma) = 1 - e^{-\left(\frac{\sigma}{\sigma_i}\right)^m} \quad (5)$$

avec  $\sigma_i$  et  $m$  les paramètres du modèle à calibrer.

Les essais macroscopiques ont montré que le temps à rupture était lié à la contrainte via la relation empirique :

$$t = \frac{1}{\sigma^n} \quad (6)$$

De ce fait, le temps à rupture  $t$  en sortie du modèle suit aussi une distribution de statistique de Weibull. Avec ce modèle il est possible de prédire le temps à rupture pour un matériau donné mais la microstructure et les phénomènes physiques à l'œuvre ne sont pas pris en compte, ce qui empêche d'extrapoler les résultats en dehors de la base de calibration.

Devant les limitations intrinsèques de ce type d'approche, des modélisations à l'échelle microscopique ont été développées.

### 1.2.2. Modélisation à l'échelle microscopique

Cette partie se focalise sur les modèles à bases physiques, *i.e.*, tentant de prendre de compte les mécanismes physiques décrits précédemment, proposés dans la littérature pour décrire l'amorçage de la fissuration. Ces modèles peuvent permettre de simuler la fissuration des matériaux irradiés mais ne prennent pas en compte les phénomènes se produisant sous irradiation telle que la relaxation des contraintes par exemple.

Ces simulations peuvent être réalisées à différentes échelles. Pour étudier des phénomènes physiques à une échelle locale (interaction dislocation-dislocation, dislocation-joint de grains, etc.), des simulations par dynamique moléculaire (DM) peuvent être mises en œuvre. Dans ces simulations, la microstructure étudiée est généralement créée en utilisant la méthode de Voronoi [72] ou en se basant préférentiellement sur une microstructure expérimentale. Un cluster d'une dizaine de grains est ainsi créé dans lequel, en utilisant des potentiels interatomiques, il est possible de simuler la nucléation et le mouvement des dislocations ainsi que leurs interactions et avec d'autres éléments de la microstructure. Ces simulations permettent de déterminer des contraintes au niveau atomique. Cependant, les potentiels interatomiques utilisés sont empiriques et leur détermination précise est complexe. De plus, ce type de simulation ne permet d'étudier que quelques grains avec un nombre limité de dislocations comme l'ont souligné Johnson al. [62]. Dans leurs travaux, les auteurs ont réalisé des simulations DM en association avec des essais de traction en milieu REP pour évaluer la contrainte intergranulaire et la relier à l'amorçage de fissure par IASCC dans un acier austénitique irradié aux protons. Ils ont ainsi mis en lumière que les joints sujets à une plus grande contrainte intergranulaire étaient plus sensibles à la fissuration. Les simulations MD réalisées par McMurtrey et al. [56] aboutissent à la même conclusion sur un acier austénitique non irradié, en mettant en lumière que ce haut niveau de contrainte intergranulaire était influencé par la nature du joint de grain et sa capacité à transmettre les dislocations.

Pour des études à plus grande échelle, ce sont plutôt les modèles de plasticité cristalline qui sont utilisés pour les simulations mais il est possible d'y incorporer des paramètres déterminés à plus petite échelle (dynamique moléculaire). Avant de pouvoir réaliser ces simulations, il faut mettre en place un modèle numérique qui s'appuie sur les équations physiques décrivant la plasticité cristalline. Ce modèle est ensuite utilisé pour simuler le comportement mécanique et la déformation plastique des aciers à l'échelle d'intérêt, i.e, celle de l'agrégat polycristallin. Il existe une multitude de modèles de plasticité cristalline. Une synthèse des différents modèles de plasticité a d'ailleurs été réalisée par Roters et al. [73].

Dans cette étude, l'attention sera mise sur le modèle proposé par Cailletaud pour décrire le comportement des aciers inoxydables austénitiques [74, 75, 76]. Les principales équations sont présentées ci-dessous. Le glissement plastique dans le système  $d$  s'écrit :

$$\dot{\gamma}^\alpha = \left( \frac{|\tau_\alpha| - \tau_c^\alpha}{K_0} \right)^n \text{sign}(\tau_\alpha) \quad (7)$$

avec  $\tau_\alpha$  la cission résolue du système de glissement  $\alpha=1, 2...12$  avec symétrie pour les matériaux CFC,  $\tau_c^\alpha$  la cission résolue critique et  $K_0$  et  $n$  les constantes de la loi de Norton. Le glissement est donc activé lorsque  $|\tau_\alpha|$  dépasse la valeur seuil de  $\tau_c^\alpha$ . L'évolution de la cission critique résolue représente l'écrouissage du système. Cette évolution permet de constater le durcissement ou l'adoucissement du matériau. Elle ne s'exprime pas de la même manière selon que le matériau est irradié ou non puisque la quantité et la nature des défauts ainsi que leur interaction avec les dislocations ne sont pas les mêmes. L'écrouissage est exprimé par :

$$\tau_c^\alpha = \tau_0 + \tau_\mu^\alpha \quad (8)$$

avec  $\tau_0$  la contrainte de friction du réseau cristallin, constante pour une température donnée, et  $\tau_\mu^\alpha$  le durcissement dû aux obstacles au mouvement des dislocations.

À l'état non irradié, le durcissement n'est dû qu'aux dislocations :

$$\tau_\mu^\alpha = \mu b_D \sqrt{\sum a^{\alpha u} \rho_D^u} \quad (9)$$

où  $\mu$  est le module de cisaillement,  $b_D$  la norme du vecteur de Burgers des dislocations,  $a^{\alpha u}$  la matrice d'interactions entre les dislocations et  $\rho_D^u$  la densité des dislocations dans le système  $u$ . Cette densité de dislocations évolue avec le glissement plastique selon l'équation :

$$\dot{\rho}_D^\alpha = \frac{1}{b_D} \left( \frac{1}{K_{cop}} \sqrt{\sum_{u \in \text{copla}(\alpha)} b^{\alpha u} \rho_D^u} + \frac{1}{K_{obs}} \sqrt{\sum_{u \notin \text{copla}(\alpha)} b^{\alpha u} \rho_D^u} - g_c \rho_D^\alpha \right) |\dot{\gamma}^\alpha| \quad (10)$$

avec  $K_{cop}$  et  $K_{obs}$  des paramètres sans dimension décrivant la multiplication des dislocations,  $g_c$  une longueur dépendant du mécanisme d'annihilation. Ces paramètres ont déjà été déterminés dans la littérature comme présenté dans le tableau 1.

$\tau_0$	$\mu$	K	n	$K_{cop}$	$K_{obs}$
43 - 0.55T ( K )	-0.003T(K) <sup>2</sup> - 5.6T(K) +88000	5	15	92.3	11.9
$a_{ref}^{self}$	$a_{ref}^{copla}$	$a_{ref}^{Hirt}$	$a_{ref}^{Lomer}$	$a_{ref}^{coli}$	$a_{ref}^{glissile 0^\circ}   a_{ref}^{glissile 60^\circ}$
0.1405	0.050	0.0484	0.1722	0.6972	0.1156   0.0885

TABLEAU 1. – Paramètres de la loi de comportement à l'état non irradié [63]

Dans le cas de l'acier irradié, les dislocations ne sont plus les seules responsables du durcissement. Des défauts d'irradiation comme les boucles de Frank participent aussi à l'écrouissage. Une première hypothèse consiste à supposer que le mécanisme de durcissement dû aux dislocations et celui dû aux

boucles de Frank sont liés. Un choix possible pour la cission résolue critique est :

$$\tau_c^\alpha = \tau_0 + \mu b_D \sqrt{\sum_{u=1}^{12} a^{\alpha u} \rho_D^u} + \mu b_L \alpha_L \sqrt{\sum_{p=1}^4 \rho_L^p \Phi_L} \quad (11)$$

avec  $\alpha_L$  la force d'obstacle effective des boucles de Frank,  $b_L$  la norme du vecteur de Burgers des boucles de Frank,  $\phi_L$  le diamètre moyen des boucles de Frank et  $\rho_L^p$  la densité des boucles de Frank dans chaque plan 111. Un terme d'interaction entre les dislocations et les boucles de Frank est ajouté à la loi d'évolution des dislocations qui devient l'Eq.12.

$$\dot{\rho}_D^\alpha = \frac{1}{b_D} \left( \frac{1}{K_{cop}} \sqrt{\sum_{u \in copla(\alpha)} b^{\alpha u} \rho_D^u} + \frac{1}{K_{obs}} \sqrt{\sum_{u \notin copla(\alpha)} b^{\alpha u} \rho_D^u} + \frac{1}{K_L} \sqrt{k_{dl} \sum_p \phi_L \rho_L^p} - g_c \rho_D^\alpha \right) |\dot{\gamma}^\alpha| \quad (12)$$

avec  $k_{dl}$  un paramètre décrivant l'effet de la présence des boucles de Frank sur la multiplication des dislocations.

L'évolution des boucles de Frank est quant à elle décrite selon l'Eq. 13 développée par Krishna et al. [77] :

$$\dot{\rho}_L^p = -A_L b_D b_L \left( \sum_{\alpha \in plan(p)}^3 \rho_D^\alpha \right) (\rho_L^p - \rho_L^{sat}) \left( \sum_{\alpha \in plan(p)}^3 |\dot{\gamma}^\alpha| \right) \quad (13)$$

avec  $A_L$  un paramètre à calculer et  $\rho_L^{sat}$  la densité minimale des boucles de Frank.

Peu de travaux sur des échantillons monocristallins d'aciers de la série 300 sont disponibles pour calibrer/valider ces lois. Dans la thèse de Scherer [76], l'auteur réalise des essais de traction sur un monocristal de 316L non irradié à 300°C. Dans les travaux de Karaman et al. [78], les auteurs ont réalisé des essais de traction sur des monocristaux d'orientation [111], [001] et [123] afin d'étudier l'influence de l'ajout d'azote dans l'acier 316L.

Ce type de loi de plasticité cristalline a été utilisée pour évaluer les contraintes dans des agrégats polycristallins. Quelques exemples sont décrits dans la suite.

Couvant et al. [79] ont mis en place un modèle de prédiction en temps de l'IGSCC dans un alliage d'Inconel 600 en combinant une loi de plasticité cristalline et une loi de cinétique d'oxydation. Le scénario supposé dans le modèle est : incubation, amorçage et propagation de la fissure. Les auteurs utilisent une loi de cinétique d'oxydation intergranulaire calibrée pour le matériau en milieu REP avec comme donnée d'entrée le taux de Cr, le taux de carbures de Cr au joint de grains et la taille de la zone appauvrie en Cr du fait de la précipitation et calculent la profondeur de l'oxydation au cours du temps. Cette profondeur d'oxydation est utilisée pour estimer la résistance du joint de grains à la fissuration. Dès que la profondeur atteint une valeur critique et que la valeur de la contrainte intergranulaire est supérieure à la résistance du joint, il y a amorçage. La contrainte intergranulaire est déterminée en utilisant une loi de plasticité cristalline calibrée pour le matériau. En sortie de modélisation, un temps  $t$  d'amorçage est déterminé mais aussi une contrainte d'amorçage et une vitesse de propagation. L'auteur a aussi réalisé les mêmes simulations en ajoutant des simulations d'ouverture de zone cohésives pour simuler la propagation [80]. Cependant ce modèle combiné nécessite un long temps de calcul alors que le nombre de grains modélisé est assez faible (21 et 171). Cela n'offre pas assez de joints de grains pour une représentation statistique. En ce qui concerne la loi de cinétique d'oxydation, elle est calibrée pour une oxydation de surface du matériau, donc avec une grande dépendance à l'état de surface et la banque de données disponibles n'est pas très fournie. L'effet de la contrainte n'est pas non plus pris en compte dans l'oxydation. Enfin le seul critère de rupture du joint est la profondeur de son oxydation, ce qui ne peut être suffisant comme critère d'amorçage de la rupture.

La loi de plasticité cristalline vue précédemment peut être utilisée pour déterminer les contraintes locales au joint de grains. Sauzay et al. [81] ont aussi réalisé une étude pour déterminer le champ de contrainte normale aux joints de grains à l'intersection avec une bande de glissement en utilisant une configuration simplifiée. Grâce aux simulations par éléments finis, les auteurs ont ainsi déterminé

qu'en augmentant la longueur de cette bande la contrainte normale augmente mais qu'en augmentant sa largeur, cette contrainte diminue. Cette contrainte locale normale est comparée avec celle calculée par la théorie de l'empilement et s'avère être trois fois moins importante. Cependant, loin de l'intersection, les valeurs de contraintes normales issues des simulations et de la théorie d'empilement sont similaires.

L'étape suivante est ensuite d'utiliser ces lois de plasticité cristalline sur des microstructures réalistes et/ou des cas de chargements complexes. Ainsi, El Shawish et al. [82] l'ont mise en œuvre durant la simulation de la mise en traction d'un agrégat polycristallin pour extraire la contrainte normale au plan du joint de grains. Hure et al. [83] se sont aussi focalisés sur l'importance de la contrainte normale au plan du joint de grains  $\sigma_n$ . À partir de simulations sur la mise en traction d'un agrégat polycristallin d'acier 304L irradié de 0 à 13 dpa (Fig. 23), ces auteurs ont extrait la contrainte normale au plan du joint de grains et ont calculé la probabilité que cette dernière soit supérieure à la contrainte critique menant à la rupture. Il s'agit d'un moyen de calculer la probabilité de rupture intergranulaire mais requiert que le critère utilisé, ici la contrainte critique de rupture du joint de grains, soit connu.

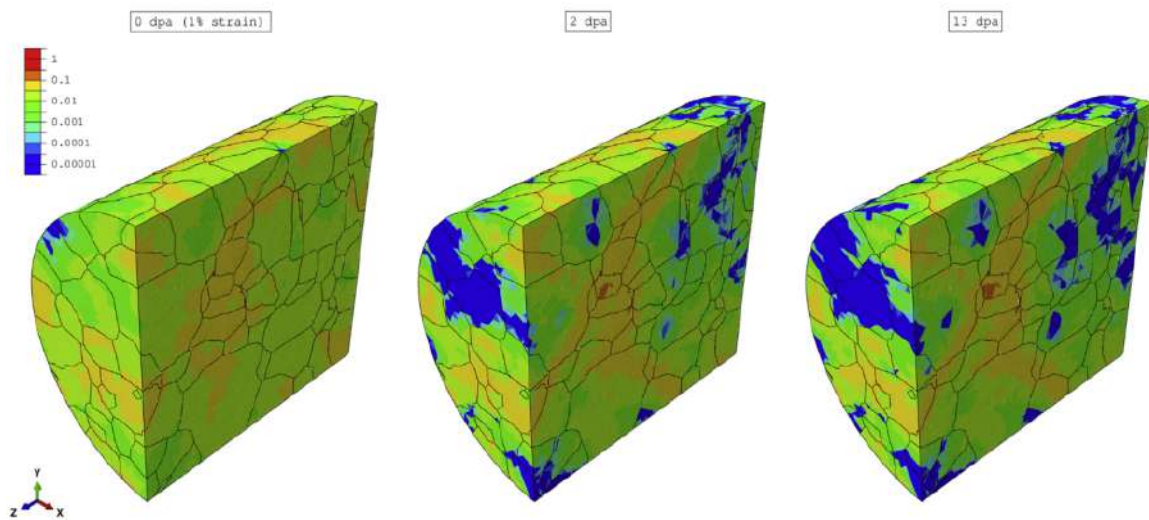


FIGURE 23. – Visualisation du glissement plastique cumulé après la simulation de la mise en traction à 1% de déformation d'un agrégat polycristallin de 304L irradié aux protons à 0, 2 et 13 dpa [83].

Exceptées les études de Scherer [76] et Karaman et al.[78], la détermination des paramètres de la loi de comportement sur un monocristal pour les aciers austénitiques est rare dans la littérature. Cette loi est essentielle pour ensuite obtenir les paramètres à rupture du joint de grains, sachant qu'ils dépendent à priori de sa nature et de son état. L'étude de Liang et al. [63] a montré une forte dépendance des résultats numériques de prédictions de l'amorçage de la fissure à l'inhomogénéité de la contrainte à rupture des joints de grains.

### Synthèse sur les modélisations et simulations de l'IASCC

Différents types de modèles et de simulations ont été proposés dans la littérature pour prédire l'amorçage de la fissuration intergranulaire des aciers inoxydables austénitiques irradiés testés en conditions REP. Une partie de ces modèles, de nature purement empirique, permet d'estimer les contraintes / temps à rupture en fonction du niveau d'irradiation pour un matériau donné. Ces modèles, utiles pour l'ingénierie, reposent exclusivement sur les résultats d'essais et n'ont, à priori, pas de caractère prédictif en dehors de leur base de calibration.

L'autre partie des modèles repose sur la prise en compte des mécanismes physiques en jeu dans l'IASCC, à savoir contraintes locales et résistance mécanique des joints de grains. Ces modèles diffèrent notamment en ce qui concerne la prise en compte de la microstructure (explicite *vs.* simplifiée) et de l'échelle considérée (atomique *vs.* milieu continu).

**Les modèles et simulations à bases physiques de l'amorçage de la fissuration intergranulaire nécessitent d'une part de modéliser à la fois le comportement mécanique à l'échelle des grains, de type plasticité cristalline, et d'autre part de connaître les propriétés de rupture des joints de grains.**

Cette introduction au phénomène d'IASCC et à sa modélisation a permis de mettre en évidence qu'une modélisation prédictive à bases physiques nécessite une connaissance fine d'une part du comportement mécanique à l'échelle du grain, *i.e.*, d'un monocristal, et d'autre part des propriétés de rupture des joints de grains oxydés. Des travaux - limités - existent quant au comportement monocristallin des aciers inoxydables austénitiques dont les paramètres ont été déterminés sur la base de simulations sur des polycristaux [75] et sur la base d'essais sur des monocristaux [76, 78].

Il va donc maintenant être question des essais qui permettent d'accéder aux valeurs des propriétés à rupture et aux données expérimentales permettant de calibrer une loi de comportement de plasticité cristalline des aciers austénitiques à l'état non irradié et irradié. Compte-tenu de la taille des grains caractéristiques de ces matériaux - de l'ordre de  $20\mu\text{m}$  - les essais sont des caractérisations de type micro-mécanique. Dans une première partie, les essais permettant de caractériser le comportement des grains sont présentés. Une seconde partie est consacrée aux essais dédiés à la caractérisation mécanique des joints de grains. L'accent est mis sur les essais utilisables avec des matériaux irradiés aux ions, *i.e.*, présentant une faible épaisseur irradiée. Dans les deux cas, les résultats d'essais disponibles concernant les aciers inoxydables austénitiques sont synthétisés.

## 2. Caractérisation expérimentale du comportement intragranulaire

La calibration de lois de comportement cristallines nécessite des essais à l'échelle du grain. De plus, l'irradiation provoquant surtout un dommage surfacique dans le cas des ions, l'épaisseur maximale de matériau irradié est de quelques micromètres pour les ions lourds et peut aller jusqu'à une dizaine de micromètres pour les protons. Des essais à cette dimension imposent un faible volume de matière à solliciter. C'est dans cette optique que des essais à l'échelle microscopique tels que la nano-indentation, la micro-compression, la flexion de micro-poutre et la micro-traction ont été mis en place. Dans tous les cas, il s'agit d'appliquer un chargement mécanique sur un échantillon de petite taille. L'application du chargement peut se faire en contrôlant la charge appliquée ou bien le déplacement de l'indenteur qui applique la charge. Par la suite, chacun des essais mentionnés précédemment sera détaillé ainsi que les spécificités de sa mise en œuvre et son exploitation. De plus, les résultats disponibles dans la littérature concernant les aciers inoxydables austénitiques sont présentés.

### 2.1. Essai de nano-indentation

#### 2.1.1. Principe de l'essai

La nano-indentation a pour but de mesurer la dureté d'un matériau, c'est-à-dire sa résistance à la pénétration d'un objet plus dur, généralement un indenteur en diamant. Cette technique consiste à appliquer une charge à la surface du matériau à l'aide d'un indenteur et de suivre l'évolution de la charge au cours du temps. L'indenteur le plus largement utilisé est celui de Berkovich. Il s'agit d'une pyramide à base triangulaire dont chaque côté forme un angle de  $65^\circ$  avec l'axe vertical. Cet indenteur fait généralement une taille de quelques dizaines de microns et puisqu'il s'agit de nano-indentation, la charge appliquée est inférieure au newton. L'indenteur pénètre dans l'échantillon à vitesse constante jusqu'à atteindre la charge programmée. Cette charge est maintenue sur une certaine durée avant la phase de décharge où l'indenteur est retiré à vitesse constante. Cette technique, d'abord mise en place pour tester les couches minces, est aujourd'hui largement utilisée pour les matériaux irradiés aux ions. Elle permet de tester la couche irradiée dont l'épaisseur varie de  $\sim 1$  à  $\sim 10 \mu\text{m}$  dans le cas des irradiations aux ions.

#### 2.1.2. Résultats et interprétations

Le résultat typique de cet essai est une courbe de charge / décharge (Fig. 24) qui permet de calculer la dureté à une profondeur donnée :

$$H = \frac{P_{max}}{A} \quad (14)$$

avec  $H$  la dureté à une profondeur donnée,  $P_{max}$  la charge appliquée et  $A$  l'aire de l'indent qui met en jeu la géométrie de l'indenteur.

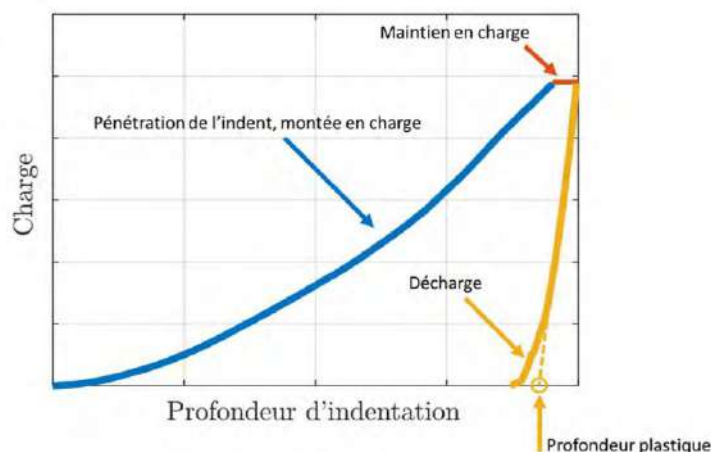


FIGURE 24. – Courbe typique de charge / décharge d'un essai de nano-indentation [26].



L'Eq. 14 nécessite de mesurer l'aire de contact après l'essai. Une première amélioration développée par Oliver et Pharr [84] permet d'estimer cette aire directement à partir de la courbe de décharge. Plus récemment, une autre méthode appelée Continuous Stiffness Method (CSM) permet d'avoir la dureté à tout instant sans avoir besoin de retirer l'indenteur. Durant le chargement, le système mesure continuellement la raideur au contact entre l'indenteur et l'échantillon et en déduit la dureté. Cette technique permet donc d'accéder à la dureté continuellement en fonction de la profondeur [85].

Cet essai est sujet à un effet de taille : plus la profondeur d'indentation est faible (volume de matière testé faible) plus la dureté augmente. Cela est dû au fait que dans un petit volume, d'une part les dislocations et les sources de dislocations sont moins nombreuses et que des dislocations de type Geometrically Necessary Dislocations (GND) sont nécessaires pour accommoder les changements de géométries dues à la déformation plastique d'autre part. Cet effet de taille est traité par le modèle de Nix et Gao [86], conduisant à la relation :

$$\frac{H}{H_0} = \sqrt{1 + \frac{d^*}{d}} \quad (15)$$

avec  $H$  la dureté à la profondeur  $d$ ,  $H_0$  la dureté pour une très grande profondeur d'indentation, *i.e.*, pour le matériau massif et  $d^*$  une longueur caractéristique qui dépend du matériau et du dispositif expérimental. Le paramètre  $d^*$  modélise l'effet de taille.

Le modèle de Nix et Gao permet d'interpréter la courbe de la dureté en fonction de la profondeur d'indentation. En traçant l'évolution de  $H^2$  en fonction de  $1/d$ , il est alors possible de déterminer la dureté du matériau massif (profondeur infinie) qui est l'ordonnée à l'origine de la droite permettant d'ajuster les données (Fig. 25), et ainsi s'affranchir de l'effet de taille. De plus il est possible de remonter à la limite d'élasticité grâce à des corrélations comme celle de Busby et al. (Eq. 4) [32].

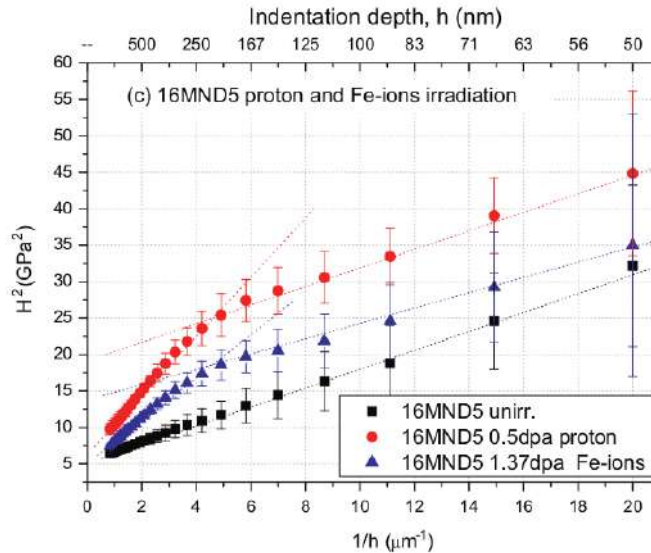


FIGURE 25. – Evolution linéaire de  $H^2$  en fonction de l'inverse de la profondeur d'indentation pour un acier 16MND5 à l'état irradié et non irradié [87].

De nombreuses études ont utilisé la nano-indentation pour étudier les aciers inoxydables austénitiques, notamment irradiés aux ions. A titre d'exemple, Hardie et al. [88] ont réalisé des essais de nano-indentation sur différents alliages Fe-Cr irradiés 2-8dpa  $\text{Fe}^+$  et ont remarqué que la zone déformée plastiquement durant l'essai peut être de 4 jusqu'à 10 fois supérieure à la profondeur d'indentation. La dureté du substrat non irradié peut donc participer à la dureté totale mesurée avant même que l'indenteur n'ait atteint la région non irradiée.

### 2.1.3. Contraintes de réalisation et d'interprétation de l'essai

#### Contraintes expérimentales

Afin d'être exploitables, les essais de nano-indentation doivent être réalisés en respectant certains critères. Il faut veiller à ce que la distance entre les indents soit assez élevée pour que la déformation autour d'un indent n'influence pas la valeur de la dureté de l'indent suivant. Wang et al. [89] ont laissé une distance de  $50\mu\text{m}$  entre chaque indent pour éviter que la zone d'érouissage autour d'un indent influence sur la valeur de la dureté de l'indent suivant mais une distance de 3 à 5 fois la diagonale de l'indent est couramment utilisée. La mesure est très sensible à l'état de surface et à la préparation de l'échantillon. Dans le cas des ions lourds, l'épaisseur de la couche irradiée est faible et composée de régions avec des doses différentes. La dureté finale calculée prend donc en compte la dureté des différentes régions en plus de celle de la matrice éventuellement. Le résultat de dureté est donc une somme de différents effets dont la déconvolution est difficile. Hosemann et al. [90] ont proposé une loi des mélanges pour prendre en compte l'apport de la partie non irradiée dans la dureté finale. Une autre solution pour y remédier est la nanoindentation sur la section transverse donc perpendiculaire à la direction d'irradiation (Fig. 26). Cependant ces problématiques se posent peu pour l'irradiation aux protons car la couche irradiée est plus profonde et la dose reste relativement constante dans cette épaisseur. Certaines études comme celles de Prasitthipayong et al. [91] sur un acier austénitique et Ruiz-Moreno et al. [92] sur un acier ferito-martensitique ont conduit des essais de nano-indentation à haute température ( $300\text{-}600^\circ\text{C}$ ). L'un des défis est d'avoir la même température pour l'indenteur et l'échantillon et que la température soit uniforme à l'intérieur de chacun de ces objets. De plus il est possible qu'il y ait une oxydation ou une dégradation de l'indenteur [93], ce qui peut être évité en réalisant l'essai sous atmosphère inerte (vide ou Ar).

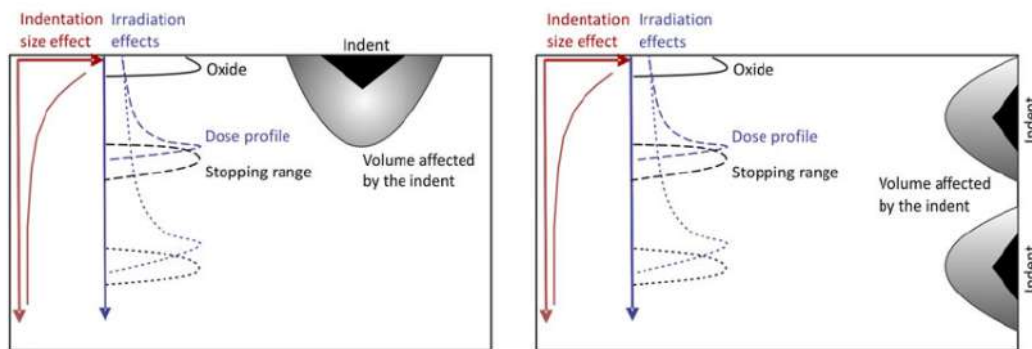


FIGURE 26. – Essai de nano-indentation selon la direction d'irradiation ou transversalement (perpendiculaire à l'irradiation) [94].

#### Contraintes liées à la modélisation

Les essais de nano-indentation ne permettent pas d'accéder directement à des propriétés matériaux intrinsèques. La simulation numérique est utilisée pour étudier l'effet d'un paramètre (orientation cristallographique [95], microstructure, joint de grains [96], [97], etc.) sur la dureté et dans de rares cas pour calibrer une loi de comportement [98]. Pour simuler correctement les essais de nano-indentation, il est primordial de bien modéliser la zone de contact entre l'indenteur et l'échantillon. Pour cela, la zone de contact est maillée plus finement comme dans les simulations de Lu et al. [96], Liu et al. [97] et Li et al. [95]. Il faut aussi veiller à ce que la taille de l'échantillon n'influence pas les résultats de simulation. Pour cela une série de simulations peut être réalisée en changeant la taille du support jusqu'à ce que les résultats ne varient plus. Lu et al. [96] ont choisi un échantillon dont la hauteur est dix fois supérieure à la profondeur d'indentation. Durant la simulation, il faut éviter que l'indenteur qui applique la charge ne se déforme. Ainsi dans les simulations, il est modélisé avec une grande rigidité [96]. Afin de pouvoir comparer les simulations aux essais expérimentaux et de calibrer des paramètres d'une loi de comportement, une des méthodes consiste à construire une fonction objectif

qui représente la différence entre les résultats expérimentaux et numériques puis chercher le minimum de cette fonction. Comme Rauchs et al. [98] le supposent dans leur article, cette fonction pourrait avoir plusieurs minima locaux correspondant à différents jeux de paramètres qui ne sont pas tous physiquement réalistes. Enfin, l'utilisation de cette méthode dans le cas de matériaux irradiés aux ions lourds pose la question du gradient de dose - et donc de propriétés mécaniques - qu'il est nécessaire de prendre en compte [99]. Tous ces aspects compliquent l'utilisation des résultats de nano-indentation pour calibrer une loi de comportement à l'échelle cristalline.

#### 2.1.4. Résultats disponibles dans la littérature

Ces essais sont très utilisés pour déterminer le durcissement après irradiation des aciers inoxydables austénitiques. Wang et al. [89] ont comparé les courbes de dureté en fonction de la profondeur dans les mêmes conditions expérimentales pour les différentes doses d'irradiation, ce qui est la manière la plus directe d'utiliser ce genre d'essais. D'autres auteurs ont utilisé la méthode de Nix et Gao pour interpréter les essais. Ainsi, Yabuushi et al. [100] ont aussi rencontré un effet de taille lors d'essais de nanoindentation sur un acier 316L irradié à 0.1, 0.3, 1 et 8dpa aux protons. En utilisant le modèle de Nix et Gao pour prendre en compte l'effet de taille, ils ont déterminé la dureté de la couche irradiée à 5.3GPa à 8dpa. Dans l'étude de Jin et al. [101] sur un autre acier austénitique irradié aux ions  $\text{Fe}^{4+}$ , les auteurs observent aussi une augmentation de la dureté en fonction de la profondeur qui atteint un pic puis diminue à mesure que l'indenteur s'approche du substrat non irradié. Paccou et al. [26] ainsi que Gupta et al. [4] ont utilisé la nano-indentation pour accéder à la dureté et évaluer la limite d'élasticité d'un acier 304L suite à des irradiations au Fe et/ou He à différentes températures. Ces deux études montrent qu'après irradiation, la dureté et la limite d'élasticité de l'acier augmentent. Suite à des irradiations au Fe et Fe/He à 450 et 600 °C, Paccou trouve une variation de la dureté jusqu'à 1.71GPa qui peut être transformée en variation de limite d'élasticité de 530MPa, l'adoucissement observé concernant l'échantillon irradié Fe/He à 600°C. Dans l'étude de Gupta la dureté augmente de 242HV aboutissant à une augmentation de limite d'élasticité de 733MPa après une irradiation aux protons de 1dpa tandis que les irradiation au Fe conduisent à des augmentations des limites d'élasticité de 286 et 343MPa. L'augmentation de la dureté avec la dose d'irradiation n'est pas linéaire. Huang et al. [102] ont montré une saturation de la dureté dans un acier 316L irradié au Xenon. Les essais de nano-indentation menés par Lupinacci et al. [103] ont permis de déterminer la dose de saturation du durcissement dans un acier 304L, irradié aux protons, vers une dose de 10 dpa. Reichardt et al. [104] ont quant à eux déterminé que cette valeur de saturation est inférieure à 10 dpa pour une irradiation aux protons. L'augmentation de la dureté et de la limite d'élasticité post-irradiation observée lors des essais de nanoindentation sont en relation avec la microstructure d'irradiation. La densité des défauts d'irradiation (boucles de Frank, cavités, etc.) est directement reliée au durcissement observé par exemple avec le modèle de la barrière dispersée.

### Essai de nano-indentation

La nanoindentation consiste à appliquer une charge à la surface du matériau grâce à un indenteur et suivre l'évolution de la charge au cours de l'essai. Durant la pénétration de l'indent dans le matériau, il est possible d'accéder à la dureté en fonction de la profondeur de l'indentation. Cet essai est sujet à un effet de taille qu'il faut prendre en compte lors de l'interprétation des résultats. Plus le volume de matière testé est faible (faible profondeur) plus la valeur de la dureté augmente. Cet effet est corrigé en appliquant le modèle de Nix et Gao aux résultats pour évaluer la dureté du matériau massif. Cette technique, simple d'utilisation, est cependant sensible aux conditions expérimentales (état de surface, distance entre indents, température, homogénéité de la zone sollicitée). Ces valeurs de dureté peuvent être converties en limite d'élasticité grâce au modèle phénoménologique de Busby (Eq. 4). Le tableau suivant synthétise les résultats disponibles dans la littérature sur les aciers 304(L)/316(L) irradié (et non irradié comme référence).

Matériau	Condition d'irradiation	Température d'essai (°C)	$\Delta\sigma_y$ (MPa)	Mention effet de taille	Ref.
304L	1 dpa H à 450°C	20	733	oui	[4]
304L	3 dpa Fe à 450°C		286		
	7 dpa Fe à 450°C		343		
304L	12 dpa Fe à 450°C	20	530	oui	[26]
	12 dpa Fe + He à 450°C		527		
	8 dpa Fe à 600°C		161		
	Fe + He à 600°C		-60		
304	10 dpa H <sup>+</sup> à 360°C	20	812	oui	[103]
304	10 dpa H <sup>+</sup> à 360°C	20	1360	oui	[105]
316	0.9 dpa He <sup>+</sup> à 20°C	20	566	oui	[106]
	0.9 dpa He <sup>+</sup> à 550°C	20	329		
316	200 dpa Fe <sup>+</sup> à 500°C	20	464	oui	[107]
	200 dpa Fe <sup>+</sup> à 575°C	20	400		

TABLEAU 2. – Résultats de nano-indentation disponibles dans la littérature sur les aciers 304(L)/316(L)

L'utilisation d'essais de nano-indentation pour remonter aux paramètres de lois de comportement de plasticité cristalline est peu développée, notamment du fait de la complexité en termes de modélisation - état de contrainte complexe nécessitant des simulations numériques, ces dernières étant également complexes (contact, frottement).

## 2.2. Essai de compression de micro-piliers

### 2.2.1. Principe de l'essai

Une autre méthode utilisée pour caractériser des matériaux à l'échelle du grain est la compression de micro-piliers de section circulaire ou carrée. Il s'agit d'appliquer une charge de manière uni-axiale sur le pilier avec un indenteur en diamant à bout plat comme montré sur la Fig. 27. La vitesse de déformation de ce type d'essai est comprise le plus souvent entre  $\sim 10^{-3}$  et  $10^{-5} \text{s}^{-1}$ . Les piliers testés ont des diamètres allant de plusieurs centaines de nanomètres à plusieurs dizaines de micromètres et sont fabriqués à l'aide d'un microscope électronique à balayage (MEB) muni d'une colonne ionique (Focus Ion Beam FIB), ce qui permet d'avoir un pilier monocristallin. L'essai permet d'obtenir l'évolution de la force en fonction du déplacement de l'indenteur.

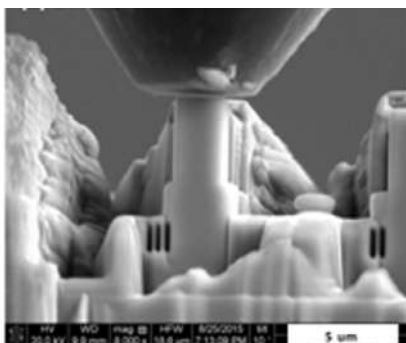


FIGURE 27. – Visualisation au microscope électronique à balayage d'un essai de micro-compression d'un pilier carré d'acier (800H, T91, NCT91 et 14YWT) irradié au  $\text{Fe}^{9+}$  [108].

### 2.2.2. Contraintes de réalisation et d'interprétation de l'essai

#### Contraintes expérimentales

La préparation de l'échantillon est plus longue et complexe que pour la nanoindentation. Elle nécessite l'élaboration d'un protocole de fabrication au MEB-FIB. Selon les dimensions des piliers et les courants d'usinage utilisés, la fabrication peut typiquement prendre de plusieurs dizaines de minutes à une journée. Un ratio de  $\sim 3$  entre le diamètre et la hauteur du pilier est recommandé [109]. Ce facteur de forme a pour but d'éviter que le pilier ne se déforme en tonneau ou ne gauchisse durant l'essai provoquant un état de contrainte triaxial [109]. Il faut aussi prendre en compte le fait que l'utilisation du faisceau pour abraser peut laisser des traces de pollution au gallium dans le pilier [110]. De plus ce faisceau peut provoquer un endommagement de surface pouvant mener à la précipitation de martensite dans l'acier 304 [93]. Le faisceau de gallium utilisé pour usiner les piliers a une forme gaussienne, ce qui a pour effet d'aboutir à un pilier dont le diamètre du haut est plus faible que le diamètre à la base (Fig. 28) .

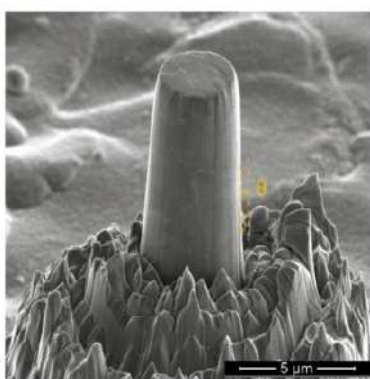


FIGURE 28. – Angle formé entre le haut du pilier et la base [111].

L'angle de ce pilier conique (Fig. 28) est typiquement de  $\sim 2^\circ$ . La présence de cet angle pose plusieurs problématiques [112]. Premièrement, la contrainte calculée dépend alors du diamètre de pilier choisi, cela vaut aussi pour le durcissement. Cela induit aussi un gradient de déformation : la déformation est localisée en haut du pilier où la contrainte est la plus forte puisque le diamètre  $y$  est plus faible. D'après Kiener et al. [112], le haut ainsi que la base du pilier expérimentent des états de contraintes multi-axiaux rendant la détermination de la contrainte compliquée à ces endroits spécifiques. Parmi les autres contraintes expérimentales, il y a aussi l'alignement entre l'indenteur et le pilier. Il faut s'assurer que l'indenteur est parallèle à la surface de l'échantillon. Si les deux ne sont pas bien alignés, le pilier peut flamber, s'éloignant ainsi de l'état de contrainte uniaxial recherché dans la plupart des études. Afin d'étudier l'effet du désalignement entre l'indenteur et le pilier, Soler et al. [113] ont simulé des essais de micro-compression sur piliers LiF (fluorure de lithium) de  $1\text{-}5\mu\text{m}$  de diamètre et  $10\mu\text{m}$  de haut. Les auteurs ont testé plusieurs angles de désalignement de  $1$  à  $5^\circ$ . Les courbes de compression obtenues pour les différents angles montrent qu'un petit désalignement a de grandes répercussions sur le comportement mécanique en plasticité puisque l'écart entre la courbe à  $0$  et  $1^\circ$  est marqué et à  $5^\circ$  les courbes n'ont plus du tout la même allure (Fig. 29).

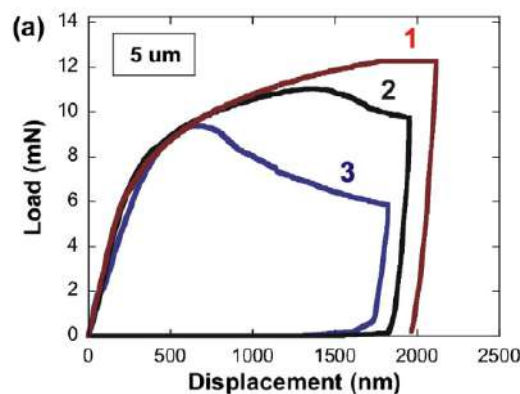


FIGURE 29. – Effet de l'angle de désalignement entre l'indenteur et le pilier sur la courbe de compression. Les courbes 1, 2 et 3 correspondent respectivement à des désalignements de  $0$ ,  $1$  et  $5^\circ$  [113].

Pour s'assurer du bon alignement de leur système, Grievson et al. [114] ont observé au microscope AFM des indents faits sur du cuivre grâce à leur indenteur. Quant à Heo et al. [115], ils ont utilisé un goniomètre à double tilt pour bien aligner le pilier et l'indenteur. Une autre méthode consiste à observer simultanément au MEB-FIB l'indenteur et le pilier pour réaliser l'alignement.

Le frottement entre l'indenteur et le pilier peut avoir des effets sur la déformation lors de l'essai. En effet en présence de frottement (lié la nature de l'indenteur), il est possible d'avoir un état de triaxialité des contraintes et une contrainte de cisaillement plus importante sur le haut du pilier [112]. Cependant d'après Raabe et al. [116], la présence de frottement peut aussi stabiliser le contact entre l'indenteur et l'échantillon pendant l'essai. L'adhérence de l'indenteur sur le pilier provoquée par le frottement met en jeu la raideur de l'indenteur sur les résultats de déformation observés [117]. En effet, des auteurs comme Shade et al. [118] ont étudié comment la raideur de l'indenteur peut influencer sur la déformation plastique du pilier. Si l'indenteur est rigide, le pilier ne peut pas bouger latéralement. Il se déforme alors en tonneau, introduisant un état de contraintes triaxial. En conséquence, la courbe contrainte / déformation montre un durcissement important. Pour expliquer cela les auteurs ont supposé que la raideur de l'indenteur empêche le pilier de bouger latéralement. Cela provoque une rotation locale du réseau cristallin qui peut changer l'orientation du plan de glissement par rapport à l'axe de sollicitation, rendant le-dit plan moins favorable au glissement. Il est alors possible d'avoir du glissement secondaire sur d'autres plans qui sont alors activés par ce changement d'orientation. Le passage de glissement simple à multiple s'accompagne d'une augmentation du durcissement. Si l'indenteur est souple, le pilier est sujet à un fléchissement / cisaillement et le durcissement est moins élevé. Le comportement plastique observé diffère selon la raideur de l'indenteur. Si l'objectif des études est de caractériser l'érouissage du matériau, il est donc nécessaire de rechercher l'activation de plusieurs

systèmes de glissement en choisissant l'orientation cristallographique du pilier et / ou en utilisant un indenteur de rigidité latérale forte.

Dans certains essais de compression de micro-piliers comme ceux de Hosemann et al. [90], Jin al. [119] et Volkert al. [120], les auteurs ont remarqué un enfoncement du pilier dans le substrat. Cela nécessite une correction de la valeur du déplacement qui est réalisée grâce à l'Eq. 29 :

$$\Delta x = \Delta x_m - \left( \frac{1 - \mu^2 F}{E d} \right) \quad (16)$$

avec  $\Delta x$  le déplacement total du pilier,  $\Delta x_m$  le déplacement mesuré,  $E$  le module d'Young,  $\mu$  le coefficient de Poisson de la base,  $F$  la force mesurée sur le pilier et  $d$  le diamètre du pilier. Cette formule est issue des travaux de Sneddon [121] qui l'a développée pour le cas d'un indenteur rigide à bout plat.

Comme pour tous les essais micro-mécaniques, mesurer les valeurs de force et de déplacement à une petite échelle est un défi qui requiert une instrumentation très précise [122]. Pour le suivi du déplacement, une vidéo est enregistrée durant l'essai. Une analyse d'image est ensuite réalisée pour obtenir le déplacement en se basant sur l'évolution de la position d'un point de référence (déplacement du haut du pilier pour Jin et al. [119] et évolution de la distance entre le haut et la base du pilier pour Paccou [26]). Cela implique de disposer le pilier et le dispositif de façon à pouvoir visualiser le pilier entier et l'indenteur mais aussi d'avoir une bonne qualité d'image qui permet d'effectuer des mesures précises.

Une dispersion des résultats expérimentaux en micro-compression est observée [26], ce qui peut s'expliquer par le fait que ces essais sont parfois réalisés à une échelle où il existe un effet de taille.

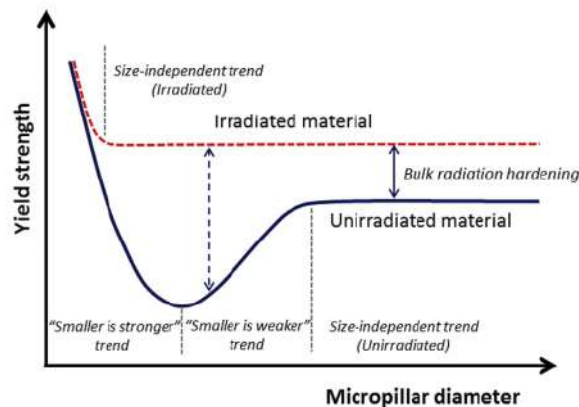


FIGURE 30. – Effet de taille dans les essais de micro-compression [115].

Enfin, et de manière similaire aux essais de nano-indentation, un effet de taille est observé sur les essais de micro-piliers comme le montrent les études de Jin et al. [119], Heo et al. [115] et Kiener et al. [123]. Cet effet est schématisé sur la Fig. 30 [115]. De manière générale, un effet de type *smaller is stronger* est observé dans lequel la limite d'élasticité se met à augmenter lorsque le diamètre du pilier diminue. Un régime intermédiaire peut être obtenu dans certains cas particuliers, de type *smaller is weaker* et lié au fait que des attributs de microstructure qui ont un rôle durcissant (joints de grains, précipités, etc.) sont de moins en moins nombreux.

Deux mécanismes sont proposés pour expliquer ce phénomène de *smaller is stronger*. Soit la quantité de dislocations mobiles responsables de la plasticité est faible dans ce petit volume et il faut donc nucléer de nouvelles dislocations avant de pouvoir déformer plastiquement (modèle dit de "dislocation starvation" étudié par Greer et al. [124]). Cela demande plus d'énergie d'où l'augmentation de la limite d'élasticité. Le deuxième mécanisme proposé par Parthasarathy et al. [125] suggère que la contrainte qu'il faut pour activer une source de dislocations dans un pilier de petite taille est plus importante que dans un pilier de plus grande taille. En effet, plus une source de dislocation est petite, plus la contrainte



pour y nucléer des dislocations est élevée. Or la taille des sources émettrices de dislocations est liée à la taille de l'échantillon lui-même. Pour activer les sources de dislocation des piliers micrométriques et permettre la plasticité, il faudra donc une contrainte plus élevée (modèle de "source truncation") [126].

### Contraintes liées à la modélisation

Contrairement aux essais de nano-indentation, il est possible d'évaluer directement la cission résolue critique des essais de compression sur micro-piliers sous réserve d'un état de contraintes uniaxiale. Cette valeur est alors directement utilisable dans les lois de comportement de plasticité cristalline. Pour aller plus loin, *i.e.*, calibrer une loi de comportement, étudier l'influence de certains paramètres sur le comportement mécanique ou bien accéder à des propriétés difficiles à déterminer expérimentalement, des simulations par éléments finis peuvent être réalisées (Fig. 31). Des lois de comportement de plasticité cristallines de type phénoménologique sont le plus souvent utilisées pour modéliser la déformation plastique du pilier, même si certains auteurs [127] ont utilisé des modèles plus avancés.

Ce type de simulations a été réalisé par un certain nombre d'auteurs, mettant en avant les points d'attention suivant. Premièrement, un support du pilier de taille suffisamment importante doit être pris en compte pour modéliser l'effet d'enfoncement du pilier dans le substrat [116]. Deuxièmement, la prise en compte du frottement entre l'indentateur et le pilier est importante. Dans leur étude, Raabe et al. [116] ont montré qu'un coefficient de frottement non nul stabilisait la déformation du pilier.

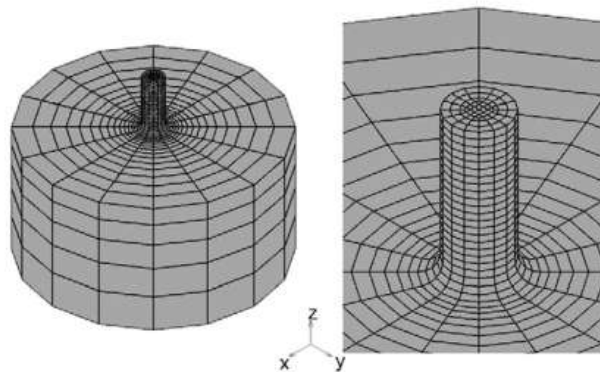


FIGURE 31. – Maillage typique d'un pilier et de son substrat utilisé lors d'une simulation par éléments finis [116].

Des auteurs comme Kupka et al. [128] ont simulé des essais de compression de micro-piliers sur un aluminium-lithié 2198 ne présentant pas d'effet de taille pour déterminer les paramètres d'une loi de comportement de plasticité cristalline. La comparaison entre la courbe de compression expérimentale et celle issue de la simulation a permis d'obtenir les paramètres de la loi de comportement. La comparaison a été effectuée uniquement pour la déformation plastique puisque les auteurs ont supprimé la partie correspondant à la déformation élastique du pilier. Les auteurs ont testé des orientations donnant lieu à du glissement simple et ne présentant pas d'écrouissage et d'autres orientations avec du glissement multiple pour ainsi déterminer tous les paramètres qui les intéressaient.

En reprenant la même démarche que précédemment, Breumier et al. [129] ont déterminé une loi de comportement pour le cuivre en couplant des essais de compression de micro-piliers et des simulations numériques. Ils ont ensuite étudié la fiabilité de leur résultats en utilisant un indicateur  $I$  qui rend compte de la stabilité et de l'unicité de la solution trouvée. Cet indicateur est défini en utilisant les valeurs propres minimum et maximum d'une matrice hessienne proche de la solution du problème. Une valeur de  $I$  inférieure ou égale à 1.5 assurerait l'unicité et la stabilité de la solution trouvée.

Dans l'étude paramétrique de Raabe et al. [116], des simulations ont été réalisées sur un pilier à base



circulaire en Cu posé sur une base elle aussi circulaire (Fig. 31). Une loi de comportement de plasticité cristalline a été utilisée. Le but des auteurs est d'étudier l'influence de la géométrie initiale du pilier, de l'orientation cristallographique ainsi que du frottement indenteur/pilier sur les changements cristallographiques observés durant l'essai de micro-compression. Ainsi ils ont observé qu'avec un facteur de forme (entre le diamètre et la hauteur) inférieur à 0.4, la morphologie et l'orientation du pilier déformé étaient instables durant l'essai simulé, ce qui se traduit par un pilier en forme de tonneau et des courbes de compression présentant des sauts de charge. Le frottement entre l'indenteur et le pilier semble quant à lui diminuer l'instabilité de la morphologie déformée quelle que soit l'orientation cristallographique initiale du pilier. L'effet de cette orientation initiale sur la déformation du pilier semble fortement couplé avec le frottement car selon le coefficient de frottement, le changement d'orientation du pilier lors de l'essai n'est pas le même à orientation initiale identique. De plus l'axe de compression  $[0\ 0\ 1]$  (très symétrique) semble provoquer moins d'instabilité que l'axe  $[1\ 1\ 12]$ .

### 2.2.3. Résultats disponibles dans la littérature

Certaines études expérimentales de micro-compression de piliers en aciers inoxydables austénitiques non irradié et irradié sont disponibles. Paccou et al. [130] ont réalisé des essais de compression sur des piliers de diamètre 500nm, 1 $\mu$ m, 2 $\mu$ m et 3 $\mu$ m issus d'un acier 304L à l'état de référence et irradié aux ions Fe. La comparaison des courbes de compression a permis de comparer les limites d'élasticité entre l'état irradié et non irradié afin de déterminer le durcissement dû à l'irradiation. Ces courbes montrent aussi que contrairement au pilier non irradié, le pilier irradié ne présente pas d'écroutissage. Un effet de taille a été détecté dans les piliers non irradiés puisque la limite d'élasticité sur le pilier de 500nm est près de 4 fois celle du pilier de 3 $\mu$ m. En plus de déterminer le durcissement, les auteurs ont aussi observé un changement dans le mode de déformation. A l'état non irradié (Fig. 32a), ils constatent une localisation de la déformation qui est moins marquée après irradiation (Fig. 32b).

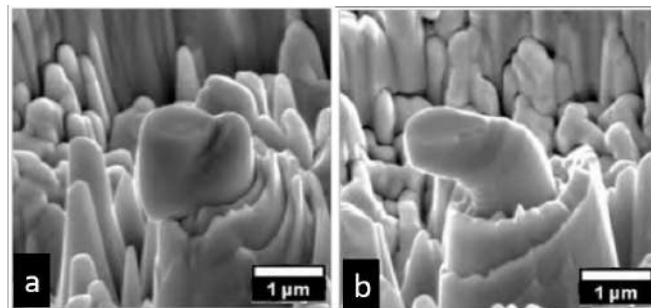


FIGURE 32. – a) Pilier non irradié avec localisation de la déformation et b) pilier irradié déformé en 304L [26]

Cependant les travaux d'autres auteurs montrent au contraire une localisation de la déformation plus forte après irradiation. Ainsi les investigations de Reichardt et al. [131] sur la compression de piliers carrés de 2 $\mu$ m de côté en 304L irradiés à 10 dpa et sollicités selon l'axe  $\langle 025 \rangle$  ont montré une localisation de la déformation suite à l'irradiation. Jin et al. [119] ont aussi observé ce changement de mécanisme dans du 316L irradié aux protons à 0.6 et 10dpa. Pour cela des piliers de diamètre allant de 1 à 15 $\mu$ m ont été déformés entre 10-20%. Les résultats de l'étude montrent une déformation hétérogène à l'état non irradié caractérisée par des sauts de contrainte sur la courbe contrainte/déformation. Après irradiation à faible dose ( $<3$ dpa), les auteurs observent une homogénéisation de la déformation qui se manifeste par des sauts de contraintes moins importants sur la courbe contrainte/déformation. En effet lors des essais en mode déplacement contrôlé, des sauts de charges peuvent survenir à cause d'un déplacement brusque du dispositif. Ce déplacement soudain est lié à une avalanche de dislocations dans le pilier suite à l'activation d'une source et au fait que le dispositif n'est pas assez rapide pour ajuster la charge suite à cet événement. D'après les auteurs, en introduisant des défauts d'irradiation, il est possible de minimiser les sauts de charge car les défauts vont empêcher le mouvement des dislocations et éviter les avalanches. A haute dose (10dpa), les auteurs remarquent que la déformation est de nouveau localisée et supposent que cela est dû à l'existence de bandes claires dépourvues de

défauts d'irradiation qui sont privilégiées par les dislocations pour leur glissement. Il est donc possible que les différences d'observation sur le mode de déformation (homogène ou localisé) après irradiation viennent de la dose d'endommagement utilisée et des conditions d'irradiation même si l'antagonisme de ces résultats reste à comprendre.

### Essai de micro-compression

L'essai de compression de micro-pilier consiste à appliquer une sollicitation uniaxiale sur un pilier (de section circulaire, rectangulaire ou carrée) et d'enregistrer durant l'essai le déplacement en fonction de la charge appliquée. Cette technique nécessite l'utilisation du MEB-FIB pour usiner les piliers, ce qui soulève plusieurs problématiques liées à l'utilisation du faisceau d'ions. Il faut aussi s'assurer du bon alignement entre le pilier et l'indenteur afin de rester en compression uniaxiale et pouvoir interpréter le résultat de l'essai de manière simplifiée. La rigidité latérale de l'indenteur ainsi que le frottement entre l'indenteur et le pilier sont de nature à jouer un rôle sur la réponse mécanique du pilier. Enfin ce type d'essai est aussi sujet à un effet de taille sur les propriétés mécaniques. Cet effet sature plus vite à l'état irradié par rapport à l'état non irradié.

Il est possible de réaliser des simulations numériques par éléments finis des essais afin de calibrer des modèles de plasticité cristalline. L'alignement entre l'indenteur et le pilier ainsi que la prise en compte du frottement sont des paramètres de premier ordre sur les résultats de ces simulations. La fiabilité de l'optimisation par ces méthodes inverses peut être discutable pour certains paramètres. Le tableau suivant présente des résultats disponibles dans la littérature sur les aciers 304(L) et 316(L) irradié (et non irradié comme référence).

Matériau	Dimension pilier	Température d'essai (°C)	$\Delta\tau$ (MPa)	Mode de déformation	Mention effet de taille	Simulation	Ref.
304L 8 dpa Fe	diamètre 0.5-3 $\mu$ m	20	300	Homogène	oui	non	[26]
316L 1.8 dpa H <sup>+</sup>	diamètre 5 $\mu$ m	20	157	Localisé	non	non	[132]
304 10 dpa H <sup>+</sup>	côté 2 $\mu$ m	20	-	Localisé	non	non	[104]
304 10 dpa H <sup>+</sup>	côté 3 $\mu$ m	20	859	Localisé	non	non	[133]
316L 5-10 dpa H <sup>+</sup>	diamètre 1-10 $\mu$ m	20	206-622	Localisé	oui	non	[119]
316L non irradié	diamètre 5-15 $\mu$ m	20	-	Localisé	oui	non	[134]

TABLEAU 3. – Résultats de micro-compression sur les aciers 304(L) et 316(L) monocristallins

Un certain nombre d'études expérimentales sont disponibles pour les aciers de type 304(L) et 316(L). Cependant, aucune étude n'existe portant sur l'analyse à l'aide de simulations de ces essais, que ce soit pour calibrer des paramètres d'une loi de comportement de plasticité cristalline et / ou pour modéliser et prédire les effets de taille.

## 2.3. Essai de flexion de micro-poutres

### 2.3.1. Principe de l'essai

L'essai de flexion de micro-poutres consiste à utiliser un indenteur pour appliquer une charge à l'extrémité libre de la poutre tandis que l'autre extrémité est encastrée dans le matériau massif (Fig. 33). La déflexion de la poutre est mesurée en fonction de la charge appliquée. Les contraintes locales peuvent être estimées par exemple à partir de la théorie élastique des poutres :

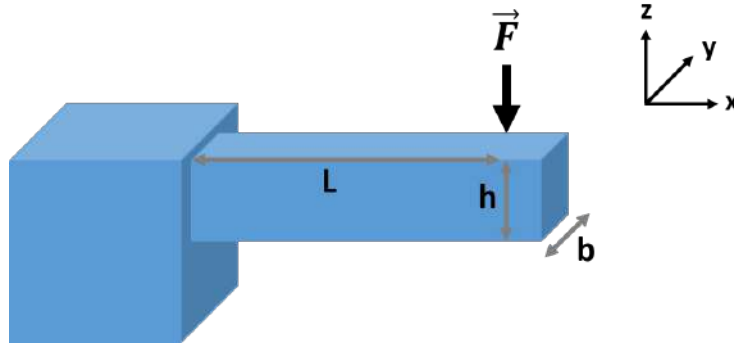


FIGURE 33. – Poutre encastree-libre soumise à une force à son extrémité libre

$$\sigma(x) = \frac{M_f(x)}{I_G} z \quad M_f(x) = F(L - x) \quad I_G = \frac{bh^3}{12} \quad (17)$$

$$\delta = \frac{FL^3}{3EI_G} \quad (18)$$

avec  $\delta$  la déflexion de la poutre au point d'application de la force,  $z$  la distance par rapport à la fibre neutre,  $F$  la charge appliquée,  $L$  la longueur entre l'encastrement et le point d'application de la charge,  $b$  la largeur,  $h$  la hauteur et  $I_G$  le moment d'inertie quadratique de la poutre qui dépend de la géométrie de la section, ici pour une section rectangulaire.

### 2.3.2. Contraintes de réalisation et d'interprétation de l'essai

#### Contraintes expérimentales

Ce type d'essai permet donc d'utiliser le même dispositif que l'essai de micro-compression mais avec un problème d'alignement moins contraignant. Les micro-poutres, classiquement de section pentagonale, triangulaire, rectangulaire ou carrée nécessitent une élaboration au MEB-FIB plus complexe et chronophage que les micro-piliers avec les mêmes problématiques que soulève l'usinage à l'aide du faisceau d'ions gallium.

Durant l'essai, la poutre est à la fois en traction et en compression. La conversion de la courbe force-déplacement obtenue en contrainte-déformation (pour un point considéré) repose sur l'utilisation d'un modèle. Certains auteurs utilisent la théorie des poutres décrites précédemment. D'autres se basent sur des simulations éléments finis, *e.g.*, Armstrong et al. [135]. A noter que les méthodes utilisées et les localisations d'évaluation des contraintes et des déformations ne sont pas toujours claires [135, 136]. La courbe contrainte-déformation obtenue dans tous les cas correspond à l'évolution de la contrainte en fonction de la déformation au point d'application de la force et donc en un point particulier, comme spécifié par Howard et al. [137]. Dans tous les cas, il est essentiel de mesurer avec précision les dimensions de l'échantillon pour obtenir la courbe contrainte-déformation la plus exacte possible. En particulier il est essentiel de connaître le point d'application de la force donc la position de l'indenteur par rapport à l'encastrement. Armstrong et al. [135] ont localisé ce point d'application par la marque laissée par l'indenteur puis ont mesuré sa position par rapport à l'encastrement.

L'effet de taille présenté pour les essais de micro-compression se retrouve aussi en micro-flexion comme le montre l'étude de Armstrong et al. [135] où l'auteur note une différence entre les limites d'élasticité des poutres à l'échelle microscopique par rapport au matériau massif.

### Contraintes liées à la modélisation

L'interprétation de ce type d'essai, notamment à l'aide de simulations numériques, est indispensable pour en extraire des propriétés du matériau. Les études disponibles ont permis de mettre en avant les points suivants. D'après Demir et al. [138], le frottement entre l'indenteur et la poutre n'a pas d'effet sur la déformation de la poutre. L'homogénéité de la hauteur de poutre et le rayon de courbure sous l'extrémité encastree de la poutre ont en revanche plus d'impact sur la courbe force - déplacement. Une convergence des résultats de simulations par rapport à la taille du substrat est nécessaire. Enfin, certains auteurs comme Kupka et al. [128] considèrent la raideur latérale de l'indenteur. En ce qui concerne la calibration de propriétés matériaux à partir de ce type d'essais, l'étude de Demir et al. [138] apporte des éléments instructifs. Des simulations d'essais de micro-flexion de poutres en cuivre rectangulaires ( $15\text{-}18\mu\text{m} \times 15\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$ ) ont été réalisées pour déterminer leurs caractéristiques mécaniques (rigidité, limite d'élasticité, écrouissage). Les dimensions de la poutre entraînent un effet de taille sur les propriétés obtenues expérimentalement. Une loi de plasticité cristalline est utilisée avec les paramètres issus de la littérature pour le cuivre. Les auteurs ont ainsi comparé les rigidités et limites d'élasticité expérimentales avec celles des simulations. La rigidité issue de la simulation numérique a été trouvée 20% supérieure à la valeur expérimentale. D'après les auteurs cela est dû à la variation d'épaisseur le long de la poutre expérimentale (effet de la géométrie). Pour réaliser la simulation, une valeur moyenne a été considérée et cela a abouti à une surestimation de la rigidité de la poutre. Il faut donc apporter une attention particulière à la mesure précise des dimensions expérimentales. En régime plastique, la limite d'élasticité expérimentale est plus de 100% supérieure par rapport à celle de la simulation numérique. Les auteurs ont supposé que la valeur de  $\tau_0$  (16MPa) utilisée dans la simulation n'était pas correcte et une réévaluation de cette valeur (nouvelle valeur de 44MPa) a permis de diminuer l'écart qui serait dû à la microstructure initiale de la poutre. Enfin l'écrouissage est plus important sur les essais simulés par rapport aux essais expérimentaux. D'après les auteurs, l'élimination des dislocations en surface de la poutre durant l'essai conduirait à un écrouissage moins important.

### 2.3.3. Résultats disponibles dans la littérature

Peu d'études de flexion de micro-poutres d'aciers inoxydables austénitiques sont disponibles dans la littérature. Dans celle de Armstrong et al. [135], deux type de géométries de poutre, Poutre A (à gauche) et B (à droite) Fig. 34 ont été usinées dans un acier Fe-12Cr wt% irradié au Fer à 6dpa à 320°C.

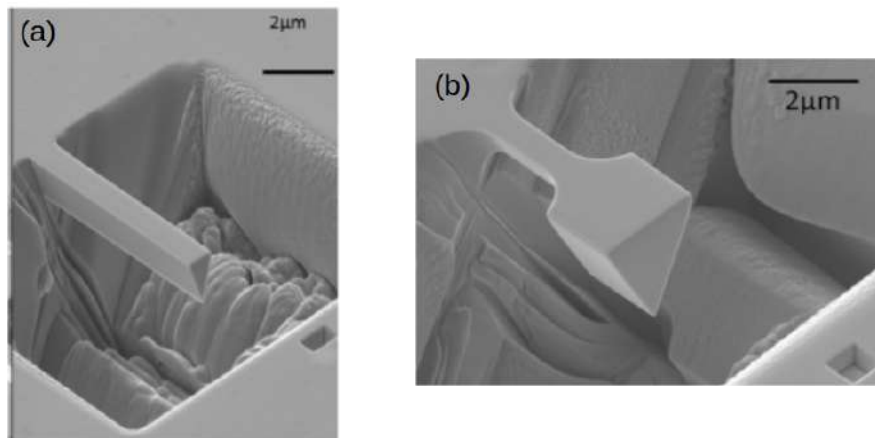


FIGURE 34. – Flexion de micro-poutres en acier Fe-12Cr wt% irradié au Fer à 6dpa [135] en utilisant deux géométries différentes (a) géométrie A et (b) géométrie B

Les poutres de géométrie A ont été déformées à 3% à une vitesse de 3-4.5nm/s et celles de géométrie B à 3% de déformation à 5nm/s, la charge appliquée étant de 20-30 $\mu$ N. D'après les auteurs la géométrie B a pour but d'introduire une section utile qui permettrait de contrôler la distribution de la déformation plastique.

Ces essais ont donné accès à la limite d'élasticité ainsi que la contrainte et l'allongement à rupture. La contrainte et l'allongement à rupture correspondent aux données enregistrées par le dispositif expérimental lors de la fissuration de la poutre. Les deux géométries de poutre ne donnent pas le même résultat en déformation plastique. Premièrement la limite d'élasticité à l'état non irradié puis irradié pour la géométrie A varie peu (respectivement 1.8GPa et 1.7GPa) tandis que le changement est plus marqué pour la géométrie B (1.6GPa à l'état non irradié contre 2.1GPa à l'état irradié). Ensuite, lors de la flexion d'une poutre encastree, le maximum de contrainte dans la poutre se situe près de l'extrémité encastree. La taille de cette zone de contrainte maximale augmente durant l'essai et est 20 fois plus grande dans la géométrie B que dans la géométrie A. D'après les auteurs, la probabilité de rencontrer une source de dislocations dans cette zone est plus élevée pour la géométrie B d'où cette différence de taille des zones plastiques. Cette étude a notamment permis de mettre en évidence la faisabilité d'utiliser des micro-poutres en flexion pour quantifier l'évolution après irradiation d'une part, et d'autre part de mettre en évidence un effet de taille.

### Essai de flexion de micro-poutres

L'essai de flexion de micro-poutres consiste à appliquer une charge à l'extrémité libre de la poutre tandis que l'autre extrémité est encastree. Le déplacement de la poutre est mesuré en fonction de la charge appliquée. La poutre nécessite un usinage au MEB-FIB et cette méthode de fabrication entraîne des contraintes expérimentales, notamment à propos de l'utilisation du faisceau d'ions. Pour le bon déroulement de l'essai, il faut veiller à réaliser un bon alignement entre la poutre et l'indenteur. Cependant, ce type d'essai est moins sensible aux paramètres expérimentaux (frottement, alignement) que l'essai de compression sur micro-piliers. Un effet de taille sur les propriétés mécaniques peut aussi être observé en cas de déformation plastique.

L'interprétation de l'essai repose sur l'utilisation de modèles, que ce soit la théorie élastique des poutres ou des simulations par éléments finis pour évaluer des valeurs de contraintes et de déformations. Ces simulations peuvent également servir à calibrer des paramètres de lois de comportement. Le tableau suivant synthétise les résultats disponibles dans la littérature sur des aciers.

Matériau	Dimensions poutre	Mention effet de taille	Simulations	Ref.
Fe-12Cr wt% 6 dpa Fe à 320°C	-	non	non	[135]

TABLEAU 4. – Synthèse des résultats de flexion sur micro-poutres en acier monocristallin

## 2.4. Essai de traction sur micro-éprouvettes

### 2.4.1. Principe de l'essai

Le principe de cet essai est de venir solliciter en traction uniaxiale un échantillon usiné au MEB-FIB comme montré sur la Fig. 35. Un mors mobile fixé au dispositif de traction permet de solliciter l'échantillon à une vitesse constante définie jusqu'à un taux de déformation donné ou bien la rupture. Une courbe force / déplacement est obtenue à la fin de l'essai et convertie en contrainte / déformation grâce aux dimensions initiales de l'échantillon.

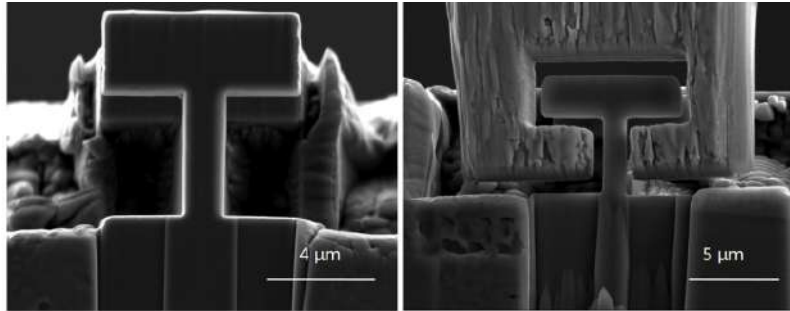


FIGURE 35. – Montage de l'essai de micro-traction [139].

### 2.4.2. Contraintes de réalisation et d'interprétation de l'essai

L'usinage de l'éprouvette est plus long et complexe que pour les autres techniques car celle-ci a une géométrie plus difficile à fabriquer qu'un pilier ou une poutre pour des dimensions de quelques micromètres. Pour ce genre d'essai il faut aussi usiner le mors mobile de traction qui doit être adapté à la taille des échantillons testés [93]. L'effet de taille présenté dans les techniques précédentes est aussi présent dans cet essai. Cependant réaliser un essai de micro-traction permet de minimiser la problématique d'alignement (il faut encore aligner le mors mobile pour éviter de mettre l'éprouvette en flexion [140] et s'éloigner de l'état de contrainte uniaxial) et de s'affranchir des difficultés liées au frottement. L'interprétation de l'essai est alors la même que pour un essai de traction conventionnel, et les propriétés classiques de traction peuvent être obtenues simplement à partir de la courbe force - déplacement, à savoir limite d'élasticité, contrainte maximale, allongement à rupture. Cette technique permet aussi l'accès aux caractéristiques mécaniques après irradiation ainsi qu'aux propriétés à rupture. Ando et al. [141] ont par exemple cherché à vérifier s'il y avait une correspondance entre les résultats des essais à l'échelle microscopique et macroscopique. Ils ont alors réalisé des essais sur des éprouvettes de  $10 \times 1 \times 1 \mu\text{m}^3$  de volume utile usinées dans un acier F82H irradié aux neutrons à 5dpa à 300°C et non irradié. Ils ont ensuite comparé les courbes obtenues avec celles d'échantillons de taille millimétrique (contenant plusieurs grains) eux aussi irradiés dans les mêmes conditions. Les résultats montrent que le comportement mécanique suit la même tendance à l'échelle macro et microscopique mais les valeurs de limite d'élasticité et élongation à rupture diffèrent sensiblement. Elles sont plus faibles dans les échantillons micrométriques. Les auteurs attribuent cela à un effet de taille car ils estiment que l'échantillon microscopique contient moins d'éléments microstructuraux (joint de grains, précipités, etc.) durcissant.

### 2.4.3. Résultats disponibles dans la littérature

Une seule étude porte sur les essais de traction sur micro-éprouvettes monocristallines en acier inoxydable austénitique. Vo et al. [139] ont réalisé des essais sur des éprouvettes monocristallines de dimensions  $4.5 \times 1.3 \times 1.3 \mu\text{m}^3$  usinées dans du 304L à l'état de référence et à l'état irradié aux protons 10dpa à 360°C. Les courbes force / déplacement obtenues ont été converties en contrainte / déformation afin d'extraire la limite d'élasticité  $\sim 500 \text{MPa}$  à l'état non irradié et  $\sim 1000 \text{MPa}$  à l'état irradié. La cission résolue critique a pu être calculée grâce au facteur de Schmid (0.4) et s'élève à  $\sim 200 \text{MPa}$  pour les échantillons non irradiés et  $\sim 400 \text{MPa}$  pour les échantillons irradiés. Puisque les essais ont été

menés jusqu'à la rupture du matériau durant l'essai de traction microscopique, les auteurs disposent aussi de la contrainte et de l'élongation à rupture  $\sim 50\%$  pour l'état non irradié et  $10\%$  pour l'état irradié. Ces valeurs ont été comparées aux valeurs issues d'essais macroscopiques sur des éprouvettes polycristallines de 316LN irradié aux neutrons à 5dpa. Les résultats sont assez similaires puisque la limite d'élasticité est de  $\sim 1000\text{MPa}$  et l'élongation à rupture  $\sim 20\%$  [142]. A l'état non irradié, les essais macroscopiques donnent une limite d'élasticité  $\sim 300\text{MPa}$  et une élongation à rupture  $\sim 60\%$ . Il faut cependant se rappeler qu'il y a une influence de l'effet de taille sur les valeurs obtenues lors des essais à l'échelle microscopique.

### Essai de traction sur micro-éprouvettes

Lors de l'essai de micro-traction, l'éprouvette est sollicitée en traction uniaxiale jusqu'à un taux de déformation donné ou bien jusqu'à la rupture. Cet essai requiert un usinage au MEB-FIB long et complexe à la fois de l'éprouvette mais aussi des mors. En revanche, il permet de s'affranchir partiellement des problématiques d'alignement rencontrées dans les essais sur piliers et poutres, et complètement de la problématique de frottement. Enfin l'analyse de l'essai est analytique et similaire à celle d'un essai de traction conventionnel. Ce type d'essai peut dès lors servir à extraire directement des paramètres de la loi de comportement de plasticité cristalline. Le tableau suivant synthétise l'ensemble des résultats disponibles dans la littérature sur les aciers austénitiques non irradié et irradié.

Matériau	Dimensions éprouvette	$\Delta\sigma_y$ (MPa)	$\sigma_{rupt}$ (MPa)	Mention effet de taille	Ref.
304L 10dpa à 360°C	$4.5 \times 1.3 \times 1.3 \mu\text{m}^3$	$\sim 700$	-	non	[139]
304L non irradié	$6 \times 2 \times 2 \mu\text{m}^3$	-	-	oui	[143]

TABLEAU 5. – Synthèse des résultats de traction sur micro-éprouvettes sur les aciers 304L monocristallins

Ces essais n'ont à ce jour pas été utilisés pour calibrer des paramètres de loi de comportement de plasticité cristalline.

## 2.5. Discussion sur les techniques adaptées

Il a été mis en évidence dans la première partie de ce chapitre la nécessité de connaître et de modéliser le comportement mécanique intragranulaire des aciers inoxydables austénitiques afin de modéliser et de simuler le phénomène d'IASCC. Les données disponibles dans la littérature étant limitées à ce jour, il faut donc sélectionner des essais expérimentaux permettant de pouvoir calibrer des lois de comportement de plasticité cristalline.

La nanoindentation ne semble pas adaptée pour calibrer une loi de comportement car les simulations ne sont pas assez fiables. Rauchs et al. [98] ont utilisé la nanoindentation pour déterminer les paramètres de la loi de comportement élasto-plastique cristalline (module d'Young, coefficient de Poisson et paramètres d'écrouissage) pour un alliage d'aluminium et un alliage de cuivre. La démarche, applicable aux autres types d'essais, consiste à réaliser des essais de nanoindentation et à les simuler numériquement. Les auteurs ont construit une fonction objectif qui représente la différence entre la courbe force-déplacement expérimentale et la courbe issue de la simulation par élément finis. En minimisant cette fonction, donc la différence, avec la méthode des moindres carrés, il est possible de calibrer la loi de comportement. Cependant les auteurs se sont heurtés à un problème majeur. En effet, à part le module d'Young, les paramètres obtenus pour les deux alliages ne correspondent pas à ceux présents dans la littérature (données de nanoindentation pour l'aluminium et d'essai de traction pour le cuivre). Plusieurs explications ont été avancées pour l'expliquer. Premièrement, les niveaux de déformations atteints dans l'essai de nanoindentation sont trop faibles pour fournir une estimation fiable des paramètres de la loi (paramètres d'écrouissage). Une autre problématique de premier ordre est la présence éventuelle d'un couplage entre ces différents paramètres. Différents jeux de pa-

ramètres peuvent donc aboutir à la même courbe. Enfin, le champ de contraintes de ce genre d'essai est hétérogène autour de la zone sollicitée. Cependant c'est une technique facile à mettre en œuvre, rapide et qui donne des résultats globaux sur la microstructure (dureté et durcissement). De plus elle peut être automatisée donc permet l'acquisition d'une grande quantité d'informations en peu de temps.

La flexion de micro-poutre est rarement utilisée pour calibrer une loi de comportement. La compression de micro-pilier et la micro-traction ont l'avantage d'être des sollicitations uniaxiales et donc de faciliter l'interprétation des résultats. Elles permettent toutes deux de calibrer une loi de comportement, ce qui a déjà été fait avec la micro-compression, mais seule la micro-traction donne accès aux paramètres à rupture. La sollicitation uniaxiale présente un avantage si le but est d'estimer analytiquement  $\tau_0$ . Cependant, si c'est l'écroutissement qui est étudié, il faudrait du glissement multiple et donc plutôt un état de contraintes triaxial. La sollicitation uniaxiale est plus facilement réalisable en micro-traction qui contrairement à l'essai de micro-compression ne rencontre pas de problème d'alignement, de frottement et de facteur de forme. Cependant, la préparation de l'éprouvette est plus longue et complexe que celle du pilier ou de la poutre. De plus il faut aussi usiner les mors de traction. Enfin tous les essais présentés montrent un effet de taille sur les propriétés mécaniques.

## 2.6. Conclusion

Le développement, encore récent, des essais micro-mécaniques a grandement permis d'explorer les propriétés mécaniques des matériaux à l'échelle du grain, c'est-à-dire pour un monocristal. Ces essais sont applicables aux matériaux irradiés aux ions. En effet avec ce genre de techniques, il est possible de tester des échantillons dont les dimensions sont proches de celles de la couche irradiée, en particulier pour les irradiations aux ions où l'épaisseur est de l'ordre du micromètre.

La nanoindentation est facile à mettre en œuvre mais ne permet pas de calibrer une loi de comportement et de déterminer les paramètres à rupture. Avec la micro-traction il est possible d'obtenir les paramètres de la loi de comportement et d'aller jusqu'à la rupture du matériau et ainsi accéder à la contrainte et l'élongation à rupture. Cependant c'est l'essai où la fabrication de l'éprouvette est la plus compliquée du fait de sa géométrie. De plus, il faut usiner une partie du dispositif expérimental. La flexion de micro-poutres permet d'accéder aux propriétés à rupture mais la mise en traction et compression simultanée de la poutre rend difficile l'interprétation des données sauf en utilisant des simulations numériques. La compression de micro-piliers permet d'obtenir le comportement mécanique en plasticité du matériau et de voir son mode de déformation. Il permet alors de calibrer une loi de comportement mais ce n'est pas un essai qui permet d'obtenir des caractéristiques à rupture. C'est la combinaison des deux derniers essais qui sera utilisée dans la démarche de cette étude. Il faut cependant rappeler que ces essais présentent des contraintes expérimentales liées à la fabrication de l'échantillon et à la réalisation de l'essai (alignement, frottement, influence de la raideur de l'indenteur, facteur de forme...) ainsi qu'à l'interprétation des résultats avec l'effet de taille sur les propriétés mécaniques. Ces essais sont complétés par des simulations afin d'évaluer l'effet des contraintes expérimentales sur les résultats et obtenir des informations qui ne sont pas accessibles expérimentalement. Elles peuvent être utilisées pour déterminer une loi de comportement, comme il sera le cas dans cette étude, mais aussi d'étudier l'influence de différents facteurs sur la réponse mécanique du matériau.

Enfin il apparaît qu'à ce jour à la fois les essais disponibles et les calibrations réalisées de lois de comportement à l'échelle cristalline des aciers inoxydables austénitiques restent limités. Les dernières études [76] ont permis d'obtenir une loi de comportement relativement satisfaisante à l'état non irradié. Cependant, ces lois ne prennent pas en compte d'effet de taille qu'il semble indispensable de prendre en compte lorsqu'on s'intéresse aux petites échelles. A l'état irradié, les lois de comportement proposées [75] comporte un grand nombre de paramètres *e.g.*,  $\alpha_l$  (force d'obstacle effective des boucles de Frank),  $K_L$  et  $A_L$ . Déterminer ces paramètres est indispensable afin de modéliser le comportement mécanique de l'acier et simuler les essais mécaniques.



### 3. Caractérisation expérimentale du comportement intergranulaire

La caractérisation de la résistance des joints de grains, deuxième pilier nécessaire à la modélisation de l'IASCC, nécessite la réalisation d'essais mécaniques aux joints de grains. Ces essais mécaniques sont les mêmes que ceux permettant de caractériser le comportement intragranulaire présentés dans la section 2. Cependant, selon les propriétés étudiées, certaines techniques sont plus pertinentes que d'autres. Ainsi deux types de résistance du joint de grains seront distingués. L'une est la résistance du joint de grains à la déformation plastique donc à son comportement vis à vis du passage des dislocations. L'autre est la résistance à la fissuration et c'est d'elle dont il sera question dans cette partie. Les essais présentés seront donc de nature à déterminer les propriétés de rupture. La rupture ou la sollicitation d'un joint de grains peut se faire selon trois modes (qui ne sont pas propres au joint de grains). Dans le mode 1 la décohésion se fait selon la normale au plan du joint de grains, dans le mode 2 cela se fait par cisaillement dans le plan du joint et dans le mode 3 par cisaillement hors plan (Fig. 36). Dans cette étude il sera uniquement question du mode 1.

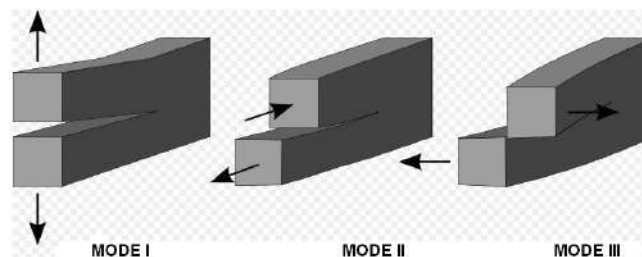


FIGURE 36. – Différents modes de sollicitation possibles pour un joint de grains : mode I : traction normale, mode II : cisaillement dans le plan et mode III : cisaillement hors plan

A noter qu'il existe très peu de résultats disponibles pour les aciers inoxydables austénitiques oxydés en milieu REP. La synthèse des données expérimentales disponibles dans la littérature présentée dans la suite est donc étendue aux alliages base Nickel de type Inconel qui forment des oxydes intergranulaires proches en conditions REP.

#### 3.1. Essai de flexion de micro-poutres bi-cristallines

##### 3.1.1. Principe de l'essai

Afin de déterminer les propriétés de rupture d'un joint de grains, il est possible de réaliser des essais de flexion de micro-poutres contenant un joint de grains (Fig. 37). Typiquement, les micro-poutres de sections pentagonales, triangulaires ou rectangulaires ont généralement des dimensions d'environ  $\sim 25\mu\text{m}$ ,  $\sim 10\mu\text{m}$ ,  $\sim 10\mu\text{m}$  pour respectivement la longueur, la largeur et la hauteur.

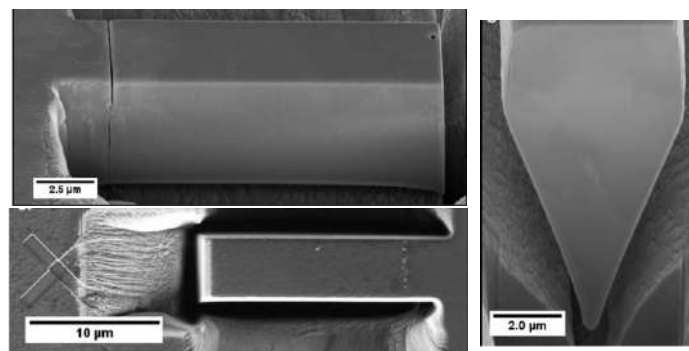


FIGURE 37. – Micro-poutre pentagonale en Inconel 600 oxydée contenant un joint de grains [136]

Le joint de grains est placé près de l'extrémité encastree pour qu'il expérimente les contraintes mécaniques les plus fortes afin de faciliter son ouverture. Il est possible de distinguer deux types d'essai.

Dans le premier, le joint de grain est sollicité tel quel, *i.e.*, intact, et il s'agit alors d'un essai d'amorçage de la rupture. Dans le deuxième type, une fissure ou entaille [144], usinée au MEB-FIB au niveau du joint de grains, permet de localiser les contraintes, conduisant plutôt à un essai de propagation. Dans tous les cas, la force appliquée à l'extrémité de la poutre est mesurée au moment de la rupture et est utilisée pour calculer les propriétés de rupture du joint de grains.

### 3.1.2. Contraintes de réalisation et d'interprétation de l'essai

#### Contraintes expérimentales

Lors de cet essai le déplacement de la poutre contenant un joint de grains est mesuré en fonction de la charge appliquée. Il faut alors pouvoir usiner une poutre contenant un seul joint de grains perpendiculaire à la poutre afin d'avoir la contrainte normale la plus élevée possible. Il faut ensuite mettre en place un moyen de pouvoir mesurer le déplacement de la poutre, réaliser l'alignement entre l'indenteur et la poutre et connaître le point d'application de la force. Afin de s'assurer que le joint de grains sélectionné est perpendiculaire à la poutre, il est possible de visualiser l'inclinaison du joint au MEB-FIB après avoir usiné un côté de la poutre [136]. Pour pouvoir mesurer le déplacement durant l'essai, Kupka et al. [128] ont au préalable couvert les poutres d'un quadrillage de points de Pt réalisé au MEB-FIB. Ce quadrillage a permis à un logiciel de corrélation d'images de mesurer le champ de déplacement de la poutre puis de calculer le champ de déformation. Dohr et al. [145], après avoir mesuré la flèche, ont utilisé les équations de la théorie des poutres encastées (Eq. 17) pour convertir les courbes force / déplacement obtenues en contrainte / déformation. Howard et al. [137] ont utilisé la même démarche pour des poutres en flexion trois points.

Même s'il est moins contraignant qu'en micro-compression, l'alignement entre l'indenteur et l'échantillon reste une problématique pour les essais de micro-flexion car un désalignement pourrait engendrer un moment de flexion supplémentaire non désiré et aboutir à une contrainte non uniforme dans la section de la poutre considérée [146]. Cependant d'après certains auteurs [147][140], un faible désalignement de quelques pourcents est tolérable. Dugdale et al. [148] se sont heurtés à la difficulté d'aligner l'indenteur et les poutres triangulaires micrométriques qui dans ce cas est spécifique à la caractérisation après oxydation. En effet, des particules d'oxydes présentes sur la surface de l'échantillon adhèrent à la pointe de l'indenteur quand celui-ci se rapproche de la poutre rendant l'alignement parallèle entre l'indenteur et la poutre compliqué. Les auteurs ont donc utilisé une procédure contenue dans le logiciel du dispositif pour l'alignement. Howard et al. [137] ont quant à eux utilisé un dispositif de flexion dont la rotation a rendu possible la visualisation simultanée de l'indenteur et de l'échantillon permettant ainsi de réaliser l'alignement.

Pour l'interprétation des essais, il est essentiel de connaître le point d'application exact de la force. Kupka et al. [149] ont donc opté pour un indenteur pointu de Berkovich et non à bout plat afin de pouvoir marquer la position d'application du chargement et donc obtenir le bras de levier de la force. Cela implique que pour avoir la déflexion réelle de la poutre, il faut retrancher la profondeur d'indentation.

#### Contraintes liées à la modélisation

La conversion de la force critique pour laquelle la rupture du joint de grains est observée vers les propriétés de rupture nécessite l'utilisation de modèles analytiques ou numériques. En l'absence d'entaille au niveau du joint de grains, la théorie élastique des poutres décrites précédemment peut permettre d'évaluer les contraintes intergranulaires [150], sous réserve de déformation de la poutre dans le régime élastique. En présence d'une fissure / entaille, le concept de ténacité - caractérisant le chargement en pointe de fissure - est utilisé. Enfin des simulations numériques par éléments finis peuvent être réalisées en utilisant éventuellement des lois de comportement spécifiques pour le joint de grains. Le joint de grains est modélisé comme une interface infiniment fine sur laquelle est appliquée une équation constitutive de la cohésion du joint. À titre d'exemple, l'Eq. 19 permet de modéliser l'endommagement du

joint de grains :

$$t = \begin{cases} K\delta & \text{pour } \delta < \delta_i \\ (1 - D)K\delta & \text{pour } \delta > \delta_i \end{cases} \quad (19)$$

avec  $t$  la contrainte de traction normale au joint de grains,  $\delta$  le déplacement normal au joint de grains (ouverture du joint),  $K$  la rigidité,  $\delta_i$  la valeur du déplacement à l'initiation du dommage et  $D$  une variable de dommage qui rend compte de la dégradation de la raideur du système et qui varie entre 0 (pas de dommage) et 1 (rupture complète). Ainsi, après avoir déterminé les paramètres d'une loi de plasticité cristalline pour décrire le comportement des grains, Kupka et al. [128] l'ont ensuite utilisée pour simuler de la flexion de micro-poutres. Les simulations sont réalisées sur des micro-poutres rectangulaires bi-cristallines entaillées au niveau du joint de grains avec une section de  $\sim 5\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$  et une longueur de  $\sim 20\mu\text{m}$  (Fig. 38). Le joint de grains a été modélisé comme une interface sur laquelle est appliquée une loi de traction-séparation (Eq. 19). Les auteurs ont ainsi déterminé une contrainte

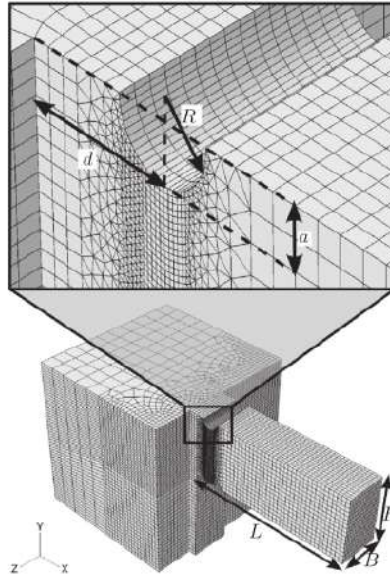


FIGURE 38. – Maillage de la poutre entaillée au niveau du joint de grains [128].

à rupture d'environ 600MPa pour les joints de grains désorientés de 47.5 et 51.5° testés dans l'alliage d'aluminium 2198. Toujours pour déterminer la résistance à la rupture d'une interface, Kupka et al [149] ont simulé la flexion d'une micro-poutre carrée de  $5\mu\text{m}$  de côté et  $20\mu\text{m}$  de long contenant un joint de grains entaillé. Le modèle utilisé pour simuler la flexion est ici purement élastique afin de mesurer la rigidité de l'échantillon lors de l'essai. La courbe obtenue est la rigidité en fonction du déplacement. Le changement de pente de cette courbe permet de suivre l'endommagement (perte de rigidité) qui correspond à l'ouverture du joint de grains jusqu'à la rupture.

### 3.1.3. Résultats disponibles dans littérature

Quelques résultats sont disponibles dans la littérature caractérisant la rupture de joints de grains oxydés en milieu REP, uniquement sur des alliages d'Inconel. La flexion de micro-poutre a servi à évaluer le comportement à rupture d'un joint de grains entaillé d'alliage 600 oxydé en milieu REP [136]. Cette étude a notamment permis de déterminer la ténacité  $K_{Ic}$  du joint de grains mais aussi d'observer le type de rupture. En effet les images au MEB ainsi que les courbes de force/déplacement permettent d'observer si la rupture est fragile (aucune déformation plastique) ou s'il y a eu de la déformation plastique avant la rupture. Les joints de grains oxydés pendant 4500h ont rompu de manière fragile alors que ceux oxydés à 2500h et non oxydés se sont déformés plastiquement sans rompre. Sur le même type d'alliage, Dohr et al. [145] ont étudié l'influence de l'oxyde de surface sur la résistance à rupture du joint de grains. Les essais ont montré que la contrainte à laquelle les auteurs observent la rupture du joint de grains, sans oxyde de surface, se situait entre 350 et 575MPa. Cette variation pourrait être due à l'inclinaison du joint de grains dans l'épaisseur de la poutre car les joints de grains

testés ont tous une désorientation de  $\sim 55^\circ$ . La valeur de contrainte à rupture peut augmenter jusqu'à un maximum de 200MPa en plus en présence de l'oxyde de surface. Les auteurs supposent que la raideur de l'oxyde en surface empêche les micro-fissures de s'ouvrir. Il faut donc une contrainte plus élevée pour d'abord rompre l'oxyde de surface puis permettre la propagation de la fissure, ce qui expliquerait l'augmentation de la contrainte à laquelle le joint de grains rompt en présence d'oxyde de surface. Dugdale et al. [148] ont pu ainsi déterminer deux modes de réponse des joints de grains oxydés d'un alliage de nickel : la déformation plastique et la rupture fragile. Les auteurs ont aussi observé que la propagation se localise le long de l'interface oxyde/métal. Des simulations ont été mise en œuvre afin de déterminer la contrainte à rupture. Les auteurs ont mis en flexion une poutre triangulaire  $2\mu\text{m} \times 3\mu\text{m} \times 15\mu\text{m}$  d'un alliage à base de nickel Inconel 600. Ils ont utilisé un modèle purement élastique isotrope et une loi qui modélise la cohésion du joint de grains pour simuler l'essai de flexion. Une contrainte à rupture de 1.35GPa a été déterminée pour un joint de grains oxydé. Les auteurs expliquent cette valeur élevée par le fait que le test a été réalisé à température ambiante sous vide. Ce type d'environnement réduirait le risque que le joint de grains soit encore plus fragilisé par le milieu extérieur durant l'essai (potentielle oxydation supplémentaire en présence d'oxygène).

En plus de déterminer la contrainte à rupture intergranulaire, ce type d'essai peut aussi servir à évaluer l'évolution de la résistance intrinsèque du joint de grains en fonction de l'état d'irradiation. Ainsi, Tawfeeq et al. [150] se sont quant à eux spécifiquement intéressés aux joints de grains irradiés. Après des irradiations au Ni à 4 dpa et une implantation à l'hélium à 0.5%.at dans l'alliage à base nickel Inconel X750, les auteurs ont testé des poutres pentagonales de dimensions  $27 \times 10 \times 5\mu\text{m}^3$  pour évaluer la limite d'élasticité des joints de grains en fonction de leur désorientation et de leur énergie. Les auteurs remarquent qu'après l'irradiation la limite d'élasticité du joint de grains augmente. D'après les auteurs, la ségrégation ainsi que la formation de bulles et de cavités au joint de grains suite aux irradiations auraient un effet durcissant, provoquant ainsi une augmentation de la limite d'élasticité, ce qui entre en conflit avec ce qui est présenté à la section 1 et dans l'étude de Howard et al. [151] où ces phénomènes auraient plutôt tendance à fragiliser le joint de grains.

En plus des essais de flexion où la poutre est encastree-libre, il est aussi possible de réaliser des essais de flexion trois points. Howard et al. [137] l'ont utilisée pour montrer une rupture le long des joints de grains dans un composant en superalliage à base nickel Inconel X750 avec une dose d'irradiation de 46 à 67 dpa. Des poutres rectangulaires de 15-20 $\mu\text{m}$  de long pour 3-5 $\mu\text{m}$  de large contenant entre 1 et 5 joints de grains ont été testées en flexion trois points (Fig. 39) jusqu'à des taux de déformation supérieurs à 10%. Les auteurs ont observé que, en plus de l'augmentation de la limite d'élasticité de la poutre, le chemin de propagation de la fissure à 67dpa suit le joint de grains.

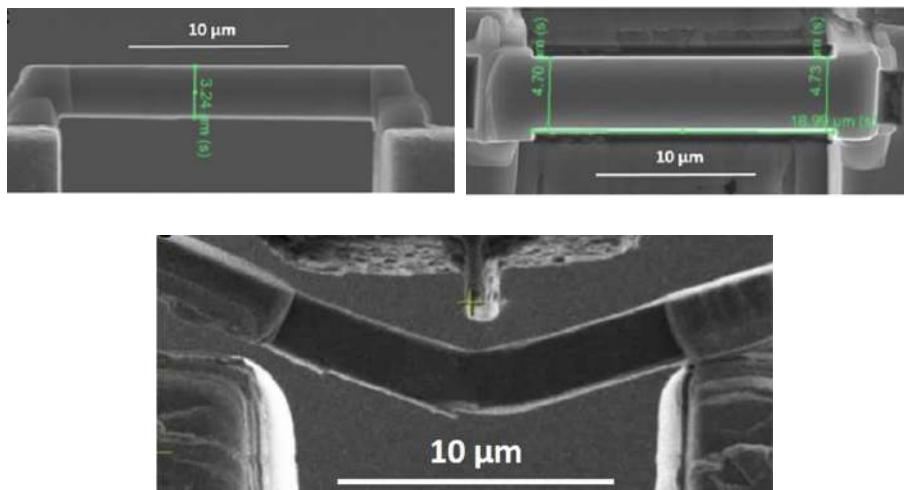


FIGURE 39. – Montage d'un essai de flexion 3 points [137]

### Essai de flexion sur micro-poutres bi-cristallines

Dans cet essai, le but est de mettre en flexion une micro-poutre contenant un joint de grains en appliquant une charge à l'extrémité libre de la poutre. Le joint de grains est placé près de l'extrémité encastree afin que la contrainte y soit importante. Deux types d'étude peuvent être réalisées, à savoir amorçage de fissure (sur un joint de grains intact ou avec une entaille) pour estimer la contrainte à rupture ou propagation de fissures (en réalisant une pré-fissure) pour estimer la ténacité. Les contraintes liées à la fabrication (MEB-FIB) et à l'essai (localisation du point d'application de la force, alignement) sont similaires à celles des poutres monocristallines, avec la difficulté supplémentaire de localiser et d'orienter le joint de grains à proximité de l'encastrement.

L'interprétation des essais repose sur des modèles, soit analytiques soit numériques pour convertir les forces à rupture obtenues expérimentalement en propriétés de rupture des joints de grains. Le tableau suivant synthétise les résultats disponibles dans la littérature sur des joints de grains oxydés en milieu REP pour des alliages à base Ni.

Matériau	Dimensions poutre	$\sigma_{jdg}^c$ (GPa)	Mention effet de taille	Simulations	Ref.
Inconel 600	$\sim 3.8x \sim 28 \mu m$ (triangulaire)	1.35	non	Calcul de la contrainte d'amorçage de la fissuration	[145]
Inconel 600	$\sim 2x \sim 15 \mu m$ (triangulaire)	0.36-0.53	non	Calcul du dommage au joint de grains	[148]
Inconel X750 irradié	$\sim 5x \sim 10x \sim 20x \mu m$	0.7-1.2	non	Détermination du champ de contraintes au joint de grains	[150]

TABLEAU 6. – Synthèse exhaustive des résultats de flexion sur micro-poutres bi-cristallines sur des joints de grains oxydés en milieu REP pour des alliages à base Ni

Les valeurs de contraintes à rupture obtenues pour un même matériau sont très dispersées. Aucune étude ne reporte d'énergie de rupture. Les effets de taille ne sont pas décrits. Il ne semble pas y avoir à ce jour d'études réalisées sur les aciers austénitiques inoxydables.

### 3.2. Essai de traction sur micro-éprouvettes bi-cristallines

#### 3.2.1. Principe de l'essai

L'essai de traction sur des micro-éprouvettes contenant un joint de grains est similaire sur le principe au cas monocristallin. Des entailles peuvent cependant être présentes pour localiser la déformation au niveau du joint de grains à tester. Cet essai permet de déterminer les caractéristiques (contrainte et élongation) à rupture à partir de la courbe force - déplacement. A noter que ce type d'essai peut également être utilisé pour étudier l'effet des joints de grains vis-à-vis de la transmission des dislocations.

#### 3.2.2. Contraintes de réalisation de l'essai

Si la force mesurée lors de la rupture du joint de grains peut permettre d'estimer une contrainte à rupture, il n'en est pas de même en ce qui concerne la déformation à rupture. En effet, celle-ci peut être hétérogène le long de l'éprouvette du fait de la présence de deux grains, et encore plus dans le cas de la présence d'une entaille. Ainsi, Guo et al. [152], étudiant un bi-cristal de cuivre ont remarqué que la déformation au niveau du joint de grains était plus faible que dans les grains. Ils ont donc conclu qu'il y avait un durcissement important au niveau du joint de grains qui rend sa déformation difficile. Dans le même temps, ils ont pu voir qu'il n'y avait pas de transmission de dislocation au joint de grains et que la déformation dans l'échantillon était hétérogène. Comme dans le cas de la micro-flexion, il est possible de réaliser un quadrillage de points au FIB afin de mesurer le champ de déplacement de l'échantillon. Ainsi Guo et al. [152] l'ont utilisé sur du cuivre pour obtenir le champ de déformation durant un essai par corrélation d'images. En plus de ce quadrillage et de l'analyse de corrélation d'images, Howard et al. [151] ont déterminé la raideur du dispositif de traction afin d'avoir l'estimation de déformation la plus précise possible. Dans d'autres études, *e.g.*, Miura et al. [153], la déformation est simplement calculée à partir du changement de longueur de l'échantillon. A noter dans ce dernier exemple que la mesure de force est réalisée à l'aide de la déflexion d'une poutre en silicium qui sert de mors fixe.

#### 3.2.3. Résultats disponibles dans la littérature

Quelques résultats sont disponibles pour des joints de grains d'acier inoxydable austénitique et d'Inconel. Miura et al. [153] ont utilisé de la micro-traction pour étudier l'effet de l'implantation d'hélium sur la fragilisation des joints de grains du 316L. Des éprouvettes de dimensions  $8\mu\text{m} \times 4\mu\text{m} \times 2\mu\text{m}$  (Fig. 40) ont été usinées sur un acier 316L implanté à  $300^\circ\text{C}$ . L'étude a montré qu'au-delà de 2%.at d'hélium, le joint de grains rompt de manière fragile et une estimation de la contrainte à rupture est réalisée. Dans l'étude d'Alabort et al. [154], des éprouvettes de traction de type dog-bone contenant

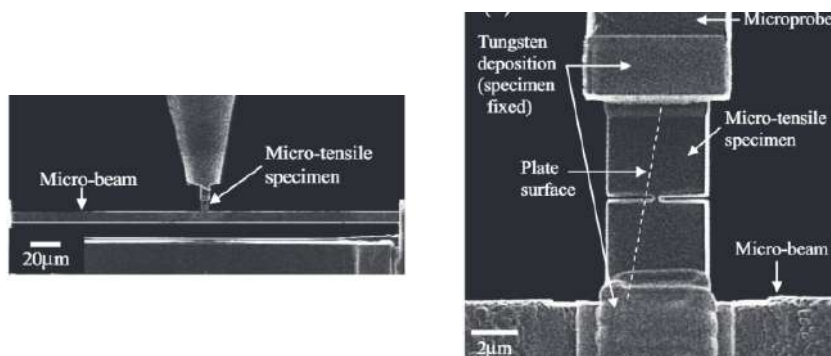


FIGURE 40. – Essai de micro-traction sur une éprouvette en acier 316L implanté à l'hélium et contenant un joint de grains [153]

2 à 3 grains (usinées par électro-érosion) ont été testées à  $750^\circ\text{C}$  afin de déterminer la contrainte à rupture des joints de grains d'un alliage de nickel. Ces essais ont notamment permis de voir que les premiers joints de grains à fissurer étaient ceux perpendiculaires à l'axe de traction.

Howard et al. [151] se sont aussi intéressés à la rupture intergranulaire suite à l'implantation d'hélium.

Il a alors testé des éprouvettes de dimensions  $1.0\mu\text{m} \times 2.3-3.0 \times 1.5-2.5 \mu\text{m}$  issues du superalliage base nickel Inconel X750 irradié aux neutrons entre 70 et 80dpa. Certaines éprouvettes contenaient un unique joint de grains. Les essais ont été réalisés sur un équipement de type push-to-pull où un indenteur vient presser le dispositif afin de provoquer la mise en traction de l'éprouvette (Fig. 41). L'essai est mené avec une vitesse de déformation de  $4.5 \times 10^{-3}/\text{s}$  jusqu'à la rupture de l'échantillon. En suivant l'essai, ils ont alors observé que les bulles d'hélium à l'intérieur des grains s'allongent et la rencontre des bulles situées sur la même ligne initiait la rupture. La propagation se fait lorsque cette ligne rencontre le joint de grains décoré de bulles d'hélium.

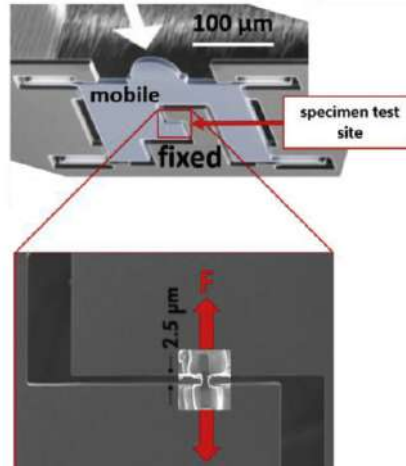


FIGURE 41. – Dispositif de traction push-to-pull [151].

#### Essai de traction sur micro-éprouvettes bi-cristallines

Le tableau suivant synthétise les résultats disponibles dans la littérature sur des joints de grains d'aciers inoxydables austénitiques et d'Inconel.

Matériau	Dimensions éprouvette	$\sigma_{jdg}^c$ (MPa)	Mention effet de de taille	Simulations	Ref.
316L irradié neutron 12-73 dpa	$4 \times 2 \times 8\mu\text{m}$	1000-2000	non	non	[155]
316L implanté He	$500 \times 700 \times 300\mu\text{m}$	550-600	non	Calcul de l'endommagement dans l'éprouvette	[139]
Inconel 600	$1.5 \times 1.5\mu\text{m}$	336-618	non	non	[156]
Inconel X750 1.5 dpa neutron	$1.3 \times 1.5 \times 2.5\mu\text{m}$	-	non	Détermination de la contrainte à rupture du joint par simulation FE	[157]
Inconel X750 70-80 dpa neutron	$\sim 1 \times \sim 2 \times \sim 3\mu\text{m}$	-	non	non	[151]

TABLEAU 7. – Synthèse exhaustive des résultats de traction sur micro-éprouvettes bi-cristallines sur des joints de grains d'aciers inoxydables austénitiques et d'Inconel



### 3.3. Essai de micro-compression sur micro-pilier bicristallin

Une étude de Sernicola et al. [158] ayant pour but de mesurer l'énergie libérée lors de la rupture d'un joint de grains dans un matériau fragile (SiC) a utilisé de la micro-compression avec une géométrie de pilier particulière (Fig. 42). Le pilier bi-cristallin de section carré comporte une entaille rectangulaire au fond de laquelle se trouve le joint de grains qui lui aussi est entaillé. L'utilisation d'un indenteur triangulaire (Fig. 42), plus large que l'entaille du pilier, avançant à 1-2nm/s va mettre en flexion les poutres de part et d'autre de l'entaille. A terme, cela va provoquer l'ouverture du joint de grains. La déformation des deux poutres est calculée en utilisant les équations de la théorie des poutres. La dérivée de cette déformation par rapport à la longueur de la fissure donne l'énergie libérée par la fissuration du joint de grains.

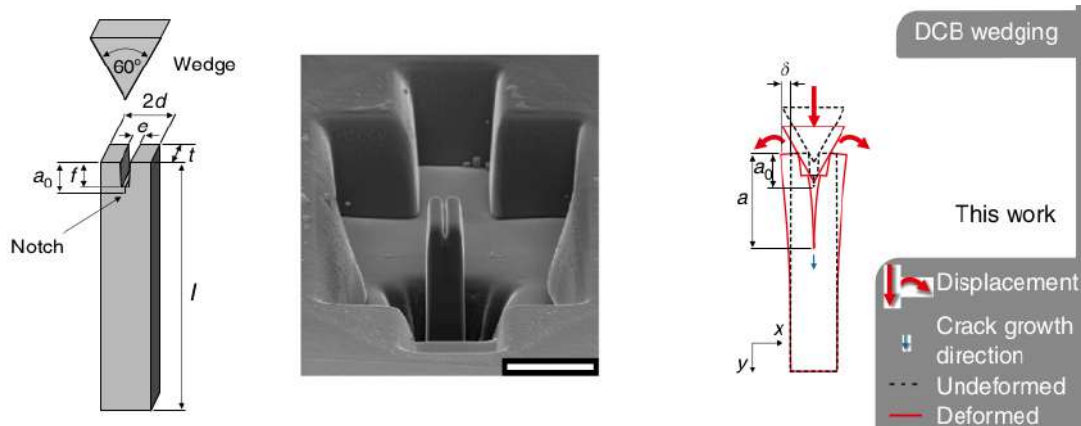


FIGURE 42. – Essai de micro-compression avec ouverture du joint de grains sur un pilier bi-cristallin de SiC [158].

Cet essai peut donner accès aux paramètres à rupture. Cependant cet essai est plus compliqué à mettre en place que la micro-flexion qui permet d'accéder à ces mêmes propriétés.

### 3.4. Discussion sur les techniques adaptées

L'essai de traction sur micro-éprouvette bi-cristalline apparaît comme l'essai le plus adapté pour caractériser les joints de grains du fait de la possibilité d'extraire les propriétés de rupture sans avoir recours à des modèles (analytique ou numérique). Cependant la fabrication des éprouvettes est plus complexe et chronophage que l'usinage des micro-poutres sans compter l'usinage des mors de traction. En micro-flexion, quelques difficultés entre l'indenteur et la poutre sont à noter, notamment l'alignement, le frottement et la position de l'indenteur afin d'obtenir le point d'application de la force. De plus, dès que la déformation devient plastique, l'interprétation des résultats devient plus difficile. Cependant c'est un essai plus facile à mettre en place et dont il existe déjà une littérature pour les simulations.

### 3.5. Conclusion

Les études citées dans cette section montrent que des essais micro-mécaniques peuvent être utilisés pour caractériser la résistance mécanique des joints de grains. Ces techniques semblent adaptées à l'étude des joints de grains car la faible taille de l'échantillon peut minimiser l'influence des grains adjacents sur la réponse mécanique. Il est alors possible de commencer à isoler le comportement mécanique du joint seul. Sur les aciers de la série 300, des essais de micro-traction sur un joint de grains implanté d'hélium ont ainsi été utilisés pour obtenir la contrainte à rupture. Un plus grand nombre de résultats sont disponibles pour les alliages d'Inconel, notamment oxydés en milieu REP, obtenus à partir d'essais de flexion. Les simulations numériques sont nécessaires dans ce cas puisqu'elles permettent d'extraire la contrainte au niveau du joint grains. A ce jour aucune étude ne semble avoir été réalisée sur le comportement mécanique individuel des joints de grains de l'acier 304 oxydé en milieu REP.



## 4. Conclusions et plan de l'étude

Dans les réacteurs à eau pressurisée, la cuve abrite des cloisons internes en 304(L) qui sont assemblées et maintenues sur des renforts, également en 304(L), par des vis en acier de type 316(L). Ces vis irradiées peuvent être sujettes à la rupture intergranulaire par corrosion sous contraintes. Cette fissuration intergranulaire des aciers austénitiques en milieu REP est causée par le phénomène de l'IASCC. Cet endommagement est spécifique à la microstructure créée par l'irradiation. En effet les aciers austénitiques inoxydables étant conçus pour résister à la CSC, l'apparition de fissuration due à la CSC est attribuée à la variation de microstructure du matériau. Ainsi les défauts induits par l'irradiation provoquent une augmentation de la limite d'élasticité ainsi qu'un changement du mode de déformation. Un changement au niveau de la chimie du matériau est aussi observable avec de la ségrégation élémentaire. Des études paramétriques ont été réalisées afin de déterminer lequel de ces changements a le plus d'impact sur la fissuration par IASCC. Il semblerait qu'en présence de localisation de la déformation, la fissuration intergranulaire par IASCC soit plus importante.

A ce jour, beaucoup d'études sur la fissuration intergranulaire des aciers austénitiques en milieu REP ont été réalisées à l'échelle macroscopique, *i.e.*, visant à prédire la rupture à l'échelle de la structure. Cette approche empirique conduit à des modèles utiles pour l'ingénierie mais limités en ce qui concerne leur domaine d'application. Des travaux plus récents visent à développer des modèles à bases physiques et les simulations numériques associées afin de prédire la fissuration intergranulaire à l'échelle de la microstructure. Cette approche nécessite entre autres, d'une part une modélisation quantitative du comportement mécanique des grains, d'autre part de la résistance mécanique des joints de grains, le tout en fonction de la dose d'irradiation et du niveau d'oxydation. Les données disponibles pour les aciers inoxydables austénitiques restent à ce jour parcellaires. A l'état non irradié, des lois de plasticité cristalline existent et ont été calibrées. Cependant ces lois ne prennent pas en compte des effets de taille qui pourraient être pertinents compte-tenu de l'échelle à laquelle la fissuration intergranulaire apparaît dans le phénomène d'IASCC. D'autre part, à l'état irradié, les résultats expérimentaux disponibles sont très limités. Enfin, les données de résistance mécanique des joints de grains sont inexistantes.

Les techniques expérimentales qui permettraient d'obtenir ces données manquantes ont été présentées dans ce chapitre. Ces techniques - nanoindentation, micro-compression, micro-flexion et micro-traction - permettent de solliciter le matériau à une échelle pertinente vis-à-vis des propriétés recherchées (couche irradiée et joint de grains). Les essais de micro-traction et micro-flexion sont adaptés pour accéder aux propriétés à rupture du joint de grains. Pour déterminer une loi de comportement du matériau, la micro-traction et la micro-compression semblent être les essais les plus pertinents.

Afin de contribuer à la modélisation de la fissuration intergranulaire des aciers inoxydables austénitiques irradiés, le plan de l'étude est donc le suivant. Dans une première partie, des essais de compression de micro-piliers cylindriques monocristallins en 304L seront mis en œuvre sur des échantillons non irradiés et irradiés aux protons. Différents diamètres de piliers seront utilisés pour quantifier l'effet de taille aux états non irradié et irradié. Les essais seront utilisés pour calibrer une loi de comportement de plasticité cristalline. Dans une deuxième partie, des essais de flexion de micro-poutres seront réalisés afin de déterminer les propriétés de rupture des joint de grains. Un protocole d'étude de la fissuration des joints de grains en milieu REP est mis en place avec un acier austénitique modèle sensible à la corrosion intergranulaire. Des échantillons de l'acier modèle seront oxydés pendant différentes durées en milieu REP puis serviront à usiner des micro-poutres bi-cristallines. Des modèles analytiques et des simulations numériques seront utilisés pour estimer l'énergie et de la contrainte de rupture. Enfin, dans une troisième partie, les essais et simulations de flexion sur micro-poutres seront réalisés sur le matériau d'intérêt 304(L). L'utilisation des caractéristiques expérimentales obtenues lors de cette étude micro-mécanique pour modéliser la fissuration intergranulaire des aciers austénitiques inoxydables sera décrite dans les perspectives de ce travail.

# Bibliographie

- [1] P. Saint-Paul. Corrosion dans les centrales nucléaires à eau pressurisée. Le Journal de Physique IV, 3(C9) :C9–707, 1993.
- [2] F. Cattant. Stainless Steels IASCC. In Materials Ageing in Light-Water Reactors, pages 839–880. Springer, 2022.
- [3] B. Tanguy. Corrosion sous contrainte assistée par l’irradiation des aciers inoxydables austénitiques (IASCC). Revue de Métallurgie, 108(1) :39–46, 2011.
- [4] J. Gupta. Intergranular stress corrosion cracking of ion irradiated 304L stainless steel in PWR environment. PhD thesis, Université Toulouse 3 - Paul Sabatier, 2016.
- [5] O. K. Chopra. Degradation of LWR core internal materials due to neutron irradiation. NRC Notice Information, 2008.
- [6] T. J. Griesbach, G. J. Licina, P. C. Riccardella, J. Rashid, and R. E. Nickell. A probabilistic approach to baffle bolt IASCC predictions. International Atomic Energy Agency, 2012.
- [7] E. Wash, E. Nishitani, and K. Okimura. Maintenance technology and its applications for PWR plants. In International conference on nuclear power plant life management (PLiM) for long term operations (LTO), 2012.
- [8] P. Scott, M. Meunier, D. Deydier, S. Silvestre, and A. Trenty. An analysis of baffle/former bolt cracking in french PWRs. Environmentally Assisted Cracking : Predictive Methods for Risk Assessment and Evaluation of Materials, Equipment, and Structures, 486 :210–223, 2000.
- [9] G. S. Was. Fundamentals of Radiation Materials Science. Springer edition, 2007.
- [10] S. M. Bruemmer, E. P. Simonen, P. M. Scott, P. L. Andresen, G. S. Was, and J. L. Nelson. Radiation-induced material changes and susceptibility to intergranular failure of light-water-reactor core internals. Journal of Nuclear Materials, 274(3) :299–314, 1999.
- [11] M. R. Gilbert, S. L. Dudarev, D. Nguyen-Manh, S. Zheng, L. W. Packer, and J.-C. Sublet. Neutron-induced dpa, transmutations, gas production, and helium embrittlement of fusion materials. Journal of Nuclear Materials, 442(1-3) :S755–S760, 2013.
- [12] G. S. Was, J. T. Busby, T. Allen, E. A. Kenik, A. Jensson, S. M. Bruemmer, J. Gan, A. D. Edwards, P. M. Scott, and P. L. Andreson. Emulation of neutron irradiation effects with protons : validation of principle. Journal of Nuclear Materials, 300(2-3) :198–216, 2002.
- [13] L.K. Mansur. Correlation of neutron and heavy-ion damage : Ii. the predicted temperature shift if swelling with changes in radiation dose rate. Journal of Nuclear Materials, 78(1) :156–160, 1978.
- [14] Development of radiation resistant reactor core structural materials, 51st IAEA General Conference. 2007.
- [15] T. Kadoyoshi, H. Kaburaki, F. Shimizu, H. Kimizuka, S. Jitsukawa, and J. Li. Molecular dynamics study on the formation of stacking fault tetrahedra and unfauling of Frank loops in FCC metals. Acta materialia, 55(9) :3073–3080, 2007.
- [16] S. J. Zinkle, P. J. Maziasz, and R. E. Stoller. Dose dependence of the microstructural evolution in neutron-irradiated austenitic stainless steel. Journal of Nuclear Materials, 206(2-3) :266–286, 1993.

- [17] D. Edwards, E. P. Simonen, and S. M. Bruemmer. Evolution of fine-scale defects in stainless steels neutron-irradiated at 275°C. Journal of Nuclear Materials, 317 :13–31, 2003.
- [18] K. Fukuya, K. Fujii, H. Nishioka, and Y. Kitsunai. Evolution of microstructure and microchemistry in cold-worked 316 stainless steels under PWR irradiation. Journal of Nuclear Science and Technology, 43(2) :159–173, 2006.
- [19] C. Pokor, Y. Brechet, P. Dubuisson, J.-P. Massoud, and X. Averty. Irradiation damage in 304 and 316 stainless steels : Experimental investigation and modeling. Part II : Irradiation induced hardening. Journal of Nuclear Materials, 326(1) :30–37, 2004.
- [20] A. Etienne. Etude des effets d’irradiations et de la nanostructuration dans des aciers austénitiques inoxydables. PhD thesis, Université de Rouen, 2009.
- [21] O. K. Chopra and A. S. Rao. A review of irradiation effects on LWR core internal materials - IASCC susceptibility and crack growth rates of austenitic stainless steels. Journal of Nuclear Materials, 409(3) :235 – 256, 2011.
- [22] D. Edwards, E. Simonen, and S. Bruemmer. Characterization of neutron-irradiated 300-series stainless steels to assess mechanisms of irradiation-assisted stress corrosion cracking. 2001.
- [23] C. Cawthorne and E. J. Fulton. Voids in irradiated stainless steel. Nature, 216(5115) :575–576, 1967.
- [24] D. J. Edwards, F. A Garner, S. Bruemmer, and P. Efsing. Nano-cavities observed in a 316SS PWR flux thimble tube irradiated to 33 and 70 dpa. Journal of Nuclear Materials, 384(3) :249–255, 2009.
- [25] F. A. Garner, E. P. Simonen, B.M. Oliver, L.R. Greenwood, ML Grossbeck, WG Wolfer, and PM Scott. Retention of hydrogen in FCC metals irradiated at temperatures leading to high densities of bubbles or voids. Journal of Nuclear Materials, 356(1-3) :122–135, 2006.
- [26] E. Paccou. Etude de l’évolution des propriétés mécaniques et de la sensibilité à la fissuration intergranulaire en fonction de la microstructure d’irradiation d’un acier irradié aux ions lourds. PhD thesis, Université Toulouse 3 - Paul Sabatier, 2019.
- [27] M. Boisson, L. Legras, E. Andrieu, and L. Laffont. Role of irradiation and irradiation defects on the oxidation first stages of a 316L austenitic stainless steel. Corrosion Science, 161, 2019.
- [28] A. Seeger, J. Diehl, S. Mader, and H. Rebstock. Work-hardening and work-softening of face-centred cubic metal crystals. Philosophical Magazine, 2(15) :323–350, 1957.
- [29] S. J. Zinkle and Y. Matsukawa. Observation and analysis of defect cluster production and interactions with dislocations. Journal of Nuclear Materials, 329 :88–96, 2004.
- [30] F. Bergner, C. Pareige, M. Hernández-Mayoral, L. Malerba, and C. Heintze. Application of a three-feature dispersed-barrier hardening model to neutron-irradiated Fe–Cr model alloys. Journal of Nuclear Materials, 448(1-3) :96–102, 2014.
- [31] P. Zhu, Y. Zhao, S. Agarwal, J. Henry, and S. J. Zinkle. Toward accurate evaluation of bulk hardness from nanoindentation testing at low indent depths. Materials & Design, 213 :110317, 2022.
- [32] J. T. Busby, M. C. Hash, and G. S. Was. The relationship between hardness and yield stress in irradiated austenitic and ferritic steels. Journal of Nuclear Materials, 336(2-3) :267–278, 2005.
- [33] Z. Q. Wu, H. Ding, H. Y. Li, M. L. Huang, and F. R. Cao. Microstructural evolution and strain hardening behavior during plastic deformation of Fe–12Mn–8Al–0.8C steel. Materials Science and Engineering : A, 584 :150–155, 2013.

- [34] M. D. McMurtrey, G. S. Was, B. Cui, I. Robertson, L. Smith, and D. Farkas. Strain localization at dislocation channel-grain boundary intersections in irradiated stainless steel. International Journal of Plasticity, 56 :219 – 231, 2014.
- [35] J. Gupta, J. Hure, B. Tanguy, L. Laffont, M.-C. Lafont, and E. Andrieu. Characterization of ion irradiation effects on the microstructure, hardness, deformation and crack initiation behavior of austenitic stainless steel :Heavy ions vs protons. Journal of Nuclear Materials, 501 :45–58, 2018.
- [36] T. Couvant, F. Vaillant, J. M. Boursier, and D. Delafosse. Effect of strain-path on stress corrosion cracking of AISI 304L stainless steel in PWR primary environment at 360°C. 2004.
- [37] Stress Corrosion Cracking in Light Water Reactors : Good Practices and Lessons Learned. Number NP-T-3.13 in Nuclear Energy Series. International Atomic energy Agency, Vienna, 2011.
- [38] T. Matsubara, T. Tsutsui, Y. Kamei, and M. Kitsu. Stress evaluation of baffle former bolt for IASCC failure prediction. 2011.
- [39] E. Altstadt, H. Kumpf, F.-P. Weiss, E. Fischer, G. Nagel, and G. Sgarz. Analysis of a PWR core baffle considering irradiation induced creep. Annals of Nuclear Energy, 31(7) :723–736, 2004.
- [40] G. Zumpicchiati, B. Tanguy, P. Gavaille, V. Vandenberghe, and R. Bonzom. Development of constitutive equations for baffle to former bolts assessment based on in-reactor stress relaxation in bending of CW 316 stainless steels. In Fontevraud 10, 2022.
- [41] J. Nagakawa. Calculation of radiation-induced stress relaxation. Journal of Nuclear Materials, 212 :541–545, 1994.
- [42] A. Machet. Étude des premiers stades d’oxydation d’alliages inoxydables dans l’eau à haute température. PhD thesis, Chimie ParisTech, 2004.
- [43] T. Terachi, T. Yamada, T. Miyamoto, K. Arioka, and K. Fukuya. Corrosion behavior of stainless steels in simulated PWR primary water-effect of chromium content in alloys and dissolved hydrogen. Journal of Nuclear Science and Technology Vol.45(10), pages 975–984, 2008.
- [44] M. Dumerval. Effet des défauts d’implantation sur la corrosion des aciers inoxydables austénitiques en milieu primaire des réacteurs à eau pressurisée. PhD thesis, Université de Grenoble, 2014.
- [45] K. Kruska, S. Lozano-Perez, D. W. Saxey, T. Terachi, T. Yamada, and G. D. W. Smith. Nanoscale characterisation of grain boundary oxidation in cold-worked stainless steels. Corrosion Science Vol.63 :225–233, 2012.
- [46] N. Sakaguchi, M. Endo, S. Watanabe, H. Kinoshita, S. Yamashita, and H. Kokawa. Radiation-induced segregation and corrosion behavior on  $\Sigma 3$  coincidence site lattice and random grain boundaries in proton-irradiated type-316L austenitic stainless steel. Journal of Nuclear Materials, 434(1-3) :65–71, 2013.
- [47] R.P. Matthews, R.D. Knutsen, J.E. Westraadt, and T. Couvant. Adaptation of the point defect model to simulate oxidation kinetics of 316L stainless steel in the pressurised water reactor environment. Corrosion Science, 185 :109454, 2021.
- [48] P. Deng, Q. Peng, E.-H. Han, W. Ke, C. Sun, and Z. Jiao. Effect of irradiation on corrosion of 304 nuclear grade stainless steel in simulated PWR primary water. Corrosion Science, 127 :91–100, 2017.
- [49] X. Liu, W. Hwang, J. Park, D. Van, Y. Chang, S. H. Lee, S.-Y. Kim, S. Han, and B. Lee. Toward the multiscale nature of stress corrosion cracking. Nuclear Engineering and Technology Vol.50, pages 1–17, 2018.

- [50] Koji A. Change in bonding strength at grain boundaries before long-term SCC initiation. Corrosion, Corrosion Science Vol.71 :403–419, 2015.
- [51] C. L. Briant and P. L. Andresen. Grain boundary segregation in austenitic stainless steels and its effect on intergranular corrosion and stress corrosion cracking. Metallurgical Transaction A Vol.19(3) :495–504, 1988.
- [52] Z. Jiao and G. S. Was. Oxidation of a proton-irradiated 316 stainless steel in simulated BWR NWC environment. In Proceedings of the 15th International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems-Water Reactors, pages 1329–1338. Springer, 2011.
- [53] S. Perrin, L. Marchetti, C. Duhamel, M. Sennour, and F. Jomard. Influence of irradiation on the oxide film formed on 316L stainless steel in PWR primary water. Oxidation of metals, 80(5-6) :623–633, 2013.
- [54] A.-C. Bach. Etude du piégeage de l’hydrogène dans un acier inoxydable austénitique dans le cadre de la corrosion sous contrainte assistée par l’irradiation. PhD thesis, Paris Sciences et Lettres, 2018.
- [55] E. A. West and G. S. Was. Strain incompatibilities and their role in intergranular cracking of irradiated 316L stainless steel. Journal of Nuclear Materials, 441(1) :623 – 632, 2013.
- [56] M. D. McMurtrey, G. S. Was, L. Patrick, and D. Farkas. Relationship between localized strain and irradiation assisted stress corrosion cracking in an austenitic alloy. Materials Science and Engineering : A, 528(10) :3730–3740, 2011.
- [57] G. S. Was. Localized deformation as a primary cause of irradiation assisted stress corrosion cracking. Technical report, University of Michigan, 2009.
- [58] H. Nishioka, K. Fukuya, K. Fujii, and Y. Kitsunai. Deformation structure in highly irradiated stainless steels. Journal of Nuclear Science and Technology, 45(4) :274–287, 2008.
- [59] V. Y. Gertsman and S. M. Bruemmer. Study of grain boundary character along intergranular stress corrosion crack paths in austenitic alloys. Acta Materialia, 49(9) :1589–1598, 2001.
- [60] E. A. West and G. S. Was. A model for the normal stress dependence of intergranular cracking of irradiated 316L stainless steel in supercritical water. Journal of Nuclear Materials, 408(2) :142 – 152, 2011.
- [61] J. T. Busby, G. S. Was, and E. A. Kenik. Isolating the effect of radiation-induced segregation in irradiation-assisted stress corrosion cracking of austenitic stainless steels. Journal of Nuclear Materials, 302(1) :20 – 40, 2002.
- [62] D. C. Johnson, B. Kuhr, D. Farkas, and G. S. Was. Quantitative linkage between the stress at dislocation channel–grain boundary interaction sites and irradiation assisted stress corrosion crack initiation. Acta Materialia, 170 :166–175, 2019.
- [63] D Liang, J Hure, A Courcelle, S El Shawish, and B Tanguy. A micromechanical analysis of intergranular stress corrosion cracking of an irradiated austenitic stainless steel. Acta Materialia, 204, 2020.
- [64] P.M. Scott and M. Le Calver. Some possible mechanisms of intergranular stress corrosion cracking of alloy 600 in PWR primary water. In Proceedings of the sixth international symposium on environmental degradation of materials in nuclear power systems-water reactors, 1993.
- [65] Z. Jiao and G. S. Was. The role of irradiated microstructure in the localized deformation of austenitic stainless steels. Journal of Nuclear Materials, 407(1) :34 – 43, 2010.

- [66] Z. Jiao and G. S. Was. Localized deformation and IASCC initiation in austenitic stainless steels. Journal of Nuclear Materials, 382(2) :203 – 209, 2008.
- [67] Z. Jiao, J. T. Busby, and G. S. Was. Deformation microstructure of proton-irradiated stainless steels. Journal of Nuclear Materials, 361(2) :218 – 227, 2007.
- [68] Z. Jiao and G. S. Was. Impact of localized deformation on IASCC in austenitic stainless steels. Journal of Nuclear Materials, 408(3) :246 – 256, 2011.
- [69] K. J. Stephenson and G. S. Was. Comparison of the microstructure, deformation and crack initiation behavior of austenitic stainless steel irradiated in-reactor or with protons. Journal of Nuclear Materials, 456 :85 – 98, 2015.
- [70] B. Margolin, A. Sorokin, N. Pirogova, A. Toivonen, F. Sefta, and C. Pokor. Analysis of mechanisms inducing corrosion cracking of irradiated austenitic steels and development of a model for prediction of crack initiation. Engineering Failure Analysis, 107 :104235, 2020.
- [71] M. J. Konstantinović. Probabilistic fracture mechanics of irradiation assisted stress corrosion cracking in stainless steels. Procedia Structural Integrity, 2 :3792 – 3798, 2016. 21st European Conference on Fracture, ECF21, 20-24 June 2016, Catania, Italy.
- [72] Y. Park, J. and Shibutani. Weighted voronoi tessellation technique for internal structure of metallic glasses. Intermetallics, 15(2) :187–192, 2007.
- [73] F. Roters, P. Eisenlohr, L. Hantcherli, D. D. Tjahjanto, T. R. Bieler, and D. Raabe. Overview of constitutive laws, kinematics, homogenization and multiscale methods in crystal plasticity finite-element modeling : Theory, experiments, applications. Acta Materialia, 58(4) :1152–1211, 2010.
- [74] G. Monnet and C. Mai. Prediction of irradiation hardening in austenitic stainless steels : Analytical and crystal plasticity studies. Journal of Nuclear Materials, 518 :316–325, 2019.
- [75] X. Han. Modélisation de la fragilisation due au gonflement dans les aciers inoxydables austénitiques irradiés. PhD thesis, École nationale supérieure des Mines de Paris, 2012.
- [76] J.-M. Scherer. Localisation de la déformation et rupture ductile dans les monocristaux : application aux aciers austénitiques inoxydables irradiés. PhD thesis, Mines ParisTech, 2020.
- [77] S. Krishna, A. Zamiri, and S. De. Dislocation and defect density-based micromechanical modeling of the mechanical behavior of fcc metals under neutron irradiation. Philosophical magazine, 90(30) :4013–4025, 2010.
- [78] I. Karaman, H. Sehitoglu, H.J. Maier, and Y.I. Chumlyakov. Competing mechanisms and modeling of deformation in austenitic stainless steel single crystals with and without nitrogen. Acta Materialia, 49(19) :3919–3933, 2001.
- [79] T. Couvant, J. Caballero, C. Duhamel, J. Crépin, and T. Maeguchi. Calibration of the local igsc engineering model for alloy 600. In Proceedings of the 18th International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems–Water Reactors, pages 1511–1533. Springer, 2019.
- [80] T. Couvant, D. Haboussa, S. Meunier, G. Nicolas, E. Julan, K. Sato, and F. Delabrouille. A simulation of igsc of austenitic stainless steels exposed to primary water, in. In 17th International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems–Water Reactors, Ottawa, CA, August 9–13, pages 1987–2008, 2015.
- [81] M. Sauzay and M. O. Moussa. Prediction of grain boundary stress fields and microcrack initiation induced by slip band impingement. International Journal of Fracture, 184(1-2) :215–240, 2013.

- [82] S. El Shawish, P.-G. Vincent, H. Moulinec, L. Cizelj, and L. Gélébart. Full-field polycrystal plasticity simulations of neutron-irradiated austenitic stainless steel : A comparison between FE and FFT-based approaches. Journal of Nuclear Materials, 529, 2020.
- [83] J. Hure, S. El Shawish, L. Cizelj, and B. Tanguy. Intergranular stress distributions in polycrystalline aggregates of irradiated stainless steel. Journal of Nuclear Materials, 476 :231–242, 2016.
- [84] W. C. Oliver and G. M. Pharr. An improved technique for determining hardness and elastic modulus using load and displacement sensing indentation experiments. Journal of Materials Research, 7(6) :1564–1583, 1992.
- [85] W. C. Oliver and G. M. Pharr. Measurement of hardness and elastic modulus by instrumented indentation : Advances in understanding and refinements to methodology. Journal of Materials Research, 19(1) :3–20, 2004.
- [86] W. D. Nix and H. Gao. Indentation size effects in crystalline materials : a law for strain gradient plasticity. Journal of the Mechanics and Physics of Solids, 46(3) :411–425, 1998.
- [87] X. Liu, R. Wang, A. Ren, J. Jiang, C. Xu, P. Huang, W. Qian, Y. Wu, and C. Zhang. Evaluation of radiation hardening in ion-irradiated Fe based alloys by nanoindentation. Journal of Nuclear Materials, 444(1-3) :1–6, 2014.
- [88] C. D. Hardie, S. G. Roberts, and A. J. Bushby. Understanding the effects of ion irradiation using nanoindentation techniques. Journal of Nuclear Materials, 462 :391–401, 2015.
- [89] R.-S. Wang, C.-L. Xu, X.-B. Liu, P. Huang, and Y. Chen. The studies of irradiation assisted stress corrosion cracking on reactor internals stainless steel under Xe irradiation. Journal of Nuclear Materials, 457 :130–134, 2015.
- [90] P. Hosemann, J. G. Swadener, D. Kiener, G. S. Was, S. A. Maloy, and N. Li. An exploratory study to determine applicability of nano-hardness and micro-compression measurements for yield stress estimation. Journal of Nuclear Materials, 375(1) :135–143, 2008.
- [91] A. Prasitthipayong, S.J. Vachhani, S.J. Tumey, A.M. Minor, and P. Hosemann. Indentation size effect in unirradiated and ion-irradiated 800h steel at high temperatures. Acta Materialia, 144 :896–904, 2018.
- [92] A. Ruiz-Moreno, P. Hähner, F. Fumagalli, V. Haiblikova, M. Conte, and N. Randall. Stress-strain curves and derived mechanical parameters of P91 steel from spherical nanoindentation at a range of temperatures. Materials and Design, 194 :108950, 2020.
- [93] P. Hosemann. Small-scale mechanical testing on nuclear materials : bridging the experimental length-scale gap. Scripta Materialia, 143 :161–168, 2018.
- [94] D. Kiener, A. M. Minor, O. Anderoglu, Y. Wang, S. A. Maloy, and P. Hosemann. Application of small-scale testing for investigation of ion-beam-irradiated materials. Journal of Materials Research, 27(21) :2724–2736, 2012.
- [95] L. Li, L. Shen, G. Proust, C. K. S Moy, and G. Ranzi. Three-dimensional crystal plasticity finite element simulation of nanoindentation on aluminium alloy 2024. Materials Science and Engineering : A, 579 :41–49, 2013.
- [96] S. Lu, B. Zhang, X. Li, J. Zhao, M. Zaiser, H. Fan, and X. Zhang. Grain boundary effect on nanoindentation : A multiscale discrete dislocation dynamics model. Journal of the Mechanics and Physics of Solids, 126 :117–135, 2019.
- [97] M. Liu, C. Lu, K. A. Tieu, and K. Zhou. Crystal plasticity FEM study of nanoindentation behaviors of Cu bicrystals and Cu–Al bicrystals. Journal of Materials Research, 30(16) :2485–2499, 2015.

- [98] G. Rauchs and J. Bardon. Identification of elasto-viscoplastic material parameters by indentation testing and combined finite element modelling and numerical optimization. *Finite Elements in Analysis and Design*, 47(7) :653–667, 2011.
- [99] M. Saleh, Z. Zaidi, M. Ionescu, C. Hurt, K. Short, J. Daniels, P. Munroe, L. Edwards, and D. Bhattacharyya. Relationship between damage and hardness profiles in ion irradiated SS316 using nanoindentation : Experiments and modelling. *International Journal of Plasticity*, 86 :151–169, 2016.
- [100] K. Yabuuchi, Y. Kuribayashi, S. Nogami, R. Kasada, and A. Hasegawa. Evaluation of irradiation hardening of proton irradiated stainless steels by nanoindentation. *Journal of Nuclear Materials*, 446(1-3) :142–147, 2014.
- [101] H.-H. Jin, E. Ko, S. Lim, J. Kwon, and C. Shin. Effect of irradiation temperature on microstructural changes in self-ion irradiated austenitic stainless steel. *Journal of Nuclear Materials*, 493 :239–245, 2017.
- [102] H. F. Huang, J. J. Li, D. H. Li, R. D. Liu, G. H. Lei, Q. Huang, and L. Yan. TEM, XRD and nanoindentation characterization of Xenon ion irradiation damage in austenitic stainless steels. *Journal of Nuclear Materials*, 454(1-3) :168–172, 2014.
- [103] A. Lupinacci, K. Chen, Y. Li, M. Kunz, Z. Jiao, G. S. Was, M. D. Abad, A. M. Minor, and P. Hosemann. Characterization of ion beam irradiated 304 stainless steel utilizing nanoindentation and Laue microdiffraction. *Journal of Nuclear Materials*, 458 :70–76, 2015.
- [104] A. Reichardt, A. Lupinacci, D. Frazer, N. Bailey, H. T. Vo, C. Howard, Z. Jiao, A. M. Minor, P. Chou, and P. Hosemann. Nanoindentation and in situ microcompression in different dose regimes of proton beam irradiated 304 SS. *Journal of Nuclear Materials*, 486 :323–331, 2017.
- [105] J. S. Weaver, S. Pathak, A. Reichardt, H. T. Vo, S. A. Maloy, P. Hosemann, and N. A. Mara. Spherical nanoindentation of proton irradiated 304 stainless steel : A comparison of small scale mechanical test techniques for measuring irradiation hardening. *Journal of Nuclear Materials*, 493 :368–379, 2017.
- [106] D. Wang, L. Zhao, L. Xu, Y. Han, and K. Hao. A microstructure-based study of irradiation hardening in stainless steel : Experiment and phase field modeling. *Journal of Nuclear Materials*, 569 :153940, 2022.
- [107] J. H. Shin, B. S. Kong, C. Jeong, H. J. Eom, C. Jang, and L. Shao. Evaluation of radiation resistance of an austenitic stainless steel with nanosized carbide precipitates using heavy ion irradiation at 200 dpa. *Nuclear Engineering and Technology*, 2022.
- [108] A. Prasitthipayong, D. Frazer, A. Kareer, M. D. Abad, A. Garner, B. Joni, T. Ungar, G. Ribarik, M. Preuss, L. Balogh, S. J. Tumey, A. M. Minor, and P. Hosemann. Micro mechanical testing of candidate structural alloys for Gen-IV nuclear reactors. *Nuclear Materials and Energy*, 16 :34–45, 2018.
- [109] H. Zhang, B. E. Schuster, Q. Wei, and K. T. Ramesh. The design of accurate micro-compression experiments. *Scripta Materialia*, 54(2) :181–186, 2006.
- [110] D. Kiener, C. Motz, M. Rester, M. Jenko, and G. Dehm. FIB damage of Cu and possible consequences for miniaturized mechanical tests. *Materials Science and Engineering : A*, 459(1-2) :262–272, 2007.
- [111] C. Shin, S. Lim, H.-H. Jin, P. Hosemann, and J. Kwon. Development and testing of micro-compression for post irradiation characterization of ODS steels. *Journal of Nuclear Materials*, 444(1-3) :43–48, 2014.
- [112] D. Kiener, C. Motz, and G. Dehm. Micro-compression testing : A critical discussion of experimental constraints. *Materials Science and Engineering : A*, 505(1-2) :79–87, 2009.



- [113] R. Soler, J. M. Molina-Aldareguia, J. Segurado, J. Llorca, R. I. Merino, and V. M. Orera. Micropillar compression of LiF [1 1 1] single crystals : effect of size, ion irradiation and misorientation. *International Journal of Plasticity*, 36 :50–63, 2012.
- [114] E. M. Grieveson, D. E. J. Armstrong, S. Xu, and S. G. Roberts. Compression of self-ion implanted iron micropillars. *Journal of Nuclear Materials*, 430(1-3) :119–124, 2012.
- [115] J. Heo, S. Kim, H. Guim, H.-H. Jin, J. Moon, C.-H. Lee, and C. Shin. Ion-irradiation hardening of Ti/Ta-added reduced activation ferritic-martensitic steel evaluated with a new nanopillar fabrication technique. *Journal of Nuclear Materials*, 512 :184–192, 2018.
- [116] D. Raabe, D. Ma, and F. Roters. Effects of initial orientation, sample geometry and friction on anisotropy and crystallographic orientation changes in single crystal microcompression deformation : A crystal plasticity finite element study. *Acta Materialia*, 55(13) :4567–4583, 2007.
- [117] M. Schamel, J. M. Wheeler, C. Niederberger, J. Michler, A. Sologubenko, and R. Spolenak. Cyclic loading for the characterisation of strain hardening during in situ microcompression experiments. *Philosophical Magazine*, 96(32-34) :3479–3501, 2016.
- [118] P. A. Shade, R. Wheeler, Y. S. Choi, M. D. Uchic, D. M. Dimiduk, and H. L. Fraser. A combined experimental and simulation study to examine lateral constraint effects on microcompression of single-slip oriented single crystals. *Acta Materialia*, 57(15) :4580–4587, 2009.
- [119] H.-H. Jin, E. Ko, J. Kwon, S. S. Hwang, and C. Shin. Evaluation of critical resolved shear strength and deformation mode in proton-irradiated austenitic stainless steel using micro-compression tests. *Journal of Nuclear Materials*, 470 :155–163, 2016.
- [120] C. A. Volkert and E. T. Lilleodden. Size effects in the deformation of sub-micron Au columns. *Philosophical Magazine*, 86(33-35) :5567–5579, 2006.
- [121] I. N. Sneddon. The relation between load and penetration in the axisymmetric Boussinesq problem for a punch of arbitrary profile. *International Journal of Engineering Science*, 3(1) :47–57, 1965.
- [122] K. J Hemker and W.N. Sharpe Jr. Microscale characterization of mechanical properties. *Annu. Rev. Mater. Res.*, 37 :93–126, 2007.
- [123] D. Kiener, P. Hosemann, S. A. Maloy, and A. M. Minor. In situ nanocompression testing of irradiated copper. *Nature Materials*, 10(8) :608–613, 2011.
- [124] J. R. Greer and W. D. Nix. Nanoscale gold pillars strengthened through dislocation starvation. *Physical Review B*, 73(24), 2006.
- [125] T. A. Parthasarathy, S. I. Rao, D. M. Dimiduk, M. D. Uchic, and D. R. Trinkle. Contribution to size effect of yield strength from the stochastics of dislocation source lengths in finite samples. *Scripta Materialia*, 56(4) :313–316, 2007.
- [126] F. Momprou, M. Legros, A. Sedlmayr, D. S. Gianola, D. Caillard, and O. Kraft. Source-based strengthening of sub-micrometer Al fibers. *Acta Materialia*, 60(3) :977–983, 2012.
- [127] A. Ma, F. Roters, and D. Raabe. On the consideration of interactions between dislocations and grain boundaries in crystal plasticity finite element modeling : theory, experiments, and simulations. *Acta Materialia*, 54(8) :2181–2194, 2006.
- [128] D. Kupka, N. Huber, and E. T. Lilleodden. A combined experimental-numerical approach for elasto-plastic fracture of individual grain boundaries. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 64 :455–467, 2014.
- [129] S. Breumier, S. Sao-Joao, A. Villani, M. Lévesque, and G. Kermouche. High strain rate micro-compression for crystal plasticity constitutive law parameters identification. *Materials and Design*, 2020.

- [130] E. Paccou, B. Tanguy, and M. Legros. Micropillar compression study of Fe-irradiated 304L steel. *Scripta Materialia*, 172 :56–60, 2019.
- [131] A. Reichardt, A. Lupinacci, D. Frazer, N. Bailey, H. Vo, C. Howard, Z. Jiao, A. M. Minor, P. Chou, and P. Hosemann. Nanoindentation and in situ microcompression in different dose regimes of proton beam irradiated 304 SS. *Journal of Nuclear Materials*, 486 :323–331, 2017.
- [132] C.-H. Shiau, M. Sun, C. and McMurtrey, R. O’Brien, F. A. Garner, and L. Shao. Orientation-selected micro-pillar compression of additively manufactured 316l stainless steels : Comparison of as-manufactured, annealed, and proton-irradiated variants. *Journal of Nuclear Materials*, 566 :153739, 2022.
- [133] H. Vo, A. Reichardt, C. Howard, M.D. Abad, D. Kaoumi, P. Chou, and P. Hosemann. Small-scale mechanical testing on proton beam-irradiated 304 SS from room temperature to reactor operation temperature. *JOM*, 67(12) :2959–2964, 2015.
- [134] G. Monnet and M. A. Pouchon. Determination of the critical resolved shear stress and the friction stress in austenitic stainless steels by compression of pillars extracted from single grains. *Materials letters*, 98 :128–130, 2013.
- [135] D. E. J. Armstrong, C. D. Hardie, J. S. K. L. Gibson, A. J. Bushby, P. D. Edmondson, and S. G. Roberts. Small-scale characterisation of irradiated nuclear materials : Part II nanoindentation and micro-cantilever testing of ion irradiated nuclear materials. *Journal of Nuclear Materials*, 462 :374–381, 2015.
- [136] A. Stratulat, D. E. J. Armstrong, and S. G. Roberts. Micro-mechanical measurement of fracture behaviour of individual grain boundaries in Ni alloy 600 exposed to a pressurized water reactor environment. *Corrosion Science*, 104 :9–16, 2016.
- [137] C. Howard, C. D. Judge, D. Poff, S. Parker, M. Griffiths, and P. Hosemann. A novel in-situ, lift-out, three-point bend technique to quantify the mechanical properties of an ex-service neutron irradiated inconel X-750 component. *Journal of Nuclear Materials*, 498 :149–158, 2018.
- [138] E. Demir, F. Roters, and D. Raabe. Bending of single crystal microcantilever beams of cube orientation : Finite element model and experiments. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 58(10) :1599–1612, 2010.
- [139] H. T. Vo, A. Reichardt, D. Frazer, N. Bailey, P. Chou, and P. Hosemann. In situ micro-tensile testing on proton beam-irradiated stainless steel. *Journal of Nuclear Materials*, 493 :336–342, 2017.
- [140] T. Yi and C.-J. Kim. Measurement of mechanical properties for mems materials. *Measurement Science and Technology*, 10(8) :706, 1999.
- [141] M. Ando, H. Tanigawa, H. Kurotaki, and Y. Katoh. Mechanical properties of neutron irradiated F82H using micro-tensile testing. *Nuclear Materials and Energy*, 16 :258–262, 2018.
- [142] M. G. Horsten and M. I. De Vries. Tensile properties of type 316LN stainless steel irradiated to 10 displacements per atom. *Journal of Nuclear Materials*, 212 :514–518, 1994.
- [143] T. Ajantawalay, H. Vo, R. Finkelstein, P. Hosemann, and A. Aitkaliyeva. Towards bridging the experimental length-scale gap for tensile tests on structural materials : Lessons learned from an initial assessment of microtensile tests and the path forward. *JOM*, 72(1) :113–122, 2020.
- [144] S. Brinckmann, K. Matoy, C. Kirchlechner, and G. Dehm. On the influence of microcantilever pre-crack geometries on the apparent fracture toughness of brittle materials. *Acta Materialia*, 136 :281–287, 2017.

- [145] J. Dohr, D. E. J. Armstrong, E. Tarleton, T. Couvant, and S. Lozano-Perez. The influence of surface oxides on the mechanical response of oxidized grain boundaries. *Thin Solid Films*, 632 :17–22, 2017.
- [146] M. A. Haque and M. T. A. Saif. A review of mems-based microscale and nanoscale tensile and bending testing. *Experimental mechanics*, 43(3) :248–255, 2003.
- [147] B. N. Jaya, C. Kirchlechner, and G. Dehm. Can microscale fracture tests provide reliable fracture toughness values : A case study in silicon. *Journal of Materials Research*, 30(5) :686, 2015.
- [148] H. Dugdale, D. E. J. Armstrong, E. Tarleton, S. G. Roberts, and S. Lozano-Perez. How oxidized grain boundaries fail. *Acta Materialia*, 61(13) :4707–4713, 2013.
- [149] D. Kupka and E. T. Lilleodden. Mechanical Testing of Solid-Solid Interfaces at the Microscale. *Experimental Mechanics*, 52(6) :649–658, 2012.
- [150] M. N. Tawfeeq and R. J. Klassen. Effect of ion implantation on the grain boundary strength of heat treated Inconel X750. *Journal of Nuclear Materials*, 516 :255–263, 2019.
- [151] C. Howard, V. Bhakhri, C. Dixon, H. Rajakumar, C. Mayhew, and C. D. Judge. Coupling multi-scale mechanical testing techniques reveals the existence of a trans-granular channel fracture deformation mechanism in high dose Inconel X-750. *Journal of Nuclear Materials*, 517 :17–34, 2019.
- [152] Y. Z. Guo, F. D. Li, T. Suo, Z. B. Tang, and Y. L. Li. A close observation on the deformation behavior of bicrystal copper under tensile loading. *Mechanics of Materials*, 62 :80–89, 2013.
- [153] T. Miura, K. Fujii, and K. Fukuya. Micro-mechanical investigation for effects of helium on grain boundary fracture of austenitic stainless steel. *Journal of Nuclear Materials*, 457 :279–290, 2015.
- [154] E. Alabort, D. Barba, S. Sulzer, M. Lißner, N. Petrinic, and R. C. Reed. Grain boundary properties of a nickel-based superalloy : Characterisation and modelling. *Acta Materialia*, 151 :377–394, 2018.
- [155] T. Miura, K. Fujii, K. Fukuya, and H. Seto. Micro-mechanical investigation about degradation of grain boundary cohesive strength of neutron-irradiated stainless steels. *Journal of Nuclear Science and Technology*, pages 1–15, 2022.
- [156] H.T. Vo, E.K. Still, J. Kabel, R. Auguste, D.K Schreiber, P.H. Chou, and P. Hosemann. Development of microscale bicrystal tensile testing for strength measurement of oxidized grain boundaries of alloy 600 exposed to PWR environments. *Materials Science and Engineering : A*, 815 :141197, 2021.
- [157] Y. Wang, X. Liu, D. J Murray, F. Teng, W. Jiang, M. Bachhav, L. Hawkins, E. Perez, C. Sun, X. Bai, et al. Measurement of grain boundary strength of Inconel X750 superalloy using in-situ micro-tensile testing techniques in FIB/SEM system. *Materials Science and Engineering : A*, 849 :143475, 2022.
- [158] G. Sernicola, T. Giovannini, P. Patel, J. R. Kermode, D. S. Balint, T. B. Britton, and F. Giuliani. In situ stable crack growth at the micron scale. *Nature communications*, 8(1) :1–9, 2017.

## Chapitre 2

# Étude du comportement intragranulaire d'un acier austénitique 304L à l'état non irradié et irradié



## Introduction

La revue bibliographique présentée dans le chapitre 1 a montré la nécessité d'obtenir des données quant au comportement intragranulaire des aciers austénitiques. Ces données sont utiles pour réaliser des modélisations à bases physiques et les simulations numériques associées de la fissuration intergranulaire des aciers austénitiques oxydés en milieu REP. Les données disponibles dans la littérature sont parcellaires, à la fois pour la caractérisation expérimentale à l'état de référence (non irradié) et à l'état irradié, mais aussi concernant la calibration de lois de comportement de plasticité cristalline permettant de reproduire les résultats expérimentaux et ainsi d'être utilisées dans les simulations de fissuration intergranulaire.

L'étude présentée dans ce chapitre vise donc à obtenir des données sur le comportement plastique à l'échelle du grain pour un acier 304L Hypertrempé à l'état non irradié puis irradié. L'exploitation de ces données servira d'une part à évaluer l'évolution des propriétés mécaniques suite à l'irradiation, et d'autre part à calibrer une loi de plasticité cristalline. Pour cela, une partie des échantillons est soumise à une irradiation aux protons afin d'être comparée à ceux à l'état de référence (non irradié). Des micro-piliers monocristallins de 3 à 10  $\mu\text{m}$  de diamètre sont usinés dans des échantillons non irradiés et irradiés à l'aide d'un MEB-FIB (Focus Ion Beam) aux ions  $\text{Ga}^+$ . Ces piliers sont ensuite testés in-situ au MEB à température ambiante à l'aide d'un dispositif de micro-compression. Les effets de la taille du pilier et du niveau d'irradiation sur les propriétés mécaniques et leurs dispersions sont discutés. En particulier, une étude de sensibilité basée sur des simulations éléments finis permet d'interpréter les essais et d'estimer l'effet des paramètres expérimentaux sur les grandeurs mesurées. Une loi de plasticité cristalline est finalement proposée et calibrée à partir des résultats expérimentaux afin de permettre de reproduire à la fois la dispersion expérimentale et l'effet de taille à l'état non irradié ainsi que l'écroissage à l'état irradié. La Fig. 43 résume l'approche méthodologique suivie.

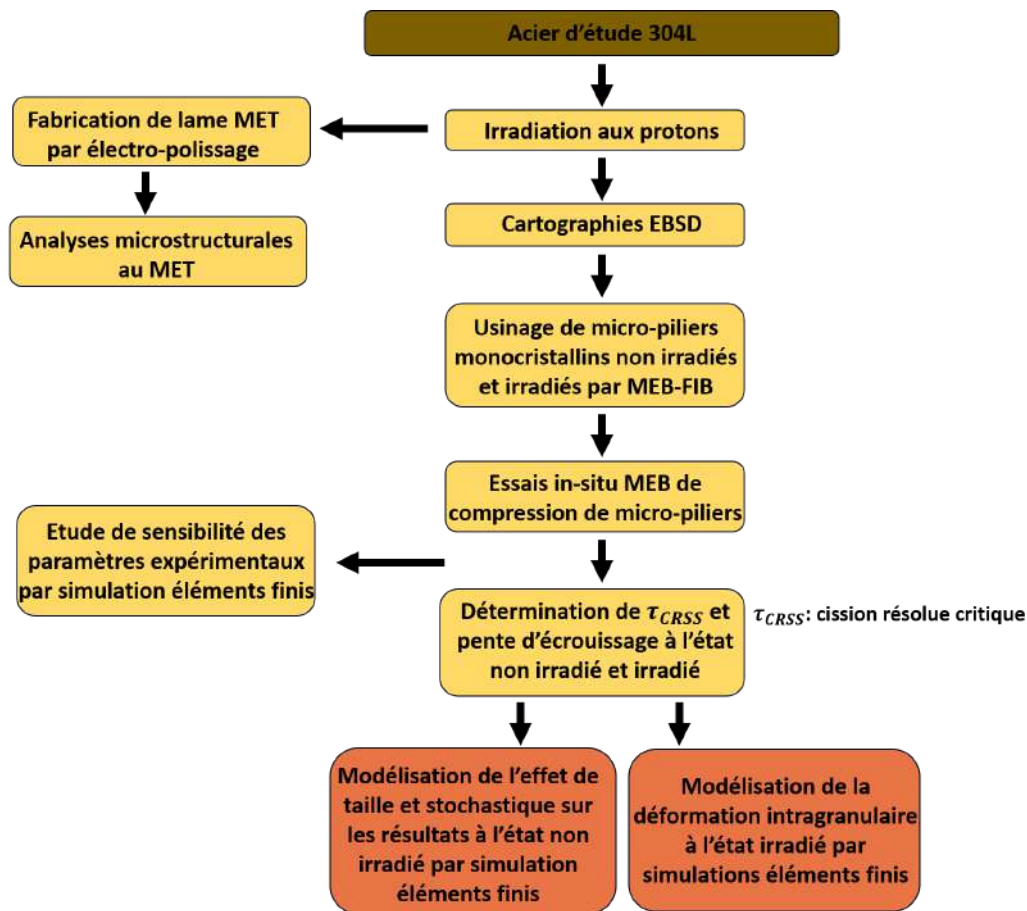


FIGURE 43. – Méthodologie utilisée pour déterminer et modéliser le comportement intragranulaire d'un acier austénitique 304L

## 1. Matériau de l'étude 304L

### 1.1. Composition chimique

Le matériau étudié est un acier inoxydable austénitique 304 hypertrempé (SA 304L) de la nuance notée GV20. Cet acier et l'acier 316L écroui (CW 316L) sont utilisés pour fabriquer les structures internes de cuve des REP. L'utilisation de ces aciers s'explique par leurs bonnes propriétés mécaniques à haute température ainsi qu'une bonne tenue à l'oxydation [1]. Le choix de l'alliage d'étude, et de cette nuance en particulier, s'explique par sa sensibilité à la corrosion sous contraintes intergranulaire (IGSCC InterGranular Stress Corrosion Cracking) démontrée au cours d'études précédentes [2, 3]. De plus l'état hypertrempé rend la caractérisation de la microstructure plus facile contrairement à l'état écroui où la forte densité de dislocations complique les observations. La composition chimique de la nuance d'acier 304L est présentée dans le tableau 8. Le bas taux de carbone (symbolisé par le L dans le nom de l'alliage) permet d'éviter la précipitation de carbures de chrome aux joints de grains et donc de limiter le risque de sensibilisation à la corrosion intergranulaire. Cependant le chrome promeut la phase ferrite (cubique centrée) du fer alors que la phase recherchée est l'austénite  $\gamma$  (cubique face centrée CFC). L'ajout de nickel et de manganèse permet de stabiliser cette phase  $\gamma$ .

Fe	Cr	Ni	Mn	Si	Mo	C	Cu	P	Co
Bal	18,75	8,55	1,65	0,45	0,02	0,012	0,24	0,01	<0,05
Ti	S	N	Pb	W	Zr	B	Mg	V	Nb
<0,05	0,002	0,062	8ppb	0,035	12ppm	0	0,003	0,015	0

TABLEAU 8. – Composition chimique de l'acier SA 304L GV20 (wt%) [2]

A noter que l'acier 316L, constitutif de la visserie des internes de cuve, diffère par une teneur en chrome plus basse (12-18 wt%) et un taux de molybdène plus élevé (2-3 wt%). Le molybdène peut former des carbures à la place du chrome et ainsi maintenir un taux de chrome assurant une protection de l'alliage contre la corrosion. Cet acier serait donc moins vulnérable face à la corrosion en milieu REP.

### 1.2. Fabrication des échantillons et préparation métallographique

Une plaque de l'acier SA 304L GV20 est utilisée pour prélever les échantillons. Après un laminage à chaud, le bloc d'origine a subi un traitement thermique de 1050°C pendant 30 minutes suivi d'une trempe à l'Hélium. Un deuxième traitement d'hypertrempe identique avec une trempe à l'eau a également été réalisé sur le sous-bloc utilisé dans la suite. Ces traitements permettent la mise en solution des éléments d'alliage et de supprimer les dislocations issues du laminage. La microstructure finale est montrée sur la Fig. 44 qui permet de visualiser la distribution de la ferrite (cubique centré) selon la direction observée (direction du laminage L, direction transverse au laminage T ou direction normale au laminage S).

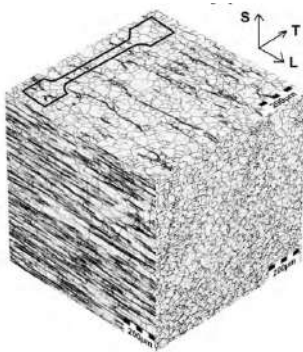


FIGURE 44. – Reconstruction 3D de la microstructure de l'acier SA 304L GV20 en imagerie optique [4]

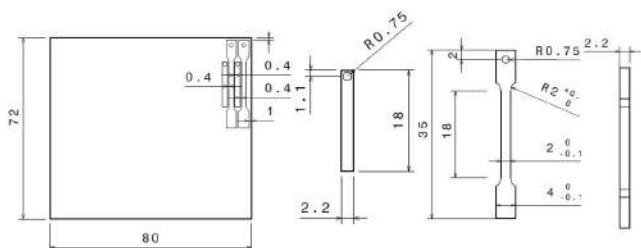


FIGURE 45. – Plan de prélèvement des barres et éprouvettes de traction

Des éprouvettes de tractions de dimensions  $40 \times 4 \times 2 \text{ mm}^3$  et de section utile  $18 \times 2 \times 2 \text{ mm}^3$  ainsi que des barres de dimensions  $18 \times 2 \times 2 \text{ mm}^3$  ont été prélevées dans le plan TL par électro-érosion.

Les échantillons ont d'abord été polis au papier SiC du grade 320 au grade 2000 puis à la pâte diamantée de granulométrie  $6 \mu\text{m}$  et  $1 \mu\text{m}$  comme présenté dans le tableau 9.

Etape de polissage	Durée
SiC grade 320	30 secondes
SiC grade 500	1min30
SiC grade 1200	1min30
SiC grade 2000	1min30
Pâte diamantée $6 \mu\text{m}$ sur drap ALS	4min
Pâte diamantée $3 \mu\text{m}$ sur drap ALS	6min
Pâte diamantée $1 \mu\text{m}$ sur drap ALS	8min

TABLEAU 9. – Procédure de polissage de l'acier 304L

Entre chaque étape de polissage les échantillons sont nettoyés au jet d'eau. Les échantillons sont regroupés sur le même support de polissage pour obtenir un état de surface similaire et un écart d'épaisseur d'un échantillon à l'autre n'excédant pas  $50 \mu\text{m}$  afin de minimiser les différences en vue de l'irradiation. Ce polissage mécanique introduit une couche écrouie en surface sur une épaisseur de  $0.5$  à  $2 \mu\text{m}$  [2] constituée de nanograins d'austénite de  $20$  à  $200 \text{ nm}$ . Afin d'éliminer cette zone écrouie, un vibro-polissage avec une solution de silice colloïdale à pH neutre est réalisé.

Afin de mesurer l'épaisseur retirée lors de cette phase, un indenteur de type Berkovich de diagonale  $d = 26 \mu\text{m}$  est réalisé avec une charge de  $50 \text{ g}$  sur l'une des barres. La relation entre la diagonale  $d$  et la profondeur  $h$  est  $h = d/7$ . Les échantillons sont lestés d'un poids de  $100 \text{ g}$  et plongés dans  $250 \text{ mL}$  de solution et polis avec une amplitude de vibration de  $30\%$ . A différents moments du vibro-polissage, les diagonales de l'indenteur sont mesurées pour calculer la profondeur restante et ainsi suivre la perte d'épaisseur (Fig. 46). Cette étape a duré  $14$  heures pour une perte d'épaisseur de  $2.5 \mu\text{m}$ .

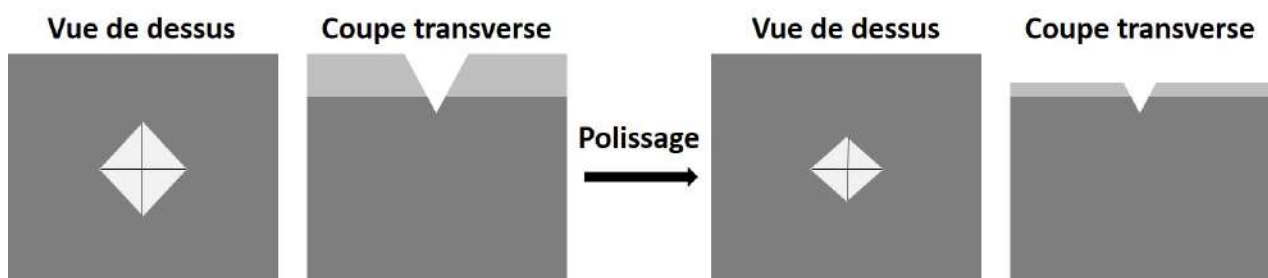


FIGURE 46. – Suivi de la perte d'épaisseur grâce aux dimensions de l'indenteur

### 1.3. Caractérisations microstructurales

Après les étapes de polissage mécanique et de vibro-polissage, la microstructure des échantillons est caractérisée au moyen d'une cartographie EBSD (Electron BackScattered Diffraction) (Fig. 47).



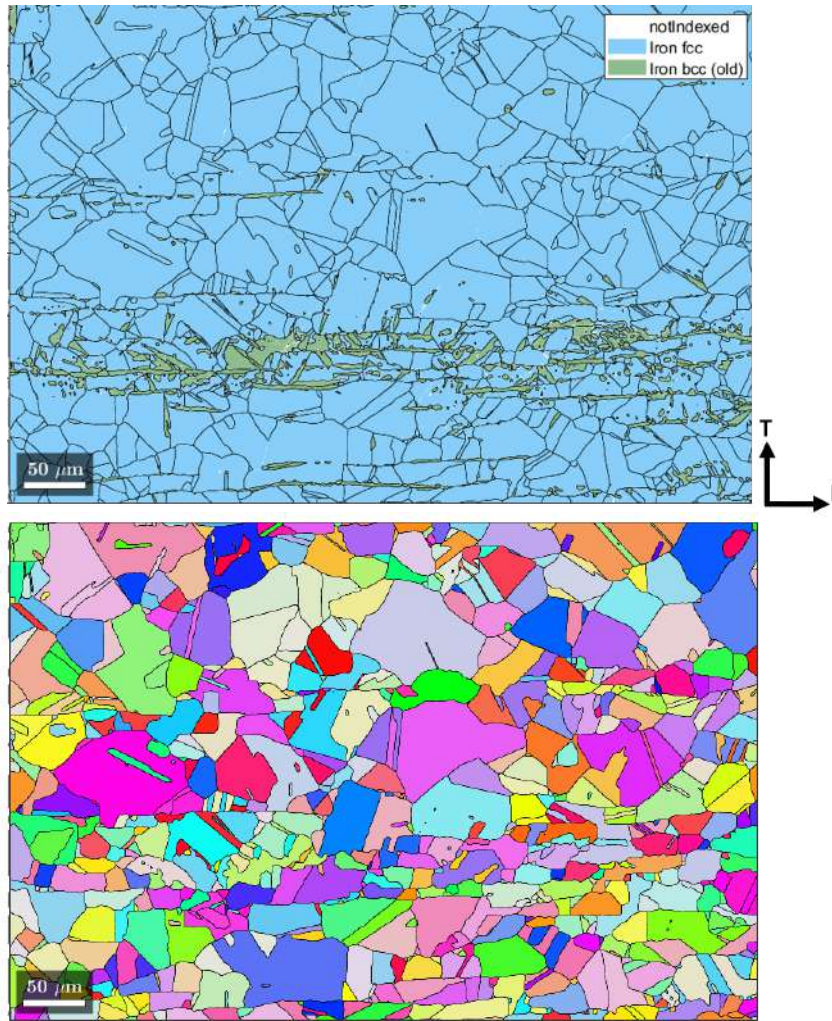


FIGURE 47. – Cartographies de phase et d'orientations de la microstructure de l'acier SA 304L GV20 obtenues par EBSD

Les cartographies EBSD ont été analysées à l'aide de l'outil MTEX [5] développé sous `Matlab`. La taille de grain est estimée à  $21\mu\text{m}$  pour la phase  $\gamma$  avec la méthode de diamètre équivalent. Cette valeur est cohérente avec celle déterminée dans les thèses de Gupta [2] ( $28\mu\text{m}$ ) et Paccou [3] ( $21\mu\text{m}$ ) sur la même nuance d'acier. La phase majoritaire identifiée est l'austénite (CFC) avec de la ferrite (CC) résiduelle (5%). Le taux de ferrite obtenu peut également être estimé grâce à la composition chimique. L'acier est assimilable à un alliage Fe-Ni-Cr mais les éléments minoritaires ont aussi un pouvoir  $\gamma$ -gène (stabilisent l'austénite  $\gamma$ ) ou  $\alpha$ -gène (stabilisent la ferrite). Afin de prendre en compte l'effet de ces éléments sur les phases en présence, les notions de pourcentages Cr équivalent ( $\%Cr_{eq}$ ) et Ni équivalent ( $\%Ni_{eq}$ ) ont été introduites. Schaeffler a proposé une formule pour calculer  $\%Cr_{eq}$  et  $\%Ni_{eq}$  ainsi qu'un diagramme pour déterminer le pourcentage de ferrite (Fig. 48). La formule de  $\%Ni_{eq}$  a été mise à jour par Delong qui a aussi proposé un nouveau diagramme pour augmenter l'effet de l'azote [6].

$$\%Cr_{eq} = \%Cr + \%Mo + 1,5\%Si + 0,5\%Nb \quad (20)$$

$$\%Ni_{eq} = \%Ni + 30\%C + 30\%N + 0,5\%Mn \quad (21)$$

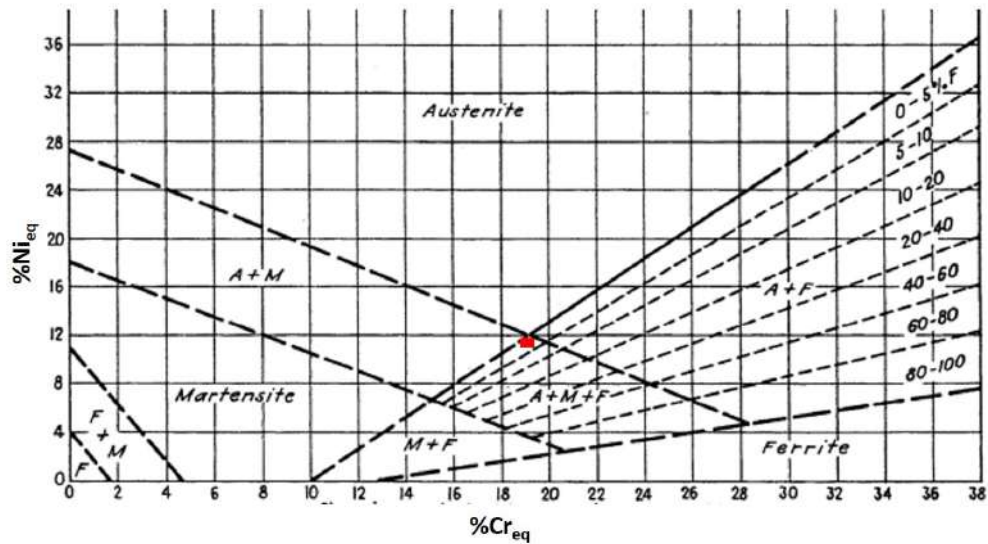


FIGURE 48. – Diagramme de Schaeffler [6]. Le point rouge correspond à l'acier SA304L GV20

Pour l'acier étudié, les valeurs de  $\%Cr_{eq}$  et  $\%Ni_{eq}$  sont respectivement de 19,5% et 11,6% ce qui donne un taux de ferrite entre 0% et 5%. Cela est en accord qualitatif avec la valeur obtenue dans l'analyse EBSD. À noter que la valeur obtenue par EBSD dépend de la face d'observation, comme le montre la Fig. 44.

La nature des joints de grains est aussi identifiée sur la Fig. 49 car c'est un facteur déterminant dans leur comportement en corrosion et donc dans la fissuration intergranulaire. 48% des joints présents sont de type  $\Sigma 3$  et les autres joints de grains spéciaux ( $\Sigma 5$ ,  $\Sigma 7$ ,  $\Sigma 9$ ) comptabilisent 12%. Les joints de grains généraux ne sont donc présents qu'à hauteur de 40%.

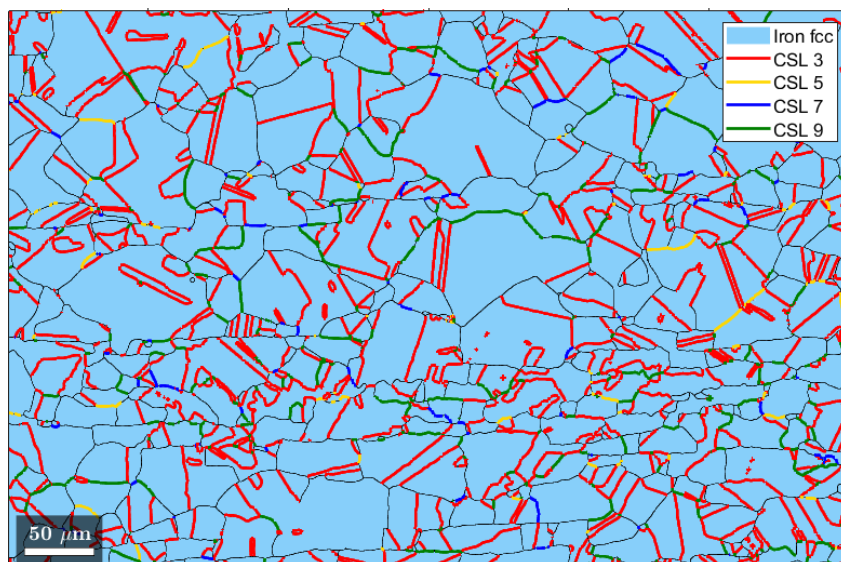


FIGURE 49. – Joints de grains spéciaux dans l'alliage 304L GV20

Sur la Fig. 50 le profil de désorientation des grains d'austénite - correspondant à l'angle entre deux orientations choisies aléatoirement sur la cartographie EBSD - est superposé au profil de Mackenzie [7] qui représente la distribution pour un matériau non texturé. La correspondance entre les deux profils indique que le matériau ne présente pas de texture cristallographique. Cela est confirmé par la figure de pôle avec un axe de zone 100 (Fig. 51).

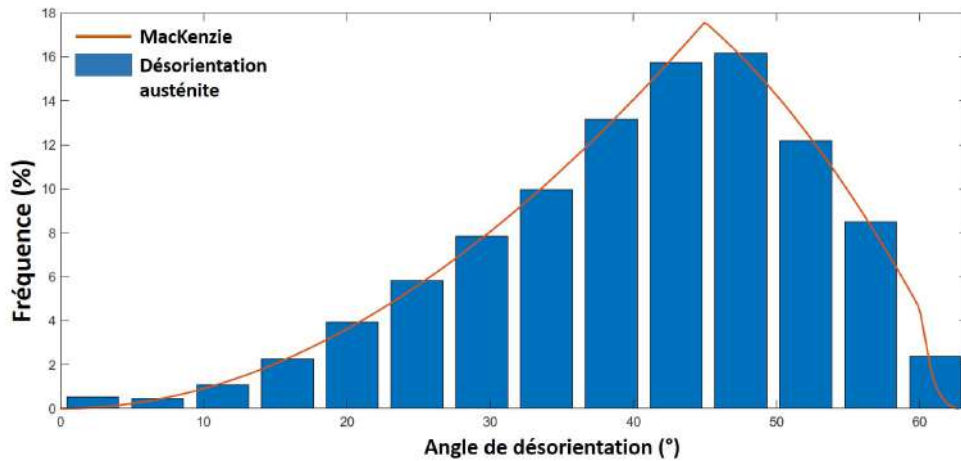


FIGURE 50. – Distribution des désorientations dans la phase austénitique et distribution théorique de Mackenzie

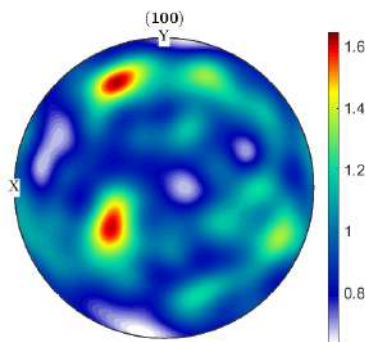


FIGURE 51. – Figure de pôle de l'acier 304L dans la direction  $\{100\}$

La microstructure a été analysée avec une détermination de la densité locale de dislocations par observations en Microscopie Electronique en Transmission (MET). Une lame mince obtenue par électropolissage est présentée sur la Fig. 52 et a été observée dans un MET JEOL 2010.

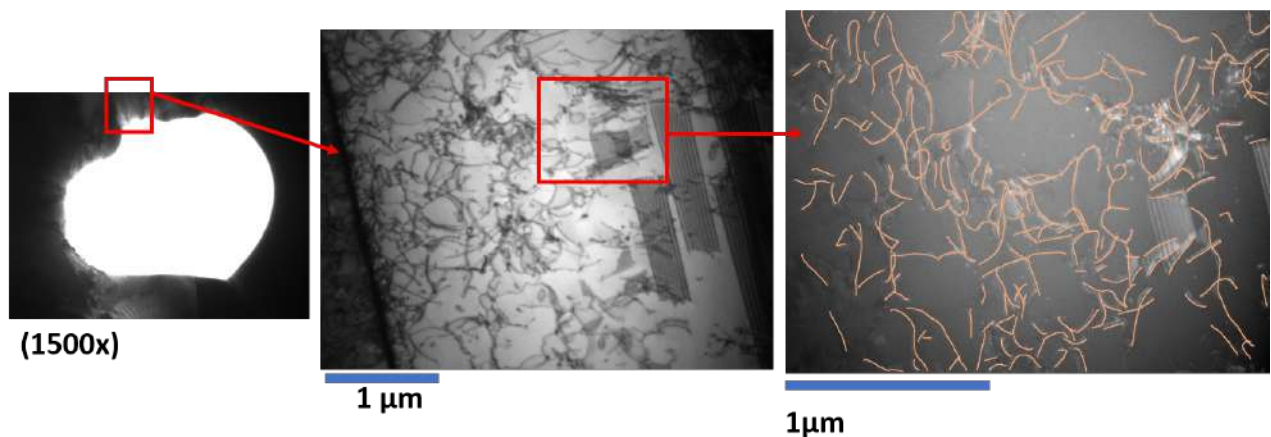


FIGURE 52. – Observations de la microstructure de l'acier 304L GV20 au MET

Les dimensions de la zone observée sont  $2.4\mu\text{m} \times 1.8\mu\text{m}$  pour une épaisseur moyenne de  $0.12\mu\text{m}$ , déterminée à l'aide des fautes d'empilement localement présentes dans la lame (Fig. 52). Les dislocations de cette zone ont été surlignées manuellement puis une longueur totale de  $46\mu\text{m}$  a été mesurée. Cela permet de déterminer une densité de dislocations de  $\rho_D = 9.10^{12}\text{m}^{-2}$ . Cette valeur sera mise en regard avec les résultats de compression des micro-piliers.



## 1.4. Propriétés mécaniques macroscopiques

Des essais de traction ont été réalisés sur l'alliage SA 304L GV20 dans les études précédentes [2, 3] sous air à température ambiante et à 340°C à l'état non irradié avec une vitesse de déformation de  $5.10^{-4}\text{s}^{-1}$ . Les courbes contrainte conventionnelle - déformation plastique conventionnelle sont rassemblées dans la Fig. 53. Le tableau 10 résume les propriétés de traction conventionnelles.

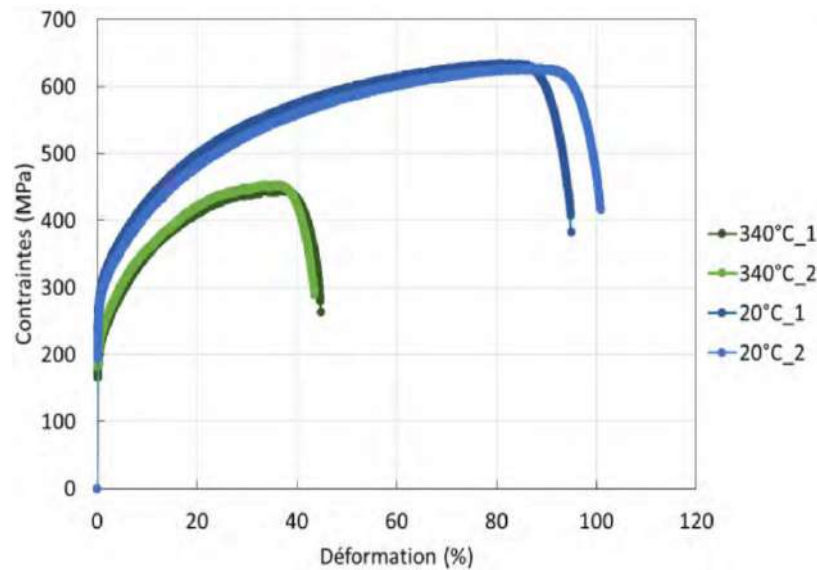


FIGURE 53. – Courbes de traction contrainte conventionnelle - déformation plastique conventionnelle de l'acier SA 304L GV20 à 20°C et 340°C [3]

Température de l'essai (°C)	$R_{p0.2}$ (MPa)	$R_m$ (MPa)	Allongement à rupture (%)
20	$261 \pm 3$	$631 \pm 10$	$98 \pm 3$
340	$200 \pm 5$	$451 \pm 5$	$44 \pm 2$

TABLEAU 10. – Propriétés mécaniques conventionnelles de l'acier SA 304L GV20 à 20°C et 340°C : Limite d'élasticité à 0.2% de déformation plastique  $R_{p0.2}$ , résistance mécanique en traction  $R_m$  et allongement à rupture

Les valeurs obtenues à 340°C sont proches de celles reportées classiquement pour un 304 hyper-trempé [8] dont la densité de dislocations est donnée autour de  $10^{10}\text{m}^{-2}$ . Cela semble indiquer que la valeur de  $9.10^{12}\text{m}^{-2}$  déterminée dans cette étude est élevée et est potentiellement affectée par un effet de prélèvement proche de la surface. Cependant, des valeurs de  $5.10^{13}\text{m}^{-2}$  et  $10^{14}\text{m}^{-2}$  ont été déterminées sur le même acier, respectivement, dans les études de Paccou [9] et Barrioz [10].

## 1.5. Irradiation

### 1.5.1. Choix des paramètres et réalisation de l'irradiation

Afin de quantifier les effets de l'irradiation sur l'acier étudié, une irradiation aux protons est réalisée. Comme expliqué dans l'étude bibliographique, les protons peuvent être utilisés pour simuler les dommages de l'irradiation aux neutrons [11]. Du fait des flux élevés accessibles dans les accélérateurs de particules, il est possible d'obtenir un fort dommage d'irradiation plus rapidement qu'avec les neutrons en minimisant l'activation de la matière. Cependant, afin d'obtenir des défauts d'irradiation similaires à ceux observés après une irradiation aux neutrons, une température d'irradiation plus élevée doit être choisie pour compenser l'effet de flux [12]. Compte-tenu des flux typiques de protons utilisés, une température de 340°C est utilisée pour simuler une irradiation aux neutrons à 290°C avec des flux

typiques observés en réacteurs de puissance [11]. Le choix de l'énergie des protons influe sur la profondeur d'irradiation (typiquement de  $10\mu\text{m}$  à  $40\mu\text{m}$  pour des énergies de 1MeV à 3MeV). Cependant, plus les protons sont énergétiques, plus ils peuvent conduire à des réactions nucléaires (de type (p,n), (p, $\gamma$ ) et (p, $\alpha$ )) générant des isotopes radioactifs. Un compromis est choisi avec une énergie de 2MeV.

Afin d'obtenir le lien entre la fluence des protons et le profil de dose, une simulation de l'irradiation est réalisée sur le logiciel IRADINA [13]. Ce logiciel permet de prédire la trajectoire des protons incidents dans la matière ainsi que les défauts ponctuels créés (paires de Frenkel) en utilisant l'approximation BCA (Binary Collision Approximation) résolue par une méthode Monte Carlo. Afin d'obtenir des évaluations de dose en dpa cohérentes avec ce qui est réalisé pour les irradiations aux neutrons, l'énergie de déplacement (énergie minimale pour déplacer un atome de son site cristallin) est fixée à 40eV, et l'endommagement est calculé par la méthode dite de Kinchin-Pease (KP) [14].

Le profil d'irradiation - dose d'irradiation en dpaKP en fonction de la profondeur - obtenu est présenté sur la Fig. 54 pour une fluence de  $2.27 \times 10^{19} \text{ H}^+ \cdot \text{cm}^{-2}$ .

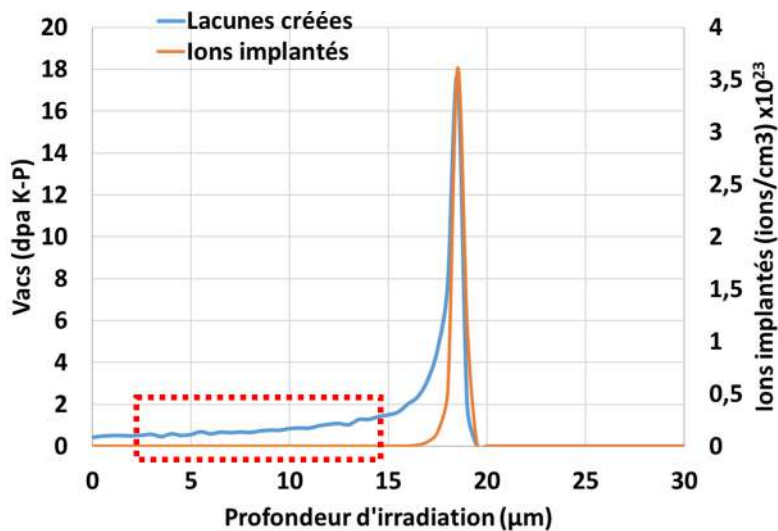


FIGURE 54. – Profil d'irradiation d'un acier de type 304 irradié aux protons 2MeV (Simulation IRADINA avec énergie de déplacement de 40eV et calcul de la dose par le modèle de Kinchin-Pease)

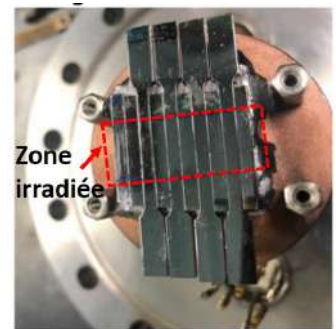


FIGURE 55. – Montage irradiation

Le profil d'irradiation comporte un quasi-plateau en surface (encadré en rouge sur la Fig. 54) correspondant à une dose de 1dpaKP, suivi d'un pic de dommage à l'endroit où les protons sont implantés dans la matière. Dans la suite, les caractérisations microstructurales et mécaniques seront donc réalisées dans la première partie correspondant à une dose d'irradiation quasi-constante, pas d'implantation et, compte-tenu de la taille, correspondant le plus souvent à un seul grain.

L'irradiation aux protons 2MeV a été réalisée au MIBL (Michigan Ion Beam Laboratory) à  $340^\circ\text{C}$  avec une dose visée de 1dpaKP (soit  $2.27 \times 10^{19} \text{ H}^+ \cdot \text{cm}^{-2}$ ). Les barres et éprouvettes sont montées sur un support en cuivre chauffé (Fig. 55). Une couche d'indium est placée sous les échantillons pour assurer le contact thermique. Un contrôle de la température - mesurée à l'aide de thermocouples et d'un système de type caméra thermique - de  $\pm 10^\circ\text{C}$  est obtenu. L'irradiation a duré 52h. À noter enfin que chaque échantillon n'est irradié que sur une portion de sa longueur utile, ce qui permet de s'affranchir de l'effet de prélèvement pour les caractérisations ultérieures de l'effet de l'irradiation.

### 1.5.2. Caractérisations microstructurales post-irradiation

Après irradiation, des caractérisations ont été réalisées afin de vérifier la bonne réalisation de l'irradiation.

## Dureté

Un profil de dureté Vickers a été réalisé afin d'identifier la frontière entre la zone non irradiée et irradiée sur une barre irradiée. Cela permet de quantifier l'augmentation de la dureté suite à l'irradiation. Une charge de 100g a été choisie afin de limiter la taille de la zone plastique induite par l'indentation - typiquement 5 fois la profondeur d'indentation - à la profondeur de la zone irradiée et ainsi de ne caractériser que celle-ci. Le profil de dureté de  $HV_{0.1}$  est présenté sur la Fig. 56.

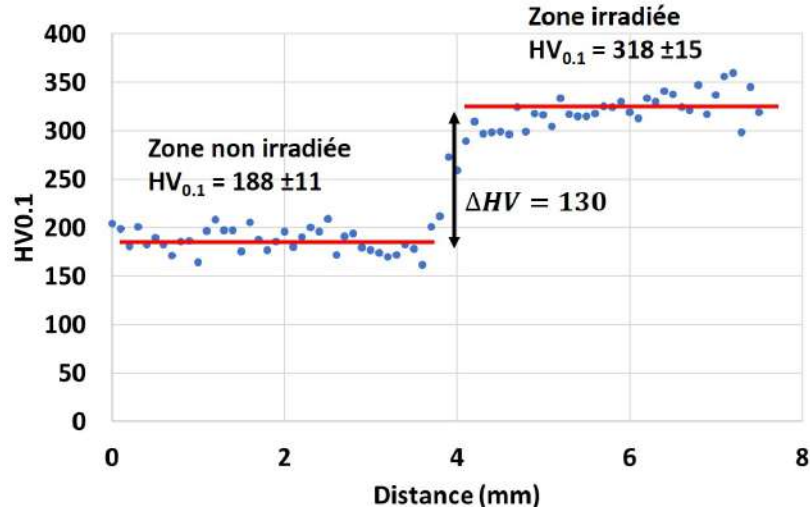


FIGURE 56. – Profil de dureté en surface d'une barre irradiée aux protons. La zone de transition entre la surface irradiée et non irradiée est visible par un saut de dureté

	Dureté ( $HV_{0.1}$ )	$\Delta HV$ ( $HV_{0.1}$ )	$\Delta \sigma_y$ (MPa)	$\sigma_y$ (MPa)
Non irradié	188 ± 11			261 ± 3
Irradié 1dpaKP	318 ± 15	130	394	655 ± 15

TABLEAU 11. – Évaluation du durcissement induit par l'irradiation. La valeur de  $\sigma_y$  à l'état non irradié est prise égale à celle de  $Rp_{0.2}$  reportée dans le tableau 10.

Dans sa thèse, Gupta [2] obtient une augmentation de dureté plus importante de  $\Delta HV = 242 HV$  sur le même acier irradié 1dpaKP aux protons. Cependant ces résultats proviennent d'essais de nanoindentation - qui sollicitent moins de matière - tandis que les essais de dureté de l'étude sont faits au microduromètre. La variation de dureté peut être convertie en variation de limite d'élasticité grâce à la formule  $\Delta \sigma_y = 3.03 \Delta HV$  [15], ce qui conduit aux résultats présentés dans le tableau 11. Cette valeur de variation de limite d'élasticité  $\Delta \sigma_y$  est similaire à celle obtenue par Pokor et al. [16] sur des aciers 304L/316L irradiés aux neutrons pour des doses inférieures à 10dpa.

## Défauts d'irradiation

Dans la thèse de Gupta [2], la même nuance d'acier 304L a été irradiée aux protons dans les mêmes conditions, aboutissant aussi à un dommage de 1dpaKP. Les observations au MET des échantillons ont abouti aux caractéristiques de boucles de Frank présentées dans le tableau 12.

Densité des boucles de Frank ( $m^{-3}$ )	Taille des boucles de Frank (nm)
$1.5 \pm 0.6 \cdot 10^{22}$	$13.6 \pm 4.4$

TABLEAU 12. – Densité et taille des boucles de Frank après irradiation 1dpaKP aux protons

Les échantillons d'acier SA 304L GV20 à l'état non irradié et irradié protons 1dpaKP sont ensuite utilisés pour caractériser le comportement intragranulaire.

## 2. Quantification des propriétés mécaniques intragranulaires

Comme expliqué dans la revue bibliographique, les essais de compression sur micro-piliers apparaissent comme un compromis entre leur relative facilité de mise en oeuvre et les propriétés mécaniques intragranulaires auxquelles ils donnent accès. Cette technique, utilisée dans ce chapitre, présente aussi des inconvénients qui seront discutés.

### 2.1. Protocole d'usinage des micro-piliers

Avant l'usinage des piliers aux ions, une cartographie EBSD (Fig.57) est réalisée afin de repérer les grains et leurs orientations cristallographiques. Cela permet de décider de l'axe de compression des futurs piliers. Une fois les grains repérés, les piliers sont usinés à l'intérieur du grain (Fig.57) par abrasion annulaire au MEB-FIB suivant différents protocoles selon le diamètre final souhaité.

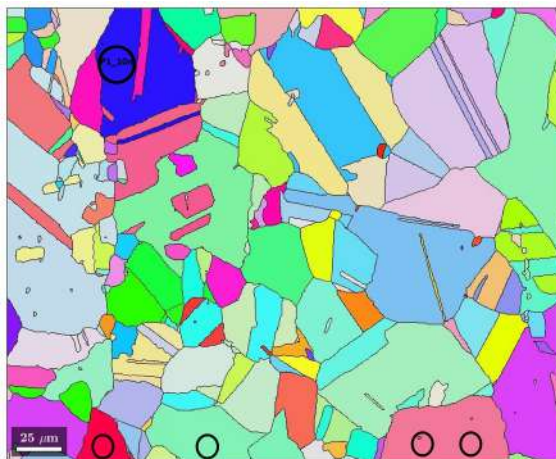


FIGURE 57. – Cartographie EBSD utilisée pour choisir la localisation des piliers (cercles noirs)

Des essais préliminaires réalisés sur des piliers usinés au milieu de l'échantillon n'ont pas conduit à des résultats exploitables du fait de difficultés de visualisation. Par la suite, afin d'améliorer la visualisation des piliers durant l'essai sans incliner le dispositif expérimental, les piliers ont été usinés au bord de l'échantillon comme montré sur la Fig. 58.

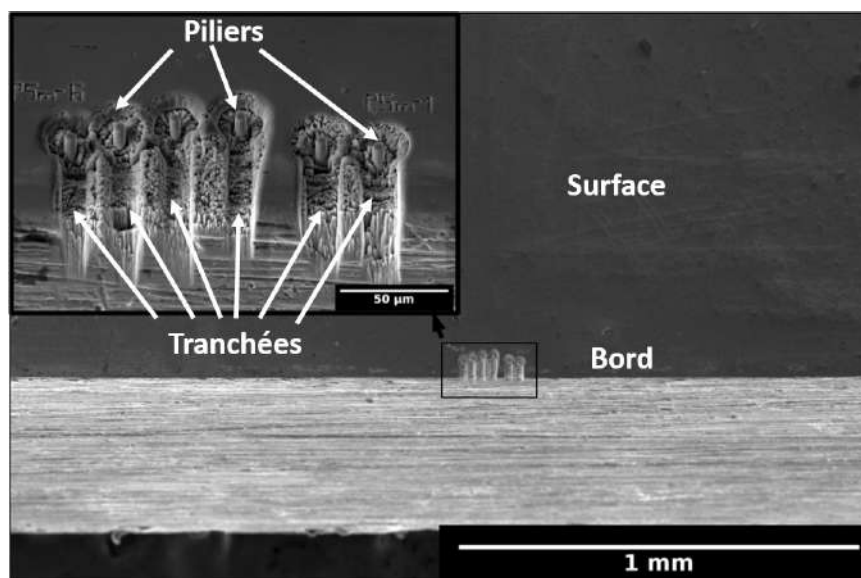


FIGURE 58. – Localisation des piliers au bord de l'échantillon

L'usinage ne se fait cependant pas à l'extrême bord affecté par l'usinage des échantillons et des tranchées ont été creusées à fort courant (47nA) pour dégager la vue des piliers.

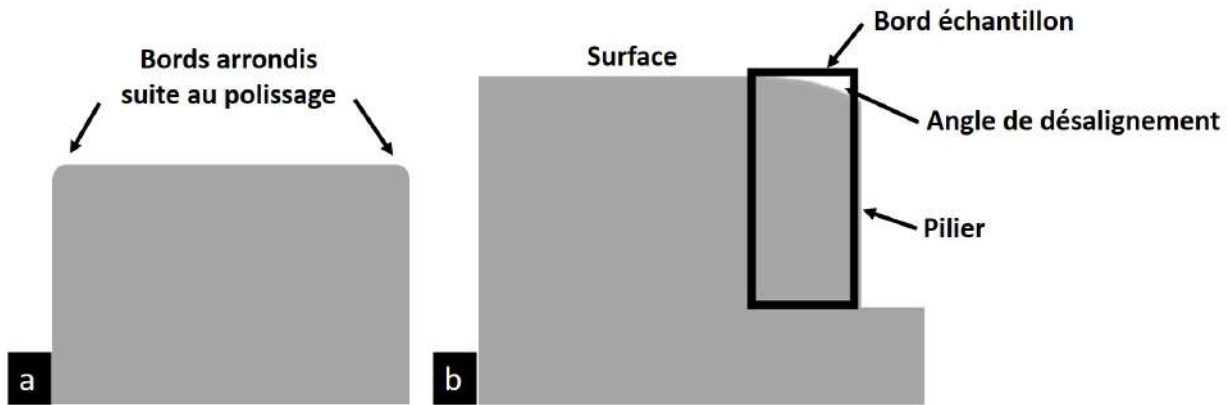


FIGURE 59. – Vue en section transverse de la barre polie. a) Bords de l'échantillon arrondis suite au polissage et b) usinage du pilier au bord introduisant un angle à la surface du pilier

Pour éviter la déposition de matière sur le pilier durant cette étape, un courant de 2.5nA est utilisé pour creuser à l'approche du pilier (à partir de  $2\mu\text{m}$  de distance). Afin d'éviter des artefacts dans la déformation du pilier, une surface d'appui au niveau du pilier la plus parallèle possible à l'indenteur est essentielle. Cependant, les piliers ayant été usinés entre 20 et  $50\mu\text{m}$  du bord de l'échantillon comme montré sur la Fig. 58, il est possible que l'effet de bord induit par le polissage n'ait pas complètement disparu et soit systématiquement présent dans tous les piliers. En effet, les bords de la surface polie ne sont pas droits mais arrondis comme montré sur la Fig. 59a. Il est possible que même en usinant les piliers à une distance de minimum  $20\mu\text{m}$  du bord, le haut des piliers usinés soit susceptible de ne pas être une surface plane comme présenté sur la Fig. 59b. L'effet de cet angle sera discuté dans la suite dans la partie consacrée aux simulations numériques.

Le diamètre des piliers est choisi de telle sorte à compléter les données obtenues dans la thèse de Paccou [3] sur des piliers de 0.5 à  $3\mu\text{m}$ . Les protocoles d'usinage sont présentés dans le tableau 13 pour les piliers de 3, 5 et  $10\mu\text{m}$ . De forts courants (65nA et 47nA) sont utilisés pour dégager assez d'espace autour du futur pilier. La taille de ce cratère doit permettre la compression du pilier par un indenteur conique à bout plat (diamètre en tête : 10 microns) sans que celui-ci ne touche les bords du cratère. Ensuite des courants plus faibles (21nA et 9nA) sont mis en œuvre pour fabriquer une ébauche du pilier dont la finition est faite à un courant de 0.8nA. Cette démarche étant chronophage pour les piliers de  $10\mu\text{m}$  (environ 8 heures par pilier), un autre procédé d'usinage a été testé consistant à fabriquer des ébauches de  $25\mu\text{m}$  et creuser un cratère assez large pour l'indenteur par ablation laser (Société Femto-Engineering à Besançon)(Fig.60) avant de finir l'usinage au FIB comme détaillé dans le tableau 13. Cela permet de diviser presque par deux le temps d'usinage. Cependant, l'état de surface du haut du pilier peut être dégradé par la présence de débris issus de l'usinage par laser femtoseconde.

Pilier $3\mu\text{m}$		Pilier $5\mu\text{m}$		Pilier $10\mu\text{m}$	
Courant d'usinage (nA)	Diamètre ( $\mu\text{m}$ )	Courant d'usinage (nA)	Diamètre ( $\mu\text{m}$ )	Courant d'usinage (nA)	Diamètre ( $\mu\text{m}$ )
65	25	65	25	65	25
47	25 $\rightarrow$ 20	47	25 $\rightarrow$ 20	47	25 $\rightarrow$ 20
21	20 $\rightarrow$ 18	21	20 $\rightarrow$ 18	21	20 $\rightarrow$ 18
9	18 $\rightarrow$ 8	9	18 $\rightarrow$ 10	9	18 $\rightarrow$ 13
2.5	8 $\rightarrow$ 5	2.5	10 $\rightarrow$ 7	2.5	13 $\rightarrow$ 11
0.8	5 $\rightarrow$ 3	0.8	7 $\rightarrow$ 5	0.8	11 $\rightarrow$ 10

TABLEAU 13. – Procédures d'usinage des piliers de 3, 5 et  $10\mu\text{m}$  de diamètre au MEB-FIB



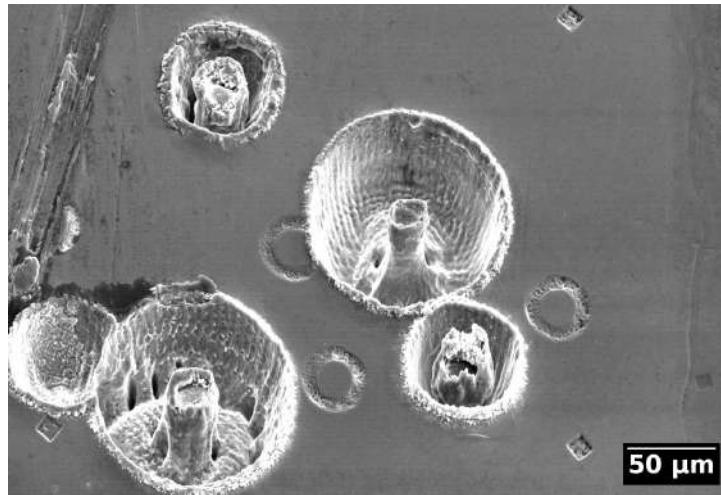
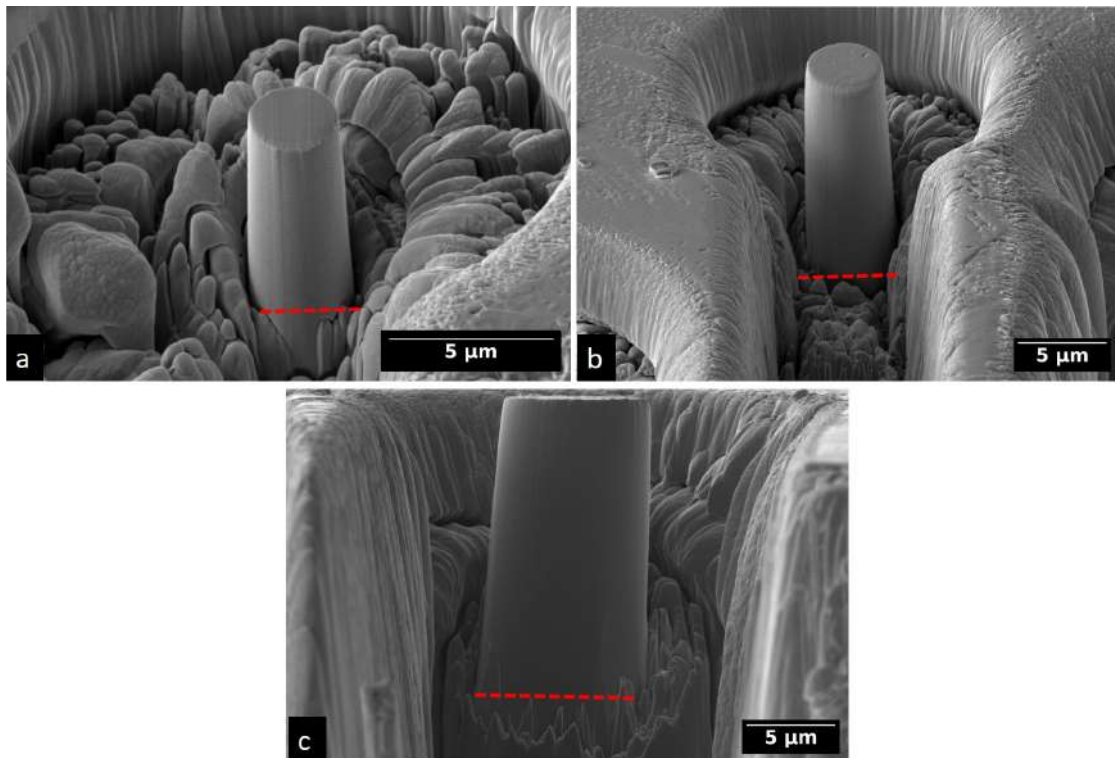


FIGURE 60. – Pré-formes de piliers usinés au laser

Pour les piliers de 3, 5 et 10  $\mu\text{m}$  de diamètre, les hauteurs visées sont respectivement de 6, 10 et 20  $\mu\text{m}$  afin d'obtenir un facteur de forme de l'ordre de 2 préconisé dans la littérature. De plus, pour les piliers de 10  $\mu\text{m}$ , la hauteur est contrainte par la taille de grains du matériau (estimée à 21  $\mu\text{m}$ ) afin d'obtenir, si possible, des piliers monocristallins.

Au total, 34 piliers ont été usinés pour cette étude. Les caractéristiques géométriques de l'ensemble des piliers usinés sont rassemblées dans le tableau 14. La Fig. 61 montre la forme typique des piliers obtenus. Avec un courant d'usinage final de 0.79 nA, la surface du pilier est assez lisse même si des artefacts d'usinage peuvent rester sous forme de rainures verticales. La détermination de la hauteur de pilier est compliquée puisque la transition entre le pilier et la base n'est pas forcément bien marquée. La base est prise comme montré sur la Fig. 61, dès que l'état de surface du pilier est moins lisse.

FIGURE 61. – Piliers usinés au FIB de a) 3, b) 5 et c) 10  $\mu\text{m}$  de diamètre avec la hauteur du pilier délimitée par la ligne rouge en pointillés

Le diamètre en haut du pilier est plus faible que celui à la base, l'angle du pilier obtenu variant entre  $0.5$  et  $3^\circ$  du fait de la forme gaussienne du faisceau d'ions. Par ailleurs, il faut noter que la question du caractère monocristallin des piliers se pose, notamment pour les plus volumineux puisque les hauteurs sont alors du même ordre de grandeur que la taille de grain. Il peut être possible de détecter la présence d'un joint de grains avec l'imagerie ionique mais aucun n'a été identifié à l'étape de fabrication. De plus, la présence d'un joint de grains peut aussi être révélée pendant ou après les essais grâce aux lignes de glissement qui seraient discontinues sur un joint. Cela n'a pas été observé non plus.

Pour le matériau à l'état irradié, les piliers sont usinés avec le même protocole qu'à l'état non irradié, les piliers étant orientés parallèlement à la profondeur d'irradiation (Fig. 62).

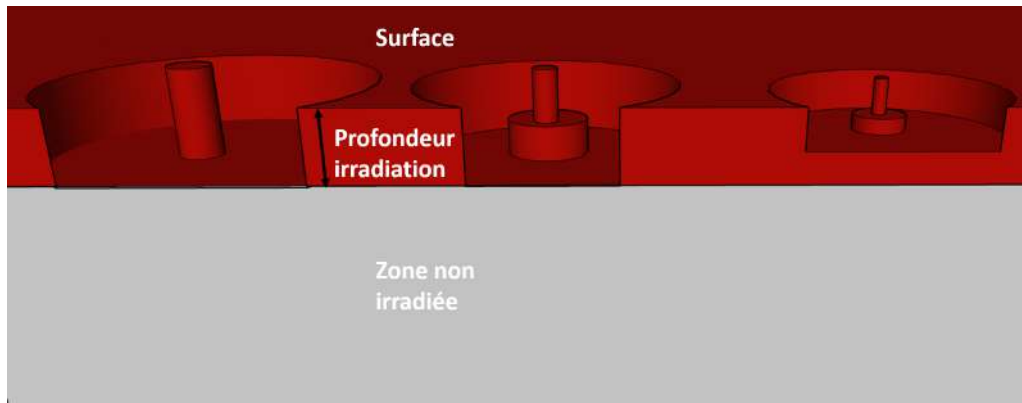


FIGURE 62. – Localisation des micro-piliers irradiés par rapport à la couche irradiée

La profondeur de la zone sur laquelle la dose d'irradiation est relativement constante étant de  $10-15\mu\text{m}$ , il est possible d'usiner des piliers qui ont un diamètre pouvant atteindre  $5\mu\text{m}$  avec un élancement de l'ordre de 2. D'autre part, à cause de la conicité du pilier, la déformation plastique est souvent concentrée dans le haut du pilier. Dans cette étude, nous avons cependant essayé de conserver un rapport d'aspect de l'ordre de 2, comme cela est souvent préconisé [17, 18].

Dénomination	Dose (dpa)	Diamètre minimal ( $\mu\text{m}$ )	Hauteur ( $\mu\text{m}$ )	Angle du pilier ( $^\circ$ )	Orientation	Système(s) de glissement	Facteur de Schmid (SF)
P3m-304NI-1	0	3.3	6.3	3.0	[7 0 9]	[0 1 -1](1 1 1) [0 1 1](1 -1 1)	0.45 0.45
P3m-304NI-2		3.1	7.3	2.0	[10 1 10]	[1 1 0](1 -1 1) [0 1 1](1 -1 1)	0.42 0.42
P3m-304NI-3		3.3	7.0	3.5	[1 5 9]	[0 1 -1](1 1 1) [0 1 1](1 -1 1)	0.47 0.47
P3m-304NI-4		3.0	6.7	3.0	[1 5 9]	[1 0 1](-1 1 1)	0.5
P3m-304NI-5		2.5	7.0	2.5	[4 1 4]	[1 1 0](1 -1 1) [0 1 1](1 -1 1)	0.43 0.43
P3m-304NI-6		3.4	7.6	3.6	[1 2 12]	[1 0 1](-1 1 1) [-1 0 1](1 1 1)	0.46 0.45
P3m-304NI-7		3.2	7.3	2.0	[5 2 12]	[0 1 1](1 -1 1)	0.5
P3m-304NI-8		3.2	6.8	3.4	[1 10 12]	[1 0 1](-1 1 1)	0.45
P3m-304NI-9		3.4	9.4	2.2	[2 4 9]	[1 0 1](-1 1 1)	0.49
P3m-304NI-10		2.9	6.8	1.5	[1 7 11]	[1 0 1](-1 1 1)	0.49
P3m-304NI-11		3.8	6.6	4.0	[1 6 12]	[1 0 1](-1 1 1)	0.49
P3m-304NI-12		3.4	6.7	1.0	[9 7 11]	[0 1 1](1 -1 1)	0.38
P3m-304NI-13		3.1	6.6	3.0	[1 3 11]	[1 0 1](-1 1 1)	0.49
P5m-304NI-1*	4.6	12.5	2.0	[10 2 11]	[0 1 1](1 -1 1)	0.45	
P5m-304NI-2*	4.6	14.2	2.5	[10 2 11]	[0 1 1](1 -1 1)	0.45	
P5m-304NI-3	4.5	10.8	2.3	[2 1 11]	[0 1 1](1 -1 1)	0.47	
P5m-304NI-4	5.2	11	1.8	[1 0 8]	[0 1 -1](1 1 1) [0 1 1](1 -1 1)	0.45 0.45	
P5m-304NI-5	5.3	13.4	0.7	[1 2 4]	[1 0 1](-1 1 1)	0.48	
P10m-304NI-1	10.0	20.0	0.5	[5 8 10]	[1 0 1](-1 1 1)	0.42	
P10m-304NI-2	10.6	22.0	2.2	[1 6 11]	[1 0 1](-1 1 1)	0.5	
P10m-304NI-3	8.0	19.0	1.0	[4 5 8]	[1 0 1](-1 1 1)	0.42	
P10m-304NI-4	9.0	18.5	2.0	[4 2 9]	[0 1 1](1 -1 1)	0.49	
P3m-304IRR-1	1	2.9	5.8	3.2	[4 3 11]	[0 1 1](1 -1 1) [1 0 1](-1 1 1)	0.47 0.42
P3m-304IRR-2		2.6	5.4	1.6	[4 2 9]	[0 1 1](1 -1 1) [0 1 -1](1 1 1)	0.49 0.42
P3m-304IRR-3		2.4	7.0	2.0	[3 5 10]	[1 0 1](-1 1 1)	0.47
P5m-304IRR-1		5.2	9.8	3.6	[4 3 12]	[0 1 1](-1 1 1)	0.47
P5m-304IRR-2		4.6	10.0	3.0	[1 2 12]	[1 0 1](-1 1 1) [-1 0 1](-1 1 1)	0.46 0.45
P5m-304IRR-3		5.3	10.5	2.0	[7 3 11]	[0 1 -1](1 1 1)	0.48
P5m-304IRR-4		5.4	10.2	1.0	[4 1 8]	[0 1 1](1 -1 1)	0.5
P5m-304IRR-5		5.3	8.9	3.0	[3 2 3]	[1 1 0](1 -1 1) [0 1 1](1 -1 1)	0.37 0.37
P5m-304IRR-6*		5.4	10.3	2.5	[1 0 2]	[0 1 -1](1 1 1) [0 1 1](1 -1 1)	0.49 0.49
P5m-304IRR-7*		4.9	12	3.0	[1 0 2]	[0 1 -1](1 1 1) [0 1 1](1 -1 1)	0.49 0.49
P5m-304IRR-8*		5.5	11.7	3.0	[2 3 4]	[1 0 1](-1 1 1)	0.42
P5m-304IRR-9*		5.4	11.3	2.5	[2 3 4]	[1 0 1](-1 1 1)	0.42

TABLEAU 14. – Caractéristiques des piliers usinés sur l'acier SA 304L GV20 non irradié (NI) et irradié (IRR) 1 dpaKP (\* piliers usinés dans un même grain)

Grâce à la cartographie EBSD réalisée avant l'usinage, l'orientation de l'axe du pilier dans le repère cristallin est connue et indiquée dans le tableau 14. Cette orientation cristallographique du pilier est utilisée pour déterminer les facteurs de Schmid des 12 systèmes de glissement d'un matériau CFC et prédire les systèmes de glissement actifs en sollicitation uniaxiale. Les valeurs maximales des facteurs de Schmid qui permettent d'identifier les premiers systèmes qui seront activés ainsi que les systèmes de glissement associés sont indiqués dans le tableau 14. La variété des orientations permet d'avoir du glissement simple et double dans les piliers.

## 2.2. Description des essais de micro-compression

Les essais de compression de micro-piliers in-situ sont réalisés au CEMES-CNRS dans un MEB-FEG FEI Hélios à l'aide du nanoindenteur FT-NMT04 présenté sur la Fig. 63. Le nanoindenteur comprend une plateforme permettant un déplacement bi-dimensionnel de l'échantillon, un système piézoélectrique linéaire et une cellule de force au bout de laquelle se trouve l'indenteur (Fig. 64).

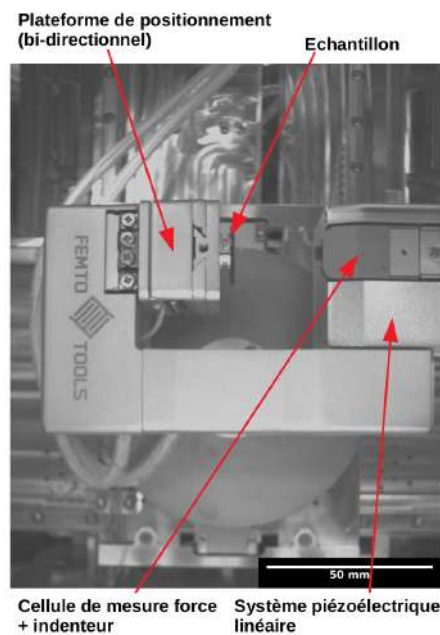


FIGURE 63. – Dispositif d'essais micro-mécaniques

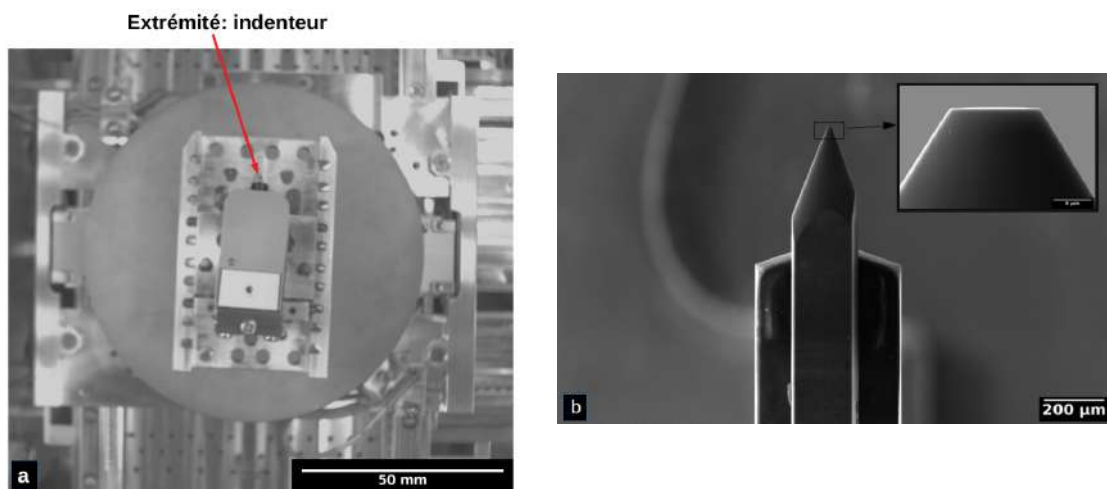


FIGURE 64. – a) Cellule de mesure de force et b) indenteur en diamant à bout plat pour essai de micro-compression

Les caractéristiques de ces éléments sont données dans le tableau 15.

	Déplacement plateforme échantillon	Déplacement Piézo	Cellule de force
Amplitude	1mm	1mm	200mN
Incertitude	$\pm 1\text{nm}$	$\pm 1\text{nm}$	$\pm 0.5\text{nN}$

TABLEAU 15. – Caractéristiques du nanoindenteur et de la cellule de force utilisés pour les essais sur micro-piliers

L'ensemble du dispositif est monté dans le MEB-FIB de façon à ce que l'échantillon à indenter soit perpendiculaire à la vue en imagerie électronique. Il peut ensuite être incliné de 10 à 15° pour que la surface des piliers soit discernable. Le dispositif est piloté par un logiciel fourni par le constructeur. Ce logiciel permet de déplacer le système piézoélectrique linéaire sur lequel est fixé l'indenteur. La plateforme portant l'échantillon peut être déplacée dans les deux directions perpendiculaires à l'axe de l'indentation grâce au logiciel afin de pouvoir choisir la zone sollicitée par l'indenteur. Cet alignement est réalisé dans le MEB-FIB par mises au point successives de l'image sur l'indenteur et l'échantillon. La hauteur  $Z$  de ce dernier est corrigée jusqu'à ce que la zone à indenter et la pointe de l'indenteur se retrouvent à la même hauteur. Enfin le logiciel sert aussi à fixer les paramètres de l'essai (vitesse d'indentation, déplacement maximal etc.)

Le système a été calibré à l'aide d'une série de neuf essais de nanoindentation sur un matériau dont la dureté est connue, ici de la silice (matériau isotrope). C'est aussi l'occasion de vérifier les valeurs d'incertitude sur la force et le déplacement, qui sont les mêmes que celles prévues par le constructeur dans le tableau 15. Cette calibration permet aussi de mesurer la raideur du système  $R$ . Le déplacement mesuré est ensuite corrigé en retirant celui du système grâce à la raideur du système d'essai. En effet un essai de nanoindentation est réalisé pour déterminer la raideur (ratio entre la variation de force  $F$  appliquée et le déplacement  $d$ ) :

$$R = \frac{\Delta F}{\Delta d} = 100000\text{N/m} \quad (22)$$

Le déplacement mesuré est ensuite corrigé par l'opération :

$$d_{corr} = d_{mesure} - (F/R) \quad (23)$$

Le ratio  $F/R$  est négligeable par rapport au déplacement mesuré pour les faibles niveaux de charge mais devient plus important lorsque la force augmente.

Une fois le dispositif calibré, des essais de micro-compression sont réalisés à température ambiante. Le chargement uniaxial est appliqué à 10nm/s en "displacement control mode" sur le haut du pilier à l'aide de l'indenteur en diamant à bout plat de 10 $\mu\text{m}$  de diamètre comme montré sur la Fig. 65. Un déplacement maximal équivalent à 40% la hauteur du pilier est donné en consigne.

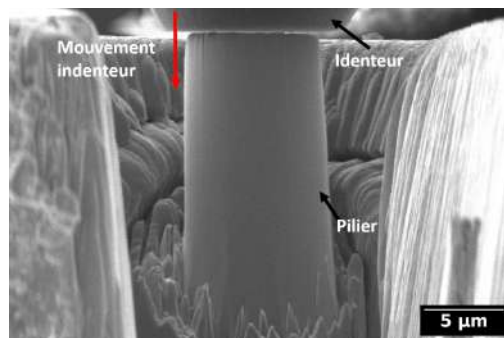


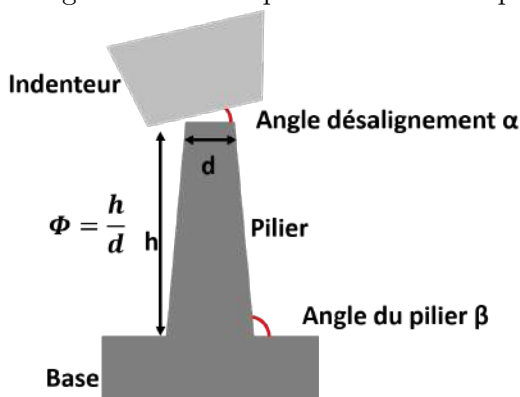
FIGURE 65. – Visualisation des différents éléments au début de l'essai de compression

Un certain nombre de paramètres expérimentaux sont de nature à influencer le résultat de ce type d'essai, comme par exemple l'alignement de l'indenteur avec le pilier, la nature du contact entre les deux, les caractéristiques géométriques du pilier (élancement, angle). Une étude de sensibilité est donc effectuée à l'aide de simulations éléments finis afin d'évaluer l'effet de ces paramètres expérimentaux sur les résultats obtenus.

### 2.3. Etude de sensibilité des essais de micro-compression

Des simulations éléments finis des essais de compression de micro-piliers sont réalisées dans cette partie afin d'étudier la sensibilité des résultats aux paramètres des essais. Ce type de simulations a déjà été mis en œuvre par Raabe et al. [17] ou encore Soler et al. [19] qui ont étudié l'effet du facteur de forme, l'orientation cristallographique, le désalignement et le coefficient de frottement sur des micro-piliers de Cu et LiF en utilisant des lois de comportement de plasticité cristalline. Dans cette étude, la même méthodologie est appliquée à l'acier 304L.

Les paramètres considérés pour cette étude sur les micro-piliers en 304L, représentés sur la Fig. 66, sont l'angle de désalignement  $\alpha$  entre le haut du pilier et l'indenteur, le facteur de forme du pilier  $\phi$  et l'angle du pilier  $\beta$ . De plus, le contact entre l'indenteur et le pilier est modélisé sans ou avec frottement. Comme détaillé dans la suite, l'analyse porte sur l'effet de ces paramètres sur la pente d'élasticité  $E$ , la cission résolue critique  $\tau_{0,2}$  ainsi que la pente d'écrouissage moyenne  $H$  (Tab. 16). Les plages des paramètres considérés ont été choisies à partir des observations expérimentales. A noter que le désalignement considéré ici est celui de l'indenteur représenté par l'angle  $\alpha$  et non le désalignement induit par l'effet de bord présenté dans la section 2.1 mais y est tout de même assimilé.



Plage des paramètres	Propriétés étudiées
$\alpha$ [0-3.5°]	Pente d'élasticité $E$
$\beta$ [1-3.5°]	Cission critique résolue $\tau_{0,2}$
$\Phi$ [1.5-3.5]	Pente d'écrouissage $H$

TABLEAU 16. – Plages des paramètres et propriétés étudiées

FIGURE 66. – Paramètres des piliers étudiés

Il est à noter qu'il existe d'autres types de désalignements qui ne sont pas visibles expérimentalement depuis le point d'observation comme montré sur la Fig. 67.

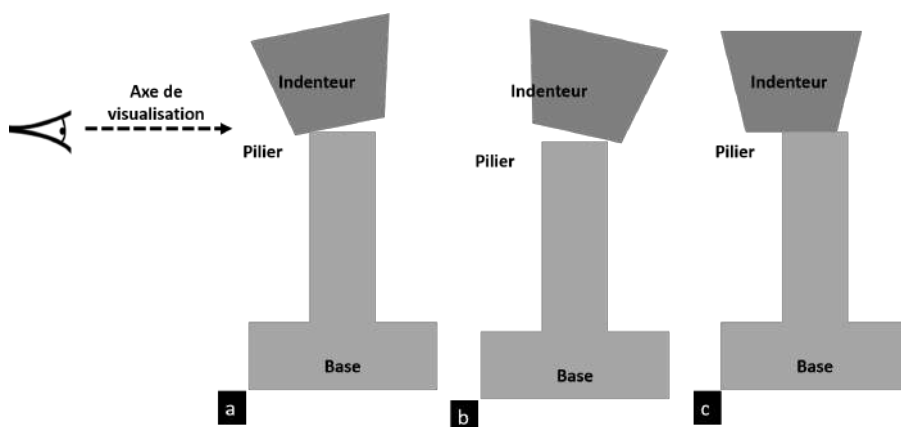


FIGURE 67. – Désalignement non visible depuis le point d'observation dans les cas a) et b) avec un angle entre le pilier et l'indenteur et b) avec le pilier et l'indenteur parallèles



Les deux premiers cas correspondent néanmoins à ce qui est considéré dans les simulations. Le troisième cas n'est pas pris en compte. Il pourrait être possible de visualiser ces désalignements en regardant l'essai depuis plusieurs points de vue. Cela pourrait peut-être être réalisé en utilisant des modules complémentaires de rotation du dispositif si la position des piliers le permet.

### 2.3.1. Mise en données

#### Maillage

La géométrie (pilier + base) a été maillée avec des éléments hexaédriques quadratiques à intégration complète. La convergence des résultats des simulations - détaillés ci-dessous - par rapport à la densité du maillage a été étudiée. Les deux maillages présentés sur la Fig. 68 (maillage initial de 864 éléments et maillage raffiné de 2048 éléments) conduisent à des différences négligeables sur les courbes force - déplacement (Fig. 68). Le maillage initial est donc utilisé dans la suite.

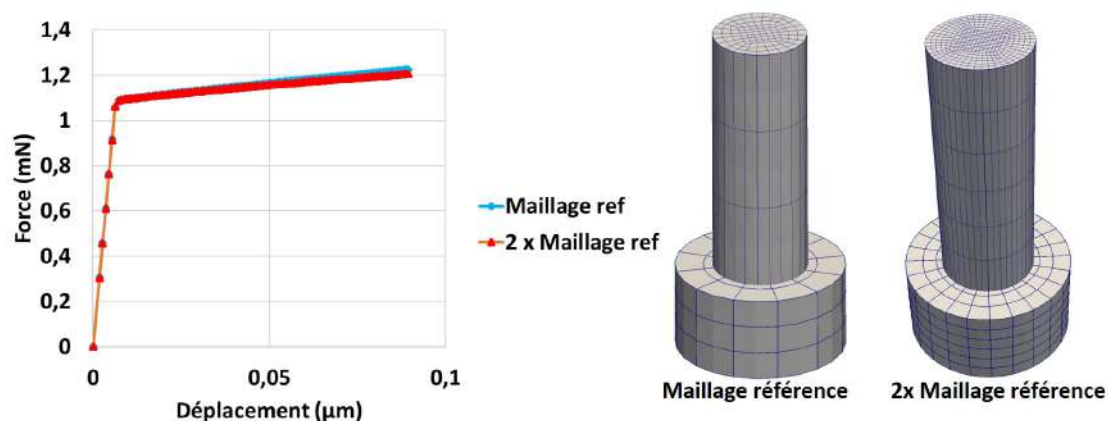


FIGURE 68. – Convergence en maillage du pilier monocristallin

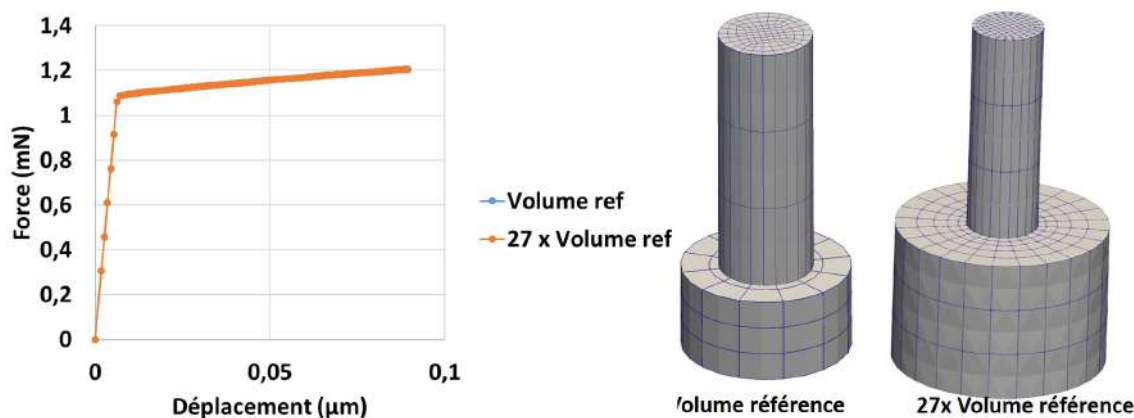


FIGURE 69. – Convergence des résultats sur la taille du support du pilier monocristallin

Pour s'assurer que les dimensions de la base retenues (rayon et épaisseur) n'influencent pas les résultats des simulations, une seconde étude de convergence est réalisée. Par rapport à la Fig. 68, le rayon et la hauteur de la base ont été multipliés par un facteur 3 sans observer d'influence sur la courbe force - déplacement (Fig. 69).

#### Loi de comportement

La loi de comportement de plasticité cristalline proposée dans [20] est utilisée pour modéliser le comportement monocristallin des aciers austénitiques inoxydables. Cette loi est issue des travaux présentés dans [8, 21]. Le formalisme, proche de celui décrit dans [22], est décrit ci-dessous dans

l'hypothèse des petites perturbations. Le comportement élastique est décrit par la loi de Hooke avec une élasticité cubique définie par les trois coefficients  $C_{11}$ ,  $C_{12}$ ,  $C_{44}$ . Le glissement plastique  $\gamma^\alpha$  dans l'un des 12 systèmes de glissement d'un matériau CFC -  $\{111\} \langle 110 \rangle$  - est donné par une régularisation viscoplastique de la loi de Schmid :

$$\dot{\gamma}^\alpha = \left( \frac{|\tau_\alpha| - \tau_c^\alpha}{K} \right)^n \text{sign}(\tau_\alpha) \quad (24)$$

avec  $\tau_\alpha$  et  $\tau_c^\alpha$  respectivement la cission résolue et la cission résolue critique du système  $\alpha$ ,  $K$  et  $n$  les paramètres viscoplastiques. L'écroissage (isotrope) est modélisé par la dépendance de la cission résolue critique à la densité de dislocations  $\rho_D^u$  :

$$\tau_c^\alpha = \tau_0 + \mu b_D \sqrt{\sum_{u=1}^{12} a^{\alpha u} \rho_D^u} \quad (25)$$

où  $\mu$  est le module de cisaillement,  $b_D$  la norme du vecteur de Burgers des dislocations,  $\rho_D^u$  la densité des dislocations dans le système  $u$  et  $a^{\alpha u}$  la matrice d'interactions entre les dislocations dépendants de 7 coefficients décrivant les différents types d'interactions [23]. Ces coefficients dépendants de la densité de dislocations :

$$a^{\alpha\beta} = a_{ref}^{\alpha\beta} \left[ 0.14 + 0.86 \left( \frac{\ln(b_D \sqrt{\sum_{\beta=1}^{12} a_{ref}^{\alpha\beta} \rho^\beta})}{\ln(b_D \sqrt{a_{ref}^{\alpha\beta} \rho_{ref}})} \right) \right]^2 \quad (26)$$

avec la densité de dislocation initiale  $\rho_{ref}$ . L'évolution de la densité de dislocations est décrite par :

$$\dot{\rho}_D^\alpha = \frac{1}{b_D} \left( \frac{1}{K_{cop}} \sqrt{\sum_{u \in \text{copla}(\alpha)} b^{\alpha u} \rho_D^u} + \frac{1}{K_{obs}} \sqrt{\sum_{u \notin \text{copla}(\alpha)} b^{\alpha u} \rho_D^u} - g_c \rho_D^\alpha \right) |\dot{\gamma}^\alpha| \quad (27)$$

où les deux premiers termes correspondant à la multiplication des dislocations et le dernier terme au mécanisme d'annihilation.

Les paramètres de cette loi de comportement calibrés pour un acier de type 316 pour les faibles niveaux de déformations [20] sont présentés dans le tableau 17.

$C_{11}$ (MPa)	$C_{12}$ (MPa)	$C_{44}$ (MPa)	$\tau_0$ (MPa)	$\mu$ (MPa)	$K$ (MPa)	$n$
199000	136000	105000	43 - 0.055T(K)	-0.003T(K) <sup>2</sup> - 5.6T(K) + 88000	5	15
$K_{cop}$	$K_{obs}$	$b_D$ (m)	$g_c$ (m)			
92.3	11.9	2.54 10 <sup>-10</sup>	0			
$a_{ref}^{self}$	$a_{ref}^{copla}$	$a_{ref}^{Hirt}$	$a_{ref}^{Lomer}$	$a_{ref}^{coli}$	$a_{ref}^{glissile 0^\circ}$	$a_{ref}^{glissile 60^\circ}$
0.1405	0.050	0.0484	0.1722	0.6972	0.1156	0.0885

TABLEAU 17. – Paramètres de la loi de comportement de plasticité cristalline

Le fait de prendre une valeur de  $g_c$  nulle implique qu'il n'y a pas de mécanisme d'annihilation des dislocations. Cela n'est pas physiquement exact mais en cas de faible densité de dislocations, le phénomène est négligeable.

La loi de comportement a été implémentée à l'aide du générateur de codes **MFront** en utilisant le formalisme de grandes transformations de la décomposition multiplicative du gradient de la transformation [24]. L'utilisation de cette loi nécessite de fournir l'orientation du cristal ainsi que la densité initiale de dislocations. Une orientation aléatoire permettant du glissement double a été sélectionnée et une densité totale de dislocations initiale de  $\rho=10^{12} \cdot \text{m}^{-2}$  a été utilisée. Cette valeur de densité a été utilisée dans cette étude de sensibilité avant de pouvoir réaliser la mesure de densité de dislocations au MET mais est tout de même représentative de l'état hypereffé (  $\rho_D=9 \cdot 10^{12} \text{m}^{-2}$  ).



## Chargement mécanique

Le chargement mécanique est appliqué sur le haut du pilier en imposant un déplacement à l'indenteur - supposé rigide - dans la direction  $-U_z$ . Les déplacements des bords de la base sont bloqués selon toutes les directions (Fig. 70).

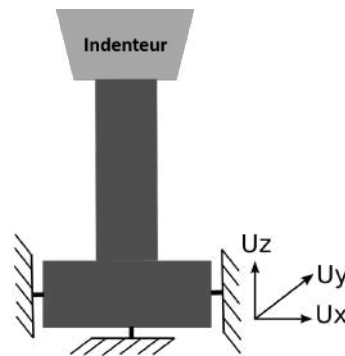


FIGURE 70. – Conditions aux limites : blocages des déplacements de la base

Les simulations sont réalisées avec le logiciel Cast3M 2021 en utilisant l'hypothèse des grandes transformations.

## Post-traitement

A l'issue des simulations, les forces de réaction du matériau ainsi que le champ de déplacement sont extraits aux nœuds du maillage. Ces données sont utilisées pour calculer d'une part la contrainte conventionnelle en haut du pilier (force totale divisée par la section minimale initiale du pilier) et d'autre part la déformation conventionnelle (déplacement de l'indenteur divisé par la hauteur du pilier).

Dans toute la suite, par convention, les contraintes compressives sont affectées d'un signe positif.

## Cas de référence

L'objectif des essais sur micro-piliers étant d'obtenir un état de contraintes de compression uniaxiale, une simulation éléments finis est réalisée sur un élément cubique en compression simple avec la loi de comportement décrite précédemment (Fig. 71).

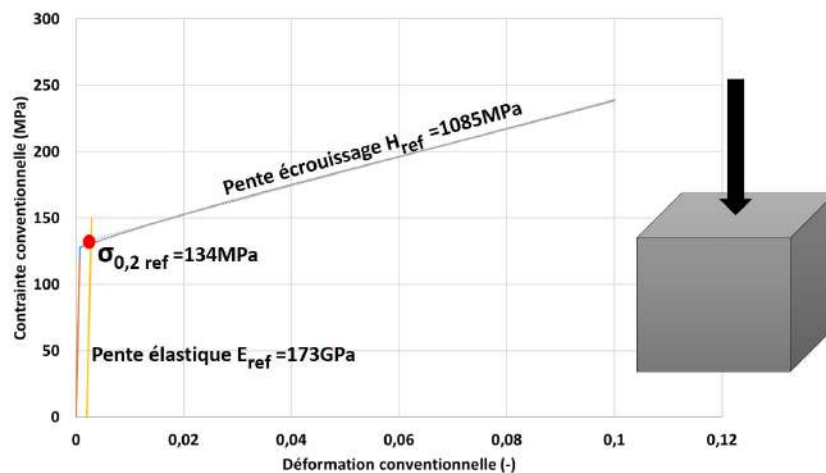


FIGURE 71. – Courbe contrainte - déformation de référence en compression uniaxiale obtenue sur un cube unité

Cette simulation conduit à une courbe contrainte - déformation (Fig. 71) à partir de laquelle il est

possible d'extraire des propriétés mécaniques : pente d'élasticité  $E$ , limite d'élasticité à 0.2% de déformation plastique  $\sigma_{0,2}$  et une pente d'écrouissage moyenne  $H$  sur la plage  $\varepsilon \in [0.02 : 0.1]$  :

$$H = \frac{\sigma(\varepsilon = 0.1) - \sigma(\varepsilon = 0.02)}{0.1 - 0.02} \quad (28)$$

La limite d'élasticité permet d'évaluer la cission résolue critique  $\tau_{0,2} = SF_{max} \sigma_{0,2}$ , avec  $SF_{max}$  le facteur de Schmid maximum sur les 12 systèmes de glissement.

Pour l'orientation cristallographique et la densité de dislocations initiale utilisées, les valeurs de références obtenues sont une pente d'élasticité  $E_{ref}$  de 173 GPa, une limite d'élasticité  $\sigma_{0,2 ref}$  de 134 MPa qui sera convertie en cission résolue critique  $\tau_{0,2 ref}$  grâce au facteur de Schmid  $SF = 0.5$  et une pente d'écrouissage  $H_{ref}$  de 1085 MPa. Ces valeurs sont comparées dans la suite aux valeurs obtenues à partir des simulations sur piliers afin d'évaluer les effets de structure (géométrie du pilier) et expérimentaux (indenteur).

### 2.3.2. Résultats des simulations

Une premier constat général qu'il est possible de tirer des simulations de compression sur micro-piliers est que les valeurs de  $E$ ,  $\tau_{0,2}$  et  $H$  ne sont jamais exactement égales à celles du cas de référence. Dans la suite, les ratios entre les valeurs obtenues sur les piliers et les valeurs de référence sont présentés afin de mettre en évidence les plages de paramètres pour lesquelles les effets de structure et / ou expérimentaux sont les plus présents.

#### Effet du désalignement

L'effet de l'angle de désalignement  $\alpha$  entre l'indenteur et le haut du pilier est étudié en fixant les autres paramètres aux valeurs typiques utilisées expérimentalement, à savoir facteur de forme  $\Phi=2$  et angle du pilier  $\beta=1^\circ$ . Le contact est considéré sans frottement. Les courbes obtenues pour différentes valeurs de désalignement  $\alpha$  sont présentées sur la Fig. 72a.

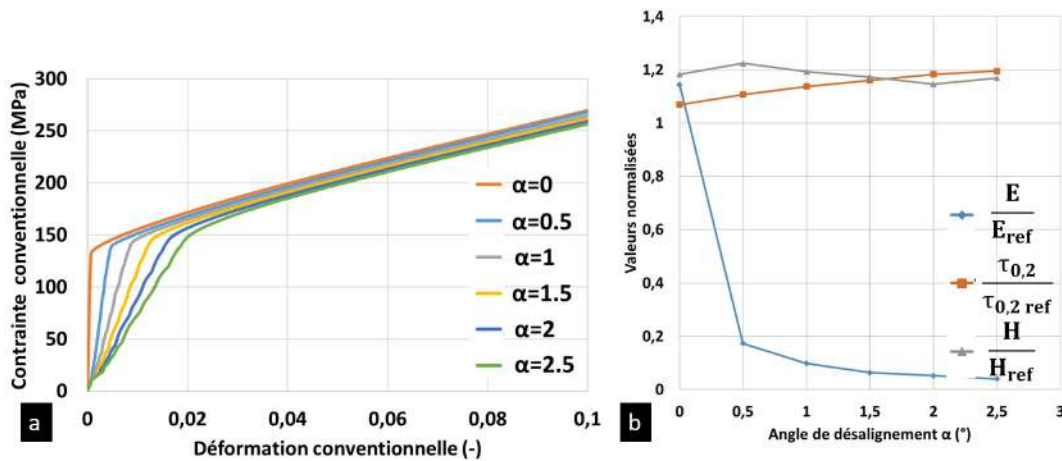


FIGURE 72. – a) Effet du désalignement entre l'indenteur et le haut du pilier sur la courbe contrainte - déformation b) Evolution de la pente d'élasticité  $E$ , la cission résolue critique  $\tau_{0,2}$  et la pente d'écrouissage moyenne  $H$  en fonction de l'angle de désalignement  $\alpha$

L'effet le plus visible est la diminution de la pente d'élasticité, et de manière moins marquée une augmentation de la limite d'élasticité. La pente d'écrouissage moyenne ne semble pas affectée significativement. Pour mieux visualiser les résultats, les valeurs de la pente d'élasticité  $E$ , de la cission résolue critique  $\tau_{0,2}$  et de la pente d'écrouissage  $H$  sont normalisées par les valeurs de référence obtenues précédemment, pour obtenir les courbes de la Fig. 72b.

La valeur initiale de la pente d'élasticité est 14% plus élevée que la valeur de référence, ce qui peut

indiquer un effet structurel de la géométrie du pilier. Cette valeur de la pente d'élasticité  $E$  diminue ensuite drastiquement de 85% par rapport à la valeur initiale entre  $0^\circ$  et  $0.5^\circ$  de désalignement puis diminue de manière moins importante jusqu'à  $3^\circ$ . La valeur de  $\tau_{0,2}$  augmente légèrement de 13% entre  $0^\circ$  et  $3^\circ$  tandis que la pente d'écrouissage moyenne  $H$  reste globalement constante. Il est possible de comprendre ces évolutions de la manière suivante. Du fait du désalignement entre l'indenteur et le pilier, le pilier est chargé progressivement de manière partielle durant la première partie de l'essai. La raideur mesurée n'est donc pas celle du pilier entier mais seulement d'une partie d'où la valeur de pente d'élasticité plus faible. A partir d'un certain déplacement, la surface supérieure du pilier est entièrement en contact avec l'indenteur : les déformations et les contraintes sont hétérogènes dans chaque section, mais cette hétérogénéité diminue à mesure que le déplacement augmente.

L'impact du désalignement présenté ici diffère de ce qui a été observé dans l'étude de Solers et al. [19] vue dans le chapitre bibliographique sur les micro-piliers de LiF. Dans leurs travaux, les auteurs observaient peu d'influence du désalignement sur la pente d'élasticité mais plutôt une dégradation de la pente d'écrouissage. Cela pourrait être attribué à la nature du matériau céramique.

Cette première étude de sensibilité montre d'une part la forte dépendance de la pente d'élasticité au désalignement entre l'indenteur et le pilier, et d'autre part la faible dépendance des propriétés plastiques dans la gamme  $\alpha \in [0 : 3]^\circ$ . A noter cependant un biais des valeurs obtenues par rapport aux valeurs de référence.

### Effet du facteur de forme

L'influence du facteur de forme  $\Phi$  du pilier est étudié en fixant les autres paramètres à  $\alpha=0$  et  $\beta = 1^\circ$ . Le contact est considéré sans frottement. Les courbes obtenues pour différentes valeurs de  $\Phi$  sont présentées sur la Fig. 73a.

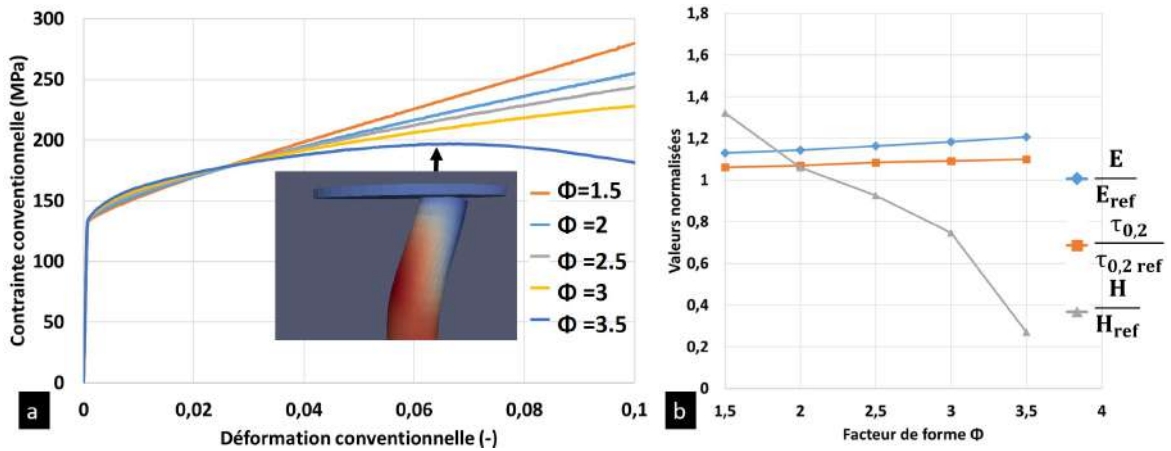


FIGURE 73. – a) Effet du facteur de forme du pilier sur la courbe contrainte - déformation b) Evolution de la pente d'élasticité  $E$ , la cission résolue critique  $\tau_{0,2}$  et la pente moyenne d'écrouissage  $H$  en fonction de l'élancement du pilier  $\Phi$

Les valeurs de la pente d'élasticité et de la limite d'élasticité ne semblent pas affectées par l'augmentation de l'élancement du pilier. Cependant la pente d'écrouissage moyenne - calculée selon l'Eq. 28 - est très sensible au facteur de forme. Pour  $\Phi=3.5$ , un adoucissement est même observé, qui correspond à un flambage du pilier (Insert Fig. 73a). A noter que l'adoucissement observé est d'origine structurel et non matériau puisque ce dernier présente un fort écrouissage comme le montre la Fig. 71. L'évolution de la pente d'élasticité  $E$ , de la cission résolue critique  $\tau_{0,2}$  et de la pente d'écrouissage moyenne  $H$  normalisées en fonction de l'élancement du pilier est tracée sur la Fig. 73b.

Augmenter le facteur de forme de 1.5 à 3.5 influe peu sur  $E$  et  $\tau_{0,2}$ , avec des augmentations de respectivement 6.7% et 3.6%. Plus l'élancement est faible, plus les valeurs obtenues sur le pilier sont proches des valeurs de référence. La pente d'écrouissage quant à elle diminue 67% en fonction de l'augmentation du facteur de forme.

En se limitant aux facteur de forme  $\Phi < 3$  pour lesquels le pilier ne flambe pas, il est possible de comprendre cette diminution de la manière suivante. Lors de l'essai de compression, la jonction entre le pilier et la base peut agir comme un concentrateur de contraintes [18, 25]. Si comme sur la Fig. 74a le facteur de forme est petit, les zones de concentration de contraintes peuvent proportionnellement participer à l'écroutissage observé macroscopiquement. Cependant si le pilier est plus élancé comme sur la Fig. 74b, alors la participation de ces zones de concentrations de contraintes dans l'écroutissage observé pourra être proportionnellement plus faible car la déformation dans le pilier occupera une plus grande place.

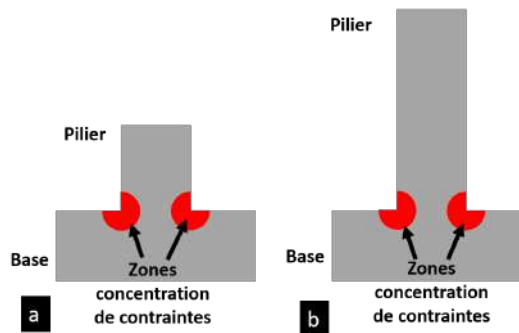


FIGURE 74. – Concentration des contraintes à la jonction entre le pilier et sa base pour un a) petit et b) grand facteur de forme

Cette deuxième étude de sensibilité montre que, pour le matériau considéré, un facteur de forme proche de 2 permet d'éviter les biais quant à la détermination des propriétés mécaniques, en particulier sur la pente d'écroutissage. L'effet d'un important facteur de forme est beaucoup plus marqué après 3% de déformation. Dans le cas où le facteur de forme est supérieur ou égal à 3, il pourrait être considéré d'utiliser la courbe d'essai pour une déformation inférieure ou égale à 3%.

### Effet de l'angle du pilier

L'effet de l'angle du pilier est étudié en fixant les autres paramètres à  $\alpha = 0^\circ$ ,  $\Phi=2$ . Le contact est considéré sans frottement. Les courbes obtenues pour différentes valeurs d'angle  $\beta$  sont présentées sur la Fig. 75a.

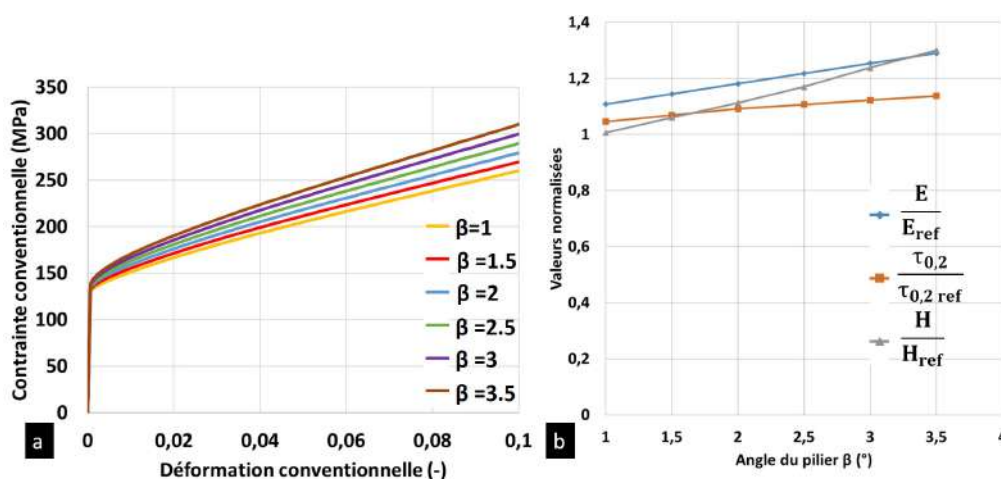


FIGURE 75. – a) Effet de l'angle du pilier sur la courbe contrainte - déformation b) Evolution de la pente d'élasticité  $E$ , la cisssion critique résolue  $\tau_{0,2}$  et la pente moyenne d'écroutissage  $H$  en fonction l'angle du pilier  $\beta$

Seule la pente moyenne d'écroutissage  $H$  semble affectée significativement par l'augmentation de l'angle du pilier, et dans une moindre mesure la limite d'élasticité. L'évolution de la pente d'élasticité  $E$ , de

la cission résolue critique  $\tau_{0,2}$  et de la pente moyenne d'écroissage  $H$  en fonction de l'angle du pilier est tracée sur la Fig. 75b. La variation de l'angle du pilier de  $1^\circ$  à  $3.5^\circ$  augmente de manière notable la pente moyenne d'écroissage  $H$  de 30% tandis que la pente d'élasticité et la cission résolue critique  $\tau_{0,2}$  n'augmente respectivement que de 15% et 10%. Plus l'angle du pilier est faible, plus les valeurs sont proches des valeurs de référence.

L'augmentation de la pente d'écroissage apparente en fonction de l'angle du pilier peut s'expliquer simplement par la variation de la longueur utile. En effet en augmentant l'angle du pilier, la longueur utile diminue comme montré sur la Fig. 76. La déformation, calculée en utilisant la hauteur totale du pilier, est donc sous-estimée. Il faudrait donc corriger avec la bonne longueur utile, ce qui décalerait les points vers la droite sur les courbes contrainte - déformation et diminuerait la pente d'écroissage apparente.

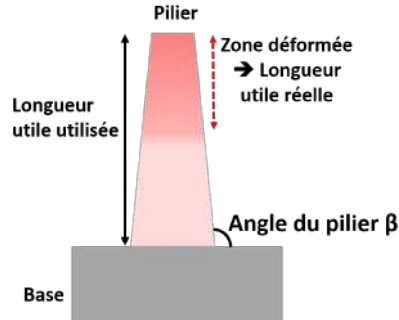


FIGURE 76. – Longueur utile réelle du pilier pour un angle  $\beta > 0$

Cette troisième étude de sensibilité montre que, pour le matériau considéré, l'effet de l'angle du pilier est mineur sur la plage étudiée  $\beta \in [0 : 3]^\circ$ , et qu'un angle le plus faible possible permet d'éviter les biais expérimentaux.

### Effet du frottement

L'effet du frottement entre l'indenteur et le pilier est étudié en ajoutant un coefficient de frottement de  $\mu = 0.1$  dans toutes les séries de simulations présentées précédemment.

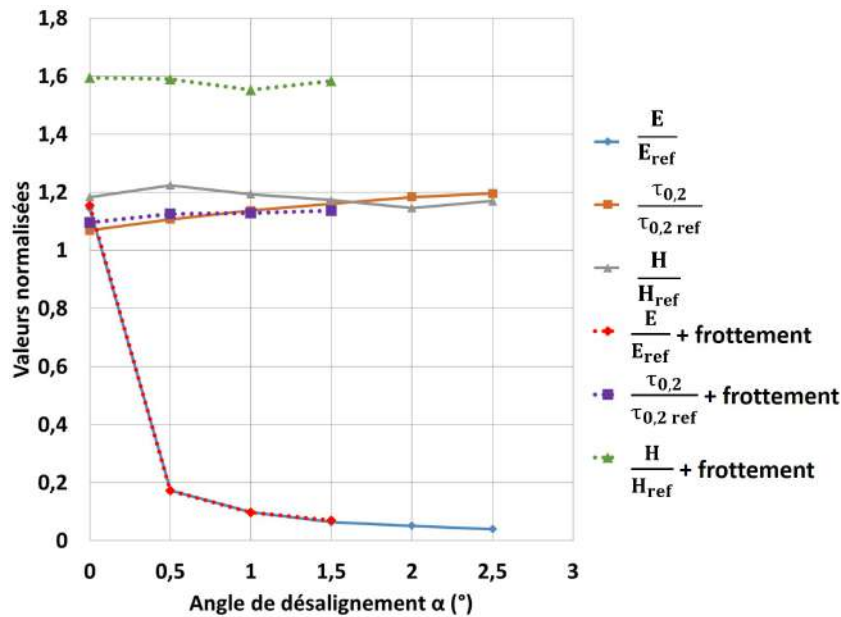


FIGURE 77. – Evolution de la pente d'élasticité  $E$ , la cission résolue critique  $\tau_{0,2}$  et la pente moyenne d'écroissage  $H$  en fonction de l'angle de désalignement  $\alpha$  avec et sans frottement avec  $\beta=1$  et  $\Phi=2$

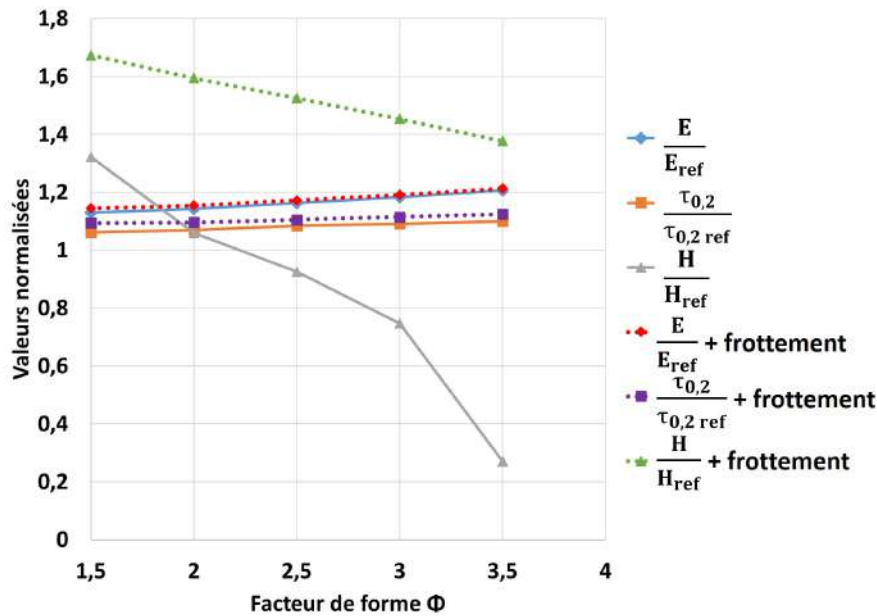


FIGURE 78. – Evolution de la pente d'élasticité  $E$ , la cission résolue critique  $\tau_{0,2}$  et la pente moyenne d'écroutissage  $H$  en fonction de l'élanement  $\Phi$  du pilier avec et sans frottement avec  $\alpha=0$  et  $\beta=1$

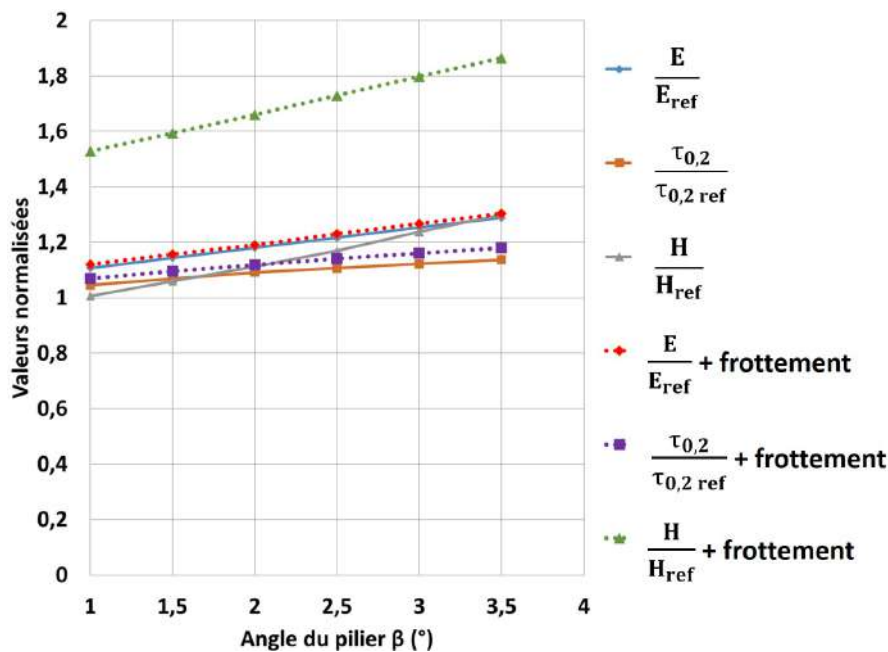


FIGURE 79. – Evolution de la pente d'élasticité  $E$ , la cission résolue critique  $\tau_{0,2}$  et la pente moyenne d'écroutissage  $H$  en fonction l'angle  $\beta$  du pilier avec et sans frottement  $\alpha=0$  et  $\Phi=2$

La prise en compte du frottement entre l'indenteur et le pilier avec  $\mu = 0.1$  n'affecte pas (ou très peu) la pente d'élasticité et la cission résolue critique. L'effet du frottement le plus notable s'observe dans l'augmentation de la pente d'écroutissage. En effet la pente d'écroutissage augmente entre 12 et 35 % et va jusqu'à 184% dans le cas où le pilier flambe. Les forces de frottement contraignent les mouvements latéraux du pilier, ce qui a deux effets. Le premier effet est d'empêcher le phénomène de flambage observé pour les grands facteurs de forme, et donc de supprimer l'adoucissement structural. Le deuxième effet est de changer l'état de contrainte dans le pilier qui s'écarte d'un état uniaxial. L'augmentation de la triaxialité des contraintes est de nature à augmenter le nombre de systèmes de glissement actifs, et donc l'écroutissage [26].

Cette dernière étude de sensibilité montre un effet important du frottement entre l'indenteur et le pilier uniquement sur la pente moyenne d'écroutissage.

Les résultats de cette étude de sensibilité permettent de choisir les paramètres expérimentaux optimaux pour minimiser les effets de structure et de conditions expérimentales sur les résultats des essais de micro-piliers. Ainsi un désalignement  $\alpha$  le plus faible possible, un facteur de forme  $\Phi$  de 2 et une absence de frottement semblent être les meilleures conditions expérimentales pour se placer dans les conditions de compression uniaxiale et d'interpréter simplement les résultats des essais. Les simulations montrent que la pente d'élasticité est extrêmement sensible au moindre désalignement. Les pentes apparentes seront donc différentes d'un essai à l'autre, en plus de l'effet de l'orientation cristallographique. Les autres paramètres ont un faible impact sur la cission résolue critique mais l'effet est plus marqué sur l'écroutissage. A noter enfin qu'au delà du frottement entre l'indenteur et le pilier - difficile à caractériser expérimentalement - c'est la raideur latérale de l'indenteur qui a un effet. Le dispositif utilisé a une raideur assez faible, ce dernier suit le déplacement latéral du pilier. Cette situation est alors équivalente au cas d'absence de frottement. Cependant c'est un paramètre qui n'est pas maîtrisé et qui dépend du dispositif d'essai tout en ayant un impact sur la pente d'écroutissage. Il serait envisageable de conclure que l'utilisation de ce type d'essai n'est pas très adapté pour caractériser l'écroutissage.

## 2.4. Résultats des essais de compression de micro-piliers

Les essais de compression ont été réalisés sur 13 micro-piliers de diamètre  $3\mu\text{m}$ , 5 piliers de diamètre  $5\mu\text{m}$  et 4 piliers de diamètre  $10\mu\text{m}$  en 304L non irradié. A l'état irradié, 3 essais ont été réalisés sur des piliers de  $3\mu\text{m}$  et 9 sur des piliers de diamètre  $5\mu\text{m}$ . L'ensemble des caractéristiques des ces piliers est disponible dans le tableau 14. Les 34 essais ont été exploités pour en extraire la valeur de la cission résolue critique ainsi que la pente d'écroutissage. Les pentes d'élasticité obtenues après correction de la valeur par la raideur machine et de l'enfoncement du pilier sont bien en dessous de la valeur théorique et ne sont donc pas exploitables conformément aux résultats de l'analyse de sensibilité. Compte-tenu des caractéristiques géométriques des piliers utilisés et des résultats de l'analyse de sensibilité, les valeurs de cission résolue critique obtenues sont considérées être des évaluations précises des valeurs réelles. Les valeurs de pente moyenne d'écroutissage sont quant à elles plus affectées par les effets de structure et par l'effet du frottement.

### 2.4.1. Courbes contrainte - déformation

Les courbes de charge des essais de compression sur les piliers non irradiés sont présentées sur la Fig. 80a pour les piliers de  $3\mu\text{m}$ , 80b pour les piliers de  $5\mu\text{m}$  et 80c pour les piliers de  $10\mu\text{m}$ . La contrainte et la déformation sont calculées de la même manière que pour l'analyse des simulations numériques, à savoir force totale divisée par la section minimale initiale du pilier et déplacement du haut du pilier divisé par la hauteur du pilier, respectivement. De même, les contraintes compressives sont affectées d'un signe positif par convention. Pour obtenir le déplacement réel du haut du pilier, le déplacement mesuré est corrigé avec la raideur du dispositif comme dans l'Eq. 23. Une correction supplémentaire est ajoutée pour prendre en compte l'enfoncement du pilier dans la base avec le modèle de Sneddon [27] présenté dans le chapitre bibliographique. Le déplacement final, similaire à celui observé sur les images de l'essai, est donc obtenu avec :

$$\Delta x = \Delta x_{mes} - \left( \frac{1 - \nu^2}{E} \frac{F}{d} \right) - \frac{F}{R} \quad (29)$$

avec E un module d'Young théorique de l'acier (de l'ordre de 200GPa),  $\nu$  le coefficient de Poisson (0.3), d le diamètre du pilier, F la force appliquée et R la raideur du dispositif d'essai.

Les essais ont été réalisés soit en chargement continu soit en réalisant des décharges à intervalles réguliers, d'où les chutes de charges visibles sur les courbes. L'objectif de ces décharges avec perte de contact est de supprimer les contraintes latérales sur le pilier [26].



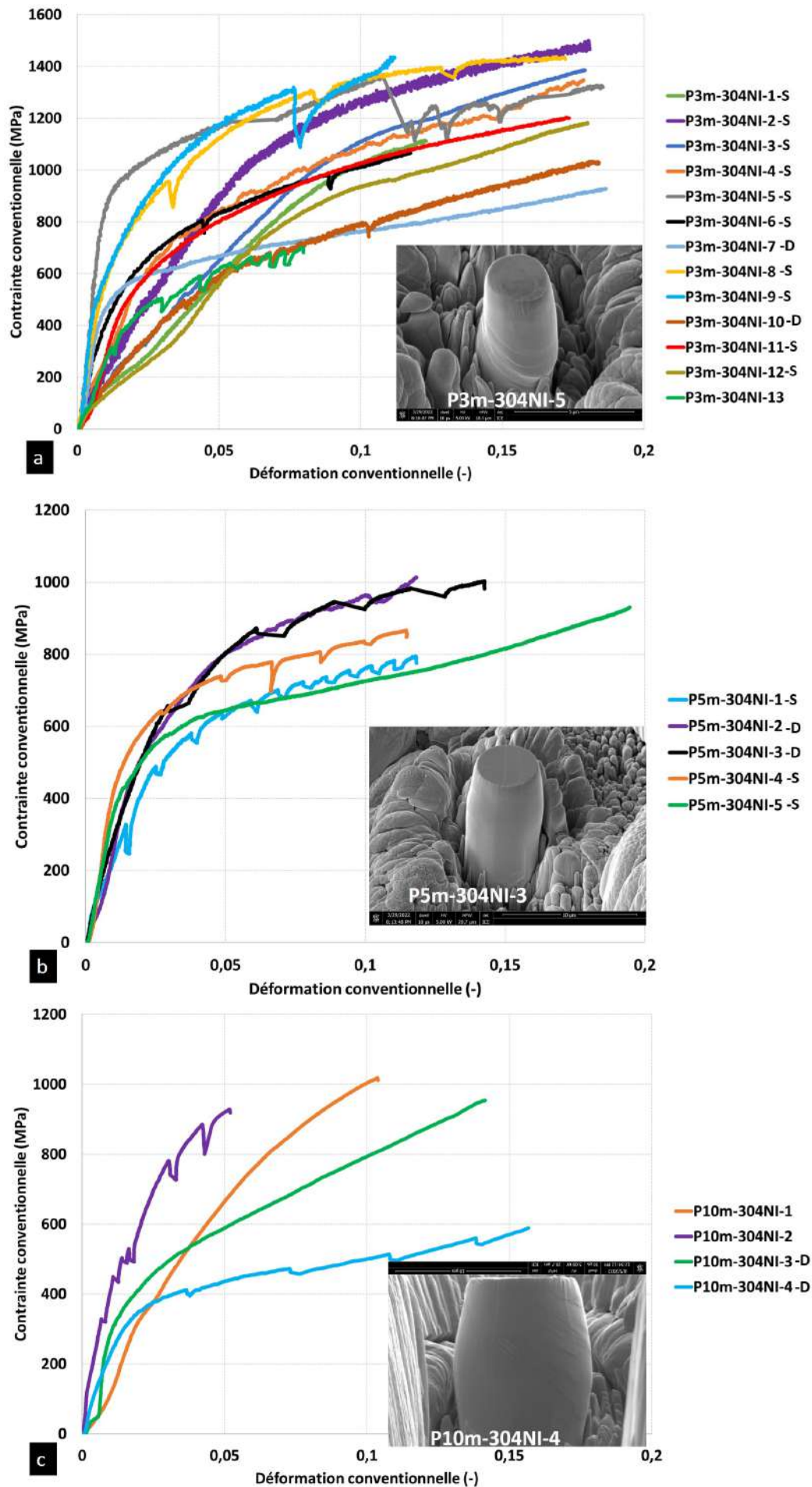


FIGURE 80. – Courbes contrainte - déformation de la compression des micro-piliers monocristallins en 304L non irradié de a) 3µm b) 5µm et c) 10µm de diamètre avec glissement observé simple (S) ou double (D)



Une dispersion importante des pentes d'élasticité est observée sur les piliers de  $3\mu\text{m}$  et aussi dans les piliers de plus grand diamètre mais de manière moins prononcée. Cette observation est cohérente avec l'étude de sensibilité qui montrait le fort effet du désalignement sur cette pente. La valeur maximale de pente d'élasticité est de  $55\text{GPa}$ , ce qui est inférieure aux valeurs théoriques attendues (de l'ordre de  $200\text{GPa}$  et dépendant de l'orientation cristallographique).

Les limites d'élasticité présentent aussi une plus grande dispersion dans les piliers de  $3\mu\text{m}$  comparées à celles obtenues sur les piliers de  $5\mu\text{m}$  et  $10\mu\text{m}$  de diamètre. Les valeurs moyennes de la limites d'élasticité semblent aussi diminuer à mesure que le diamètre augmente. Ces deux résultats laissent penser qu'un effet de taille et un effet stochastique sont à l'œuvre dans ces essais. Les pentes d'écrouissage pour les piliers de  $3$  et  $5\mu\text{m}$  sont globalement similaires entre elles et entre les deux diamètres. Il n'y a d'ailleurs pas de différence notable sur les courbes entre les piliers présentant un glissement simple et ceux avec un glissement multiple comme montré sur la Fig. 81 pour les piliers de  $5\mu\text{m}$  P5m-304NI-2 (Fig. 81a) et P5m-304NI-4 (Fig. 81b).

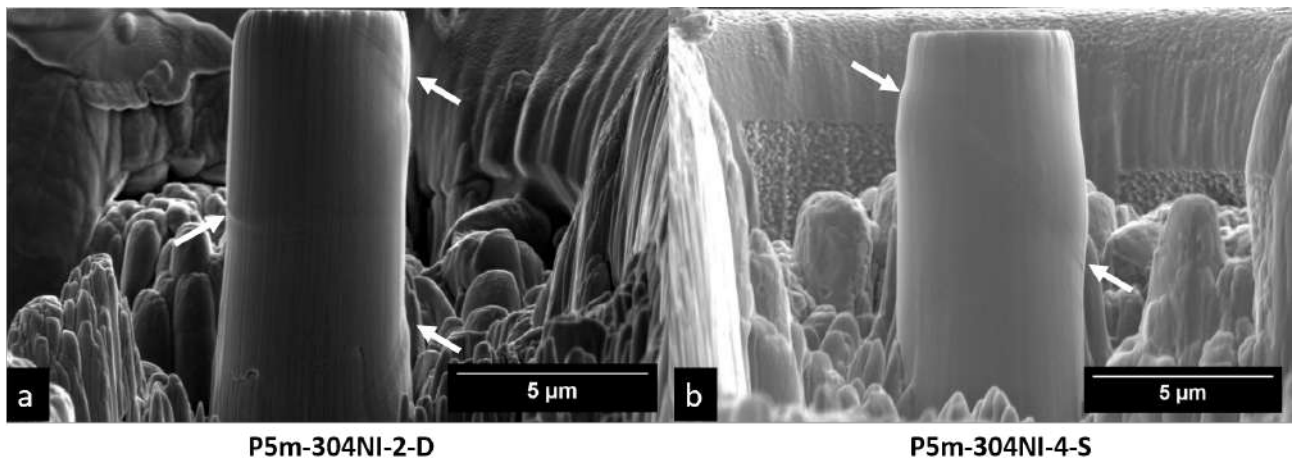


FIGURE 81. – Déformation des piliers après essai pour a) P5m-304NI-2 en glissement double et b) P5m-304NI-4 en glissement simple (lignes de glissement marquées par flèches blanches)

L'écrouissage est d'ailleurs important quel que soit le nombre de systèmes actifs prévus par la loi de Schmid et présentés dans le tableau 14. Des piliers avec un seul système actif prévu peuvent présenter un glissement double et une forte pente d'écrouissage (cf. la plupart des piliers de  $10\mu\text{m}$ ).

Cependant les pentes d'écrouissage pour les piliers de  $10\mu\text{m}$  présentent une différence, tout d'abord entre elles mais aussi avec les deux autres diamètres. Les pentes globalement plus élevées des piliers de  $10\mu\text{m}$  peuvent être attribuées à un volume du pilier plus important qui permet le durcissement (plus de sources de dislocations, plus de volume pour la multiplication et l'interaction de dislocations).

Des essais discontinus avec des décharges complètes du pilier ont été réalisés afin de voir l'effet qu'une telle sollicitation peut avoir sur les résultats. En effet Schamel et al. [26] montrent que cela peut affecter l'écrouissage, en supprimant les contraintes latérales sur le pilier. Cependant dans cette étude, l'effet de ces décharges n'est pas significatif. Cela peut s'expliquer par la faible raideur latérale du dispositif utilisé, remarquable par le fait que le mouvement latéral du pilier entraîne l'indenteur, ce qui indique que le dispositif induit peu de contraintes latérales.

Dans la littérature, la déformation des piliers après essai peut se présenter sous forme :

- (1) fortement localisée sur quasiment un seul plan (Fig.82a) ;
- (2) homogène dans une bande (Fig.82b) ;
- (3) déformation en tonneau avec du glissement multiple (Fig.82c).

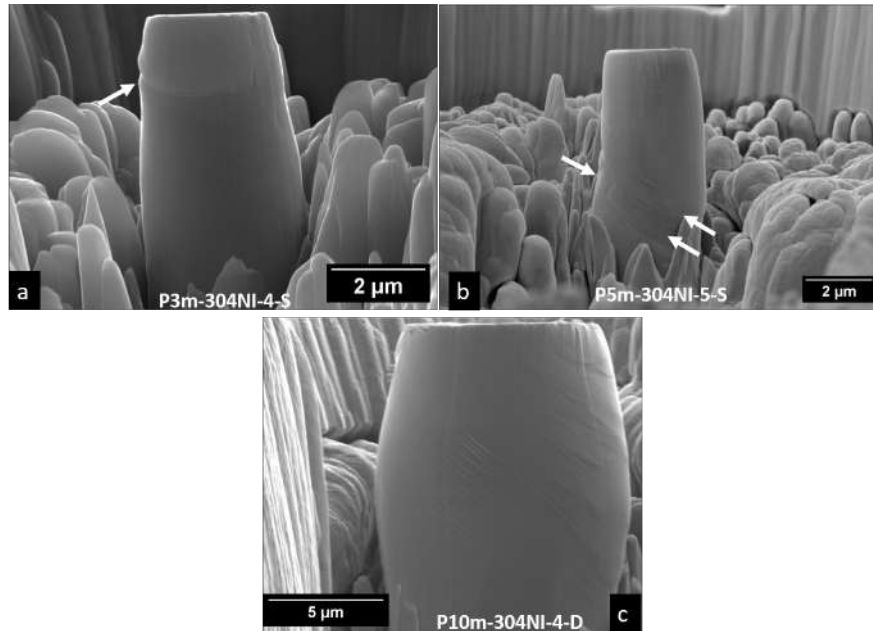


FIGURE 82. – Déformation observée sur des piliers de 3  $\mu\text{m}$  après essai

Le mode de déformation le plus observé dans les piliers de 3 et 5  $\mu\text{m}$  de diamètre est plutôt homogène dans une bande de glissement (2) comme vu sur la Fig. 81. Cependant dans certains cas anecdotiques comme dans le pilier de la Fig. 82a, la déformation est fortement localisée (1). Ces observations sont en accord avec les résultats de la thèse de Paccou [3] obtenus sur le même matériau, mais pour des piliers plus petits.

Sur les piliers de 10  $\mu\text{m}$  de diamètre, l'analyse des géométries déformées et des traces des lignes de glissement est plus délicate car on commence à multiplier les systèmes de glissement et à entrer dans un régime "quasi macroscopique".

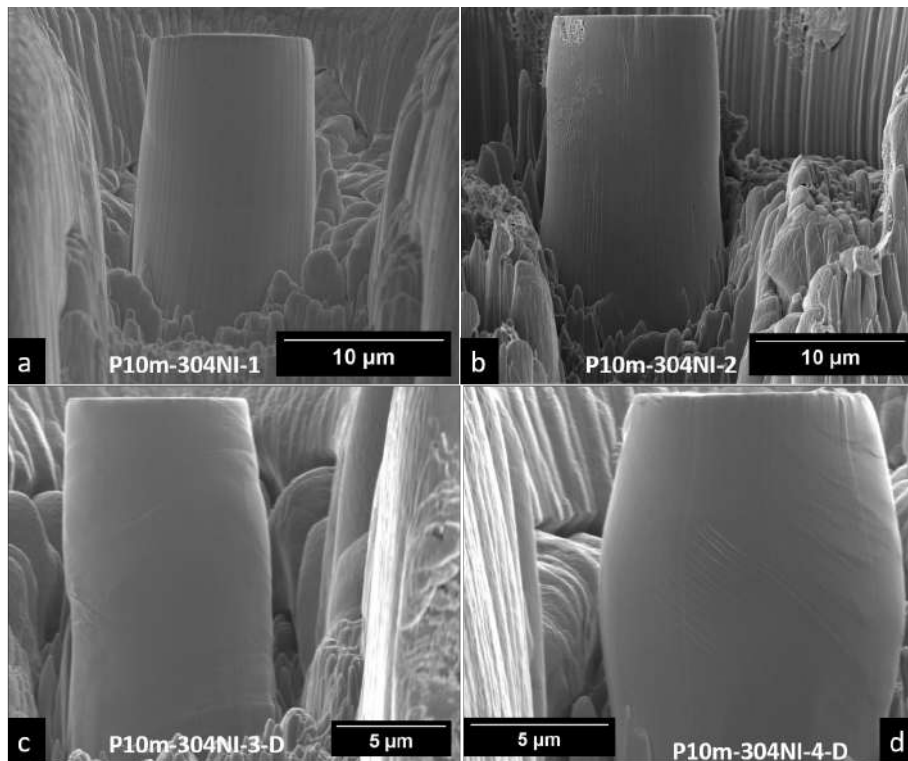


FIGURE 83. – Déformation observée sur les piliers de 10  $\mu\text{m}$  après essai

En effet, les piliers P10m-304NI-1 (Fig.83a) et P10m-304NI-2 (Fig.83b) présentent peu de lignes de glissement tandis que P10m-304NI-3 (Fig.83c) et P10m-304NI-4 (Fig.83d) affichent une déformation globalement homogène avec de multiples lignes de glissement (2) et (3). Les piliers P10m-304NI-1 (Fig.83a) et P10m-304NI-2 (Fig.83b) s'enfoncent plus dans la base alors que ce phénomène ne s'observe pas dans les deux autres cas. En estimant la déformation, non plus à partir du déplacement de l'indenteur mais en faisant du tracking de défauts visibles sur certains piliers, un enfoncement important du pilier dans sa base est obtenu, ce qui conduit à une déformation effective plus faible (Fig.84).

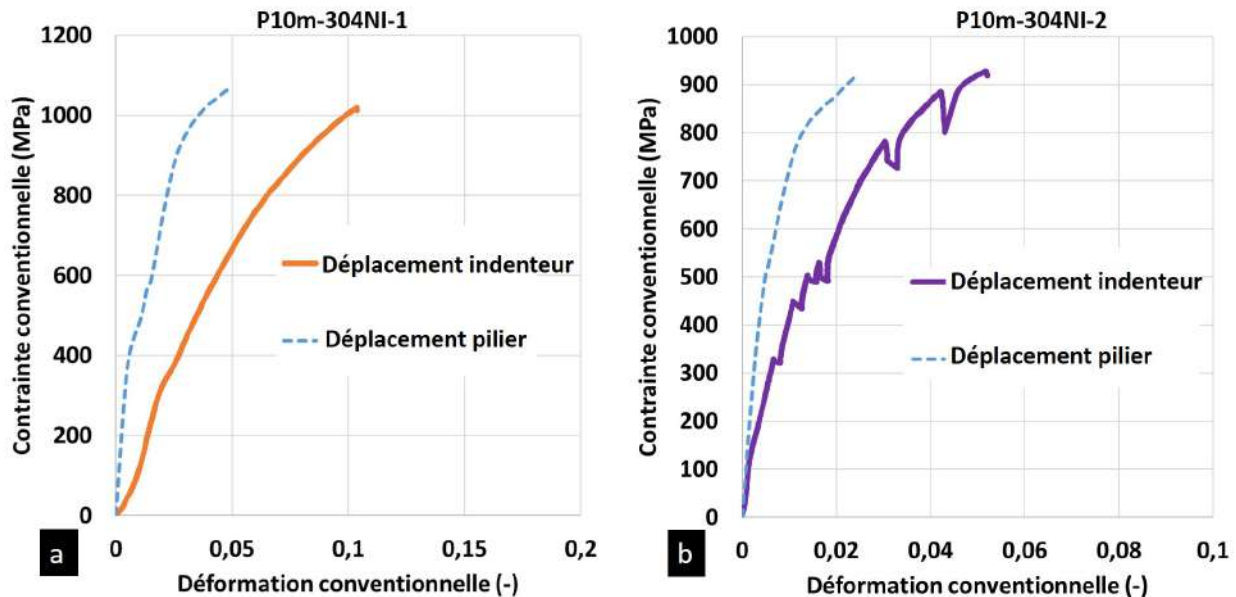


FIGURE 84. – Déformation des piliers de  $10\mu\text{m}$  en utilisant le déplacement de l'indenteur (trait plein) et celui du pilier (trait pointillé)

De ce fait, les piliers P10m-304NI-1 (Fig. 83a) et P10m-304NI-2 (Fig. 83b) présentent peu de lignes de glissement car le niveau de déformation dans le pilier est faible. Ces deux essais correspondent donc plus à une indentation de la base qu'à un essai de compression de pilier. Cet effet est plus notable pour les plus gros piliers car l'enfoncement est en grande partie influencé par la différence entre le grain du pilier et celui de la base. Dans le cas des piliers de  $10\mu\text{m}$  de diamètre où la hauteur est similaire à la taille de grain, il est hautement probable que le pilier et la base soit deux grains différents avec des limites d'élasticité différentes du fait des différentes orientations cristallographiques. Si la dureté du grain du pilier est plus élevée que celle de la base, l'enfoncement sera plus important par rapport à deux grains de dureté similaires ou un grain de base plus dur. Cela rend donc ce phénomène très dépendant de la dureté locale des grains. Pour les deux autres piliers où l'enfoncement est négligeable et la déformation a bien eu lieu dans le pilier, les multiples lignes de glissement laissent voir une déformation plutôt homogène. Cela renforce, s'il est besoin, la nécessité d'avoir une hauteur de pilier sensiblement inférieure à la taille de grain pour éviter cet effet. Il n'existe que très peu de données dans la littérature sur des micro-piliers de cette taille pour les aciers mais les travaux de Monnet et al. [28] sur des micro-piliers de  $15\mu\text{m}$  en 316L montrent aussi des lignes de glissement sur toute la hauteur du pilier. Leur cas diffère car il ne met en évidence que du glissement simple alors qu'ici le glissement est multiple.

Pour les essais à l'état irradié les courbes sont rassemblées dans la Fig. 85a pour les piliers de  $3\mu\text{m}$  et 85b pour les piliers de  $5\mu\text{m}$ .

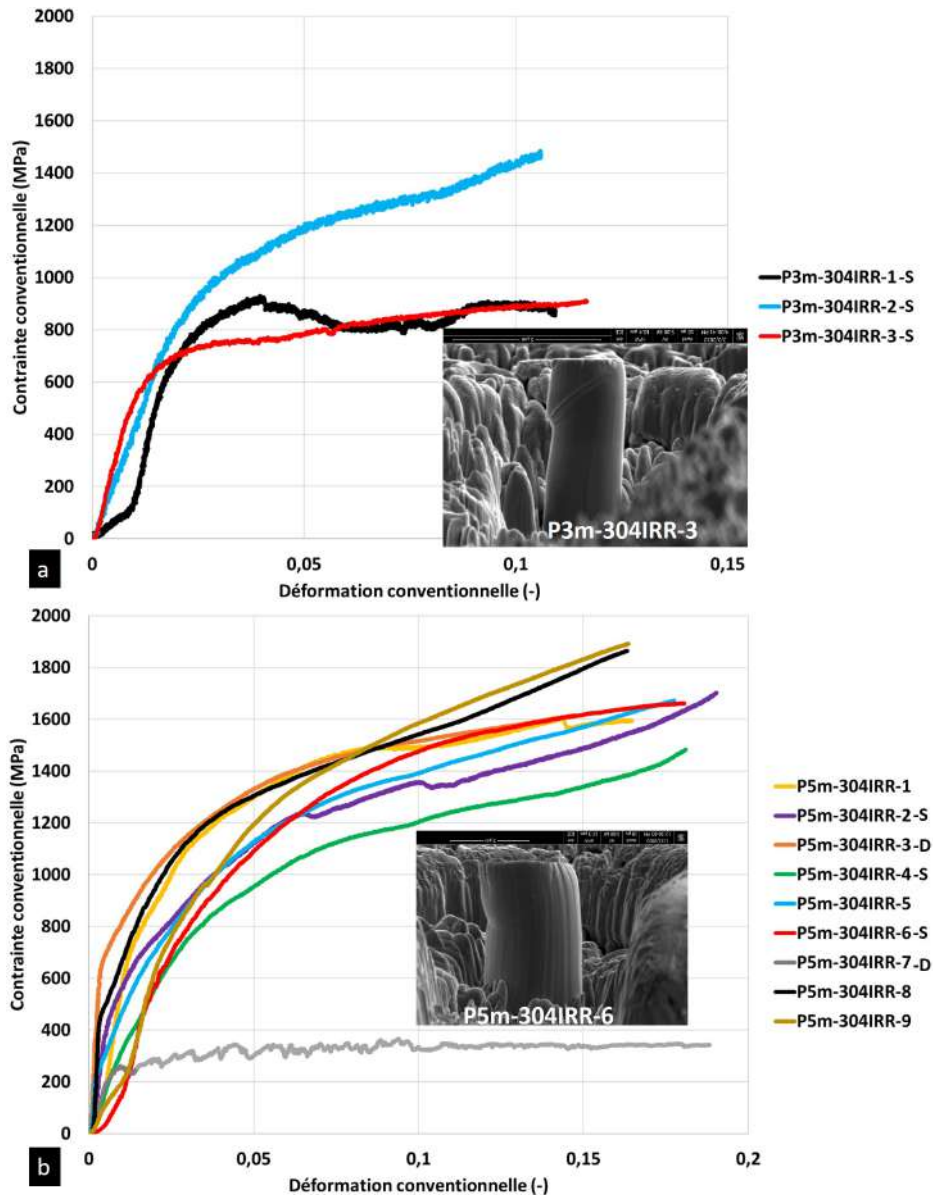


FIGURE 85. – Courbes contrainte - déformation de la compression des micro-piliers monocristallins en 304L irradié 1dpaKP de a)  $3\mu\text{m}$  b)  $5\mu\text{m}$  de diamètre avec glissement observé simple (S) ou double (D) et sans marquage lorsque des lignes de glissement ne sont pas clairement identifiées

Tous les essais ont été réalisés avec un chargement continu. Les pentes d'élasticité présentent aussi une dispersion, cohérente avec l'étude de sensibilité. La dispersion des limites d'élasticité est aussi moindre entre les piliers et entre les diamètres de  $3\mu\text{m}$  et  $5\mu\text{m}$  comparé à l'état non irradié. Cela peut suggérer que l'effet de taille et l'effet stochastique est plus faible à l'état irradié. Pour une taille de pilier donnée, la limite d'élasticité à l'état irradié est aussi plus élevée qu'à l'état non irradié, montrant qu'il y a un durcissement du matériau suite à l'irradiation, en accord avec les mesures de dureté réalisées après irradiation. Les pentes d'écrouissage sur les piliers de  $5\mu\text{m}$  sont similaires entre elles tandis qu'il y a plus de dispersion dans les piliers de  $3\mu\text{m}$ . L'écrouissage semble d'ailleurs plus important dans les piliers de  $5\mu\text{m}$  comparés à ceux de  $3\mu\text{m}$ . Ici aussi il n'y a pas de différence de pente d'écrouissage entre les piliers avec un glissement simple et ceux avec un glissement multiple.

Le mode de déformation des piliers de  $5\mu\text{m}$  (Fig.86a) et  $3\mu\text{m}$  (Fig.86b) semble plutôt homogène dans les bandes de glissement.

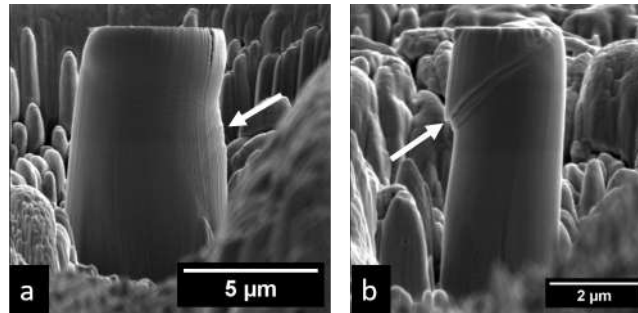


FIGURE 86. – Déformation des micro-piliers monocristallins en 304L irradié 1dpaKP de a)  $5\mu\text{m}$  P5m-304IRR-3 b)  $3\mu\text{m}$  P3m-304IRR-3 de diamètre

Dans les études de la littérature, l'irradiation à faible dose aboutit plutôt à un mode de déformation homogène [3, 29] tandis qu'une augmentation de la dose d'irradiation a tendance à augmenter le degré de localisation [29].

Un seul pilier de  $5\mu\text{m}$  de diamètre présente un comportement singulier (P5m-304IRR-7). La limite d'élasticité est beaucoup plus faible que les autres, la pente d'écroissage nulle (Fig. 85) et le mode de déformation localisé (Fig. 87). Ayant été usiné et testé dans les mêmes conditions que les autres piliers, son comportement ne peut donc s'expliquer par ces raisons. Il est possible qu'un défaut ou une source de dislocations nécessitant une faible contrainte d'activation dans le pilier ait produit ce comportement en déformation. L'origine exacte de ce comportement singulier reste inexpliquée.

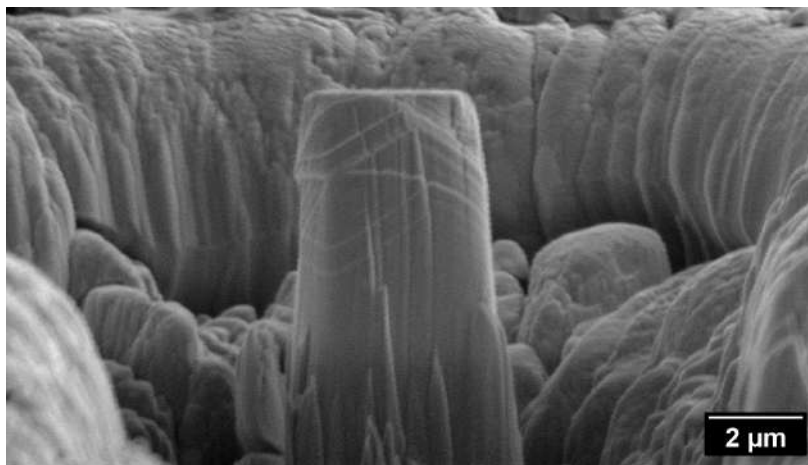


FIGURE 87. – Déformation du pilier P5m-304IRR-7

L'ensemble des résultats expérimentaux obtenus et décrits de manière qualitative dans cette partie est maintenant analysé de manière quantitative en ce qui concerne la dépendance de la cission résolue critique et de la pente moyenne d'écroissage à la taille du pilier et à l'état du matériau (non irradié *vs.* irradié).

#### 2.4.2. Détermination des propriétés mécaniques

Les valeurs des cissions résolues critiques et des pentes d'écroissage ainsi que leurs valeurs moyennes pour chaque diamètre sont regroupées dans le tableau 18 à l'état non irradié et dans le tableau 19 à l'état irradié.

Pilier	Cission résolue critique $\tau_{0.5}$ (MPa)	Pente écrouissage (MPa)	
P3m-304NI-1	452		3620
P3m-304NI-2	373		2830
P3m-304NI-3	490		3550
P3m-304NI-4	386		3090
P3m-304NI-5	429		660
P3m-304NI-6	268		3220
P3m-304NI-7	250	$330 \pm 79$	2100
P3m-304NI-8	333		1460
P3m-304NI-9	310		3810
P3m-304NI-10	168		4120
P3m-304NI-11	253		2590
P3m-304NI-12	366		3010
P3m-304NI-13	218		3480
<hr/>			
P5m-304NI-1	296		2060
P5m-304NI-2	231		2260
P5m-304NI-3	214	$248 \pm 32$	2000
P5m-304NI-4	218		1890
P5m-304NI-5	281		1550
<hr/>			
P10m-304NI-3	150	$132 \pm 18$	3564
P10m-304NI-4	114		2417

 TABLEAU 18. – Cissions résolues critiques et pentes d'écrouissage des piliers de 3, 5 et 10  $\mu\text{m}$  sur l'acier 304L non irradié (NI)

Pilier	Cission résolue critique $\tau_{0.5}$ (MPa)	Pente écrouissage(MPa)	
P3m-304IRR-1	373		590
P3m-304IRR-2	471	$384 \pm 58$	4550
P3m-304IRR-3	309		1960
<hr/>			
P5m-304IRR-1	384		1540
P5m-304IRR-2	271		3300
P5m-304IRR-3	377		2150
P5m-304IRR-4	337	$348 \pm 43$	2780
P5m-304IRR-5	288		3290
P5m-304IRR-6	365		3240
P5m-304IRR-8	326		4330
P5m-304IRR-9	442		4820

 TABLEAU 19. – Cissions résolues critiques et pentes d'écrouissage des piliers de 3 et 5  $\mu\text{m}$  sur l'acier 304L irradié 1dpaKP (IRR)

Les cissions résolues critiques sont estimées à partir des courbes contrainte - déformation de la même manière que dans la section 2.3 à la seule différence qu'au lieu d'utiliser la limite d'élasticité à 0.2% de déformation  $\sigma_{0.2}$  c'est celle à 0.5%  $\sigma_{0.5}$  qui est utilisée. En effet sur les courbes des piliers 5  $\mu\text{m}$  irradiés, le passage de la déformation élastique à plastique est peu marquée, ce qui complique la détermination d'une limite d'élasticité réaliste. La limite d'élasticité est utilisée pour évaluer la cission résolue critique à l'aide du facteur de Schmid maximal décrit dans le tableau 14, notée  $\tau_{0.5} = SF_{max}\sigma_{0.5}$ . Les pentes moyennes d'écrouissage sont calculées sur la plage de déformation  $\varepsilon \in [0.08 : 0.15]$ . Au vue de l'enfoncement des piliers P10m-304NI-1 (Fig. 83a) et P10m-304NI-2 et l'indisponibilité de l'orientation du grain à la base, ces deux piliers ne seront pas utilisés pour les analyses suivantes. Idem pour le pilier P5m-304IRR-7 dont le comportement n'a été observé qu'une fois.

L'analyse des valeurs de cissions résolues critiques à l'état non irradié et de leur évolution en fonction du diamètre du piliers révèle deux phénomènes. (Fig. 88a). Premièrement la cission résolue critique diminue en moyenne lorsque le diamètre du pilier augmente. Cela illustre l'effet de taille communément

observé dans tous les métaux et décrit dans le Chapitre 1. Les hypothèses de "dislocations starvation" [30] et "source truncation" [31] sont les plus communes pour expliquer cet effet. Ensuite la dispersion des résultats est plus importante sur les piliers de  $3\mu\text{m}$  que sur ceux de  $5$  et  $10\mu\text{m}$ . Là-encore, cet effet rapporté dans la littérature est cohérent avec un effet stochastique d'activation des sources de dislocations responsables de la plasticité. Cet effet est d'autant plus fort que la taille caractéristique de la microstructure est du même ordre que la taille du pilier. Un effet plus fort est donc attendu dans le cas d'une microstructure hypertextempée par rapport à une microstructure irradiée.

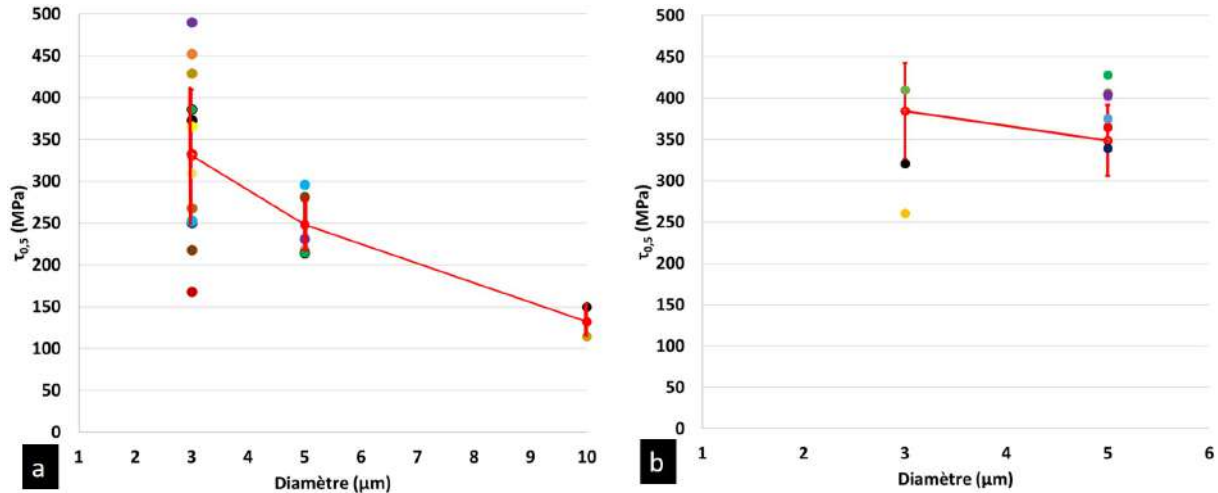


FIGURE 88. – Evolution de la cission résolue critique en fonction du diamètre du pilier à l'état a) non irradié et b) irradié

L'effet de taille est effectivement atténué à l'état irradié (Fig. 88b). En effet, les cissions résolues critiques sont similaires entre les diamètres  $3$  et  $5\mu\text{m}$  et la dispersion des résultats est du même ordre de grandeur même si elle est légèrement plus élevée dans les piliers de  $3\mu\text{m}$ . La forte atténuation de l'effet de taille - et de dispersion - à l'état irradié est qualitativement en accord avec les théories décrites plus haut : l'irradiation conduit à diminuer la taille caractéristique de la microstructure par la présence des défauts d'irradiation. Un effet de taille serait attendu pour des tailles de piliers plus faibles, ce qui est observé dans la thèse de Paccou [3].

Afin d'évaluer l'augmentation de la cission résolue critique induite par l'irradiation, il est nécessaire de s'affranchir de l'effet de taille. Ainsi, les valeurs obtenues pour les piliers de  $10$  microns à l'état non irradié sont considérées comme indépendantes de la taille, et comparées aux valeurs obtenues à l'état irradié (indépendantes de la taille). Ce durcissement du matériau suite à l'irradiation est évalué sur la Fig. 89 et conduit à une augmentation de cission critique de  $234\text{MPa}$ .

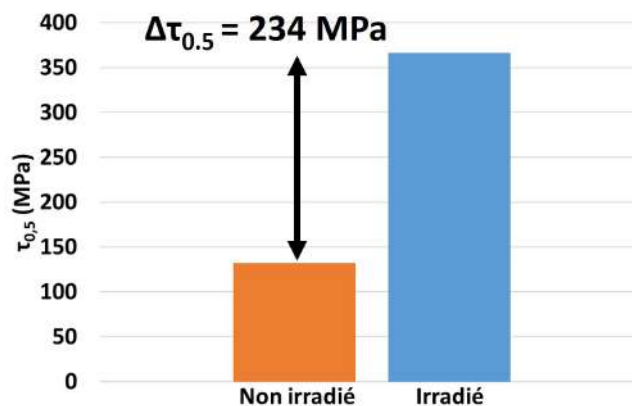


FIGURE 89. – Quantification du durcissement  $\Delta\tau_{0.5}$  suite à l'irradiation

Grâce au modèle de Taylor, il est possible d'évaluer l'effet de cette augmentation de cission critique

sur la limite d'élasticité  $\sigma_y$  du matériau polycristallin, avec  $\Delta\sigma_y = M\Delta\tau$ , avec  $M = 3.03$  le facteur de Taylor pour un matériau CFC. Cela conduit à  $\Delta\sigma_y = 709\text{MPa}$ . Cette valeur est nettement plus élevée que celle évaluée à partir des mesures de dureté (Tab. 11).

Le durcissement observé est dû à la présence de défaut d'irradiation agissant comme des barrières aux mouvements des dislocations. Ce durcissement peut être quantifié par le modèle de la barrière dispersée décrit dans le chapitre 1 :

$$\Delta\tau = \alpha\mu b\sqrt{Nd} \quad (30)$$

avec  $N$  et  $d$  respectivement la densité et la taille des défauts, sous l'hypothèse d'une seule population de défauts, et  $\alpha = 0.6$  obtenue par optimisation inverse à partir des données de Jin et al.[29]. Cela suppose également que la densité de dislocations n'est pas modifiée entre l'état irradié et l'état non irradié, ce qui apparaît raisonnable pour une dose faible de 1 dpa. Les valeurs de  $\alpha$  et  $\mu$  sont prises telles que dans le tableau 17. Avec la quantification des défauts d'irradiation au MET de Gupta [2] obtenue sur le même alliage avec la même dose d'irradiation dans le tableau 20, une augmentation de 187MPa est obtenue avec ce modèle.

Densité ( $\times 10^{22}/\text{m}^2$ )	Taille (nm)	$\Delta\tau$ ( $\alpha = 0.6$ )	$\Delta\tau_{exp}$
$1.5 \pm 0.6$	$13.6 \pm 4.4$	187	234

TABLEAU 20. – Évaluation du durcissement induit par la microstructure d'irradiation

La valeur du durcissement calculée est inférieure à celle issue des essais de micro-piliers même si elle est du même ordre de grandeur. Il faut cependant ajouter que seule la densité des boucles de Frank a été utilisée pour évaluer le durcissement alors que d'autres populations de défauts pourraient contribuer (dislocations, black dots etc...) même faiblement. Cela aurait pour effet d'augmenter le durcissement, ce qui suppose que la valeur de durcissement  $\Delta\tau$  ( $\alpha = 0.6$ ) calculée est légèrement sous-estimée.

De plus, il faut rappeler que la variation  $\Delta\tau_{exp}$  issues des essais de micro-piliers est calculée avec les valeurs de  $\Delta\tau_{0.5}$  et est donc mécaniquement plus élevée ce qui introduit un biais. Il faudrait comparer la valeur de durcissement d'irradiation du modèle avec celle obtenue lors des essais d'indentation (Tab. 11). Cependant, une différence subsiste entre le durcissement évalué à partir du modèle  $\Delta\sigma_y = 567\text{MPa}$  et celui des essais d'indentation  $\Delta\sigma_y = 394\text{MPa}$ . Plusieurs facteurs pourraient expliquer la différence entre les deux valeurs : le mode de déformation lors des essais d'indentation ou bien la valeur du paramètre de contribution des boucles de Frank  $\alpha$  choisie de telle sorte à reproduire les données de Jin et al.[29].

Pour ce qui est de l'étude de l'érouissage à l'état non irradié, comme vu dans le tableau 18, l'érouissage semble globalement similaire dans les piliers de 3, 5 $\mu\text{m}$  et 10 $\mu\text{m}$ . On pourrait s'attendre à ce que les piliers les plus grands montrent un érouissage plus important car ils fournissent une probabilité d'avoir des sources de dislocations plus importante et un volume assez grand pour permettre la multiplication et l'interaction des dislocations nécessaires à l'érouissage. Ces résultats expérimentaux nécessiteraient donc d'être confirmés par des essais additionnels pour les piliers de 10 $\mu\text{m}$ . Comme expliqué précédemment, ces tailles de piliers sont les plus chronophages et présentent le plus de risque d'enfoncement. Il est à noter que l'érouissage ne semble pas dépendre du nombre de systèmes de glissement prévu dans le tableau 14 ni observé. En effet, les piliers présentent très majoritairement un fort érouissage mais les images post-essai montrent aussi bien des piliers où un seul système de glissement activé est visible et d'autres où plusieurs systèmes sont visibles. Comme vu dans l'étude de sensibilité de la section 2.3.2 l'un des principaux facteurs qui influe sur la pente d'érouissage est le facteur de forme qui a tendance à diminuer la valeur de cette pente. Les facteurs de forme des piliers utilisés varient entre 1.7 et 3 mais ne semblent pas suffisant pour expliquer ce fort érouissage. L'autre paramètre susceptible d'augmenter la pente d'érouissage est le frottement entre le haut du pilier et l'indentateur qui pourrait produire les valeurs de pentes observées. Cependant, la faible raideur latérale du dispositif d'essais ne semble pas permettre de justifier cette hypothèse. A l'état irradié, le tableau 19 montre des pentes d'érouissage globalement plus élevées sur les piliers de 5 $\mu\text{m}$  par rapport



à ceux de  $3\mu\text{m}$ . La valeur moyenne des piliers de  $3\mu\text{m}$  présente cependant une forte dispersion due à l'essai sur le pilier P3m-304IRR-2. La comparaison des pentes d'écroûissage entre l'état non irradié et irradié n'aboutit pas à une nette différence, rendant difficile de conclure sur un effet d'irradiation.

La campagne expérimentale d'essais de compression sur micro-piliers a permis de mettre en évidence, sur le matériau 304L, les effets de taille, de dispersion et d'irradiation sur les propriétés mécaniques, et plus particulièrement sur la cission résolue critique. D'un point de vue qualitatif, ces effets étaient attendus d'après l'étude bibliographique. Cependant, tout l'intérêt des essais réalisés est d'avoir pu quantifier, ces effets sur le matériau d'intérêt pour l'étude du phénomène d'IASCC. Dans le paragraphe suivant, le possibilité de reproduire ces résultats à l'aide de simulations numériques est étudiée.

### 3. Modélisation du comportement mécanique intragranulaire à l'état non irradié

Dans cette partie, la loi de comportement présentée dans la section 2.3.1 est utilisée pour simuler la compression des micro-piliers dans un premier temps à l'état non irradié. La loi est enrichie afin de permettre de reproduire l'effet de taille et la dispersion des limites d'élasticité observés expérimentalement.

#### 3.1. Géométrie des piliers

Les simulations sont réalisées avec la géométrie et le maillage présentés dans la section 2.3, avec  $\Phi = 2$ ,  $\beta = 2^\circ$  et une orientation cristallographique correspondant à du glissement double. Cette géométrie unique est prise dans le cadre de cette première étude même si la dispersion vient aussi de la variation des paramètres géométriques.

#### 3.2. Loi de comportement

La loi de plasticité cristalline utilisée dans la section 2.3 est reprise pour simuler la déformation plastique du pilier. Cependant dans ces simulations la loi de comportement est modifiée pour permettre de reproduire l'effet de taille et la dispersion des limites d'élasticité en se basant sur les travaux de Wijnjen et al. [32]. Ces derniers proposent deux modifications. La première porte sur la prise en compte d'un terme de nucléation  $\tau_{nuc}^s$  dans la cission résolue critique :

$$\tau_c^\alpha = \tau_{nuc}^s + \tau_0 + \mu b_D \sqrt{\sum_{u=1}^{12} a^{\alpha u} \rho_D^u} \quad (31)$$

Ce terme pilote donc le comportement plastique du matériau lorsqu'il est grand devant les deux autres correspondant à la friction du réseau cristallin et à la résistance due à la forêt de dislocations et modélise le cas où la première étape de la plasticité est la nucléation de dislocations. Lorsque  $\tau_{nuc}^s \ll \tau_0$ , l'équation utilisée dans la section 2.3 est retrouvée. La valeur de  $\tau_{nuc}^s$  dépend de la probabilité de la présence d'une source de dislocations sur le plan de glissement et suit une loi de distribution dont la densité de probabilités est donnée par :

$$p(\tau_{nuc}) = f_{src} g^+(\tau_{nuc}) + (1 - f_{src}) g^-(\tau_{nuc}) \quad (32)$$

avec  $g^+(\tau_{nuc})$  et  $g^-(\tau_{nuc})$  les densités de probabilités associées à la présence ou non de sources de dislocations dans le plan de glissement.  $f_{src}$  est lié à la densité de sources  $\rho_{src}$  - qui est la donnée d'entrée du modèle - par la relation :

$$f_{src} = \rho_{src} A d \quad (33)$$

avec  $A$  l'aire du plan de glissement et  $d$  la distance entre deux plans de glissement. Le choix des densités de probabilités  $g^+(\tau_{nuc})$  et  $g^-(\tau_{nuc})$  repose sur des hypothèses physiques. Pour la première,

en se basant sur le modèle "single-arm sources", Wijnen et al. [32] propose :

$$g^+(\tau_{nuc}) = \max \left\{ 2 \left( \frac{\tau_{nuc}^0}{\tau_{nuc}} \right)^2 \left( \frac{1}{\tau_{nuc}^0} - \frac{1}{\tau_{nuc}} \right), 0 \right\} \quad (34)$$

avec  $\tau_{nuc}^0 = \alpha\mu b/R^*$ , et  $R^* = R(1 + \cos\phi)/(2\cos\phi)$ ,  $R$  étant le rayon du pilier et  $\phi$  l'angle du plan de glissement par rapport à l'axe du pilier. La deuxième densité de probabilité s'écrit :

$$g^-(\tau_{nuc}) = \mathcal{N} \left( \tau_{nuc}^\infty, \frac{\tau_{nuc}^\infty}{100} \right) \quad (35)$$

avec  $\mathcal{N}$  la loi normale et  $\tau_{nuc}^\infty = [\alpha\mu b]/[2\pi d]$ . Les Eq. 32, 33, 34, 35 décrivent le fait qu'il peut y avoir ou non des sources de dislocations dans le plan considéré. S'il n'y en a pas, la contrainte de nucléation est égale à la valeur théorique. S'il y en a, la contrainte de nucléation dépend de la taille du pilier. La pondération entre les deux cas dépend de la densité de sources  $\rho_{src}$ . En l'état, l'utilisation de ce modèle nécessite de modéliser tous les plans de glissement dans le pilier, ce qui n'est pas réalisable pour les tailles de piliers considérés. La seconde modification introduite par Wijnen et al. [32] est de rassembler les plans par famille dans des bandes de largeur  $l$  qui est un paramètre du modèle. La contrainte de nucléation dans chaque bande est considérée constante et suivant la loi du maillon faible :

$$p_{min}(\tau_{nuc}) = n(1 - P(\tau_{nuc}))^{n-1}p(\tau_{nuc}) \quad (36)$$

avec  $P(\tau_{nuc})$  la fonction de répartition associée à l'Eq. 32, et  $n = l/d$  le nombre de plans de glissement dans la bande. La contrainte de nucléation dans chaque bande est finalement choisie selon la densité de probabilité décrite par l'Eq. 36. Enfin, la densité de dislocations initiale totale est prise égale à la valeur obtenue par les observations MET, à savoir  $\rho_{ini} = 9.10^{12}m^{-2}$ . L'orientation cristallographique est choisie comme précédemment aléatoirement sous la contrainte d'activation d'un glissement double sous chargement uniaxial.

Les piliers de rayon  $R$  ont été découpés en bandes de largeur  $l$  et d'aire  $A$  selon les normales aux plans de glissement (Fig.90).

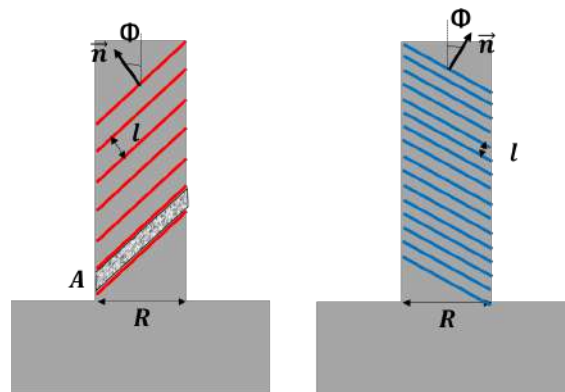


FIGURE 90. – Découpages des piliers en bandes de glissement selon les normales normales aux plans de glissement

En définitif, les paramètres en entrées du modèle sont :  $\rho_{src}$ ,  $l$ ,  $\alpha\mu$  et  $b$  (respectivement : densité de sources, largeur de bandes, module de cisaillement et vecteur de Burgers).

### 3.3. Maillage des piliers

Afin de rester à nombre de mailles constant dans la largeur des bandes, le nombre d'éléments dans le maillage est augmenté en même temps que le diamètre du pilier. Ainsi le nombre moyen de mailles par largeur de bande est un paramètre constant du modèle.

### 3.4. Chargement mécanique

Les conditions aux limites sont les mêmes que celles utilisées dans la section 2.3. Afin de simplifier le calcul, un déplacement vertical est directement appliqué sur le haut du pilier. Le modèle étant désormais stochastique via le tirage aléatoire à chaque simulation des contraintes de nucléation par bandes selon l'Eq. 36, entre 5 et 10 simulations sont réalisées par taille de piliers.

### 3.5. Post-traitement et étude de sensibilité

Les forces de réaction du matériau et le champ de déplacements sont extraits de la simulation et convertis en données de contraintes en fonction de la déformation grâce aux dimensions des piliers. Du fait de la nature stochastique du modèle, les simulations aux données d'entrées identiques aboutissent à des courbes contrainte / déformation différentes.

L'influence du nombre de mailles par largeur de bande (Fig.91) est étudiée. Les résultats de simulations semble montrer une certaine sensibilité par rapport au nombre de mailles par largeur de bande Fig. 92). Cependant doubler le nombre de maille par largeur de bande ne fait pas varier de manière importante la dispersion des courbes contrainte / déformation (Fig. 92).

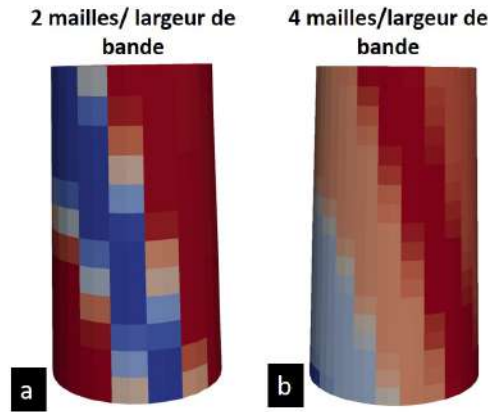


FIGURE 91. – Nombre de mailles par largeur de bande. Chaque couleur correspond à une valeur de contrainte de nucléation

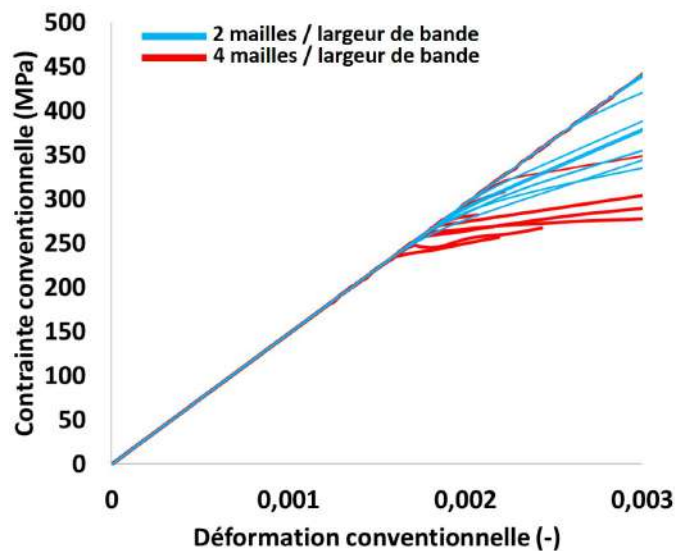


FIGURE 92. – Sensibilité des résultats en fonction du nombre de mailles par largeur de bande pour un pilier de  $3\mu\text{m}$  avec  $\rho_{src}=2.10^7\text{m}^{-3}$  et  $l = 0.5\mu\text{m}$

Enfin l'impact de la largeur de bande est aussi analysé. Doubler la valeur de ce paramètre ne semble

pas non plus influencer de manière significative sur l'écart entre la plus haute et la plus basse valeur de cission résolue critique (Fig. 93).

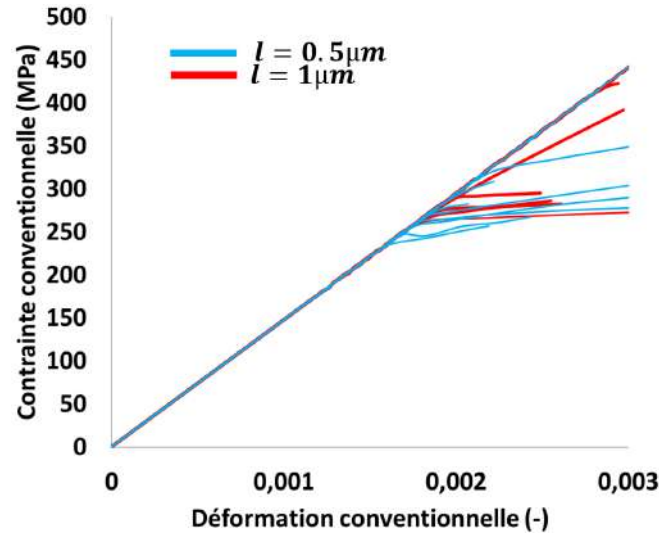


FIGURE 93. – Sensibilité des résultats en fonction de la largeur de bande pour un pilier de  $3\mu\text{m}$  avec  $\rho_{src}=2.10^7\text{m}^{-3}$  et 2 mailles par bande

À l'exception de la densité de sources de dislocations, les autres paramètres semblent peu influencer sur la plage de cissions critiques résolues obtenues. À noter néanmoins qu'une analyse de convergence plus poussée serait nécessaire. Pour la suite des simulations, les valeurs suivantes seront donc utilisées :  $l = 1\mu\text{m}$  et 2 mailles par largeur de bandes.

### 3.6. Résultats

À l'issue de l'analyse de sensibilité, il ne reste plus qu'un paramètre à ajuster, à savoir la densité de sources. Cette dernière est optimisée afin de reproduire l'évolution de la moyenne et de la dispersion de la cission résolue critique avec la taille du pilier. Une étude de sensibilité sur la densité de source  $\rho_{src}$  est réalisée (Fig.94) pour déterminer la valeur qui permet de retrouver les résultats expérimentaux. Une valeur de  $\rho_{src} = 2.10^7\text{m}^{-3}$  permet de retomber sur la plage de valeurs des  $\tau_{0,5}$  expérimentaux des piliers de  $3\mu\text{m}$ .

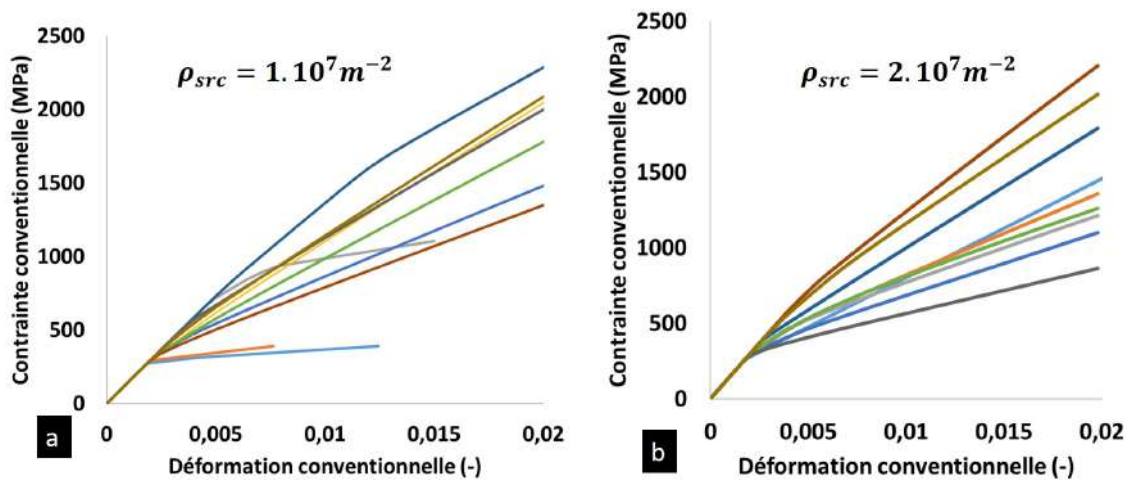


FIGURE 94. – Effet de la valeur de  $\rho_{src}$  a)  $1.10^7\text{m}^{-3}$  b)  $2.10^7\text{m}^{-3}$  sur la valeur et la dispersion des limites d'élasticité avec  $l = 1\mu\text{m}$  et 2 mailles par bande

Pour une valeur de  $\rho_{src} = 2.10^7\text{m}^{-3}$  pour tous les piliers, les valeurs de  $\tau_{0,5}$  sont tracées en fonction du diamètre du pilier et comparées aux données expérimentales sur la figure 95.

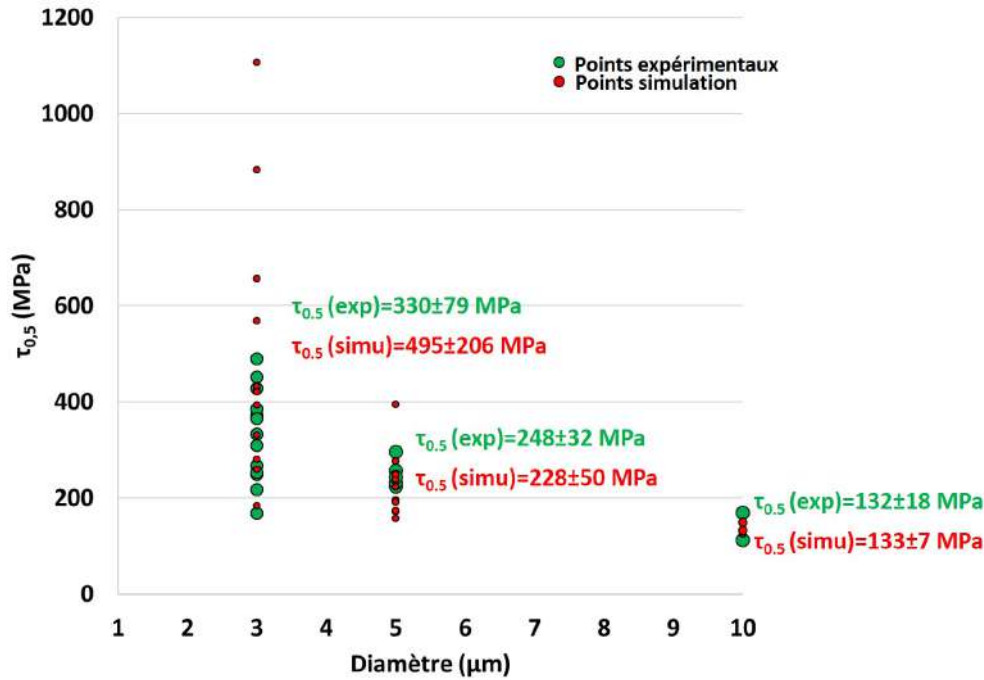


FIGURE 95. – Évolution du  $\tau_{0.5}$  en fonction du diamètre du pilier : comparaison entre les résultats du modèle stochastique et les données expérimentales

Les résultats du modèle semblent en bon accord avec les données expérimentales pour les piliers de 5 et  $10\mu\text{m}$ , que ce soit en ce qui concerne l'évolution moyenne avec la taille du pilier et la dispersion associée à chaque taille. Il faut cependant nuancer ce constat car les simulations sur les piliers de  $3\mu\text{m}$  présentent une limite d'élasticité et une dispersion plus importante par rapport aux données expérimentales. Le paramètre le plus influent sur ces valeurs étant la densité de sources  $\rho_{src}$ , il faudrait une optimisation plus avancée pour déterminer une valeur qui donne une meilleure correspondance. Cela confirme en tout cas que le comportement en déformation des micro-piliers, surtout de faible diamètre, est grandement lié aux sources de dislocations.

Il est aussi possible que les contraintes de nucléation expérimentales suivent une distribution plus étroite que celle présentée dans l'Eq. 36. La faible dispersion dans les piliers de  $10\mu\text{m}$  montre quant à elle que le caractère stochastique des mécanismes de déformation a laissé place à des mécanismes plus déterministes. L'effet de taille est aussi très atténué à partir des piliers de  $10\mu\text{m}$ . La densité de sources de dislocations utilisée aboutit à une faible probabilité de rencontrer plus d'une source par bande de glissement, ce qui est typique de la valeur rencontrée [32]. L'écrouissage issu de ces simulations est globalement plus élevé que celui observé expérimentalement et avec une dispersion plus importante pour les piliers de 3 et  $5\mu\text{m}$ . Cependant, il faut garder en tête que ces simulations ont été conduites jusqu'à 2% de déformation tandis que les essais expérimentaux ont été conduits jusqu'à des niveaux de déformation bien plus élevés.

Ces simulations permettent de vérifier la validité de ce type de modèle et des paramètres de la loi de comportement à prédire l'entrée en déformation plastique du matériau à l'état non irradié (pour les faibles niveaux de déformation  $<0.5\%$ ). Le modèle inclut la prédiction des effets de taille et effet stochastique et ce de manière quasi-quantitative, ce qui n'avait pas été réalisé à ce jour pour le matériau d'intérêt.

Cette étude préliminaire appelle cependant à des simulations supplémentaires pour obtenir un meilleur accord qualitatif et quantitatif. En plus d'une optimisation plus avancée de la densité  $\rho_{src}$ , il faudrait réaliser des études de convergence des résultats sur les paramètres de largeur de bande  $l$  et de mailles par largeur de bandes, dont seules des études de sensibilité ont été effectuées ici.

La modélisation utilisée et calibrée dans cette partie permet de reproduire le comportement intragranulaire de l'acier 304L à l'état non irradié. Dans le paragraphe suivant, la possibilité de reproduire les

essais à l'état irradié est investiguée.

## 4. Modélisation du comportement mécanique intragranulaire à l'état irradié

Dans cette partie, une extension de la loi de plasticité cristalline proposée dans [8] est utilisée pour simuler les essais sur les piliers de 3 et 5  $\mu\text{m}$  à l'état irradié. Les courbes des simulations sont comparées aux courbes expérimentales. La géométrie du pilier simulé, le maillage et les conditions aux limites sont identiques à ceux utilisés pour l'analyse de sensibilité. Seule la loi de comportement est modifiée.

### 4.1. Loi de comportement

La loi de comportement de la section 2.3.1 est reprise en ajoutant la contribution des défauts d'irradiation - boucles de Frank - à l'équation donnant la cission résolue critique [8] :

$$\tau_c^\alpha = \tau_0 + \mu b_D \sqrt{\sum_{u=1}^{12} a^{\alpha u} \rho_D^u} + \mu b_D \alpha_L \sqrt{\sum_{p=1}^4 \rho_L^p \Phi_L} \quad (37)$$

avec  $\rho_L^p$  la densité de boucles de Frank dans chaque plan d'habitat, et  $\Phi_L$  la taille des boucles. Han et al. [8] ont proposé une loi d'évolution des boucles de Frank avec le glissement plastique. Pour les faibles niveaux de déformation et d'irradiation considérés ici, cette équation n'est pas utilisée. Les valeurs de paramètres additionnels du modèle sont synthétisées dans le tableau 21 :

$\alpha_L$	$\rho_D$	$\Phi_L$	$\rho_L$
0.6	$9 \cdot 10^{12} \text{m}^{-2}$	$13.6 \pm 4.4 \text{ nm}$	$1.5 \pm 0.6 \cdot 10^{22} \text{m}^{-3}$

TABLEAU 21. – Paramètres de la loi de comportement à l'état irradié

la valeur de  $\tau_0$  utilisée est issue de l'équation présentée dans le tableau 17.

### 4.2. Résultats

Chaque compression de micro-pilier avec son orientation cristallographique propre est simulée. Les courbes obtenues sur les piliers de 3  $\mu\text{m}$  sont comparées aux courbes expérimentales en déformation plastique sur la Fig. 96.

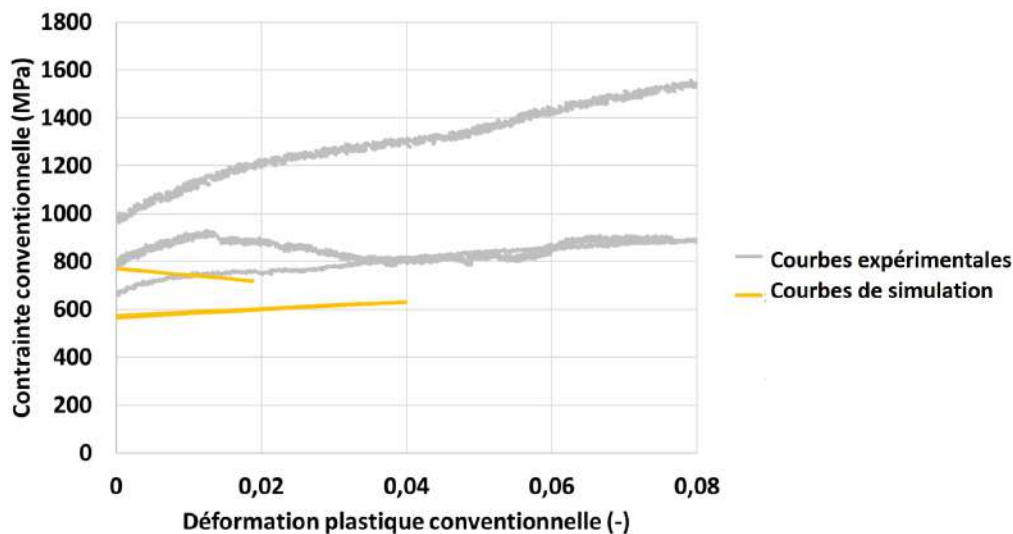


FIGURE 96. – Simulations des essais de compression de micro-piliers de 3  $\mu\text{m}$

Les limites d'élasticité obtenues avec la loi de comportement pour chaque pilier sont du même ordre de grandeur que les valeurs des courbes expérimentales. L'écroutissement obtenu par simulation est aussi globalement similaire à l'écroutissement moyen obtenu expérimentalement avec cependant un cas particulier de simulation présentant un adoucissement.

Les résultats de simulations de la compression de micro-piliers de  $5\mu\text{m}$  de diamètre sont aussi comparées aux données expérimentales en déformation plastique sur la Fig. 97.

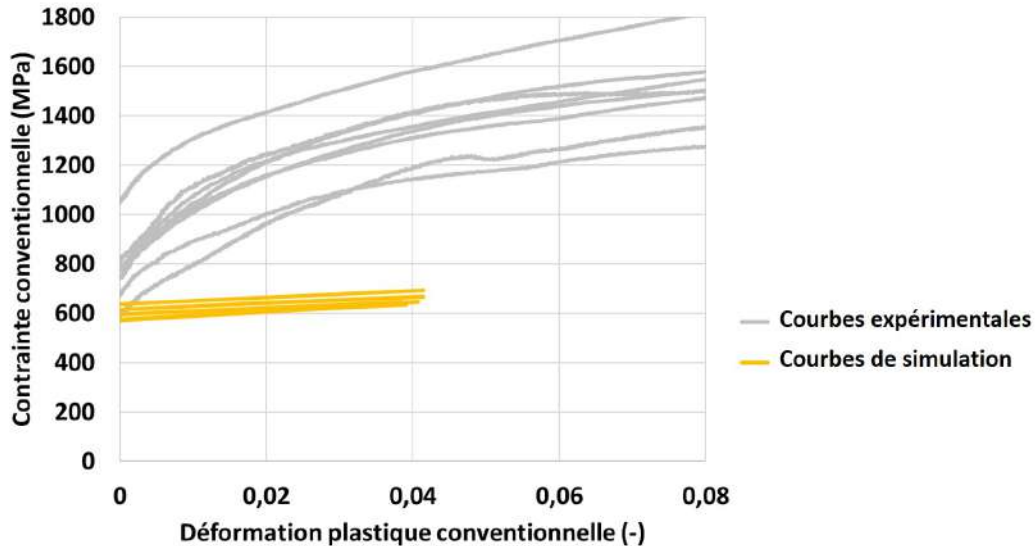


FIGURE 97. – Simulations des essais de compression de micro-piliers de  $5\mu\text{m}$

Les limites d'élasticité issues des simulations semblent bien en accord avec les valeurs basses des courbes expérimentales. Cependant, l'écroutissement observé expérimentalement est plus élevé que celui prédit par la simulation. Les simulations ne présentent pas le fort écroutissement initial observé dans les expériences, ce qui pose la question de l'origine physique de ce phénomène observé expérimentalement.

Les résultats de simulations montrent que les limites d'élasticité obtenues sont globalement en accord avec les données expérimentales. Cependant ces valeurs issues de la simulations ont tendance à être plus basses que les valeurs expérimentales. Les valeurs utilisées de densité de dislocations initiale mais surtout de défauts d'irradiation en entrée du modèle peuvent être à l'origine de cette différence. De plus, il semblerait qu'avec les valeurs actuelles des paramètres de loi de comportement, la simulation de l'écroutissement ne soit pas optimale. Cela appelle donc à une nouvelle série de simulations pour une optimisation plus avancée des paramètres d'écroutissement de la loi de comportement.

## 5. Conclusions et perspectives

Des essais de compression de micro-piliers monocristallins en acier 304L hypere trempé non irradiés et irradiés ont été réalisés in-situ en MEB à température ambiante pour des diamètres allant de 3 à  $10\mu\text{m}$ . Les courbes contrainte - déformation permettent d'estimer les valeurs des cissions résolues critiques et des pentes d'écroutissement et dans une moindre mesure, des pentes d'élasticité. Une analyse de sensibilité basée sur des simulations par éléments finis a montré que des facteurs expérimentaux comme l'élanement du pilier, l'alignement de l'indenteur ou la présence de frottement peuvent grandement affecter les valeurs mesurées. Les résultats de cissions résolues critiques  $\tau$  sont quant à eux moins influencés par la variation des paramètres expérimentaux. Des valeurs obtenues pour différents diamètres à l'état non irradié et irradié, il est possible d'observer trois phénomènes.

- Tout d'abord, un effet de taille peut être constaté par la diminution de la valeur moyenne de  $\tau$  lorsque le diamètre augmente de 3 à  $10\mu\text{m}$  à l'état non irradié. Cet effet de taille est lié à deux



phénomènes présentés dans le chapitre 1 qui se résument à la difficulté de trouver des dislocations et à activer des sources de dislocations à mesure que le diamètre du pilier diminue.

- La seconde observation est une dispersion des valeurs plus prononcée à  $3\mu\text{m}$  comparées aux piliers de 5 et  $10\mu\text{m}$  qui peut s'expliquer par un effet stochastique lié à l'effet de taille : plus le pilier est petit, plus la probabilité d'activer certaines sources ou de rencontrer certains obstacles devient déterminante dans le mécanisme de déformation. Cette probabilité est bien sûr très différente selon le pilier car très liée à la microstructure locale. Ces résultats expérimentaux permettent d'étendre les observations rapportées dans Paccou et al. [9] et d'enrichir significativement la base expérimentale sur un matériau d'intérêt dans le cadre de l'étude du phénomène d'IASCC.
- Enfin, le dernier phénomène observé est un durcissement qui peut être attribué à la microstructure d'irradiation. En comparant la valeur moyenne de la limite d'élasticité à l'état irradié avec celle des piliers de  $10\mu\text{m}$  non irradiés (supposés sans effet de taille sur les valeurs), un  $\Delta\tau$  de 234MPa est quantifié. Ce durcissement peut être, au moins qualitativement, relié à la quantité de défauts d'irradiation estimés avec les analyses MET.

Des simulations numériques ont été réalisées afin de reproduire ces résultats. Une loi de plasticité cristalline utilisée pour décrire le comportement des aciers inoxydables austénitiques à l'état non irradié et irradié a été étendue pour prendre en compte les effets de taille et de dispersion. Cette extension, proposée dans la littérature, repose sur la prise en compte d'une contrainte de nucléation des dislocations qui dépend, via une loi de probabilités à bases physiques, de la taille du plan de glissement considéré. Après calibration de la densité de sources, le modèle permet de reproduire l'évolution de la cission résolue critique moyenne en fonction de la taille du pilier, ainsi que la dispersion associée à chaque taille. Il faut cependant nuancer ce résultat car la dispersion et la limite d'élasticité maximale pour les piliers de  $3\mu\text{m}$  issues du modèle sont plus importantes que celles observées expérimentalement. La description quantitative par le modèle de la pente d'écrouissage reste néanmoins à investiguer. Dans la limite des grands piliers, le modèle de nature stochastique redevient déterministe. Enfin, si la loi permet une évaluation acceptable de la limite d'élasticité dans les essais à l'état irradié, elle ne permet pas de reproduire de manière satisfaisante les pentes d'écrouissage. Celles-ci semblent d'ailleurs mieux reproduites dans les piliers de  $3\mu\text{m}$  comparés au piliers de  $5\mu\text{m}$ . Une amélioration des simulations est à prévoir, par optimisation inverse des paramètres restants de la loi de comportement, pour obtenir un meilleur accord quantitatif avec les résultats expérimentaux, en parallèle d'une étude expérimentale pour comprendre le fort écrouissage initial observé pour les piliers de  $5\mu\text{m}$ .

Cette étude a permis de mieux quantifier et de proposer une modélisation du comportement intragranulaire de l'acier inoxydable austénitique 304L à l'état non irradié et irradié en y intégrant les effets d'échelle et les effets stochastiques de la plasticité. La perspective de cette étude est de conduire ces essais à haute température puisque les propriétés ont été déterminées à température ambiante alors que la température d'intérêt pour les internes de cuve est de 300-350°C.





# Bibliographie

- [1] P.J. Maziasz and J.T. Busby. Properties of Austenitic Steels for Nuclear Reactor Applications. In Comprehensive Nuclear Materials, pages 267 – 283. Elsevier, Oxford, 2012.
- [2] J. Gupta. Intergranular stress corrosion cracking of ion irradiated 304L stainless steel in PWR environnement. PhD thesis, Université Toulouse 3 - Paul Sabatier, 2016.
- [3] E. Paccou. Etude de l'évolution des propriétés mécaniques et de la sensibilité à la fissuration intergranulaire en fonction de la microstructure d'irradiation d'un acier irradié aux ions lourds. PhD thesis, Université Toulouse 3 - Paul Sabatier, 2019.
- [4] B. Tanguy. Corrosion sous contrainte assistée par l'irradiation des aciers inoxydables austénitiques (IASCC). Revue de Métallurgie, 108(1) :39–46, 2011.
- [5] F. Bachmann, R. Hielscher, and H. Schaeben. Texture analysis with MTEX-free and open source software toolbox. In Solid state phenomena, volume 160, pages 63–68. Trans Tech Publ, 2010.
- [6] P. Guiraldenq and O. H. Duparc. The genesis of the Schaeffler diagram in the history of stainless steel. Metallurgical Research & Technology, 114(6) :613, 2017.
- [7] J.K. Mackenzie. Second paper on statistics associated with the random disorientation of cubes. Biometrika, 45(1-2) :229–240, 1958.
- [8] X. Han. Modélisation de la fragilisation due au gonflement dans les aciers inoxydables austénitiques irradiés. PhD thesis, École nationale supérieure des Mines de Paris, 2012.
- [9] E. Paccou, B. Tanguy, and M. Legros. Micropillar compression study of Fe-irradiated 304L steel. Scripta Materialia, 172 :56–60, 2019.
- [10] P.-O. Barrioz. Rupture ductile des matériaux CFC irradiés. PhD thesis, Université Paris Saclay, 2019.
- [11] G. S. Was, J. T. Busby, T. Allen, E. A. Kenik, A. Jansson, S. M. Bruemmer, J. Gan, A. D. Edwards, P. M. Scott, and P. L. Andreson. Emulation of neutron irradiation effects with protons : validation of principle. Journal of Nuclear Materials, 300(2-3) :198–216, 2002.
- [12] G. S. Was. Fundamentals of Radiation Materials Science. Springer edition, 2007.
- [13] J.-P. Crocombette and C. Van Wambeke. Quick calculation of damage for ion irradiation : implementation in iradina and comparisons to srim. EPJ Nuclear Sciences & Technologies, 5 :7, 2019.
- [14] R. E. Stoller, M. B. Toloczko, G. S. Was, A. G. Certain, S. Dwaraknath, and F. A. Garner. 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, 2013.
- [15] J. T. Busby, M. C. Hash, and G. S. Was. The relationship between hardness and yield stress in irradiated austenitic and ferritic steels. Journal of Nuclear Materials, 336(2-3) :267–278, 2005.
- [16] C. Pokor, Y. Brechet, P. Dubuisson, J.-P. Massoud, and X. Averty. Irradiation damage in 304 and 316 stainless steels : Experimental investigation and modeling. Part II : Irradiation induced hardening. Journal of Nuclear Materials, 326(1) :30–37, 2004.

- [17] D. Raabe, D. Ma, and F. Roters. Effects of initial orientation, sample geometry and friction on anisotropy and crystallographic orientation changes in single crystal microcompression deformation : A crystal plasticity finite element study. Acta Materialia, 55(13) :4567–4583, 2007.
- [18] D. Kiener, C. Motz, and G. Dehm. Micro-compression testing : A critical discussion of experimental constraints. Materials Science and Engineering : A, 505(1-2) :79–87, 2009.
- [19] R. Soler, J. M. Molina-Aldareguia, J. Segurado, J. Llorca, R. I. Merino, and V. M. Orera. Micro-pillar compression of LiF [1 1 1] single crystals : effect of size, ion irradiation and misorientation. International Journal of Plasticity, 36 :50–63, 2012.
- [20] J.M. Scherer, J. Hure, F. Le bourdais, S. Sao-Joao, G. Kermouche, R. Madec, S. Forest, J. Besson, and B. Tanguy. Tensile and micro-compression behaviour of aisi 316l austenitic stainless steel single crystals at 300°C : experiments, modeling and simulations. Under preparation, 2023.
- [21] J.-M. Scherer. Localisation de la déformation et rupture ductile dans les monocristaux : application aux aciers austénitiques inoxydables irradiés. PhD thesis, Mines ParisTech, 2020.
- [22] G. Monnet and C. Mai. Prediction of irradiation hardening in austenitic stainless steels : Analytical and crystal plasticity studies. Journal of Nuclear Materials, 518 :316–325, 2019.
- [23] R. Madec and L. P. Kubin. Dislocation strengthening in FCC metals and in BCC metals at high temperatures. Acta Materialia, 126 :166–173, 2017.
- [24] J. Hure, S. El Shawish, L. Cizelj, and B. Tanguy. Intergranular stress distributions in polycrystalline aggregates of irradiated stainless steel. Journal of Nuclear Materials, 476 :231–242, 2016.
- [25] D. Kiener, C. Motz, and G. Dehm. Micro-compression testing : A critical discussion of experimental constraints. Materials Science and Engineering : A, 505(1-2) :79–87, 2009.
- [26] M. Schamel, J. M. Wheeler, C. Niederberger, J. Michler, A. Sologubenko, and R. Spolenak. Cyclic loading for the characterisation of strain hardening during in situ microcompression experiments. Philosophical Magazine, 96(32-34) :3479–3501, 2016.
- [27] I. N. Sneddon. The relation between load and penetration in the axisymmetric Boussinesq problem for a punch of arbitrary profile. International Journal of Engineering Science, 3(1) :47–57, 1965.
- [28] G. Monnet and M. A. Pouchon. Determination of the critical resolved shear stress and the friction stress in austenitic stainless steels by compression of pillars extracted from single grains. Materials letters, 98 :128–130, 2013.
- [29] H.-H. Jin, E. Ko, J. Kwon, S. S. Hwang, and C. Shin. Evaluation of critical resolved shear strength and deformation mode in proton-irradiated austenitic stainless steel using micro-compression tests. Journal of Nuclear Materials, 470 :155–163, 2016.
- [30] J. R. Greer and W. D. Nix. Nanoscale gold pillars strengthened through dislocation starvation. Physical Review B, 73(24), 2006.
- [31] F. Momprou, M. Legros, A. Sedlmayr, D. S. Gianola, D. Caillard, and O. Kraft. Source-based strengthening of sub-micrometer Al fibers. Acta Materialia, 60(3) :977–983, 2012.
- [32] J. Wijnen, R. Peerlings, J. Hoefnagels, and Marc G.D. Geers. A discrete slip plane model for simulating heterogeneous plastic deformation in single crystals. International Journal of Solids and Structures, 228 :111094, 2021.

## Chapitre 3

# Étude de la fissuration intergranulaire d'un acier austénitique $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$ oxydé en milieu REP



## Introduction

La revue bibliographique présentée dans le chapitre 1 a mis en évidence la nécessité d'obtenir des données quantitatives en ce qui concerne les propriétés de rupture des joints de grains des aciers inoxydables austénitiques oxydés en milieu REP. Dans cette partie, une approche couplée expérimentale et numérique est donc mise en place pour quantifier ces paramètres.

L'acier choisi a un taux de Si plus important que les 304/316 et un taux de Cr plus faible. Les données disponibles dans la littérature montrent que cela augmente sa sensibilité à la corrosion et à la fissuration intergranulaire en milieu REP. Cette sensibilité est confirmée par la réalisation d'un essai de traction lente en milieu REP. Des essais d'oxydation de différentes durées en milieu REP sont réalisés afin de quantifier les caractéristiques des oxydes formés en surface et aux joints de grains (épaisseur, composition, structure cristallographique) à l'aide d'observations MEB et MET. Dans le but de pouvoir déterminer les paramètres de rupture des joints de grains oxydés, des essais de flexion sur micro-poutres sont réalisés à température ambiante. Ce type d'essai a l'avantage de permettre de tester les joints de grains oxydés individuellement et d'aller jusqu'à leur rupture. Pour cela, des cartographies EBSD sont mises en œuvre pour repérer et caractériser les joints de grains suite à l'oxydation. Des micro-poutres bi-cristallines sont ensuite usinées l'aide d'un MEB-FIB puis testées in-situ à température ambiante dans le MEB. Les essais sont analysés afin d'accéder à l'énergie surfacique de rupture  $\gamma_c$  et à la résistance des joints de grains  $\sigma_c$  de manière analytique dans un premier temps puis à l'aide de simulations numériques par éléments finis sans et avec zones cohésives. Cette démarche est résumée sur la Fig. 98.

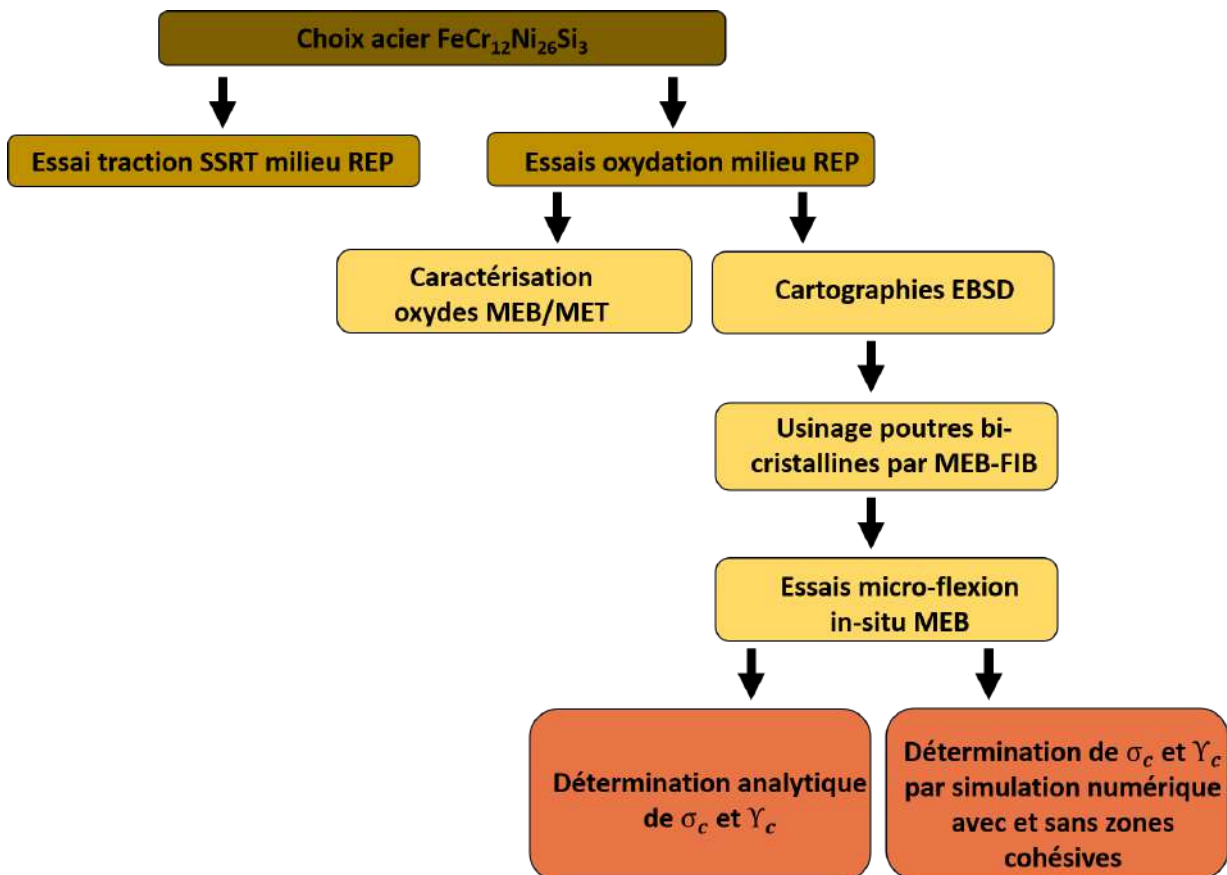


FIGURE 98. – Méthodologie utilisée pour déterminer les paramètres de rupture des joints de grains d'un acier austénitique oxydé en milieu REP

# 1. Matériau de l'étude $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$

## 1.1. Composition chimique

L'acier dont la composition chimique est présentée dans le tableau 52 a été sélectionné pour cette étude. La teneur en Chrome ( $\geq 10.5\%$ ) confère à cet alliage un caractère inoxydable, et la teneur en Nickel une microstructure de type austénitique. Les différences de composition chimique (appauvrissement en chrome et enrichissement en silicium), comparées aux aciers de type 304 / 316, permettent de sensibiliser l'acier à la corrosion. En particulier, l'augmentation du taux de Si s'accompagne d'une sensibilité à la corrosion et à la rupture intergranulaire en milieu REP [1, 2]. Plusieurs hypothèses sont avancées pour expliquer ce phénomène. Le silicium est soupçonné de fragiliser l'interface métal/couche passive et d'amener à une décohésion de la couche passive [2]. Le métal qui n'est plus protégé va ainsi se réoxyder et le taux d'oxydation va augmenter. Ensuite, parmi les autres éléments présents (Fe, Cr, Ni...) aux joints de grains, Si semble être le plus facilement oxydable [3] et aboutir à un taux de corrosion plus élevé. L'oxyde est aussi plus facilement soluble dans l'eau, ce qui offre donc une protection passive plus faible. D'autres travaux montrent une capacité du Si à diminuer l'énergie de faute d'empilement (Stacking Fault Energy - SFE) [4]. Une SFE plus basse entraîne une concentration des mouvements des dislocations sur certains plans. Ces dislocations peuvent s'empiler aux joints de grains en cas de déformation et provoquer une augmentation de la contrainte, ce qui peut mener à la rupture. Cet effet n'intervient qu'en cas de déformation plastique, montrant donc que le Silicium joue un rôle dans les mécanismes de plasticité. A noter enfin que pour les alliages de type 304 / 316, le silicium ségrège aux joints de grains pendant l'irradiation pour atteindre un taux entre 3 et 4% [5, 6, 7]. L'enrichissement en Si et Ni de l'alliage utilisé ainsi que l'appauvrissement en Cr peuvent donc également être vus comme un moyen de reproduire - partiellement et de manière simplifié - l'effet de l'irradiation.

Fe	Cr	Ni	Mn	Si	Mo	C	Cu	P	Co
Bal	12	26	1,65	3	0,02	0,012	0,24	0,01	<0,05
Ti	S	N	Pb	W	Zr	B	Mg	V	Nb
<0,05	0,002	0,062	8ppb	0,035	12ppm	0	0,003	0,015	0

TABLEAU 22. – Composition chimique de l'acier enrichi en silicium utilisé dans cette étude (wt%)

L'alliage choisi est donc considéré comme un matériau austénitique modèle pour l'étude de la fissuration intergranulaire en milieu REP, ce qui reste néanmoins à confirmer. Dans la suite, il sera dénommé  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$ .

## 1.2. Fabrication des échantillons et préparation métallographique

Le matériau est disponible sous la forme d'une plaque de dimensions  $72 \times 80 \times 4\text{mm}^3$ . Deux éprouvettes de traction et deux barres y ont été prélevées par électro-érosion (Fig. 99).

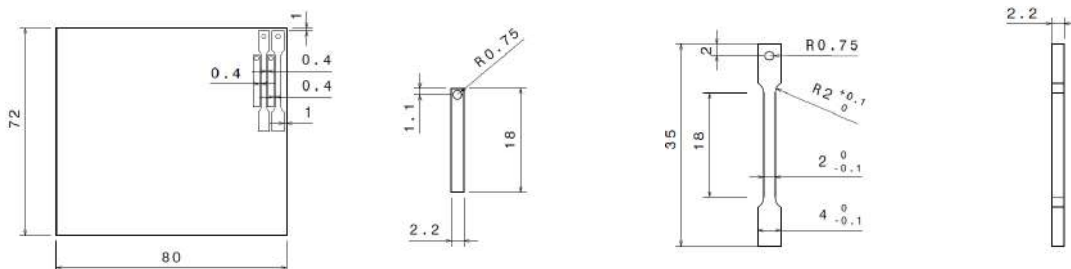


FIGURE 99. – Plan de prélèvement des barres et éprouvettes de traction dans l'acier  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$  (Dimensions en mm)

Les éprouvettes seront utilisées à la fois pour caractériser le comportement mécanique et la résistance à la fissuration intergranulaire après oxydation. Les barres seront quant à elles utilisées d'une part pour

caractériser la microstructure du matériau et d'autre part pour les essais d'oxydation et le prélèvement des micro-poutres.

Afin d'obtenir un état de surface à la fois contrôlé pour les essais d'oxydation et compatible avec des caractérisations EBSD, un polissage miroir a été effectué. Les échantillons ont été polis mécaniquement aux papiers SiC de granulométries respectives 800, 1200, 2000 puis 4000 avec un lavage à l'éthanol entre chaque pas de polissage. Des suspensions diamantées de  $9\mu m$ ,  $6\mu m$ ,  $3\mu m$  et  $1\mu m$  ont été utilisées pour polir plus finement les échantillons avant de finir avec un vibro-polissage à l'OPS (solution de silice à pH neutre) pendant 4h sur un drap ALS. Cette étape finale, utilisée par exemple dans [8], permet d'éliminer la couche écrouie en surface et composée de nanograins due aux étapes précédentes.

### 1.3. Caractérisations microstructurales

Une cartographie EBSD (Fig. 100) a été réalisée sur une barre pour caractériser la microstructure du matériau. L'outil MTEX [9] développé sous Matlab est utilisé pour analyser la cartographie. La phase austénitique - cubique face centrée - correspond à plus de 99,9% de la microstructure, et la phase ferritique - cubique centrée - représente moins de 0.1%. La taille de grain moyenne estimée par la méthode de diamètre équivalent en fixant un seuil de désorientation entre grains à  $10^\circ$  est de  $9\mu m$ .

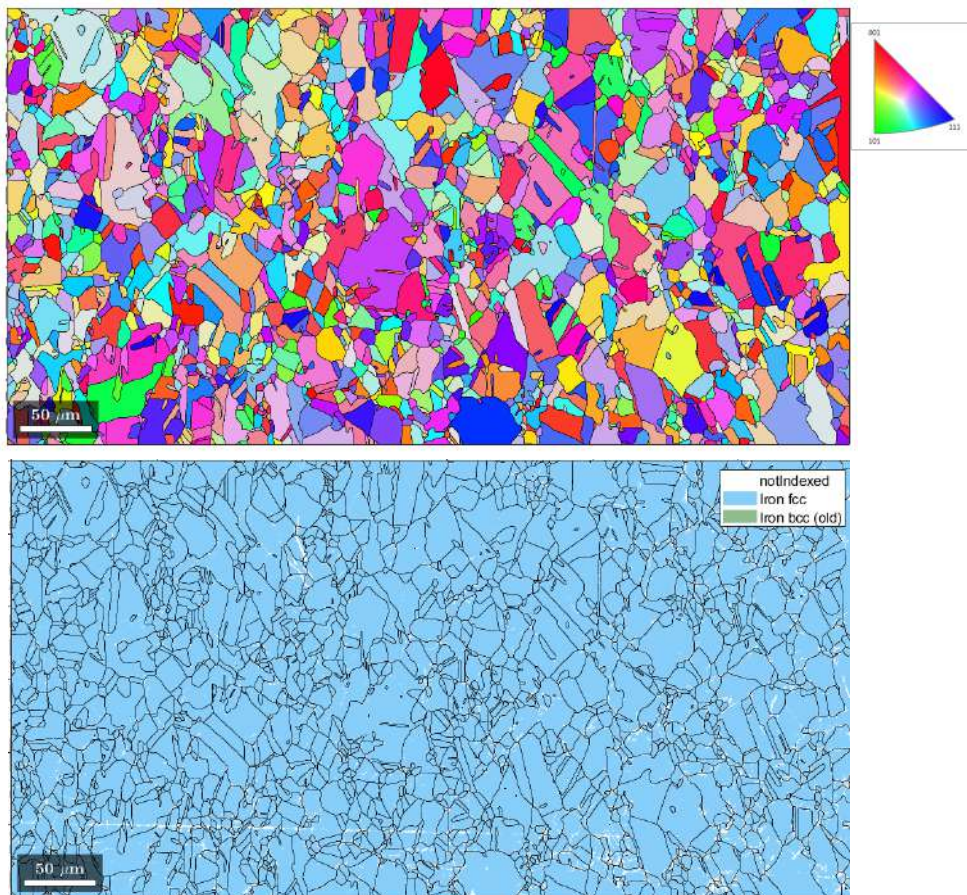


FIGURE 100. – Cartographies d'orientation et de phase de l'acier  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$

La prédominance de la phase austénitique  $\gamma$  peut être prédite grâce au calcul de la quantité de Cr et Ni équivalent (Eq. 38) combiné au diagramme de Schaeffler (101) [10].

$$\begin{aligned} \%Cr_{eq} &= \%Cr + \%Mo + 1.5\%Si + 0.5\%Nb \\ \%Ni_{eq} &= \%Ni + 30\%C + 30\%N + 0.5\%Mn \end{aligned} \quad (38)$$

Pour cet alliage, les valeurs de  $\%Cr_{eq}$  et  $\%Ni_{eq}$  sont respectivement de 16% et 29% ce qui donne un acier totalement austénitique comme montré sur la Fig. 101.



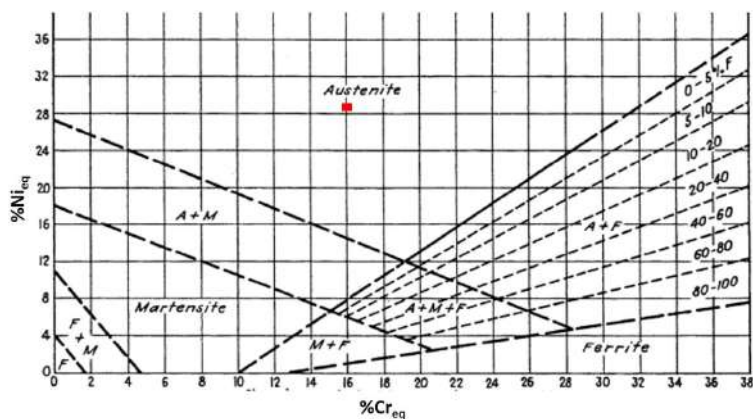


FIGURE 101. – Diagramme de Schaeffler [10]

Afin d'évaluer la texture cristallographique de l'alliage, la distribution de désorientation - correspondant à l'angle entre deux orientations choisies aléatoirement sur la cartographie EBSD - et la distribution théorique de MacKenzie sont superposées sur la Fig. 102. Le profil de MacKenzie correspond à la distribution des désorientations pour un matériau non texturé. La superposition des deux distributions indique l'absence de texture cristallographique du matériau.

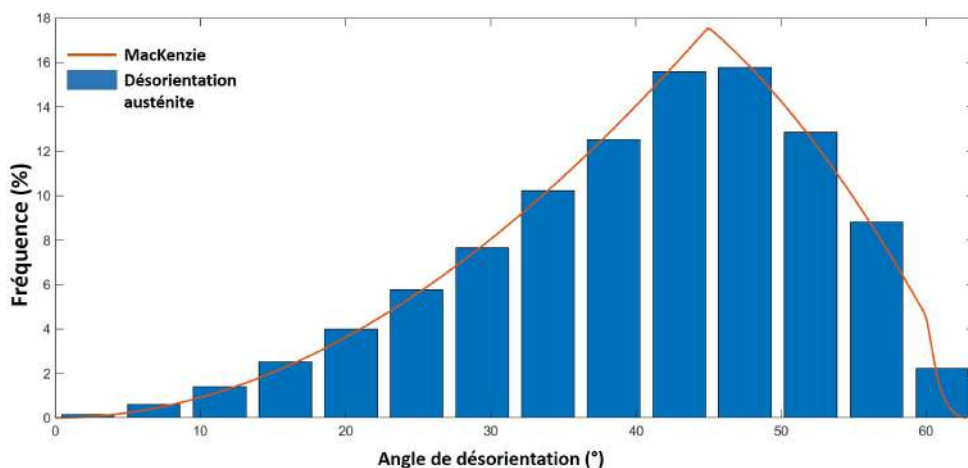
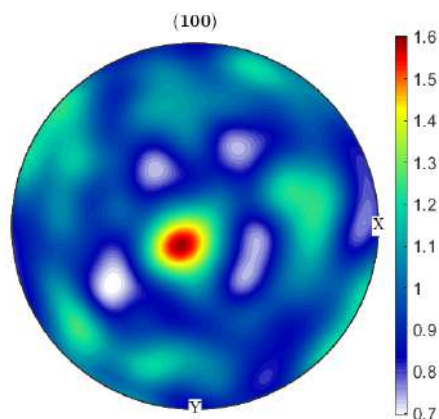


FIGURE 102. – Distribution des désorientations dans la phase austénitique et distribution théorique de MacKenzie

L'absence de texture cristallographique est confirmée par la figure de pôle sur la Fig. 103 qui montre une homogénéité dans la distribution de la direction  $\{100\}$ .

FIGURE 103. – Figure de pôle de l'acier  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$  dans la direction  $\{100\}$

La nature du joint de grains étant un facteur potentiellement important dans son comportement vis-à-vis de l'oxydation et de la fissuration, la fraction des joints spéciaux (de type CSL) est déterminée en faisant le rapport entre la longueur des joints  $\Sigma$  (Fig. 104) et la longueur totale des joints. Elle est estimée à 45% pour les joints  $\Sigma_3$ , ce qui cohérent avec l'acier 304L, et 1% pour les autres joints de grains spéciaux. Les joints de grains généraux restent majoritaire (54%).

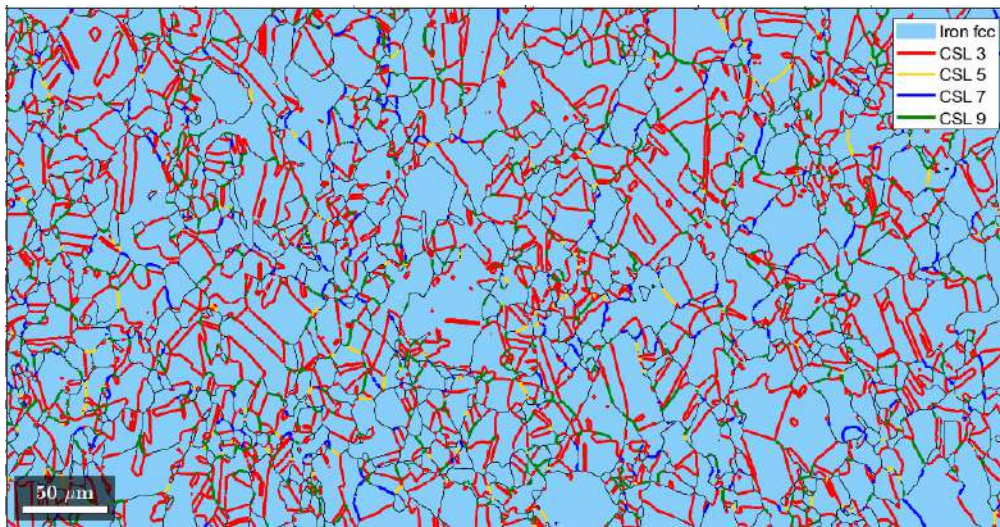


FIGURE 104. – Détermination des joints de grains spéciaux de l'acier  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$

#### 1.4. Propriétés mécaniques macroscopiques

Afin d'évaluer les propriétés mécaniques de l'acier  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$ , des essais de traction à 20°C et à 350°C ont été réalisés à une vitesse de déformation moyenne de  $5.10^{-4}s^{-1}$ . Deux essais ont été réalisés par température. Les courbes contrainte conventionnelle - déformation plastique conventionnelle sont représentées sur la Fig. 105.

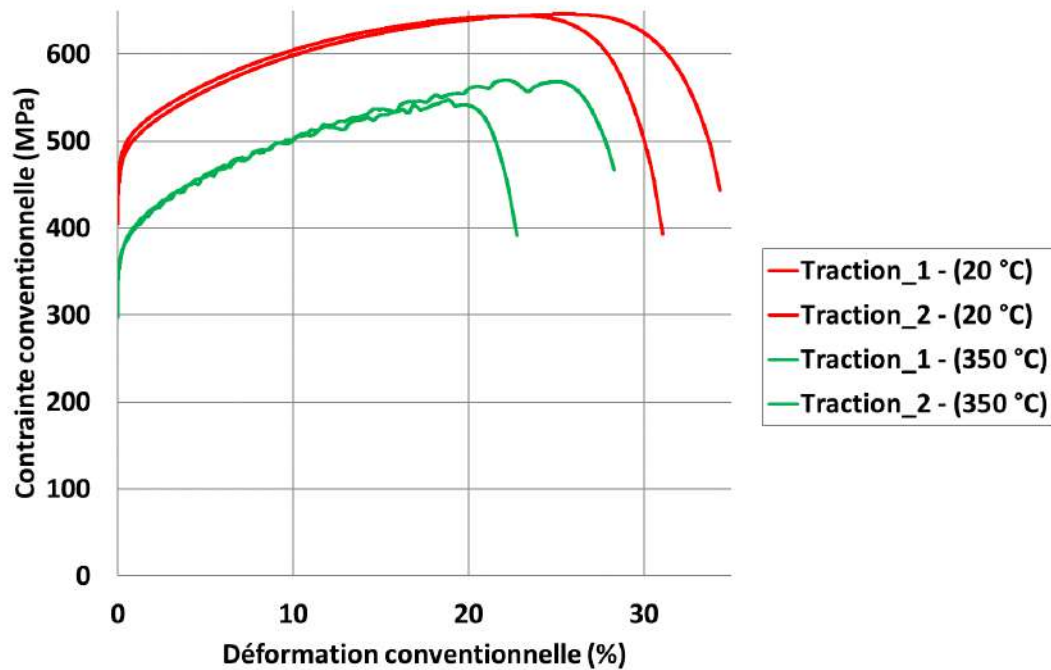


FIGURE 105. – Courbes de traction contrainte conventionnelle - déformation plastique conventionnelle de l'acier  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$  à 20°C et 350°C

Une bonne reproductibilité des essais est observée jusqu'à la striction. Il est à noter que les courbes à 350°C présentent des serrations caractéristiques de l'effet Portevin-Le Chatelier à partir d'un certain niveau de déformation. Une analyse plus approfondie serait nécessaire pour caractériser ce phénomène de vieillissement dynamique, notamment par la réalisation d'essais de traction à différentes vitesses de sollicitation. Ce type d'étude sort du cadre de cette thèse. À noter finalement que les aciers de type 304 / 316 ne présentent pas de vieillissement dynamique pour les mêmes conditions de sollicitation.

Température (°C)	$R_{p0.2}$ (MPa)	$R_m$ (MPa)	Allongement à rupture %
20	477 ±5	645 ±1	33±2
350	395 ±1	559 ±11	25±3

TABLEAU 23. – Propriétés mécaniques conventionnelles de l'acier  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$  à 20°C et 350°C : Limite d'élasticité à 0.2% de déformation plastique  $R_{p0.2}$ , résistance mécanique en traction  $R_m$  et allongement à rupture

Les propriétés mécaniques conventionnelles mesurées sont résumées dans le tableau 23. La limite d'élasticité est relativement élevée mais en accord avec la petite taille de grains.

## 1.5. Comportement en corrosion

### 1.5.1. Conditions d'oxydation

Les barres ont été mises en oxydation statique en milieu REP simulé - eau pure à 340°C / 155 bars avec 25-35cc/kg (STP)  $H_2$ , 1000ppm B, 2ppm Li - dans un autoclave en acier 316L de 3L (Fig. 106). La température est mesurée par un thermocouple plongé au centre de l'autoclave. La pression de 155 bars est obtenue en ajustant le volume de liquide initial. Les trous réalisés sur les barres (Fig. 99) permettent de suspendre les échantillons dans l'autoclave à l'aide d'un fil en Zr oxydé qui permet d'isoler électriquement les échantillons du reste du montage et éviter un couplage galvanique. Les essais d'oxydation ont duré 3680h et 7470h et ont été réalisés en collaboration avec Matthias Rousseau du DES/ISAS/DRMP/S2CM/LECA.

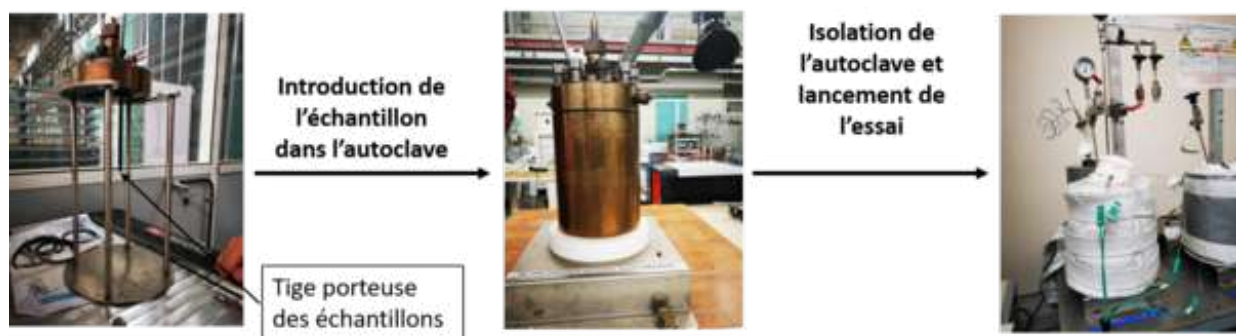


FIGURE 106. – Dispositif d'oxydation

Après oxydation, les échantillons ont été caractérisés par Microscopie Electronique à Balayage (MEB) et par Microscopie Electronique en Transmission (MET).



### 1.5.2. Caractérisation des oxydes en Microscope Électronique à Balayage

Les échantillons ont été analysés dans un MEB-FEG FEI Helios NanoLab600i avec un détecteur ICE (InChamber Electron) en mode électrons secondaires. Les surfaces typiques des échantillons après oxydation à 3680h et 7470h sont montrées sur la Fig. 107.

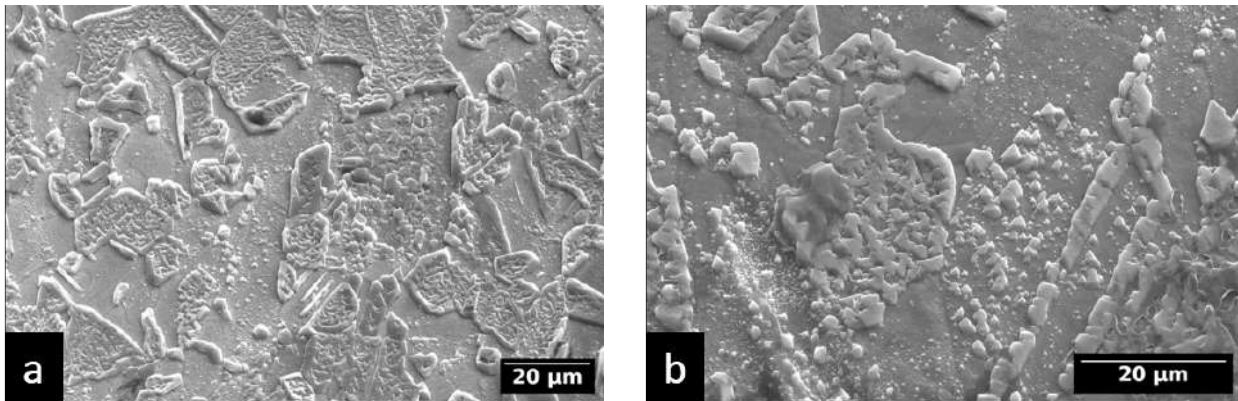


FIGURE 107. – Observations MEB de la surface des échantillons d'acier  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$  oxydés (a) 3680h et (b) 7470h en milieu REP

Des cristallites de taille et répartition hétérogènes sont présents en surface. Il n'y a pas d'effet notable entre les deux durées d'oxydation sur les caractéristiques des cristallites de surface. La morphologie des cristallites est un mélange de polyèdres plus ou moins espacés selon la zone mais l'ensemble est globalement compact. La présence de Si semble d'ailleurs donner des assemblages de cristallites plutôt compacts comparés aux aciers 304/316 comme le montre l'étude de Han et al. [1] où il met en comparaison l'oxydation en milieu REP de l'alliage 316L avec celle d'un acier enrichi en Si. Une autre différence observable est l'apparente épitaxie entre l'oxyde de surface et les grains sous-jacents. En effet sur la Fig. 107a l'orientation des cristallites semblent différer d'un grain à l'autre, dessinant certains joints de grains.

Le taux de nickel est aussi plus élevé par rapport aux 304/316 (26% contre 9-12%), ce qui pourrait permettre de comparer l'oxydation avec les alliages à base Ni. Des échantillons d'Inconel 600 ont d'ailleurs été oxydés dans l'étape préliminaire de cette étude et la morphologie des oxydes de surface (Fig. 108) se rapproche de celle observée sur l'acier étudié.

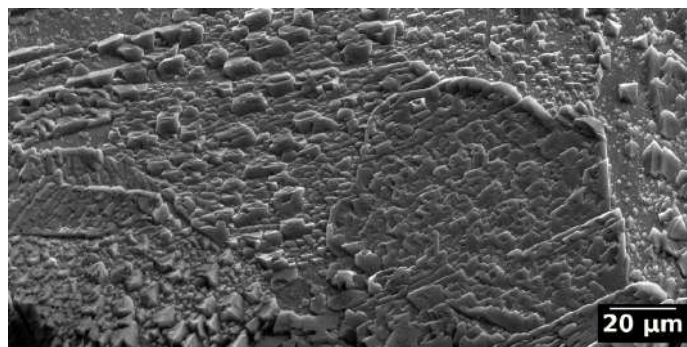


FIGURE 108. – Oxyde de surface d'un Inconel 600 oxydé 5150h en milieu REP

En utilisant le faisceau de  $Ga^+$  du MEB-FIB, une partie de la couche d'oxyde de la section transverse est enlevée comme indiqué sur la Fig. 109. La région ainsi révélée permet d'observer l'épaisseur de la couche interne et la pénétration de l'oxyde au niveau des joints de grains.

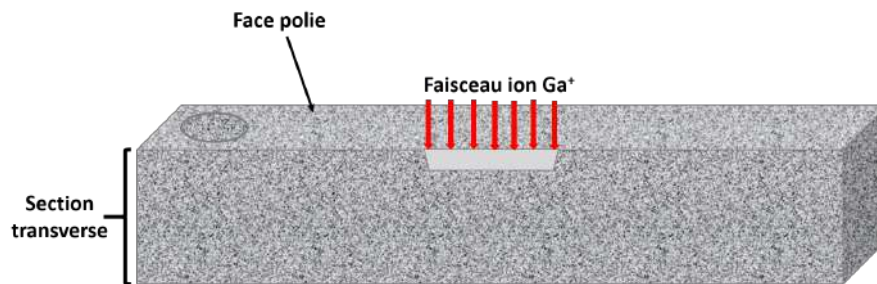


FIGURE 109. – Polissage au FIB de la section transverse de la barre oxydée

Les observations sur l'échantillon oxydé 3680h sur la Fig. 110 montrent la présence de cristallites (couche externe) en surface sous lesquels se trouvent une couche d'oxyde continue.

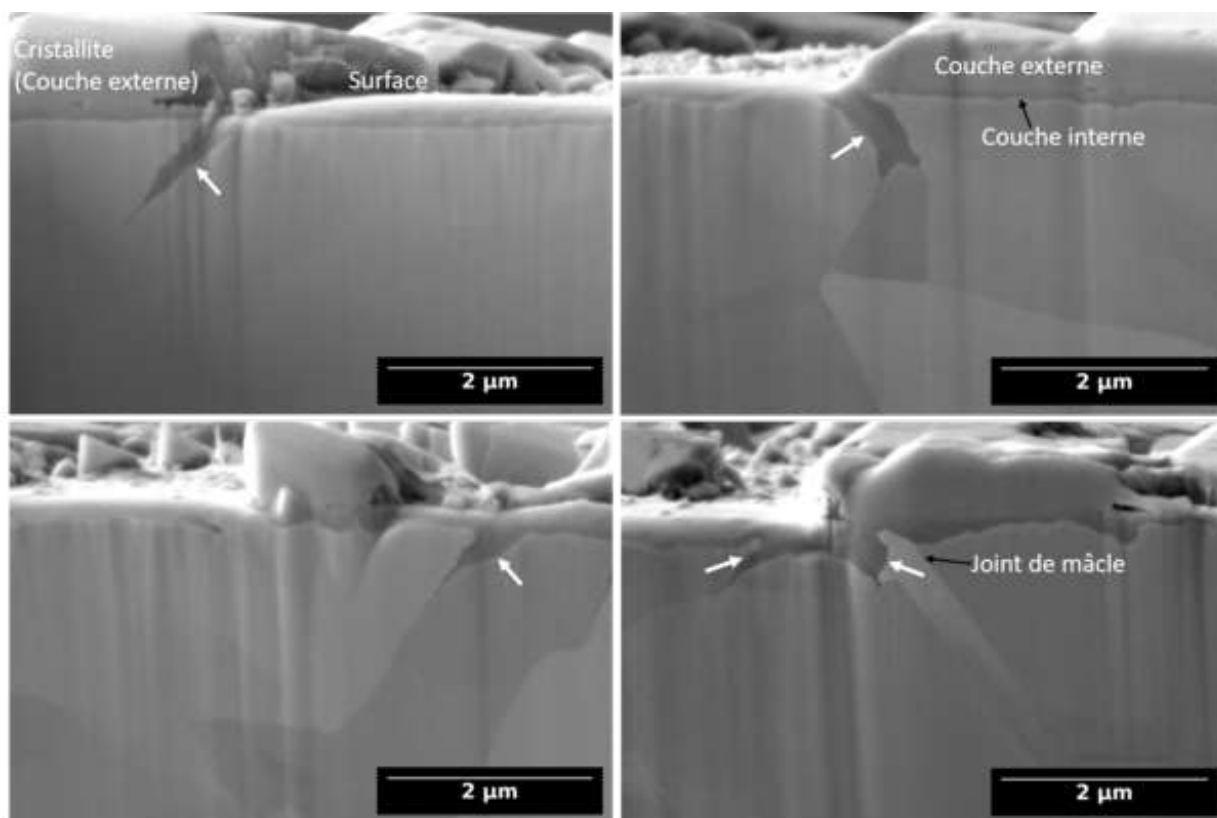


FIGURE 110. – Observation des couches d'oxydes sur la section transverse de la barre d'acier  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$  oxydé 3680h en milieu REP. Les flèches blanches pointent vers l'oxydation intergranulaire

Les cristallites sont de taille importante par rapport à la couche continue et cette taille apparaît différente selon l'orientation du grain sous-jacent. En effet certains grains sur les micrographies de la Fig. 110 sont surmontés de large amas d'oxyde tandis que d'autres n'en ont pas et sont seulement pourvus d'une couche continue. Cependant, le fait qu'il existe une couche continue entre le métal et les cristallites pose question sur l'épitaxie et comment l'orientation du grain influence la formation du cristallite, laissant penser à un mécanisme d'oxydation complexe. Cette couche continue présente un contraste plus foncé que les cristallites, ce qui permet de visualiser l'interface cristallites/couche continue et couche continue/métal et ainsi de bien la délimiter. La différence de contraste entre les cristallites et la couche continue pourrait aussi indiquer une différence de nature. Cependant, le contraste semble aussi varier au sein même de cette couche continue et une analyse au MET des compositions chimiques et des structures cristallographiques permettrait de trancher si elle est due à la présence de différents oxydes ou s'il s'agit d'un artefact de polissage. Les morphologies variées de l'oxyde interne, et plus spécialement au niveau du joint de grains, indiquent que l'orientation cristalline des grains

pourrait jouer un rôle dans sa croissance. Certains joints de macles sont visibles sur les coupes transverses mais ne montrent pas de pénétration d'oxyde intergranulaire, indiquant une certaine immunité à l'oxydation. De la porosité est visible à l'interface entre la couche externe et la couche interne ainsi qu'à l'intérieur de certains cristallites tandis que l'interface couche interne/métal n'en présente pas à l'échelle à laquelle sont faites les observations. Avec une taille d'oxyde intergranulaire aussi importante, l'emplacement initial du joint de grains est difficilement visible à cette échelle. Cependant sur certaines micrographies (Fig. 111) une différence de contraste à l'intérieur du joint de grains oxydé peut laisser penser à une ancienne trace du joint.

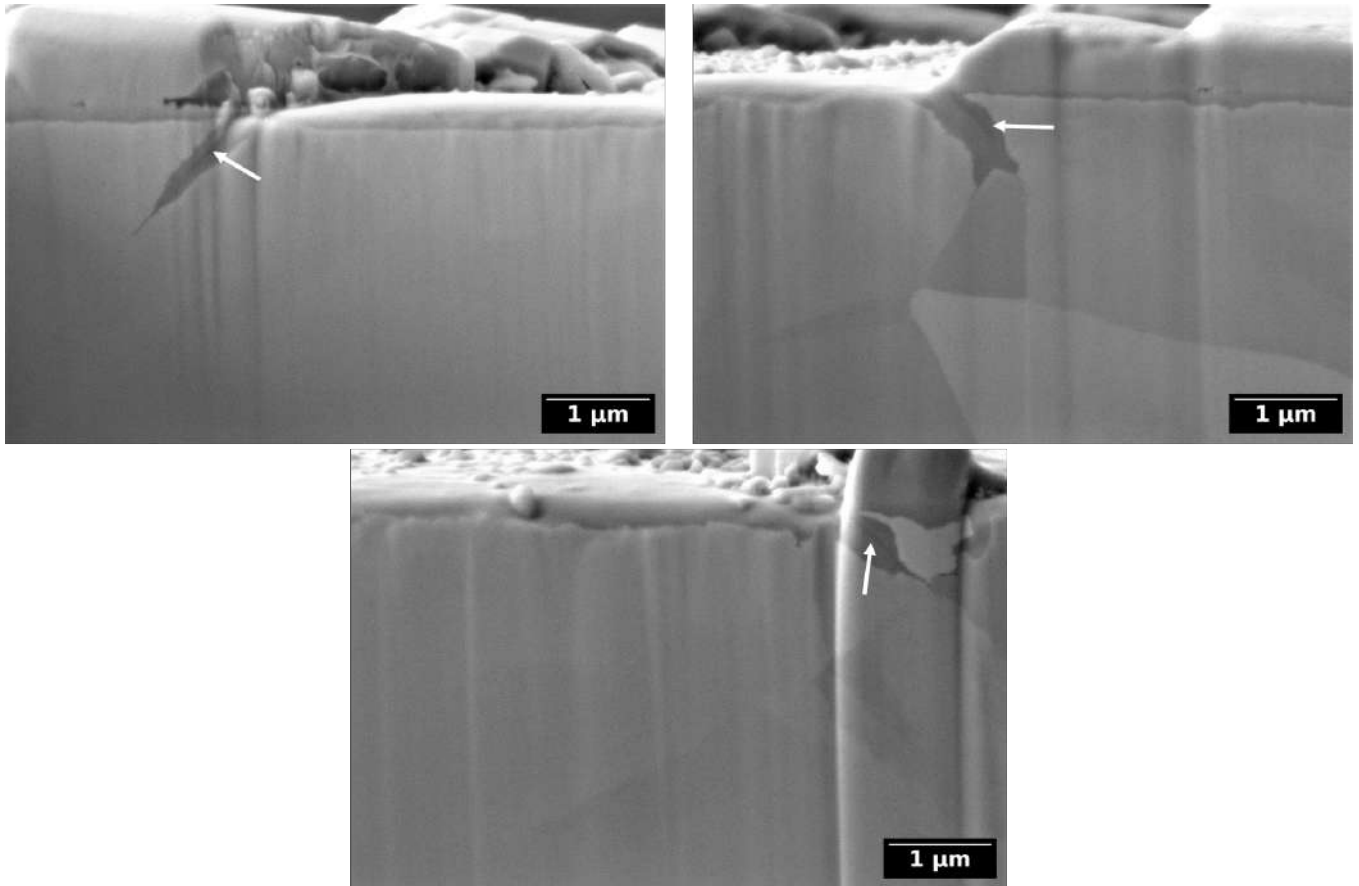


FIGURE 111. – Positions initiales des joints de grains oxydés 3680h marquées par les flèches blanches

Le tableau 24 rassemble les dimensions des oxydes formés en fonction de la durée d'oxydation. La taille des cristallites est mesurée sur une tranche de  $190\ \mu\text{m}$  de longueur divisée en vingt-sept photos. Sur chaque micrographie, cinq mesures sont effectuées sur les cristallites présentes et l'ensemble est ensuite moyenné. La hauteur estimée par cette méthode est de  $0.6\ \mu\text{m} \pm 0.1$  pour plusieurs microns de large. Avec la même méthodologie que pour les cristallites, l'épaisseur moyenne de la couche interne déterminée est de  $113\text{nm}$  avec une distribution d'épaisseur assez hétérogène puisque l'écart-type associé à la valeur moyenne est de  $65\text{nm}$ . La couche d'oxyde continue pénètre au niveau des joints de grains jusqu'à une distance moyenne d'environ  $1\ \mu\text{m}$ .

Il existe peu de données sur la taille de la couche d'oxyde d'aciers austénitiques oxydés à haute température en milieu REP pour une durée aussi importante. Cependant l'étude de Da Cuna Belo et al. [11] sur un acier 316 oxydé pendant 2000h en milieu REP a abouti à une couche d'oxyde de  $200\text{nm}$  (interne et externe) tandis que Ziemniak et al. [12] trouve des cristallites de  $0.1$  à  $0.5\ \mu\text{m}$  et une couche continue de  $1.3\ \mu\text{m}$  sur un acier 304L mais au bout d'une durée d'oxydation de 5000h dans de l'eau hydrogénée. Comparée aux aciers austénitiques 304L/316L à durée d'oxydation et milieu équivalent, la taille des oxydes formés sur l'acier  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$  semble plus élevée, ce qui est conforme aux attentes décrites dans la section 1.1 par rapport à la composition chimique. En revanche, les rôles séparés de l'augmentation de la teneur en Si et en Ni et de la diminution de celle en Cr sur l'oxydation resteraient

à déterminer.

L'oxydation du deuxième échantillon pendant 7470h en milieu REP a aussi abouti à la formation de cristallites en surface et d'une couche interne continue.

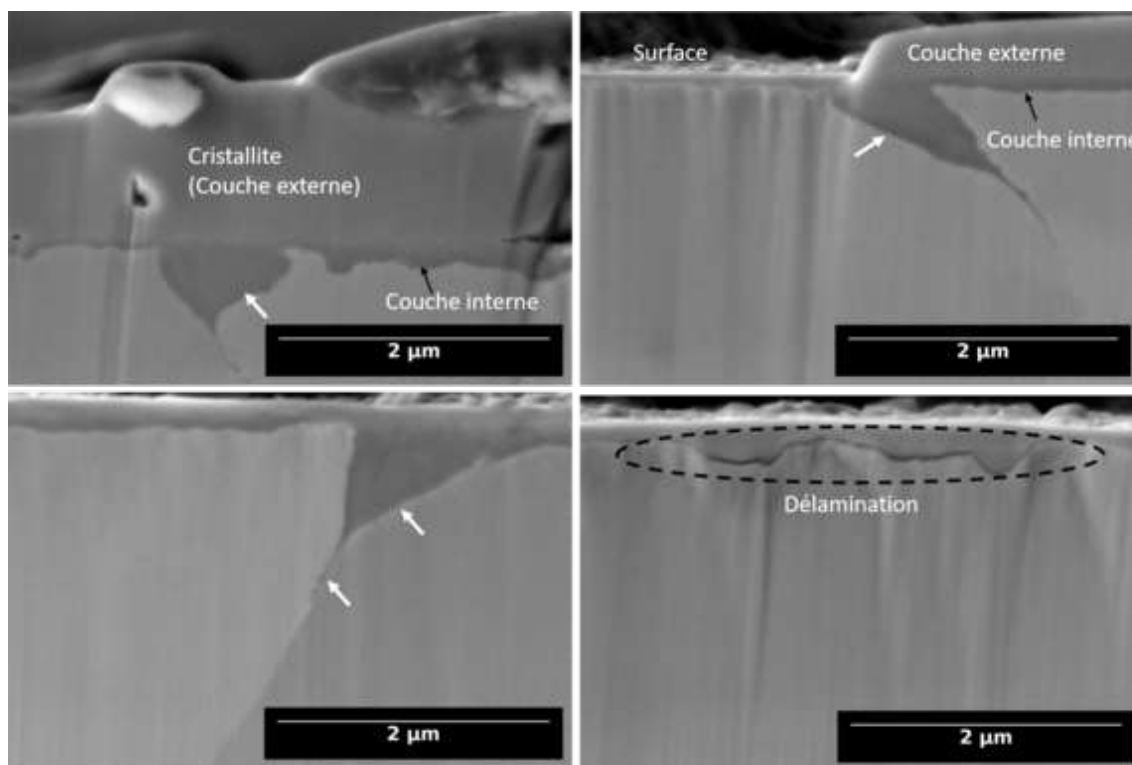


FIGURE 112. – Observation des couches d'oxydes sur la section transverse de la barre d'acier  $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$  oxydé 7470h en milieu REP. Les flèches blanches pointent vers l'oxydation intergranulaire

Les observations sur les cristallites et la couche continue interne sont similaires à celles de l'échantillon oxydé 3680h : de larges cristallites qui surmontent une couche continue fine avec différents contrastes pour toutes les couches ainsi que de profondes pénétrations d'oxydes aux joints de grains. Des pores sont aussi présents à l'interface entre la couche d'oxyde externe et interne même si de façon moins importante que dans l'échantillon oxydé 3680h. Un nouveau phénomène qui était absent à 3680h est visible ici. Il s'agit d'une décohésion entre la couche d'oxyde interne et le métal de base dans certaines régions, indiquant qu'il existe des contraintes internes à l'œuvre. La position initiale du joint de grains est encore plus difficile à déterminer après 7470h d'oxydation (Fig. 113) que dans l'échantillon oxydé à 3680h.

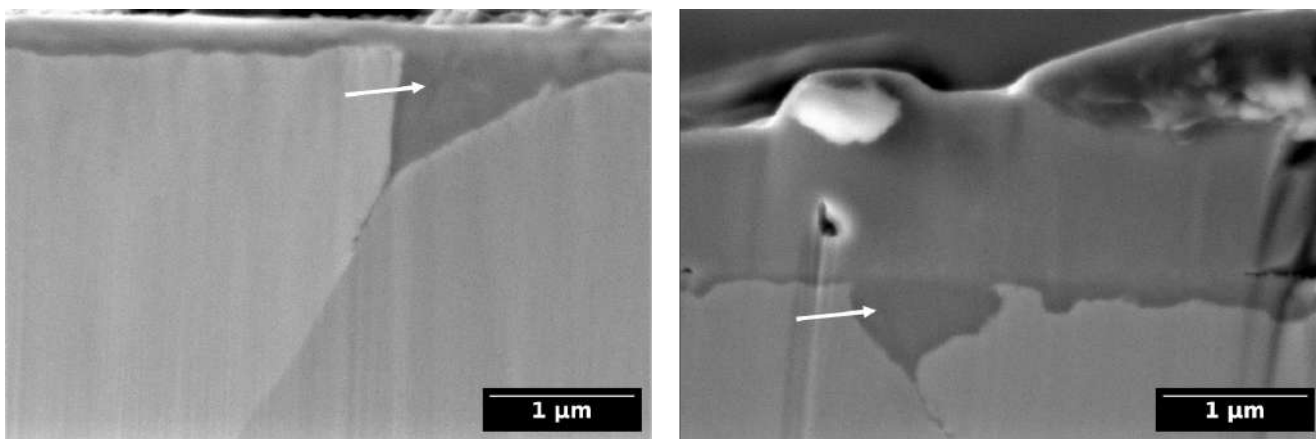


FIGURE 113. – Positions initiales des joints de grains oxydés 7470h marquées par les flèches blanches

Les dimensions des oxydes formés après 7470h d'oxydation sont déterminées de la même manière que celles à 3680h et sont listées dans le tableau 24. La couche externe observée a une hauteur de  $0.9\mu\text{m} \pm 0.2\mu\text{m}$  tandis que la couche interne fait  $123\text{nm} \pm 19\text{nm}$ . Des pénétrations d'oxyde intergranulaire d'en moyenne  $1.2\mu\text{m}$  sont observées avec des morphologies variées.

Durée oxydation	Hauteur cristallites ( $\mu\text{m}$ )	Épaisseur couche interne (nm)	Profondeur oxyde intergranulaire ( $\mu\text{m}$ )	Largeur oxyde intergranulaire ( $\mu\text{m}$ )
3680h	$0.6 \pm 0.1$	$113 \pm 65$	$1.0 \pm 0.2$	$0.5 \pm 0.1$
7470h	$0.9 \pm 0.2$	$123 \pm 19$	$1.2 \pm 0.2$	$0.6 \pm 0.2$

TABLEAU 24. – Dimensions des oxydes de l'acier  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$  oxydé 3680h et 7470h en milieu REP

### 1.5.3. Caractérisations des oxydes en Microscope Électronique en Transmission

Des lames minces ont été préparées au CEMES-CNRS sur un MEB-FIB Helios 600i afin de déterminer la composition et la structure des oxydes de surface au MET. La préparation est schématisée sur la Fig. 114. Un emplacement est choisi à l'intérieur d'un grain ou sur un joint de grains dans la barre oxydée 7470h. Un dépôt de Pt de  $10 \times 2 \times 0.3 \mu\text{m}$  est réalisé sur la zone d'intérêt en imagerie électronique suivi d'un deuxième dépôt de Pt de  $1\mu\text{m}$  au même endroit en imagerie ionique afin de protéger la surface. Des tranches sont ensuite creusées à l'aide d'un faisceau d'ions autour de la zone d'intérêt et le dessous de la lame est coupé du massif. Un micromanipulateur omniprobe est utilisé pour accrocher la pré-lame par soudage au Pt sur le côté déjà coupé, puis le reste de la lame est définitivement détaché de l'échantillon massif en coupant aux ions la partie encastrée. L'omniprobe est retiré avec la lamelle attachée.

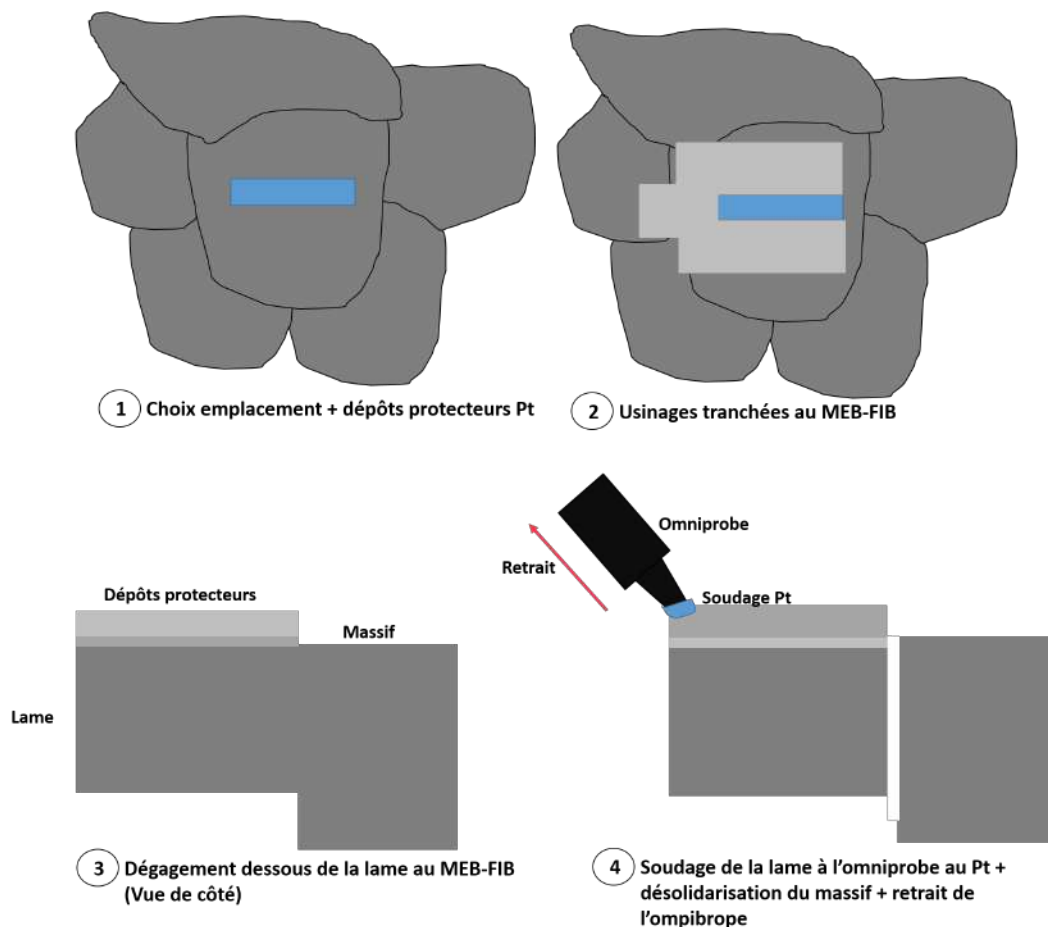


FIGURE 114. – Procédé d'usinage de lame au FIB pour observation au MET



La pré-lame ainsi prélevée est collée sur un coupon en cuivre (Fig.115a) puis amincie au MEB-FIB jusqu'à ce qu'elle soit transparente au électrons (Fig.115b).

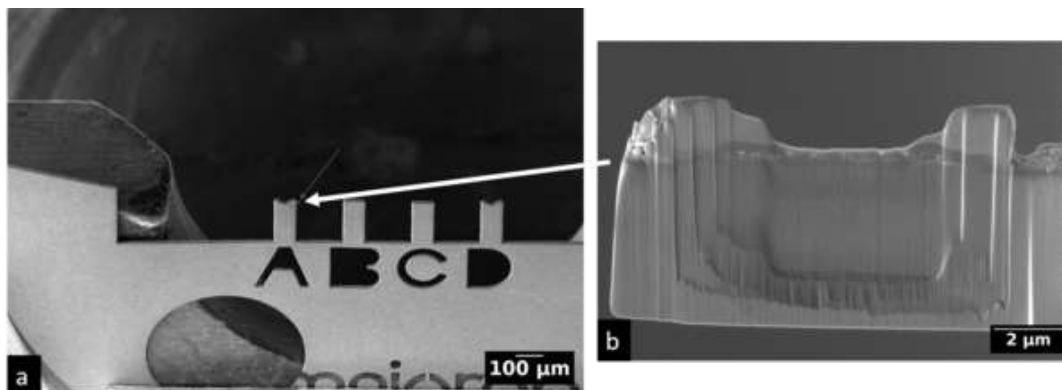


FIGURE 115. – a) Pré-lame sur coupon de cuivre et b) amincissement de lame au FIB pour observation au MET

Des analyses de composition chimique par EDS sont réalisées sur un MET Philips CM20 FEG au CEMES-CNRS.

### Observations générales

La caractérisation au MET-EDS de la lame prélevée sur l'échantillon de l'acier  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$  oxydé 7470h en milieu REP révèle la présence de cristallites de surface et d'une couche d'oxyde continue de 200nm d'épaisseur moyenne (Fig. 116). Le métal de base est constitué de trois grains contenant des dislocations. L'état et l'épaisseur de la lame permettent l'observation des oxydes et les analyses quantitatives.

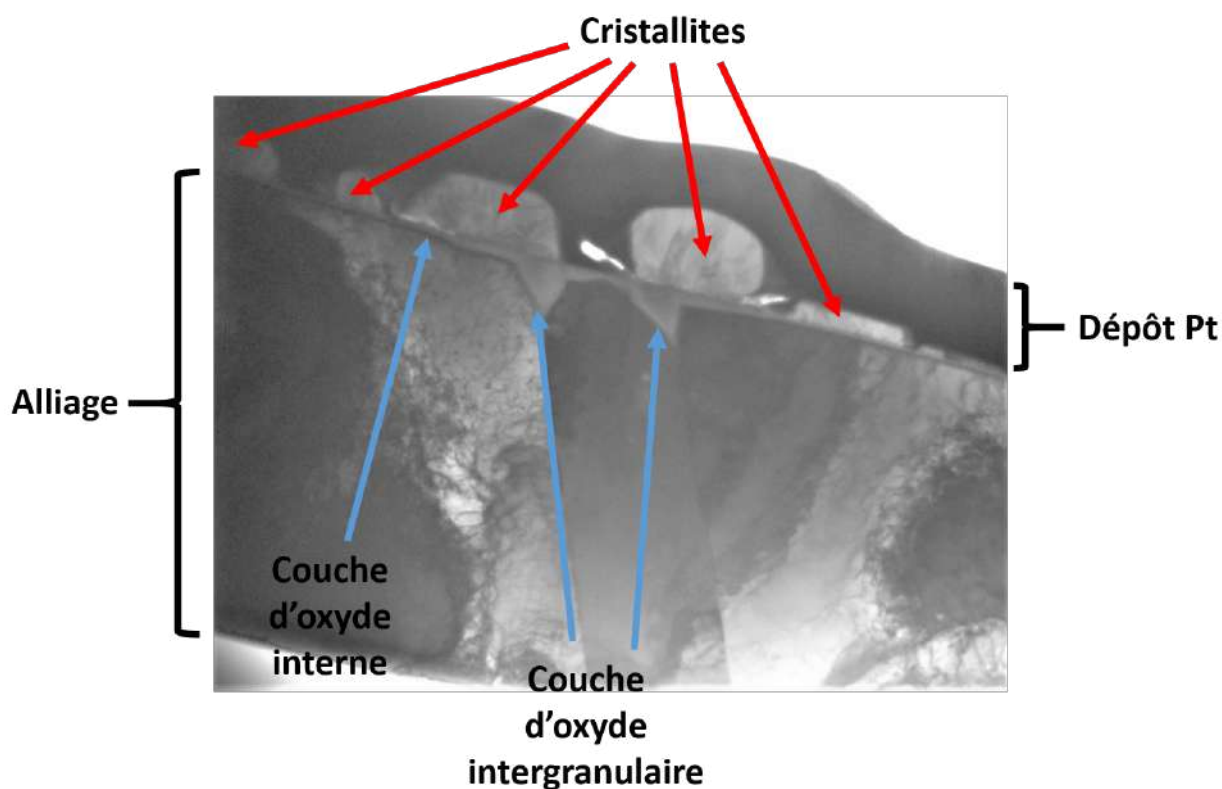


FIGURE 116. – Couche d'oxyde en surface de l'acier  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$  oxydé 7470h en milieu REP observé au MET

Sur cette image, les cristallites sont de taille plus importante que la couche d'oxyde continue, ce qui est en accord avec les observations au MEB.

Des cartographies de composition chimique des couches d'oxydes permettant de visualiser la distribution des éléments sont présentées sur la Fig. 117. La première cartographie montre le dépôt de platine protecteur en surface de la lame.

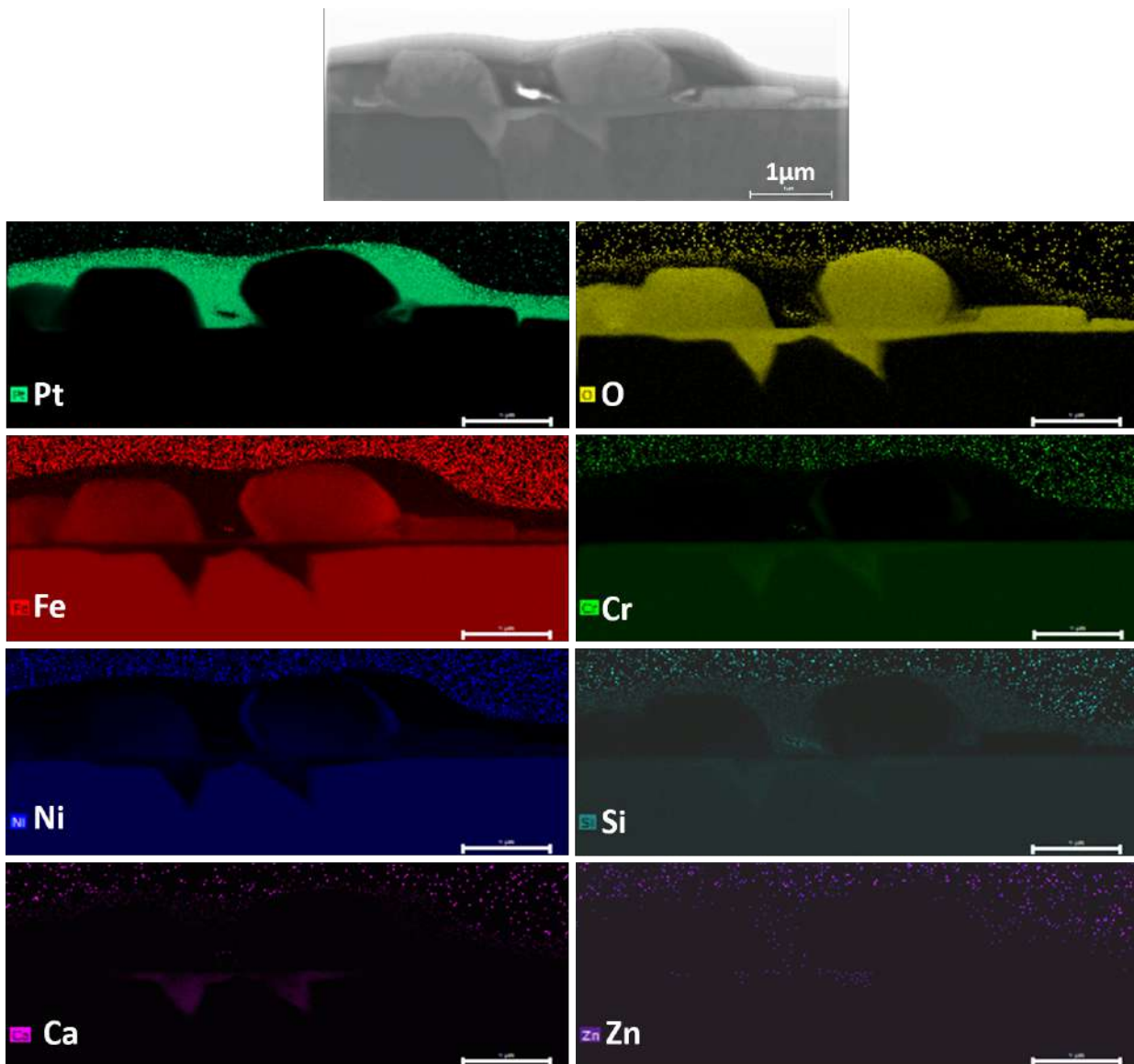


FIGURE 117. – Caractérisation au MET-EDS de l'oxyde de surface et intergranulaire de l'acier  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$  oxydé 7470h en milieu REP

Les cristallites apparaissent riches en Fe et Ni tandis que la couche interne est plus riche en Cr. La présence de Si, Ca et Zn en quantité supérieure à celle de la matrice est aussi détectée dans l'oxyde intergranulaire.

Dans un premier temps, un profil a été réalisé pour quantifier l'évolution des éléments dans chaque couche d'oxyde (Fig. 118)

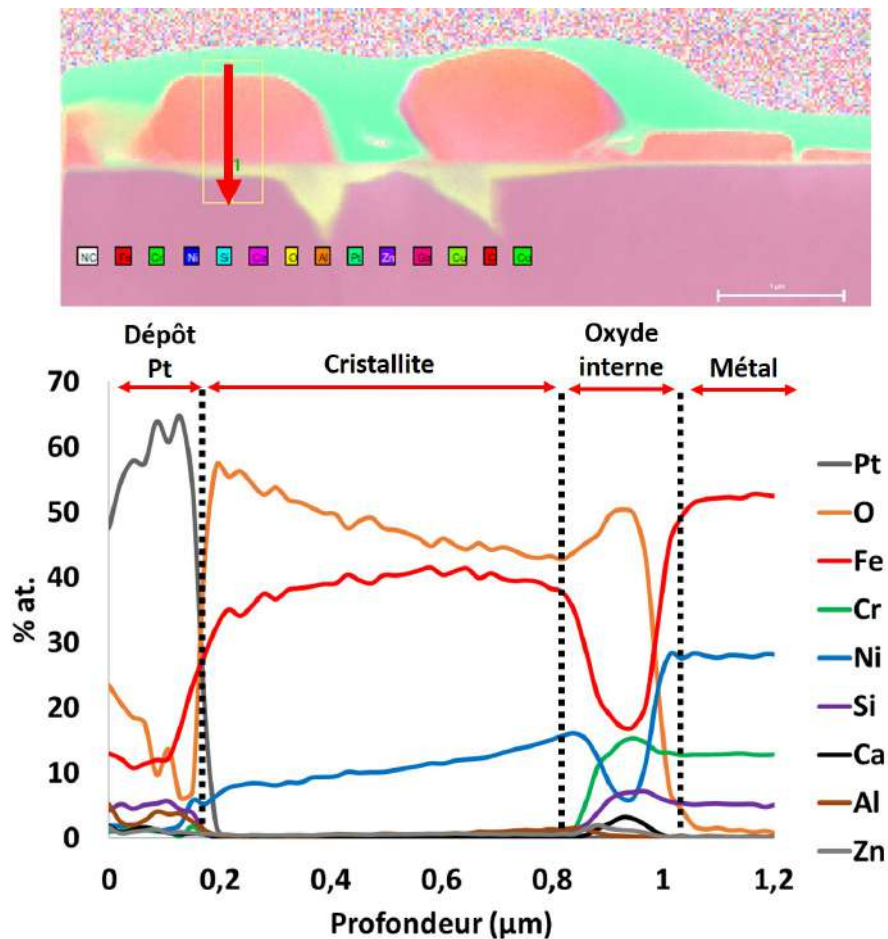


FIGURE 118. – Compositions chimiques de la couche interne de l'acier  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$  oxydé 7470h en milieu REP

Les résultats confirment le fort enrichissement en Fe des particules d'oxyde de surface dont l'élément secondaire est Ni. Sous ce cristallite se trouve une couche continue d'oxyde qui est précédée d'une zone de transition avec un gradient de composition qui montre une diminution du taux de Fe et Ni et l'enrichissement en Cr. Cependant ces gradients de composition chimique sont observés pour pratiquement tous les éléments dans la zone de transition entre la couche d'oxyde externe et la couche interne. Un enrichissement en Si est notable. Un enrichissement significatif en Ca et Zn est également observé. Le zinc et le calcium ne faisant pas partie des éléments d'alliage, une possible pollution durant l'essai d'oxydation est possible et est en cours d'investigation. Cependant cette présence est tout de même à garder en mémoire en ce qui concerne l'analyse des résultats de rupture de l'oxyde et la comparaison aux données disponibles dans la littérature.

### Couche externe

Afin de mieux quantifier ces observations, des moyennes des analyses EDS sont réalisées afin de déterminer la composition chimique des cristallites présentes en surface (encadré jaune Fig. 119).

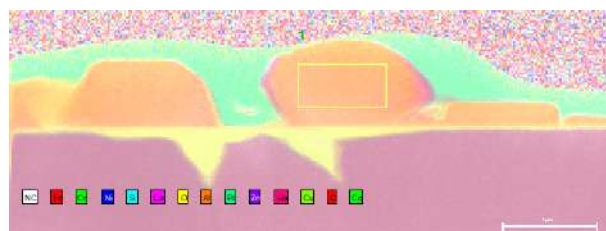


FIGURE 119. – Caractérisation au MET-EDS des cristallites de surface de l'acier  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$  oxydé 7470h en milieu REP

Les taux atomiques de chaque élément sont présentés dans le tableau 25.

	O % at.	Fe % at.	Cr % at.	Ni % at.	Si % at.	Ca % at.	Zn % at.	Al % at.
Cristallite	46	42	0.2	10	0.4	0	0.6	0.8

TABLEAU 25. – Composition chimique de la cristallite de surface (%at.) de l'acier  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$  oxydé 7470h en milieu REP

Les analyses révèlent une composition chimique globale  $(Ni_{0.9}, Fe_{1.6})Fe_2O_4$ . Elle pourrait être compatible avec des oxydes de type  $(Ni_x, Fe_y)Fe_2O_4$  riches en Fe et en Ni et un peu en Cr comme ce qui est classiquement trouvé sur les alliages 304 / 316 et en accord avec le profil réalisé précédemment.

A titre de comparaison, le tableau 26 liste des résultats d'analyses de cristallites sur des aciers oxydés en milieu REP ou milieux similaires.

Acier	Milieu	Durée d'oxydation	Cristallites formés	Ref
316L $FeCr_9Ni_{26}Si_5Mo_{1.5}$	REP	1194h	$(Ni, Fe)Fe_2O_4$ $(Ni, Fe)Fe_2O_4$	Han et al. [1]
304L	REP	360h	$Fe_2O_3$	Gupta [13]
304L	REP	500h	$Fe_2O_3, Fe(Cr/Ni)_2O_4$	Cissé et al. [14]
316L	REP	500h	$Fe_2O_3$	Terachi et al. [15]
316L	REP	120h	$Fe_3O_4$	Wang et al. [16]
316L	REP	2000h	$Ni_{0.75}Fe_{2.25}O_4$	Da Cuna Belo et al. [11]
316L	REP	500h	$(Ni, Fe)Fe_2O_4$	Han et al. [17]
304L	Eau $H_2$ 45cc/kg 260°C	5000h	$(Ni_{0.2}Fe_{0.8})(Fe_{0.95}Cr_{0.05})_2O_4$	Ziemniak et al. [12]

TABLEAU 26. – Compositions chimiques observées dans la littérature pour les cristallites des aciers inoxydables austénitiques de type 304 / 316 oxydés en milieu REP

Ces études indiquent que les cristallites formées sur les aciers inoxydables austénitiques de type 304 / 316 sont soit des oxydes de Fe  $Fe_2O_3$  et  $Fe_3O_4$ , soit des structures spinelles riches en Ni et Fe de type  $(Ni_x, Fe_{2-x})O_4$  et  $(Ni_x, Fe_{1-x})(Fe_{1-y}, Cr_y)_2O_4$ . Les cristallites analysées dans cette étude semblent similaires, surtout avec les résultats de Han et al. [1] dont la composition d'alliage est proche par le taux de Ni et Si de l'acier d'étude.

### Couche interne

Pour l'oxyde interne, une analyse de la zone sélectionnée en vert sur la Fig. 120 a permis de déterminer la composition globale de la couche continue et intergranulaire.

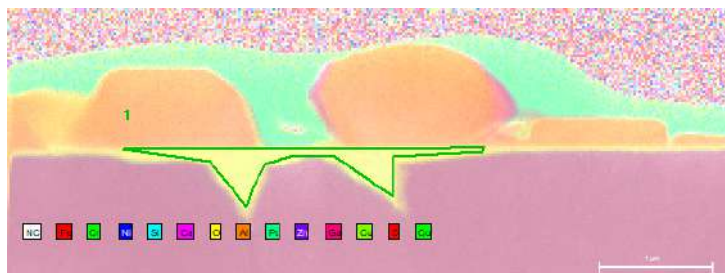


FIGURE 120. – Caractérisation au MET-EDS de la couche interne de l'acier  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$  oxydé 7470h en milieu REP

La composition de cette couche est reportée dans le tableau 27.

	O % at.	Fe % at.	Cr % at.	Ni % at.	Si % at.	Ca % at.	Zn % at.	Al % at.
Couche interne	51	15	14.5	8	6	3	2	0.5

TABLEAU 27. – Composition de la couche d'oxyde continue et intergranulaire de l'acier  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$  oxydé 7470h en milieu REP

La couche interne présente une composition de type  $Ni(Fe, Cr)O_4$  qui est complexifiée par la présence de Si, Ca et Zn. Une composition chimique moyenne globale serait  $(Ni_{0.7}Si_{0.5}Ca_{0.2}Zn_{0.2})(FeCr)O_4$ . Cette composition est à comparer à celles obtenues sur les aciers de type 304 / 316 (Tab. 28) pour lesquelles des structures spinelles de type  $(Fe_xNi_y)Cr_2O_4$  sont observées. Ces structures spinelles de type  $AB_2O_4$  (Fig. 121) sont caractérisées par les anions  $O^{2-}$  formant un réseau cubique face centrée et les cations se distribuant dans les sites tétraédriques pour l'atome A et octaédriques pour l'atome B. A noter qu'il existe aussi une structure spinelle inverse où les positions des ions A et B sont inversées.

Acier	Milieu	Durée d'oxydation	Oxydes formés	Ref
316L	REP	24h	$(Ni_{0.6}Fe_{0.4})(Cr_{1.3}Fe_{0.7})O_4$	Boisson et al. [18]
316L	REP	24h	$(Cr_{1.5}Fe_{1.5})O_4$	Soulas et al. [19]
316L	REP	24h	$(FeCr_2)O_4$	Shen et al. [20]
304L	REP	360h	$(FeNi)Cr_2O_4$	Gupta [13]
304L	REP	500h	$(FeNi)Cr_2O_4$	Cissé et al. [14]
316L	REP	500h	$(FeNi)Cr_2O_4$	Terachi et al. [15]

TABLEAU 28. – Compositions chimiques des couches internes des aciers austénitiques de type 304 / 316 oxydés en milieu REP

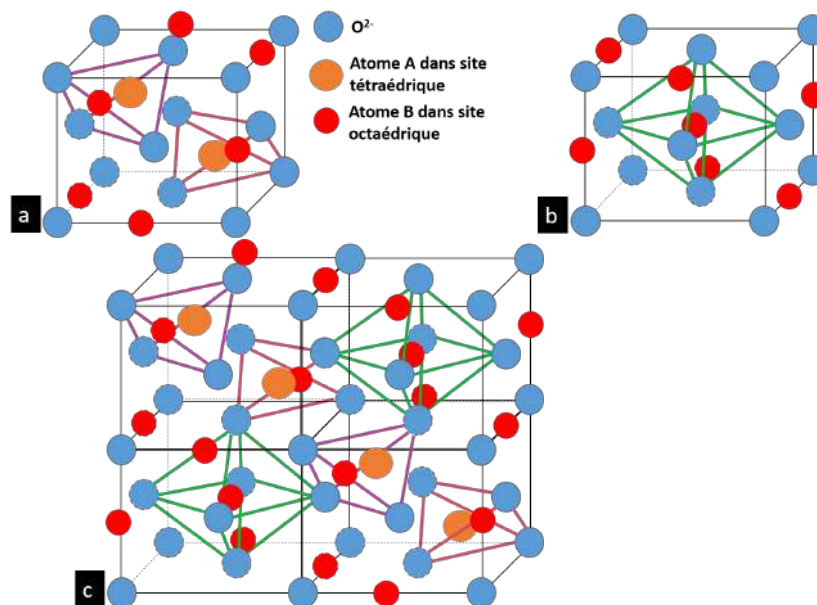


FIGURE 121. – Structure spinelle  $AB_2O_4$  avec les sites a) tétraédriques et b) octaédriques et la c) moitié de la cellule unitaire

En prenant comme référence l'étude de Boisson et al. [18], la composition chimique obtenue semble indiquer que Si, Ca et Zn se substitueraient à Fe. En effet, ce qui est assimilé à l'atome A de la structure  $AB_2O_4$  est déterminé comme étant  $(Ni_{0.6}Fe_{0.4})$  dans les travaux de Boisson et al. tandis que dans cette étude c'est la structure  $(Ni_{0.7}Si_{0.5}Ca_{0.2}Zn_{0.2})$  qui est trouvée. Il peut aussi être noté que la



composition de l'atome B est présenté comme étant ( $Cr_{1.3}Fe_{0.7}$ ) dans l'article de Boisson et al. est ici assimilable à (CrFe).

Pour conclure, l'oxydation de l'acier  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$  pendant 3680h et 7470h en milieu REP aboutit à la formation d'une couche d'oxyde externe de l'ordre de  $1\mu m$  tandis que la couche interne est plus fine avec une épaisseur de l'ordre de 100nm. L'alliage présente aussi de profondes pénétrations d'oxydes intergranulaires de  $1\mu m$  en moyenne. La couche externe présente des oxydes avec Fe/Ni/Cr/O dans différentes proportions. Il y a ensuite une zone de transition avec un gradient de concentration pour tous les éléments jusqu'à arriver sur une couche interne de composition  $(Ni_{0.7}Si_{0.5}Ca_{0.2}Zn_{0.2})(FeCr)O_4$ . La composition de cet alliage le rend unique donc il n'y pas de données dans la littérature sur son comportement en corrosion. Comparé aux aciers standards 304L/316L oxydés dans des conditions similaires, cet alliage présente une forte oxydation intergranulaire, ce qui en fait un choix pertinent pour étudier l'IGSCC des aciers auténitiques en milieu REP. Cependant, il existe une différence de composition entre la couche d'oxyde continue trouvée dans cette étude et les données de la littérature pour les aciers 304L/316L. La présence de Si, Ca et Zn ainsi que les différences de proportions du Fe, Cr et Ni s'écartent significativement des résultats d'autres travaux. Les propriétés de rupture de ces oxydes ne seront donc pas nécessairement représentatives de celles des oxydes formés sur les aciers de type 304 / 316 en milieu REP.

## 1.6. Sensibilité à la fissuration intergranulaire de l'acier $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$ en milieu REP

### 1.6.1. Essai de traction lente en milieu REP

Un essai de traction lente (Slow Strain Rate Tensile Test SSRT) en milieu simulé REP est effectué afin de déterminer la sensibilité à la fissuration intergranulaire du matériau. Ce type d'essai qui combine l'effet du milieu et de la contrainte sur le comportement en corrosion du matériau est largement utilisé pour l'évaluation de la sensibilité à l'IGSCC (InterGranular Stress Corrosion Cracking). L'échantillon est déformé dans un milieu REP, à savoir eau à  $340^\circ C$  / 155bars, 25-35cc/kg  $H_2$ , 1000ppm B, 2ppm Li dans un autoclave CORMET C137 en 316L (Fig. 122). L'essai est réalisé en imposant un déplacement de  $9.10^{-10}m.s^{-1}$  au mors mobile, soit une vitesse de déformation moyenne de la zone utile de l'éprouvette de  $5.10^{-8}s^{-1}$  jusqu'à une déformation plastique de 4% (atteinte aux alentours de 308h). L'utilisation de cette très faible vitesse de sollicitation mécanique permet d'évaluer l'effet du milieu. Le déplacement est mesuré par une cellule de type Linear Variable Differential Transformer et la charge par une cellule de force de 30kN. A la fin de l'essai, l'échantillon est déchargé puis lavé à l'éthanol et stocké pour les futures analyses.

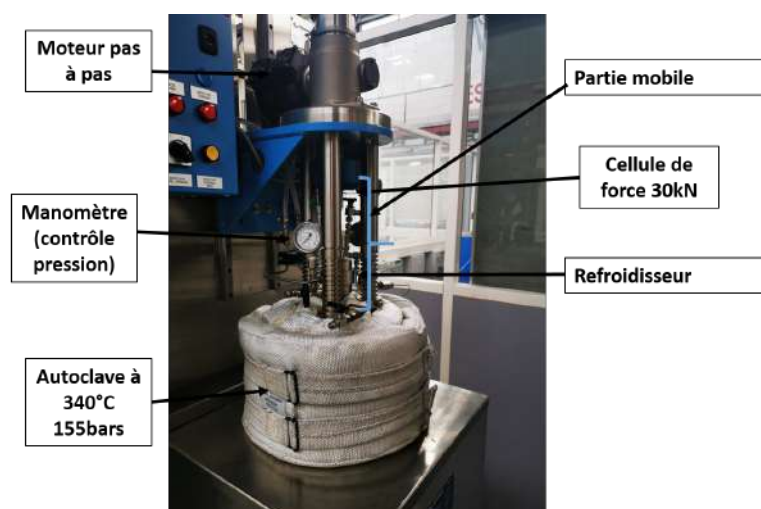


FIGURE 122. – Dispositif d'essai de traction lente en milieu REP simulé

La courbe de l'essai sur la Fig. 123 montre que le milieu a peu d'effet sur la réponse mécanique macroscopique du matériau car malgré le bruit observé sur la courbe commun aux essais en autoclave la courbe en milieu REP à  $340^\circ C$  se superpose à celle de l'essai dans l'air à  $350^\circ C$ .

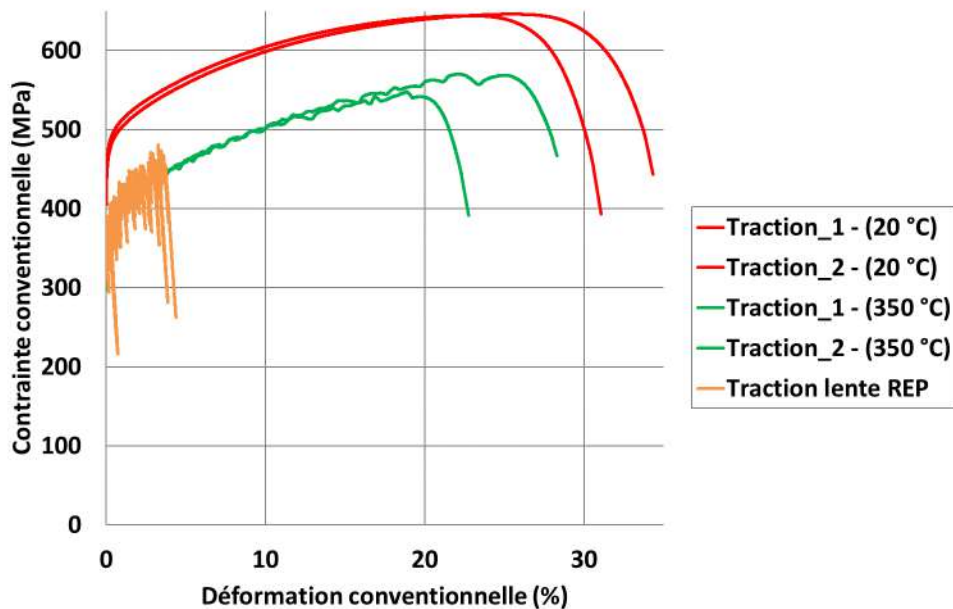


FIGURE 123. – Comparaison des courbes des essais de traction dans l'air et en condition REP sur l'acier  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$

### 1.6.2. Observations en Microscopie Électronique à Balayage

L'éprouvette de traction déformée a été observée dans le MEB-FIB FEI Helios NanoLab600i au CEMES-CNRS à l'aide d'un détecteur ICE (InChamber Electron) en imagerie d'électrons secondaires. Un grand nombre de fissures est observé (Fig. 124). La morphologie de ces fissures indiquent un mode de rupture de type intergranulaire. Les fissures apparaissent principalement perpendiculaires à l'axe de traction (marqué par la flèche rouge) ce qui va dans le sens d'un mécanisme piloté par la contrainte. A noter également sur la Fig. 124 que les joints de grains non fissurés sont visibles grâce à un contraste différent de l'intérieur des grains. L'imagerie en électrons secondaires révélant surtout un contraste de topologie, la visualisation des joints est due à la création de "marche" d'oxydes dans ce dernier.

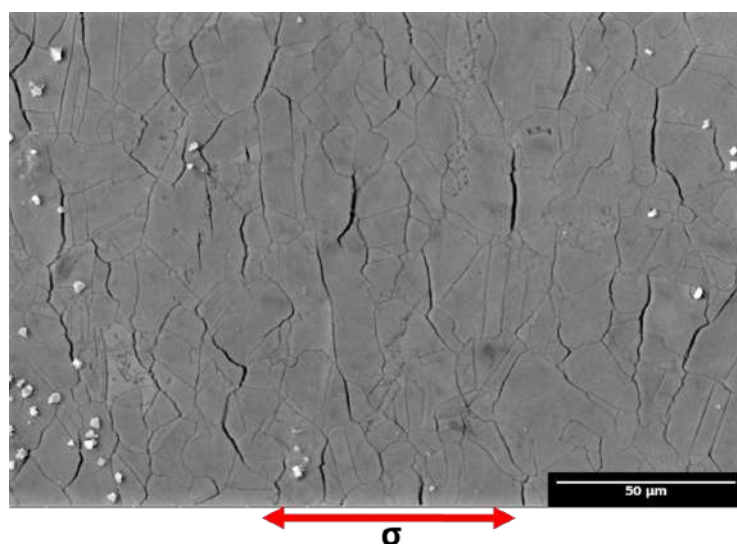


FIGURE 124. – Fissuration intergranulaire l'acier  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$  suite à un essai de type SSRT en milieu REP pendant 308h. La flèche rouge indique le sens de la contrainte uniaxiale appliquée pendant l'essai

Des images ont été prises pour deux zones de  $590 \times 394 \mu m^2$  afin d'évaluer la densité de fissures. A l'aide du logiciel de traitement d'images ImageJ, les fissures de chaque zone ont été surlignées manuellement permettant ainsi la comptabilisation de leur nombre et de leur longueur comme montré sur la Fig.

125. Cette analyse d'image aboutit à une densité de fissures de  $344/\text{mm}^2$  d'une longueur moyenne de  $25\mu\text{m}$  dont la distribution est montrée sur la Fig. 126.

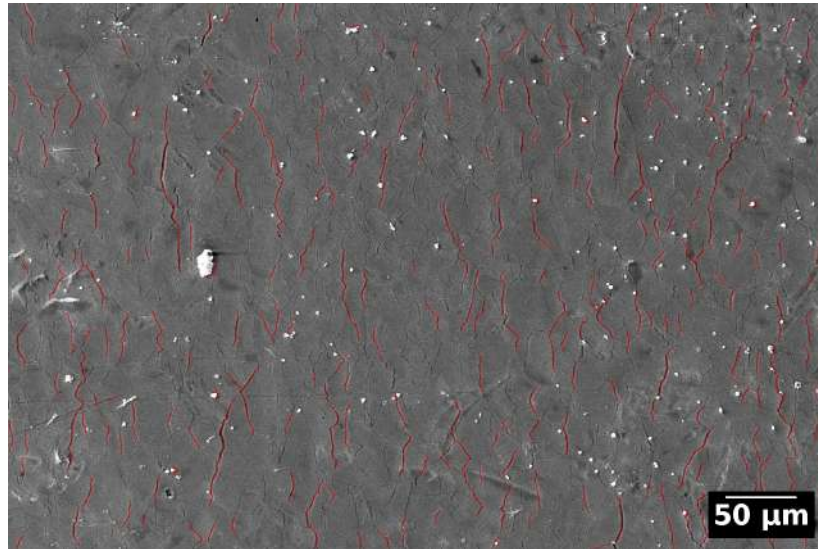


FIGURE 125. – Identification des fissures intergranulaires sur l'acier  $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$  testé en milieu REP pendant 308h

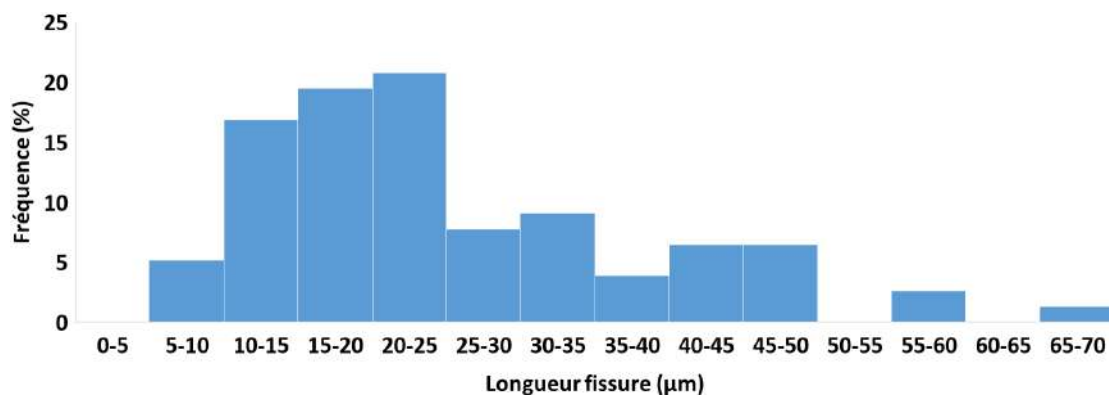


FIGURE 126. – Distribution de la taille de fissure dans l'acier  $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$  testé en milieu REP pendant 308h

Cet essai montre que le matériau est très sensible à la fissuration intergranulaire en milieu REP, ce qui est cohérent avec les observations d'importantes pénétrations d'oxydes aux joints de grains observées à l'issue des tests d'oxydation. Mise à part la composition chimique des oxydes formés, l'alliage  $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$  apparaît donc comme un matériau modèle adéquat pour mettre en place l'étude de la fissuration intergranulaire des aciers inoxydables austénitiques de type 304 / 316 des internes de cuve REP. En effet sa cinétique d'oxydation, surtout intergranulaire, rapide permet d'observer le phénomène de corrosion en accéléré et d'obtenir des échantillons sur lesquels il est possible de caractériser les propriétés de rupture des oxydes intergranulaires.

Des essais de micro-flexion sur des joints de grains oxydés sont donc réalisés dans la suite pour évaluer les propriétés de rupture des oxydes.

## 2. Quantification des propriétés de rupture des oxydes intergranulaires

Parmi les essais micro-mécaniques utilisés dans la littérature et présentés dans le chapitre 1, l'essai de micro-flexion est pertinent pour déterminer les propriétés de rupture des joints de grains [21, 22]. Cet essai consiste à solliciter une micro-poutre de type Cantilever (encastrée à une extrémité et libre



à l'autre), usinée par MEB-FIB, et dans laquelle un joint de grains a été positionné à proximité de l'encastrement.

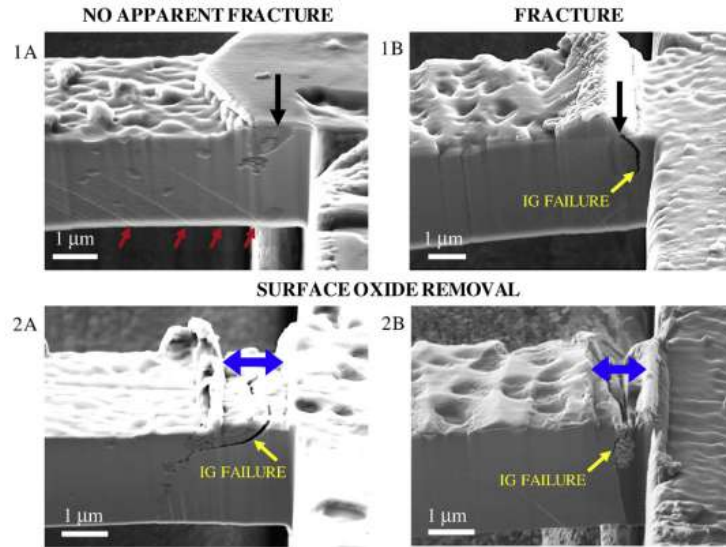


FIGURE 127. – Essai de micro-flexion avec rupture de joint de grains d’Inconel 600 oxydé en milieu REP [21]

Afin de déterminer les propriétés de rupture des oxydes formés aux joints de grains de notre matériau modèle, ce type d’essais est retenu, sans utiliser de pré-entaille, afin de déterminer les propriétés d’amorçage (et non de propagation).

## 2.1. Etude de dimensionnement des micro-poutres

### Géométrie

Afin de déterminer les dimensions adéquates des micro-poutres pour estimer les propriétés de rupture des joints de grains, une étude de dimensionnement est réalisée. Il s’agit donc de déterminer la gamme de paramètres géométriques qui permet de pouvoir interpréter les essais de manière simplifiée en utilisant la théorie des poutres. Pour cela, des simulations numériques par éléments finis sont réalisées sur la géométrie présentée sur la Fig. 128.

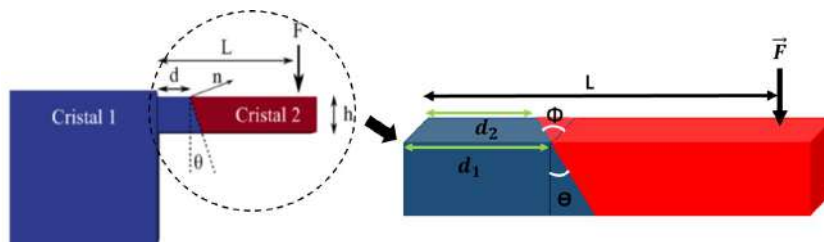


FIGURE 128. – Géométrie des poutres bi-cristallines

La poutre de longueur  $L$ , de largeur  $b$  et de hauteur  $h$  est composée d’un premier cristal qui comprend le support et la partie encastree de la poutre et un deuxième cristal qui va jusqu’au bord libre. L’inclinaison du joint dans la hauteur est représentée par l’angle  $\theta$  par rapport l’axe vertical de la poutre. Le joint peut aussi être incliné dans la largeur et cela est représenté par l’angle  $\Phi$ .  $\theta$  et  $\Phi$  sont considérés positifs vers l’encastrement. Le joint de grains étant incliné dans la largeur, sa position par rapport à l’encastrement de part et d’autre de la poutre est différent.  $d_1$  se réfère donc à la position du joint du côté 1 et  $d_2$  de l’autre côté. Ces valeurs ne peuvent pas toutes être fixées librement car les distances  $d_1$  et  $d_2$  fixent la valeur de l’angle  $\Phi$ . Quant au vecteur  $\vec{n}$ , il représente le vecteur normal au plan du joint de grains.

Dans la suite de cette étude de dimensionnement, des poutres à section carrées sont considérées ( $h = b$ ), avec des joints de grains orientés perpendiculairement selon la largeur de la poutre ( $\Phi = 0 \Leftrightarrow d_1 = d_2 = d$ ), ce qui correspond à la situation classique utilisée dans la littérature. Différentes longueurs de poutre  $L$ , positions du joint de grains par rapport à l'encastrement  $d$  et inclinaisons du joint de grains selon l'épaisseur  $\theta$  ainsi que diverses orientations cristallines sont testées (Tab. 29). Les distances présentées par la suite ont été normalisées par la hauteur  $h$  de la poutre.

Paramètres	Intervalle variation
Position joint	0-1 $h$
Inclinaison joint	0°-60°
Longueur poutre	3 $h$ -8 $h$

TABLEAU 29. – Gammes de paramètres utilisées lors des simulations pour le dimensionnement des micro-poutres

Les objectifs de ces simulations sont d'une part de déterminer le domaine de validité des formules analytiques issues de la théorie des poutres élastiques isotropes pour estimer les contraintes au niveau du joint de grains, et d'autre part d'évaluer l'homogénéité du champ de contrainte le long du joint de grains en surface.

### Maillage

La géométrie a été maillée avec des éléments tétraédriques et hexaédriques, en utilisant un maillage conforme au niveau du joint de grains (Fig. 129). Tous les éléments utilisés sont linéaires à intégration complète.

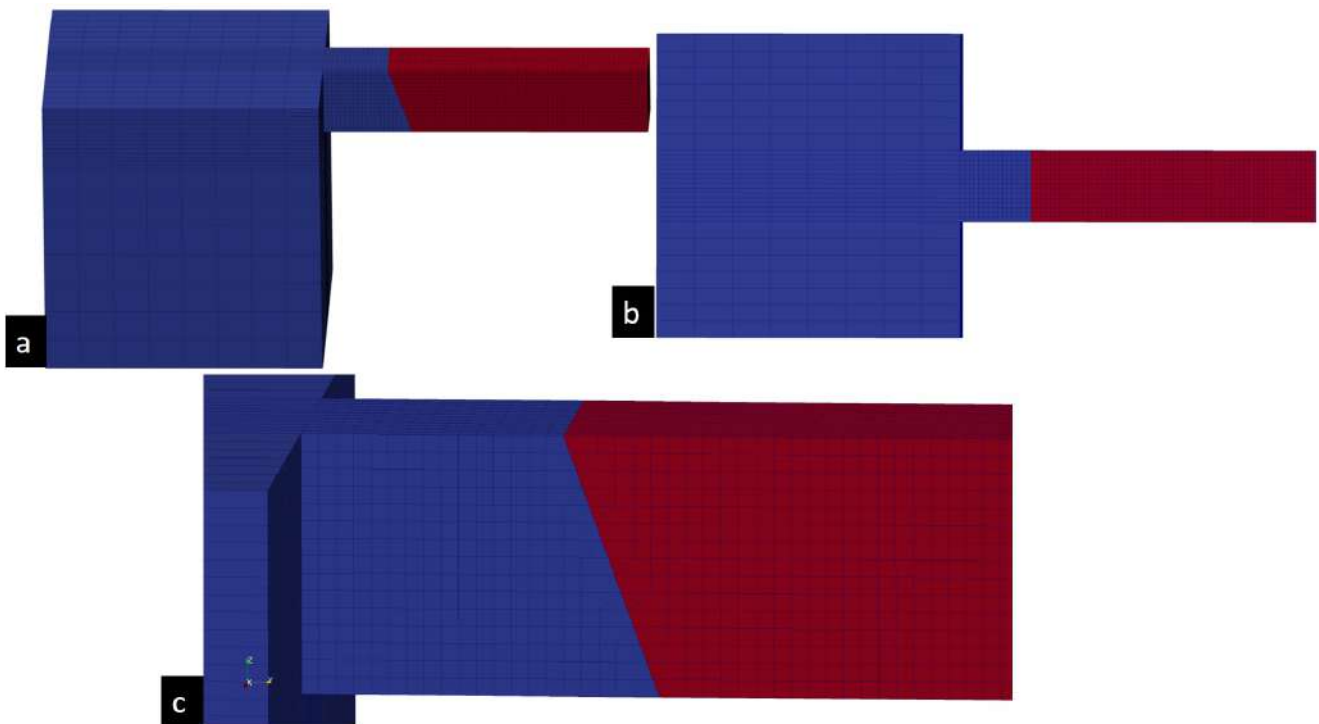


FIGURE 129. – Maillage des poutres bi-cristallines et du support vues de a) côté, b) dessus et sur les éléments du joint en c). En bleu la première partie de la poutre et le support (cristal 1) et en rouge la deuxième partie (cristal 2)

La densité du maillage ainsi que la taille du support sur la Fig. 129 sont choisies pour ne pas influencer sur les résultats, par exemple la force correspondant à un déplacement imposé à l'extrémité de la poutre. Le support est un cube de côté  $6h$  donnant un volume du support référence  $V_{ref}$  de  $216h^3$ . Doubler la

taille du support conduit à une diminution de la force inférieure à 2% dans les simulations présentées ci-après. De même, doubler la densité du maillage - composé de 21678 éléments - présenté sur la Fig. 129 conduit à une diminution de la force inférieure à 2%.

### Loi de comportement

En faisant l'hypothèse que la rupture du joint de grains aura lieu pour de faibles charges appliquées, les cristaux sont supposés obéir à la loi de Hooke :

$$\underline{\underline{\sigma}} = \underline{\underline{C}} : \underline{\underline{\varepsilon}} \quad (39)$$

où  $\underline{\underline{\sigma}}$  et  $\underline{\underline{\varepsilon}}$  sont respectivement le tenseur des contraintes et le tenseur des déformations (élastiques).  $\underline{\underline{C}}$  est le tenseur de rigidité qui s'écrit du fait de la symétrie cubique et en utilisant la notation de Voigt dans le repère d'orthotropie du cristal :

$$\underline{\underline{C}} = \underline{\underline{\tilde{C}}} = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{12} & C_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} \end{pmatrix}$$

A l'échelle du cristal, l'élasticité est caractérisée par les paramètres  $C_{11}$ ,  $C_{12}$  et  $C_{44}$ . Il est donc nécessaire de déterminer leurs valeurs. Pour cela, la méthodologie suivante a été utilisée en collaboration avec Florian Le Bourdais (CEA/DRT/LIST/DISC). Des mesures de Résonance Ultra-Sonore (RUS) ont été réalisées sur un échantillon du matériau de dimensions  $20 \times 15 \times 2\text{mm}^3$  conduisant au spectre visible sur la Fig. 130. L'échantillon étant polycristallin et supposé isotrope, son élasticité est caractérisé par un module d'Young  $E$  et un coefficient de Poisson  $\nu$ . Par une optimisation inverse, les valeurs de  $E$  et  $\nu$  sont déterminées pour obtenir la meilleure concordance entre les pics expérimentaux et ceux issus d'un modèle (Fig. 130), conduisant à :  $E = 188\text{GPa}$  et  $\nu = 0.28$ .

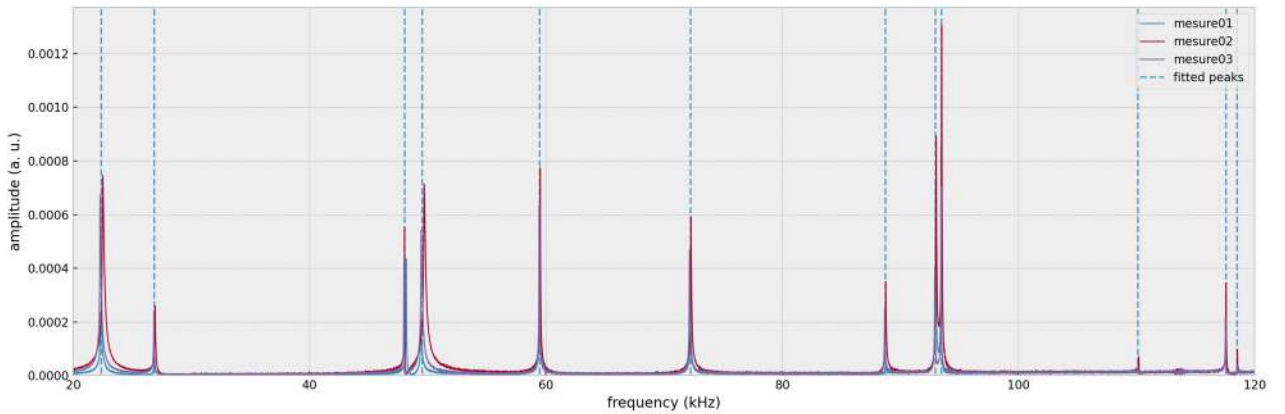


FIGURE 130. – Spectres de résonance : Comparaison des résultats expérimentaux de trois essais à la prédiction du modèle après identification de  $E$  et  $\nu$  par optimisation inverse.

Avec ces valeurs de  $E$  et  $\nu$ , il est possible de calculer des modules associés comme le module de compressibilité  $K$  et de cisaillement  $\mu$  :

$$K = \frac{E}{3(1 - 2\nu)} \quad (40)$$

$$\mu = \frac{E}{2(1 + \nu)} \quad (41)$$

Les constantes ( $C_{11}$ ,  $C_{12}$ ,  $C_{44}$ ) sont ensuite déterminées en résolvant le système d'équations suivant :

$$\frac{C_{11} + 2C_{12}}{3} - K = 0 \quad (42)$$

$$\frac{2C_{44}}{C_{11} - C_{12}} - 3.5 = 0 \quad (43)$$

$$8\mu^3 + (5C_{11} + 4C_{12})\mu^2 - C_{44}(7C_{11} - 4C_{12})\mu - C_{44}(C_{11} - C_{12})(C_{11} + 2C_{12}) = 0 \quad (44)$$

L'Eq. 42 vient de l'hypothèse que le coefficient de compressibilité du monocristal est le même que celui du polycristal. L'Eq. 43 fixe le coefficient d'anisotropie de Zener à 3.5 [23], valeur typique pour ce type d'alliage. Enfin l'Eq. 44 correspond à la prédiction du module de cisaillement d'un agrégat polycristallin cubique non texturé par le modèle auto-cohérent [24, 25]. La résolution du système conduit à :

$$C_{11} = 209 \text{ GPa}$$

$$C_{12} = 143 \text{ GPa}$$

$$C_{44} = 116 \text{ GPa}$$

La loi de comportement a été implémentée dans le générateur de codes **MFront** et nécessite de fournir, pour chaque cristal, l'orientation cristallographique, par exemple en fournissant les deux premiers axes d'orthotropie dans le repère de la simulation.

### Chargement mécanique

Le chargement mécanique est effectué en imposant un déplacement unitaire selon l'axe  $-U_z$  sur un nœud du bord supérieur libre de la poutre, à une distance  $L$  de l'encastrement (voir le carré blanc sur la Fig. 131b). La position du nœud peut être décentrée selon la largeur de la poutre afin d'étudier l'effet de l'excentrement sur les résultats des simulations. Les faces du support indiquées sur la Fig. 131 sont encastrées.

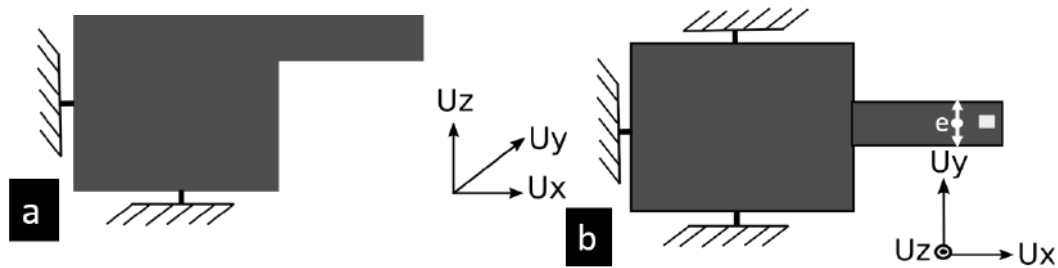


FIGURE 131. – Conditions aux limites : blocage des déplacements du support avec vue a) sur le côté et b) du dessus de la poutre. Le carré blanc représente le point d'application du chargement et la flèche l'excentrement  $e$ .

Les simulations sont réalisées avec le logiciel **Cast3M** 2021 en utilisant l'hypothèse des petites perturbations.

### Post-traitement

Pour chaque jeu de paramètres, le calcul éléments finis permet d'obtenir les contraintes au niveau des points de Gauss des éléments. Une interpolation du tenseur des contraintes aux nœuds du maillage est tout d'abord réalisée. Les valeurs des contraintes sont ensuite extraites aux éléments du joint de grains - tout élément en contact avec la ligne représentant le joint de grains - en surface puis sont

converties en contrainte normale au joint avec l'Eq. 45.

$$\sigma_{nn} = \vec{n} \cdot \underline{\underline{\sigma}} \cdot \vec{n} \quad (45)$$

avec  $\vec{n}$  le vecteur normal au plan du joint de grains. Ces valeurs de contraintes intergranulaires normales en chaque nœud sont moyennées pour avoir en données de sortie la contrainte moyenne  $\sigma_{nn}^{moy}$ . Cette valeur peut être comparée à la prédiction de la théorie des poutres élastiques isotropes qui conduit à :

$$\sigma_{nn}^{poutre} = \frac{6F(L-d)}{bh^2} \cos^2 \theta \quad (46)$$

Il est aussi possible d'évaluer l'homogénéité de la contrainte intergranulaire en calculant, par exemple :

$$\Delta\sigma_{nn} = \sigma_{nn}^{max} - \sigma_{nn}^{min} \quad (47)$$

L'objectif de ce dimensionnement est de déterminer la gamme de paramètres qui permet de pouvoir interpréter simplement ces expériences de micro-flexion, *i.e.*, qui permet d'évaluer, au moins en première approximation, les contraintes aux joints de grains à partir de la théorie des poutres élastiques isotropes, ce qui correspond à :

$$\begin{aligned} \sigma_{nn}^{moy} &\approx \sigma_{nn}^{poutre} \\ \Delta\sigma_{nn} &\approx 0 \end{aligned}$$

## Résultats

Pour chaque jeu de paramètres géométriques, cinq couples d'orientations cristallines choisis aléatoirement sont utilisés et les valeurs de  $\sigma_{nn}^{moy}$  et  $\Delta\sigma_{nn}$  sont moyennées afin de se focaliser dans un premier temps sur les effets géométriques. Le ratio entre  $\sigma_{nn}^{moy}$  et  $\sigma_{nn}^{poutre}$  est tracé en fonction de la position du joint de grains et de son inclinaison pour une longueur de poutre donnée, sans excentrement sur la Fig. 132 et avec un excentrement de  $e = \frac{4}{15} \times h$  sur la Fig. 133.

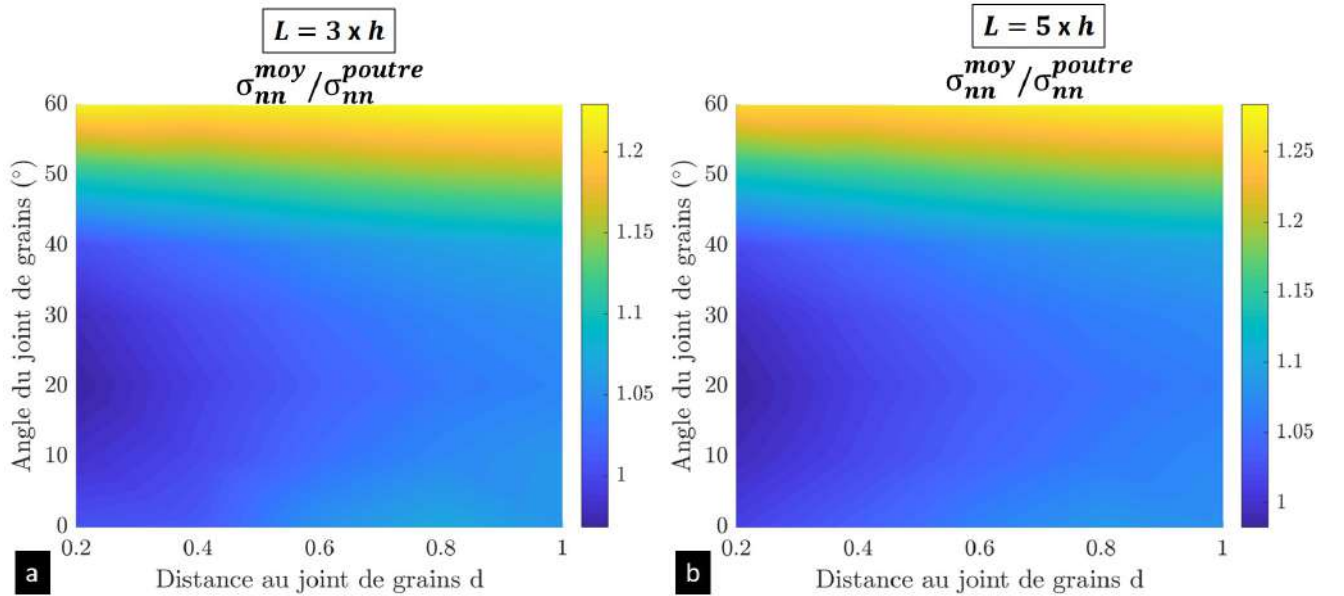


FIGURE 132. – Comparaison entre la contrainte normale analytique  $\sigma_{nn}^{poutre}$  et la contrainte normale de la simulation  $\sigma_{nn}^{moy}$  pour une longueur de a)  $L = 3 \times h$  et b)  $L = 5 \times h$  sans excentrement de l'indenteur

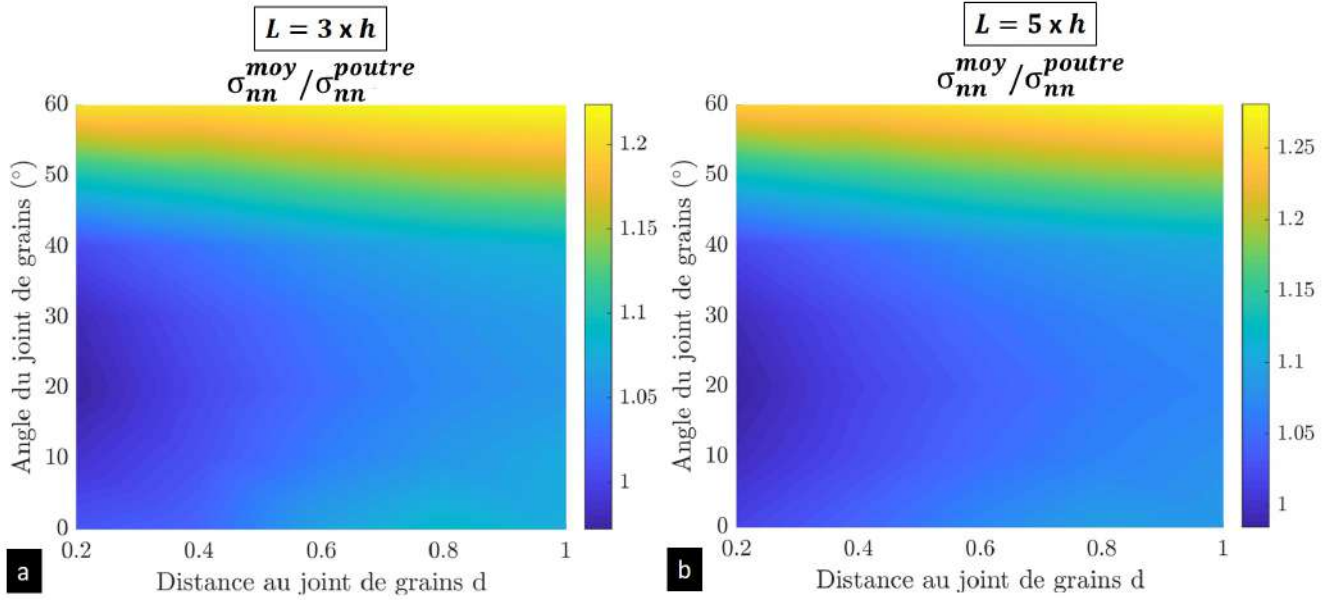


FIGURE 133. – Comparaison entre la contrainte normale analytique  $\sigma_{nn}^{poutre}$  et la contrainte normale de la simulation  $\sigma_{nn}^{moy}$  pour une longueur de a)  $L = 3 \times h$  et b)  $L = 5 \times h$  avec un excentrement de l'indenteur  $e = \frac{4}{15} \times h$

Ce ratio permet d'évaluer l'écart de la contrainte analytique à la contrainte issue de la simulation. Les configurations pour lesquelles ce ratio est proche de 1 permettent d'utiliser l'équation de la théorie des poutres élastiques isotropes pour estimer la contrainte normale intergranulaire en première estimation.

L'écart  $\Delta\sigma_{nn}$  normalisé par  $\sigma_{nn}^{moy}$  est tracé en fonction de la position du joint de grains et son inclinaison pour une longueur de poutre donnée, sans excentrement sur la Fig. 134 et avec un excentrement de  $e = \frac{4}{15} \times h$  sur la Fig. 135. Ce ratio permet de quantifier la variation de la contrainte dans le plan du joint de grains. Plus elle est petite, plus la contrainte intergranulaire est homogène, ce qui constitue une configuration favorable pour l'interprétation des essais.

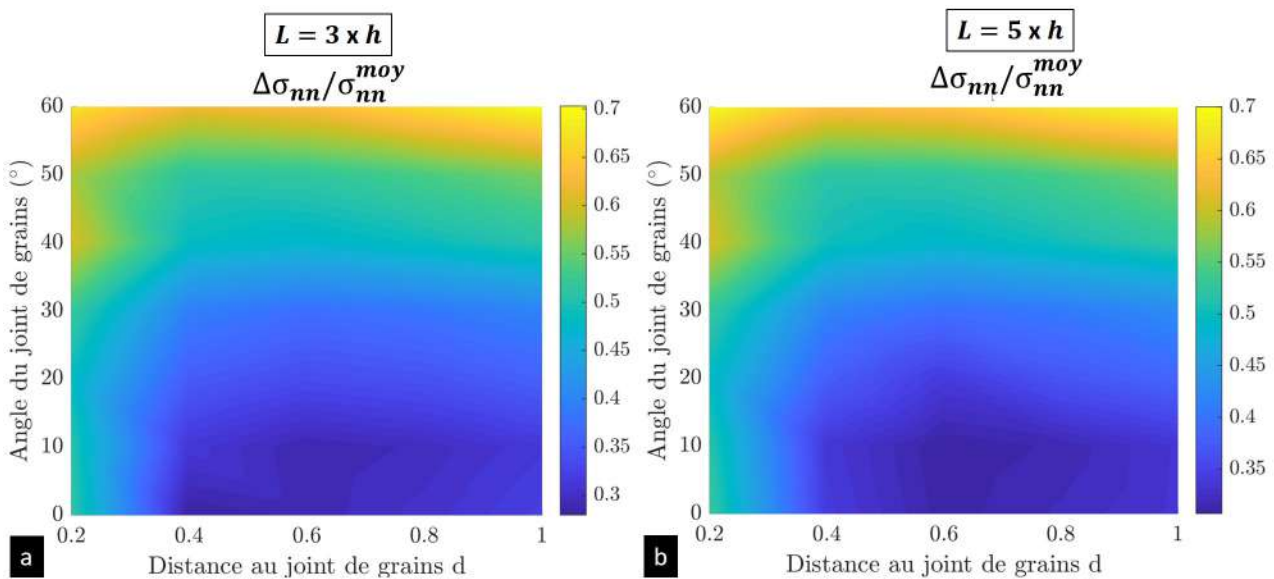


FIGURE 134. – Homogénéité de la contrainte normale dans le plan du joint de grains pour une longueur de  $L = 3 \times h$  et  $L = 5 \times h$  sans excentrement de l'indenteur



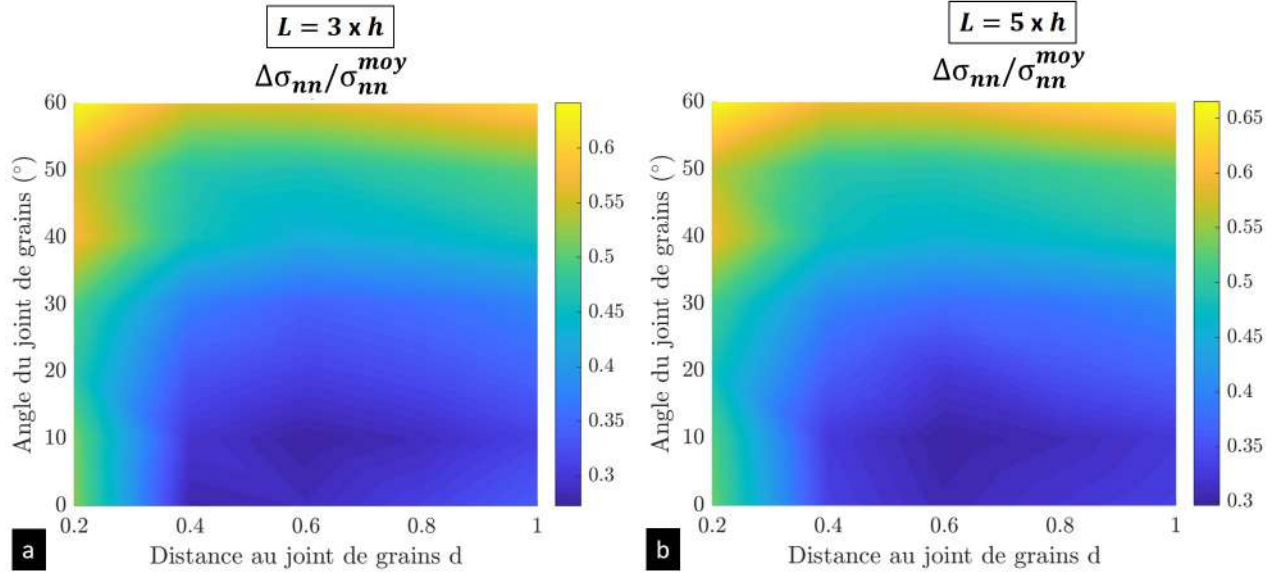


FIGURE 135. – Homogénéité de la contrainte normale dans le plan du joint de grains pour une longueur de  $L = 3 \times h$  et  $L = 5 \times h$  avec un excentrement de l’indenteur  $e = \frac{4}{15} \times h$

Plusieurs conclusions peuvent être tirées de ces résultats. Premièrement les effets de la longueur de la poutre et l’excentrement du point d’application de la charge sont très faibles. Ceci est cohérent avec l’hypothèse de base de la théorie des poutres qui stipule qu’à partir du moment où l’élancement de la poutre est suffisamment important, les champs mécaniques ne dépendent plus de la façon dont sont appliqués les efforts. Ce résultat, évoqué dans la littérature (voir Chapitre 1), est important d’un point de vue expérimental pour le positionnement latéral de l’indenteur qui n’est pas un paramètre de premier ordre. Deuxièmement pour des inclinaisons du joint de grains inférieures à environ  $40^\circ$  la théorie des poutres permet d’estimer la contrainte normale moyenne avec une très bonne précision (inférieure à 10%). Pour des inclinaisons plus fortes, l’écart augmente cependant rapidement. L’effet de la position du joint de grains par rapport à l’encastrement est faible dans la plage  $0.2h$  à  $1h$ . En ce qui concerne l’homogénéité de la contrainte le long du joint de grains, celle-ci diminue fortement lorsque le joint est trop proche de l’encastrement et / ou lorsque le joint de grains est trop incliné. Il faut cependant remarquer que, pour toutes les simulations réalisées, ce ratio est toujours supérieur à 30% indiquant que, structurellement, il y aura toujours une hétérogénéité de la contrainte sur le front de fissure.

Il est dès lors possible de déterminer une plage de valeurs optimales pour les paramètres géométriques permettant à la fois d’avoir recours à la théorie des poutres élastiques isotropes pour interpréter ce type d’essai et également de minimiser l’inhomogénéité de contraintes le long du joint. En fixant les conditions ( $\sigma_{nn}^{moy}/\sigma_{nn}^{poutre} \in [0.95 : 1.05]$  et  $\Delta\sigma_{nn}/\sigma_{nn}^{moy} < 40\%$ ), ces plages sont regroupées dans le tableau 30.

Longueur	Position joint	Inclinaison
$> 3 \times h$	$> 0.3 \times h$	$< 40^\circ$

TABLEAU 30. – Paramètres géométriques des micro-poutres pour lesquels l’utilisation de la théorie des poutres est possible pour interpréter les essais

Ces résultats ont été obtenus en moyenne sur plusieurs orientations cristallographiques. La Fig. 136 permet de visualiser l’effet de l’orientation cristallographique sur les deux ratios pour un jeu de paramètres géométriques donné (Tab. 31).



Longueur	Position joint	Inclinaison	Excentrement
$3 \times h$	$0.4 \times h$	$30^\circ$	0

TABLEAU 31. – Paramètres géométriques utilisés pour évaluer l’effet des couples d’orientations cristallographiques

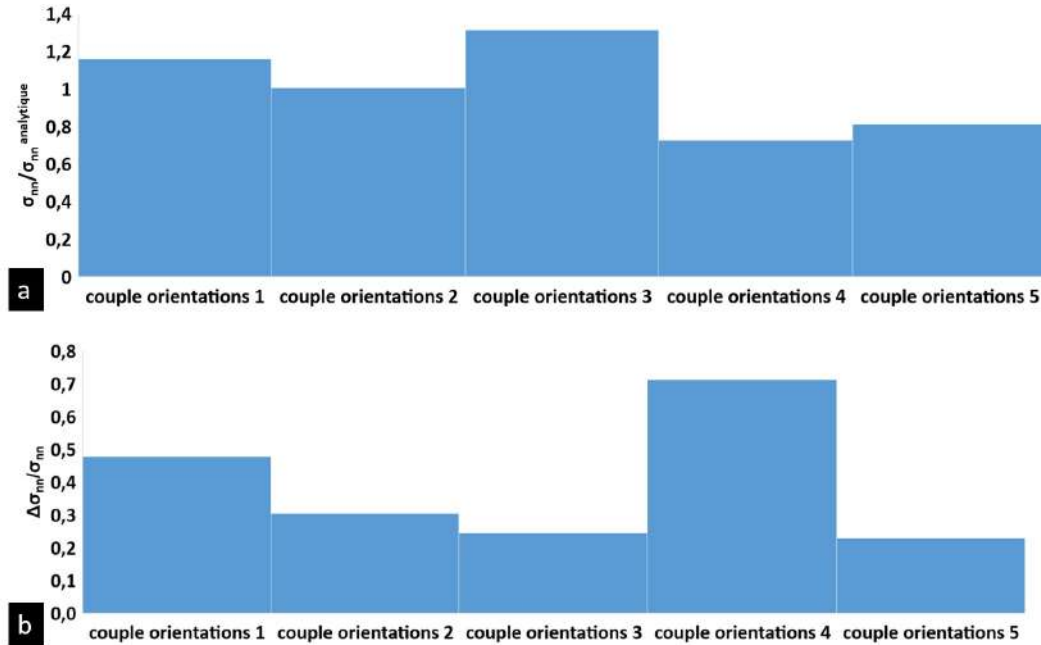


FIGURE 136. – Effet du couple d’orientations cristallographiques sur (a) la contrainte normale moyenne et (b) l’homogénéité le long du joint

La Fig. 136 montre que l’effet du couple d’orientations cristallographiques est significatif, à la fois sur la contrainte moyenne (avec une variation observée par rapport à la moyenne sur toutes les orientations allant jusqu’à  $\pm 20\%$ ) et également sur l’hétérogénéité de la contrainte (avec une variation maximale de 100%).

L’étude de dimensionnement permet d’aboutir aux conclusions suivantes :

- Dans la limite d’une poutre de longueur ( $L > 3 \times h$ ), avec un joint de grains faiblement incliné ( $\theta < 40^\circ$ ) et suffisamment loin de l’encastrement ( $d > 0.3 \times h$ ), la théorie des poutres peut être utilisée pour évaluer la contrainte intergranulaire en première approximation ;
- Dans le meilleur des cas, l’hétérogénéité de contraintes le long du joint de grains en surface est importante, de l’ordre de 30% ;
- L’effet de l’orientation cristallographique des grains n’est pas négligeable, à la fois sur la valeur moyenne de la contrainte mais encore plus sur l’hétérogénéité.

Dans la suite, les paramètres géométriques définis dans le tableau 30 seront visés pour l’usinage des micro-poutres afin de pouvoir utiliser la théorie des poutres en première approximation pour analyser les essais. Des simulations numériques seront conduites dans un deuxième temps pour affiner les résultats.

### 2.1.1. Protocole d’usinage des micro-poutres bi-cristallines

Des micro-poutres bi-cristallines (Fig. 138) ont été usinées sur le bord (Fig. 137) de l’échantillon afin de pouvoir les visualiser plus facilement lors de l’essai et quantifier leur flexion. Dans un premier temps, les orientations cristallographiques des grains de la micro-poutre (et donc la désorientation du

joint de grains) sont déterminées par cartographie EBSD sur la section transverse de la barre oxydée. Cette face a été polie en utilisant le faisceau d'ions du MEB-FIB afin d'enlever la couche d'oxyde avant la cartographie (Fig. 137). Cela permet de cibler la région et les joints de grains à tester. L'usinage est réalisé en suivant les étapes présentées dans le tableau 32. Le protocole est donc le suivant :

- 1) Polissage de la section transverse : Enlever la couche d'oxyde pour dégager une zone afin d'identifier la position des joints de grains et réaliser une cartographie EBSD
- 2) Cartographie EBSD : Identifier les orientations des cristaux de la poutre et caractériser la désorientation du joint de grains
- 3) Choix de l'emplacement des micro-poutres et dégagement des côtés avec un courant d'usinage de 20 à 9nA (pour tous les usinages, la tension est maintenue à 30kV)
- 4) Couper le dessous de la poutre de 20 à 2nA
- 5) Usinage fin des côtés de la poutre à 0.8nA
- 6) Usinage fin du dessous de la poutre à 0.8nA

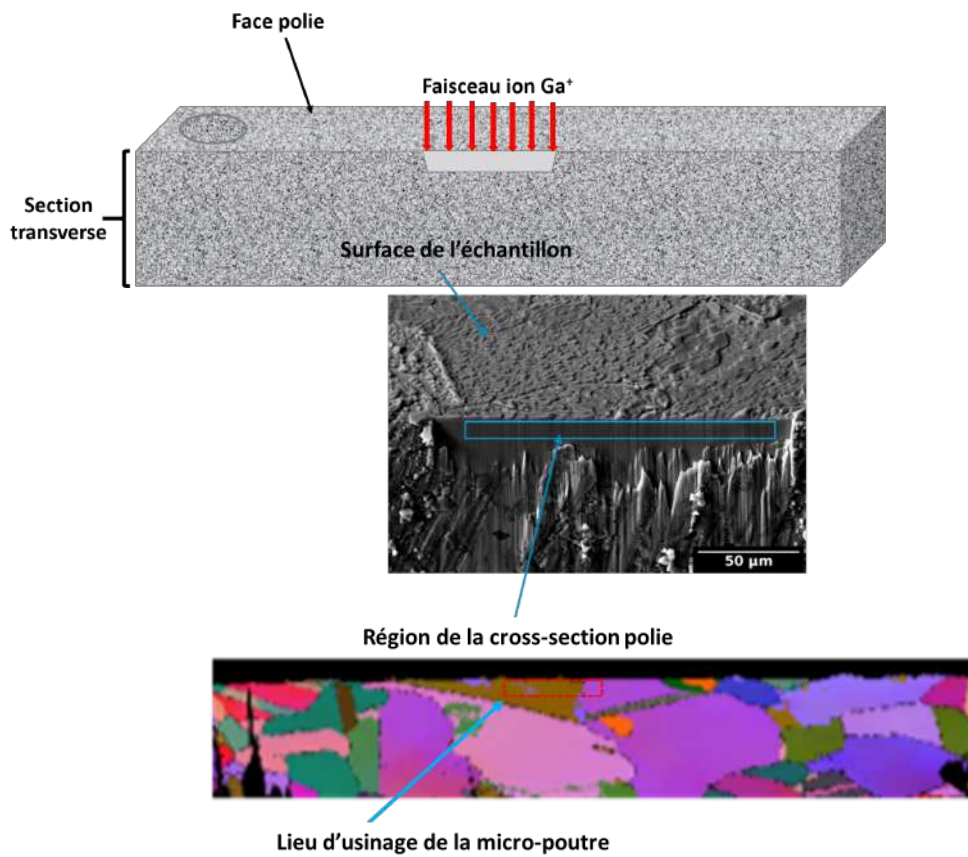


FIGURE 137. – Identification des joints de grains et localisation de l'emplacement d'usinage des micro-poutres

Etape d'usinage	Courant d'usinage (nA)	Dimensions ( $\mu\text{m}$ ) Longueur x Largeur x Hauteur
Dégager les côtés de la poutre	20	17 x 8 x
Dégager les côtés de la poutre	9	16 x 7 x
Couper le dessous de la poutre	20	16 x 7 x 8
Couper le dessous de la poutre	9	16 x 7 x 7
Couper le dessous de la poutre	2	16 x 7 x 6
Nettoyer les côtés de la poutre	2	16 x 6 x 6
Nettoyer les côtés de la poutre	0.8	15 x 5 x 6
Nettoyer le dessous de la poutre	0.8	15 x 5 x 5

TABLEAU 32. – Procédure d'usinage des poutres

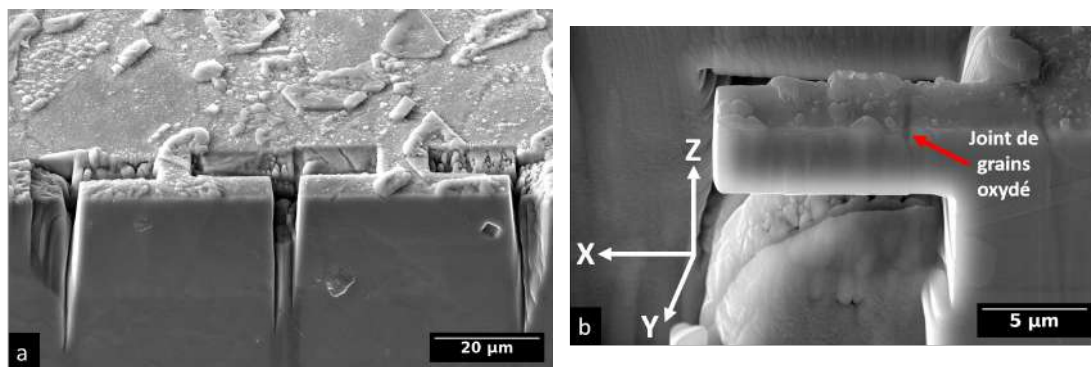


FIGURE 138. – Fabrication des poutres avec a) usinage en cours et b) poutre finale

Huit poutres ont été usinées sur la barre oxydée 3680h, et huit poutres sur la barre oxydée 7470h. Les dimensions ainsi que les couples d'orientations des 16 micro-poutres usinées sont présentés dans le tableau 33. Les orientations cristallographiques des deux grains adjacents sont repérées en donnant les axes X et Y dans le repère des cristaux sauf pour les quatre premières poutres où les orientations cristallographiques n'ont pas pu être déterminées.

En ce qui concerne la hauteur, il y a plusieurs cas de figure selon que des cristallites sont présentes (Fig. 139a) ou non (Fig. 139b). La hauteur rapportée dans le tableau comprend la couche d'oxyde continue mais pas la hauteur des cristallites puisque leur répartition est hétérogène.

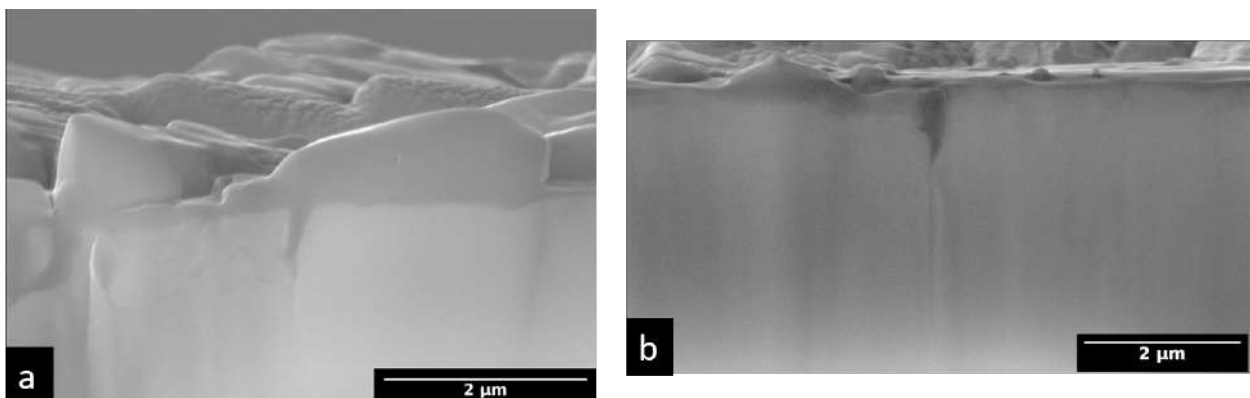


FIGURE 139. – Morphologies de l'oxyde au-dessus du joint de grain avec a) présence de cristallites et b) présence d'un oxyde continu plus uniforme

La rupture de ces cristallites lors de la fissuration de la poutre participe à l'énergie et la contrainte à rupture estimées. Afin d'atténuer cette participation, sur les poutres usinées dans l'échantillon oxydé 7470h, les cristallites sont enlevées en rasant le dessus de la poutre avec le faisceau du MEB-FIB avec un courant de 0.8nA (Fig. 140).

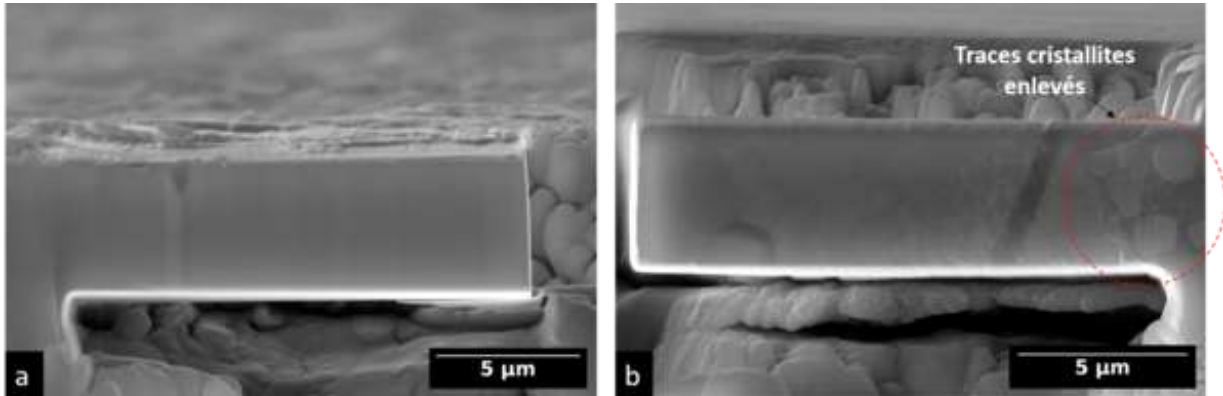


FIGURE 140. – Poutre avec cristallites abrasées au MEB-FIB en vue de a) côté et b) dessus

	Longueur ( $\mu\text{m}$ )	Largeur ( $\mu\text{m}$ )	Hauteur ( $\mu\text{m}$ )	Orientation n°1		Orientation n°2	
				X	Y	X	Y
Poutre1-ox3680h	16.6	6.3	6.0	$\square$	$\square$	$\square$	$\square$
Poutre2-ox3680h	18.0	5.3	4.7	$\square$	$\square$	$\square$	$\square$
Poutre3-ox3680h	15.9	5.8	3.7	$\square$	$\square$	$\square$	$\square$
Poutre4-ox3680h	12.6	5.3	4.3	$\square$	$\square$	$\square$	$\square$
Poutre5-ox3680h	9.5	3.8	2.0	$[7\ 9\ \bar{5}]$	$[\bar{1}\ \bar{5}\ \bar{11}]$	$[\bar{5}\ \bar{6}\ 7]$	$[9\ \bar{4}\ \bar{10}]$
Poutre6-ox3680h	12.0	3.4	4.0	$[\bar{3}\ 0\ 2]$	$[\bar{5}\ \bar{6}\ 7]$	$[2\ 5\ \bar{2}]$	$[9\ \bar{1}\ \bar{12}]$
Poutre7-ox3680h	15.0	4.1	5.4	$[\bar{10}\ \bar{9}\ 6]$	$[4\ 1\ 9]$	$[\bar{3}\ \bar{11}\ 2]$	$[\bar{2}\ 0\ \bar{3}]$
Poutre8-ox3680h	13.8	3.6	2.9	$[3\ 11\ \bar{10}]$	$[\bar{2}\ \bar{3}\ \bar{4}]$	$[\bar{12}\ \bar{3}\ 7]$	$[\bar{6}\ \bar{2}\ \bar{11}]$
Poutre1-ox7470h	14.2	4.6	5.5	$[\bar{2}\ \bar{11}\ 5]$	$[\bar{5}\ \bar{3}\ \bar{9}]$	$[1\ 12\ \bar{7}]$	$[\bar{4}\ \bar{7}\ \bar{12}]$
Poutre2-ox7470h	15.0	5.4	5.8	$[\bar{11}\ \bar{11}\ 6]$	$[1\ 3\ 7]$	$[5\ \bar{9}\ 4]$	$[9\ 9\ 11]$
Poutre3-ox7470h	14.5	4.7	4.9	$[\bar{11}\ \bar{6}\ 11]$	$[8\ 3\ 10]$	$[1\ \bar{1}\ 0]$	$[4\ 4\ 9]$
Poutre4-ox7470h	14.3	5.0	5.1	$[\bar{1}\ \bar{11}\ 7]$	$[\bar{5}\ \bar{6}\ \bar{10}]$	$[\bar{11}\ 2\ 3]$	$[\bar{3}\ \bar{1}\ \bar{12}]$
Poutre5-ox7470h	16.0	5.8	5.0	$[\bar{4}\ \bar{7}\ 7]$	$[9\ 6\ 11]$	$[9\ \bar{6}\ \bar{4}]$	$[2\ 1\ 3]$
Poutre6-ox7470h	16.0	5.0	5.0	$[\bar{6}\ \bar{12}\ 11]$	$[9\ 6\ 11]$	$[4\ 7\ \bar{4}]$	$[2\ 5\ 11]$
Poutre7-ox7470h	15.5	4.0	4.6	$[\bar{12}\ 2\ 7]$	$[\bar{8}\ \bar{5}\ \bar{12}]$	$[3\ 11\ \bar{4}]$	$[\bar{4}\ \bar{1}\ \bar{6}]$
Poutre8-ox7470h	15.8	5.0	4.9	$[\bar{2}\ 5\ 1]$	$[\bar{6}\ \bar{1}\ \bar{8}]$	$[\bar{1}\ 12\ \bar{1}]$	$[\bar{8}\ \bar{1}\ \bar{10}]$

TABLEAU 33. – Caractéristiques des micro-poutres usinées sur l'acier  $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$  oxydé 3680h et 7470h. Les orientations cristallographiques sont repérées en donnant les axes X et Y dans le repère des cristaux.

Le tableau 34 rassemble les informations des joints de grains présents dans les différentes poutres. Les mesures de la profondeur et de la largeur de l'oxyde intergranulaires sont réalisées sur un seul côté de la poutre comme montré sur la Fig. 141.

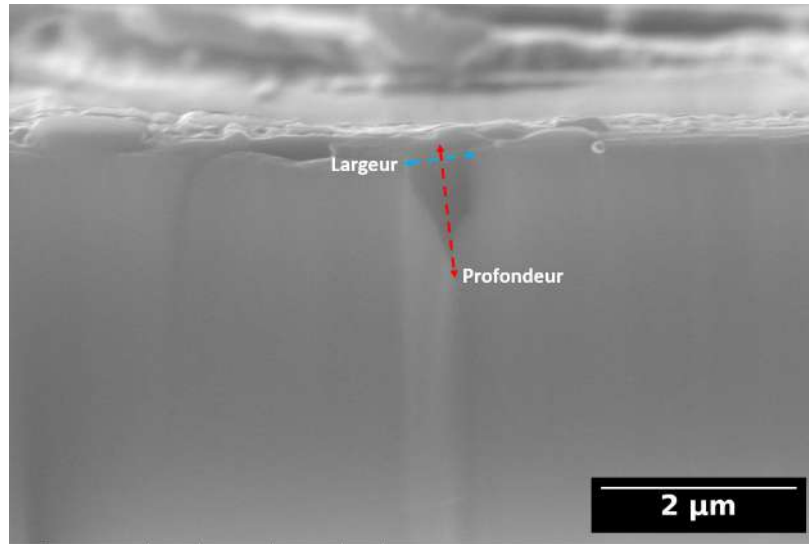


FIGURE 141. – Mesure des dimensions de l'oxyde intergranulaire

	Position joint côté 1 ( $\mu\text{m}$ )	Position joint côté 2 ( $\mu\text{m}$ )	Inclinaison joint ( $^\circ$ )	Profondeur oxyde intergranulaire ( $\mu\text{m}$ )	Largeur oxyde intergranulaire ( $\mu\text{m}$ )
Poutre1-ox3680h	1.8	1.6	20	1	0.2
Poutre2-ox3680h	4.0	3.7	40	1.2	0.6
Poutre3-ox3680h	4.3	4.7	15	0.5	0.2
Poutre4-ox3680h	3.0	2.2	33	1.0	0.5
Poutre5-ox3680h	1.4	1.7	10	1.1	0.2
Poutre6-ox3680h	2.6	2.7	0	1.3	0.4
Poutre7-ox3680h	2.8	2.7	55	1.7	0.4
Poutre8-ox3680h	1.3	1.9	32	1.4	0.9
Poutre1-ox7470h	1.4	2.4	7	0.1	0.1
Poutre2-ox7470h	4.0	4.0	30	1.3	0.2
Poutre3-ox7470h	7.0	3.4	53	1.7	0.9
Poutre4-ox7470h	1.0	0.7	16	1.2	0.5
Poutre5-ox7470h	3.5	0.8	47	1.5	1.4
Poutre6-ox7470h	2.4	3.7	25	0.4	0.2
Poutre7-ox7470h	3.4	0.8	20	1.4	0.7
Poutre8-ox7470h	2.5	2.0	45	1.9	0.8

TABLEAU 34. – Caractéristiques des joints de grains présents dans les poutres usinées sur l'acier  $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$  oxydé 3680h et 7470h

Parmi les seize poutres usinées, dix remplissent tous les critères pour évaluer les contraintes intergranulaire déterminés par l'étude de dimensionnement. Quelques poutres présentent un élancement légèrement inférieur au critère (2.6 au lieu de 3), pour d'autres poutres les joints sont plus proches de l'encastrement et deux ont un angle d'inclinaison supérieur à  $50^\circ$  ( $55^\circ$  et  $53^\circ$ ). Cependant ces écarts aux critère de dimensionnement restent faibles.

### 2.1.2. Description des essais de micro-flexion

Le dispositif expérimental est le même que celui utilisé pour les essais de micro-compression de piliers décrits dans le chapitre 2 (Fig. 142a) en utilisant cette fois un indenteur de type diamant Ber-

kovich (Fig. 142b)

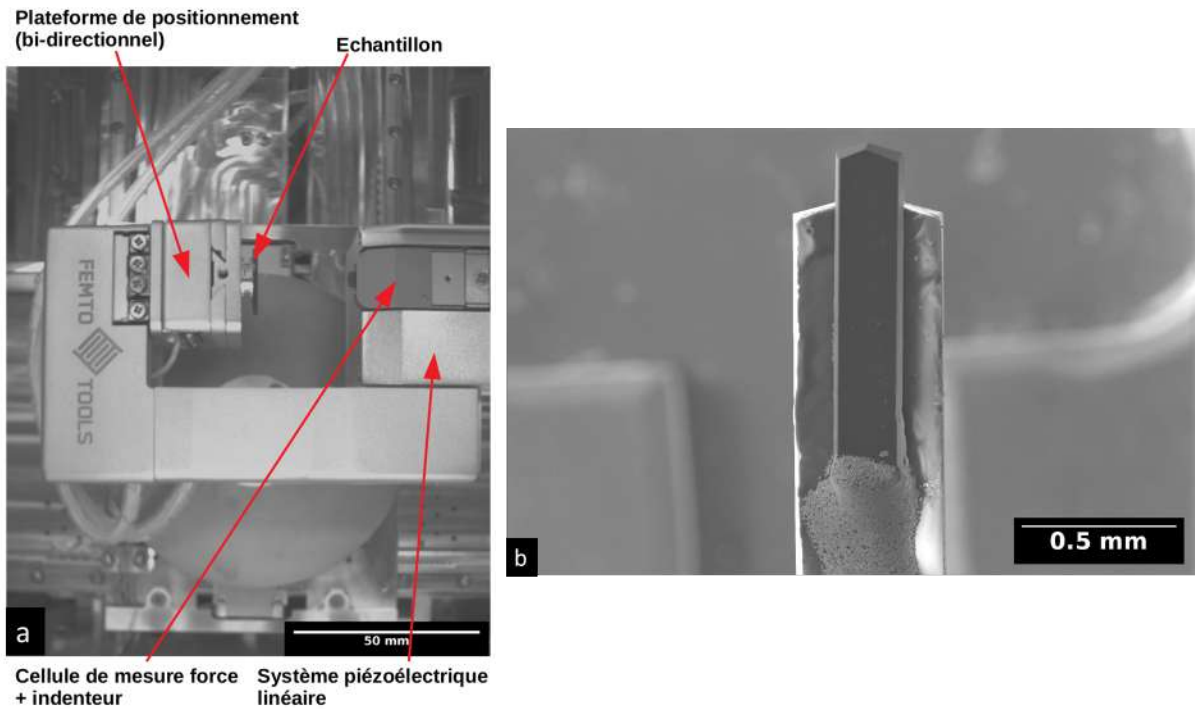


FIGURE 142. – a) Dispositif de flexion de micro-poutres b) Indenteur Berkovich relié à la cellule de force

La cellule de force est la même que celle du Chapitre 2. Ses caractéristiques et celles de la machine d'essai sont rappelées dans le tableau 35.

	Déplacement plateforme échantillon	Déplacement Piézo	Cellule de force
Amplitude	1mm	1mm	200mN
Incertitude	$\pm 1\text{nm}$	$\pm 1\text{nm}$	$\pm 0.5\text{nN}$

TABEAU 35. – Caractéristiques du nanoindenteur et de la cellule de force

Le déplacement mesuré est ensuite corrigée par le logiciel en retirant la raideur du système d'essai. En effet un essai de nanoindentation est réalisé pour déterminer la raideur avec la nouvelle pointe (ratio entre la variation de force  $F$  appliquée et le déplacement  $d$ ) :

$$R = \frac{\Delta F}{\Delta d} \quad (48)$$

Le déplacement mesuré est ensuite corrigé automatiquement par l'opération :

$$d_{corr} = d_{mesure} - (F/R) \quad (49)$$

Cependant, la raideur du dispositif étant de 50.000N/m donc bien supérieure à celle de la poutre, cette correction n'a pas d'incidence sur les valeurs obtenues.

L'essai de flexion se déroule à température ambiante et in-situ dans un MEB-FEG FEI Helios Nano-Lab600i pour le suivre en temps réel. Durant l'essai, l'extrémité libre de la poutre est déplacée vers le bas grâce à l'indenteur (Fig. 143). Une vitesse de déplacement de 20nm/s a été utilisée pour tous les essais. La position de l'indenteur est choisie suite à l'étude de dimensionnement (voir section 2.1) afin



d'avoir la longueur  $L$  adéquate ( $L > 3 \times h$ ). Il est rappelé que l'étude de dimensionnement a permis de conclure sur le fait que le positionnement de l'indenteur selon la largeur de la poutre n'était pas un paramètre de premier ordre.

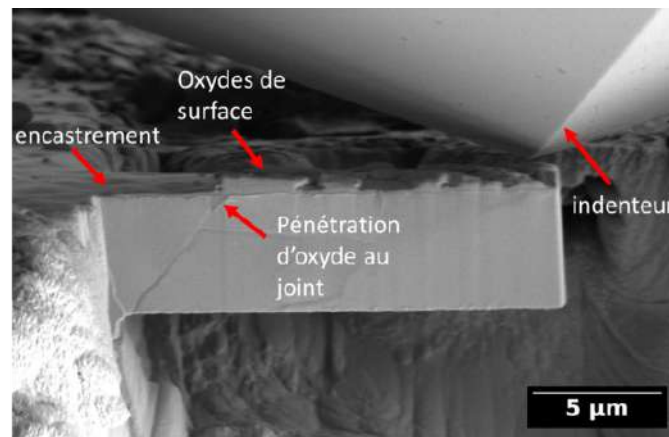


FIGURE 143. – Disposition des différents éléments au début de l'essai de micro-flexion in-situ

Lorsque le déplacement atteint une valeur critique, le joint de grain placé près du bord encasté de la poutre se fissure, provoquant une chute de charge. L'utilisation de l'indenteur Berkovich permet de marquer la position précise du point de chargement, qui sera utilisée lors de l'exploitation de l'essai.

## 2.2. Résultats des essais de flexion de micro-poutres bi-cristallines

### 2.2.1. Courbes force - déplacement

Les 16 micro-poutres usinées ont été testées, 12 d'entre elles ont conduit à une fissuration au niveau du joint de grains. La Fig. 144 présente une courbe de charge typique d'un essai de flexion.

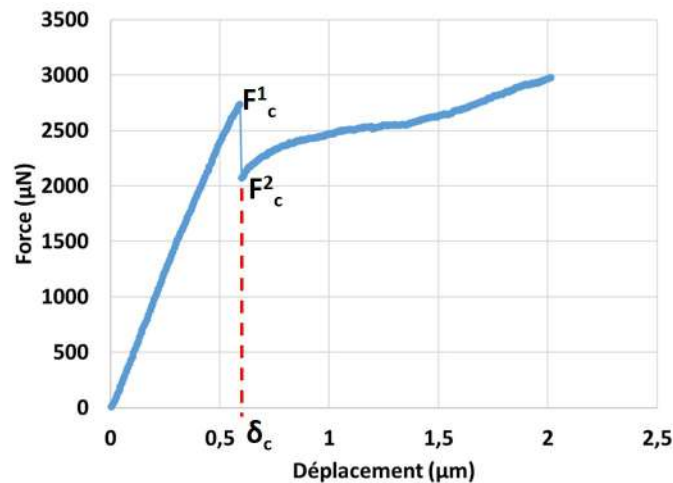


FIGURE 144. – Courbe d'un essai de flexion avec rupture du joint de grain oxydé

Sur l'exemple présenté la poutre se déforme élastiquement avant la rupture du joint de grains oxydé, représentée par la chute de charge. La fissure s'arrête à la fin de l'oxyde intergranulaire (Fig. 145). Lors de la suite de l'essai, la poutre se déforme de manière plastique sans propagation de la fissure mais avec un émoussement en pointe de fissure.

A partir de la courbe de charge (Fig. 144), il est possible d'extraire des grandeurs caractéristiques de l'essai, à savoir le déplacement critique à rupture  $\delta_c$ , les forces juste avant et juste après la rupture  $F_c^1$  et  $F_c^2$ . Les observations MEB en cours d'essai et après essai (Fig. 145) permettent quant à elles de vérifier que la rupture a bien eu lieu au niveau de joint de grains, mais également de visualiser la présence de fissures secondaires dans la couche d'oxyde, comme cela est visible sur la Fig. 145.



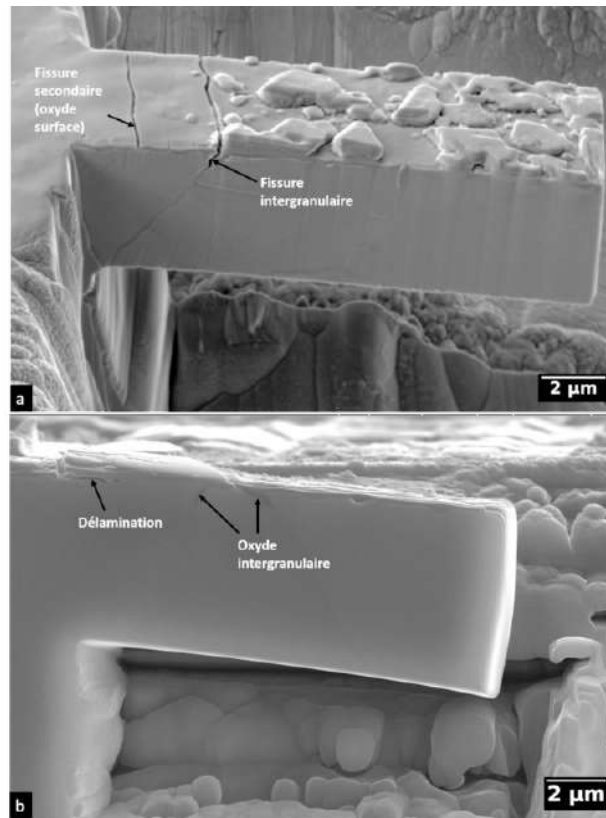


FIGURE 145. – Observations MEB de poutres après essai avec a) rupture du joint de grains et de l’oxyde de surface et b) délamination de la couche d’oxyde sans fissuration du joint de grains

L’ensemble des courbes est présenté sur la Fig. 146 pour les poutres usinées dans la barre oxydée 3680h et celle oxydée 7470h.

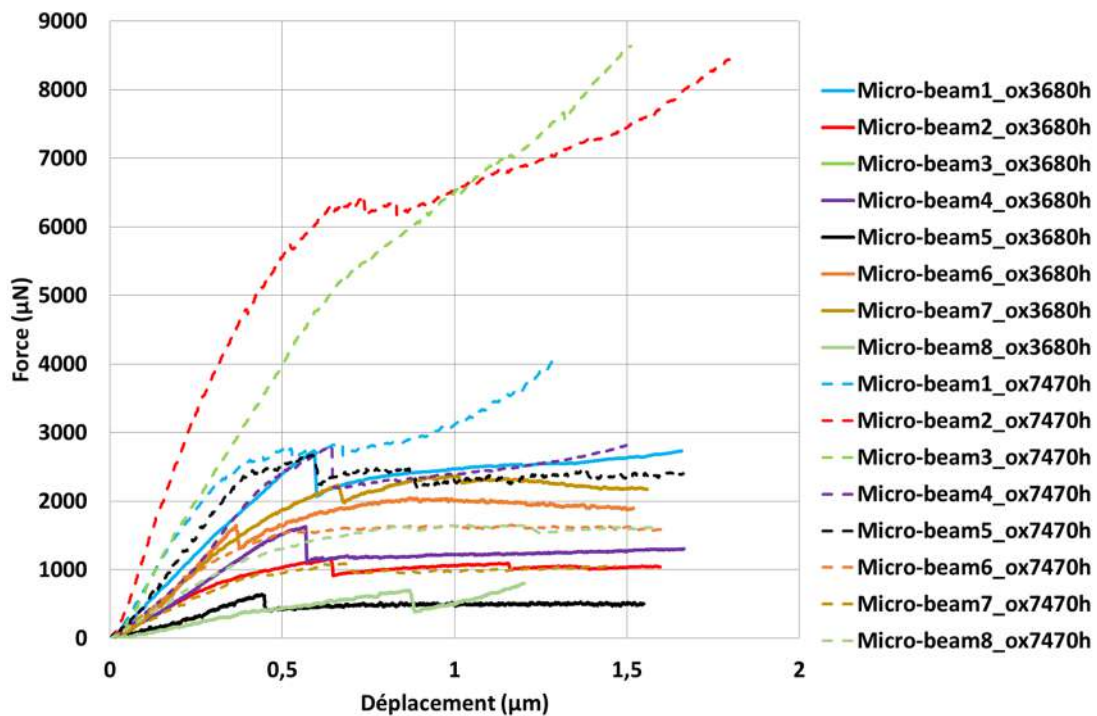


FIGURE 146. – Courbes force - déplacement des essais de flexion sur micro-poutres contenant un joint de grains de l’acier  $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$  oxydé 3680h et 7470h en milieu REP

Une grande dispersion des courbes de charge est observée, que ce soit pour la pente élastique, la force

à rupture ou le comportement plastique. Sachant que l'intérêt principal de cette étude est la partie élastique jusqu'à la rupture, la dispersion dans cette partie de l'essai peut être due à plusieurs facteurs. Tout d'abord, les caractéristiques géométriques des poutres diffèrent (Tab. 33). D'autre part, pour deux poutres de même dimensions, les différences d'orientations cristallographiques conduisent à des différences de rigidité. Enfin, la différence d'épaisseur de couche d'oxyde est de nature à affecter la rigidité de la poutre.

Afin de s'affranchir de l'effet géométrique, une méthode consiste à normaliser les valeurs de charge  $F$  et de déplacement  $d$  en utilisant la théorie des poutres élastiques isotropes. Cette théorie conduit à la relation :

$$\frac{d}{L} = \frac{FL^2}{3EI} \text{ avec } I = \frac{bh^3}{12} \quad (50)$$

pour une poutre encadrée - libre. En prenant de manière arbitraire un module d'Young de 200GPa les courbes normalisées sont réunies dans la Fig. 147 pour les douze micro-poutres ayant fissurées, et en ne conservant que la partie élastique jusqu'à la fissuration.

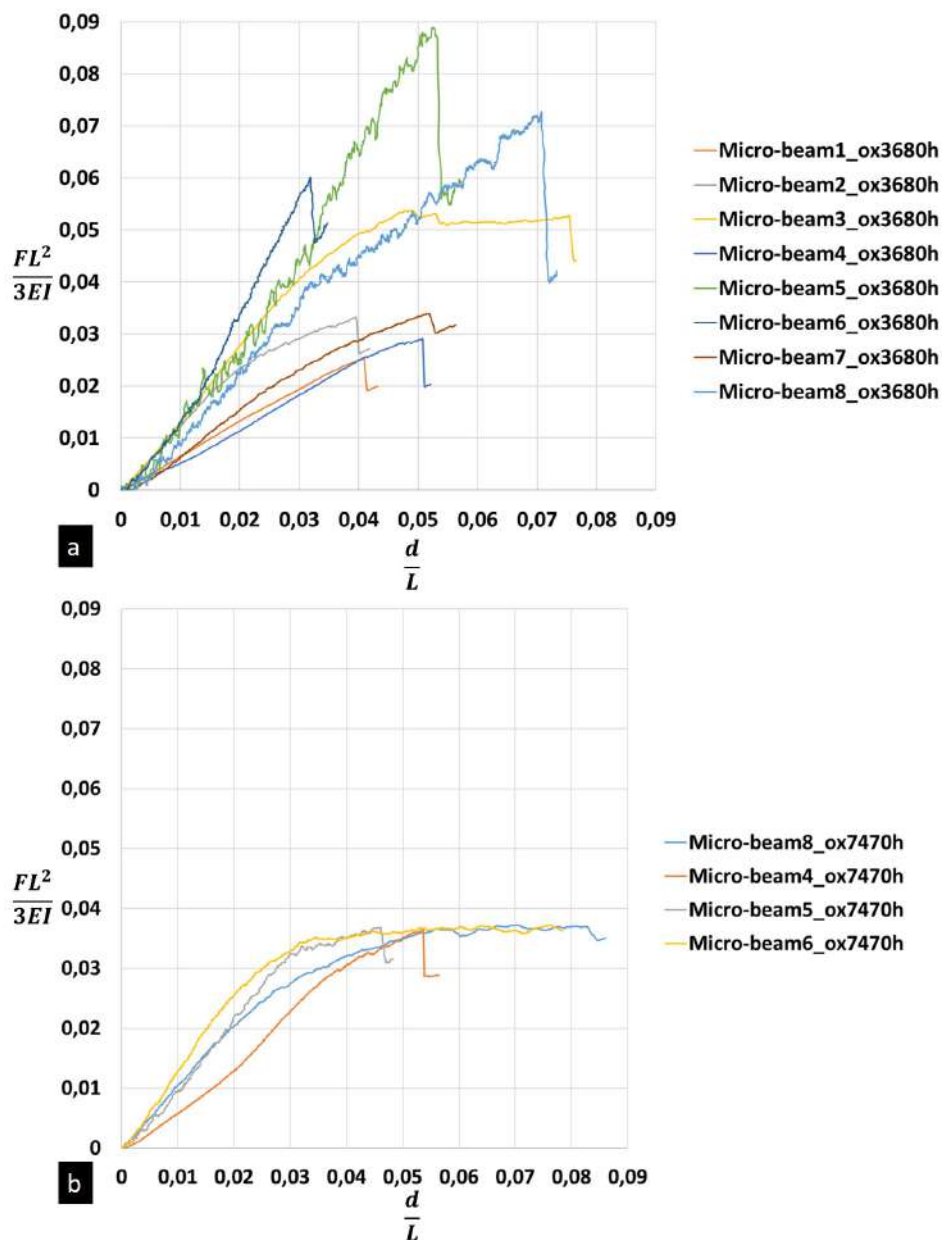


FIGURE 147. – Courbes force - déplacement normalisées des essais de flexion des micro-poutres ayant fissurées au joint de grains dans l'acier  $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$  oxydé à a) 3680h et b) 7470h en milieu REP

Si les différences entre les essais ne provenaient que des facteurs géométriques, une courbe maîtresse devrait être obtenue (voire une droite pour un comportement purement élastique). Un bon accord est obtenu pour les poutres usinées dans la barre oxydée 7470h, les variations résiduelles pouvant être attribuées aux différences d'orientations cristallographiques. Cependant une dispersion importante subsiste pour l'échantillon oxydé à 3680h pour lequel deux faisceaux de courbes sont observés. Les courbes des poutres 3, 5, 6 et 8 présentent des niveaux de charge plus élevés. Dans le cas des poutres 3 et 5, la présence de larges cristallites en surface peut expliquer cette différence. Dans les deux autres cas la taille de l'oxyde intergranulaire est importante. La différence entre les essais sur les poutres usinées dans la barre oxydée 3680h et celle oxydée 7470h provient du fait que pour ces dernières les cristallites ont été enlevées afin d'obtenir un état plus contrôlé.

Le tableau 36 rassemble les résultats suite aux essais. Parmi les essais qui ont abouti à une rupture, six (marqué par un \*) ont eu lieu dans l'oxyde intergranulaire (Fig. 148b) tandis que les autres se localisent à l'interface métal/oxyde (Fig. 148a).

	Fissuration joint	Multifissuration en surface	Localisation fissure	$F_c^1$ ( $\mu\text{N}$ )	$F_c^2$ ( $\mu\text{N}$ )	$\delta_c$ ( $\mu\text{m}$ )
Poutre1-ox3680h	oui	oui	interface	2750	2066	0.6
Poutre2-ox3680h*	oui	oui	oxyde	1239	985	0.7
Poutre3-ox3680h*	oui	oui	oxyde	1300	1200	0.95
Poutre4-ox3680h*	oui	non	oxyde	1626	1105	0.57
Poutre5-ox3680h	oui	non	interface	620	405	0.44
Poutre6-ox3680h*	oui	non	oxyde	1650	1300	0.37
Poutre7-ox3680h*	oui	oui	oxyde	2240	1970	0.67
Poutre8-ox3680h	oui	non	interface	725	430	0.89
Poutre1-ox7470h	non	-	-	-	-	-
Poutre2-ox7470h	non	-	-	-	-	-
Poutre3-ox7470h	non	-	-	-	-	-
Poutre4-ox7470h	oui	oui	interface	2790	2210	0.65
Poutre5-ox7470h*	oui	oui	oxyde	2630	2270	0.6
Poutre6-ox7470h	oui	oui	interface	1550	1526	0.55
Poutre7-ox7470h	non	-	-	-	-	-
Poutre8-ox7470h	oui	non	interface	1646	1540	0.87

TABLEAU 36. – Synthèse des résultats des essais sur l'acier  $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$  oxydé 3680h et 7470h

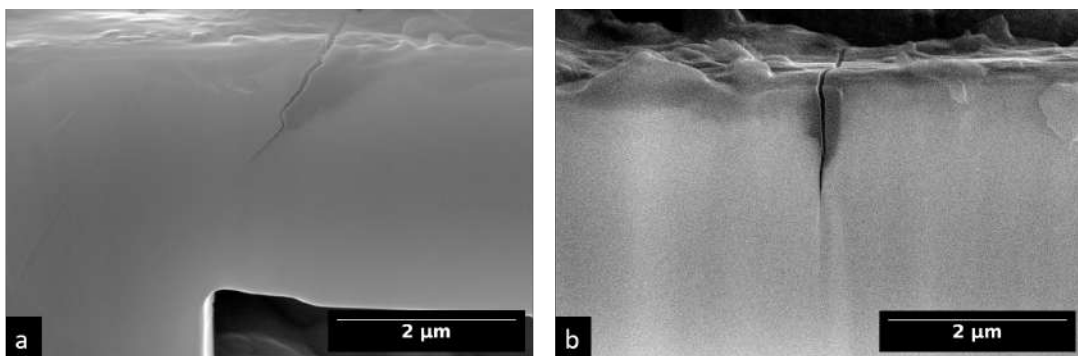


FIGURE 148. – Localisation de la fissure à a) l'interface métal/oxyde et dans b) l'oxyde intergranulaire

Les observations MEB des échantillons après oxydation avaient permis de visualiser, dans certains cas, la position de l'ancien joint de grains dans l'oxyde intergranulaire. Pour les fissurations observées dans

celui-ci (et non à l'interface métal / oxyde), une question légitime est de se demander si la fissure suit le chemin de l'ancien joint de grains. Cependant, les observations ne permettent pas de répondre à cette question.

Comme discuté dans la suite, afin de pouvoir estimer des propriétés de rupture, il est nécessaire d'estimer la surface de rupture associée à la chute de charge observée sur les courbes force-déplacement, ce qui fait l'objet du paragraphe suivant.

### 2.2.2. Détermination de la surface de rupture

Deux méthodes sont utilisées pour évaluer la surface de rupture. La première méthode, utilisée pour toutes les poutres, est une estimation basée sur les observations MEB de la poutre après essai (Fig. 145). La deuxième méthode, réalisée sur quelques poutres, correspond à de la tomographie MEB-FIB. Cette méthode étant chronophage, elle n'a pas pu être mise en œuvre sur toutes les micro-poutres.

#### Première méthode

Dans un premier temps, la poutre fissurée est observée de part et d'autre de la largeur de la poutre (Fig. 149). La profondeur de la fissure est mesurée des deux côtés et les résultats sont rapportés dans le tableau 37.

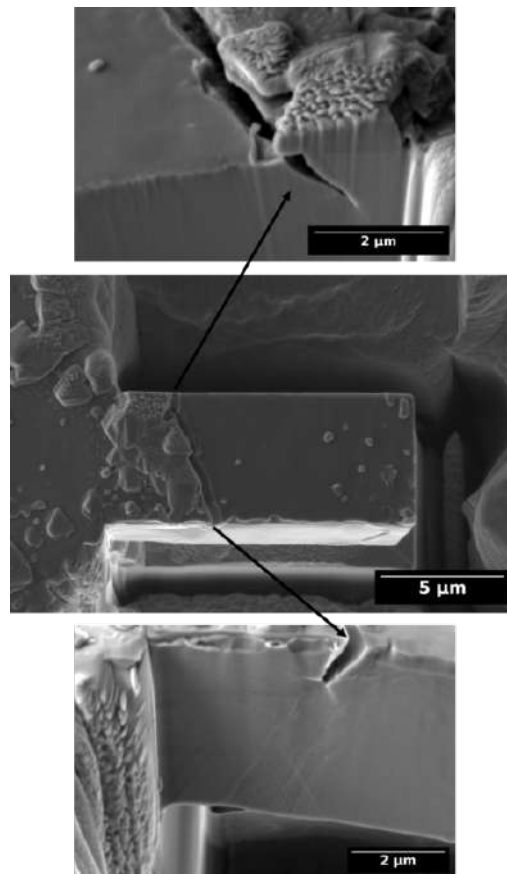


FIGURE 149. – Mesure de la profondeur de fissure de part et d'autre de la poutre

Les profondeurs de fissure reportées dans le tableau 37 sont parfois supérieures à la profondeur d'oxyde mesurée dans le tableau 34. L'oxyde en avant du joint de grain peut être très fin et ne pas être clairement visible au MEB. Cependant il sera révélé par la fissuration car la rupture se poursuit jusqu'à la fin de l'oxyde intergranulaire. La mesure dans le tableau 37 est donc sûrement plus précise.

	Profondeur fissure côté 1 ( $\mu\text{m}$ )	Profondeur fissure côté 2 ( $\mu\text{m}$ )
Poutre1-ox3680h	1.5	1.3
Poutre2-ox3680h*	1.7	0.8
Poutre3-ox3680h*	1.1	0.5
Poutre4-ox3680h*	1.2	2.0
Poutre5-ox3680h	0.8	0.8
Poutre6-ox3680h*	1.4	2.0
Poutre7-ox3680h*	1.1	1.8
Poutre8-ox3680h	1.6	1.0
Poutre4-ox7470h	1.2	1.6
Poutre5-ox7470h*	1.6	0.5
Poutre6-ox7470h	0.5	0.2
Poutre8-ox7470h	2.0	0.6

TABLEAU 37. – Profondeur de la fissure de part et d'autre des micro-poutres de l'acier  $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$  oxydé 3680h et 7470h

Il est fait l'hypothèse d'une variation linéaire de la profondeur de fissure selon la largeur de la poutre. La surface de fissuration est finalement approximée par un plan (Fig. 150) dont la surface peut alors être calculée à partir des données des tableaux 34, 37. Cette méthode est appliquée pour toutes les fissures des poutres.

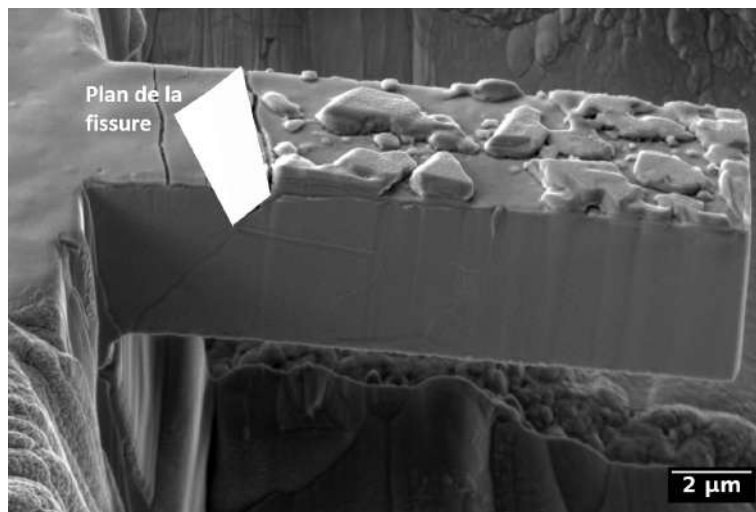


FIGURE 150. – Hypothèse sur la morphologie du plan de fissuration dans la poutre

### Deuxième méthode

La méthode utilisée précédemment repose sur les approximations - fortes - d'un front de fissure plan et d'une variation linéaire de la profondeur de fissure. Afin d'avoir une estimation exacte de la surface de fissuration des joints de grains et ainsi de vérifier la validité de ces approximations, des expériences de tomographie 3D sont menées sur certaines poutres. Le protocole est présenté sur la Fig. 151. Tout d'abord, la poutre est raccourcie afin de se focaliser sur la zone d'intérêt (fissure) et diminuer le temps de l'expérimentation. Avec l'utilisation du logiciel Slice&View, des tranches d'une épaisseur entre 20nm et 100nm sont découpées de la poutre à l'aide du MEB-FIB puis une prise d'image est réalisée avec les paramètres listés dans le tableau 38. Une série de 50 à 394 images prises à différentes profondeurs permet de reconstruire en 3D le chemin de fissuration dans la largeur de la poutre.

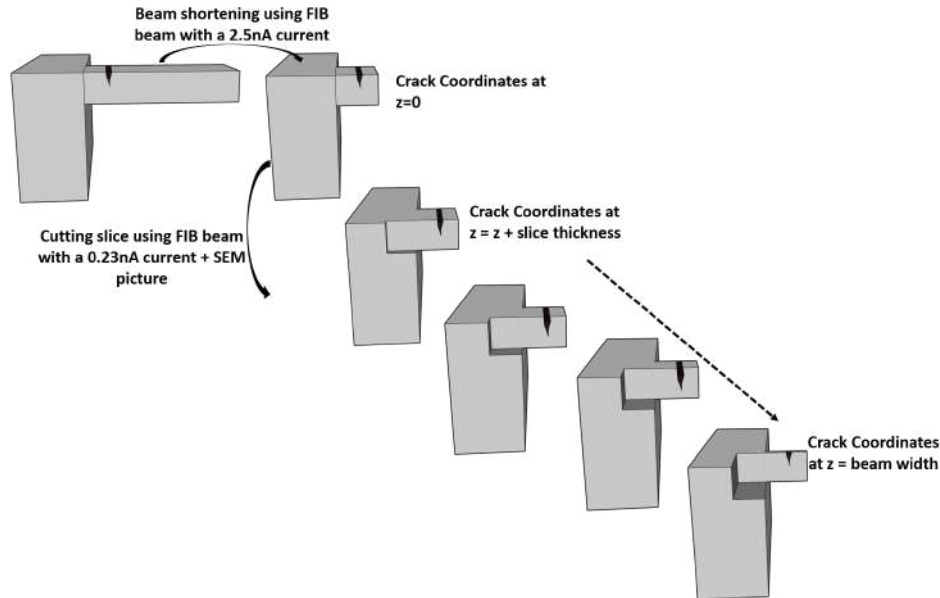


FIGURE 151. – Protocole expérimental de tomographie MEB-FIB

	Tension	Courant
Faisceau $e^-$	30kV	0.34nA
Faisceau $Ga^+$	30kV	80pA

TABLEAU 38. – Paramètres d'imagerie SE et faisceau FIB lors de l'expérimentation de tomographie

Pour toutes les poutres utilisées, les coordonnées de la fissure sont récupérées avec le logiciel ImageJ pour chaque tranche (Fig. 152). Le fichier ainsi généré est ensuite utilisé pour modéliser la surface de fissuration par un maillage triangulaire dans MatLab comme montré sur la Fig. 152. La surface de chaque triangle étant connue, la somme de l'ensemble des aires des triangles correspond à la surface de fissuration.

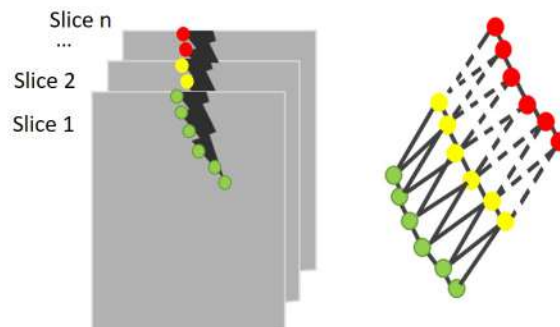


FIGURE 152. – Reconstruction et maillage de la surface de fissuration sur Matlab grâce aux images de tomographie

Pour une poutre, la reconstruction et la visualisation du volume créé par la fissuration sont effectuées à l'aide du logiciel Dragonfly développé par ORS.Inc [26]. La série d'images est tout d'abord alignée selon la profondeur dans ImageJ en utilisant le module StackReg (les coordonnées  $(x,y)$  d'un objet restent invariants d'une tranche à l'autre). Les images sont ensuite découpées pour ne focaliser que sur la région d'intérêt (la fissure). Elles sont ensuite seuillées puis binarisées pour avoir la fissure d'une couleur tandis que le reste est d'une couleur différente. Ces deux dernières étapes sont faites manuellement pour chaque image car les conditions de contraste et de luminosité varient d'une image à l'autre.

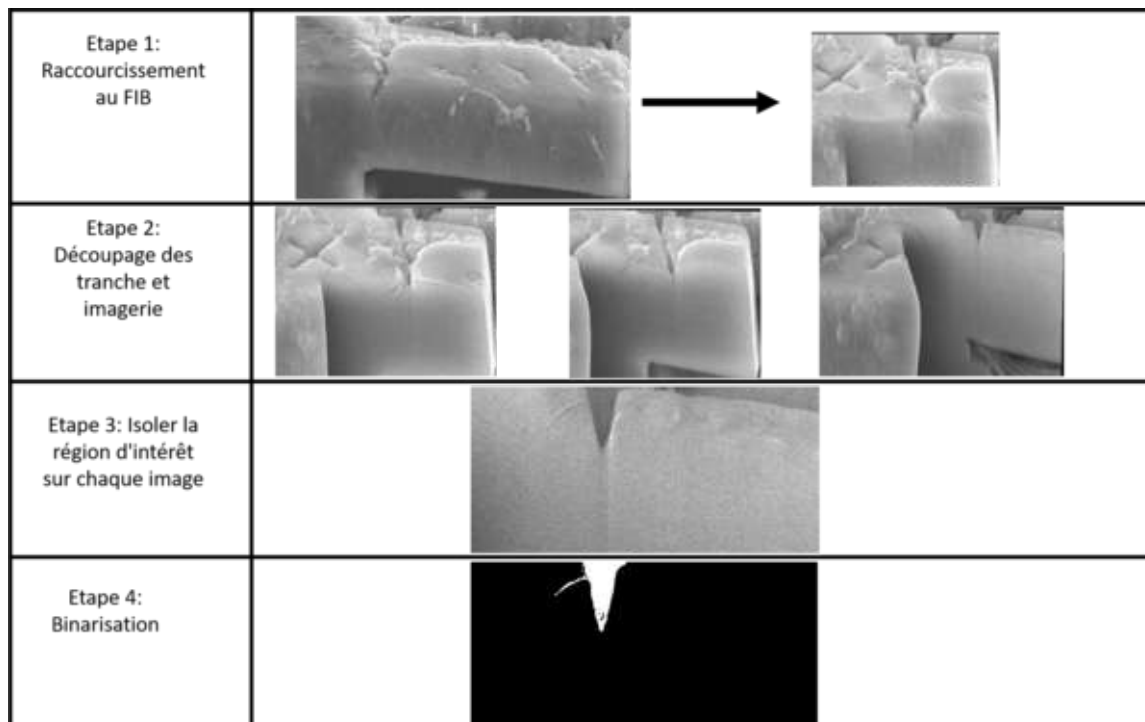


FIGURE 153. – Procédé de tomographie et traitement d'images pour reconstruction 3D

La série d'images binarisées est ensuite chargée dans le logiciel ORS en renseignant les dimensions expérimentales. Le volume est recréé en empilant les images dans l'axe de la fissure. La visualisation 3D de la fissure montre une morphologie très complexe. La vue de face sur la Fig. 154a laisse voir l'embranchement qui a lieu à mi-chemin ainsi que la délamination de la couche d'oxyde pour le cas présent, ce qui est confirmé par la vue de dessus de la Fig. 154b. La vue de côté (Fig. 154c) permet de voir que la profondeur de la fissure varie le long du chemin de fissuration.

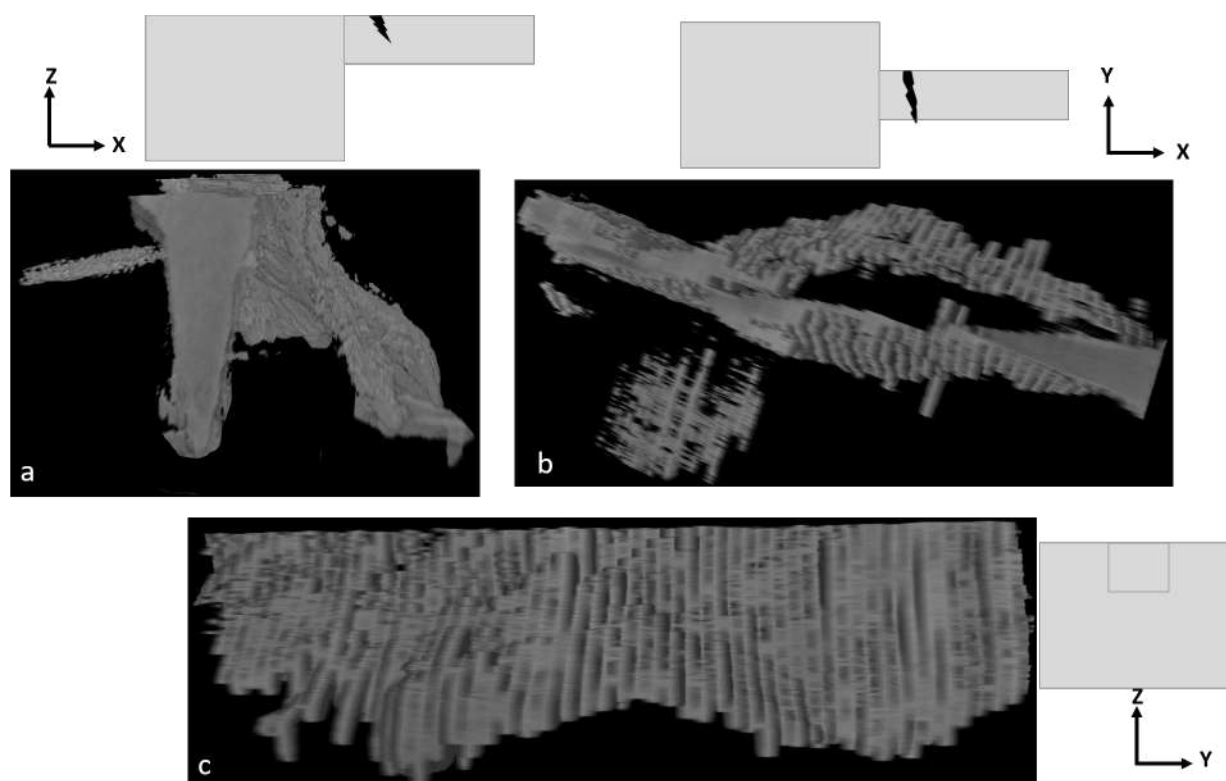


FIGURE 154. – Reconstruction 3D du volume fissuré pour la Poutre4-ox7470h. a) vue de face b) vue du dessus et c) vue de côté



Ces expériences de tomographie montrent donc que la morphologie des fissures est complexe et qu'estimer la surface de fissuration en prenant la profondeur de fissure de part et d'autre de la poutre n'est a priori pas suffisant dans le cas général. Cependant, ces analyses sont chronophages. Elles ont donc été réalisées uniquement sur les poutres pour lesquelles les observations de surface montraient une surface de fissuration complexe ou sur celles pour lesquelles les énergies de surface estimées (voir section suivante) étaient singulières par rapport aux autres. Le tableau 39 compare les surfaces de fissuration obtenues par les deux méthodes, les différences pouvant aller jusqu'à un facteur 3.

	Surface méthode 1 ( $\mu\text{m}^2$ )	Surface méthode tomographie ( $\mu\text{m}^2$ )	$\Delta Surf$ (%)
Poutre1-ox3680h	9.6	13	35%
Poutre5-ox3680h	3.1	9.1	193%
Poutre8-ox3680h	4.8	10	108%
Poutre4-ox7470h	15	15.4	3%
Poutre5-ox7470h	10.7	16.5	54%

TABLEAU 39. – Surface de fissuration obtenue par hypothèse d'un front de fissure plan et par expérience de tomographie sur certaines poutres de l'acier  $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$  oxydé 3680h et 7470h

### 2.3. Détermination des propriétés de rupture

Les résultats expérimentaux obtenus dans la section précédente (Tab. 40) sont utilisés pour évaluer les propriétés de rupture des oxydes intergranulaires.

	$F_c^1$ ( $\mu\text{N}$ )	$F_c^2$ ( $\mu\text{N}$ )	$\delta_c$ ( $\mu\text{m}$ )	Profondeur fissure côté 1 ( $\mu\text{m}$ )	Profondeur fissure côté 2 ( $\mu\text{m}$ )	$S_c$ ( $\mu\text{m}^2$ )
Poutre1-ox3680h	2750	2066	0.60	1.5	1.3	13.0 (tomo)
Poutre2-ox3680h*	1239	985	0.70	1.7	0.8	6.8
Poutre3-ox3680h*	1300	1200	0.95	1.1	0.5	4.2
Poutre4-ox3680h*	1626	1105	0.57	1.2	2.0	9.2
Poutre5-ox3680h	620	405	0.44	0.8	0.8	9.1 (tomo)
Poutre6-ox3680h*	1650	1300	0.37	1.4	2.0	5.8
Poutre7-ox3680h*	2240	1970	0.67	1.1	1.8	6.0
Poutre8-ox3680h	725	430	0.98	1.6	1.0	10.0 (tomo)
Poutre4-ox7470h	2790	2210	0.65	1.2	1.6	15.4 (tomo)
Poutre5-ox7470h*	2630	2270	0.60	1.6	0.5	16.5 (tomo)
Poutre6-ox7470h	1550	1526	0.55	0.5	0.2	2.0
Poutre8-ox7470h	1646	1540	0.87	2.0	0.6	7.0

TABLEAU 40. – Synthèse des résultats expérimentaux utilisés pour la détermination des propriétés de rupture des joints de grains dans l'acier  $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$  oxydé 3680h et 7470h

Les expériences correspondant à l'amorçage de fissures, la théorie développée par Leguillon *et al.* est utilisée [27] pour l'interprétation des essais. Cette théorie stipule que l'amorçage d'une fissure fragile correspondant à une surface de rupture  $S_c$  nécessite de satisfaire un double critère. Le premier critère est de type énergétique et stipule que l'énergie relâchée lors de la propagation de fissure doit être égale ou supérieure à l'énergie de rupture :

$$\Delta\mathcal{E} \geq \gamma_c S_c \quad (51)$$

avec  $\gamma_c$  l'énergie surfacique de rupture. Le deuxième critère stipule que le niveau de contraintes  $\sigma$  doit

être supérieur ou égal à la résistance du matériau, notée  $\sigma_c$ , sur tout le trajet de fissuration :

$$\sigma(x \in S_c) \geq \sigma_c \quad (52)$$

L'Eq. 52 pose la question de quelle contrainte (principale, normale au plan de fissuration) utiliser, ce qui sera discuté dans la suite. Dans la suite, les Eq. 51, 52 sont considérées comme des égalités pour évaluer  $\gamma_c$  et  $\sigma_c$ , tout en gardant en mémoire qu'il s'agit en fait d'évaluations de bornes supérieures de l'énergie de rupture  $\gamma_c$  et de la résistance  $\sigma_c$ .

### 2.3.1. Détermination de l'énergie à rupture

L'Eq. 51 est utilisée pour évaluer l'énergie de rupture  $\gamma_c$ . La surface de rupture a été obtenue précédemment, il faut calculer l'énergie élastique libérée dans la poutre suite à la fissuration. La valeur de l'énergie libérée par la rupture comme schématisée sur la Fig. 155 peut donc s'écrire :

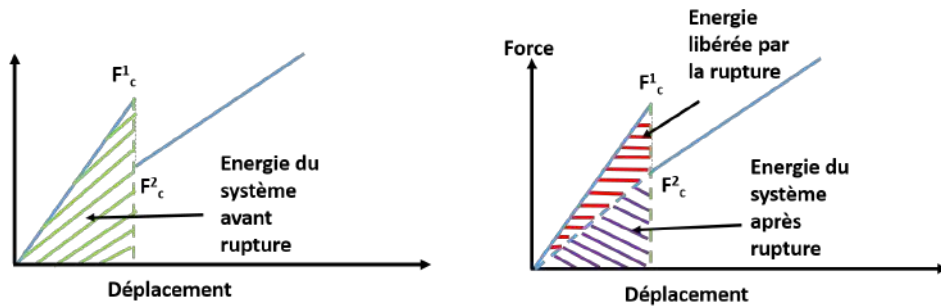


FIGURE 155. – Détermination de l'énergie libérée par la rupture

$$\gamma_c = \frac{(F_c^1 - F_c^2)\delta_c}{2S_c} \quad (53)$$

Les données synthétisées dans le tableau 40 sont utilisées pour évaluer l'énergie surfacique de rupture par l'Eq. 53, conduisant aux résultats présentés dans le tableau 41. L'incertitude sur ces valeurs est liée principalement à celle associée à la surface de rupture, celles associés aux mesures de charges et de déplacement étant faibles. Compte-tenu des résultats présentés dans le tableau 39, il est raisonnable de considérer la possibilité d'un facteur 2 sur les énergies de surface reportées dans le tableau 41.

	Énergie de rupture (surface par méthode 1) $\gamma_c$ (J/m <sup>2</sup> )	Énergie de rupture (surface par méthode 2) $\gamma_c$ (J/m <sup>2</sup> )
Poutre1-ox3680h	21	15
Poutre2-ox3680h*	13	-
Poutre3-ox3680h*	11	-
Poutre4-ox3680h*	10	-
Poutre5-ox3680h	15	5
Poutre6-ox3680h*	11	-
Poutre7-ox3680h*	15	-
Poutre8-ox3680h	27	13
Poutre4-ox7470h	12	12
Poutre5-ox7470h*	10	6
Poutre6-ox7470h	3	-
Poutre8-ox7470h	7	-

TABLEAU 41. – Énergies de rupture des oxydes intergranulaires de l'acier FeCr<sub>12</sub>Ni<sub>26</sub>Si<sub>3</sub> oxydé 3680h et 7470h (\* : rupture dans l'oxyde intergranulaire)

Les joints de grains testés sur l'échantillon oxydé 3680h présentent des énergies de rupture en moyenne légèrement plus élevées que l'échantillon oxydé 7470h. Cela peut être attribué à la présence de cristallites en surface qui participent à la surface de fissuration mais dont la disposition hétérogène rend difficile leur prise en compte. En enlevant ces particules des poutres oxydées 7470h, l'énergie de rupture descend à des valeurs autour de  $10 \text{ J/m}^2$ . Les valeurs d'énergies de rupture pour les fissures localisées dans l'oxyde intergranulaire sont en moyenne légèrement plus élevées ( $12 \text{ J/m}^2$ ) que pour les fissures à l'interface ( $9 \text{ J/m}^2$ ). Cette différence peut s'expliquer par les propriétés mécaniques du matériau (oxyde ou interface) où a lieu la rupture qui semblent plus élevées pour l'oxyde. Au delà de l'incertitude de ces évaluations rappelée précédemment, il est important de noter que ces valeurs ne sont que des bornes supérieures de l'énergie de rupture d'une part, et que d'autre part des phénomènes non pris en compte peuvent influencer sur le calcul effectué, comme le début de déformation plastique des poutres (Fig. 147) ou la présence de contraintes résiduelles (Fig. 112). Les valeurs d'énergie de rupture obtenues sont néanmoins en accord avec les résultats de calcul de dynamique moléculaire effectués par Van Brutzel et al. [28] qui se situent entre  $2$  et  $10 \text{ J/m}^2$  pour les spinelles  $FeCr_2O_4$  et  $NiCr_2O_4$  donc les structures semblent similaires avec les oxydes présents dans cette étude. Ces valeurs sont difficiles à comparer à la littérature car peu de données expérimentales existent sur l'énergie de rupture des joints de grains des aciers austénitiques oxydés en milieu REP et encore moins pour la composition de l'alliage étudié. Cependant Dugdale et al. [22] ont déterminé une valeur d'énergie de rupture de  $3.4 \text{ J/m}^2$  pour un joint de grains d'Inconel 600 oxydé en milieu REP en combinant essais de micro-flexion et simulations par éléments finis.

### 2.3.2. Détermination de la contrainte à rupture de manière analytique

La seconde condition pour amorcer une fissure d'après Leguillon [27] est de satisfaire le critère de contrainte décrit par l'Eq. 52. Une première étape d'estimation de la résistance du joint de grains oxydé est réalisée avec le calcul de la contrainte normale au joint de grains avec les équations de la théorie des poutres (Eq. 54). L'étude de dimensionnement a permis de conclure qu'il était possible d'utiliser, au moins en première approximation, la théorie des poutres élastiques isotropes pour évaluer l'état de contraintes à proximité du joint de grains, pour la gamme de paramètres géométriques utilisés lors des essais. La contrainte normale dans le plan de fissuration s'écrit :

$$\sigma_{nm} = \frac{6F(L-d)}{bh^2} \left(1 - 2\frac{\ell}{h}\right) \cos^2(\theta) \quad (54)$$

avec  $d$  la distance à l'encastrement,  $\ell$  la distance par rapport à la surface supérieure et  $\theta$  l'angle du plan de fissuration, qui peut être différent du plan du joint de grains. En effet, l'angle de la fissure est généralement inférieur à l'angle d'inclinaison du joint avec un cas extrême montré sur la Fig. 156.

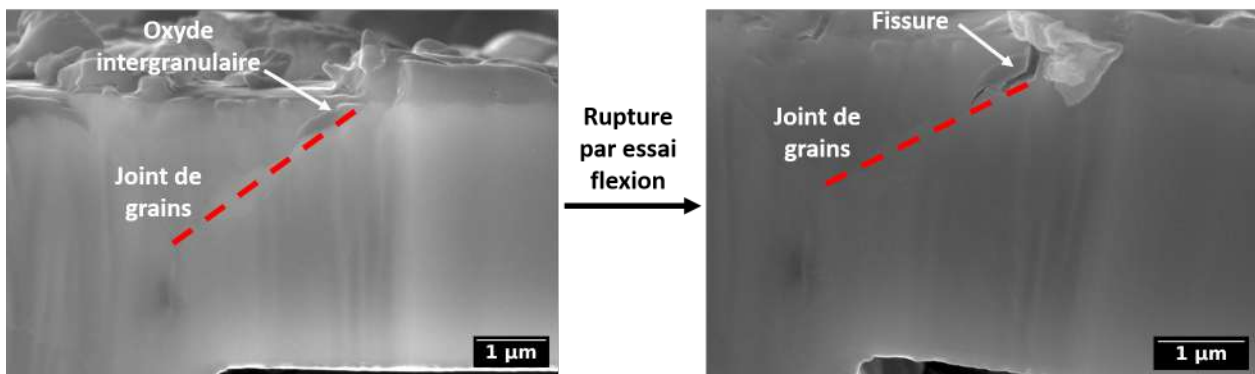


FIGURE 156. – Comparaison de l'angle de la fissure par rapport à l'angle du joint de grains

Ainsi l'angle de la fissure est différencié de l'angle du joint dans le tableau 42 dans lequel l'angle de la fissure reporté est l'angle initial à partir de la surface sur un des côtés de la poutre.

	Angle du joint de grains (°)	Angle de la fissure (°)
Poutre1-ox3680h	-20	-20
Poutre2-ox3680h*	40	20
Poutre3-ox3680h*	15	7
Poutre4-ox3680h*	33	33
Poutre5-ox3680h	10	8
Poutre6-ox3680h*	0	0
Poutre7-ox3680h*	55	12
Poutre8-ox3680h	54	32
Poutre4-ox7470h	13	10
Poutre5-ox7470h*	-47	-39
Poutre6-ox7470h	-25	-17
Poutre8-ox7470h	-45	-37

TABLEAU 42. – Angles du joint de grains et de la fissure

	$\sigma_{nn}^{surf}(d_1)$ (MPa)	$\sigma_{nn}^{surf}(d_2)$ (MPa)	$\sigma_{nn}^{pointe}(d_1)$ (MPa)	$\sigma_{nn}^{pointe}(d_2)$ (MPa)
Poutre1-ox3680h	781	833	374	479
Poutre2-ox3680h*	641	703	185	467
Poutre3-ox3680h*	948	899	380	642
Poutre4-ox3680h*	476	630	229	116
Poutre5-ox3680h	1678	1605	298	321
Poutre6-ox3680h*	1601	1601	480	320
Poutre7-ox3680h*	1030	1083	623	458
Poutre8-ox3680h	1137	1075	26	816
Poutre4-ox7470h	1309	1409	699	525
Poutre5-ox7470h*	609	835	198	668
Poutre6-ox7470h	927	790	689	771
Poutre8-ox7470h	640	666	107	477

TABLEAU 43. – Contraintes normales au plan de fissuration calculées pour la force pour laquelle l'amorçage se produit sur l'acier FeCr<sub>12</sub>Ni<sub>26</sub>Si<sub>3</sub> oxydé 3680h et 7470h en surface et en pointe de fissure

Les contraintes ont été calculées en surface du joint de grains et en pointe de fissure des deux côtés de la poutre pour scanner l'ensemble de la surface de fissuration, en accord avec l'Eq. 52. Cependant, des contraintes en pointe de fissure basses sont calculées car la fissure s'approche de la fibre neutre. C'est le cas de la Poutre8-ox3680h où l'écart des contraintes en pointes de fissure de part et d'autre est très important. Pour cette poutre, il y a une fissure qui d'un côté atteint la fibre neutre tandis que de l'autre côté, seul l'oxyde de surface rompt mais pas le joint. La théorie de Leguillon et al. correspond uniquement à l'amorçage d'une fissure sur une taille finie. Cet amorçage peut être suivi d'une phase de propagation, non prise en compte par le modèle et qu'il n'est pas possible de différencier expérimentalement. Ainsi, seules les contraintes en surface sont analysées dans la suite. A noter que les

simulations numériques décrites à la fin de ce chapitre permettent d'aller plus loin que cette première analyse. Comme dit plus haut, le critère de Leguillon et al. permet de déterminer une borne supérieure de la contrainte à rupture du matériau  $\sigma_c$ . La valeur réelle de  $\sigma_c$  est donc plus petite que la valeur minimale calculée dans le tableau 43 :

$$\sigma_c \text{ réel} \leq \min \sigma_c \text{ exp} = 476\text{MPa} \quad (55)$$

Cette valeur permet de satisfaire le critère de Leguillon, au moins en surface, pour l'ensemble des poutres testées. Les cas où la contrainte évaluée est significativement plus élevée au moment de l'amorçage peuvent correspondre à des cas où ce n'est pas le critère de contrainte  $\sigma_c$  qui pilote la fissuration puisque cette valeur est déjà atteinte et dépassée, mais le critère énergétique.

La différence entre l'angle du plan du joint de grains et celui de la fissure montre que l'inclinaison du joint n'est pas déterminante dans l'amorçage de la fissuration. Cela pourrait s'expliquer par le fait que pour les joints de grains oxydés dans cette étude, l'oxyde intergranulaire est large par rapport à sa profondeur (Fig. 157b) comme montré sur les figures 110 et 112.

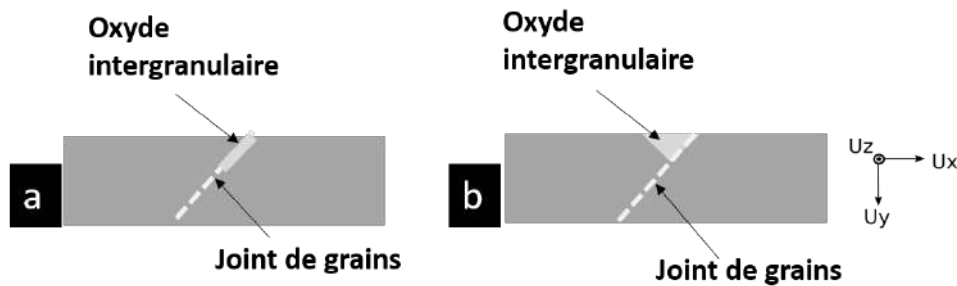


FIGURE 157. – a) Cas d'un oxyde intergranulaire fin et b) épais (cas de la présente étude)

De ce fait, la position initiale du joint de grains, qui fixe la normale au plan du joint et donc la valeur de  $\sigma_{nm}$  a moins d'importance. Cet argument serait néanmoins à confirmer par des observations fines dans l'oxyde intergranulaire à l'emplacement initial du joint de grains pour vérifier l'absence d'effet de ce dernier sur la nature et la morphologie de l'oxyde.

Étant donné d'une part que l'angle du plan initial de fissuration est dans la majorité des cas inférieur à  $20^\circ$  (Tab. 42), et que d'autre part le plan de fissuration n'est pas a priori connu dans les simulations numériques présentées dans la suite, la contrainte utilisée à partir de maintenant est la contrainte axiale  $\sigma_{xx}$  dans l'oxyde dont l'expression par la théorie des poutres est :

$$\sigma_{xx} = \frac{6F(L-d)}{bh^2} \left(1 - 2\frac{\ell}{h}\right) \quad (56)$$

Cette approximation (du terme en  $\cos\theta$ ) conduit à des différences inférieures à 10% dans la plupart des cas sauf pour les poutres Poutre4-ox3680h, Poutre8-ox3680h, Poutre5-ox7470h et Poutre8-ox7470h où les angles entre  $30$  et  $49^\circ$  amènent à des différences entre 30 et 68%. Dans cette première approche, ces cas ne sont pas pris en compte mais leur analyse sera affinée lors des simulations FE.

Les valeurs de contraintes axiales en surface à l'amorçage de la fissuration sont indiquées dans le tableau 44.

	$\sigma_{xx}^{surf}(d_1)$ (MPa)	$\sigma_{xx}^{surf}(d_2)$ (MPa)
Poutre1-ox3680h	880	938
Poutre2-ox3680h*	724	794
Poutre3-ox3680h*	962	914
Poutre4-ox3680h*	676	896
Poutre5-ox3680h	1714	1640
Poutre6-ox3680h*	1601	1601
Poutre7-ox3680h*	1079	1135
Poutre8-ox3680h	1580	1494
Poutre4-ox7470h	1352	1454
Poutre5-ox7470h*	1022	1402
Poutre6-ox7470h	1012	862
Poutre8-ox7470h	1004	1044

TABLEAU 44. – Contraintes axiales calculées pour la force pour laquelle l’amorçage se produit sur l’acier FeCr12Ni26Si3 oxydé 3680h et 7470h en surface

Il n’existe pas de données dans la littérature sur les contraintes à rupture des joints de grains d’aciers austénitiques oxydés en milieu REP, ce qui a motivé cette étude. Quelques résultats concernant des alliages formant des oxydes similaires en conditions REP sont cependant disponibles [29, 30].

Alliage	Oxyde	Longueur fissure ( $\mu\text{m}$ )	Méthode calcul $\sigma_c$	$\sigma_c$ (MPa)	Ref.
Inconel 600	$(Cr, Fe)_3O_4$	1	Equations Théorie des poutres Simulations FE	362-765	Dohr et al. [21]
Inconel 600	$(Cr, Fe)_3O_4$	-	Simulations FE	1350	Dugdale et al. [22]

TABLEAU 45. – Contraintes à rupture d’oxydes formés en milieu REP

D’un point de vue expérimental, Dugdale et al. [22] ont testé des joints de grains d’Inconel 600 oxydé en milieu REP et connu pour former des oxydes de structures similaires aux aciers austénitiques. Ils ont déterminé une contrainte à rupture de 1350MPa et une énergie de rupture de  $3.4\text{J/m}^2$ , ce qui est de même ordre de grandeur que les résultats obtenus. Sur le même alliage, Dohr et al. [21] ont trouvé des contraintes de rupture allant de 362 à 765 MPa sur des joints de grains oxydés en milieu REP. Les auteurs attribuent ces valeurs plus faibles au fait d’avoir enlevé les cristallites de surface et la couche d’oxyde continue au dessus du joint. Dans la présente étude, seuls les cristallites de surface ont été enlevées sur l’échantillon oxydé 7470h et non la couche continue mais cela ne semble pas avoir affecté les contraintes obtenues. Il est important de garder en tête que les valeurs des contraintes déterminées dans le tableau 43 dans le cadre du modèle de Leguillon et al. sont des bornes supérieures et que la contrainte de résistance réelle du matériau peut être inférieure, ce qui est de nature à expliquer la dispersion des valeurs. La comparaison avec les autres valeurs expérimentales n’est donc pas triviale même si les valeurs déterminées ici sont globalement du même ordre de grandeur.

D’un point de vue numérique, Van Brutzel et al. [28] ont déterminé par dynamique moléculaire des valeurs de contrainte à rupture de l’ordre de 10GPa pour les spinelles  $FeCr_2O_4$  et  $NiCr_2O_4$  mais en modélisant des oxydes sans défauts, ce qui n’est pas le cas expérimentalement. Les oxydes observés expérimentalement présentent des nanopores qui sont de nature à fortement influencer sur leur contrainte à rupture.

Les valeurs indiquées dans le tableau 44 ont des incertitudes associées de différentes natures. La première source d’incertitude porte sur l’utilisation de la théorie des poutres pour évaluer les contraintes.

L'incertitude associée a été évaluée lors de l'étude de dimensionnement (section 2.1). En plaçant les résultats expérimentaux sur les cartographies de la Fig. 158, une incertitude moyenne de 20% de la contrainte analytique est donc imputable aux variations des paramètres étudiés tandis que cette variation des résultats peut monter jusqu'à 60% du fait de l'inhomogénéité de la contrainte le long du front de fissure.

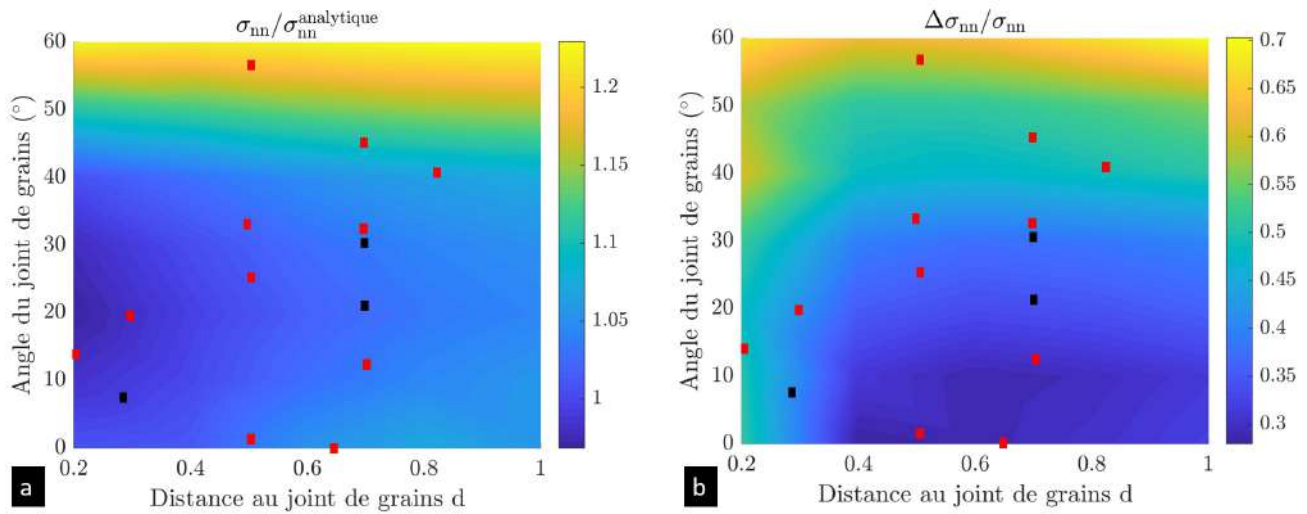


FIGURE 158. – Incertitudes liées à a) l'utilisation de la théorie des poutres et b) l'inhomogénéité de la contrainte sur le front de fissure. En rouge les essais sur l'échantillon oxydé 3680h et en noir 7470h

L'étude de dimensionnement (section 2.1) avait permis de conclure que, même dans les cas favorables de paramètres géométriques, la théorie des poutres ne peut fournir qu'une estimation des contraintes moyennes à proximité d'un joint de grains dans une poutre bi-cristalline. De plus, il est à noter que cette étude ne prenait pas en compte les caractéristiques géométriques de l'oxyde intergranulaire : la profondeur, l'épaisseur ainsi que la présence de cristallites / couche continue en surface au dessus du joint de grains. Pour une évaluation plus précise de la contrainte à rupture, des simulations numériques par éléments finis des essais de flexion sont mises en place par la suite.

### 2.3.3. Détermination de la contrainte à rupture par simulation numérique

L'évaluation des contraintes au niveau du joints de grains lors de la rupture est reprise dans cette partie en réalisant des simulations par éléments finis.

#### Géométrie et maillage

Comme pour les simulations de la section 2.1, un maillage paramétré, constitué de tétraèdres et d'hexaèdres linéaires à intégration complète est utilisé pour prendre en compte la poutre, son support ainsi que la couche d'oxyde et la pénétration intergranulaire (Fig. 159) afin de reproduire les essais. Les paramètres géométriques supplémentaires considérés par rapport à l'étude de dimensionnement sont la profondeur de la pénétration d'oxyde intergranulaire et la largeur de cette pénétration en surface ainsi que l'épaisseur moyenne de la couche d'oxyde qui a été déterminée avec cinq mesures d'épaisseur par poutre.



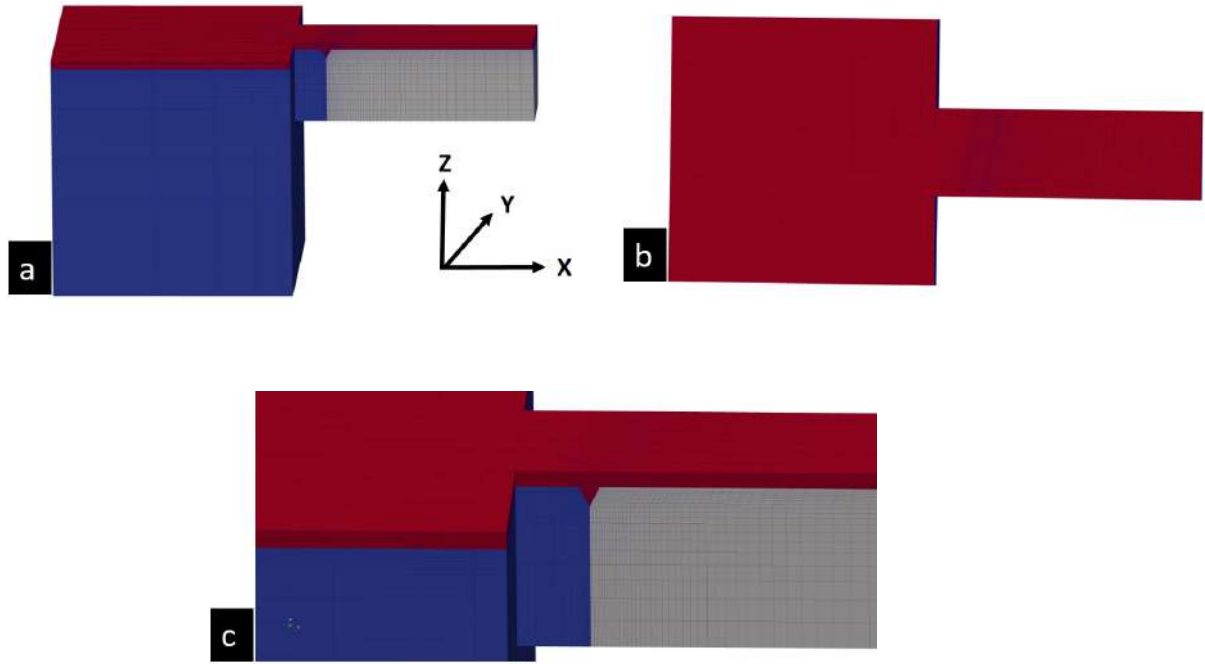


FIGURE 159. – Géométrie et maillage des poutres bi-cristallines oxydées en surface. En rouge l’oxyde, en bleu le cristal 1 et en gris le cristal 2. a) vue de côté b) vue du dessus et c) zoom sur le joint de grains

De même que pour l’étude de dimensionnement, une analyse de la convergence en maillage a été réalisée sur la force nécessaire pour l’application d’un déplacement imposé unitaire à l’extrémité de la poutre. La maillage utilisé dans la suite comprend 10030 éléments. L’utilisation d’un maillage composé de 3 fois plus d’éléments conduit à une diminution relative de la force de 3%.

### Loi de comportement

Comme pour l’étude de dimensionnement, les deux cristaux suivent une loi d’élasticité cubique avec  $C_{11}=209\text{GPa}$ ,  $C_{22}=143\text{GPa}$ ,  $C_{44}=116\text{GPa}$ . Les orientations cristallographiques pour les différentes poutres sont données dans le tableau 33.

L’oxyde est supposé suivre une loi élastique isotrope dont il est nécessaire de connaître le module d’Young  $E_{ox}$  et le coefficient de Poisson  $\nu_{ox}$ . Peu de données sont disponibles dans la littérature. Les paramètres d’élasticité des oxydes sont donc déterminés grâce à des simulations de Dynamique Moléculaire réalisées par Laurent Van Brutzel (DES/ISAS/DRMP/S2CM/LM2T).

Les paramètres d’élasticité cubique de monocristaux d’oxyde de type  $(Ni_xFe_{1-x})Cr_2O_4$  ( $x \in [0 : 1]$ ) ont été déterminés à température ambiante. Les valeurs des constantes d’élasticité pour les cas limite  $x = 1$  ( $NiCr_2O_4$ ) et  $x = 0$  ( $FeCr_2O_4$ ) sont présentés dans le tableau 46.

	$C_{11}$ (GPa)	$C_{12}$ (GPa)	$C_{44}$ (GPa)
$NiCr_2O_4$ monocristallin	287	190	86
$FeCr_2O_4$ monocristallin	272	130	94

TABEAU 46. – Constantes élastiques pour des monocristaux de  $NiCr_2O_4$  et  $FeCr_2O_4$

Une fois les constantes d’élasticité  $C_{11}$ ,  $C_{12}$  et  $C_{44}$  obtenues, celles-ci sont utilisées pour calculer les propriétés élastiques de l’oxyde supposé polycristallin non-texturé : le coefficient de compressibilité  $K_{ox}$  peut être calculé (Eq. 42) et le modèle autocohérent (Eq. 44) permet de déterminer le coefficient de cisaillement  $\mu_{ox}$ , ce qui permet de calculer  $E_{ox}$  et  $\nu_{ox}$ . Les compositions des couches d’oxydes déter-

minées dans la section 1.5.3 étant complexes, les simulations sont faites dans la suite en considérant les deux cas limites  $NiCr_2O_4$  et  $FeCr_2O_4$  dont les modules d'Young et coefficients de Poisson sont donnés dans le tableau 47, tout en gardant à l'esprit qu'il conviendrait à l'avenir d'obtenir les propriétés élastiques correspondant aux compositions chimiques réelles des oxydes.

	E (GPa)	$\nu$
$NiCr_2O_4$ polycristallin	187	0.36
$FeCr_2O_4$ polycristallin	218	0.29

TABLEAU 47. – Constantes élastiques pour des polycristaux de  $NiCr_2O_4$  et  $FeCr_2O_4$

Les valeurs données dans le tableau 47 correspondent au cas des spinelles de type normal. Les simulations de dynamique moléculaire fournissent aussi les valeurs des paramètres d'élasticité pour des spinelles inverses, qui conduisent cependant à des valeurs de module d'Young et de coefficient de Poisson intermédiaires par rapport à celles du tableau 47.

### Chargement des micro-poutres

Les conditions aux limites appliquées sont identiques à celles utilisées pour l'étude de dimensionnement (section 2.1) en ce qui concerne le support. Deux choix sont possibles pour l'application du chargement au niveau du bord libre de la poutre, à savoir imposer un déplacement correspondant au déplacement à rupture  $\delta_c$  observé lors des essais, ou imposer la force à rupture  $F_c^1$ . Si les simulations permettent de bien reproduire la pente élastique observée expérimentalement, ces deux choix sont équivalents. Dans le cas contraire, comme détaillé dans la suite, il est plus pertinent d'appliquer un chargement en force pour obtenir des niveaux de contraintes plus réalistes. Dans la suite, une force de résultante  $F_c^1$  est donc appliquée sur l'ensemble des nœuds à une distance  $L$  de l'encastrement.

### Résultats

En reprenant les dimensions expérimentales de la poutre, celles de l'oxyde intergranulaire et des caractéristiques du joint de grains, les simulations numériques sont réalisées pour chaque poutre ayant conduit à la fissuration. Pour chaque poutre, les contraintes axiales maximales en surface de l'oxyde intergranulaire sont extraites en considérant respectivement des compositions d'oxydes  $FeCr_2O_4$  et  $NiCr_2O_4$ . Les résultats sont présentés dans le tableau 48 sauf pour les quatre premières poutres oxydées à 3680h où les orientations cristallographiques sont indisponibles.

	$\sigma_{xx}^{surf}(d_1)$ analytique (MPa)	$\sigma_{xx}^{surf}(d_2)$ analytique (MPa)	$\sigma_{xx}^{max}$ simulation isotrope (MPa)	$\sigma_{xx}^{max}$ simulation anisotrope $FeCr_2O_4$ (MPa)	$\sigma_{xx}^{max}$ simulation anisotrope $NiCr_2O_4$ (MPa)
Poutre5-ox3680h	1714	1640	1767	1667	1517
Poutre6-ox3680h	1601	1601	1651	2324	2011
Poutre7-ox3680h	1079	1135	1158	1487	1277
Poutre8-ox3680h	1580	1494	1705	2364	2214
Poutre4-ox7470h	1352	1454	1514	2489	2229
Poutre5-ox7470h	1022	1402	1659	1830	1661
Poutre6-ox7470h	1012	862	1021	919	829
Poutre8-ox7470h	1004	1044	1176	1809	1610

TABLEAU 48. – Contraintes axiales en surface de l'oxyde intergranulaire calculées pour la force pour laquelle l'amorçage se produit sur l'acier  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$  oxydé 3680h et 7470h

Afin de valider la mise en données, une première série de simulations a été réalisée en considérant que les cristaux et l'oxyde sont élastiques isotropes avec les même paramètres élastiques. Les valeurs de contraintes extraites de ces simulations doivent être proches de celles obtenues avec la théorie des

poutres, la différence le cas échéant provenant du fait que les poutre simulées ne sont pas infiniment élancées (effet des bords). Les deux valeurs de contraintes sont effectivement proches sauf dans certains cas, par exemple Poutre8-ox3680h et Poutre5-ox7470h, qui peuvent s'expliquer par la proximité du joint de grains avec l'encastrement.

En prenant en compte les propriétés élastiques réelles des grains et de l'oxyde, les contraintes obtenues sont significativement différentes. A l'exception d'un cas, la contrainte trouvée dans la simulation est plus élevée que celle évaluée par la théorie des poutres et par la simulation avec comportement isotrope homogène. L'effet de la composition chimique de l'oxyde, pris en compte par ses propriétés élastique, est relativement faible. Ces valeurs de contraintes à rupture issues des simulations sont considérées comme plus pertinentes car prenant en compte le plus de conditions expérimentales possibles. Cependant, il faut noter que d'autres facteurs restent non pris en compte dans les simulations, comme la présence éventuelle de contraintes résiduelles ainsi qu'un début de déformation plastique. De plus, il faut aussi se rappeler que la couche d'oxyde continue observée expérimentalement est hétérogène (épaisseur et morphologie variables) contrairement à celle simulée.

Les estimations finales des propriétés de rupture des oxydes intergranulaires sont listées dans le tableau 49, sauf pour les quatre premières poutres oxydées à 3680h car les orientations cristallographiques n'ayant pas été déterminées, les simulations n'ont pu être réalisées.

	$\sigma_{xx}^{surf}(d_1)$ (MPa) analytique	$\sigma_{xx}^{surf}(d_2)$ (MPa) analytique	$\sigma_{xx}^{surf}(d_1)$ (MPa) simulation $FeCr_2O_4$	$\sigma_{xx}^{surf}(d_1)$ (MPa) simulation $NiCr_2O_4$	Energie de rupture $\gamma_c$ (J/m <sup>2</sup> )
Poutre1-ox3680h	880	938	-	-	15
Poutre2-ox3680h*	724	794	-	-	13
Poutre3-ox3680h*	962	914	-	-	11
Poutre4-ox3680h*	676	896	-	-	10
Poutre5-ox3680h	1714	1640	1667	1517	5
Poutre6-ox3680h*	1601	1601	2324	2011	11
Poutre7-ox3680h*	1079	1135	1487	1277	15
Poutre8-ox3680h	1580	1494	2364	2214	13
Poutre4-ox7470h	1352	1454	2489	2229	12
Poutre5-ox7470h*	1022	1402	1830	1661	6
Poutre6-ox7470h	862	1021	919	829	3
Poutre8-ox7470h	1004	1044	1809	1610	7

TABLEAU 49. – Contraintes axiales en surface de l'oxyde intergranulaire pour la force lors de l'amorçage et énergies de rupture sur l'acier  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$  oxydé 3680h et 7470h (\* : rupture dans l'oxyde intergranulaire)

En résumé, en considérant la valeur minimale des simulations comme fournissant l'estimation de la contrainte critique et en différenciant les cas des fissures à l'interface métal / oxyde et dans l'oxyde pour l'énergie de rupture, les valeurs de paramètres de rupture estimés dans cette partie expérimentale sont présentées dans le tableau 50.

	Interface Métal / oxyde	Oxyde
Energie de rupture (J/m <sup>2</sup> )	10	12
Contrainte de rupture (MPa)	919	

TABLEAU 50. – Paramètres de ruptures des joints de grains oxydé en milieu REP

Ces valeurs correspondent à des bornes supérieures de la contrainte de résistance du matériau et de l'énergie à rupture des oxydes intergranulaires formés en milieu REP sur l'acier  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$ . Le choix de la contrainte minimale dans la colonne de l'oxyde  $FeCr_2O_4$  s'explique par le fait que l'oxyde

intergranulaire étant plus riche en Fe qu'en Ni, ce sont les propriétés de cet oxyde qui sont choisies pour modéliser le comportement de l'oxyde.

La dernière étape consiste maintenant à vérifier si les valeurs obtenues permettent effectivement de prédire la rupture des oxydes de joints de grains, ce qui est fait dans le paragraphe suivant.

#### 2.4. Simulation de la rupture intergranulaire avec la méthode des zones cohésives

Dans cette partie, la fissuration intergranulaire des poutres est simulée en utilisant la méthode des zones cohésives et avec les propriétés de rupture décrites dans le paragraphe précédent. L'objectif est de vérifier si ces paramètres conduisent à un bon accord avec les expériences et permettent effectivement de simuler la rupture des oxydes intergranulaires.

##### Géométrie et maillage

La géométrie et le maillage sont identiques à ceux utilisés dans la section 2.3.3.

##### Lois de comportement

Les lois de comportement et leurs paramètres pour les cristaux et l'oxyde sont identiques à ceux utilisés dans la section 2.3.3. Les simulations numériques prennent en compte cette fois-ci la fissuration du joint de grains. Celle-ci est modélisée à l'aide de la méthode des zones cohésives (Cohesive Zone Model CZM). Les éléments CZM, d'épaisseur nulle, relient deux surfaces et possèdent une relation entre leurs ouvertures et la contrainte appliquée compatible avec la modélisation de la fissuration. Des éléments CZM sont introduits dans l'une des trois surfaces représentées sur la Fig. 160.

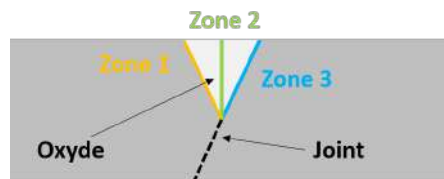


FIGURE 160. – Introduction de zones cohésives au milieu de l'oxyde intergranulaire ou aux interfaces métal / oxyde

Par la suite, les simulations seront réalisées avec les zones cohésives au milieu de l'oxyde intergranulaire.

Le modèle de zone cohésive simple proposé par Tvergaard [31] est utilisé dans la suite. Dans le cas d'un mode I, l'ouverture  $\Delta u_n$  est reliée à la contrainte normale  $t_n$  par la loi :

$$t_n = \begin{cases} \frac{27}{4} \sigma_c \frac{\Delta u_n}{\delta} \max \left( 1 - \frac{\Delta u_n}{\delta}, 0 \right)^2 & \text{si } \Delta u_n \geq 0 \\ k_n \Delta u_n & \text{sinon.} \end{cases} \quad (57)$$

Le déplacement  $\Delta u_n$  entre les surfaces augmente jusqu'à atteindre une valeur critique  $\delta$  qui entraîne la séparation de ces surfaces. Cette séparation modélise la rupture qui est représentée par la chute de contrainte et in fine par une contrainte d'ouverture nulle (Fig. 161). Dans le cas d'une compression ou si la sollicitation se fait en cisaillement :

$$t_t = k_t \Delta u_t \quad (58)$$

un comportement élastique linéaire est considéré avec des modules d'élasticité  $k_n$  et  $k_t$  choisis grands de sorte à ne pas avoir d'influence sur les résultats.

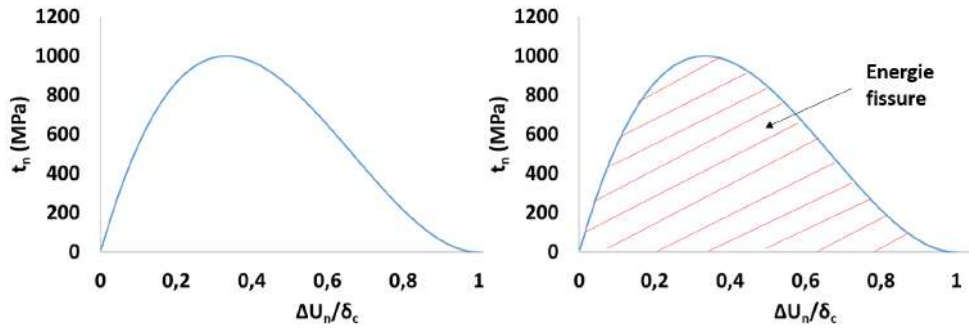


FIGURE 161. – Contrainte de traction normale en fonction du déplacement

Cette loi a comme paramètres la contrainte critique d’ouverture du joint  $\sigma_c$  et le déplacement critique associé  $\delta_c$ . En plus des données expérimentales de la poutre et de l’oxyde, la contrainte maximale au joint de grains est donc utilisée comme donnée d’entrée pour la contrainte à rupture de la zone cohésive. Il est à noter qu’il est possible d’utiliser le couple de paramètres  $\gamma_c$  et  $\sigma_c$ . En effet, l’aire sous la courbe de la figure 161 permet d’obtenir l’énergie surfacique de rupture  $\gamma_c$ . En calculant l’intégrale de la fonction  $t_n$  par rapport à  $\Delta u_n$  sur  $[0 : \delta]$ , la relation 59 est obtenue :

$$\gamma_c = \frac{9}{16} \sigma_c \delta_c \quad (59)$$

La loi de zone cohésive utilisée a été implémentée avec le générateur de codes **MFront**. Un test d’utilisation de cette zone cohésive a été fait en considérant une barre élastique comprenant une zone cohésive en son milieu qui est mise en traction. Ce type de simulation éléments finis est connu pour être difficile : lorsque la zone cohésive commence à s’ouvrir, l’énergie élastique emmagasinée dans la barre se relâche, conduisant à un saut de charge qui rend la convergence de l’algorithme difficile voire impossible. Afin de s’affranchir de ce problème, un pilotage indirect, disponible dans **Cast3M 2021**, est utilisé. Il permet de piloter le calcul en imposant l’ouverture de la zone cohésive. Cela permet de réaliser la simulation dont le résultat est obtenu sur la Fig. 162. Le phénomène de snap-back est retrouvé sans difficulté de convergence, et cette courbe met bien en évidence le saut de charge qui serait associé à un pilotage en déplacement imposé.

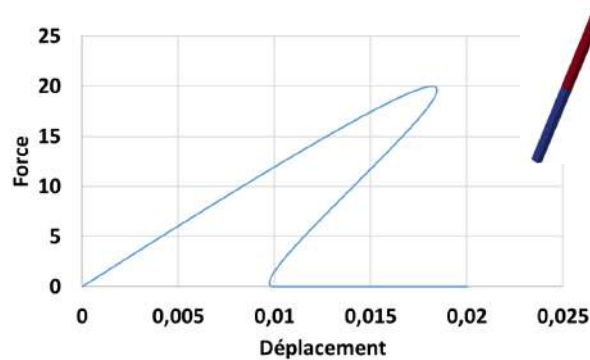


FIGURE 162. – Courbe force / déplacement d’une barre élastique en traction avec rupture de la zone cohésive en pilotage indirect

### Chargement

Les conditions aux limites concernant le support sont identiques aux simulations décrites dans les parties précédentes. Le pilotage indirect décrit précédemment est appliqué : le déplacement des nœuds de l’extrémité de la poutre est obtenu de telle sorte à obtenir une évolution linéaire de l’ouverture d’une paire de nœuds de la zone cohésive. Plus précisément, cette paire de nœuds est choisie à l’endroit où la fissuration est le plus susceptible de commencer, à savoir sur la surface supérieure et le plus proche de l’encastrement.

## Résultats typiques

Un exemple typique de résultat de ce type de simulations est présenté sur la Fig. 163. Pour s'assurer de la convergence des résultats en maillage, le nombre d'éléments dans le maillage initial a été multiplié par 2 et l'écart observé entre les courbes est de 1%. Le pilotage indirect permet d'obtenir toutes les branches de solutions d'équilibre du système. Les différentes branches représentent les différents équilibres possibles (Fig.163a). Lors d'un chargement à déplacement imposé, seule une branche sera observée, avec un saut de charge au moment de la rupture, ce qui correspond à l'observation expérimentale (Fig.163b).

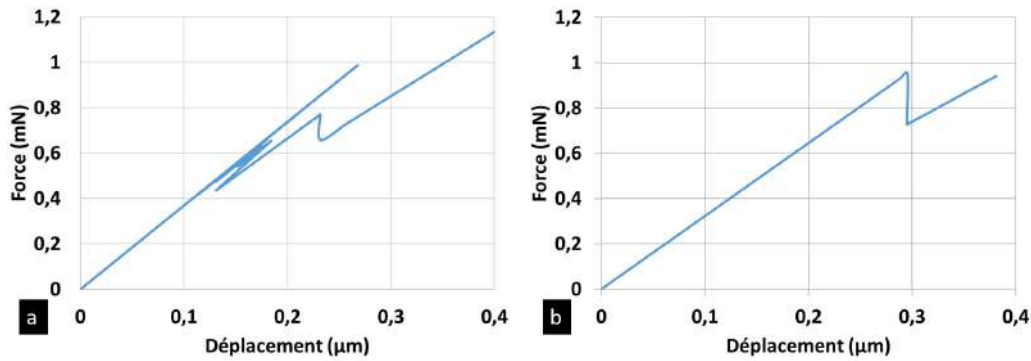


FIGURE 163. – Courbe force / déplacement d'une micro-poutre en flexion avec a) la courbe obtenue par simulation avec pilotage indirect et b) la courbe correspondante à déplacement imposé

## Comparaisons aux résultats expérimentaux

Dans un premier temps, l'essai avec les conditions expérimentales les plus favorables (cf. l'étude de dimensionnement, l'absence de plasticité avant la rupture et pas de cristallite en surface) a été sélectionné pour être comparé aux simulations avec zones cohésives, à savoir la Poutre6-ox3680h. Les paramètres de rupture déterminés dans la partie expérimentale (cf. Tab. 50) : contrainte à rupture  $\sigma_c = 919\text{MPa}$  et énergie de rupture  $\gamma_c = 12\text{ J/m}^2$  sont utilisés comme données d'entrée de la simulation. En ce qui concerne les propriétés élastiques des oxydes, les valeurs du module d'Young et du coefficient de Poisson de l'oxyde  $FeCr_2O_4$  issues des données du tableau 47 sont utilisées ( $E=218\text{GPa}$  et  $\nu=0.29$ ).

La courbe force/déplacement obtenue est comparée avec la courbe expérimentale (Fig. 164). Le but de ces simulations avec les zones cohésives est de retomber sur la courbe expérimentale pour évaluer si les paramètres à rupture estimés précédemment ( $\sigma_c$  et  $\gamma_c$ ) permettent bien de prédire la fissuration du joint de grains.

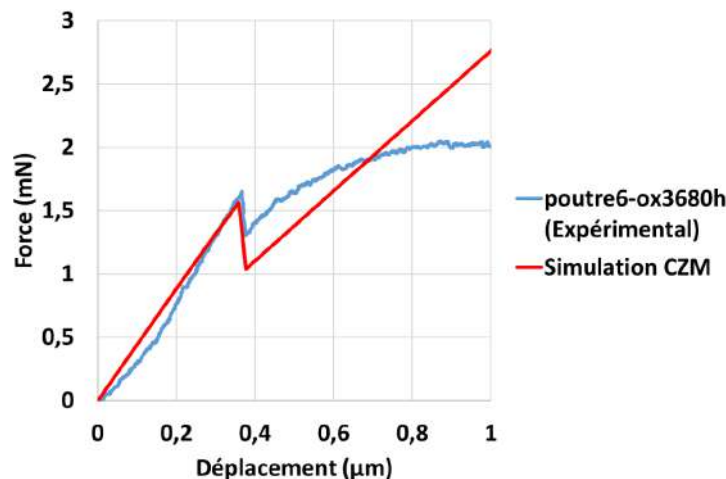


FIGURE 164. – Comparaison entre la courbe de charge expérimentale et simulée

La pente élastique est bien reproduite ainsi que la valeur de force à rupture issue de la simulation qui est 5.6 % en dessous de celle estimée - 1557  $\mu\text{N}$  au lieu de 1650  $\mu\text{N}$ . À noter que la valeur d'énergie de surface estimée à partir du saut de charge de la courbe simulée est supérieure à celle introduite en début de simulation. Cela peut s'expliquer par la présence de différents régimes dans le modèle de rupture de Leguillon. En effet dans le cas où la contrainte  $\sigma_c$  nécessaire pour amorcer la rupture est très grande, c'est elle qui pilote l'amorçage de la rupture et non le critère énergétique qui sera satisfait bien avant. L'amorçage de la fissure n'intervient donc que si cette valeur de  $\sigma_c$  est atteinte, relâchant une plus grande énergie qui aboutit à un saut de charge plus marqué et donc une énergie de rupture plus élevée que celle donnée en entrée de la simulation. La visualisation du résultat en sortie de simulation avec fissuration du joint de grains est présentée sur la Fig. 165.

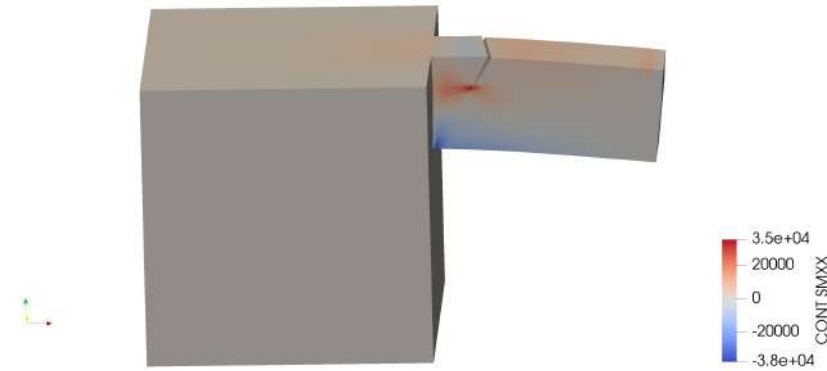


FIGURE 165. – Visualisation du champ de contrainte axiale après fissuration du joint de grains

L'accord entre la prédiction numérique et l'essai est satisfaisant même si le saut de charge est plus marqué dans la simulation. Sur ce point, la question d'une optimisation pourrait donc se poser pour obtenir une meilleure correspondance pour l'énergie à rupture. Cependant pour diminuer le saut de charge, il faudrait diminuer  $\sigma_c$ , en accord avec le sens physique de cette variable. Le choix d'optimiser  $\sigma_c$  au lieu de  $\gamma_c$  vient du fait que le bilan énergétique réalisé pour obtenir la valeur de  $\gamma_c$  est, aux incertitudes de mesures près, moins sujet à caution que l'évaluation des contraintes. Or diminuer la valeur de  $\sigma_c$  diminuerait certes le saut de charge, mais aussi la force à rupture pour qui une bonne correspondance est déjà obtenue. Il n'y aura donc pas d'optimisation des paramètres à rupture déterminés.

Afin de simplifier l'étude par rapport au tableau 50, un seul jeu de paramètre final sera retenu sans distinction entre la rupture à l'interface ou dans l'oxyde et en conservant la valeur des constantes d'élasticité cubique utilisées pour la simulation présentée sur la Fig. 164. Les paramètres de rupture finaux sont rapportés dans le tableau 51.

Energie de rupture ( $\text{J}/\text{m}^2$ )	12
Contrainte de rupture (MPa)	919

TABLEAU 51. – Paramètres de ruptures des joints de grains oxydé en milieu REP



Ces paramètres sont maintenant utilisés pour simuler les essais d'autres micro-poutres ayant conduits ou non à la rupture (Fig. 166).

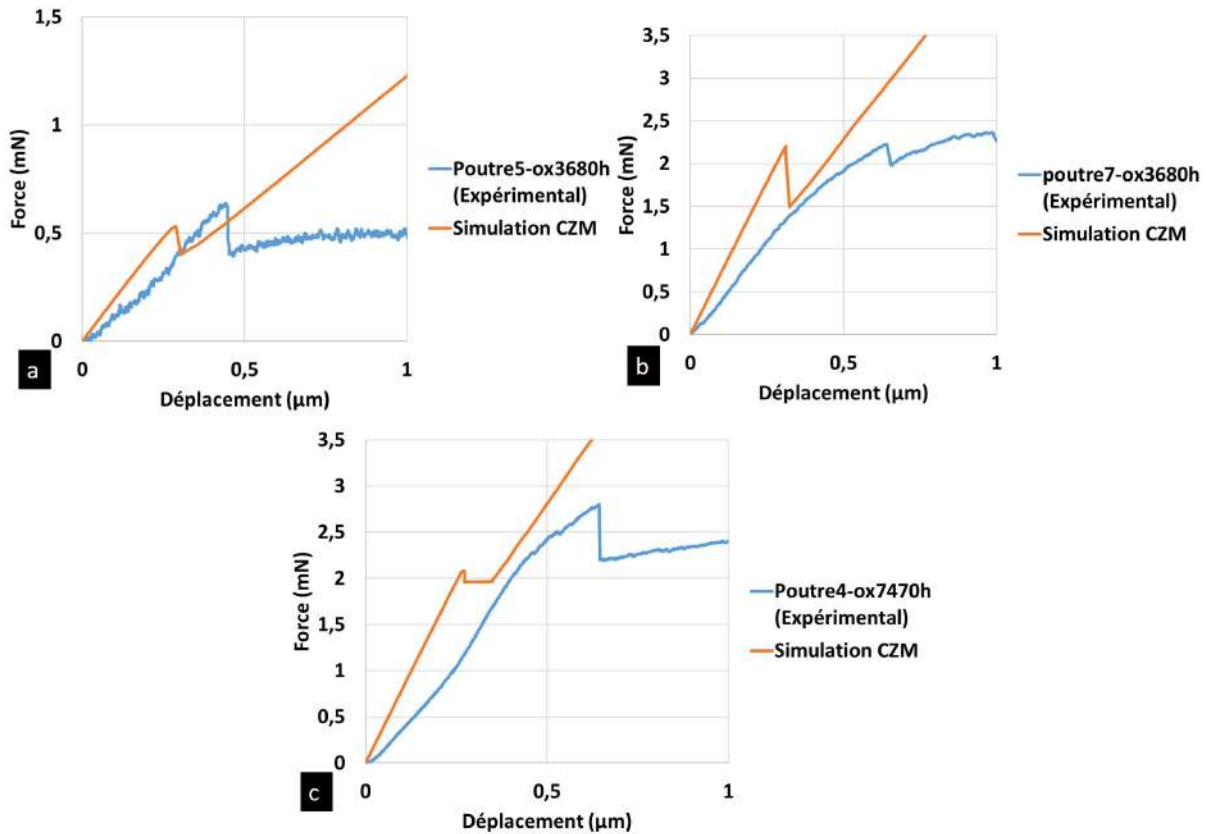


FIGURE 166. – Comparaison des courbes de simulation par CZM avec les courbes expérimentales de flexion

Pour toutes les poutres, il y a un écart entre la pente élastique simulée et celle observée expérimentalement, possiblement dû à la présence de cristallite en surface sur la Poutre5-ox3680h et la Poutre7-ox3680h ainsi que sur la Poutre4-ox7470h car le polissage au MEB n'a pas suffi à complètement enlever les cristallites.

Dans le cas de la Poutre5-ox3680h sur la Fig. 166a, il y a une assez bonne correspondance entre la courbe expérimentale et la courbe de simulation en terme de force à rupture (14.5% d'écart) et saut de charge. La Poutre7-ox3680h présente elle aussi une bonne correspondance entre la courbe expérimentale et la courbe de simulation en terme de force à rupture mais un saut de charge plus important est observable dans la simulation (Fig. 166b). Pour cette poutre, l'expérience de tomographie n'a pas pu être réalisée, introduisant une possible surestimation dans l'énergie donnée en entrée de la simulation. La Poutre4-ox7470h présente quant à elle une différence de force et d'énergie de rupture entre la courbe expérimentale et simulée (Fig. 166c), cette dernière montrant un plateau où la force augmente très faiblement, voire stagne. Pour ce dernier cas, un phénomène de multifissuration a eu lieu au joint de grains mais n'a engendré qu'une seule chute de charge. La force à rupture et le saut de charge expérimentaux correspondent donc à plusieurs événements qui ne sont pas simulés dans la modélisation.

Les simulations éléments finis réalisées dans cette partie permettent de reproduire dans l'ensemble les essais, confirmant la bonne évaluation des paramètres de rupture des oxydes intergranulaires donnés dans le tableau 51. Comme cela a été décrit dans le paragraphe précédent, les écarts résiduels peuvent résulter de différents facteurs non ou incomplètement pris en compte dans la modélisation. Ces facteurs peuvent être de nature géométrique (prise en compte de la forme exacte du joints de grains dans l'épaisseur et des cristallites), la plasticité, la présence de contraintes résiduelles (dont la présence est indiquée par la délamination observée sur la Fig. 112), la multifissuration et la délamination

qui peuvent avoir lieu près de l'encastrement ainsi que les paramètres élastiques des oxydes utilisés sont spécifiques à deux oxydes de type spinelle bien particuliers ( $FeCr_2O_4$  et  $NiCr_2O_4$ ) alors que l'analyse chimique des oxydes a révélé que leur structure pourrait être bien plus complexe. La prise en compte de ces aspects est possible mais nécessite des caractérisations additionnelles qui sont l'une des perspectives de ces travaux. De manière plus fondamentale, la question se pose du lien entre la contrainte de rupture et la structure de l'oxyde, ce qui est notamment d'intérêt si cette structure évolue en fonction du temps d'oxydation (ou sous irradiation).

### 3. Conclusion et perspectives

Un protocole expérimental pour quantifier la fissuration intergranulaire des aciers austénitiques oxydés en milieu REP a été mis en place. Dans cette optique, un acier austénitique  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$ , enrichi en Si et Ni et appauvri en Cr par rapport aux aciers d'intérêt 304 / 316, avec une composition chimique permettant de s'approcher de celle des joints de grains de ces aciers après irradiation a été sélectionné pour sa sensibilité présumée à l'oxydation et fissuration intergranulaire qui a été vérifiée à l'aide d'essais d'oxydation sans ou avec sollicitation mécanique. Les oxydes formés ont été quantifiés après 3680 et 7470h d'oxydation, à savoir les épaisseurs des oxydes et les compositions chimiques. Des pénétrations d'oxydes aux joints de grains de l'ordre du micron après 3680h sont notamment observées. La composition chimique de l'oxyde interne apparaît cependant différente de celle des oxydes formées sur les aciers 304 / 316.

Après une étude de dimensionnement, des micro-poutres bi-cristallines ont été usinées par FIB dans les échantillons oxydés puis testées in-situ dans un MEB à température ambiante en micro-flexion. Une étude de sensibilité des paramètres expérimentaux sur les propriétés mesurées a été réalisée afin de mesurer leur influence et ainsi se mettre dans les conditions d'essais optimales. Suite aux essais, des expériences de tomographie 3D ont été conduites afin d'estimer précisément la géométrie et la surface de la fissure. Les données expérimentales ont permis d'estimer les énergies surfaciques de rupture  $\gamma_c$  et les contraintes d'amorçage de la fissuration intergranulaire  $\sigma_c$  analytiquement puis à l'aide de simulations numériques. Des simulations finales modélisant la fissuration à l'aide de zone cohésives ont finalement été menées pour évaluer le caractère prédictif des paramètres de rupture  $\sigma_c$  et  $\gamma_c$  obtenus. Les valeurs finales obtenues sont  $\gamma_c \approx 12 \text{ J/m}^2$  et  $\sigma_c \approx 919 \text{ MPa}$  pour les oxydes intergranulaires de l'acier  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$  oxydé en milieu REP. Ces valeurs sont du même ordre de grandeur que celles estimées expérimentalement sur l'alliage Inconel 600 sur lequel sont retrouvés les mêmes types d'oxydes.

Diverses perspectives sont envisageables pour affiner les résultats obtenus et la représentativité des simulations, en ce qui concerne notamment les propriétés mécaniques de l'oxyde (par exemple par des essais de nanoindentation ou de résonance ultra-sonore) ou l'évaluation des contraintes résiduelles (avec des moyens comme de la diffraction des rayons X). En ce qui concerne les couches d'oxyde externe et interne, leurs hétérogénéités ajoutent un facteur de dispersion qui a été en partie supprimé en enlevant les cristallites de surface sur certains essais. Il aurait été encore plus pertinent de supprimer non seulement les cristallites mais aussi la couche continue sur la poutre pour avoir uniquement la réponse du joint de grains oxydé. Cette approche s'éloigne certes du matériau réel en condition de fonctionnement et comme le souligne Dohr et al. [21] la couche d'oxyde surfacique peut renforcer le matériau. Cependant dans une première approche d'étude et de modélisation, il est préférable de limiter les paramètres de dispersion. Afin de faciliter l'estimation de la surface de fissure par tomographie 3D, il aurait fallu s'arrêter juste après l'ouverture du joint de grains car la déformation qui a suivi permet la visualisation du volume de fissuration et non la surface. De manière plus fondamentale, la question se pose du lien entre la contrainte de rupture et la structure de l'oxyde, ce qui est notamment d'intérêt si cette structure évolue en fonction du temps d'oxydation (ou sous irradiation).

Le protocole d'étude élaboré dans ce chapitre va ensuite être appliqué au matériau d'intérêt industriel : l'acier 304L.

# Bibliographie

- [1] G. Han, Z. Lu, X. Ru, J. Chen, J. Zhang, and T. Shoji. Properties of oxide films formed on 316L SS and model alloys with modified Ni, Cr and Si contents in high temperature water. Corrosion Science, 106 :157–171, 2016.
- [2] G.F. Li, Y. Kaneshima, and T. Shoji. Effects of impurities on environmentally assisted crack growth of solution-annealed austenitic steels in primary water at 325°C. Corrosion, 56(05), 2000.
- [3] J.C.B. Alcock, E. Easterbrook, and J. MacKowiak. Thermodynamics and kinetics of gas-metal systems. In Corrosion, pages 7–145. Elsevier, 1994.
- [4] R.E. Schramm and R.P. Reed. Stacking fault energies of seven commercial austenitic stainless steels. Metallurgical Transactions A, 6(7) :1345–1351, 1975.
- [5] E. A. Kenik and J. T. Busby. Radiation-induced degradation of stainless steel light water reactor internals. Materials Science and Engineering : R : Reports, 73(7) :67–83, 2012.
- [6] O.K. Chopra and A.S. Rao. A review of irradiation effects on LWR core internal materials – IASCC susceptibility and crack growth rates of austenitic stainless steels. Journal of Nuclear Materials, 409(3) :235–256, 2011.
- [7] Z. Jiao and G.S. Was. Novel features of radiation-induced segregation and radiation-induced precipitation in austenitic stainless steels. Acta Materialia, 59(3) :1220–1238, 2011.
- [8] J. Gupta, J. Hure, B. Tanguy, L. Laffont, M.-C. Lafont, and E. Andrieu. Characterization of ion irradiation effects on the microstructure, hardness, deformation and crack initiation behavior of austenitic stainless steel :Heavy ions vs protons. 501 :45–58, 2018.
- [9] F. Bachmann, R. Hielscher, and H. Schaeben. Texture analysis with MTEX–free and open source software toolbox. In Solid state phenomena, volume 160, pages 63–68. Trans Tech Publ, 2010.
- [10] P. Guiraldenq and O. H. Duparc. The genesis of the schaeffler diagram in the history of stainless steel. Metallurgical Research & Technology, 114(6) :613, 2017.
- [11] M. da Cunha Belo, M. Walls, N.E. Hakiki, J. Corset, E. Picquenard, G. Sagon, and D. Noel. Composition, structure and properties of the oxide films formed on the stainless steel 316L in a primary type PWR environment. Corrosion Science, 40(2-3) :447–463, 1998.
- [12] S.E. Ziemniak and M. Hanson. Corrosion behavior of 304 stainless steel in high temperature, hydrogenated water. Corrosion Science, 44(10) :2209–2230, 2002.
- [13] J. Gupta. Intergranular stress corrosion cracking of ion irradiated 304L stainless steel in PWR environment. PhD thesis, Université Toulouse 3 - Paul Sabatier, 2016.
- [14] S. Cissé, L. Laffont, B. Tanguy, M.-C. Lafont, and E. Andrieu. Effect of surface preparation on the corrosion of austenitic stainless steel 304l in high temperature steam and simulated PWR primary water. Corrosion Science, 56 :209–216, 2012.
- [15] T. Terachi, K. Fujii, and K. Arioka. Microstructural characterization of SCC crack tip and oxide film for SUS 316 stainless steel in simulated PWR primary water at 320°C. Journal of nuclear science and technology, 42(2) :225–232, 2005.
- [16] S. Wang, Y. Hu, K. Fang, W. Zhang, and X. Wang. Effect of surface machining on the corrosion behaviour of 316 austenitic stainless steel in simulated PWR water. Corrosion Science, 126 :104–120, 2017.

- [17] G. Han, Z. Lu, X. Ru, J. Chen, Q. Xiao, and Y. Tian. Improving the oxidation resistance of 316L stainless steel in simulated pressurized water reactor primary water by electropolishing treatment. Journal of Nuclear Materials, 467 :194–204, 2015.
- [18] M. Boisson, L. Legras, E. Andrieu, and L. Laffont. Role of irradiation and irradiation defects on the oxidation first stages of a 316L austenitic stainless steel. Corrosion Science, 161, 2019.
- [19] R. Soulas, M. Cheynet, E. Rauch, T. Neisius, L. Legras, C. Domain, and Y. Brechet. TEM investigations of the oxide layers formed on a 316L alloy in simulated PWR environment. Journal of Materials Science, 48(7) :2861–2871, 2013.
- [20] Z. Shen, D. Du, L. Zhang, and S. Lozano-Perez. An insight into PWR primary water SCC mechanisms by comparing surface and crack oxidation. Corrosion Science, 148 :213–227, 2019.
- [21] J. Dohr, D. E. J. Armstrong, E. Tarleton, T. Couvant, and S. Lozano-Perez. The influence of surface oxides on the mechanical response of oxidized grain boundaries. Thin Solid Films, 632 :17–22, 2017.
- [22] H. Dugdale, D. E.J. Armstrong, E. Tarleton, S. G. Roberts, and S. Lozano-Perez. How oxidized grain boundaries fail. Acta Materialia, 61(13) :4707–4713, 2013.
- [23] A. Teklu, H. Ledbetter, Sk. Kim, L.A. Boatner, M. McGuire, and V. Keppens. Single-crystal elastic constants of Fe-15Ni-15Cr alloy. Metallurgical and Materials Transactions A, 35(10) :3149–3154, 2004.
- [24] M. Berveiller and A. Zaoui. An extension of the self-consistent scheme to plastically-flowing polycrystals. Journal of the Mechanics and Physics of Solids, 26(5-6) :325–344, 1978.
- [25] R.M. Christensen and K.H. Lo. Solutions for effective shear properties in three phase sphere and cylinder models. Journal of the Mechanics and Physics of Solids, 27(4) :315–330, 1979.
- [26] J. M. Bussey, M. H. Weber, N. J. Smith-Gray, J. J. Sly, and J. S. McCloy. Examining phase separation and crystallization in glasses with X-ray nano-computed tomography. Journal of Non-Crystalline Solids, 600 :121987, 2023.
- [27] D. Leguillon. Strength or toughness ? a criterion for crack onset at a notch. European Journal of Mechanics-A/Solids, 21(1) :61–72, 2002.
- [28] L. Van Brutzel, A.n Chartier, B. Sicaud, and M. Sauzay. Mechanical behavior of (Ni, Fe)  $Cr_2O_4$  spinel grain boundaries studied by molecular dynamics simulations. The Journal of Chemical Physics, 151(1) :014701, 2019.
- [29] S. Lozano-Perez and J.M. Titchmarsh. TEM investigations of intergranular stress corrosion cracking in austenitic alloys in PWR environmental conditions. Materials at high temperatures, 20(4) :573–579, 2003.
- [30] P. Sennour, M.and Laghoutaris, C. Guerre, and R. Molins. Advanced TEM characterization of stress corrosion cracking of Alloy 600 in pressurized water reactor primary water environment. Journal of Nuclear Materials, 393(2) :254–266, 2009.
- [31] V. Tvergaard. Effect of fibre debonding in a whisker-reinforced metal. Materials science and engineering : A, 125(2) :203–213, 1990.

## Chapitre 4

# Étude de la fissuration intergranulaire d'un acier 304L à l'état non irradié et irradié oxydé en milieu REP



## Introduction

Dans ce chapitre, le protocole d'étude de la fissuration intergranulaire élaboré sur l'acier austénitique  $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$  dans le chapitre 3 est appliqué à l'acier austénitique inoxydable 304L présenté dans le chapitre 2. Le but est de déterminer les propriétés de rupture des oxydes intergranulaires de l'acier 304L oxydé en milieu REP. Il s'agit en particulier (1) d'évaluer l'effet de l'irradiation sur les propriétés d'oxydation et de rupture des oxydes du 304L et (2) savoir si les propriétés obtenues sur les oxydes intergranulaires de l'acier  $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$  sont aussi pertinentes pour l'acier 304L.

Des essais d'oxydation sont menés sur des échantillons non irradié et irradié aux protons, correspondant à une dose d'irradiation de 1dpaKP en surface, afin de quantifier l'effet de l'irradiation sur les caractéristiques morphologiques et la nature des oxydes formés. Des micro-poutres bi-cristallines sont usinées à la fois dans les parties non irradiées et irradiées des échantillons suivant le même protocole que dans le chapitre 3. Des essais de micro-flexion sont réalisés à température ambiante. Les essais sont ensuite exploités pour déterminer l'énergie de rupture et la contrainte à rupture des joints, de manière analytique et à l'aide de simulations éléments finis sans et avec zones cohésives.

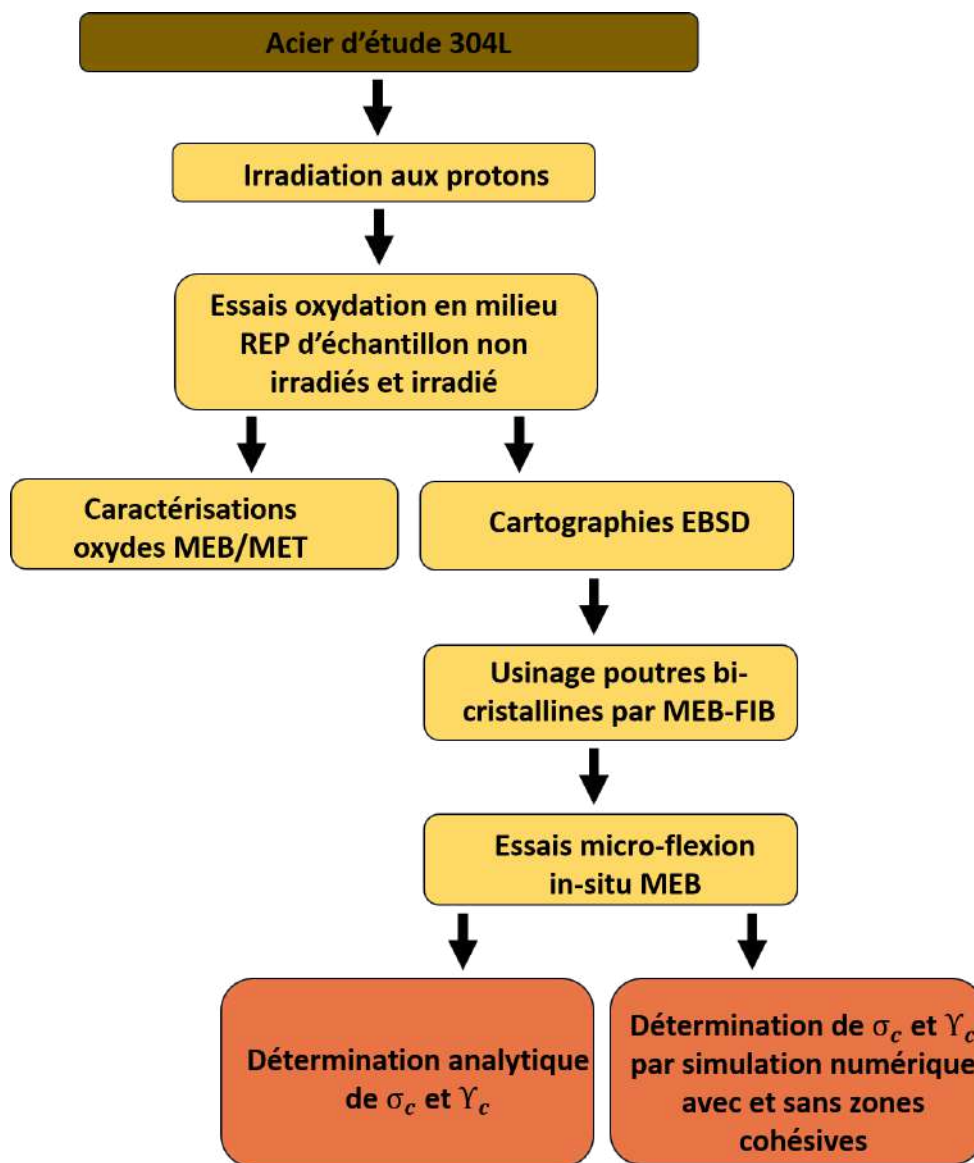


FIGURE 167. – Méthodologie utilisée pour déterminer les paramètres de rupture des joints de grains d'un acier 304L à l'état non irradié et irradié oxydé en milieu REP



## 1. Rappels des caractéristiques de l'acier austénitique 304L et caractérisation du comportement en oxydation et en fissuration

### 1.1. Propriétés du matériau

L'acier 304L Hypertrempé du Chapitre 2 est utilisé pour étudier la fissuration intergranulaire. Sa composition est rappelée dans le tableau 52.

Fe	Cr	Ni	Mn	Si	Mo	C	Cu	P	Co
Bal	18,75	8,55	1,65	0,45	0,02	0,012	0,24	0,01	<0,05
Ti	S	N	Pb	W	Zr	B	Mg	V	Nb
<0,05	0,002	0,062	8ppb	0,035	12ppm	0	0,003	0,015	0

TABLEAU 52. – Composition chimique de l'acier 304L SA (wt%)

Ce matériau est représentatif des aciers constitutifs des cloisons et renforts des internes de cuve REP. Les échantillons utilisés ont été prélevés par électro-érosion puis polis miroir avec finition OPS suivant le protocole décrit dans le chapitre 2. Les principales caractéristiques microstructurales décrites dans la chapitre 2 sont rappelées dans le tableau 53.

Phases	Taille de grains	% joints $\Sigma 3$	% autres joints $\Sigma$
Austénite 95% Ferrite 5%	21 $\mu$ m	48	12

TABLEAU 53. – Caractéristiques microstructurales de l'acier 304L

Cette microstructure diffère de celle de l'acier  $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$  par la présence de ferrite et une taille de grains plus élevée mais la proportion de joints de grains spéciaux reste similaire. Dans cette étude, l'accent est mis sur les joints de grains généraux à l'interface de phases CFC car ce sont ceux pour lesquels la fissuration est observée dans le phénomène d'IASCC [1].

Température (°C)	$R_{p0.2}$ (MPa)	$R_m$ (MPa)	Allongement à rupture (%)
20	261 $\pm$ 3	631 $\pm$ 10	98 $\pm$ 3
340	200 $\pm$ 5	451 $\pm$ 5	44 $\pm$ 2

TABLEAU 54. – Propriétés mécaniques conventionnelles de l'acier SA 304L GV20 à 20°C et 340°C à l'état non irradié : Limite d'élasticité à 0.2% de déformation plastique  $R_{p0.2}$ , résistance mécanique en traction  $R_m$  et allongement à rupture

Les propriétés mécaniques conventionnelles macroscopiques de l'acier 304L sont rappelées dans le tableau 54. En les comparant à celles de l'acier  $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$ , ce dernier présente une plus grande dureté qui pourrait provenir d'une taille de grain plus faible. Il faut d'ailleurs rappeler que la dureté est un paramètre de premier ordre sur la corrosion sous contraintes intergranulaire et que donc, toutes choses égales par ailleurs, le 304L sera moins sensible a priori à la fissuration [2].

### 1.2. Irradiation

L'échantillon irradié utilisé dans ce chapitre fait partie de la campagne d'irradiation aux protons  $\text{H}^+$  détaillée dans le chapitre 2 qui a abouti à une dose d'irradiation de 1dpa KP en surface de l'échantillon. Le profil de dommage ainsi que celui d'implantation des protons sont présentés sur la Fig. 168.

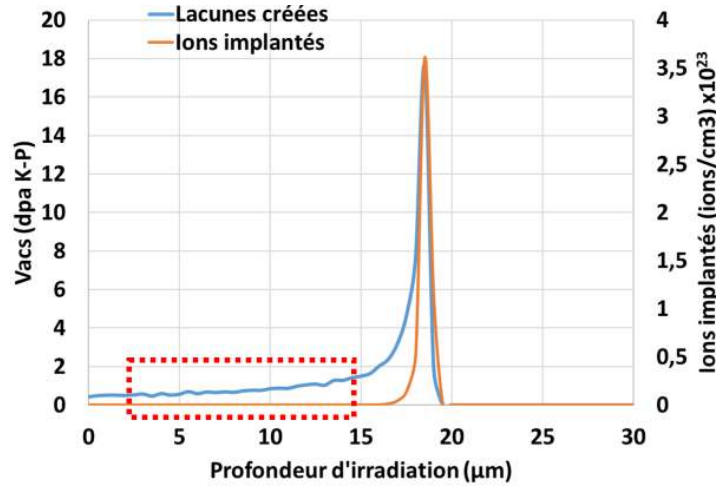


FIGURE 168. – Profil d'irradiation d'un acier de type 304 irradié aux protons 2MeV (Simulation IRADINA avec énergie de déplacement de 40eV et calcul de la dose par la modèle de Kinchin-Pease). La région en pointillée correspond à la zone de prélèvement des échantillons.

Les échantillons sont prélevés sur la zone encadrée où il n'y a pas d'implantation d'ions et la dose de dommage est constante.

Des essais de dureté Vickers ont été réalisés sur l'acier avant irradiation avec une charge de 10g et ont abouti à une dureté de  $188HV \pm 11$ . Après irradiation, cette dureté monte à  $318HV \pm 15$ . La charge de 10g conduit à une profondeur d'indentation de  $4.2\mu m$  à l'état non irradié et  $3.5\mu m$  à l'état irradié, ce qui correspond respectivement à une profondeur affectée par l'indentation de l'ordre de 21 et  $17\mu m$ . A l'état irradié, cela correspond à une profondeur affectée par l'indentation de l'ordre de  $17\mu m$ , profondeur pour laquelle la dose d'irradiation est relativement constante (Fig. 168). L'augmentation de dureté  $\Delta H_v = 130HV$  est utilisée pour estimer l'augmentation de la limite d'élasticité grâce à la formule  $\Delta \sigma_y = 3.03 \Delta HV$  [3], ce qui conduit aux résultats présentés dans le tableau 55.

	Dureté (HV)	$\Delta HV$ (HV)	$\Delta \sigma_y$ (MPa)	$\sigma_y$ (MPa)
Non irradié	$188 \pm 11$			$261 \pm 3$
Irradié 1dpaKP	$318 \pm 15$	130	394	$655 \pm 15$

TABLEAU 55. – Évaluation du durcissement induit par l'irradiation

La couche irradiée apparaît donc plus dure que l'acier 304L non irradié mais aussi que l'acier  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$ .

### 1.3. Comportement en corrosion

#### 1.3.1. Conditions d'oxydation

Des essais d'oxydation ont été réalisés en milieu REP simulé de composition 25-35cc/kg  $H_2$ , 1000ppm B, 2ppm Li à  $340^\circ C$ . Des barres de 304L non irradiées et irradiées 1dpa aux protons ont été oxydées dans le même autoclave et selon le même protocole que les échantillons dans le Chapitre 3. Le tableau 56 récapitule le temps d'oxydation pour chaque échantillon.

Échantillon	Durée d'oxydation
Non irradié	5000h
Non irradié	14516h
Irradiée 1dpa	7900h

TABLEAU 56. – Durées d'oxydation des échantillons en 304L irradié et non irradié en milieu REP à  $340^\circ C$

Les durées d'oxydation retenues, que ce soit à l'état non irradié ou à l'état irradié, sont bien plus importantes que pour l'acier  $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$  car l'acier 304L est bien moins sensible à l'oxydation - même à l'état irradié - et nécessite donc une plus longue oxydation. Dans la littérature, les durées d'oxydation vont jusqu'à 10 000 heures sur l'acier 304 dans l'eau hydrogénée à  $260^\circ\text{C}$  pour une couche d'oxyde d'épaisseur 920nm [4]. Pour les échantillons non irradiés, une barre a été oxydée 5000h dans un premier temps puis a été sortie pour des caractérisations préliminaires. Une autre barre a été maintenue en oxydation jusqu'à 14516h pour augmenter les chances d'obtenir des pénétrations d'oxydes significatives aux joints de grains.

### 1.3.2. Caractérisation des oxydes en Microscopie Électronique à Balayage

Suite aux essais d'oxydation, les échantillons ont été observés au MEB-FIB FEI Helios NanoLab600i en imagerie d'électrons secondaires. La Fig. 169 montre l'état de surface pour les échantillons non irradiés oxydés pendant 5000h et 14516h. Des cristallites polyédriques sont visibles en surface des deux échantillons. Elles semblent plus dispersées sur l'échantillon oxydé 5000h contrairement à l'échantillon oxydé 14516h qui présente une couche assez compacte et homogène de cristallites. Aucun joint de grains ne se devine sur cet échantillon car il ne semble pas y avoir de relation d'épitaxie entre le métal et l'oxyde. Des essais d'oxydation moins longs sur les aciers 304(L) / 316 (L) aboutissent à des observations similaires en termes de morphologies et d'absence d'épitaxie [5, 6, 7, 8]. Cependant la taille et densité de ces particules dépendent de beaucoup de paramètres (état de surface, composition du milieu, durée d'oxydation), rendant la comparaison entre les travaux compliquée.

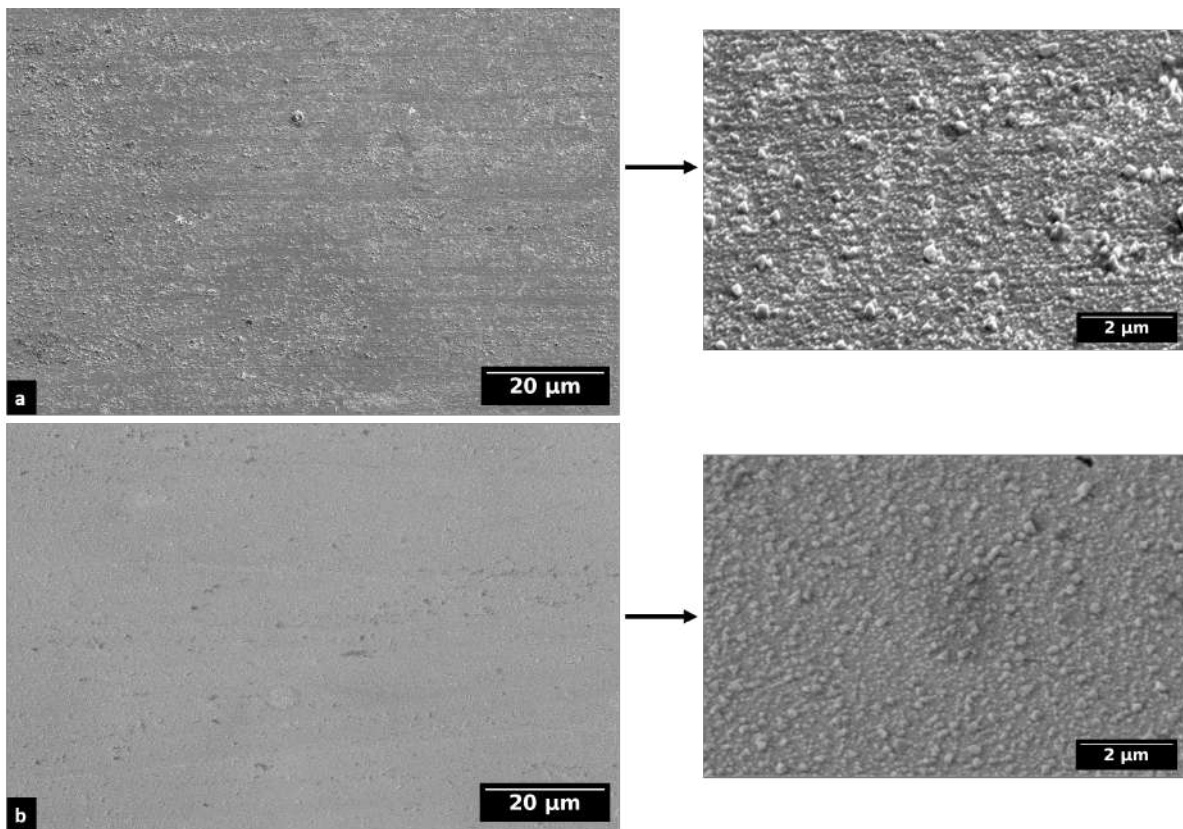


FIGURE 169. – Observations MEB de la surface de l'acier 304L à l'état non irradié oxydé a) 5000h et b) 14516h en milieu REP

Comme dans le chapitre 3, le faisceau  $\text{Ga}^+$  du MEB-FIB est utilisé pour polir une partie de la section transverse et révéler une région d'où sera observée l'épaisseur de la couche d'oxyde et la pénétration intergranulaire. Cependant, l'observation de section transverse de l'échantillon oxydé 5000h (Fig. 170a) ne permet pas de voir la couche d'oxyde qui semble nanométrique et donc à la limite de la résolution du MEB. Pour l'échantillon oxydé 14516h, la couche d'oxyde est plus facilement observable au MEB : des cristallites de surface (oxyde externe) ainsi qu'une couche continue (oxyde interne) sont présents

sur la Fig. 170b. La taille de l'oxyde est cependant faible pour une observation optimale au MEB. Ainsi il n'est pas possible de visualiser l'interface cristallites/couche continue mais l'interface couche continue/métal est plus visible.

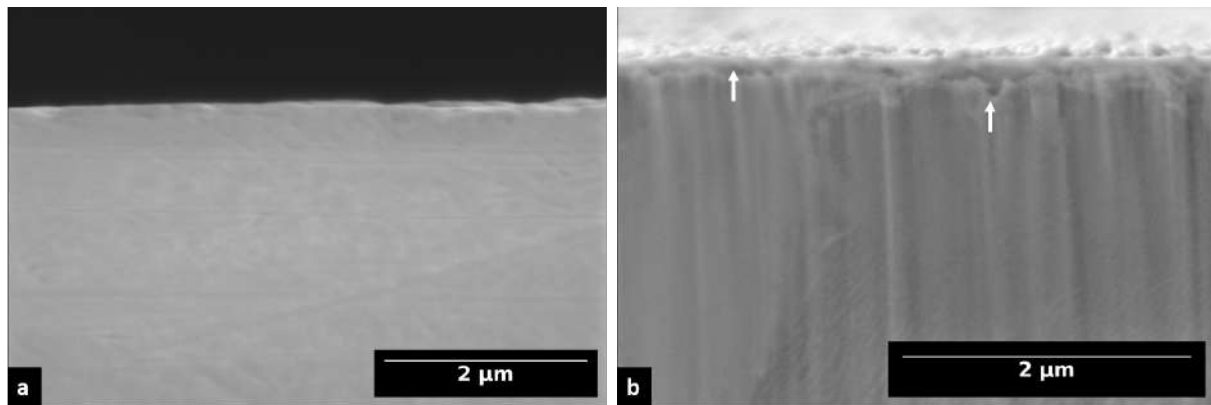


FIGURE 170. – Observation de l'épaisseur de la couche d'oxyde en section transverse sur l'acier 304L à l'état non irradié oxydé a) 5000h et b) 14516h en milieu REP

De manière générale, il n'y a pas de pénétration d'oxyde significative aux joints de grains visible à cette échelle pour les deux durées d'oxydation. Cependant, certains endroits - qui ne sont pas forcément des joints de grains - présentent des épaisseurs d'oxyde légèrement plus importantes (ne dépassant pas 200nm) comme indiqué sur la Fig. 170 (repérés par des flèches blanches).

En ce qui concerne l'échantillon irradié  $H^+$  1 dpaKP et oxydé 7900h, il présente aussi des cristallites en surface (Fig. 171a) de tailles équivalentes à l'état non irradié, mais plus espacées.

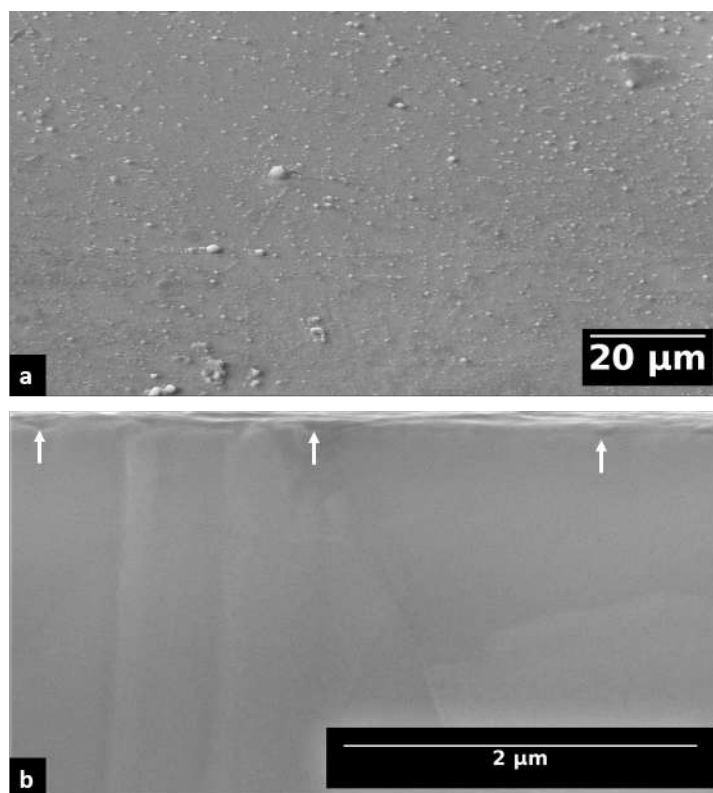


FIGURE 171. – Observations MEB a) de surface de l'acier 304L à l'état irradié oxydé en milieu REP 7900h et b) profondeur de la couche d'oxyde

La couche continue sur cet échantillon est tout de même difficilement observable au MEB même si elle peut se mesurer à certains endroits.

Durée d'oxydation et état d'irradiation	Taille cristallites (nm)	Epaisseur moyenne couche interne (nm)	Epaisseur maximale couche interne (nm)
5000h NI	130	-	-
14516h NI	170	100	200
7900h IRR	160	10	200

TABLEAU 57. – Dimensions des oxydes formés en surface de l'acier 304L non irradié et irradié oxydé en milieu REP

Les dimensions des oxydes formés à l'état non irradié et irradié sont résumées dans le tableau 57. La taille des cristallites et l'épaisseur de la couche interne sont déterminées comme dans le chapitre 3. Les cristallites sur l'échantillon non irradié oxydé à 5000h semblent être de taille plus petite que celles des échantillons non irradié oxydé 14516h et irradié oxydé 7900h dont les tailles de cristallites sont similaires. Globalement les valeurs restent proches, et faibles entre les trois temps d'oxydation. Quant à l'épaisseur de la couche d'oxyde interne, elle n'est pas mesurable au MEB sur l'échantillon non irradié oxydé 5000h. Pour les durées d'oxydation où il est possible de mesurer une épaisseur de couche d'oxyde, cette épaisseur est plus élevée sur l'échantillon non irradié 14516h par rapport à l'échantillon irradié et oxydé 7900h. Deux paramètres diffèrent entre les deux échantillons (état d'irradiation et durée d'oxydation), ce qui rend difficile d'interpréter ce résultat. Cependant, toutes choses égales par ailleurs, une épaisseur d'oxyde plus importante est attendue sur l'échantillon irradié comme il a pu être observé dans différents travaux sur les aciers 304L et 316L oxydé en milieu REP. Ainsi le travail de thèse de Gupta [5] sur un acier 304L irradié 1dpa aux protons dans les mêmes conditions montre une oxydation plus importante que l'échantillon non irradié. Les mêmes résultats sont observables dans les études de Deng et al. sur l'acier 304L [9] et Boisson et al. [10] sur du 316L irradié 1.5dpa aux protons.

Matériau	Etat	Oxydation	Taille cristallite (nm)	Epaisseur couche d'oxyde (nm)	Ref.
304L	Non irradié		20-100	5-6	[5]
	5dpa Fe	REP, 360h, 340°C	1-3	10-20	
	5dpa FeHe		10-20	8-10	
304NG	Non irradié		-	~ 20	[9]
	0.5, 1.5, 3,5dpa H <sup>+</sup>	REP, 500h, 320°C	200-2000	~ 50	
316L	Non irradié		-	10	[10]
	1.5 dpa H <sup>+</sup>	REP, 24h, 325°C	10-120	53	

TABLEAU 58. – Caractéristiques des oxydes formés en milieu REP sur des aciers 304L/316L non irradiés et irradiés oxydés en milieu REP

La taille des cristallites et l'épaisseur de la couche interne sont donc similaires à des travaux de la littérature mais pour des durées d'oxydations bien moins importantes. Il semblerait que la cinétique d'oxydation dans les conditions d'oxydation de cette étude est plus faible, ce qui resterait à confirmer.

### 1.3.3. Sensibilité à la fissuration intergranulaire de l'acier 304L

La nuance d'acier 304L utilisée a fait l'objet de caractérisations lors d'études précédentes montrant sa sensibilité à la fissuration intergranulaire en milieu REP [5] à l'aide d'essais de traction lente ( $\dot{\epsilon} = 5.10^{-8} s^{-1}$ ) jusqu'à 4% de déformation plastique. A l'état non irradié (Fig. 172a), peu de fissures ont été observées à l'exception de micro-fissures marquées par les flèches blanches avec une densité de fissure estimée à 71/mm<sup>2</sup> avec une longueur moyenne de 12μm. A l'état irradié (2 dpaKP) une fissuration beaucoup plus importante a été observée avec une densité évaluée à 316/mm<sup>2</sup> avec une longueur moyenne de 17μm.

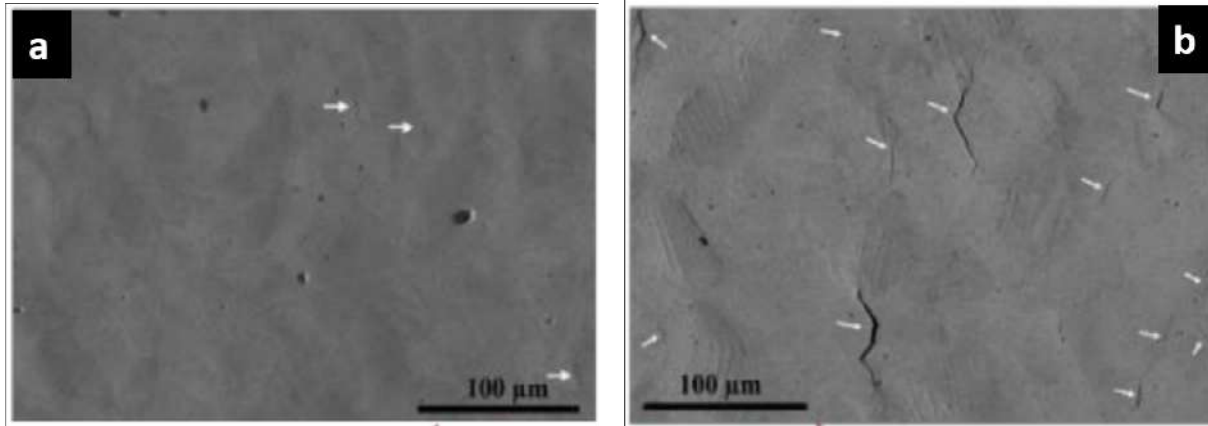


FIGURE 172. – Observations MEB de la surface d'une éprouvette en 304L GV20 a) non irradiée et b) irradiée (2 dpaKP) après un essai de traction lente en milieu REP [5]

## 2. Quantification des propriétés de rupture des oxydes de l'acier 304L

Les essais de flexion sur des micro-poutres de type Cantilever mis en place dans le chapitre 3 sont repris ici pour déterminer les propriétés de rupture des oxydes formés en milieu REP de l'acier 304L non irradié et irradié à 1 dpaKP. De la même manière que dans le chapitre 3, les essais seront menés sur des micro-poutres sans entaille pour étudier les propriétés d'amorçage de la fissure dans l'oxyde.

### 2.1. Essais de flexion sur micro-poutres bi-cristallines

#### 2.1.1. Fabrication des micro-poutres

En utilisant l'étude de dimensionnement et le protocole de fabrication mis en place dans le chapitre 3, des micro-poutres sont usinées dans les échantillons oxydés. Pour l'échantillon irradié, les poutres sont usinées dans la partie irradiée comme montré sur la Fig. 173.

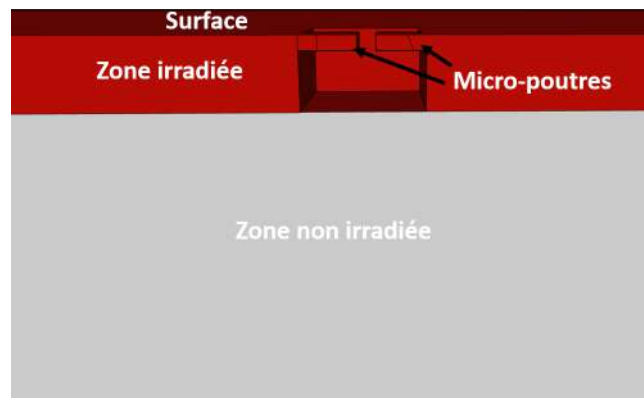


FIGURE 173. – Usinage des micro-poutres dans la zone irradiée de l'acier 304L

Devant la difficulté de trouver des joints de grains avec une pénétration d'oxyde assez importante (Fig. 174a), des micro-poutres ont été usinées à des endroits où l'épaisseur de la couche d'oxyde interne était plus importante et cela même en l'absence de joint (Fig. 174b), afin de maximiser les chances d'observer une rupture d'oxyde. Comme décrit dans le chapitre 3, la rupture intergranulaire peut s'effectuer à l'interface oxyde/métal mais aussi dans l'oxyde intergranulaire lui-même, assimilant la fissuration intergranulaire à une rupture d'oxyde. En postulant que la couche d'oxyde continue observée sur l'échantillon en surface est de même nature que celle qui pénètre aux joints de grains, les propriétés de rupture de cette couche continue surfacique peuvent être assimilées à celles de l'oxyde intergranulaire et donc du joint de grains oxydé.



FIGURE 174. – Localisation de la micro-poutre a) contenant un joint de grains et b) dans un grain avec une pénétration d'oxyde

Les caractéristiques géométriques de l'ensemble des micro-poutres usinées sont reportées dans le tableau 59. Les orientations cristallographiques sont disponibles uniquement pour 2 micro-poutres. Elles seront présentées lorsqu'elles seront utilisées pour l'interprétation analytique et les simulations.

	Longueur ( $\mu\text{m}$ )	Largeur ( $\mu\text{m}$ )	Hauteur ( $\mu\text{m}$ )
Poutre1-GV20NI-ox5000h	16.6	6.3	6.0
Poutre2-GV20NI-ox5000h	15.8	4.9	5.0
Poutre3-GV20NI-ox5000h	15.8	7.0	6.0
Poutre4-GV20NI-ox5000h	16.3	6.6	6.5
Poutre5-GV20NI-ox5000h	14.1	5.1	7.0
Poutre1-GV20NI-ox14516h	14.5	2.3	3.3
Poutre2-GV20NI-ox14516h	14.2	4.0	3.6
Poutre3-GV20NI-ox14516h	13.9	3.3	4.8
Poutre4-GV20NI-ox14516h	14.7	3.4	5.0
Poutre5-GV20NI-ox14516h	12.6	4.7	4.5
Poutre6-GV20NI-ox14516h	16.3	5.5	5.3
Poutre7-GV20NI-ox14516h	18.5	5.4	5.9
Poutre8-GV20NI-ox14516h	16.3	5.0	5.3
Poutre9-GV20NI-ox14516h	11.8	4.6	4.4
Poutre10-GV20NI-ox14516h	15.6	5.1	5.1
Poutre1-GV20IRR-ox7900	14.6	3.8	3.6
Poutre2-GV20IRR-ox7900	14.5	3.6	4.0
Poutre3-GV20IRR-ox7900	14.6	3.6	3.9
Poutre4-GV20IRR-ox7900	14.6	3.9	4.6
Poutre5-GV20IRR-ox7900	14.6	4.6	5.1
Poutre6-GV20IRR-ox7900	15.7	5.8	5.0
Poutre7-GV20IRR-ox7900	14.2	3.5	3.9
Poutre8-GV20IRR-ox7900	14.8	2.5	3.4
Poutre9-GV20IRR-ox7900	14.0	2.4	3.5
Poutre10-GV20IRR-ox7900	14.5	2.6	4.1

TABLEAU 59. – Caractéristiques géométriques des micro-poutres usinées sur l'acier 304L non irradié et irradié oxydé en milieu REP à différentes durées

Le tableau 60 synthétise les caractéristiques des oxydes des poutres usinées. Les cas de poutres avec un joint de grains sont différenciés de ceux où il y a une pénétration d'oxyde plus profonde sans joint de grains (marqués d'un \*). Sur ces poutres, il n'y a pas de position d'oxyde sur le côté 2 puisqu'il ne s'agit pas d'un joint de grains traversant la largeur de la poutre mais une pénétration d'oxyde ponctuelle et locale. Cependant, même pour les poutres contenant un joint de grain, la position du joint de l'autre côté de la poutre n'est pas toujours visible d'où les données manquantes dans le tableau 60.



	Présence joint	Position joint / oxyde côté 1 ( $\mu\text{m}$ )	Position joint côté 2 ( $\mu\text{m}$ )	Inclinaison joint ( $^\circ$ )	Profondeur oxyde ( $\mu\text{m}$ )	Largeur oxyde ( $\mu\text{m}$ )
Poutre1-GV20NI-ox5000h	oui	6.6	0	32	<0.1	<0.1
Poutre2-GV20NI-ox5000h	oui	3.6	-	4	<0.1	<0.1
Poutre3-GV20NI-ox5000h	oui	2.3	1.3	- 8	0.2	<0.1
Poutre4-GV20NI-ox5000h*	non	2.7	-	-	<0.1	<0.1
Poutre5-GV20NI-ox5000h	oui	6.6	1.3	11	<0.1	<0.1
Poutre1-GV20NI-ox14516h	oui	4.5	-	18	<0.1	<0.1
Poutre2-GV20NI-ox14516h	oui	1.5	2.4		0.1	<0.1
Poutre3-GV20NI-ox14516h*	non	2.4	-	-	0.3	1.3
Poutre4-GV20NI-ox14516h	oui	1.5	1.8	-36	0.2	0.2
Poutre5-GV20NI-ox14516h*	non	4.9	-	-	0.3	0.3
Poutre6-GV20NI-ox14516h*	non	2.7	-	-	0.1	0.1
Poutre7-GV20NI-ox14516h*	non	0.0	-	-	0.7	0.3
Poutre8-GV20NI-ox14516h*	non	4.1	-	-	0.3	0.3
Poutre9-GV20NI-ox14516h*	non	2.3	-	-	0.1	0.1
Poutre10-GV20NI-ox14516h*	non	3.6	-	-	0.1	0.1
Poutre1-GV20IRR-ox7900	oui	3.8	3.4	-43	0.2	0.4
Poutre2-GV20IRR-ox7900	oui	3.6	2.2	71	<0.1	<0.1
Poutre3-GV20IRR-ox7900	oui	0.7	4.0	-26	0.1	0.2
Poutre4-GV20IRR-ox7900	oui	3.6	0	-	0.2	<0.1
Poutre5-GV20IRR-ox7900	oui	0.5	1.3	-	0.2	0.1
Poutre6-GV20IRR-ox7900	oui	2.0	2.3	-20	<0.1	<0.1
Poutre7-GV20IRR-ox7900	oui	5.0	2.0	-40	0.4	<0.1
Poutre8-GV20IRR-ox7900	oui	4.9	-	20	0.3	<0.1
Poutre9-GV20IRR-ox7900*	non	1.7	-	-	<0.1	<0.1
Poutre10-GV20IRR-ox7900	oui	2.9	0	-	<0.1	<0.1

TABLEAU 60. – Caractéristiques des joints de grains/pénétrations d'oxyde présents dans les poutres usinées sur l'acier 304L non irradié et irradié oxydé à différentes durées

La mesure des dimensions de la pénétration d'oxyde, avec ou sans joint de grains est présentée sur la Fig. 175.

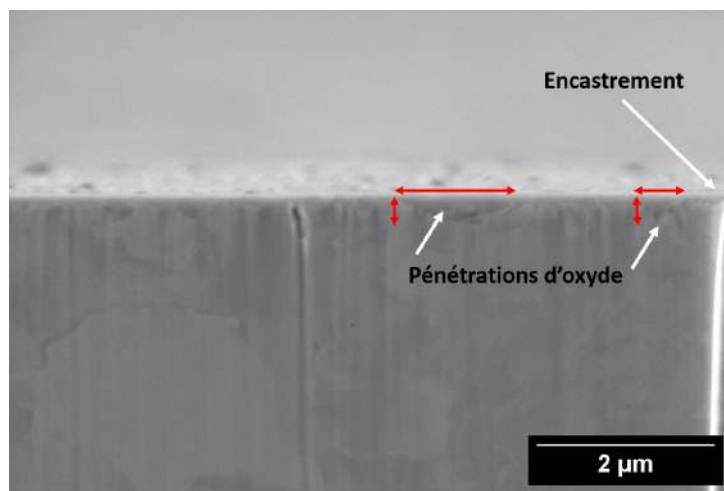


FIGURE 175. – Mesure de la profondeur et l'épaisseur (flèches rouges) des pénétrations d'oxyde (flèches blanches) sur la micro-poutre

### 2.1.2. Résultats des essais

Les essais de flexion sont réalisés in-situ dans un MEB-FIB FEI NanoLab600i à température ambiante avec le même dispositif utilisé dans le chapitre 3, en imposant un déplacement de 20nm/s au bord libre de la micro-poutre. Les courbes typiques obtenues pour ces essais sont présentées sur la Fig. 176 avec le cas où il n'y a pas de fissuration observée (Fig. 176a) et le cas où il y a fissuration de l'oxyde en régime de déformation plastique (Fig. 176b). Pour l'acier 304L, et contrairement au cas de l'acier  $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$ , aucune rupture n'a été observée dans le régime élastique. Dans les rares cas de rupture observés, une fissure apparaît soit sur l'oxyde de surface, soit au joint de grains ou encore sur les deux.

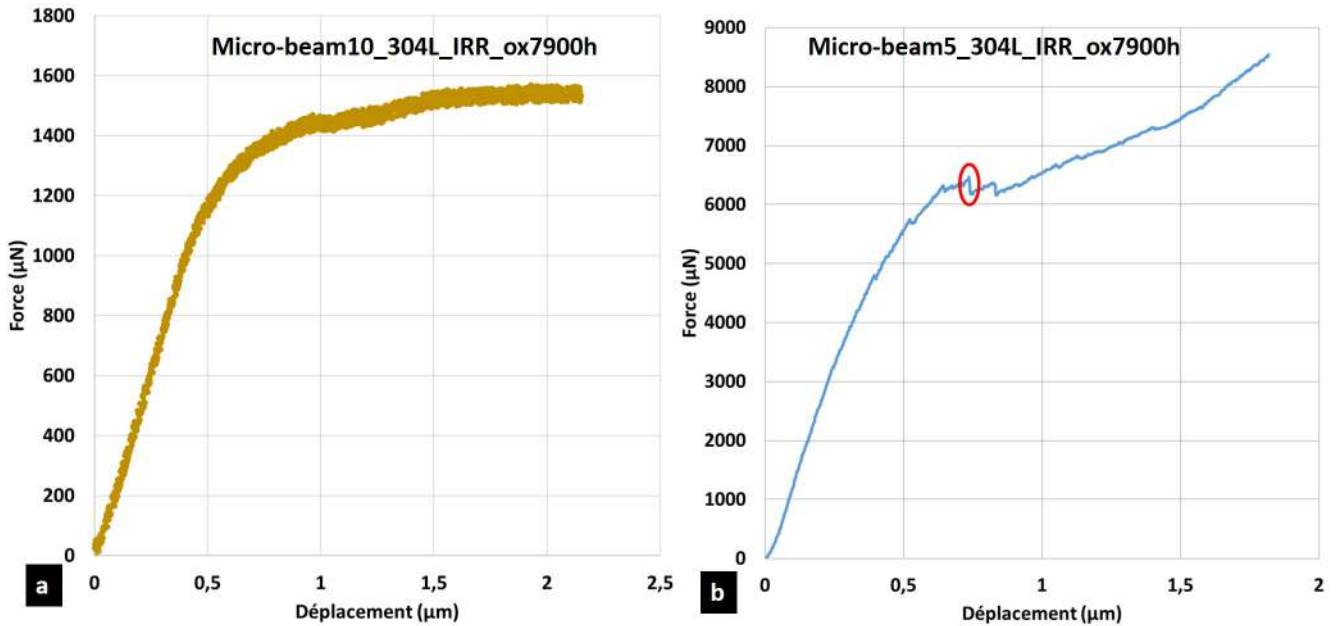


FIGURE 176. – Courbes force - déplacement typiques a) sans fissuration et b) avec fissuration (chute de charge cerclée en rouge) après déformation plastique

L'observation des échantillons après essai (Fig. 177) laisse voir des lignes de glissement qui apparaissent sur une majorité des micro-poutres, signes de la déformation plastique à l'œuvre. Quelques essais aboutissent à une fissure au niveau du joint de grains et/ou de la couche d'oxyde interne.

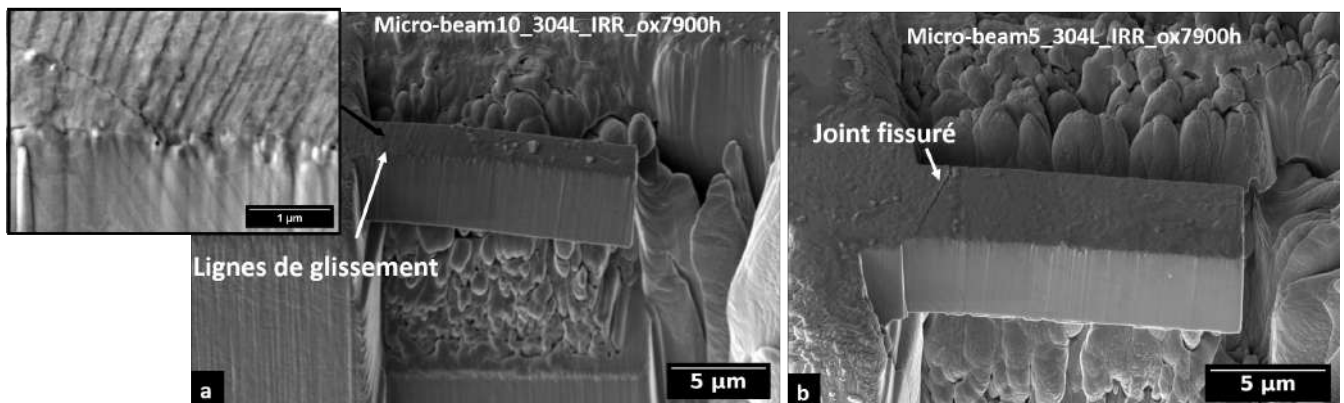
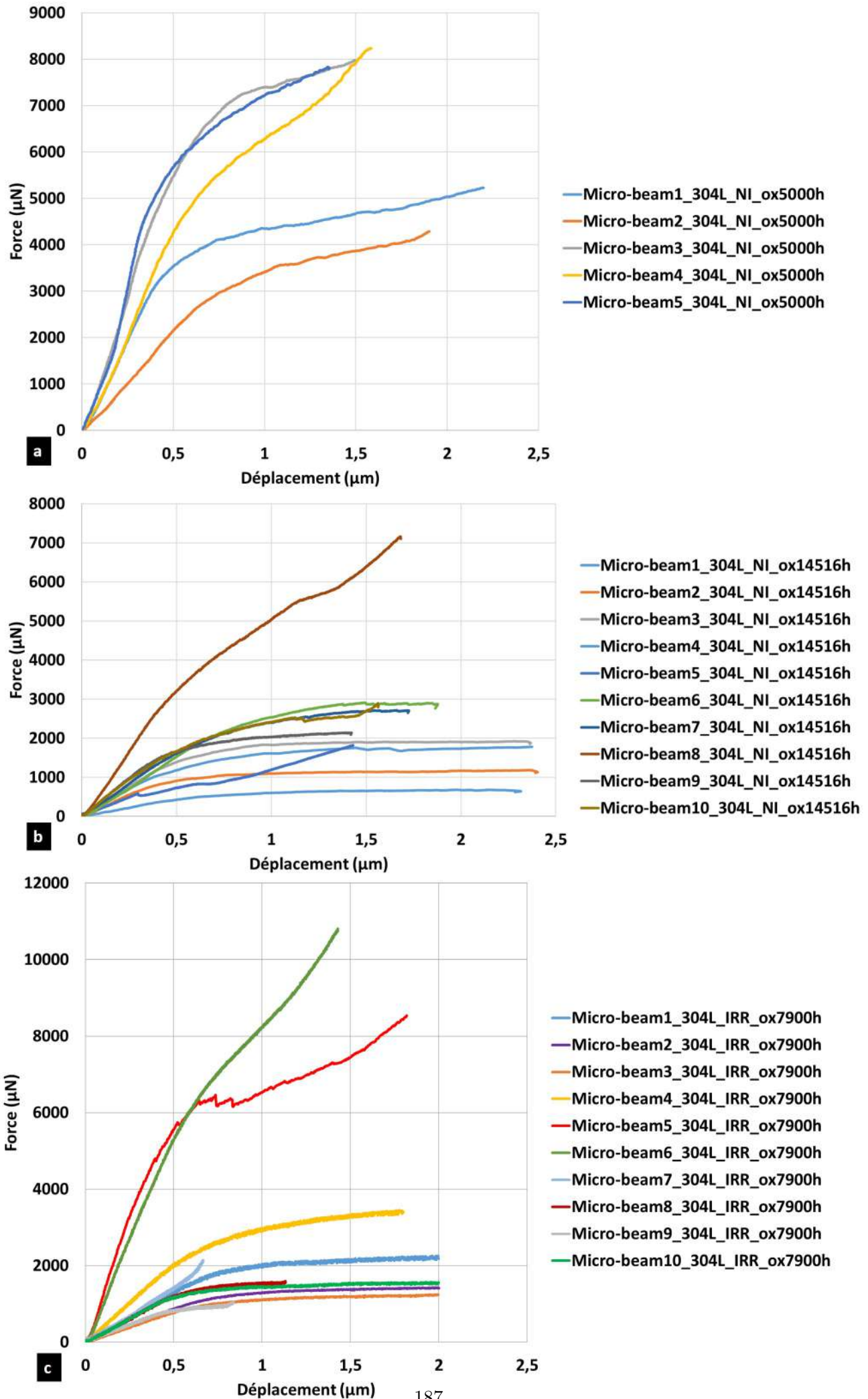


FIGURE 177. – Observations MEB des micro-poutres après essai de flexion a) sans fissuration et b) avec fissuration du joint de grains

La Fig. 178 rassemble l'ensemble des courbes force - déplacement pour toutes les poutres testées dans la barre d'acier en 304L non irradié oxydé 5000h et 14516h ainsi que dans l'échantillon irradié 1dpaKP et oxydé 7900h.



Sur les 25 poutres testées, 11 montrent de la fissuration : 3 au joint de grains, 2 au joint et surface et 7 uniquement sur la surface. Toutes ces ruptures interviennent après une large déformation plastique et seules 4 d'entre elles se caractérisent par une chute de charge mesurable tant la profondeur des fissures est faible.

Afin de pouvoir comparer l'ensemble de ces courbes correspondant à des poutres de géométries différentes, celles-ci sont normalisées en utilisant les équations de la théorie des poutres comme dans le chapitre 3 (Fig. 179). Il faut tout de même garder en tête que cette normalisation n'est pertinente que dans le domaine élastique.

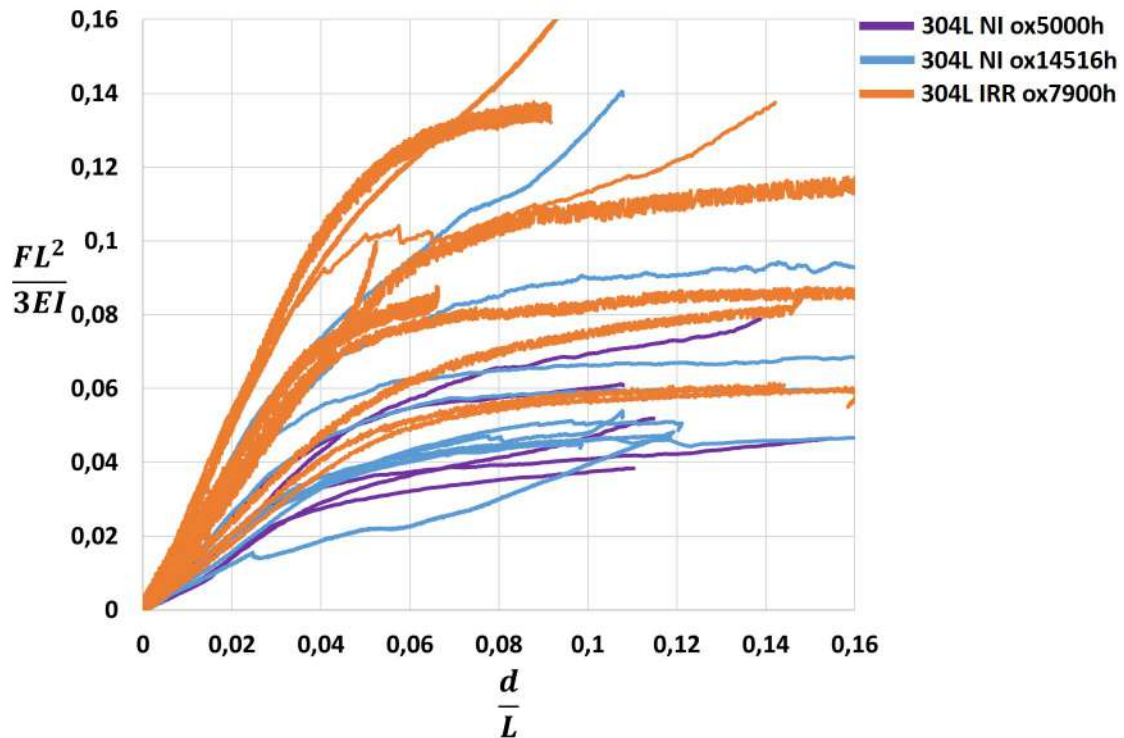


FIGURE 179. – Courbes force - déplacement des essais de flexion sur micro-poutres d'acier 304L non irradié et irradié oxydées en milieu REP, normalisées avec les équations de la théorie des poutres en prenant  $E=200\text{GPa}$

Il reste tout de même une grande dispersion dans les pentes d'élasticité observées. Il peut aussi être noté que les courbes de charge à l'état irradié présentent des niveaux globalement plus élevés que celles à l'état non irradié. Le début de la déformation plastique se fait à un niveau de charge plus élevé à l'état irradié, ce qui peut indiquer un durcissement dû à l'irradiation mais les pentes d'élasticité sont aussi plus élevées.

Contrairement à ce qui a été obtenu sur l'acier  $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$ , il y a de la déformation plastique très notable avant la fissuration - si fissuration il y a. Il peut donc être envisagé de déterminer des limites d'écoulement plastique pour les micro-poutres. La contrainte maximale - au niveau de l'encastrement en peau - est calculée avec l'équation de la théorie des poutres :

$$\sigma_{xx} = \frac{6FL}{bh^2} \quad (60)$$

La cinématique de la théorie des poutres [11] permet également d'estimer la déformation axiale associée :

$$\epsilon_{xx} = \frac{3}{2} \frac{d}{L} \frac{h}{L} \quad (61)$$

Les courbes force - déplacement sont converties en courbes contrainte - déformation à l'aide des formules précédentes. Les limites d'élasticité à 0.2% de déformation plastique sont estimées de la même manière que pour une courbe de traction. Les valeurs obtenues sont rassemblées dans le tableau

61 pour les micro-poutres dont les orientations cristallographiques sont disponibles, et la cission résolue maximale associée est calculée.

	$\sigma_{0.2}$ (MPa)	$\tau_{0.2}$ (MPa)
Poutre1-GV20NI-ox5000h	1294	582
Poutre5-GV20NI-ox5000h	1485	742
Poutre2-GV20NI-ox14516h	1169	561
Poutre4-GV20NI-ox14516h	1495	732
Poutre1-GV20IRR-ox7900	2876	1409
Poutre4-GV20IRR-ox7900	2485	1168
Poutre5-GV20IRR-ox7900	3820	1871

TABLEAU 61. – Limites d'élasticité et cissions résolues critiques évaluées sur les micro-poutres usinées sur l'acier 304L non irradié et irradié 1dpaKP

Afin d'interpréter les valeurs de cission critique obtenue, il est possible de les comparer aux valeurs obtenues sur les micro-piliers. Cependant, il convient de faire attention à l'effet de taille. Il faut donc estimer le volume de matière le plus sollicité lors de l'essai de flexion. Une approximation possible est de considérer que ce volume peut s'apparenter à un cylindre de rayon  $r \sim h/4$  et de longueur  $l$  qui est la largeur de la poutre comme présenté sur le schéma Fig.180.

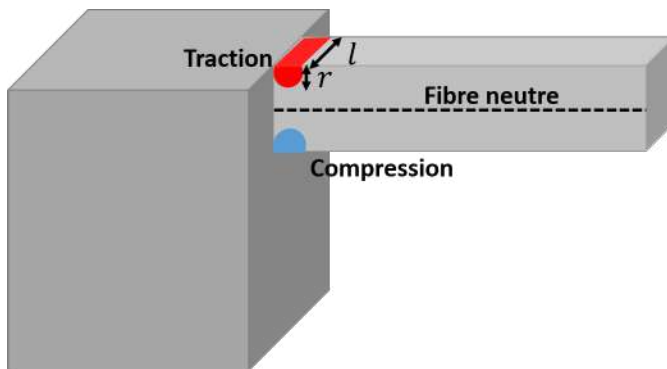


FIGURE 180. – Zone de la micro-poutre la plus sollicitée

	Volume ( $\mu m^3$ )
Poutre1-GV20NI-ox5000h	44
Poutre5-GV20NI-ox5000h	49
Poutre2-GV20NI-ox14516h	10
Poutre4-GV20NI-ox14516h	17
Poutre1-GV20IRR-ox7900	10
Poutre4-GV20IRR-ox7900	16
Poutre5-GV20IRR-ox7900	23

TABLEAU 62. – Volume de la zone la plus sollicitée

Les volumes estimés sont plus globalement plus faibles que le volume typique des piliers de  $3\mu m$  ( $49\mu m^3$ ) qui est le plus petit diamètre testé, ce qui explique les fortes valeurs de cission résolue critique obtenues sur des essais de micro-poutres. Un ratio de l'ordre de 3 entre les valeurs à l'état non irradié et irradié est observé sur les micro-poutres, qui est quant à lui en accord quantitatif avec l'augmentation de la limite d'élasticité macroscopique due à l'irradiation (Tab. 11).

Il n'existe pas de données dans la littérature sur des essais de micro-flexion de 304L avant et après irradiation aux protons. Cependant Armstrong et al. [12] ont réalisé des travaux sur un acier FeCr9% irradié 6.18dpa aux ions  $Fe^+$  et n'ont pas observé d'effet significatif de l'irradiation sur la limite d'élasticité dans les essais de flexion sur micro-poutres triangulaires. Les auteurs attribuent cependant cela à un effet de taille à l'état non irradié - conduisant à une limite d'élasticité plus importante que celle sur un essai macroscopique - qui rendrait difficile la comparaison entre état non irradié et irradié sur ces essais puisque les résultats de nanoindentation montrent une augmentation de dureté post-irradiation. Cependant, Hardi et al. [13] observent bien une augmentation de la limite d'élasticité dans un acier FeCr6% irradié 1.7dpa aux ions  $Fe^+$  et aux neutrons.

Les essais ayant aboutis à une fissuration de l'oxyde de surface et/ou intergranulaire avec un saut de charge pouvant être mesurés sont regroupés dans le tableau 63.



	Localisation fissure	Saut de charge
Poutre4-GV20NI-ox14516h	joint + surface	oui
Poutre7-GV20NI-ox14516h	joint + surface	oui
Poutre10-GV20NI-ox14516h	surface	oui
Poutre5-GV20IRR-ox7900	joint	oui

TABLEAU 63. – Micro-poutres de 304L non irradié et pré-irradié oxydés montrant de la fissuration lors des essais de flexion

Les courbes d'essai correspondantes normalisées par les dimensions en utilisant les équations de la théorie des poutres sont montrées sur la Fig. 181.

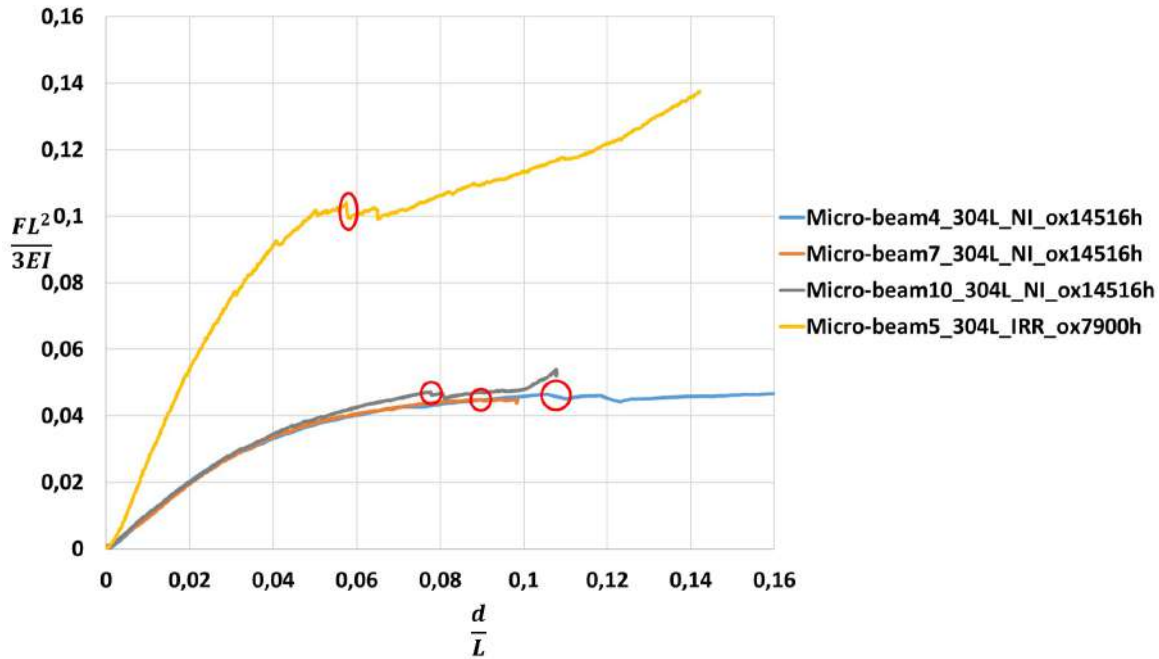


FIGURE 181. – Courbes d'essai de micro-flexion sur micro-poutres d'acier 304L non irradié et irradié oxydé montrant de la fissuration

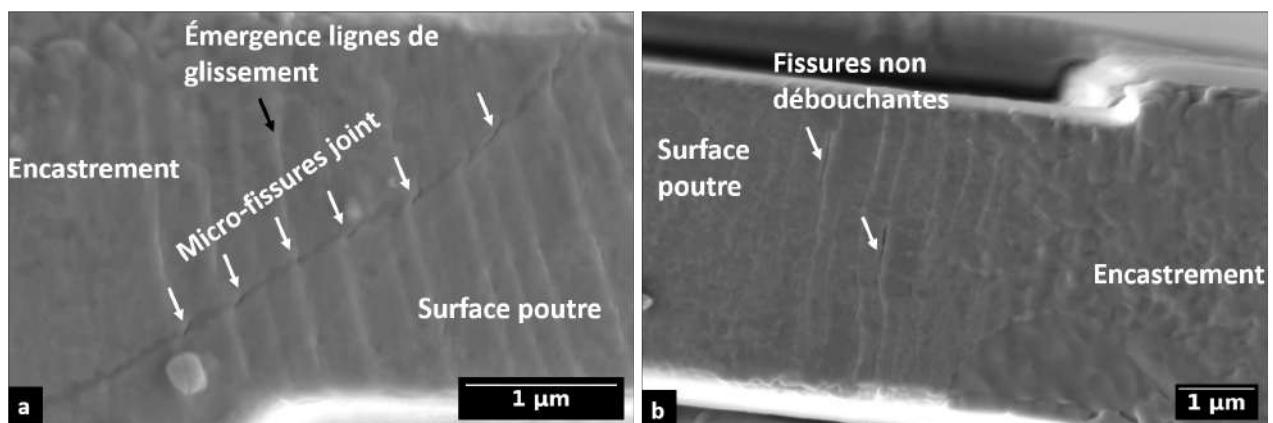


FIGURE 182. – Surface proche de l'encastrement (vue du dessus) après essai de la micro-poutre. a) Micro-fissures multiples au joint et b) fissures de la couche de surface

Cependant parmi les essais qui ont fissuré et dont il peut être possible de mesurer une chute de charge, certains n'ont pas de fissures qui débouchent d'un côté ou l'autre de la poutre (Fig. 182), rendant impossible d'estimer sa profondeur. De plus, la fissure peut être discontinue (Fig. 182a). Cela

rend impossible l'estimation de la surface de fissuration sans expériences de tomographie, qui n'ont pas pu être réalisées dans le temps de cette thèse. Le nombre de poutres utilisables pour estimer les propriétés à rupture de l'acier 304L est donc au final de deux.

### 2.1.3. Détermination de la surface de rupture

En reprenant la méthode 1 de détermination de la surface de rupture utilisée dans le chapitre 3, une estimation est effectuée pour les deux poutres pour lesquelles il est possible d'accéder à une profondeur de fissure (Fig. 183).

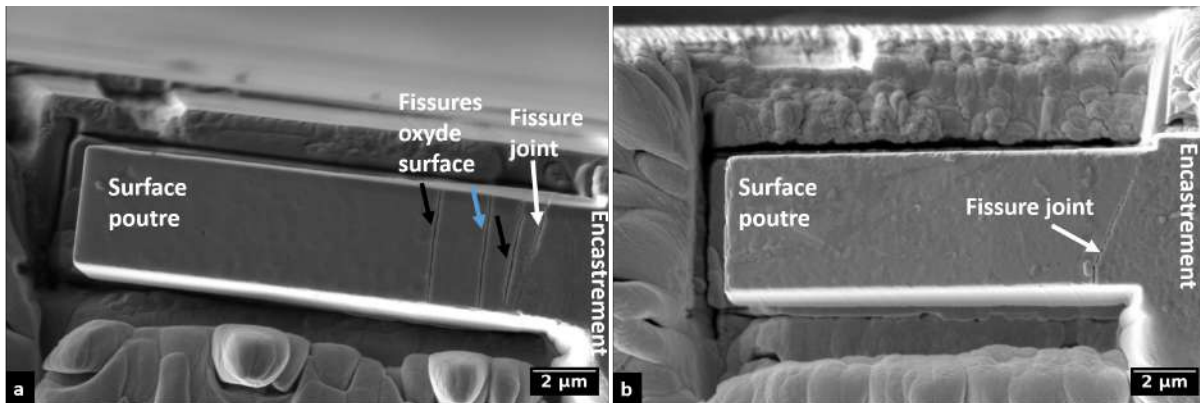


FIGURE 183. – Surface proche de l'encastrement après essai de la micro-poutre a) Poutre4-GV20NI-ox14516h et b) Poutre5-GV20IRR-ox7900h

Lorsque cela est possible, la profondeur de la fissure est mesurée des deux côtés. Dans le cas de la poutre Poutre4-GV20NI-ox14516h, les profondeurs de la fissure marquée d'une flèche bleue sont mesurées de part et d'autre de la poutre. Cette fissure est la première à apparaître lors de la visualisation de l'essai et est associée à la première chute de charge. Cependant pour la Poutre5-GV20IRR-ox7900h, la fissure ne débouche pas de l'autre côté de la poutre donc la profondeur est prise à égale à 0. Dans les deux cas, comme dans le chapitre 3, l'hypothèse d'un front de fissure linéaire est utilisée pour calculer la surface de fissuration. Les surfaces estimées sont rapportées dans le tableau 64.

	Profondeur fissure côté 1 ( $\mu\text{m}$ )	Profondeur fissure côté 2 ( $\mu\text{m}$ )	$S_c$ ( $\mu\text{m}^2$ )
Poutre4-GV20NI-ox14516h	0.2	0.17	0.58
Poutre5-GV20IRR-ox7900h	0.0	0.2	0.36

TABLEAU 64. – Détermination de la surface de rupture

Une analyse plus quantitative de la surface de rupture, non réalisée à ce stade, pourrait être réalisée grâce à la technique de tomographie 3D décrite dans le chapitre 3.

En conclusion, du fait de la très faible oxydation de l'acier 304L même après 15000h en milieu REP, seules deux poutres ont conduit à la fois à une fissuration et à des mesures associées (chute de charge, surface de rupture visible) permettant d'évaluer les propriétés de rupture. Ces deux essais correspondent cependant à l'état non irradié et irradié, ce qui va permettre d'obtenir de premiers éléments qualitatifs sur l'effet de l'irradiation sur ces propriétés de rupture. L'ensemble des paramètres expérimentaux pour ces deux poutres est résumé dans le tableau 65.



	$F_c^1$ ( $\mu\text{N}$ )	$F_c^2$ ( $\mu\text{N}$ )	$\delta_c$ ( $\mu\text{m}$ )	$S_c$ ( $\mu\text{m}^2$ )
Poutre4-GV20NI-ox14516h	1617	1603	0.98	0.58
Poutre5-GV20IRR-ox7900h	2040	2036	1.12	0.36

TABLEAU 65. – Paramètres expérimentaux permettant la détermination des propriétés de rupture pour l'acier 304L non irradié oxydé 14516h et irradié oxydé 7900h

Les autres essais, non utilisés dans la suite, sont néanmoins d'intérêt en ce qui concerne la modélisation du comportement mécanique de l'acier 304 à l'échelle du cristal et en particulier aux effets de taille. Des simulations telles que présentées au chapitre 2 sont envisageables et constituent l'une des perspectives de ces travaux.

## 2.2. Détermination des propriétés de rupture des oxydes

Les deux essais décrits précédemment sont utilisés pour déterminer les propriétés de rupture des oxydes (couche interne) formés sur l'acier 304 en milieu REP.

### 2.2.1. Détermination de l'énergie de rupture

Du fait de l'amorçage de la rupture dans le régime de déformation plastique pour les deux poutres, il n'est plus possible d'utiliser l'équation explicitée au chapitre 3. Une nouvelle estimation de l'énergie de rupture consiste alors à écrire :

$$\gamma_c = \frac{(F_c^1 - F_c^2)\delta_c^p}{2S_c} \quad \text{avec} \quad \delta_c^p = \frac{F_c^1}{k} \quad (62)$$

où  $k$  est la pente initiale de la courbe force - déplacement.

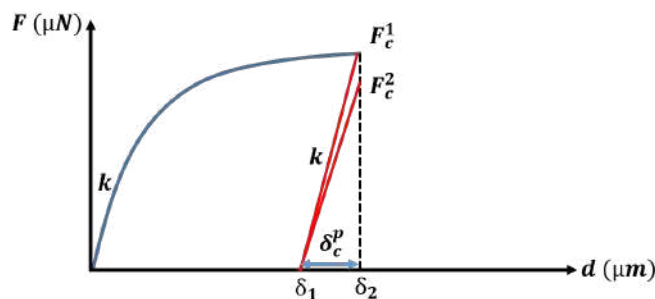


FIGURE 184. – Estimation de l'énergie de rupture dans le régime de déformation plastique

Les valeurs obtenues, indiquées dans le tableau 66, sont similaires à celles déterminées dans le chapitre 3 sur l'alliage modèle austénitique  $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$  d'une part, et avec les résultats de simulations de dynamique moléculaire d'autre part [14]. Cependant au vu de la dispersion dans les valeurs d'énergie comme observé dans le Chapitre 3, la détermination de seulement deux valeurs d'énergie de rupture ici rend difficile de conclure en l'état sur un éventuel effet de l'irradiation sur l'énergie de surface. Ce résultat devra donc être confirmé par d'autres essais.

	$F_c^1$ ( $\mu\text{N}$ )	$F_c^2$ ( $\mu\text{N}$ )	$\delta_c^p$ ( $\mu\text{m}$ )	$S_c$ ( $\mu\text{m}^2$ )	Energie de rupture ( $\text{J}/\text{m}^2$ )
Poutre4-GV20NI-ox14516h	1617	1603	0.58	0.58	6
Poutre5-GV20IRR-ox7900h	2040	2036	0.82	0.36	4

TABLEAU 66. – Détermination de l'énergie de rupture pour l'acier 304L non irradié oxydé 14516h et irradié 1dpaKP oxydé 7900h

Il est à noter que la détermination de la surface à rupture est moins précise - et vraisemblablement sur-estimée - par rapport au chapitre 3, conduisant à une sous-estimation probable de l'énergie de rupture et donc à des valeurs plus proches de celles obtenues dans le chapitre 3. A noter finalement que les oxydes connus pour être formés sur l'alliage 304L en milieu REP ne sont pas exactement les mêmes en termes de composition chimique que ceux sur l'alliage modèle, ce qui impliquerait que la valeur d'énergie de rupture ne montre pas une dépendance significative vis à vis de la chimie de l'oxyde. Cette hypothèse reste à consolider.

### 2.2.2. Détermination de la contrainte à rupture

Comme vu dans la partie expérimentale, la rupture de l'oxyde se produit après une déformation plastique. Cette déformation a lieu au niveau de l'encastrement, qui se trouve être aussi le lieu où les fissures ont été observées. L'utilisation de modèles supposant une déformation élastique, que ce soit pour les équations analytiques ou les simulations numériques, n'est donc en principe pas adaptée. Cependant, les courbes expérimentales montrent que le matériau écrouit globalement peu avant la rupture (Fig.181). En première approximation, on considérera donc que la contrainte du matériau dans la zone plastique évolue peu durant la phase de déformation plastique. Cela permet de se placer en début de déformation plastique - qui correspond à la fin de la phase de déformation élastique - pour déterminer la contrainte critique à partir des équations de la théorie élastique des poutres comme pour le chapitre 3. La contrainte ainsi déterminée pourra être vue comme une valeur minorante de la contrainte réelle appliquée.

#### Estimation analytique

En utilisant l'équation analytique de la théorie des poutres introduite dans le chapitre 3, les contraintes axiales dans l'oxyde en surface de part et d'autre de la poutre sont estimées dans le tableau 67.

	$\sigma_{xx}^{surf}(d_1)$ (MPa)	$\sigma_{xx}^{surf}(d_2)$ (MPa)
Poutre4-GV20NI-ox14516h	1198	1233
Poutre5-GV20IRR-ox7900h	1268	1170

TABLEAU 67. – Contraintes axiales calculées en utilisant la théorie des poutres pour la force pour laquelle l'amorçage se produit sur l'acier 304L non irradié oxydé 14516h et pré-irradié oxydé 7900h

Ces valeurs permettent d'évaluer une contrainte critique de l'ordre de 1.2GPa, qui semble du même ordre de grandeur que celle déterminée pour l'alliage austénitique modèle  $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$  du chapitre 3 mais est sensiblement supérieure. De la même manière que pour l'énergie de rupture, la différence de composition chimique ne conduit pas à des variations marquées de la contrainte critique, de même que l'état du matériau (non irradié / irradié). Cependant avec seulement deux valeurs, il est difficile de conclure sur l'effet de la chimie et de l'irradiation. D'autres essais devront être menés pour une plus grande représentativité statistique.

#### Détermination par simulations aux éléments finis

L'estimation analytique précédente de la contrainte critique est affinée à l'aide de simulations par éléments finis. Le maillage, la loi de comportement ainsi que le chargement et les conditions aux limites présentés dans la section 3.3. du chapitre 3 sont utilisés pour estimer les bornes supérieures de la contrainte à rupture des oxydes présentées dans le tableau 68. Le calcul est effectué pour les cas limités de composition de spinelles rencontrées expérimentalement après l'oxydation de l'acier 304L à haute température.

	Orientation 1	Orientation 2	$\sigma_{xx}^{max}$ (MPa) simulation $FeCr_2O_4$	$\sigma_{xx}^{max}$ (MPa) simulation $NiCr_2O_4$
Poutre4-GV20NI-ox14516h	X[-1 -11 7 ]Y[-5 -6 -10]	X[-11 2 3 ]Y[-3 -1 -2]	1705	1533
Poutre5-GV20IRR-ox7900h	X[-10 -9 6]Y[4 1 9]	X[-3 -11 2]Y[-2 0 -3]	1877	1688

TABLEAU 68. – Contraintes axiales maximales dans l'oxyde calculées en utilisant des simulations éléments finis pour la force pour laquelle l'amorçage se produit sur l'acier 304L non irradié oxydé 14516h et irradié oxydé 7900h

Pour les mêmes raisons que pour certaines poutres du chapitre 3, ces estimations diffèrent sensiblement de celles de la théorie des poutres du fait de la proximité de l'oxyde rompu avec l'encastrement. Cependant ces valeurs sont considérées comme étant plus réalistes puisqu'elles prennent en compte plus de paramètres expérimentaux que l'estimation analytique. Ces contraintes sont du même ordre de grandeur que celles observées dans l'acier  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$  mais du fait de la dispersion des résultats, des essais supplémentaires seront nécessaires pour conclure sur la différence de valeurs entre les deux aciers.

A partir de ces résultats, les propriétés de rupture de l'oxyde constitutif de la couche interne de l'acier 304L non irradié et irradié au protons 1dpaKP oxydés en milieu REP sont rassemblés dans le tableau 69. Pour la contrainte, la valeur minimale pour l'oxyde  $FeCr_2O_4$  est sélectionnée puisque la composition semble être la plus proche de l'oxyde tandis qu'une valeur moyenne est considérée pour la valeur d'énergie à rupture.

Contrainte à rupture $\sigma_c$ (MPa)	Energie à rupture ( $J/m^2$ )
1700	5

TABLEAU 69. – Paramètres de rupture de l'acier 304L non irradié et irradié 1dpaKP oxydé en milieu REP

Les valeurs obtenues d'énergie de rupture et de contrainte critique sont a priori des bornes supérieures des valeurs réelles. De plus, le fait que la rupture se produise dans le régime de déformation plastique de la poutre peut jouer sur détermination de la contrainte critique. Des simulations éléments finis prenant en compte la fissuration à l'aide de zones cohésives ainsi que la plasticité sont mise en œuvre dans le paragraphe suivant pour affiner les valeurs données dans le tableau 69.

### 2.2.3. Simulation de la rupture intergranulaire avec la méthode des zones cohésives

En reprenant le maillage ainsi que le chargement présentés dans la section 3.4 du chapitre 3, deux simulations sont réalisées sur les poutres Poutre4-GV20NI-ox14516h et Poutre5-GV20IRR-ox7900h avec des zones cohésives localisées au centre de l'oxyde et en utilisant les valeurs de paramètres à rupture déterminés précédemment. La loi de comportement pour les simulations avec zone cohésives du Chapitre 3 a été reprise et modifiée pour introduire la déformation plastique dans les cristaux avant la fissuration du joint de grains. Pour cela, la loi de plasticité cristalline présentée au chapitre 2 est utilisée, sans écrouissage. Le seul paramètre additionnel est donc la cission résolue critique  $\tau_0$ . La valeur de ce paramètre, dont une estimation a été obtenue précédemment (Tab. 61), est ajustée, pour chaque simulation, de sorte à reproduire le début de la courbe force - déplacement. La comparaison entre les courbes expérimentales et les résultats de simulations est présentée sur la Fig. 185.

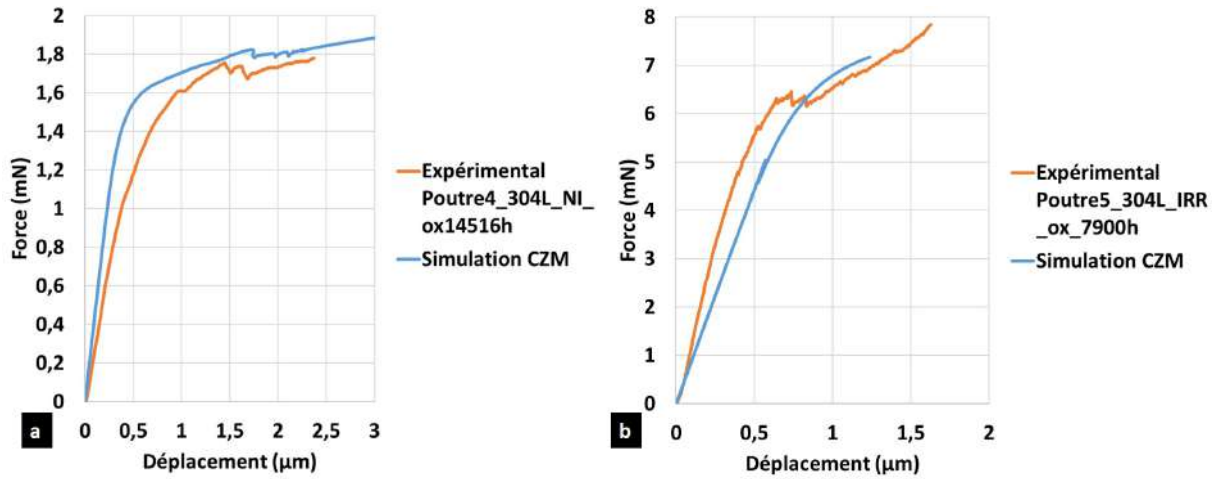


FIGURE 185. – Comparaison entre les simulations éléments finis avec zone cohésives et prise en compte de la plasticité et les données expérimentales pour la a) Poutre4-GV20NI-ox14516h avec  $\tau_0=350$  MPa et b) Poutre5-GV20IRR-ox7900h avec  $\tau_0=900$ MPa

Le résultat de la simulation est en bon accord avec la courbe expérimentale pour la Poutre4-GV20NI-ox14516h en terme de pente élastique et de fissuration - que ce soit pour la force critique, le déplacement à rupture ainsi que le saut de charge associé - mais aussi pour l'écroûissage. A noter que ce dernier provient non pas de l'écroûissage du matériau - qui n'est pas pris en compte dans la simulation - mais de l'augmentation progressive du volume de la zone plastifiée [15]. Cette première simulation permet de valider la pertinence des paramètres du tableau 69 pour la rupture des oxydes à l'état non irradié.

Les résultats de simulations pour la Poutre5-GV20IRR-ox7900h présentent aussi un bon accord avec la courbe expérimentale sur la pente élastique. Avec une valeur de contrainte  $\sigma_c=1700$ MPa, la fissuration avec chute de charge se produit en déformation élastique dans la simulation tandis que la chute de charge expérimentale se produit en déformation plastique. Cependant, la chute de charge sur la courbe de simulation est en accord avec un décrochage de la courbe expérimentale pour le même niveau de charge. Cela pourrait suggérer qu'expérimentalement, il y a eu amorçage de la fissure qui ne s'est entièrement propagée qu'après déformation plastique tandis que dans la simulation, la fissure amorcée est propagée quasi-instantanément en déformation élastique. Les paramètres du tableau 69 peuvent donc être considérés pertinents pour prédire la rupture des oxydes sur le matériau irradié.

Les paramètres à rupture finaux sont reportés dans le tableau 70.

Contrainte à rupture $\sigma_c$ (MPa)	Energie à rupture ( $J/m^2$ )
1700	5

TABLEAU 70. – Paramètres de rupture de l'acier 304L non irradié oxydé 14516h et irradié oxydé 7900h

### 2.3. Comparaison des propriétés de rupture entre l'acier 304L et $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$

Les essais de traction lente type SSRT ont permis de montrer que l'acier 304L à l'état non irradié montre une sensibilité à la fissuration intergranulaire beaucoup plus faible que l'acier austénitique modèle  $FeCr_{12}Ni_{26}Si_3$ . Cependant, à l'état irradié, la sensibilité de l'acier 304L apparaît similaire en termes de densité de fissures. Au niveau du comportement en oxydation, l'acier modèle après seulement 3680h d'oxydation en milieu REP présente des cristallites de taille micro-métriques ainsi qu'une couche d'oxyde continue épaisse de  $\sim 100$ nm et une pénétration d'oxyde intergranulaire de  $\sim 1\mu m$ . En comparaison, après 14516h d'oxydation à l'état non irradié et 7900h après irradiation, l'acier 304L présente des cristallites et une couche d'oxyde continue ainsi que la profondeur d'oxyde intergranulaire qui atteignent difficilement  $\sim 100$ nm. La différence très marquée du comportement en oxydation entre le 304L irradié et l'acier modèle est contre-intuitive car, comme rappelé précédemment, la sensibilité à la fissuration intergranulaire telle que mesurée lors d'un essai de traction lente est assez similaire.

Cependant, les oxydes des deux alliages ne sont pas similaires car l'acier  $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$  présentent des cristallites et une couche interne à la chimie plutôt complexe alors que l'acier 304L est connu pour former un oxyde spinelle  $(\text{Fe,Ni})\text{Cr}_2\text{O}_4$ . Cependant ces différences de chimie ne semblent pas influencer, aux incertitudes de mesures près, sur les valeurs des énergies de rupture, de l'ordre de  $[5 - 10]\text{J.m}^{-2}$ . En revanche, les valeurs de contraintes critiques, malgré le faible nombre d'essais sur l'acier 304L, semblent différentes entre les deux matériaux. En effet, la contrainte critique pour l'acier 304L ( $\sigma_c=1700\text{MPa}$ ) est quasiment deux fois plus élevée que celle de l'acier  $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$  ( $919\text{MPa}$ ). Cela implique que non seulement l'acier 304L est plus difficile à oxyder, il y a donc peu de pénétration d'oxyde, mais aussi que les oxydes formés nécessitent plus de contraintes pour rompre.

En conclusion, l'ensemble des propriétés de corrosion et de rupture intergranulaire des aciers de l'étude sont résumées dans le tableau 71.

Acier	Dureté HV	Densité de fissures ( $\text{mm}^{-2}$ )	Oxydes	Contrainte à rupture $\sigma_c$ (MPa)	Energie à rupture ( $\text{J/m}^2$ )
$\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$	340	344	$(\text{Ni}_{0.7}\text{Si}_{0.5}\text{Ca}_{0.2}\text{Zn}_{0.2})(\text{FeCr})\text{O}_4$	900	12
304L non irradié	$188 \pm 11$	-	$(\text{FeNi})\text{Cr}_2\text{O}_4$ [5]	1700	5
304L 1dpa KP	$318 \pm 15$	316			

TABLEAU 71. – Comparaison des comportements en corrosion et rupture intergranulaire de l'acier  $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$  et 304L à différents états d'irradiation et d'oxydation

### 3. Conclusions et perspectives

Le protocole d'étude de la fissuration intergranulaire des aciers austénitiques en milieu REP mis en place dans le chapitre 3 grâce à l'alliage modèle  $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$  a été appliqué dans ce chapitre à un matériau d'intérêt industriel : l'acier 304L constitutif des internes de cuve REP. Cet alliage a déjà fait l'objet d'études dans les thèses de Gupta [5] et Paccou [16] montrant notamment sa sensibilité à la fissuration intergranulaire en milieu REP notamment à l'état irradié.

Dans cette étude, l'acier a été oxydé 5000h et 14516h à l'état non irradié et 7900h à l'état irradié en milieu REP. La littérature indique que les oxydes formés sur l'acier 304L à haute température consistent en une couche duplex avec des cristallites en surface de composition  $\text{Fe}_2\text{O}_3, \text{Fe}_3\text{O}_4$  ou encore  $(\text{Ni,Fe})\text{Fe}_2\text{O}_4$  et une couche continue de type  $(\text{Fe,Ni})\text{Cr}_2\text{O}_4$ . Il n'y a pas d'observations de changement de la nature de l'oxyde suite à l'irradiation. La couche d'oxyde interne formée est de taille nanométrique quels que soient l'état d'irradiation et la durée d'oxydation, l'échantillon non irradié oxydé 14516h présentant l'épaisseur d'oxyde la plus importante. La très faible épaisseur de couche d'oxyde interne, et a fortiori de profondeurs de pénétrations d'oxydes intergranulaires, a amené à modifier le protocole d'étude en localisant les poutres au niveau des lieux où la couche d'oxyde interne présentait une épaisseur plus importante. Ceci permet de déterminer les paramètres de rupture de la couche d'oxyde interne dont la composition chimique et la structure est supposée similaire aux oxydes intergranulaires. Même avec cette stratégie, seules deux poutres (sur un total de 25 poutres testées) ont conduit à une fissuration analysable pour quantifier l'énergie et la contrainte de rupture. A noter cependant que les autres résultats pourront servir à calibrer des lois de comportement plastique prenant en compte les effets de taille. Une valeur d'énergie à rupture de  $5 \text{ J/m}^2$  et une contrainte à rupture de  $1.7\text{GPa}$  ont pu être estimées. Ces valeurs de même ordre de grandeur que celles déterminées sur l'acier austénitique modèle  $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$  du chapitre 3, notamment pour l'énergie de rupture. Une différence plus notable est observée pour la contrainte critique. En dehors de cela, les deux alliages à l'état non irradié ne montrent pas la même sensibilité à la fissuration intergranulaire car comme vu dans le chapitre 3, l'acier  $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$  montrait une forte oxydation, surtout au niveau des joints de grains, après seulement 3680h en milieu REP à l'état non irradié et une fissuration intergranulaire bien plus importante.

Devant la difficulté d'observer une oxydation intergranulaire assez importante pour effectuer des essais

de micro-flexion avec rupture du joint de grains sur l'acier 304L, différentes perspectives sont envisageables. La première consiste à allonger la durée de l'oxydation et / ou augmenter la dose d'irradiation. Cependant, l'oxydation ayant été portée jusqu'à 14516h, augmenter celle-ci de manière significative apparaît comme une étude au long cours. La deuxième perspective envisageable repose sur le fait que la fissuration par IGSCC fait appel à une synergie entre plusieurs facteurs. Les essais ont été réalisés ici à température ambiante à l'air alors qu'il faudrait être à environ 350°C dans un milieu aqueux. La prochaine étape pourrait être d'oxyder des échantillons sous contraintes pour évaluer l'effet sur la comportement en corrosion. Ensuite, il pourrait être envisager des essais de micro-flexion à haute température. Ce type d'essai étant clairement un défi.





# Bibliographie

- [1] D. Liang, J. Hure, A. Courcelle, S. El Shawish, and B. Tanguy. A micromechanical analysis of intergranular stress corrosion cracking of an irradiated austenitic stainless steel. Acta Materialia, 204, 2020.
- [2] Z. Jiao and G. S. Was. Impact of localized deformation on IASCC in austenitic stainless steels. Journal of Nuclear Materials, 408(3) :246 – 256, 2011.
- [3] J. T. Busby, M. C. Hash, and G. S. Was. The relationship between hardness and yield stress in irradiated austenitic and ferritic steels. Journal of Nuclear Materials, 336(2-3) :267–278, 2005.
- [4] S. E. Ziemniak, M. Hanson, and P. C. Sander. Electropolishing effects on corrosion behavior of 304 stainless steel in high temperature, hydrogenated water. Corrosion Science, 50(9) :2465–2477, 2008.
- [5] J. Gupta. Intergranular stress corrosion cracking of ion irradiated 304L stainless steel in PWR environnement. PhD thesis, Université Toulouse 3 - Paul Sabatier, 2016.
- [6] S. Cissé. Influence de la localisation de la déformation plastique sur la Corrosion sous Contrainte des aciers inoxydables. Application à l'IASCC des internes de cuve. PhD thesis, 2012.
- [7] S. Wang, Y. Hu, K. Fang, W. Zhang, and X. Wang. Effect of surface machining on the corrosion behaviour of 316 austenitic stainless steel in simulated PWR water. Corrosion Science, 126 :104–120, 2017.
- [8] R. Soulas, M. Cheynet, E. Rauch, T. Neisius, L. Legras, C. Domain, and Y. Breché. TEM investigations of the oxide layers formed on a 316L alloy in simulated PWR environment. Journal of Materials Science, 48(7) :2861–2871, 2013.
- [9] P. Deng, Q. Peng, E.-H. Han, W. Ke, C. Sun, and Z. Jiao. Effect of irradiation on corrosion of 304 nuclear grade stainless steel in simulated PWR primary water. Corrosion Science, 127 :91–100, 2017.
- [10] M. Boisson, L. Legras, E. Andrieu, and L. Laffont. Role of irradiation and irradiation defects on the oxidation first stages of a 316L austenitic stainless steel. Corrosion Science, 161, 2019.
- [11] S. P. Timoshenko. On the correction for shear of the differential equation for transverse vibrations of prismatic bars. The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science, 41(245) :744–746, 1921.
- [12] D. E. J. Armstrong, C. D. Hardie, J. S. K. L. Gibson, A. J. Bushby, P. D. Edmondson, and S. G. Roberts. Small-scale characterisation of irradiated nuclear materials : Part II nanoindentation and micro-cantilever testing of ion irradiated nuclear materials. Journal of Nuclear Materials, 462 :374–381, 2015.
- [13] C.D. Hardie, G.R. Odette, Y. Wu, S. Akhmadaliev, and S.G Roberts. Mechanical properties and plasticity size effect of Fe-6% cr irradiated by Fe ions and by neutrons. Journal of Nuclear Materials, 482 :236–247, 2016.
- [14] L. Van Brutzel. Calcul des propriétés mécaniques des spinelles de corrosion. Private communication, 2021.

- [15] J. Ast, M. N. Polyakov, G. Mohanty, J. Michler, and X. Maeder. Interplay of stresses, plasticity at crack tips and small sample dimensions revealed by in-situ microcantilever tests in tungsten. Materials Science and Engineering : A, 710 :400–412, 2018.
- [16] E. Paccou. Etude de l'évolution des propriétés mécaniques et de la sensibilité à la fissuration intergranulaire en fonction de la microstructure d'irradiation d'un acier irradié aux ions lourds. PhD thesis, Université Toulouse 3 - Paul Sabatier, 2019.

**Conclusion et perspectives**

**Conclusions et perspectives**



## Conclusion générale

Ces travaux de thèse s'inscrivent dans la modélisation micro-mécanique de l'amorçage de la fissuration intergranulaire par le phénomène d'IASCC. Ce phénomène résultant d'une synergie complexe entre la sensibilité du matériau à la corrosion, le milieu REP, l'irradiation et le chargement mécanique, il a été choisi de s'intéresser en première approche à une situation moins complexe : la fissuration intergranulaire des aciers inoxydables austénitiques (pré-irradié ou non) pré-oxydés en milieu REP. La revue de la littérature a montré que la modélisation de ce phénomène nécessite d'une part d'obtenir des données expérimentales sur le comportement à l'échelle intragranulaire des aciers inoxydables austénitiques et d'autre part des valeurs des paramètres de rupture des oxydes intergranulaires formés en milieu REP. Ces données sont très parcellaires, voire absentes dans la littérature à jour, qui a motivé les travaux expérimentaux menés dans cette thèse.

Afin de déterminer le comportement mécanique intragranulaire d'un acier 304L non irradié et irradié 1dpaKP, des essais de compression de micro-piliers allant de 3 à 10 $\mu\text{m}$  de diamètre ont été réalisés *in-situ* MEB à température ambiante. Une étude de sensibilité des paramètres expérimentaux a permis d'évaluer l'impact de paramètres géométriques ainsi que du frottement et de l'alignement de l'indenteur sur les résultats de ce type d'essais. A l'état non irradié, l'effet de taille a été quantifié : plus le diamètre du pilier augmente, plus la cission résolue critique diminue. Ce n'est qu'à partir des piliers de 10 $\mu\text{m}$  que cet effet disparaît. En de dessous de cette taille la limite d'élasticité dépendra donc de la taille du pilier. En plus de cet effet de taille, un effet stochastique a aussi été quantifié aboutissant à une dispersion des résultats d'autant plus importante que le diamètre du pilier est faible. A l'état irradié, les effets de taille et stochastiques sont grandement atténués, ce qui est attribué à la diminution de la taille caractéristique associée à la microstructure. Les piliers de 3 et 5 $\mu\text{m}$  irradiés présentent des cissions résolues critiques et des dispersions similaires. Des simulations éléments finis basées sur une loi de plasticité cristalline à bases physiques et une modélisation explicite du caractère stochastique de la nucléation des dislocations dans les plans de glissement ont été mises en place et permettent de reproduire qualitativement les résultats expérimentaux.

Afin d'évaluer les propriétés de rupture des oxydes intergranulaires formés en milieu REP sur les aciers inoxydables austénitiques, des essais de flexion de micro-poutres bi-cristallines ont été mis en place sur un acier austénitique modèle FeCr<sub>12</sub>Ni<sub>26</sub>Si<sub>3</sub> oxydé en milieu REP. Une étude paramétrique a aussi été réalisée pour déterminer l'impact de différents paramètres expérimentaux afin de pouvoir choisir des conditions expérimentales optimales. La composition chimique de l'acier sélectionné est représentative de celle des joints de grains des aciers 304 / 316 après irradiation. La plupart des essais ont conduit à la fissuration fragile des oxydes intergranulaires. L'analyse des essais, couplant approche analytique et simulations éléments finis, ont permis d'évaluer l'énergie à rupture et la contrainte à rupture des joint de grains oxydés à savoir une contrainte à rupture de l'ordre de 900MPa ainsi que qu'une énergie de rupture de l'ordre de 12J/m<sup>-2</sup>. Le caractère prédictif de ces paramètres sur l'amorçage de la fissuration a été vérifié par des simulations numériques avec zones cohésives qui permettent de retrouver les courbes force - déplacement expérimentales.

Ce protocole d'étude a été mis en œuvre sur l'acier 304L non irradié et irradié 1dpaKP oxydé en milieu REP. L'oxydation conduit à des pénétrations intergranulaires beaucoup plus faibles que pour l'acier modèle, et ce même pour des durées allant jusqu'à 15000h. Pour cet alliage, deux essais ayant conduit à une fissuration d'oxydes ont permis d'évaluer une contrainte à rupture de l'ordre de 1.7GPa et une énergie à rupture de l'ordre de 5J/m<sup>-2</sup>. Ces paramètres ont permis de prédire de manière quantitative les courbes force - déplacement dans des simulations numériques avec zones cohésives.

Les résultats des essais micro-mécaniques réalisés dans cette thèse ont donc permis de fournir des données quantitatives sur le comportement mécanique intragranulaire et les propriétés à rupture des joints de grains des aciers inoxydables austénitiques qui sont des briques nécessaires à la modélisation de l'amorçage de la fissuration intergranulaire des aciers oxydés en milieu REP.

---

## Perspectives

Dans cette partie seront présentées des propositions pour utiliser les données et outils développés dans cette thèse ainsi que des futurs essais à conduire.

Pour poursuivre cette étude, la prochaine étape est la modélisation quantitative de la fissuration intergranulaire des aciers austénitiques (irradiés ou non) pré-oxydés en milieu REP. Des pistes de futures investigations pour fournir les données manquantes et une proposition de méthodologie pour atteindre cet objectif sont donc présentées dans un premier temps.

La suite de ces travaux à plus long terme serait de mettre en place la modélisation quantitative de l'amorçage de la fissuration intergranulaire par l'IASCC. Des pistes de recherche sont donc également proposées dans la suite pour avancer vers cet objectif.

### Vers la modélisation quantitative de la fissuration intergranulaire des aciers austénitiques pré-oxydés en milieu REP

#### Du bicristal au polycristal

Des études à l'échelle du polycristal ont déjà été menées pour tenter de prédire l'amorçage de la fissuration intergranulaire, par exemple dans [1]. Cependant ces études postulent des propriétés de rupture afin de retrouver la fissuration observée expérimentalement, et non obtenues de manière séparée. Ces propriétés ayant été obtenues dans cette thèse, la première perspective serait donc de vérifier s'ils permettent de prédire de manière quantitative à la fois la contrainte d'amorçage et la localisation des fissures sur un matériau polycristallin et à la température d'intérêt du point de vue des applications.

Pour ce faire, il est possible de s'appuyer sur un protocole expérimental déjà mis en place (voir annexe VI) et qui sera à poursuivre. Une éprouvette de traction en  $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$  a été mise en oxydation statique en milieu REP simulé pour une durée d'oxydation de 3347h. Suite à cette oxydation, un essai de traction en température *in-situ* MEB est mis en œuvre (voir annexe VI).

Dans de futurs travaux, la microstructure expérimentale issue de la cartographie EBSD de ce protocole peut être utilisée comme donnée d'entrée d'une simulation par éléments finis qui inclura à la fois une loi de comportement de plasticité cristalline telle que présentée dans le chapitre 2, et aussi et surtout des zones cohésives au niveau des joints de grains avec les propriétés de rupture déterminées au chapitre 3. La comparaison quantitative entre la fissuration obtenue numériquement et celle observée expérimentalement constitue un jalon important vers l'objectif de modélisation quantitative de la fissuration intergranulaire des aciers austénitiques pré-oxydés en milieu REP.

#### De 20°C à 340°C

Les simulations proposées dans le paragraphe précédent se basent sur l'hypothèse que les propriétés de rupture des oxydes intergranulaires ne dépendent pas - ou peu - de la température. Il n'y a pas de données sur les propriétés de rupture des oxydes intergranulaires formés en milieu REP sur les aciers inoxydables austénitiques à haute température. Les propriétés de rupture ont été obtenues dans cette thèse à température ambiante. La prochaine étape serait donc de réaliser ces essais micro-mécaniques à haute température. Des essais de flexion de micro-poutres en température ont été réalisés dans la littérature pour déterminer les paramètres de rupture, surtout dans des échantillons en Silicium entre 300 et 770 °C [2, 3, 4], mais aussi dans des couches minces [5]. Le faible nombre de données pour ces essais - et l'absence pour le cas d'intérêt - peut s'expliquer par un nombre de défis technique à relever [6].

#### Cinétique d'oxydation

Les résultats présentés aux chapitres 3 et 4 montrent le rôle capital de l'oxydation intergranulaire dans la fragilisation des joints de grain, et en particulier la profondeur des pénétrations intergranulaires.

A ce titre, une cinétique d'oxydation est nécessaire pour prendre en compte l'évolution de la résistance du joint de grains en fonction du temps. Les travaux de Couvant et al. [7, 8] ont déjà entamé ce travail en ajoutant une loi cinétique d'oxydation à leur simulations. Afin d'aller plus loin, une perspective serait de réaliser plusieurs essais d'oxydation à différentes durées puis en mesurant les dimensions des oxydes formés, calibrer une loi de cinétique d'oxydation pour le matériau modèle. Cependant cette cinétique d'oxydation est dépendante de plusieurs facteurs dont la température mais aussi dans le cas ici des contraintes dans le matériau (Fig. 186). En effet, la forte sensibilité à la fissuration intergranulaire de l'acier 304L évaluée lors de l'essai SSRT associée à la faible oxydation intergranulaire observée lors des essais d'oxydation pose la question de l'effet de la contrainte sur l'oxydation. Une perspective importante semble donc d'obtenir des lois de cinétiques d'oxydation intergranulaire en fonction du niveau de contrainte appliquée et de la température.

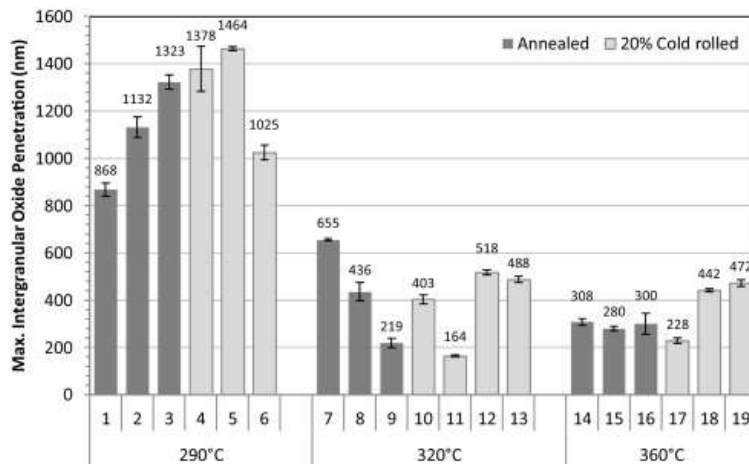


FIGURE 186. – Oxydation intergranulaire en fonction de la température et de l'état métallurgique [9]

### Relation entre la nature de l'oxyde et les propriétés de rupture

Les propriétés de rupture des oxydes formés sur les aciers austénitiques en milieu REP sont des données essentielles en entrée du modèle d'amorçage de la fissuration des joint de grains oxydés. Il y a peu d'études disponibles sur les propriétés mécaniques des oxydes formés sur les aciers austénitiques en milieu REP [10] et encore moins sur leurs propriétés de rupture, ce à quoi ces travaux de thèse ont permis de contribuer. Il apparaît également nécessaire de savoir à quel point la composition chimique et la structure - incluant les défauts - des oxydes influencent les propriétés à rupture de ces derniers, ce qui permettrait de savoir s'il est légitime d'utiliser des propriétés obtenues sur un type d'oxyde pour une autre application. Il faudrait dans ce cas pouvoir identifier la composition et structure des différents oxydes au MET puis tester leur propriétés de rupture, avec par exemple des essais de flexion de micro-poutre. Un grand nombre d'essais doit être réalisé pour chaque type d'oxyde afin que les résultats soient représentatifs. La base de données ainsi créée par les résultats des analyses MET et des essais mécaniques pourrait permettre de relier les propriétés de rupture des oxydes avec leur composition et structure. Une question particulièrement d'intérêt est de faire le lien entre ces résultats expérimentaux et les simulations de dynamique moléculaire, ces dernières donnant les valeurs d'énergie de surface trop faibles et des contraintes de rupture beaucoup trop fortes.

### Aspects statistiques

Différents types de joints de grains ont été testés lors des essais de flexion de micro-poutres. Ces joints présentaient différents degrés d'oxydation (Fig.187), ce qui est en accord avec les résultats de la littérature qui montrent un effet de la nature du joint de grains sur l'oxydation. Cette différence de comportement d'oxydation entre joints de grains doit être d'une part comprise, et d'autre part prise en compte dans les simulations et modélisations. Il n'y a cependant pas d'étude à ce sujet pour l'instant sur les matériaux d'intérêt de notre problématique. Une perspective importante est donc d'obtenir une base de données fournissant la profondeur de l'oxydation intergranulaire en fonction de la nature du joint de grains.



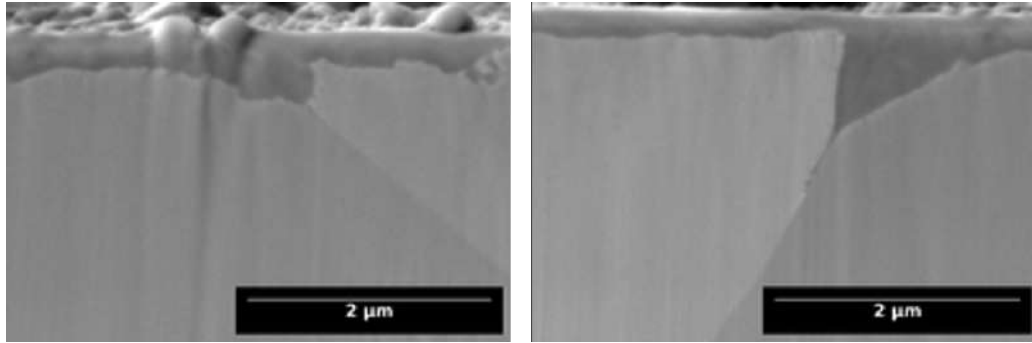


FIGURE 187. – Différentes pénétrations d'oxyde intergranulaire dans l'échantillon de  $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$  oxydé 7470h en milieu REP

### Effet de la localisation de la déformation

Les aciers inoxydables austénitiques présentent une évolution de leurs mécanismes de déformation plastique intragranulaire avec l'irradiation. A l'état non irradié, la déformation est très homogène avec un grand nombre de bandes de glissements alors qu'elle devient hétérogène avec quelques bandes de localisation à l'échelle du grain à l'état irradié [11] (Fig.188a). Peu de travaux numériques prennent en compte cette localisation dans la modélisation de l'amorçage de la fissuration (Fig.188b). Cette démarche a notamment été mise en œuvre par Sauzay et al. [12], mais en considérant une situation modèle. L'effet de la localisation de la déformation pourrait être étudiée en réalisant des simulations sur agrégats polycristallins qui intègrent des bandes de localisation de la déformation, de la même manière que ce qui a été présenté au chapitre 2. La même loi de plasticité cristalline stochastique pourrait être utilisée, de même que la présence de zones cohésives au niveau des joints de grains. Ces simulations représentent un réel challenge d'un point de vue numérique, mais elles apparaissent comme un moyen de progresser vers la compréhension des différents types de rupture observés expérimentalement (Fig.188).

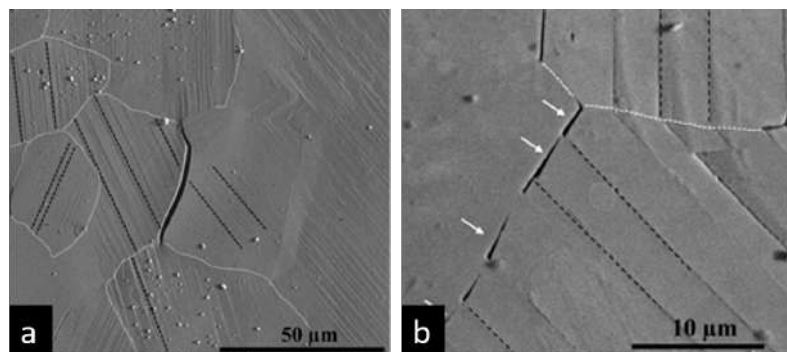


FIGURE 188. – Différents types de fissures observées expérimentalement. a) Déformation homogène et rupture complète du joint de grains et b) déformation hétérogène et fissure partielle

### Vers la modélisation quantitative de l'IASCC

Afin de pouvoir étendre les travaux précédents à la modélisation de l'amorçage de la fissuration intergranulaire par IASCC dans les aciers austénitiques en milieu REP, plusieurs paramètres et données expérimentales supplémentaires restent à déterminer en plus de ceux déjà présentés précédemment. Il s'agit principalement de déterminer l'effet de l'irradiation sur le comportement en déformation plastique du matériau ainsi que sur les oxydes formés et donc leurs propriétés à rupture.

### Couplage entre sollicitation mécanique et irradiation

Il reste des paramètres de la loi de plasticité cristalline à déterminer à l'état irradié. Une première étude a déjà été menée dans la thèse de Han [13] sur les aciers austénitiques pour déterminer ces paramètres de la loi de comportement à l'état irradié à partir d'essais sur polycristaux. Une perspective

---

importante est de calibrer / valider cette loi à l'échelle du monocristal. Pour cela, une optimisation inverse des paramètres pour obtenir une correspondance quantitative entre les courbes expérimentales des essais de compression de micro-piliers irradiés et les courbes de simulations peut être réalisée. A noter que cette optimisation doit être réalisée à température ambiante avant bien sûr d'être répétée à haute température lorsque des essais seront disponibles.

### **Couplage entre oxydation et irradiation**

L'effet de l'irradiation sur les oxydes formés et donc leurs propriétés à rupture reste à une question ouverte. Les essais d'oxydation sur des échantillons pré-irradiés ne font pas état d'une différence de composition ou de structure cristalline mais plutôt de cinétique d'oxydation et de défauts dans l'oxyde. Ainsi Deng et al. [14] et Gupta [15] observent des couches d'oxyde de taille plus importante à l'état irradié par rapport à l'état non irradié. Pour contribuer à la résolution de cette question, il faudrait effectuer des essais d'oxydation dans les mêmes conditions sur des échantillons irradiés à différentes doses et observer la cinétique d'oxydation pour aboutir à un modèle cinétique en fonction de l'irradiation. Des analyses MET des oxydes en fonction de leur dose d'irradiation viendront compléter l'étude du couplage entre oxydation et irradiation.



**Conclusion et perspectives**

**Annexes**



Le dispositif d'essai est présenté sur la Fig. 189.

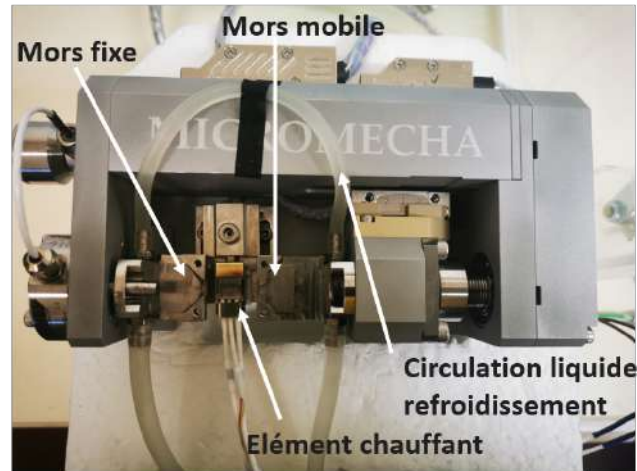


FIGURE 189. – Dispositif de micro-traction *in-situ* MEB

Le chauffage est appliqué par un élément chauffant au contact de la partie inférieure de l'éprouvette. Le gradient thermique dans l'épaisseur a été évalué -  $\Delta T=15^{\circ}\text{C}$  - et l'essai est réalisé pour une température visée de  $300^{\circ}\text{C}$  en surface. Un déplacement de  $0.1\mu\text{m/s}^{-1}$  est appliqué jusqu'à une déformation plastique de 4% afin de d'assurer l'observation de fissures intergranulaires. La Fig. 190 présente la courbe de traction obtenue, similaire à celles présentées dans le chapitre 3. Un premier essai avait été mené jusqu'à 0.5% de déformation plastique mais la fissuration observée était trop faible d'où le choix d'aller jusqu'à 4%.

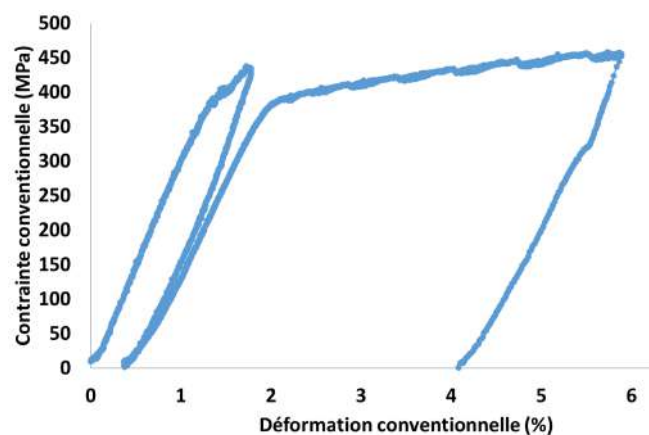


FIGURE 190. – Courbe de traction *in-situ* MEB à  $300^{\circ}\text{C}$  de l'éprouvette pré-oxydée de  $\text{FeCr}_{12}\text{Ni}_{26}\text{Si}_3$

Une zone de  $500\times 500\mu\text{m}^2$  repérée par neuf indents (Fig 191a) est cartographiée en imagerie secondaire au détecteur ICE sur un MEB JEOL IT3000 afin de repérer les fissures intergranulaires.

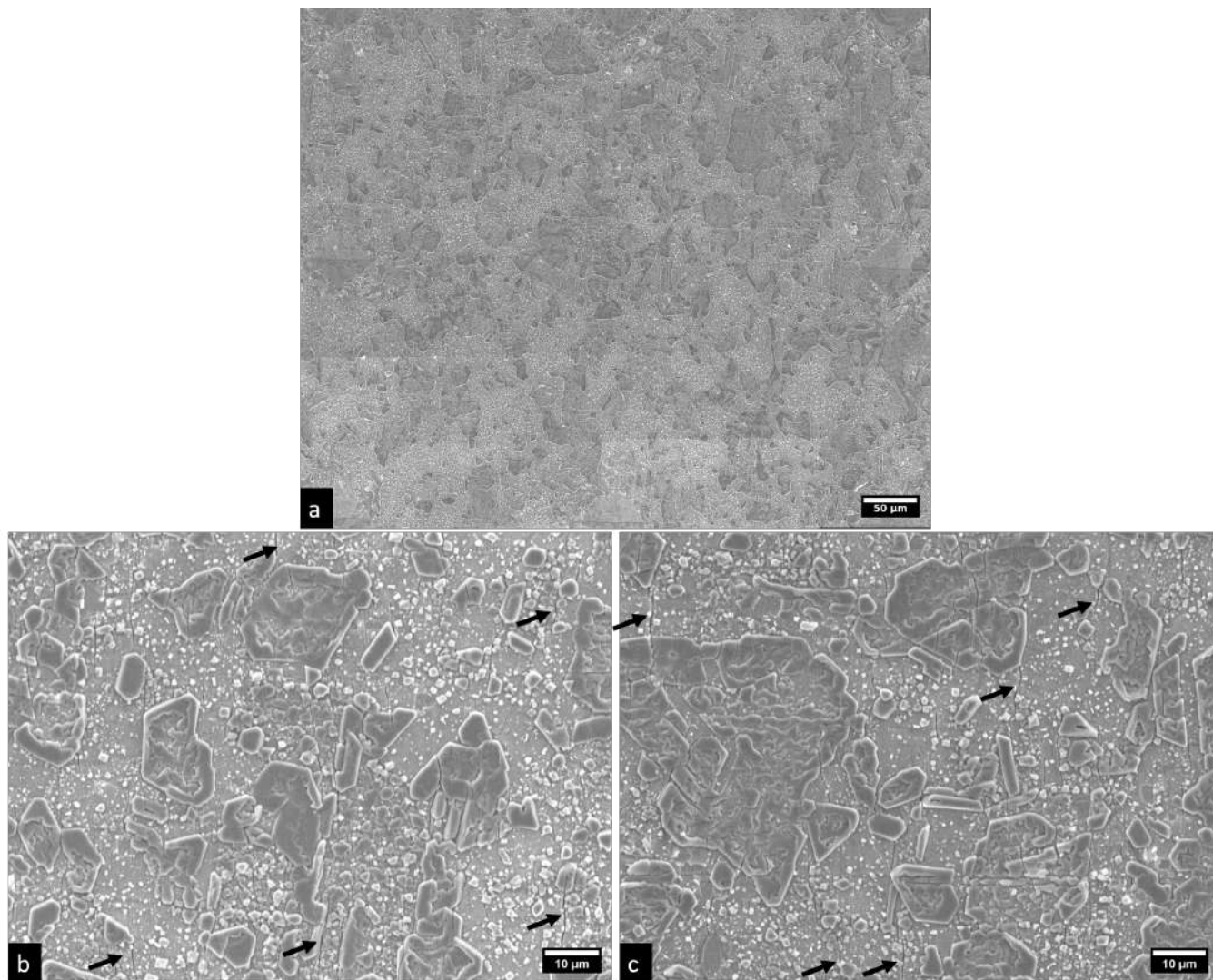


FIGURE 191. – Observation MEB de la surface de l'éprouvette après déformation jusqu'à 4% de déformation plastique à 300°C. Les flèches indiquent les fissures

Un certain nombre de fissures sont observées sur l'échantillon (Fig 191b et c). La densité de fissures semble du même ordre de grandeur que celle observée dans l'éprouvette après l'essai SSRT.

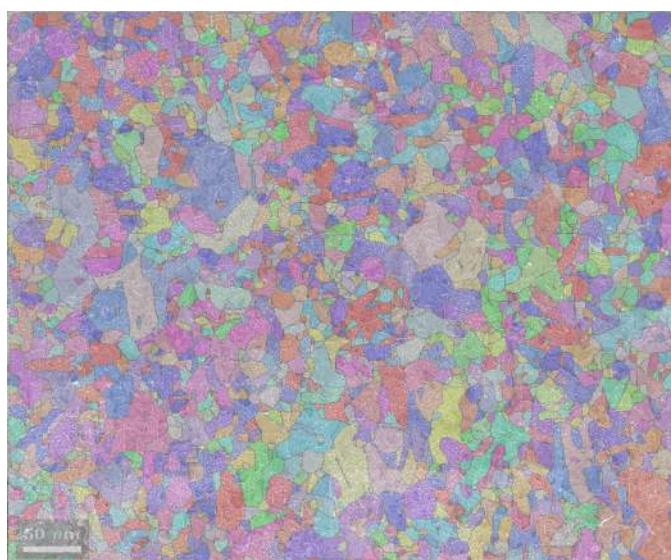


FIGURE 192. – Superposition de la cartographie de fissure en imagerie avec la cartographie EBSD



---

Un polissage avec une solution de suspension diamanté de  $1/4\mu\text{m}$  est utilisé pour enlever la couche d'oxydes de surface et permettre d'effectuer une cartographie EBSD. La superposition des deux cartographies - secondaire et EBSD - montrée sur la Fig. 192 permet de déterminer la nature des fissures, et notamment le caractère intergranulaire.



# Bibliographie

- [1] D Liang, J Hure, A Courcelle, S El Shawish, and B Tanguy. A micromechanical analysis of intergranular stress corrosion cracking of an irradiated austenitic stainless steel. Acta Materialia, 204, 2020.
- [2] E. D. Hintsala, S.t Bhowmick, X. Yueyue, R. Ballarini, S.A. S. Asif, and W. W. Gerberich. Temperature dependent fracture initiation in microscale silicon. Scripta Materialia, 130 :78–82, 2017.
- [3] D. E.J. Armstrong and E. Tarleton. Bend testing of silicon microcantilevers from 21°C to 770°C. Jom, 67(12) :2914–2920, 2015.
- [4] B. N. Jaya, J. M. Wheeler, J. Wehrs, J. P. Best, R. Soler, J. Michler, C. Kirchlechner, and G. Dehm. Microscale fracture behavior of single crystal silicon beams at elevated temperatures. Nano letters, 16(12) :7597–7603, 2016.
- [5] A. Drnovšek, H. T. Vo, M. R. de Figueiredo, S. Kolozsvári, P. Hosemann, and R. Franz. High temperature fracture toughness of single-layer CrAlN and CrAlSiN hard coatings. Surface and Coatings Technology, 409 :126909, 2021.
- [6] J.M. Wheeler and J. Michler. Elevated temperature, nano-mechanical testing in situ in the scanning electron microscope. Review of Scientific Instruments, 84(4) :045103, 2013.
- [7] T. Couvant, J. Caballero, C. Duhamel, J. Crépin, and T. Maeguchi. Calibration of the local IGSCC engineering model for alloy 600. In Proceedings of the 18th International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems–Water Reactors, pages 1511–1533. Springer, 2019.
- [8] T. Couvant, D. Haboussa, S. Meunier, G. Nicolas, E. Julan, K. Sato, and F. Delabrouille. A simulation of IGSCC of austenitic stainless steels exposed to primary water, in. In 17th International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems-Water Reactors, Ottawa, CA, August 9–13, pages 1987–2008, 2015.
- [9] R.P. Matthews, R.D. Knusten, J.E. Westraadt, and T. Couvant. Intergranular oxidation of 316L stainless steel in the PWR primary water environment. Corrosion Science, 125 :175–183, 2017.
- [10] L. Van Brutzel. Calcul des propriétés mécaniques des spinelles de corrosion. Private communication, 2021.
- [11] G. S. Was. Localized deformation as a primary cause of irradiation assisted stress corrosion cracking. Technical report, University of Michigan, 2009.
- [12] M. Sauzay and M. O. Moussa. Prediction of grain boundary stress fields and microcrack initiation induced by slip band impingement. International Journal of Fracture, 184(1-2) :215–240, 2013.
- [13] X. Han. Modélisation de la fragilisation due au gonflement dans les aciers inoxydables austénitiques irradiés. PhD thesis, École nationale supérieure des Mines de Paris, 2012.
- [14] P. Deng, Q. Peng, E.-H. Han, W. Ke, C. Sun, and Z. Jiao. Effect of irradiation on corrosion of 304 nuclear grade stainless steel in simulated PWR primary water. Corrosion Science, 127 :91–100, 2017.
- [15] J. Gupta. Intergranular stress corrosion cracking of ion irradiated 304L stainless steel in PWR environment. PhD thesis, Université Toulouse 3 - Paul Sabatier, 2016.