Fragilisation des aciers inoxydables austénitiques sous irradiation : évolution de la microstructure et amorçage de la corrosion sous contrainte assistée par l'irradiation en milieu REP

Morgane Le Millier

▶ **To cite this version:**

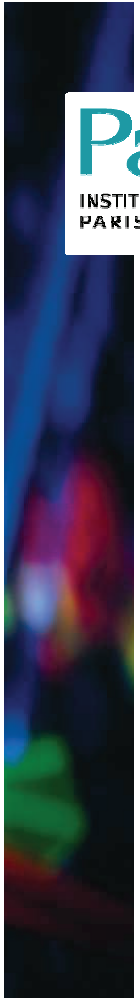
Morgane Le Millier. Fragilisation des aciers inoxydables austénitiques sous irradiation : évolution de la microstructure et amorçage de la corrosion sous contrainte assistée par l'irradiation en milieu REP. Science des matériaux [cond-mat.mtrl-sci]. Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2014. Français. NNT : 2014ENMP0047 . tel-01142188

HAL Id: tel-01142188
https://pastel.hal.science/tel-01142188

Submitted on 14 Apr 2015

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.



ParisTech
INSTITUT DES SCIENCES ET TECHNOLOGIES
PARIS INSTITUTE OF TECHNOLOGY

MINES ParisTech

École doctorale n° 432 : Sciences des Métiers de l'Ingénieur

Doctorat ParisTech

T H È S E

pour obtenir le grade de docteur délivré par

l'École nationale supérieure des mines de Paris

Spécialité " Sciences et génie des matériaux "

présentée et soutenue publiquement par

Morgane LE MILLIER

le 04 février 2014

Fragilisation des aciers inoxydables austénitiques sous irradiation : évolution de la microstructure et amorçage de la corrosion sous contrainte assistée par l'irradiation en milieu REP

Directeur de thèse : **Jérôme CREPIN**
Co-encadrement de la thèse : **Cécilie DUHAMEL**

Jury

M. Krzysztof WOLSKI, Directeur de recherche, Ecole des Mines de Saint-Etienne	Président
M. Eric ANDRIEU, Professeur, CIRIMAT-ENSIACET	Rapporteur
M. Robin SCHÄUBLIN, Maître d'Enseignement et de Recherche, EPFL	Rapporteur
M. Yves BRECHET, Haut-Commissaire à l'énergie atomique, CEA	Examinateur
M. Gary WAS, Professeur, MIBL, Université du Michigan	Examinateur
M. Lionel FOURNIER, Ingénieur, AREVA	Examinateur
M. Thierry COUVANT, Ingénieur, Les Renardières, EDF	Invité
M. Jérôme CREPIN, Maître de recherche, Centre des Matériaux, Mines ParisTech	Directeur de thèse
Mme. Cécilie DUHAMEL, Chargée de recherche, Centre des Matériaux, Mines ParisTech	Maître de thèse

T H È S E

MINES ParisTech
Centre des Matériaux –UMR CNRS 7633
BP 87 – 91003 Evry Cedex, France

Remerciements

J'ai souvent trouvé que les remerciements en première page de thèse étaient dignes de ceux prononcés lors de la remise d'un oscar. Les larmes aux bords des yeux et une litanie de noms où l'on en vient même à remercier le vieil oncle Anatole pour le superbe vélo rouge offert à Noël il y a fort longtemps, bien que l'on ne sache plus très bien en quoi celui-ci aurait contribué à l'accomplissement de ce projet.

La critique semble facile…et elle l'est effectivement. Car comme tout projet nécessitant un tel investissement personnel, la thèse ne saurait se résumer à un simple morceau de papier et quelques accolades autour d'une coupe de champagne. Tous ceux qui ont contribué à sa réalisation, par leur soutien technique ou moral, savent bien que cela ne se passe pas sans quelques difficultés. Il est donc naturel de tenter, à travers ces quelques lignes, de leur transmettre le soulagement, la joie et la reconnaissance que l'on ressent lorsque vient le moment de clore ces années de travail. Et tant pis si cela conduit parfois à quelques passages mélodramatiques…

Il convient tout d'abord de remercier les personnes à l'initiative de ce projet, parmi lesquelles Lionel Fournier, Marylise Caron-Charles, Jérôme Crépin, Cécilie Duhamel, Olivier Calonne et André Pineau. C'est avant tout grâce à leur volonté et leur implication que cette thèse a vu le jour et a pu se dérouler dans de bonnes conditions.

Un mot en particulier pour mon directeur de thèse, Jérôme, un encadrant fort occupé mais qui savait miraculeusement se rendre disponible pour les moments importants. Cette gestion quasi surnaturelle de son emploi du temps et son souci de « l'humain » resteront dans ma mémoire.

Pour une thèse expérimentale, la partie technique est évidemment fondamentale et je tiens à exprimer mes plus vifs remerciements à toutes les personnes du Centre des Matériaux, du Centre Technique du Creusot, du Laboratoire de Mécanique des Solides, de la plateforme Jannus Orsay et du Michigan Ion Beam Laboratory qui ont participé de près ou de loin à la réussite des expérimentations. Parmi celles-ci, je salue notamment Gérard Brabant, Fabrice Gaslain, Nicole De Dave, Olivier Delhomme, Anne Laurent, Ovidiu Toader, Fabian Naab, Eva Héripré, Daniel Caldemaison, Alexandre Tanguy, Mohamed Sennour, Brigitte Decamps, Yoann Vidalenc et Annie Pages.

Gérard, que les techniciens de ma nouvelle « maison » me pardonnent mais tu es et resteras le Number 1. Toi et…tes petits chocolats de 16h, ton radiateur indépendant, ton ordinateur double écran avec logiciel de montage vidéo, ta bonne humeur et ta patience d'ange avec en supplément un fond musical quelque peu nostalgique… (tu noteras cependant que, n'en déplaise à Nicole, j'aurais volontiers fait l'impasse sur Joe Dassin).

J'ai également une pensée émue pour les acolytes de la cafétéria. Le thé du matin et la pause déjeuner, en si charmante compagnie, auront été pour moi des moments privilégiés, un plaisir qui se renouvelait quotidiennement, l'occasion de rire de tout et d'apprendre beaucoup. Les chèvres et les canards n'ont qu'à bien se tenir ! Marie-Hélène, bien que je m'astreigne régulièrement à potasser ce merveilleux livre que tu m'as offert avant de partir, je crains fort de ne pas être encore tout à fait à la hauteur mais… « *We Can Do It !* ».

La rédaction de cette thèse au démarrage d'une nouvelle activité aura été une étape délicate, mes collègues de travail en savent quelque chose... Aussi, je les remercie chaleureusement pour leur patience, leur compréhension et leurs encouragements durant cette période difficile. L'oreille attentive de Kim et ses délicieux petits sablés ont été indéniablement sources d'un grand réconfort.
Tout comme le cercle familial bien évidemment… Leur soutien sans faille est inestimable.

Je ne saurais conclure ces remerciements sans un clin d'œil, appuyé(!), à celle qui, en sus du reste, aura été tour à tour restauratrice, hôtelière, conductrice de navette, psychologue, critique cinéma et gastronomique, guide et compagne de voyage, humoriste, bibliothécaire, banquière, déménageuse et conseillère en tout genre. J'espère bien un jour pouvoir le lui rendre au centuple !

Enfin, à celles et ceux qui auraient été oubliés, je vous prie de bien vouloir pardonner cette amnésie passagère et ô combien involontaire.

Cher lecteur, le moment est maintenant venu de rendre le clavier et de laisser place aux choses sérieuses.

Je souhaite à tous une très bonne lecture.

Morgane Le Millier

Sommaire général

Avant-propos 1

Chapitre I : Etat de l'art 9

I.1 Les aciers inoxydables austénitiques 10

I.1.1 Généralités 10

I.1.2 Mécanismes de déformation des aciers inoxydables austénitiques 13

I.1.3 Corrosion sous contrainte dans les réacteurs à eau légère 13

I.2 Irradiation des aciers inoxydables austénitiques 15

I.2.1 Spectre neutronique et dose d'irradiation 15

I.2.2 Evolution de la microstructure et durcissement 18

I.2.3 Modifications chimiques induites par l'irradiation 24

I.2.3 a) Ségrégation induite par l'irradiation (RIS) 24

I.2.3 b) Précipitation 26

I.2.3 c) Transmutation 27

I.2.4 Simulation des dommages d'irradiation neutronique avec d'autres particules 28

I.3 Propriétés mécaniques des aciers inoxydables austénitiques irradiés 32

I.3.1 Propriétés en traction des aciers inoxydables austénitiques irradiés – durcissement induit 32

I.3.2 Mécanismes de déformation des aciers inoxydables austénitiques irradiés 34

I.4 Amorçage de la fissuration par IASCC 38

I.4.1 Influence de l'environnement 39

I.4.2 Influence de la chimie locale du matériau 40

I.4.3 Influence du durcissement induit par l'irradiation 40

I.4.4 Influence des paramètres microstructuraux et mécaniques 42

I.4.5 Localisation de la déformation 44

I.5 Présentation de l'étude – objectifs et démarche 47

Résumé chapitre I 49

Bibliographie I 53

Chapitre II : Démarche expérimentale et caractérisation des microstructures après irradiations aux ions 63

II. 1 Présentation du matériau étudié 65

II.1.1 Composition chimique 65

II.1.2 Microstructure 66

II.1.3 Propriétés mécaniques 67

II. 2 Irradiation aux protons sur matériau massif..... 68

II.2.1 Présentation de la plateforme d'irradiation du MIBL 68

II.2.2 Préparation et suivi des irradiations 68

II.2.3 Caractérisation du matériau irradié 72

II.2.3 a) Evolution de la dureté 72

II.2.3 b) Modification de la chimie en surface 73

II.2.3 c) Evolution de la texture 78

II.2.3 d) Profondeur d'irradiation et caractérisation des défauts dans le volume 78

II.3 Irradiation aux ions lourds sur lames minces..... 86

II.3.1 Présentation de la plateforme JANNuS Orsay 86

II.3.2 Plan d'expérience et préparation des lames minces 87

II.3.2 a) Conditions expérimentales 87

II.3.2 b) Préparation des lames minces 89

II.3.3 Suivi in-situ des irradiations mono-faisceau 90

II.3.3 a) Evolution du réseau de dislocations initial 91

II.3.3 b) Microstructure d'irradiation 92

II.3.3 c) Aspect cinétique 93

II.3.4 Analyses quantitatives post-irradiation 97

II.3.4 a) Influence de la teneur en hélium 99

II.3.4 b) Influence de la température d'irradiation 100

II.3.5 Discussion sur l'évolution de la microstructure sous irradiation aux ions 102

II.3.5 a) Dislocations initiales et défauts d'irradiation 102

II.3.5 b) Interaction hélium/défaut – effet de l'hélium sur la microstructure en fonction du rapport He/dpa 104

Résumé chapitre II..... 109

Bibliographie II 113

Chapitre III : Corrosion sous contrainte en milieu REP simulé 115

III. 1 Plan d'expériences et préparation des éprouvettes 117

III. 2 Mise en place et suivi des essais de corrosion sous contrainte 122

III. 3 Caractérisation des réseaux de fissures 123

III.3.1 Méthodologie 123

III.3.1 a) Estimation de la surface élémentaire représentative 123

III.3.1 b) Protocole d'analyse des réseaux de fissure par microscopie électronique à balayage 126

III.3.1 c) Comparaison MO/MEB 127

III.3.2 Résultats 130

III.3.2 a) Caractéristiques générales 130

III.3.2 b) Influence du trajet de chargement et du taux de déformation 138

III.3.2 c) Influence de la dose d'irradiation 141

III.4 Comportement mécanique à l'échelle du grain 145

III.4.1 Influence des mécanismes de plasticité sur les mécanismes de fissuration 145

III.4.2 Analyse des champs locaux de déformation 151

III.4.2 a) Principe de la microextensométrie par corrélation d'image 151

III.4.2 b) Champs de déformation 154

Résumé chapitre III 174

Bibliographie III 178

Chapitre IV : Corrosion sous contrainte en milieu REP simulé : discussion 181

IV.1 Lien entre localisation de la déformation et fissuration 182

IV.1.1 Maclage ou canalisation des dislocations 182

IV.1.2 Corrélation entre facteurs de Schmid de maclage et fissuration 197

IV.1.3 Influence sur la fissuration de la discontinuité de la déformation entre deux grains 200

IV.2 Influence sur la fissuration du trajet de chargement et de la profondeur de la couche irradiée 206

IV.2.1 Paramètres de modélisation : géométrie et lois de comportement 207

IV.2.2 Champs mécaniques en pointe de fissure 208

IV.3 Perspectives…… 211

Résumé chapitre IV..... 214

Bibliographie IV 218

Conclusion générale et perspectives 221

Annexes 229

Annexe A Propriétés en traction du matériau d'étude 229

Annexe B Analyse de la chimie de surface par XPS 233

Annexe C Microscopie électronique en transmission - imagerie des défauts d'irradiation et détermination des tailles et des densités 237

Annexe D Préparation des lames minces JANNuS – tenue en température des lames et état de surface 243

Annexe E Préparation des essais de corrosion sous contrainte – comparaison entre or et tungstène pour le dépôt des microgrilles 247

Annexe F Répartition des facteurs de Schmid – éprouvette E 249

Avant-propos :

Les réacteurs à eau légère, qui incluent les réacteurs à eau bouillante (REB) et les réacteurs à eau sous pression (REP), constituent en 2013 la majeure partie du parc nucléaire mondial (**figure 1**) [AIEA 2013]. La maîtrise de la durée de vie de ces centrales est devenue aujourd'hui l'un des enjeux majeurs du secteur nucléaire et passe nécessairement par la maîtrise des problématiques liées au vieillissement des installations. Les retours d'expériences de l'exploitation de ces réacteurs ont notamment mis en évidence des phénomènes de fragilisation comme la corrosion sous contrainte, et tout particulièrement la corrosion sous contrainte assistée par l'irradiation (**I**rradiation **A**ssisted **S**tress **C**orrosion **C**racking ou IASCC) [Mattei 2006], [Hutin 2006].

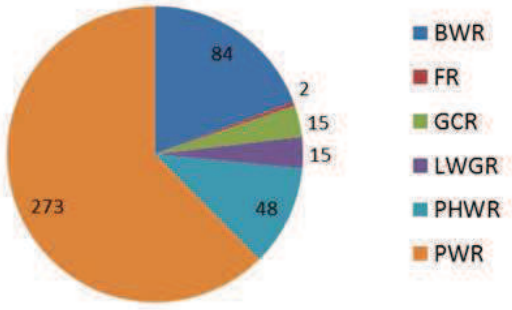


Figure 1: Distribution du type de réacteurs du parc mondial en 2013 (BWR: boiling water reactor; FR: fast reactor; GCR: gas cooled reactor; LWGR: light water cooled, graphite moderated reactor; PHWR: pressurized heavy water reactor; PWR: pressurized water reactor) [AIEA 2013]

Les zones sensibles à l'IASCC dans les réacteurs à eau légère sont situées dans le circuit primaire au niveau des structures internes des cuves. Ces structures assurent le support des assemblages combustibles, des grappes de commande et de l'instrumentation ainsi que la canalisation du caloporteur. Du fait de leur positionnement dans la cuve, les structures internes sont à la fois proches du combustible (et donc soumises à de fortes radiations) et directement en contact avec l'eau du circuit primaire. L'irradiation conduit à une modification durable de la microchimie et de la microstructure des matériaux métalliques et à la génération *in situ* de gaz tel que l'hélium et l'hydrogène en fonction du flux neutronique.

L'IASCC a été observée pour la première fois dans les années 1960 dans les REB et mise en évidence dans les années 80 pour les REP [Bruemmer 1999]. Si les premières fissures observées en milieu REP ont été imputées à une chimie de l'eau localement hors spécification, d'autres composants ont depuis présenté le même type d'endommagement dans des conditions nominales de service différentes.

Le **tableau 1** ci-dessous résume les cas de fissuration par IASCC enregistrés jusqu'en 2007. Les cas répertoriés sont multiples et concernent différents alliages, des réacteurs de conceptions différentes et des conditions en service (température, état de contrainte, dose d'irradiation…) variées.

Component	Alloy	Reactor type	Possible sources of stress
Fuel cladding	304 SS	BWR	Fuel swelling
Fuel cladding	304 SS	PWR	Fuel swelling
Fuel cladding*	20%Cr/25%Ni/Nb	AGR	Fuel swelling
Fuel cladding ferrules	20%Cr/25%Ni/Nb	SGHWR	Fabrication
Neutron source holders	304 SS	BWR	Welding & Be swelling
Instrument dry tubes	304 SS	BWR	Fabrication
Control rod absorber tubes	304/304L/316L SS	BWR	B_4C swelling
Fuel bundle cap screws	304 SS	BWR	Fabrication
Control rod follower rivets	304 SS	BWR	Fabrication
Control blade handle	304 SS	BWR	Low stress
Control blade sheath	304 SS	BWR	Low stress
Control blades	304 SS	PWR	Low stress
Plate type control blade	304 SS	BWR	Low stress
Various bolts**	A-286	PWR & BWR	Service
Steam separator dryer bolts**	A-286	BWR	Service
Shroud head bolts**	600	BWR	Service
Various bolts	X-750	BWR & PWR	Service
Guide tube support pins	X-750	PWR	Service
Jet pump beams	X-750	BWR	Service
Various springs	X-750	BWR & PWR	Service
Various springs	718	PWR	Service
Baffle former bolts	316 SS Cold-work	PWR	Torque, differential swelling
Core shroud	304/316/347 /L SS	BWR	Weld residual stress
Top guide	304 SS	BWR	Low stress (bending)

* Cracking in AGR fuel occurred during storage in spent fuel pool

** Cracking of core internals occurred away from high neutron and gamma fluxes

Tabeau I. Retour d'expérience des fissurations par IASCC [Was 2007]

La corrosion sous contrainte assistée par l'irradiation n'apparaît que sous l'action conjuguée d'un milieu corrosif, d'un état de contrainte et du bombardement neutronique sur un matériau donné (**figure 2**).

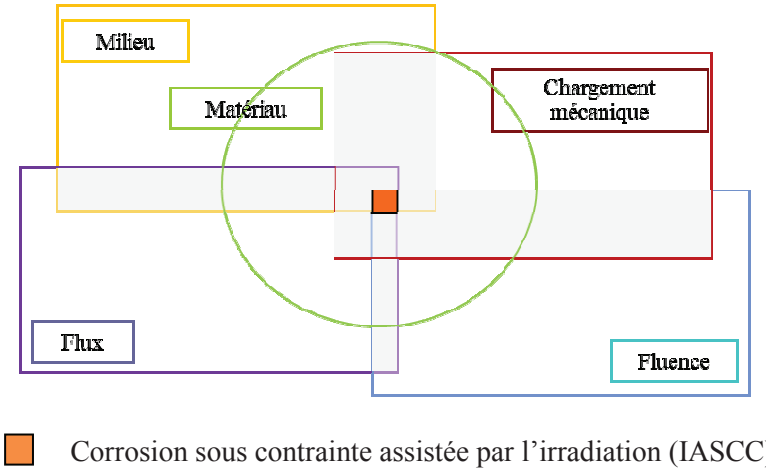


Figure 2 : Diagramme de Venn des mécanismes d'endommagement faisant intervenir simultanément l'action de plusieurs facteurs [CEA 2010]

Dans les REP français, les principaux matériaux concernés sont des aciers inoxydables austénitiques de type 304L hypertrempés et 316 écrouis, utilisés en tant que vis de liaison et plaques de renfort et de cloisonnement (**figure 3**).
Des fissures intergranulaires ont ainsi été observées sur des vis en acier 316 écroui au niveau du raccordement tête-fut après une exposition de plusieurs années en service (**figure 4**).

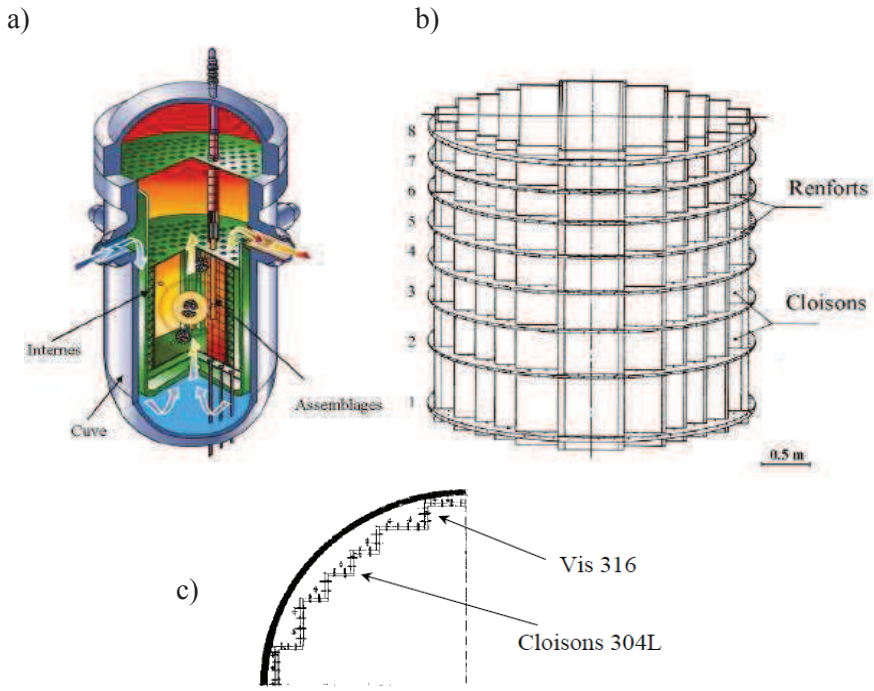


Figure 3 : (a) Vue intérieure d'une cuve de réacteur à eau sous pression français, (b) renforts et structures internes, (c) coupe des structures internes [Pokor 2002]

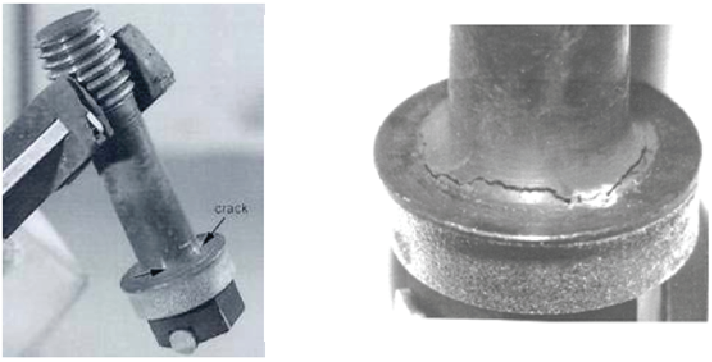


Figure 4 : Vis de cloisonnement en acier 316 présentant une fissure au niveau du congé. Cette vis provient du REP Tihange (Belgique) [Thomas 2002]

D'après De Mathan [De Mathan 1997], les contraintes subies par les structures internes des REP en service sont d'origines diverses. Il dénombre notamment :

- le couple de serrage des vis, qui induit une contrainte de traction d'environ 430 MPa,
- la contrainte d'origine thermique, induite par la dilatation thermique des matériaux ou par un gradient thermique,
- la contrainte d'origine hydraulique induite par la différence de pression entre les surfaces interne et externe du cloisonnement.

En plus de ces contraintes et du fait de leur localisation, les structures internes subissent un fort bombardement neutronique. Certaines pièces les plus proches du combustible peuvent atteindre une dose de 80 dpa[1] après 40 ans de service. Le **tableau 2** ci-dessous résume les températures en service et les doses maximales attendues après 40 ans en milieu REP.

Composant	Matériaux	Température (°C)	Dose maximale après 40 ans (dpa)
Vis	316 – 316L écroui	~ 300 à 370°C	80
Cloisons	304L hypertrempé	~ 300 à 350°C	80
Renforts	304L hypertrempé	~ 300 à 370°C	60
Enveloppe de cœur	304L hypertrempé	~ 300°C	12

Tableau 2 : Conditions d'irradiation des structures internes dans les REP [de Mathan 1999]

L'augmentation de la durée de fonctionnement des REP (jusqu'à 60 ans voire 80 ans) conduira inévitablement à l'augmentation de la dose globale accumulée par les structures internes et donc potentiellement à la dégradation de certains composants.
La majorité des études se sont concentrées sur la phase de propagation des fissures d'IASCC et notamment sur l'influence de la dose, de la contrainte ou encore du milieu sur la vitesse de propagation de ces fissures [Andresen 2102, Chung 1996, Chopra 2011]. Pour autant, seule la

[1] Déplacement par atome

compréhension des processus à l'origine de l'IASCC pourrait conduire à anticiper et/ou à s'affranchir de ce phénomène et ainsi contribuer à garantir la durabilité et l'intégrité de ces structures à long terme.
Les mécanismes d'amorçage de la fissuration par IASCC posent encore question et les difficultés de réalisation et de compréhension de cette étape en laboratoire sont nombreuses. En effet, la définition même de l'amorçage est sujette à discussion ainsi que la nature des essais physico-chimico-mécaniques à réaliser pour en rendre compte. A cela s'ajoute la difficulté de travailler sur des matériaux irradiés aux neutrons ou de simuler cette irradiation par des ions conduisant à l'obtention des microstructures et des mécanismes représentatifs des conditions d'exploitation. Enfin, la nature même de la corrosion sous contrainte suppose un couplage entre plusieurs phénomènes physico-chimiques et mécaniques, auquel s'ajoutent les nombreuses conséquences de l'irradiation sur le matériau, conséquences qui dépendent elles-mêmes des conditions en service, de la composition de l'alliage, etc…
Le fait que les modifications durables induites par l'irradiation sur le matériau signent le point de départ de l'IASCC fait aujourd'hui consensus dans la communauté scientifique. Cependant le(s) paramètre(s) prépondérant(s) à l'origine de la fissuration et les mécanismes associés n'ont pas été identifiés avec certitude.

Depuis quelques années, plusieurs études ont pointé la localisation de la déformation, observée pour les matériaux irradiés, comme potentiel facteur de premier ordre [Onchi 2005, Jiao 2008, Was 2012]. En effet, l'interaction entre joints de grains et canaux de dislocations pourrait, si combinée à d'autres facteurs (non continuité du glissement, énergie et orientation du joint, etc….), conduire à la fissuration de ces matériaux par IASCC dans les réacteurs à eau légère.
Néanmoins, des points importants restent à valider en apportant par exemple des informations quantitatives et statistiques sur la déformation de ces matériaux ainsi que sur le rôle joué par la microstructure, mais aussi, à une échelle plus fine, sur le comportement des joints de grains vis-à-vis (i) de l'irradiation (interaction avec les défauts), (ii) de la présence éventuelle de gaz (hélium ou hydrogène) et (iii) du comportement mécanique (localisation de la déformation, interaction dislocations / joint de grains).

Dans ce contexte, l'objectif de ce travail est double. Il s'agira d'une part d'aider à la compréhension des mécanismes mis en jeu dans l'amorçage de l'IASCC en milieu REP en se basant sur une approche couplée entre microstructure, comportement mécanique local et fissuration. D'autre part, il s'agira d'étudier les conséquences de l'irradiation sur la microstructure en prenant en compte notamment la génération d'hélium *in situ* via l'utilisation de la plateforme expérimentale JANNuS.

Le premier chapitre de ce mémoire décrit les conséquences de l'irradiation sur la microstructure ainsi que l'état de l'art des connaissances actuelles sur l'amorçage de l'IASCC dans les réacteurs à eau légère.
Dans un second temps, nous verrons comment nous avons simulé l'irradiation par des ions et quels sont les cinétiques de création des défauts, leur évolution dans la microstructure ainsi que les effets de l'hélium dans ce processus.
Le troisième chapitre présente les résultats des essais de corrosion sous contrainte post-irradiation réalisés en milieu primaire REP simulé. Ces résultats seront ensuite discutés dans un quatrième et dernier chapitre dans lequel nous aborderons également les perspectives de ce travail.

Références :

[AIEA 2013] «Nuclear Technology Review 2013», 57th IAEA General Conference (2013)

[Andresen 2012] P.L Andresen, G.S Was, « Irradiation Assisted Stress Corrosion Cracking », Elsevier (2012) 177 - 205

[Bruemmer 1999] S.M. Bruemmer, E.P. Simonen, P.M. Scott, P.L. Andresen, G.S. Was, J.L. Nelson, « Radiation-induced material changes and susceptibility to intergranular failure of light-water-reactor core internals», J. Nucl. Mater. 274 (1999) 299-314

[CEA 2010]: Monographie de la Direction de l'énergie nucléaire, « La corrosion et l'altération des matériaux du nucléaire », Edition Le Moniteur, (2010)

[Chopra 2011] : O.K Chopra, A.S Rao, « A review of irradiation effects on LWR core internal materials – IASCC susceptibility and crack growth rates of austenitic stainless steels », J. Nucl. Mater. 409 (2011) 235-256

[Chung 1996] H.M Chung, W.E Ruther, J.E. Sanecki, A. Hins, N.J. Zaluzec, T.F. Kassner, « Irradiation-assisted stress corrosion cracking of austenitic stainless steels: recent progress and new approaches », J. Nucl. Mater. 239 (1996) 61-79

[De Mathan 1997] N. de Mathan, « Influence de l'irradiation neutronique sur le comportement des matériaux des internes REP : Bilan des connaissances », Rapport EDF HT-41/97/039/B (1997)

[De Mathan 1999] N. de Mathan, D. Busine, Ph. Dubuisson, P. Scott, «Effet d'irradiation dans les aciers austénitiques des internes des REP à forte dose neutronique», Journée SFEN : Irradiation des matériaux : expérience et simulation, (1999)

[Hutin 2006] J.P. Hutin, « Gestion de la durée de vie des centrales nucléaires », Techniques de l'Ingénieur BN 3 307 (2006)

[Jiao 2008] Z. Jiao, G.S Was, "Localized deformation and IASCC initiation in austenitic stainless steels", J. Nucl. Mater. 283 (2008) 203-209

[Mattei 2006] J.M. Mattei, A. Rodionov, « Réflexions sur le problème du vieillissement des installations », rapport de l'IRSN (2006)

[Onchi 2005] T. Onchi, K. Dohi, N. Soneda, Marta Navas, M.L. Castano, « Mechanism of irradiation assisted stress corrosion crack initiation in thermally sensitized 304 stainless steel », J. Nucl. Mater. 340 (2005) 219-236

[Pokor 2002] C. Pokor, « Caractérisation microstructurale et modélisation du durcissement des aciers austénitiques irradiés des structures internes des réacteurs à eau pressurisée », Thèse de l'Institut National Polytechnique de Grenoble, (2002)

[Thomas 2002] L. Thomas, S.M. Bruemmer, «Analytical Transmission Electron Microscopy Characterization of Stress Corrosion Cracks in an Irradiated Type 316 Stainless Steel Core Component», International Symposium Fontevraud V, (2002) 347

[Was 2007] G. S. Was, «Fundamentals of Radiation Materials Science: Metals and Alloys », Springer, Berlin (2007)

[Was 2012] G.S Was, D. Farkas, I.M Robertson, «Micromechanics of dislocation channeling in intergranular stress corrosion crack nucleation», Current Opinion in Solid State and Materials Science, 16 (2012) 134-142

CHAPITRE I
Etat de l'art

I.1 Les aciers inoxydables austénitiques

I.1.1 Généralités

I.1.2 Mécanismes de déformation des aciers inoxydables austénitiques

I.1.3 Corrosion sous contrainte dans les réacteurs à eau légère

I.2 Irradiation des aciers inoxydables austénitiques

I.2.1 Spectre neutronique et dose d'irradiation

I.2.2 Evolution de la microstructure et durcissement

I.2.3 Modifications chimiques induites par l'irradiation

I.2.3 a) Ségrégation induite par l'irradiation (RIS)
I.2.3 b) Précipitation
I.2.3 c) Transmutation

I.2.4 Simulation des dommages d'irradiation neutronique avec d'autres particules

I.3 Propriétés mécaniques des aciers inoxydables austénitiques irradiés

I.3.1 Propriétés en traction des aciers inoxydables austénitiques irradiés – durcissement induit

I.3.2 Mécanismes de déformation des aciers inoxydables austénitiques irradiés

I.4 Amorçage de la fissuration par IASCC

I.4.1 Influence de l'environnement

I.4.2 Influence de la chimie locale du matériau

I.4.3. Influence du durcissement induit par l'irradiation

I.4.4 Influence des paramètres microstructuraux et mécaniques

I.4.5 Localisation de la déformation

I.5 Présentation de l'étude – objectifs et démarche

Résumé

Bibliographie

Le rappel bibliographique proposé ici abordera notamment les caractéristiques des aciers inoxydables austénitiques et les conséquences de l'irradiation sur ces matériaux ainsi qu'un état de l'art des connaissances actuelles sur l'amorçage de la fissuration par IASCC.

I.1 Les aciers inoxydables austénitiques

I.1.1 Généralités

Les aciers inoxydables austénitiques sont connus et utilisés pour leur excellente résistance à la corrosion généralisée et leur bonne tenue mécanique. Les aciers austénitiques, qui cristallisent dans un système cubique à faces centrées (C.F.C.), possèdent l'avantage de présenter une très bonne ductilité comparés aux aciers martensitiques et ferritiques ainsi qu'une bonne soudabilité, ce qui explique en partie leur importante utilisation industrielle. De fait, ces propriétés mécaniques et leur aptitude à résister à la corrosion aqueuse généralisée en ont fait des alliages de choix pour les matériaux de structure dans le domaine nucléaire.

L'existence de la phase austénitique γ dans le système Fe-Cr est limitée à un petit domaine appelé boucle γ. Cette phase, métastable à température ambiante, est stabilisée grâce à des teneurs suffisantes en éléments gammagènes tels que le nickel, le carbone ou l'azote. Au contraire, les éléments tels que le chrome, le silicium ou le molybdène sont des éléments alphagènes qui favorisent la ferrite α de structure cubique centrée (C.C) (**figure I.1**).

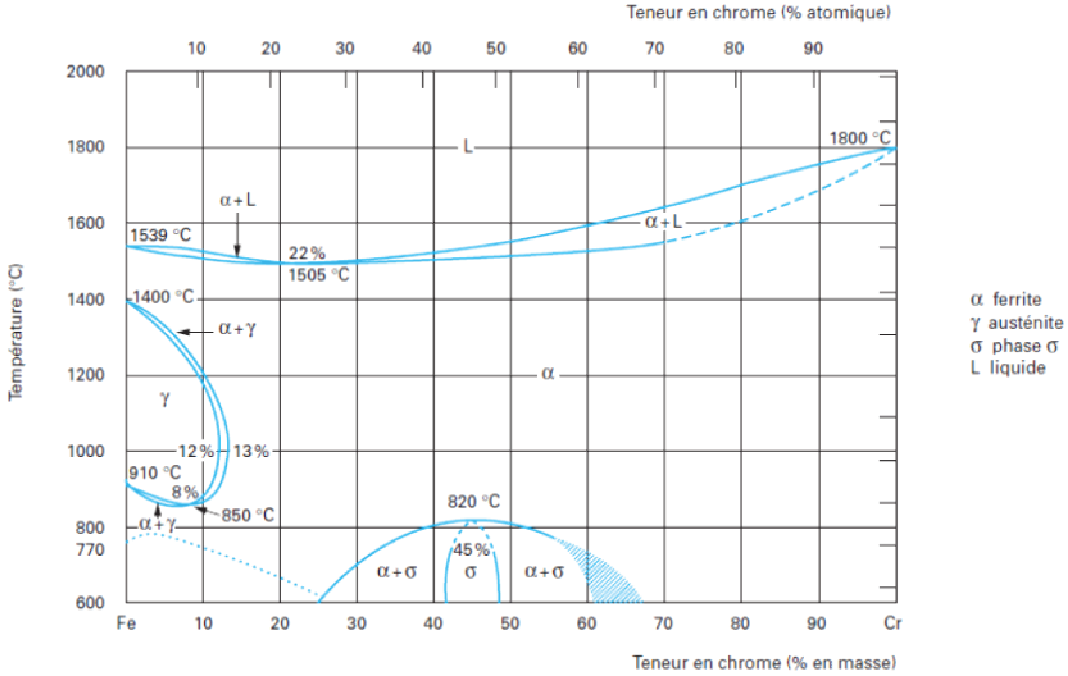


Figure I.1 :Diagramme de phase Fe-Cr d'après [Cunat 2000]

La nuance de base des aciers inoxydables austénitiques contient en moyenne (en teneurs massiques) 18% de chrome, ce qui leur confère leur caractère inoxydable, et 10% de nickel. Dans le cas d'un maintien en température entre 500°C et 700°C (traitement thermique dit de sensibilisation) et si le taux massique de carbone excède 0,03%, des précipités intergranulaires de carbures de chrome de type $Cr_{23}C_6$ ou Cr_7C_3 se forment. Ces précipités ont pour effet d'appauvrir localement la teneur en chrome des joints de grains et ainsi de dépassiver ces zones. Dans ces conditions, les aciers inoxydables

austénitiques sont sensibles à la corrosion intergranulaire en milieu oxydant. Pour pallier ce problème, des nuances dites « à bas carbone », qui ne doivent pas contenir plus de 0,03% massique de carbone, ont été développées. Dans la dénomination de l'American Iron and Steel Institute (AISI), ces nuances sont notées L pour « Low carbon ».
Des additions de titane, de molybdène, d'azote ou de bore peuvent être employées pour améliorer les propriétés de ces aciers. Ainsi, l'azote associé à une faible teneur en carbone permet d'augmenter la limite d'élasticité et le bore assure une meilleure résistance au fluage. Le molybdène ajouté entre 2 et 5% confère une meilleure résistance à la corrosion en milieu oxydant mais son effet alphagène doit être compensé par une plus forte teneur en éléments gammagènes.

Bien qu'austénitiques, une faible proportion de ferrite résiduelle est souvent présente dans ces aciers.
Des diagrammes ont été établis afin de relier la structure métallurgique de l'acier à sa composition chimique, composition exprimée en équivalent nickel et équivalent chrome. Le plus connu est le diagramme de Schaeffler dont un exemple est présenté sur la **figure I .2**. Les équivalents chrome et nickel sont définis comme une fonction des pourcentages massiques des constituants de l'alliage avec :

Equivalent chrome = % Cr + % Mo+ 1,5 (%Si) + 0,5 (% Nb)
Equivalent nickel = % Ni + 30 (% C) + 0,5 (% Mn)

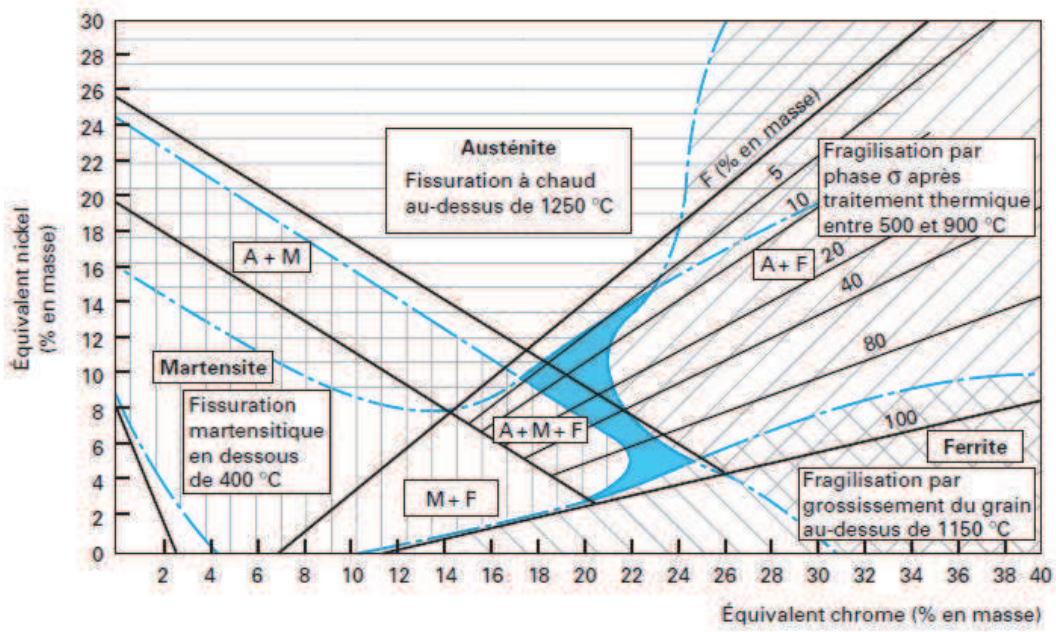


Figure I.2 : Diagramme de Schaeffler d'après [Cunat 2000]

Ce diagramme fournit une bonne approximation de la structure de l'acier à température ambiante en fonction de sa composition chimique mais ne prend pas en considération par exemple la teneur de l'alliage en azote, élément gammagène qui augmenterait l'équivalent nickel. En fonction de l'application, d'autres diagrammes plus adaptés seront utilisés.

Du fait du caractère métastable de l'austénite, de la martensite α' de structure quadratique centrée peut être formée au cours du refroidissement. La température Ms correspond à la température à laquelle la martensite α' apparaît lors du refroidissement. L'austénite est d'autant plus stable que cette température est basse et l'addition d'éléments d'alliage, qu'ils soient alphagènes ou gammagènes, contribue à abaisser cette température.

D'après F.B. Pickering [Pickering 1984], la température Ms peut être calculée avec la formule suivante **(I.1)** où les concentrations sont massiques.

$$Ms\ (°C) = 502 - 810\ (\%\ C) - 1230\ (\%\ N) - 13\ (\%\ Mn) - 30\ (\%\ Ni) - 12\ (\%\ Cr) - 54\ (\%\ Cu) - 46\ (\%\ Mo) \quad \textbf{(I.1)}$$

Du fait de cette grande diversité de structures, les propriétés mécaniques des aciers présentent, elles aussi, une grande variabilité. Elles dépendent fortement de la composition chimique de l'alliage notamment *via* une action sur l'énergie de défaut d'empilement (E.D.E.) ou sur le durcissement structural. Les caractéristiques mécaniques à température ambiante des aciers 304L et 316L sont reportées dans le **tableau I.1** ci-dessous :

Dénomination (AISI)	**Composition chimique de base**	**$Rp_{0.2\%}$ (MPa) minimal**	**R_m(MPa)**	**A %**
304L	18Cr – 9Ni	185	470-670	45
316L	17Cr – 12Ni – 2Mo	195	480-680	45

Tableau I.1 : Caractéristiques mécaniques à température ambiante des aciers austénitiques à bas carbone 304L et 316L

L'E.D.E est de l'ordre de 17 à 26 $mJ.m^{-2}$ pour les aciers 304L. Les aciers 316L, qui sont plus riches en molybdène, ont généralement une énergie de défaut d'empilement comprise entre 25 et 64 $mJ.m^{-2}$.
Cette valeur est considérée comme faible au vu des E.D.E de certains métaux purs comme l'aluminium (200 à 250 $mJ.m^{-2}$) ou le cuivre (40 à 90 $mJ.m^{-2}$) par exemple. Cette énergie croît avec la teneur en Ni.

L'E.D.E est inversement proportionnelle à la largeur de dissociation de la dislocation parfaite en deux dislocations partielles de Schockley. Cette grandeur peut donc être déterminée expérimentalement en mesurant la distance entre les deux dislocations partielles par microscopie électronique en transmission. En l'absence de contrainte externe, la séparation entre ces deux partielles dans les aciers de type 304 a été estimée à 10 nm [Byun 2003b].

L'E.D.E peut également être calculée de façon empirique en fonction de la composition du matériau exprimée en concentration massique. La formule de Pickering **(I.2)** est une des formules applicables.

$$E.D.E\ (mJ.m^{-2}) = 25,7 + 2(\%\ Ni) + 410\ (\%\ C) - 0,9\ (\%\ Cr) - 77(\%\ N) - 13(\%\ Si) - 1,2(\%\ Mn) \quad \textbf{(I.2)}$$

En 2010, Jiao a comparé les valeurs expérimentales et calculées *via* la formule de Pickering de cette énergie sur des aciers inoxydables austénitiques de différentes compositions [Jiao 2010]. Les valeurs calculées sont systématiquement supérieures de 2 à 13 $mJ.m^{-2}$ aux valeurs mesurées par MET mais l'ordre de grandeur est respecté.

Comme pour tous les alliages à faible E.D.E, la microstructure des aciers austénitiques présente une forte proportion de macles dites de croissance. Du fait de son action sur la distance entre

lesdislocations partielles, l'E.D.E joue également un rôle significatif dans les mécanismes de déformation de ces alliages.

I.1.2 Mécanismes de déformation des aciers inoxydables austénitiques

Les mécanismes de déformation des aciers inoxydables austénitiques sont multiples, et l'on dénombre ainsi :

- le glissement dévié ou planaire,
- le maclage (formation de macles dites mécaniques en opposition aux macles de croissance),
- la formation de martensite ε de structure hexagonale compacte (H.C.).

Une faible E.D.E favorise le glissement planaire par rapport au glissement dévié car les dislocations glissiles sont dissociées en deux dislocations partielles de Shockley de vecteurs de Burgers **b**=1/6 <112> qui ne peuvent changer de plan de glissement. Le glissement dévié est donc fortement réduit.

Dans les structures C.F.C., les mécanismes de déformations mettent en jeu les plans denses {111}. Le glissement des dislocations parfaites se produit suivant les systèmes de glissement {111} <110> tandis que le maclage opère suivant les systèmes de maclage {111} <112>.
Le mécanisme de déformation privilégié dépend de l'état de contrainte, de la température, ou encore de la vitesse de sollicitation. Pour des vitesses de sollicitation élevées et/ou à faible température, le maclage est dominant [Rémy 1981, Rémy 1978, Venables 1963]. Au contraire, pour de faibles vitesses de chargement (10^{-5} à 10^{-8} s^{-1}) et/ou à haute température, le glissement, qui est un mécanisme thermiquement activé, sera prépondérant. Une forte contrainte aura également pour effet de favoriser le maclage ou la formation de martensite ε [Byun 2004]. La formation de martensite se traduit par la présence de fines plaquettes le long des plans {111}.

De la martensite α', de structure quadratique centrée, peut également être formée par écrouissage. La température Md_{30} correspond à la température pour laquelle on forme 50 % de martensite α' après une déformation de 30 % en traction.
Des formules empiriques permettent de calculer cette température, comme celle d'Angel [Angel 1954] **(I.3)** où les concentrations sont également exprimées en % massique.

$$Md_{30}\,(°\,C) = 413 - 462\,(\%\,C + \%\,N) - 9{,}2\,(\%\,Si) - 8{,}1\,(\%\,Mn) - 13{,}7\,(\%\,Cr) - 9{,}5\,(\%\,Ni) - 18{,}5\,(\%\,Mo) \quad \textbf{(I.3)}$$

I.1.3 Corrosion sous contrainte (CSC) dans les réacteurs à eau légère

Bien qu'appartenant à une même famille de réacteurs, les LWRs, les milieux REP et REB présentent des différences notables, que nous rappelons succinctement ici.

L'eau du circuit primaire des REP est une eau désaérée et faiblement alcaline, contenant de l'acide borique et de la lithine. De l'hydrogène dissous est également ajouté, entre 25 et 50 cc/kg d'H_2O, de façon d'une part à conserver un potentiel de corrosion bas (< -500 mV_{ENH}) et d'autre part à s'affranchir des effets néfastes de la radiolyse de l'eau. L'eau est maintenue liquide à une pression de 155 bar pour une température comprise entre 288°C et 340°C suivant les zones du circuit. Les flux gamma peuvent entraîner localement une augmentation de la température notamment en cas d'un accès insuffisant du liquide de refroidissement. Cette augmentation peut atteindre + 40°C [Was 2009].

On notera également que la température du milieu primaire REP est plus élevée que celle des milieux REB et que la fluence y est environ 10 fois plus importante.

L'eau du circuit REB a une chimie sensiblement différente. C'est une eau contenant de l'oxygène dissous à hauteur de 100 à 200 ppb pour un potentiel de corrosion compris entre +100 et +200 mV_{ENH}. Contrairement au milieu primaire REP, le milieu REB est donc un milieu oxydant. La température moyenne est de 288°C.

La CSC des aciers austénitiques en milieu REB est un phénomène connu et largement décrit [Shoji 2003, Andresen 2003, Jenssen 2005, Shoji 2010]. La fissuration en milieu REB est liée à la présence d'oxygène dissous qui influe sur le potentiel de corrosion. Une augmentation de la concentration en oxygène dissous accroît le potentiel de corrosion et augmente la vitesse de propagation des fissures.
En l'absence de polluants, la sensibilité des aciers à la CSC en milieu REB dépend également de la déchromisation des joints de grains. Les mécanismes de dissolution/repassivation décrivent de façon satisfaisante la propagation des fissures dans ces conditions.
L'écrouissage ou la sensibilisation de l'acier sont des paramètres aggravants qui diminuent le temps d'amorçage des fissures mais ils ne constituent pas des conditions nécessaires à cet amorçage [Shoji 2003, Couvant 2005, Andresen 2004].

Contrairement au milieu REB, la présence d'hydrogène en milieu REP maintient une valeur basse du potentiel de corrosion. Cependant, en laboratoire, et dans des conditions expérimentales extrêmement sévères, quelques études ont montré que des aciers inoxydables austénitiques fortement écrouis se sont révélés sensibles à la fissuration par CSC en milieu hydrogéné. Les mécanismes mis en jeu sont liés à l'interaction plasticité – oxydation et les fissures peuvent être de nature transgranulaire, intergranulaire ou mixte en fonction de l'écrouissage et de la sollicitation [Tribouilloy 2007, Huguenin 2012]. Les aciers fortement écrouis et sollicités sous chargement complexe présentent une localisation de la déformation et des bandes de déformation apparaissent par exemple dans les grains d'austénite entourant la ferrite (**figure I.3**). Les incompatibilités de déformation entre grains fortement écrouis et grains peu écrouis peuvent générer la formation de microcavités aux joints de grains et pourraient ainsi les fragiliser [Couvant 2005].

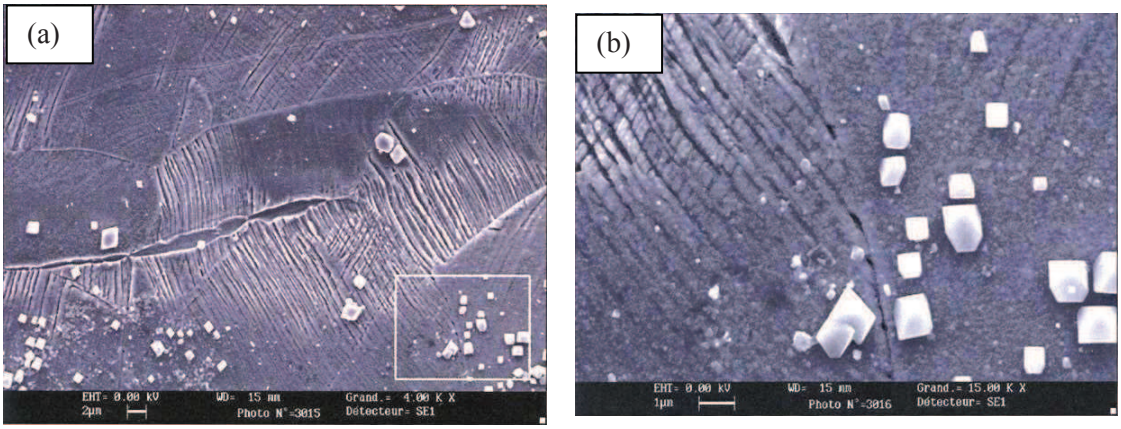


Figure I.3 : (a) formation de bandes de déformation dans les grains d'austénite entourant la ferrite et (b) microcavités intergranulaires au voisinage des bandes de déformation [Couvant 2005]

Cependant, les conditions expérimentales de ces études, telles que le fort écrouissage du matériau et les trajets de chargement utilisés, ne sont pas représentatives de l'état métallurgique initial des

composants utilisés en REP ni de leurs conditions de sollicitation en service. Nous retiendrons donc que les aciers inoxydables austénitiques ne sont pas sensibles à la CSC en milieu REP.
Ils sont en revanche sensibles à la CSC en milieu REB, en raison du potentiel de corrosion dans ce milieu.

I.2 Irradiation des aciers inoxydables austénitiques

I.2.1 Spectre neutronique et dose d'irradiation

Les neutrons issus des réactions de fission couvrent un large spectre énergétique, appelé spectre de fission. Ces spectres sont divisés en trois grands domaines fonction de l'énergie, à savoir le domaine des neutrons thermiques, épithermiques et rapides.
En fonction du type de réacteur, l'énergie et le flux des neutrons émis varient (**figure I.4**).
Le spectre neutronique d'un REP couvre les trois domaines énergétiques tandis les neutrons thermiques sont absents des réacteurs à neutrons rapides (RNR).

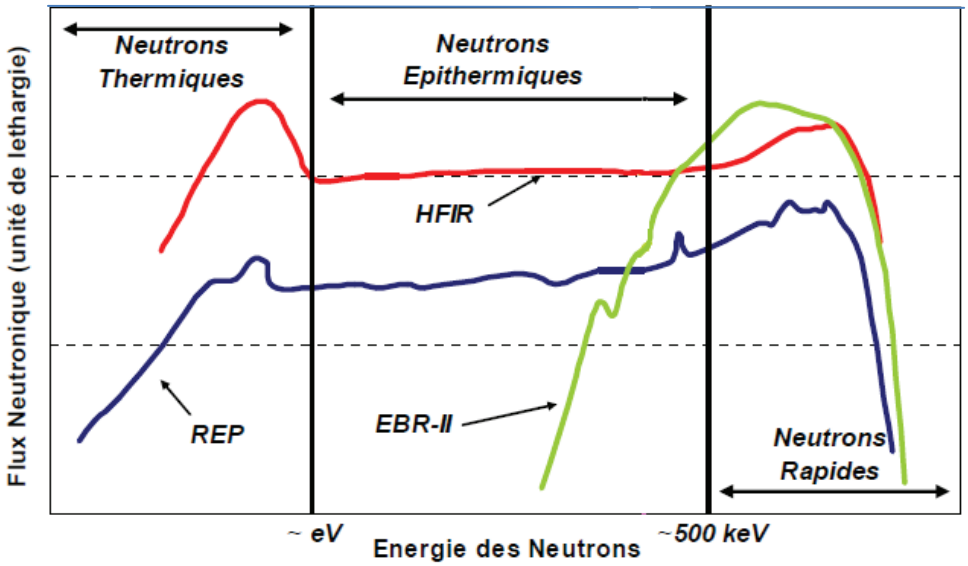


Figure 1.4 : Spectre de fission en fonction du type de réacteur : en vert les réacteurs à neutrons rapides (RNR), en rouge le réacteur à spectre mixte HFIR et en bleu les REP [Zouari 2012]

Le terme de matériau « irradié » se rapporte aux collisions intervenant entre les neutrons issus des réactions de fission nucléaire et les atomes de l'alliage. Elles génèrent au sein de la microstructure un grand nombre de défauts ponctuels sous la forme de paires lacune-interstitiel appelées paires de Frenkel.

Le choc entre un neutron et un atome entraîne effectivement l'éjection de ce dernier hors de son site cristallin lorsque l'énergie transférée est supérieure à l'énergie de déplacement de l'atome. Dans le fer, ce seuil est fixé à 40 eV [ASTM ES21]. Si l'atome éjecté, appelé Primary Knocked-on Atom ou PKA, possède à son tour l'énergie adéquate, il pourra éjecter un nouvel atome hors de son site engendrant

ainsi des cascades de déplacement et la formation de multiples paires de Frenkel. Lorsque l'énergie cinétique des neutrons et atomes déplacés devient trop faible, la phase de collision s'achève et le pic balistique appelé également pic de Bragg est atteint (pic de défauts ponctuels). Le temps caractéristique d'une cascade de déplacement est de l'ordre de la picoseconde. Le **tableau I.2** donne les temps caractéristiques de création des défauts par irradiation dans les matériaux métalliques.

Time (s)	Event	Result
10^{-18}	Energy transfer from the incident particle	Creation of a primary knock-on atom (PKA)
10^{-13}	Displacement of lattice atoms by the PKA	Displacement cascade
10^{-11}	Energy dissipation, spontaneous recombination and clustering	Stable Frenkel pairs (single interstitial atoms (SIA) and vacancies) and defect clusters
$> 10^{-8}$	Defect reactions by thermal migration	SIA and vacancy recombination, clustering, trapping, defect emission

Tableau I.2 : Temps caractéristiques de création des défauts par irradiation d'après [Was 2007a]

Les défauts ponctuels vont ensuite soit s'éliminer en se recombinant, soit rester libres en sursaturation ou sous forme de petits amas formés par quelques interstitiels ou quelques lacunes. Les flux croisés de défauts ponctuels et d'atomes du matériau vers les puits de potentiels vont être à l'origine de la ségrégation induite par l'irradiation (Radiation Induced Segregation ou RIS) et de la précipitation de phases tandis que l'agglomération des lacunes ou interstitiels conduit à la formation de cavités et de boucles de dislocations.

Le durcissement important de l'acier irradié constaté à l'échelle macroscopique s'explique par la présence de ces boucles et cavités, qui gênent le mouvement des dislocations. La formation de petits précipités contribuent également à ce durcissement.

Il existe en outre d'autres modifications chimiques à considérer telle que la transmutation. Les principales réactions de transmutations dans les aciers inoxydables austénitiques aboutissent à la formation d'atomes d'hélium *via* la transmutation du bore et du nickel [Shoji 1998] suivant les réactions **(1)** et **(2)** :

$$^{58}Ni + n \longrightarrow {}^{59}Ni + \gamma \text{ puis } {}^{59}Ni + n \longrightarrow {}^{56}Fe + {}^{4}_{2}He \quad \textbf{(1)}$$

$$^{10}B + n \longrightarrow {}^{7}Li + {}^{4}_{2}He \quad \textbf{(2)}$$

La teneur en hélium généré dans les REP se situe aux alentours de 20 appm/dpa (particule par million atomique), et est principalement issue de réactions avec des neutrons thermiques. L'hélium, très peu soluble dans l'acier, peut stabiliser les cavités formées par l'irradiation et ainsi participer à un phénomène de gonflement du matériau, mais également fragiliser les joints de grains.
Des atomes d'hydrogène peuvent également être créés par transmutation, *via* une interaction des atomes avec des neutrons plus énergétiques (E > à ~ 1*MeV)*.

La figure I.5 résume les interactions entre les neutrons et les atomes d'un alliage métallique et les conséquences de ces interactions sur le matériau.

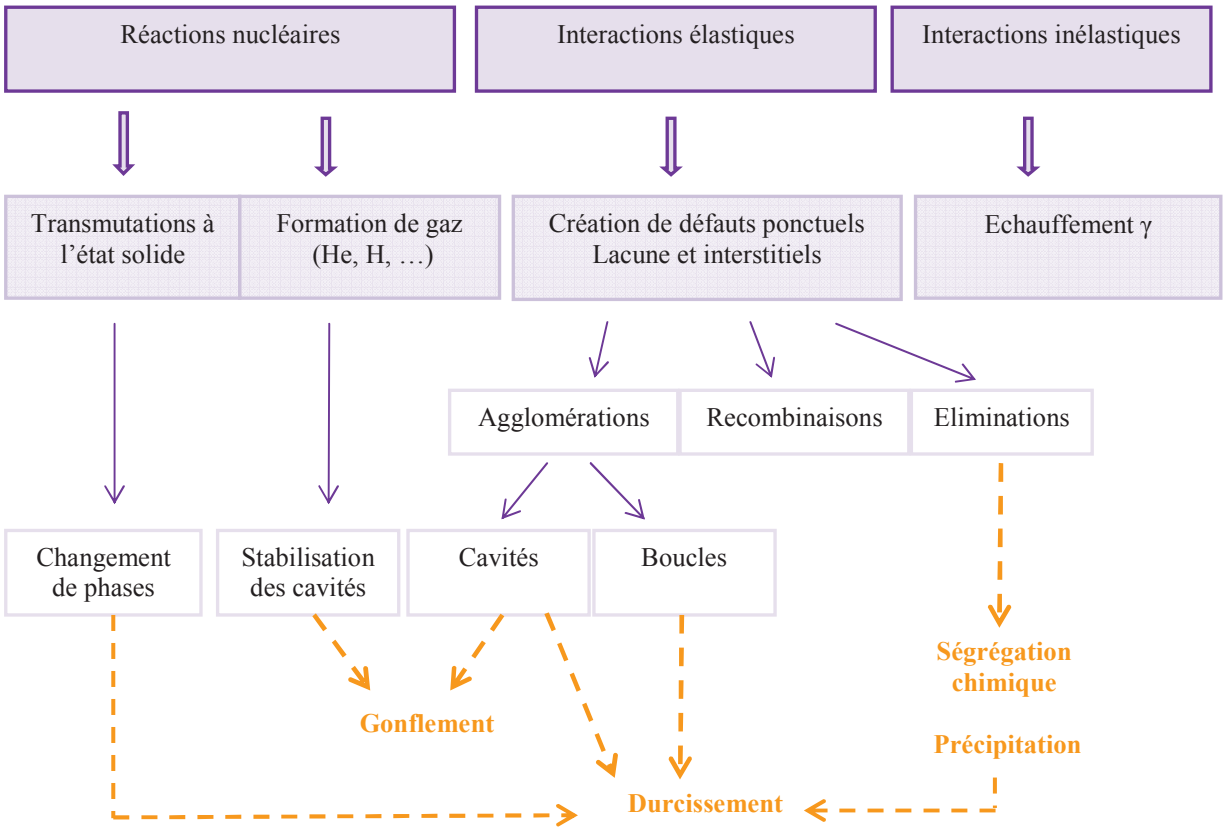


Figure 1.5: Conséquences de l'irradiation sur les matériaux métalliques d'après [Barbu 2008] et [Was 2007a]

Près de 95% des dommages dans les REP sont créés par des neutrons dont l'énergie est supérieure à 0,1 MeV, *i.e.* des neutrons rapides ou des neutrons épithermiques proches des rapides.
En plus des différences entre type de réacteurs, le flux neutronique vu par le matériau sera également différent suivant la position du composant dans le réacteur.
Pour quantifier les dommages créés par l'irradiation et disposer d'une unité utilisable quel que soit le spectre neutronique ou la position de la pièce dans la structure, le dommage est exprimé par une unité appelée déplacements par atome (dpa). Il s'agit en théorie d'un calcul simplifié du nombre de paires de Frenkel créées par atome lors de la collision des neutrons avec les atomes de l'alliage. Dans la mesure où 95% des dpa sont générés par des neutrons dont l'énergie est supérieure à 0,1 MeV, les dpa sont déduits du flux de neutrons possédants une énergie supérieure à 0,1 MeV en utilisant un facteur de conversion. Ce facteur est de 4,5 dpa pour un flux de 10^{22} n.cm^{-2} [Garner 2012].

De part leurs conditions nominales de fonctionnement, quelques différences sont à prendre en considération selon qu'il s'agit d'irradiation en RNR ou en REP.
Du fait que la génération d'hélium soit principalement issue de réactions avec des neutrons thermiques, les RNR ont un très faible rapport He/dpa, ce qui constitue une première différence importante avec les REP. De plus, les débits de dose (dpa/s) ne sont pas équivalents, le débit de dose des RNR étant plus élevé que celui des REP. Le **tableau I.3** ci-dessous indique les conditions de

fonctionnement en termes de température, génération d'hélium et débits de dose de différents réacteurs.

Type de réacteur	Température (°C)	Rapport He/dpa (appm/dpa)	Débit de dose (dpa/s)
RNR EBR-II	370 - 700	0,5	1.2×10^{-6}
RNR Phenix	400 - 650	0,2	1.8×10^{-6}
Spectre mixte HFIR	60 - 700	~ 50	1×10^{-6}
REP	288 - 360	~ 20	10^{-7}-10^{-9}

Tableau I.3: Conditions de fonctionnement des principaux types de réacteurs [Zouari 2012]

L'irradiation a également d'autres conséquences macroscopiques telles que le fluage d'irradiation. Les effets négatifs du durcissement sous irradiation peuvent être en partie contrebalancés par ce fluage qui permet une relaxation des contraintes. Cependant, le gonflement peut entraîner un rechargement mécanique de certaines pièces [Was 2009]. Le fluage d'irradiation ne sera pas abordé ici.

I.2.2 Evolution de la microstructure et durcissement

➢ Microstructure sous irradiation

Comme nous l'avons mentionné précédemment, une proportion importante de défauts ponctuels se retrouve sous forme libre en sursaturation. En fonction de la température d'irradiation et de la dose, ces défauts peuvent s'agglomérer et donner naissance à des « black dots », des boucles de dislocations et/ou des cavités [Bruemmer 1999].

- Black dots et boucles de dislocations

Les « blacks dots » sont des amas de défauts ponctuels de 2 à 3 nm qui apparaissent, en microscopie électronique en transmission en champ clair, sous forme de points noirs, d'où leur nom. Ils sont souvent considérés comme de très petites boucles de dislocations ou dans une moindre mesure comme des tétraèdres de fautes d'empilement (SFTs) mais leur taille proche de la limite de résolution du MET ne permet pas d'être plus affirmatif.

Un changement significatif de la microstructure d'irradiation s'opère aux alentours de 300°C [Zinkle 1993]. Avant 300°C, la microstructure est principalement constituée de « black dots » et de quelques petites boucles de dislocations. Pour des températures proches de 300°C, la microstructure est constituée de boucles fautées sessiles d'une dizaine de nanomètres dites boucles de Frank accompagnées, à forte dose, d'un réseau de dislocations issu de boucles défautées.
Les boucles de Frank se forment suivant les plans {111} et ont pour vecteur de Burgers **a**/3 <111>. Dans les aciers inoxydables austénitiques, ces boucles sont supposées être de nature interstitielle. La forte mobilité des interstitiels dans la microstructure permettrait ainsi l'accroissement des boucles jusqu'à ce que les concentrations en interstitiels et en lacunes soient stabilisées. Cependant d'autres études réfutent cette affirmation et indique que ces boucles de Frank peuvent également être de nature lacunaire [Lee 2001b, Edwards 2003b]. Les boucles de Frank formées seraient de nature interstitielle ou lacunaire mais ces dernières, instables, se défauteraient. Seules les boucles de type interstitielle continueraient donc à grandir ce qui explique qu'elles soient majoritairement observées au MET.

La densité des boucles de Frank est maximale entre 300 et 400°C. Après 400°C, elle diminue drastiquement. La **figure I.6** représente l'évolution de la densité de dislocations en fonction de la température d'irradiation sur un acier irradié aux neutrons.

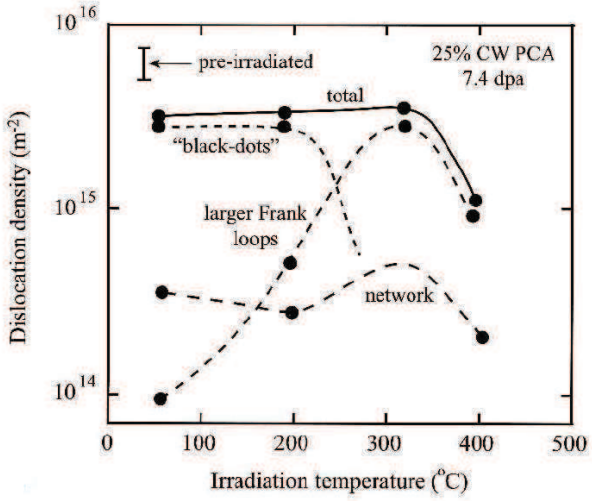


Figure I.6: Effet de la température d'irradiation sur la densité de dislocations d'un acier austénitique inoxydable irradié aux neutrons [Zinkle 1993].

L'augmentation de la densité de dislocations s'accompagne d'une diminution de la taille des boucles.

Indépendamment de la température, la dose a également une forte influence sur les populations de défauts. La taille des boucles de dislocation augmente avec celle-ci puis tend à saturer aux environs de 5 dpa. Pour une température d'environ 300°C, leur taille n'excède pas 20 nm et se situe généralement dans la gamme 7-12 nm.
De même, leur densité augmente avec la dose puis sature aux environs de 1 dpa et pour une valeur de l'ordre de 1.10^{23} m^{-3} (**figure I.7**) [Bruemmer 1999].

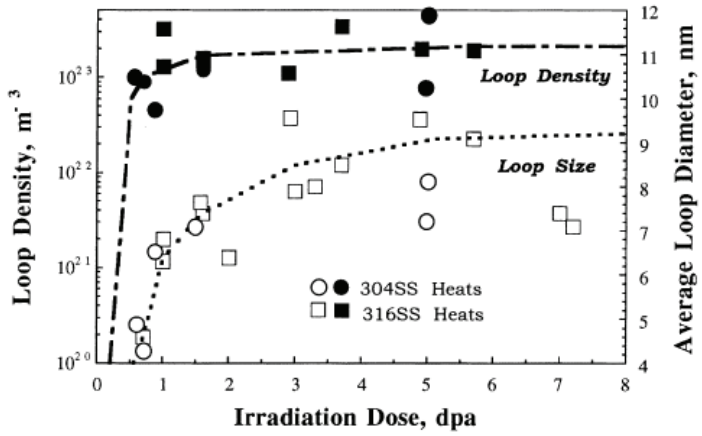


Figure I.7 : Densité et taille des boucles en fonction de la dose pour des irradiations à 280°C en milieu REP ou REB [Bruemmer 1999]

Les domaines d'existence des boucles, black dots et réseau de dislocations en fonction de la dose et de la température d'irradiation pour un acier de type 316 ont été tracés par Maziasz [Maziasz 1993] et sont représentés sur la **figure I.8.**

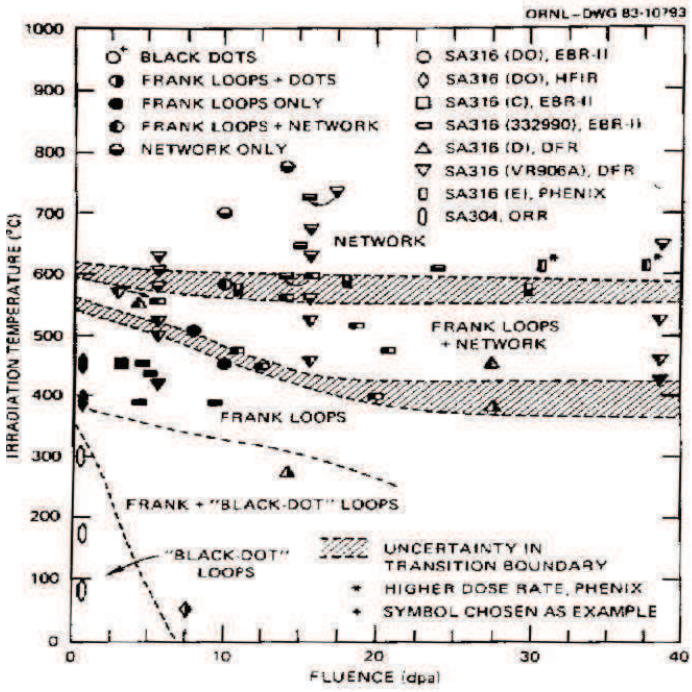


Figure I.8 : Domaine d'existence des boucles, black dots et réseau de dislocations d'[Maziasz 1993]

- Cavités

Parallèlement à la formation des boucles, l'agglomération des amas lacunaires conduit à la formation de cavités (**figure I.9)**.

Dans certains cas, ces cavités sont supposées pleines de gaz et appelées bulles. En théorie, les bulles sont des amas lacunaires pour lesquels la pression interne de gaz (He par exemple) est supérieure à la tension de surface de l'amas. En réalité, le terme bulle ou cavité n'est pas toujours bien défini dans la littérature et les petits amas formés de quelques lacunes sont souvent appelés bulles sans pour autant que cela ait été vérifié. A contrario les gros défauts *i.e.* ceux atteignant quelques nm sont généralement considérés comme des cavités.

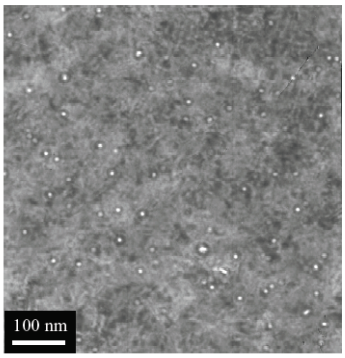


Figure I.9 : Amas lacunaires dans un acier 316 écroui irradié à 360°C et 13 dpa dans un REP [Fujii 2002]

De récentes modélisations [Zouari 2012] ont montré que la quantité d'hélium générée dans les REP (et donc a fortiori dans les RNR) n'était pas suffisante pour former des bulles au sens stricte du terme. Seules les irradiations aux ions avec implantation d'hélium à un fort rapport He/dpa sont susceptibles de conduire à la formation de bulles.

La présence de cavités sous irradiation pour une température supérieure à 300°C a été rapportée à de nombreuses reprises [Edwards 2003a, Edwards 2006, Edwards 2009, Thomas 1982]. Elles sont nombreuses (environ 10^{22} à 10^{23} m^{-3}) et leur taille est généralement de 2 à 3 nm. Des nanocavités ont ainsi été dénombrées sur une zone irradiée à 70 dpa et 315°C après 16 ans d'opération en pleine puissance dans le réacteur Tihange (vis de cloisonnement en 316 écroui) [Edwards 2009]. La taille de ces cavités varie de 1 à 3 nm. Elles peuvent être stabilisées par de l'hélium ou bien encore de l'hydrogène.
De façon générale, la taille des cavités augmente avec la température et la dose tandis que leur densité diminue [Zinkle 1993]. Les domaines d'existence des cavités en RNR en fonction de la température sont présentés sur la **figure I.10**.

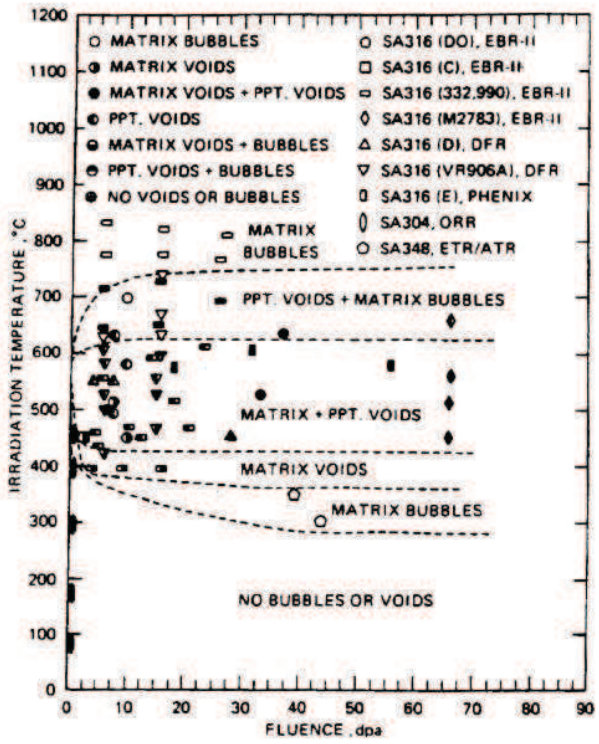


Figure I.10: Formation des cavités en fonction de la dose et de la température [Maziasz 1993, Zinkle 1993]- la distinction bulles/cavités a été effectuée selon un critère de taille et de forme, à la vue des récents résultats de Zouari [Zouari 2012], le terme bulle serait à remplacer par cavité.

En plus de la dose et de la température, le débit de dose a une influence significative sur la population de cavités. Un faible débit de dose augmente la germination et la croissance des cavités [Edwards 2003a, Allen 2006, Okita 2006]. Des différences ont par exemple été mises en évidence sur une vis en acier 316 ayant servi plusieurs années en réacteur REP. Les tailles moyennes de cavités mesurées présentaient jusqu'à un facteur 4 entre différentes zones de ce même composant [Edwards 2003a]. Selon l'auteur, ce facteur 4 est lié à la variation du débit de dose. Cependant ni les températures

d'irradiation ni les doses atteintes n'étaient strictement équivalentes, ce qui joue sur la taille et la densité des cavités.

- Tétraèdres de faute d'empilement (SFTs)

Les tétraèdres de faute d'empilement sont des amas lacunaires tridimensionnels ayant la forme d'un tétraèdre, constitué de 4 fautes d'empilement. Du fait de la faible énergie de défaut d'empilement des aciers inoxydables austénitiques, il était attendu que les SFTs soient présents dans la microstructure après irradiation. Pourtant la présence de SFTs dans les aciers inoxydables austénitiques irradiés reste encore aujourd'hui très controversée.
Les SFTs ont été observés dans des alliages austénitiques modèles ou de haute pureté jusqu'à 300°C. Au-delà de 300°C et/ou pour de fortes doses, les cavités deviennent ensuite dominantes dans la majorité des cas. Certains auteurs [Horiki 1994, Horiki 1996, Kiritani 1994] en ont conclu qu'à haute température et/ou forte dose, les SFTs évoluaient en cavités. Cette théorie a été contredite par la suite par Satoh et al. [Satoh 2007] car seulement 5% des cavités se forment de manière adjacente aux SFTs. Il fait l'hypothèse que les cavités observées à plus haute température sont issues de petites cavités nucléées non observables au MET.
La présence de SFTs a également été rapportée dans des alliages ternaires Fe-15Cr-16Ni, irradiés entre 100 et 400°C.

Dans les aciers commerciaux, les observations sont en revanche contradictoires. Le **tableau I.4** résume les résultats de ces observations pour des aciers de type 304 et 316.

Alliage	**Dose (dpa)**	**T irradiation (°C)**	**SFTs**	**Densité (m^{-3})**	**Taille (nm)**
304	$1{,}3.10^{-4}$	280	Non	-	-
304L	0,15	250	Non	-	-
316L	0,3	280	Non	-	-
304L	0,5	120	Oui	n.a	< 0,2
304L	De 0,7 à 7	250	Oui	$\sim 10^{22}$	1,5
316F	10,4	250	Oui	n.a	2
Type 316	> 23,5 17	520 400	Oui Oui	n.a n.a	15 < 2
316	De 1.10^{-4} à 19,5	De 65 à 320	Non	-	-

Tableau I.4: Résumé des observations expérimentales de SFTs dans les alliages commerciaux de type 304 et 316 d'après [Schibli 2013]

D'après le **tableau I.4**, des aciers commerciaux irradiés à une température inférieure à 300°C et à des doses inférieures à 0,3 dpa n'ont pas révélé de SFTs. Au-delà de 0,5 dpa et jusqu'à des doses

supérieures à 23,5 dpa pour des températures comprises entre 120 et 520°C, la présence de tels amas a été rapportée. Ces derniers résultats sont en contradiction avec les observations conduites sur un 316 pour des doses comprises entre 0,9 dpa et 19,5 dpa [Hashimoto 2006, Bailat 2000].

Des SFTs ont par ailleurs été observés récemment dans un 304L irradié à 320°C et 46 dpa dans le réacteur à neutrons rapides Bor-60 (**figure I.11**). Ils n'avaient pas été observés sur le même matériau irradié dans les mêmes conditions mais à plus faible dose (5 et 10 dpa).

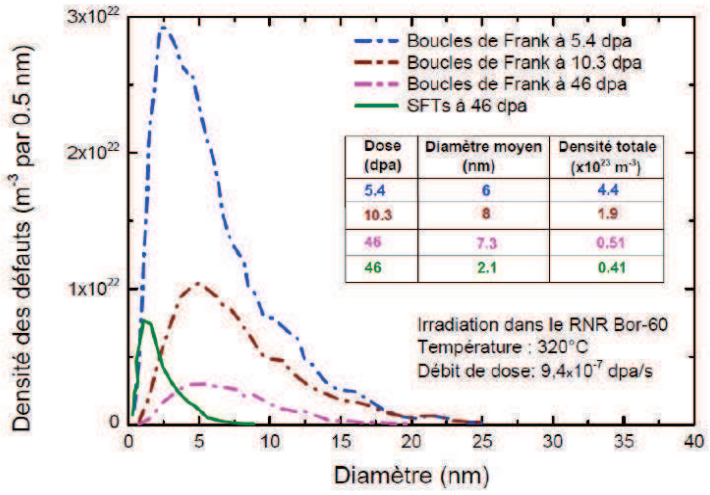


Figure I.11: Distributions des boucles de Frank (traits pointillés) et des SFTs (traits pleins) dans un 304L irradié dans le RNR Bor-60 à 320°C et 9,4.10^{-7} dpa.s^{-1} à 5, 10 et 46 dpa [Fournier 2012, d'après Zouari 2012]

Enfin, aucune observation expérimentale de SFTs sur des aciers inoxydables austénitiques irradiés en réacteur REP n'a pour l'instant été rapportée.

- <u>Evolution du réseau de dislocation initial</u>

Dans les matériaux issus de réacteurs à eau sous pression, le réseau de dislocations initial n'a jamais pu être observé [Thomas 2002, Fujii 2002]. Pokor [Pokor 2002] rapporte qu'après une irradiation à 1 dpa et 350°C, des cellules de dislocations et des black dots de 2 nm coexistent. Après 5 dpa, les cellules ne sont plus observables. Ainsi, le réseau de dislocations initial d'un matériau serait affecté par la création des défauts d'irradiation et aurait tendance à disparaître [Maziasz 1992].
Dans les réacteurs à neutrons rapides, le réseau de dislocations évolue par interaction avec les boucles de Frank. Avant d'arriver à saturation, la densité du réseau de dislocations augmente par défautement des boucles de Frank et incorporation de celles-ci dans le réseau pour les aciers mis en solution. Cette même densité diminuerait par recuit dans le cas des aciers écrouis. Les aciers écrouis et remis en solution ont donc *in fine* une densité à saturation identique, indépendante de l'état métallurgique initial. Cette saturation serait atteinte après une vingtaine de dpa pour l'état mis en solution.

I.2.3 Modifications chimiques induites par l'irradiation

I.2.3 a) Ségrégation induite par l'irradiation (RIS)

La ségrégation induite aux joints de grains (ou RIS) se traduit par l'appauvrissement ou l'enrichissement à l'échelle locale de certains éléments. Elle dépend du flux et de la température d'irradiation et est maximale aux températures de fonctionnement (de 250°C à 400°C) des réacteurs à eau légère (REP et REB) [Bruemmer 1999, Scott 1994]. Ces températures correspondent aux températures en service des LWRs.

Deux mécanismes sont avancés pour expliquer ce phénomène. La **figure I.12** schématise ces deux mécanismes.

- Effet Kirkendall inverse [Okamoto 1979]

Pour des raisons énergétiques, les défauts ponctuels libres vont s'éliminer sur les puits de défauts, tels que les joints de grains, les surfaces libres ou les dislocations. Un flux de lacunes et interstitiels va donc s'établir entre les puits de défauts. Dans le cas des flux de lacunes, l'espèce dont le coefficient de diffusion lacunaire est le plus élevé sera appauvrie au niveau des puits et à l'inverse l'élément dont le coefficient de diffusion lacunaire est le plus faible sera enrichi. Des flux d'interstitiels s'établissent de la même façon et l'espèce qui possède cette fois le coefficient de diffusion des interstitiels le plus élevé sera enrichie.

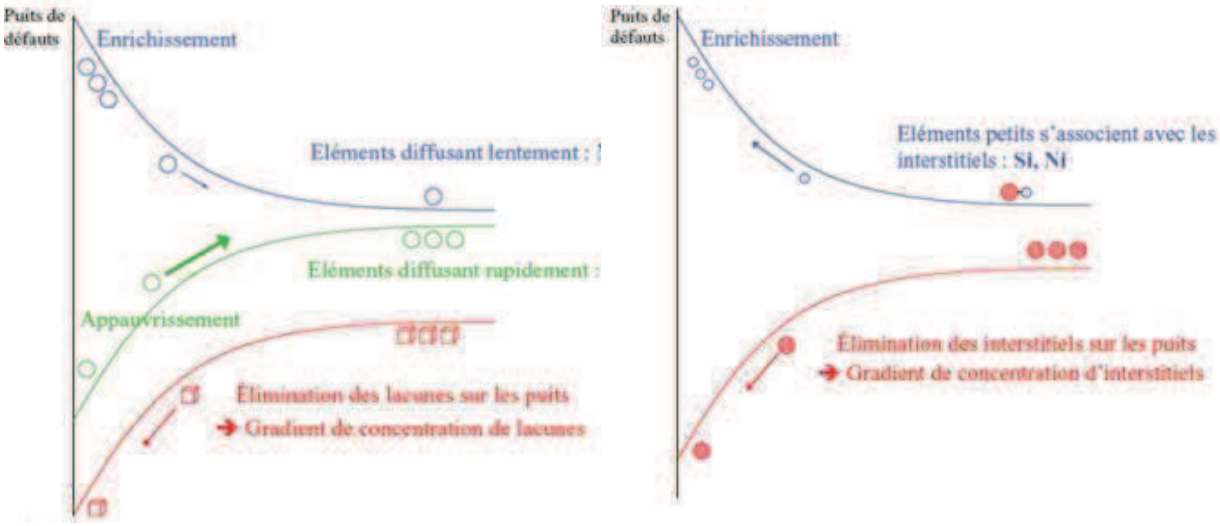
- Mécanisme d'association d'interstitiels

Ce deuxième mécanisme est basé sur la formation de complexes « soluté-défaut » avec des éléments de petite taille, tels que le silicium ou le phosphore. Le complexe va diffuser vers les puits où le défaut s'éliminera. Un gradient de concentration et donc un flux de complexes sera créé, amenant d'autres éléments de soluté enrichir la zone autour des puits.

Le mécanisme de Kirkendall inverse est aujourd'hui le mécanisme privilégié pour expliquer la RIS dans les conditions d'irradiation des REP [Allen 1998].

- RIS des aciers inoxydables austénitiques en milieu REP

Comme cela fut indiqué précédemment, la ségrégation est maximale pour les températures de fonctionnement des REP, aux alentours de 300°C. La composition des joints de grains dans ces conditions est donc modifiée, en fonction des coefficients de diffusion de chaque espèce. On constate notamment un appauvrissement en Cr, en Mo et en Mn et un enrichissement en Ni et Si principalement. Le fer possède un coefficient de diffusion intermédiaire et son appauvrissement ou enrichissement dépendra de la composition exacte de l'acier et en particulier du rapport Ni/Cr. Généralement le joint de grains est appauvri en fer [Bruemmer 1999, Was 1994].
Si le matériau a subi un traitement thermique préalable à l'irradiation, conduisant à l'enrichissement des joints de grains en Cr, alors le profil de composition obtenu atour de ces mêmes joints suite à l'irradiation montre une forme caractéristique en W [Was 2007b]. Dans le cas d'un acier non traité thermiquement, la largeur de la zone appauvrie obtenue est de l'ordre de 5 à 10 nm (**figure I.13**).



(a) (b)

Figure I.12: Mécanismes envisagés dans le cas de la ségrégation induite par l'irradiation (RIS) d'après [Bruemmer 1999] et [Etienne 2009], (a) Kirkendall inverse et (b) association d'interstitiels

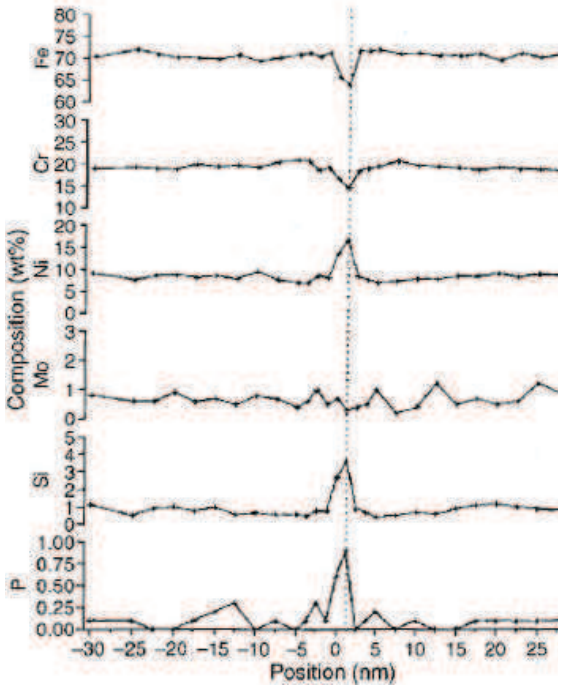


Figure I.13 : Profil de composition obtenu sur un acier de type 304 après irradiation aux neutrons à 275°C [Was 2007b]

La RIS augmente avec la dose puis sature aux environs de 5 dpa pour une gamme de températures proche de 300°C. La **figure I.14** montre l'évolution de la concentration en Cr autour de joints de grains dans des aciers 304 et 316 irradiés aux neutrons en fonction de la dose.

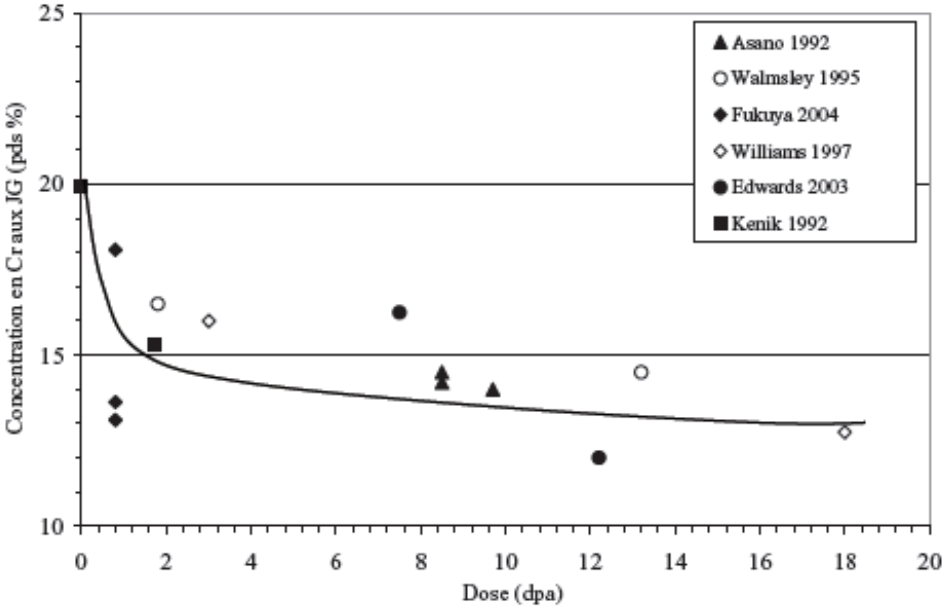


Figure I.14: Evolution de la concentration en Cr en fonction de la dose d'irradiation sur des aciers 304 et 316 [Etienne 2009].

I.2.3 b) Précipitation

Une autre conséquence des flux d'atomes de l'alliage vers les puits de défauts est la formation accélérée de précipités ou la formation de nouvelles phases, non prévues par la thermodynamique. Si la concentration en soluté dépasse localement la limite de solubilité, une nouvelle phase précipite. Ainsi, des carbures de chrome et principalement des précipités γ' (Ni_3Si) ou G ($M_6Ni_{16}Si_7$) peuvent être formés [Shoji 1998, Isobe 2009, Zinkle 1993, Edwards 2003a]. Ces précipités sont souvent attachés aux dislocations et rarement observés au niveau des joints de grains [Lee 1981]. Ils sont autant d'obstacles au mouvement des dislocations et participent donc au durcissement constaté pour les matériaux irradiés.

Des études ont été menées sur des pièces ayant fissuré en milieu REP. Ainsi, Edwards et al [Edwards 2003a] ont travaillé en 2003 sur une des vis provenant du réacteur belge Tihange après 20 ans d'exposition. Trois zones ont été analysées par microscopie électronique en transmission (MET), respectivement irradiées à 19,5 dpa à 320°C, 12,2 dpa à 343°C et 7,5 dpa à 333°C. Cette analyse a révélé une fine dispersion de précipités γ' (**figure I.15 (a)**), d'une taille moyenne de 3 nm avec une densité de $0{,}6.10^{23}$ m^{-3}. Une autre phase, non identifiée, a également été observée mais dans une moindre mesure (**figure I.15 (b)**). Etienne [Etienne 2009] a caractérisé la présence de phases enrichies en Ni et Si par sonde atomique sur une vis irradiée en réacteur (**figure I.16**).

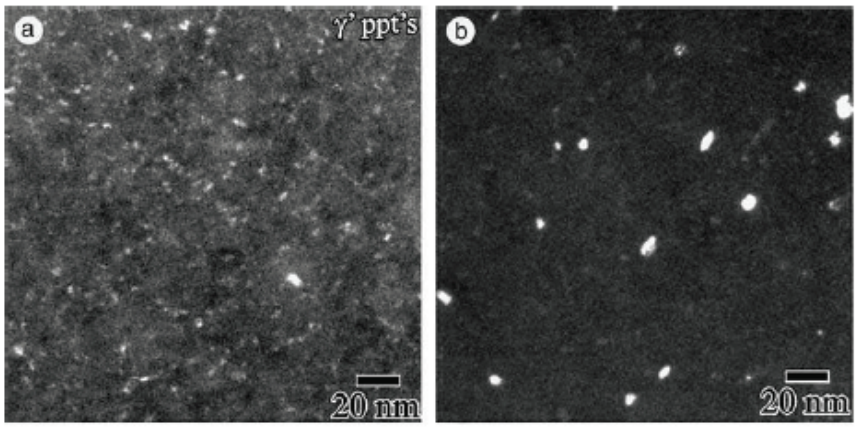


Figure I.15: Micrographies MET en fond noir illustrant (a) la précipitation γ' observée sur une vis du réacteur Tihange après 20 ans d'exposition, (b) la précipitation d'une phase non déterminée sur cette même vis [Edwards 2003a]

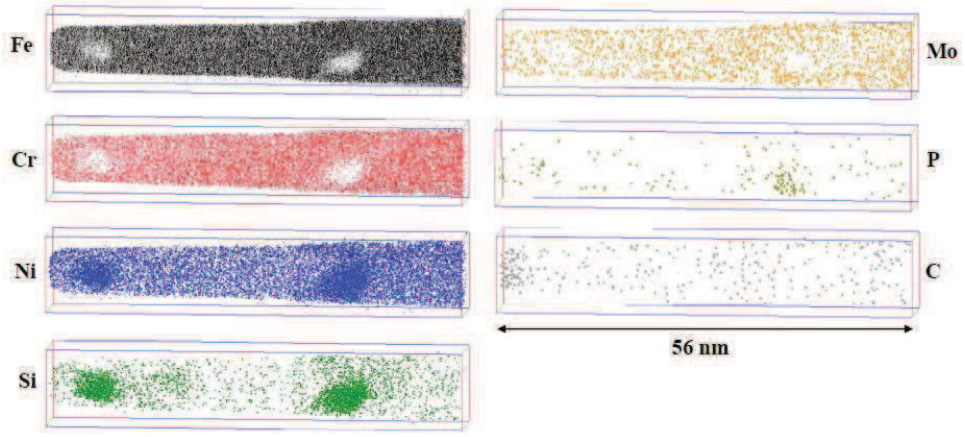


Figure I.16: Résultats de sonde atomique sur une vis 316 irradié en REP – des amas riches en Si et Ni et pauvres en Cr et Fe sont visibles [Etienne 2009]

I.2.3 c) Transmutation

Nous avons précédemment évoqué la formation *in situ* d'hélium par transmutation du bore et du nickel. De l'hydrogène peut également être produit par transmutation ou provenir de facteurs environnementaux. Cet hydrogène peut être stocké dans les cavités des aciers inoxydables irradiés comme cela a été démontré par Garner et al. [Garner 2006].

Fujimoto [Fujimoto 2005] et Fujii [Fujii 2002] ont étudié la production d'hélium et d'hydrogène dans les aciers inoxydables. Leurs travaux ont montré que la production d'hydrogène dans le matériau était non linéaire en fonction de la dose d'irradiation. Les **figures I.17 et I.18** représentent les concentrations moyennes et la vitesse de génération de l'hélium et de l'hydrogène en fonction de la dose. Le ratio de génération pour l'hélium est de l'ordre de 20 appm d'hélium par dpa pour une dose inférieure à 10 dpa. Les quantités totales d'hélium et d'hydrogène augmentent avec la dose.

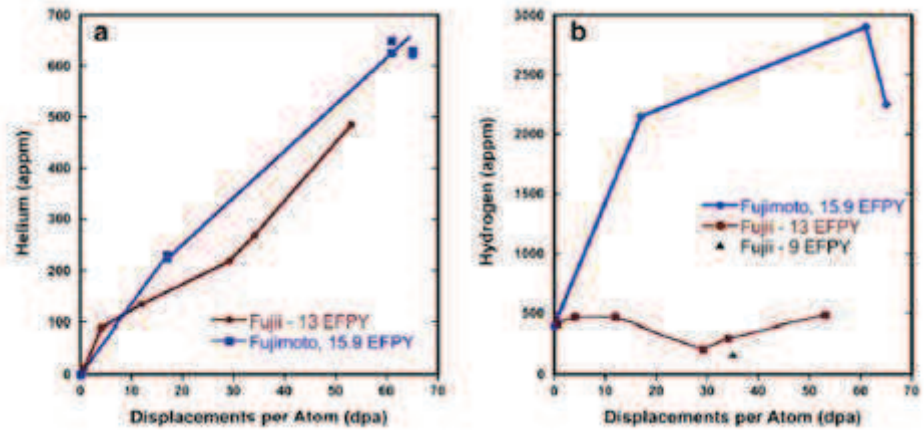


Figure I.17: Concentrations moyennes en hélium (a) et hydrogène (b) mesurées par Fujimoto et Fujii [Fujimoto 2005, Fujii 2002]

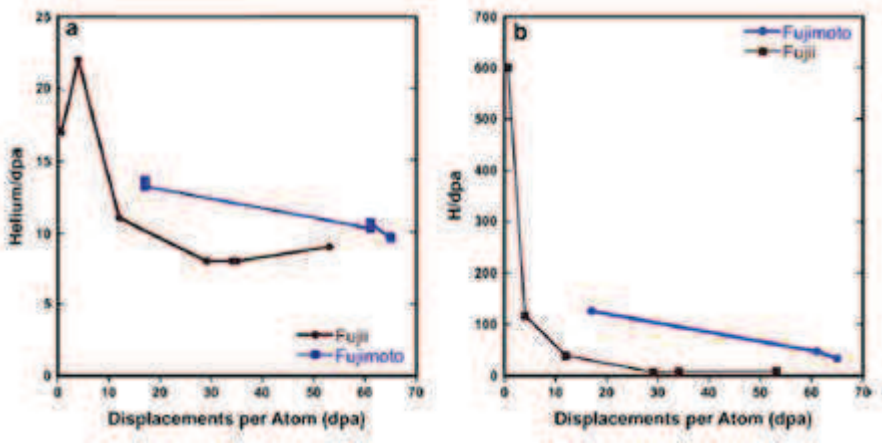


Figure I.18 : Vitesses de génération de gaz par dpa calculées par Fujimoto et Fujii [Fujimoto 2005, Fujii 2002]

L'hélium ou l'hydrogène sont présents en quantité non négligeable dans les structures internes et ce même après une faible dose d'irradiation. Ceci pourrait constituer une cause supplémentaire de fragilité des joints [Bruemmer 1999, Shoji 1998, Fujimoto 2005]. Cependant cet effet n'est pas encore clairement démontré à ce jour.
En plus de la fragilisation intergranulaire, l'hélium a pour effet de stabiliser les cavités, ce qui pourrait à forte température contribuer à réduire la phase de germination et finalement augmenter le taux de gonflement des austénitiques [Fournier 2012].

I.2.4 Simulation des dommages d'irradiation neutronique avec d'autres particules

Les essais sur des matériaux irradiés aux neutrons en réacteurs sont très complexes et très coûteux à réaliser du fait de l'activation de la matière. Afin de contourner ces difficultés, des tests ont été conduits pour valider l'utilisation d'ions tels que les protons ou les ions dits « lourds » comme le nickel ou le fer afin de simuler l'irradiation neutronique.

Du fait de leur charge électrique et de leur masse, les ions pénètrent moins profondément dans la matière que les neutrons. Un exemple comparatif de la profondeur atteinte par des ions Ni^{++} de 5MeV, des protons de 3,2 MeV et des neutrons est illustré sur la **figure I.19**.

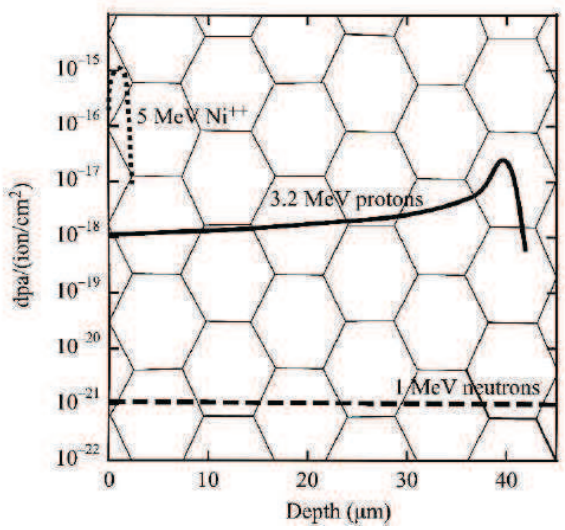


Figure I.19: Profondeur des dommages créés par le bombardement aux ions [Was 2007a]

Les différences entre neutrons et ions sont nombreuses. Contrairement aux neutrons qui présentent un profil d'endommagement constant sur plusieurs millimètres, les protons et surtout les ions lourds tels que Ni^{++} pénètrent sur des distances très inférieures à 100 µm (cette distance dépend de leur énergie). Les protons de quelques MeV possèdent néanmoins l'avantage d'un taux de dommage homogène sur plusieurs micromètres de profondeur.
En revanche, les ions lourds forment des cascades de déplacement plus proches de celles formées par les neutrons et sont utilisés avantageusement pour simuler de fortes doses en un temps très court. En fonction de l'objet de l'étude, on pourra donc choisir l'une ou l'autre de ces techniques.

Le **tableau I.5** récapitule les avantages et inconvénients de chaque type d'irradiation. Une des limitations des ions réside dans le fait que l'on ne puisse pas reproduire les réactions de transmutation.
Enfin, il faut tenir compte des effets du débit de dose. Pour simuler des dommages créés par les neutrons à environ 300°C, température moyenne de fonctionnement des réacteurs à eau légère, la température d'irradiation aux ions est décalée vers des températures supérieures. Ces températures supérieures accélèrent la diffusion des défauts et contrebalancent les différences engendrées par la charge et la masse de ces particules en regard des neutrons [Was 2007a].

Les protons étant les particules les plus proches de ces derniers, le décalage de température est alors relativement faible comparativement aux autres types d'irradiation. Un exemple de couplage particule / température pour simuler les effets de la RIS à 300°C sur des aciers inoxydables austénitiques est présenté sur la **figure I.20**. Cet exemple montre également les écarts de débits de dose en fonction de la nature des particules.

Heavy Ions

Advantages	*Disadvantages*
High dose rate – short irradiation times	Very limited depth of penetration
High T_{avg}	Strongly peaked damage profile
Cascade production	Very high beam current (high dpa rate) requires high temperature
	No transmutation
	Potential for composition changes at high dose via implanted ion

Protons

Advantages	*Disadvantages*
Accelerated dose rate – moderate irradiation times	Minor sample activation
Modest ΔT required	Smaller, widely separated cascades
Good depth of penetration	No transmutation
Flat damage profile over tens of μm	

Tableau I.5 : Avantages et inconvénients des ions lourds et des protons dans la simulation des dommages d'irradiation créés par les neutrons [Was 2007a]

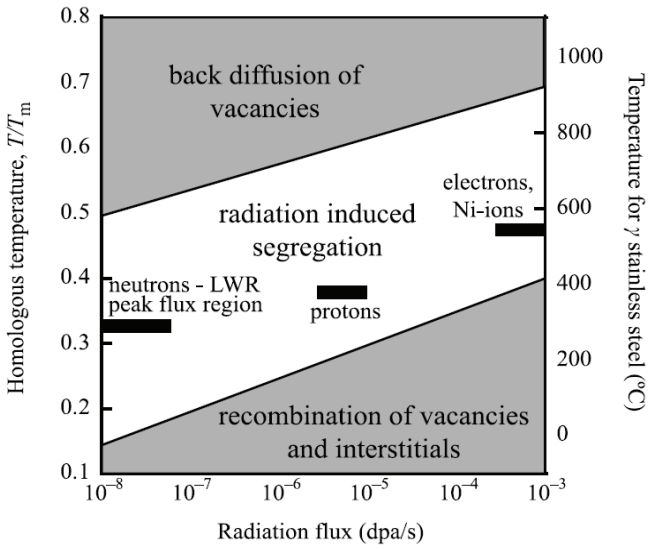


Figure I.20 : Prédiction des effets de la température d'irradiation et du débit de dose sur la ségrégation induite par l'irradiation [Bruemmer 1999, Was 2007a]

La profondeur endommagée est liée à l'énergie des particules incidentes et pourrait donc être augmentée par augmentation de l'énergie des protons. Malheureusement, cette énergie est limitée par la possible activation des nombreux éléments d'alliage des aciers. La profondeur, le débit de dose et l'activité résiduelle en fonction de l'énergie des protons sont représentés sur la **figure I.21**. Le meilleur compromis entre ces différents paramètres est obtenu pour des énergies comprises entre 2 et 3,5 MeV.

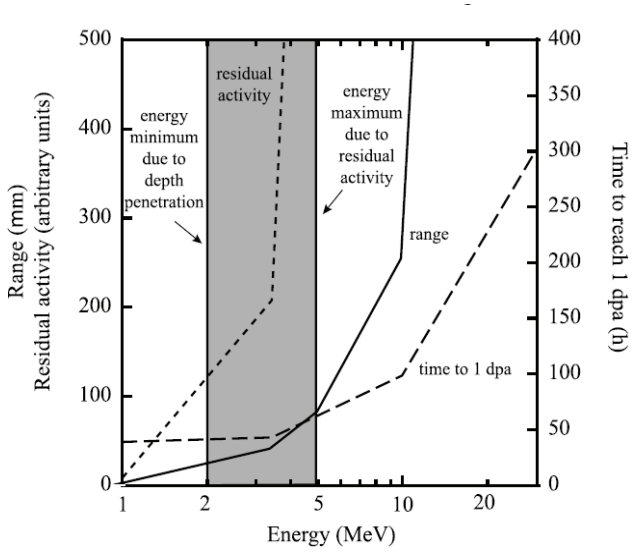


Figure I.21: Evolution de la profondeur, de l'activité résiduelle et du temps nécessaire pour atteindre 1dpa en fonction de l'énergie des protons [Was 2007a]

Was [Was 2002] a irradié aux protons des aciers de type 304 et 316 à une température de 360°C et pour une dose comprise entre 0,3 et 5 dpa de façon à s'approcher d'une irradiation aux neutrons à 275°C pour la même gamme de doses. Il a ensuite comparé la chimie des joints de grains, la densité et la taille des boucles de dislocations, la dureté et enfin la sensibilité des matériaux à la fissuration par corrosion sous contrainte post-irradiation en milieu aéré et désaéré à 288°C. Ces analyses lui ont permis de conclure à un très bon accord entre protons et neutrons avec cependant quelques différences sur la microstructure obtenue. La taille des boucles est plus grande et leur densité plus élevée après irradiation aux neutrons que celles des populations recensées sur les aciers irradiés aux protons (**figure I.22**). Puisque les boucles sont moins nombreuses et plus petites, la limite d'élasticité après irradiation aux protons est aussi plus faible que celle mesurée pour une irradiation aux neutrons.
Les essais de traction à vitesse lente en milieu REB simulé sur le 316 irradié à 5 dpa aux protons et aux neutrons ont montré la même sensibilité du matériau à la fissuration, quel que soit le type d'irradiation.

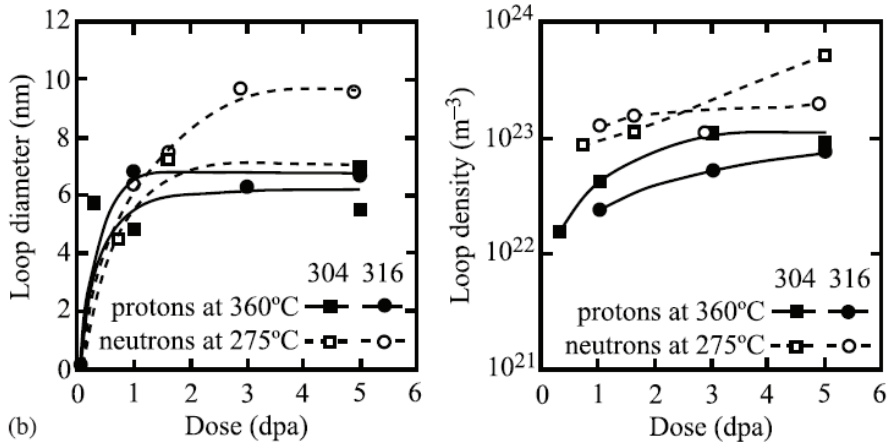


Figure I.22 : Comparaison de la taille et densité des boucles de dislocation après irradiations aux neutrons à 275°C et aux protons à 360°C d'un même acier austénitique commercial [Was 2002]

Des travaux de Busby [Busby 2001] ont également montré un impact similaire de la dose d'irradiation sur la rupture intergranulaire entre matériaux irradiés aux neutrons et aux protons. Un grand nombre d'études aujourd'hui utilisent les protons pour simuler l'irradiation neutronique.
Des irradiations aux électrons, qui ne créent que des paires de Frenkel, peuvent aussi être couplées aux ions ou aux neutrons pour simuler la création de défauts sous irradiation et déterminer leur nature [Horiki 1998, Sakaguchi 2008].

I.3 Propriétés mécaniques des aciers inoxydables austénitiques irradiés

I.3.1 Propriétés en traction des aciers inoxydables austénitiques irradiés – durcissement induit

L'augmentation de la dureté et donc de la limite d'élasticité avec la dose s'explique par l'évolution de la taille et de la densité des boucles (**figure I.23**) [Chopra 2011]. La présence de ces obstacles au mouvement des dislocations aboutit à une augmentation significative de la limite d'élasticité et une perte de la ductilité. La limite d'élasticité d'un acier irradié à 5 dpa peut ainsi être multipliée par 5 comparée à celle d'un acier non irradié [Was 2007b]. L'augmentation de la limite d'élasticité croît avec la dose puis atteint un plateau vers 10 dpa [Bruemmer 1999].

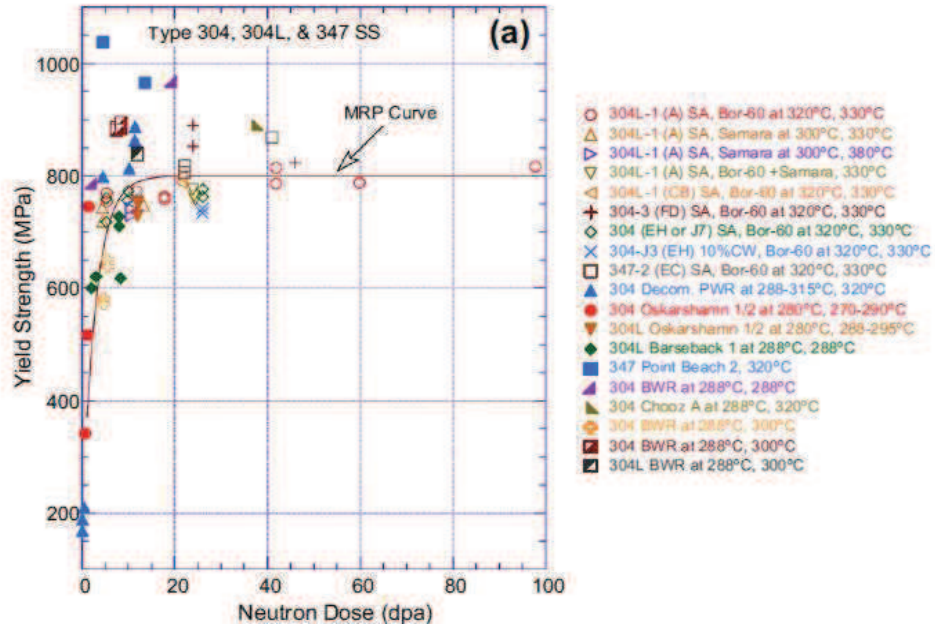


Figure I.23 : Effet de la dose sur la limite d'élasticité pour des aciers inoxydables austénitiques irradiés et testésentre 270°C et 380°C [Chopra 2011]

Busby et al. [Busby 2005] ont estimé à partir des données fournies dans la littérature une corrélation entre dureté et limite d'élasticité pour les aciers inoxydables austénitiques irradiés. La relation (**I.4**) est indépendante de la température et de la composition de l'acier.

La variation de dureté correspond à l'écart mesuré suite à l'irradiation entre le matériau non irradié et le même matériau post-irradiation, quel que soit son état métallurgique initial.

$$\Delta\sigma_y \text{ (MPa)} = 3.03\Delta H_v \text{ (kg/mm}^2\text{)} \qquad \textbf{(I.4)}$$

Le durcissement induit par l'irradiation dépend à la fois de la dose, de la température d'irradiation et de la composition de l'alliage. Il est maximal aux environs de 300°C [Pokor 2002, Odette 1991], ce qui correspond aussi globalement à la densité maximale des boucles de dislocation. Au-delà de 400°C, les résultats des essais de traction indiquent une diminution de cette valeur (**figure I.24**).

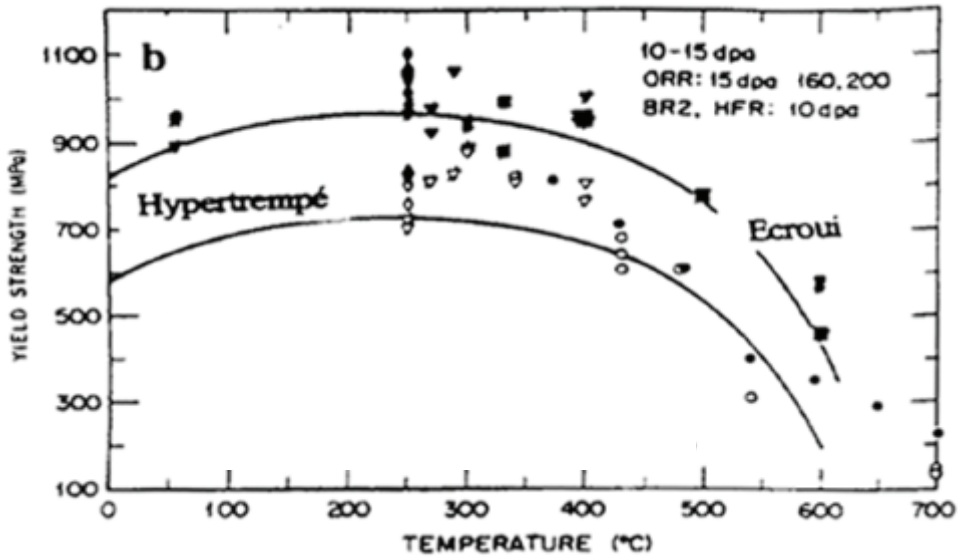


Figure I.24: Evolution de la limite d'élasticité d'aciers austénitiques en fonction de leur état métallurgique et de la température d'irradiation [Odette 1991]

La limite d'élasticité diminue également lorsque la température d'essai augmente [Pokor 2002, Chopra 2011].
La limite d'élasticité et la contrainte maximale avant rupture ne sont pas les seules propriétés à être impactées par l'irradiation, l'ensemble du comportement en traction est modifié. Au-delà d'une certaine dose, la limite d'élasticité atteint quasiment la valeur de la contrainte maximale avant rupture et le matériau présente alors un adoucissement (**figure I.25**) [Pokor 2002, Lucas 1993]. Cet adoucissement serait lié au balayage et à l'annihilation des défauts d'irradiation par les dislocations. L'allongement à rupture est également plus faible et ce de façon significative, avec une perte de ductilité d'autant plus importante que la dose est élevée.

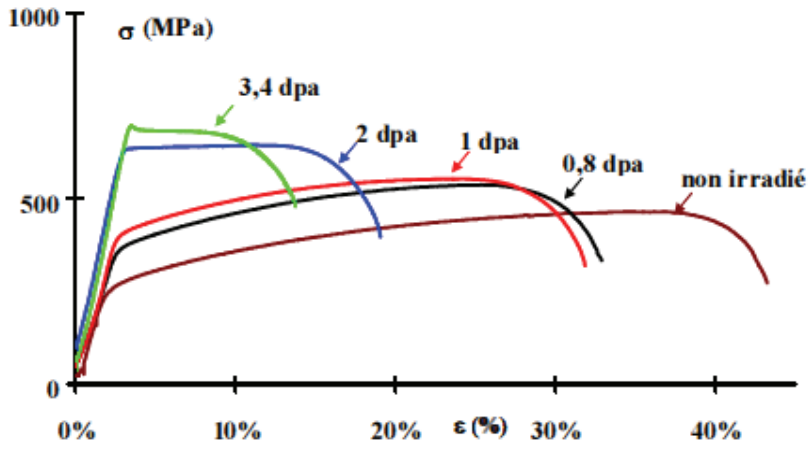


Figure I.25 : Courbes de traction d'un acier 304 hypertrempé irradié et testé à 330°C [Pokor 2002]

La majorité des études considèrent que la microstructure initiale et notamment le réseau de dislocations préexistant disparaît dès les premières étapes de l'irradiation et que les propriétés mécaniques à forte dose (donc à saturation) sont indépendantes de l'état initial [Byun 2003a]. Néanmoins d'autres études montrent que la contrainte à saturation est plus élevée pour des matériaux écrouis [Odette 1991, Fukuya 2006], ce qui suggère une influence du réseau de dislocations préexistant.

I.3.2 Mécanismes de déformation des aciers inoxydables austénitiques irradiés

La déformation plastique des aciers austénitiques irradiés produit une large variété de microstructures [Byun 2003a, Farrell 2004, Hashimoto 2000, Bailat 2000, Lee 2001 a et b] parmi lesquelles :

- les empilements de dislocations
- les canaux de dislocations
- les fautes d'empilement
- les macles
- la formation de martensite

Le maclage et la canalisation des dislocations sont les deux mécanismes majoritairement rapportés dans la littérature pour les matériaux irradiés.
Nous avons vu que la faible E.D.E des aciers inoxydables austénitiques non irradiés favorise le glissement planaire au détriment du glissement dévié. Or, les conséquences de l'irradiation sur la microstructure accentuent ce comportement. En effet, les fortes densités de défauts créées sous irradiation constituent des obstacles au mouvement des dislocations et durcissent fortement le matériau. Lorsque les boucles sont défautées en cours de déformation, cela crée un passage préférentiel pour les dislocations glissiles suivantes. Ce processus aboutit à une forte hétérogénéité de la déformation et donc à une forte localisation de celle-ci dans des bandes de déformation. La localisation est d'autant plus importante que la dose d'irradiation est élevée ou que l'E.D.E est faible pour une faible déformation [Busby 2004, Jiao 2005].

Cette localisation de la déformation résulte de deux mécanismes distincts: le maclage d'une part et le la canalisation des dislocations des dislocations parfaites (DCD ou Dislocation Channeling Deformation) d'autre part [Byun 2003 a et b, Farrell 2004, Bailat 2000].
La canalisation des dislocations résulte de l'annihilation, par le glissement de dislocations parfaites, des défauts induits par l'irradiation (boucles de dislocations sessiles et amas de défauts interstitiels). Cela conduit à des zones préférentielles pour le glissement des dislocations suivantes, glissement qui est de ce fait canalisé dans des bandes quasi exemptes de défauts appelées canaux de dislocations ou « bandes claires » et illustrées sur la **figure I.26**.

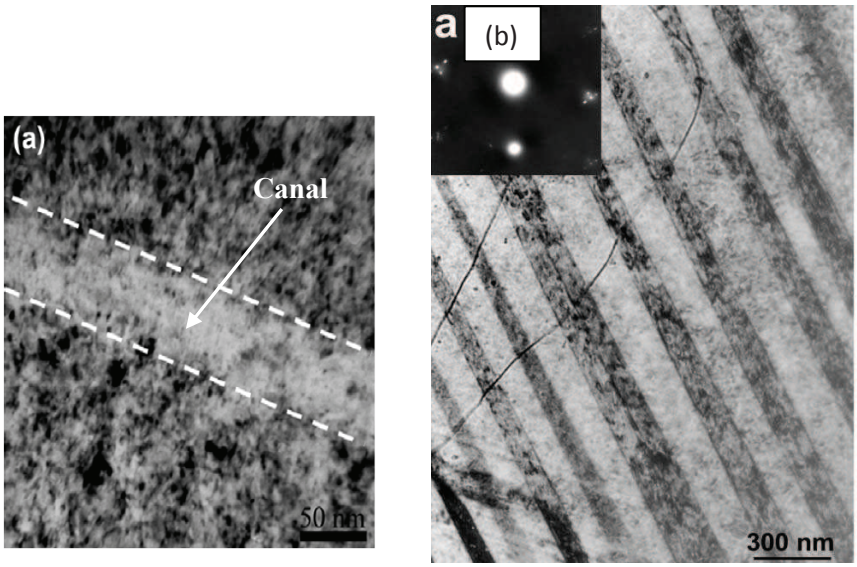


Figure I.26: Micrographies MET (a) d'un acier inoxydable irradié aux protons à 5 dpa et 360°C puis sollicité jusqu'à 7% de déformation à 288°C sous argon [Jiao 2010] et (b) macles observées après déformation de 10% à température ambiante sur un acier 316LN irradié à 200°C et 10 dpa aux ions Fe [Lee 2001a]

L'un ou l'autre de ces deux mécanismes est favorisé suivant la température de l'essai et la vitesse de sollicitation. Les essais à température ambiante et sous forte vitesse de sollicitation favorisent le maclage tandis que la canalisation des dislocations est privilégiée pour des températures élevées et des vitesses de sollicitation faibles [Zinkle 1993, Byun 2004, Fukuya 2008, Cole 1995, Victoria 2000].

La canalisation des dislocations dans les métaux irradiés a été observée pour la première fois dans les années 60 sur des métaux purs [Greenfield 1961]. Les traces de ces canaux sont parallèles aux plans de glissement des dislocations de type {111} pour les structures cubiques à faces centrées. Depuis, de nombreuses études ont rapporté l'existence de ces canaux dans les aciers inoxydables irradiés [Thomas 2002, Bailat 2000, Lee 2001b, Byun 2004, Victoria 2000, Byun 2006].

En suivant l'exemple des cartes d'Ashby, Farrell et Byun [Farrell 2004, Byun 2006] ont établi des cartes de déformation pour un acier 316 en fonction de la dose (**figures I.27** et **I.28**).

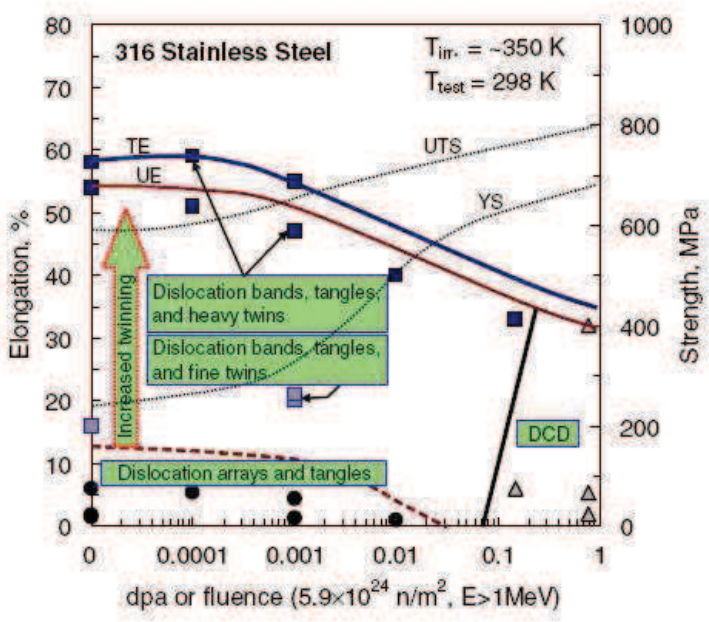


Figure I.27: Carte de déformation pour un acier 316 irradié aux neutrons entre 65°C et 100°C et testé en traction à température ambiante [Farrell 2004]- DCD : Dislocation Channeling Deformation, UE : Uniform Elongation, TE : Total Elongation

La canalisation des dislocations est globalement favorisée par l'augmentation de la contrainte et surtout de la dose. Les canaux n'ont pas été observés en dessous de 0,1 dpa. Ils deviennent dominants au-delà de cette dose indépendamment de la contrainte appliquée. Néanmoins pour de fortes doses et de fortes contraintes, Byun [Byun 2006] précise que le mécanisme de déformation (i.e. canalisation ou maclage) est dépendant de la nature des défauts d'irradiation formés. La présence de cavités ou de dislocations fortement enchevêtrées favorisera le maclage tandis que les amas de défauts et de boucles de Frank (annihilables) favorisent la canalisation [Byun 2006]. Si la microstructure est dominée par la présence de cavités, défauts non annihilables, on pourra donc observer du maclage. Cette configuration a par exemple été démontrée par Miura [Miura 2009] sur un acier irradié à 20 dpa.

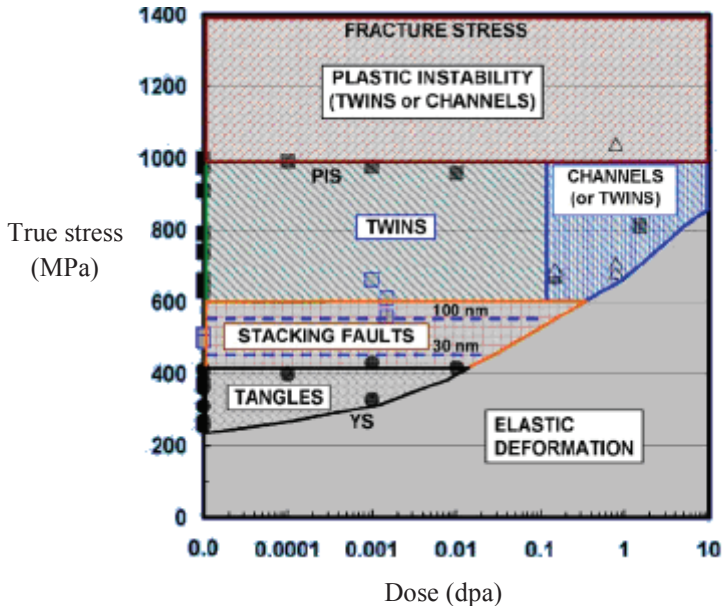


Figure I.28 : Carte de déformation d'un acier 316 en fonction de la dose et de la contrainte vraie [Byun 2006]

Dans le cas d'une irradiation aux ions, qui conduit à l'obtention d'un matériau « bicouche » avec un substrat non irradié et en surface une mince couche irradiée, l'augmentation de la dose d'irradiation entraîne une augmentation de la largeur des canaux et de leur espacement. Cette augmentation de l'espacement s'explique par une diminution du nombre de bandes de glissement passant du substrat non irradié à la zone irradiée du fait de la présence de plus en plus forte d'obstacles (boucles, cavités, etc.). Ces différences diminuent aux fortes doses [West 2010].
Si la densité des boucles est élevée, alors la création de nouveaux canaux n'est pas favorisée par rapport à la croissance de canaux existants [Jiao 2010].

L'intersection de ces bandes de déformation avec la surface libre du matériau créée des marches dont la hauteur augmente elle aussi avec la dose [Miura 2009, Jiao 2011, Jiao 2010, Farrell 2004, Farrell 2002]. Farrell [Farrell 2004] note que ces paramètres varient beaucoup d'un grain à l'autre voire au sein d'un même grain. La déformation dans les canaux peut atteindre plusieurs centaines de pourcents alors même qu'elle reste faible dans la matrice. Ceux-ci se forment rapidement une fois une contrainte seuil atteinte [Neuhäuser 1974, Foreman1969] et croissent jusqu'à saturation [Jiao 2005]. Une fois amorcée, la canalisation se poursuit tout au long de la déformation [Edwards 2004, Edwards 2005].

Des analyses ont été réalisées sur des fissures de vis irradiées dans le réacteur Tihange par Thomas et al. [Thomas 2002]. Hormis une ségrégation de soufre et de nickel à l'interface métal/oxyde, ces analyses ont montré la présence de macles ou fautes d'empilement interceptant la fissure aux environs de la pointe de fissure. Ces macles engendrent des marches à l'interface métal/oxyde. Un schéma de cette fissure est représenté sur la **figure I.29**.

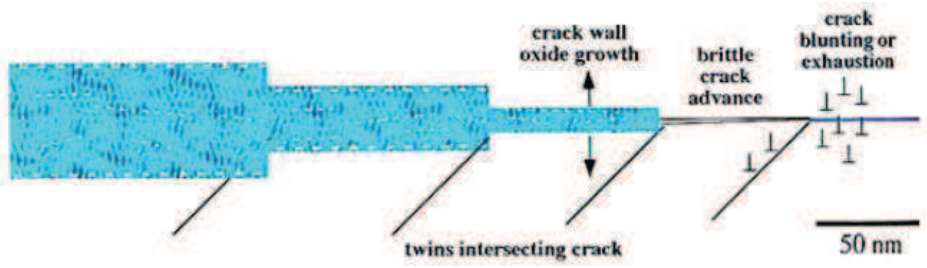


Figure I.29 : Schéma d'une pointe de fissure observée dans une vis en acier inoxydable 316, irradiée dans un réacteur à eau sous pression à une dose de 8,5 dpa et 299°C [Thomas 2002].

Les auteurs indiquent que le mécanisme de fissuration aurait avant tout une origine mécanique et serait lié à la localisation de la déformation dans des bandes (telles que les macles ou les canaux de dislocations).

I.4 Amorçage de la fissuration par IASCC

Il est très complexe de définir l'influence de chaque facteur car l'IASCC est par définition issue de la synergie entre le matériau (microstructure, propriétés mécaniques), son environnement (milieu aqueux en température), les effets de l'irradiation (RIS, durcissement, modification du mode de déformation) et un état de contrainte. A la fin des années 90, Bruemmer [Bruemmer 1999] proposait un schéma récapitulatif des différents processus susceptibles de contribuer à l'amorçage et la propagation de la fissuration par IASCC (**figure I.30**).

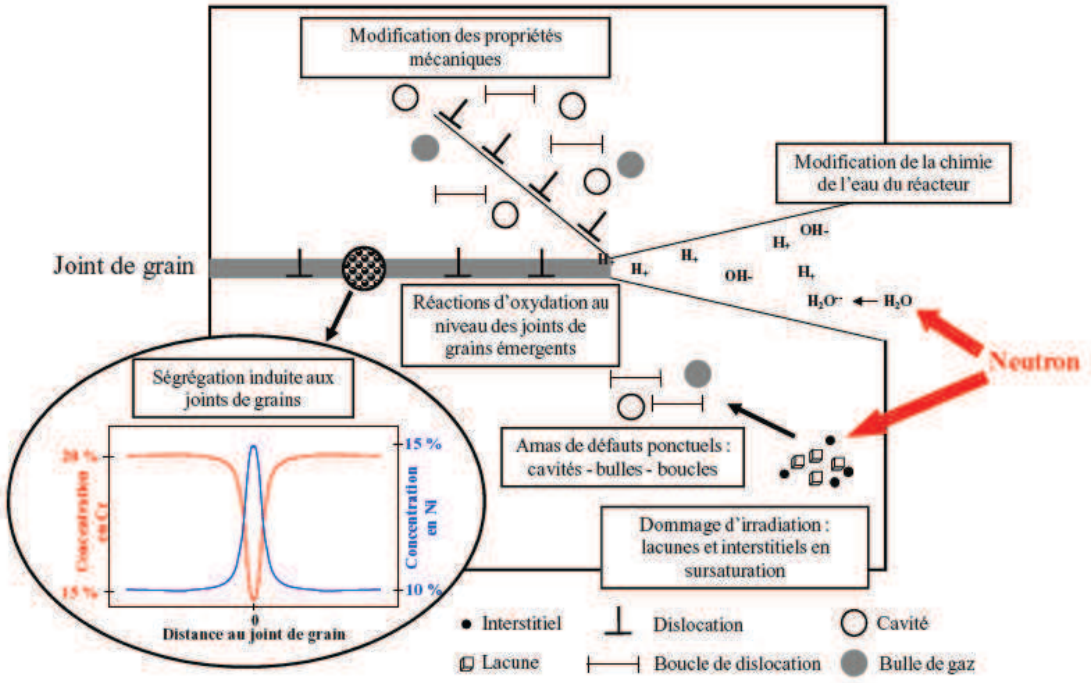


Figure I.30 : Processus susceptibles d'agir dans le cadre de la fissuration par IASCC d'après [Bruemmer 1999 et Etienne 2009]

Depuis, de nombreuses études se sont intéressées à l'un ou l'autre de ces processus afin de définir leur importance dans la phase d'amorçage. Les conclusions de ces études sont détaillées ci-après.

I.4.1 Influence de l'environnement

Les REB et REP possèdent des spectres neutroniques similaires mais des différences importantes entre ces deux types de réacteurs sont néanmoins à considérer. Comme nous l'avons vu, la chimie de l'eau n'est pas comparable.

Les retours d'expériences indiquent que l'IASCC n'est constatée que lorsqu'une dose critique a été atteinte. Cette dose correspondrait à un seuil de l'ordre de 0,3 à 0,7 dpa en milieu REB et d'environ 3 dpa en milieu REP (**figure I.31**) [Bruemmer 1999, Scott 1994, Shogan 2001]. Il faut noter que cette dose seuil dépend de nombreux autres paramètres tels que le niveau de contrainte, les impuretés éventuellement présentes dans le milieu [Andresen 2012] ou encore la composition de l'alliage [Jenssen 1995] et reste donc indicative.

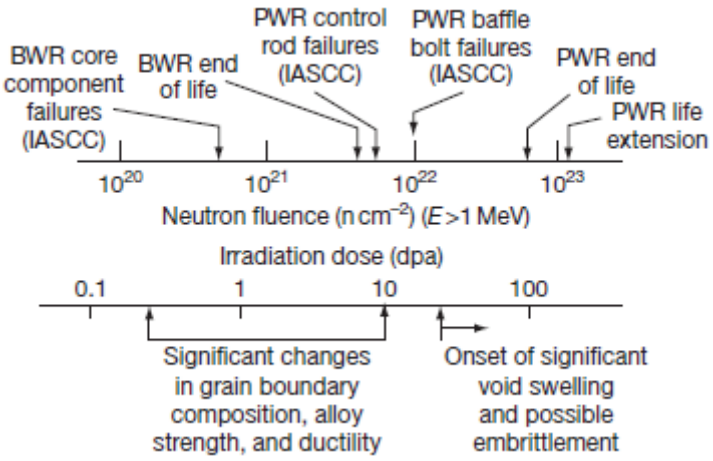


Figure I.31 : Effet de la dose sur la sensibilité à l'IASCC des aciers de type 304 en milieu REP et REB [Bruemmer 1999]

Les molécules d'eau du milieu primaire sont susceptibles de se dissocier sous irradiation, ce qui aboutit à la production dans le milieu d'espèces radicalaires et oxydantes. Ce phénomène, appelé radiolyse de l'eau, peut s'avérer très pénalisant si ces radicaux ne sont pas neutralisés ce qui est le cas en milieu REB. En milieu REP, la présence d'hydrogène annihile, par recombinaison des espèces, les effets potentiellement néfastes de cette radiolyse [Andresen 2002] et nous ne la prendrons donc pas en considération dans la suite de cette étude.

Un ajout d'hydrogène s'avère positif dans les milieux REB et supercritiques [West 2010]. En plus des effets bénéfiques de l'hydrogène sur l'élimination les radicaux libres et espèces oxydantes issus de la radiolyse de l'eau, le potentiel électrochimique de l'eau du milieu est modifié par l'ajout d'hydrogène. Cependant, une concentration trop élevée semble favoriser la fissuration en milieu REP [Furutani 2001]. Ainsi, dépasser une concentration seuil en hydrogène serait néfaste. La présence initiale d'hydrogène n'est pas la seule différence entre REP et REB. Le potentiel de corrosion est plus élevé

dans les REB que dans les REP ce qui est défavorable vis-à-vis de la sensibilité à l'IASCC. Mais comme cela a déjà été mentionné, le flux est environ 10 fois plus important en milieu REP et la température y est plus élevée, facteurs qui semblent au contraire sensibilisants.

Enfin, de la fissuration intergranulaire a été observée en milieu inerte pour des matériaux fortement irradiés (au-delà de 30 dpa) [Onchi 2003, Fukuya 2011], mais également sur des matériaux irradiés à faible dose bien que le nombre de fissures soit dans ce cas bien plus faible que pour les essais réalisés en milieu [West 2012]. Cependant, dans beaucoup d'études portant sur des matériaux irradiés jusqu'à 10 dpa, aucune fissuration n'a été reportée en milieu inerte et plusieurs auteurs insistent sur l'importance, en milieu oxydant seulement, de la rupture du film passif pour initier la fissuration, en CSC comme en IASCC [Jiao 2010, Jiao 2011, Tribouilloy 2007].

I.4.2 Influence de la chimie locale du matériau

L'IASCC est liée aux effets durables dans le temps et cumulatifs de l'irradiation sur les matériaux, combinés à un état de contrainte en service et un environnement corrosif.

La ségrégation chimique induite par l'irradiation conduit à un appauvrissement en chrome au niveau des joints de grains et un enrichissement en nickel et en silicium. Si l'appauvrissement en chrome peut être néfaste en milieu REB, un milieu oxydant, il ne peut pas en revanche expliquer la fissuration en milieu REP [Fukuya 2004a]. Concernant le silicium, la littérature [Chopra 2011] fait état de conclusions contradictoires sur l'influence positive ou négative de celui-ci sur la sensibilité à l'IASCC. Il semble donc difficile d'indiquer si le silicium joue un rôle direct dans ce phénomène.
Des travaux de plusieurs équipes [Fukuya 2004a et b, Jiao 2008] prouvent d'ailleurs que si la ségrégation est un facteur important, il n'est pas suffisant pour expliquer l'IASCC quel que soit le milieu (**figure I.32**).

En plus d'une modification chimique locale au niveau des joints de grains, la diffusion des défauts ponctuels et donc des solutés peut conduire à la précipitation de phases telles que les précipités γ', lorsque la concentration en éléments dépasse la limite de solubilité. Mais le rôle de ces précipités vis-à-vis de l'IASCC n'a pas encore été établi clairement. En revanche, la présence de carbures de chrome aux joints de grains pourrait quant à elle avoir une influence positive [Arioka 2006] sur cette sensibilité car ils s'opposent au glissement intergranulaire, glissement susceptible de rompre le film d'oxyde protecteur en milieu oxydant.

I.4.3 Influence du durcissement induit par l'irradiation

Si la ségrégation est un facteur important mais non suffisant pour expliquer l'IASCC, il en va de même pour le durcissement induit.
Certes l'augmentation de la dureté et donc de la limite d'élasticité accroît la sensibilité à l'IASCC [Bruemmer 1999, Was 2009, Busby 2005] et Fukuya [Fukuya 2004b] a démontré suite à des traitements thermiques post-irradiation qu'une chute de la limite d'élasticité entraînait immédiatement une meilleure résistance à l'IASCC [Fukuya 2004 b]. Mais cette diminution de la sensibilité se produit déjà avant que la dureté ne chute significativement (**figure I.32**) [Was 2009]. D'après les auteurs, cette diminution serait due à l'annihilation par le traitement thermique des petits amas de défauts, ce qui conduirait à une modification du mode de déformation à l'échelle locale.

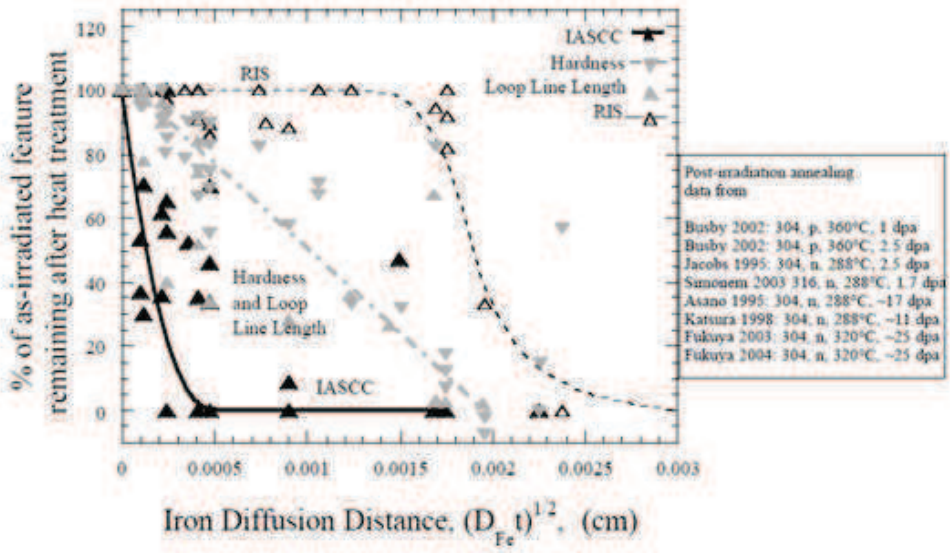


Figure I.32 : Restauration de la microstructure et de la microchimie par traitements thermiques et influence sur la sensibilité à l'IASCC [Was 2009]

Selon Was et Fukuya, la sensibilité à l'IASCC des aciers austénitiques croît avec la dose bien au-delà de 5 dpa, dose à laquelle pourtant la ségrégation et le durcissement ont atteint leur plateau de saturation [Was 2007a, Fukuya 2008] (**figure I.33**).

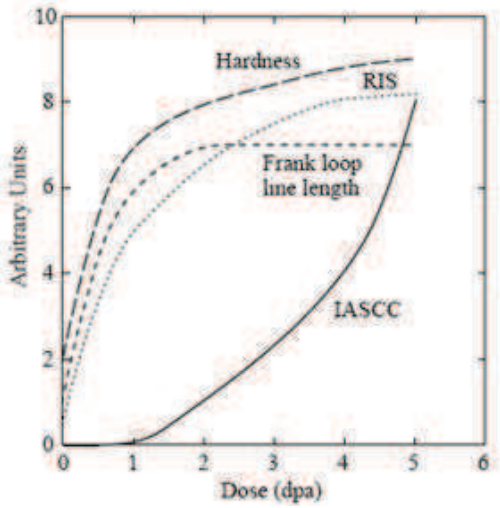


Figure I.33 : Représentation schématique des modifications liées à l'irradiation et sensibilité à l'IASCC en fonction de la dose [Was 2007a]

Cependant, un critère seuil sur la contrainte macroscopique à atteindre pour amorcer l'IASCC a été mis en évidence [Fyfitch 2009] et semble indépendant de la dose, ce qui est contradictoire avec l'idée que la sensibilité à l'IASCC croît avec la dose au-delà de 5 dpa.

Quoi qu'il en soit, la ségrégation induite et le durcissement ne sont pas des facteurs suffisants pour expliquer la sensibilité des aciers inoxydables austénitiques à l'IASCC.

I.4.4 Influence des paramètres microstructuraux et mécaniques

➢ Nature des joints de grains

Plusieurs études [West 2010, McMurtrey 2011, Fukuya 2011] indiquent que les fissures apparaissent de façon préférentielle le long de joints orientés perpendiculairement à l'axe de traction. L'inclinaison du joint par rapport à cet axe a une influence sur la continuité du glissement. West [West 2012] reporte qu'un joint orienté à 20° par rapport à l'axe de traction a 25% de chance de présenter une discontinuité du glissement contre 70% pour un joint orienté à 70° par rapport au même axe. Or la discontinuité du glissement d'un grain à l'autre semble être un facteur sensibilisant le joint de grains.
D'un point de vue cristallographique, les joints de macles sont plus résistants que les joints dits généraux, *ie* les joints ne présentant aucune symétrie particulière. Les matériaux CFC à faible énergie de défaut d'empilement présentent une fréquence élevée de joints particuliers tels que les ∑3, ∑9 et ∑27 mais seuls les ∑3 semblent être plus résistants [Gerstman 2001]. Néanmoins, aucun de ces paramètres cristallographiques n'est suffisant pour déterminer si un joint est susceptible de fissurer.

➢ Facteurs de Schmid

D'autres facteurs semblent être intéressants à prendre en compte, tel que les facteurs de Schmid associés aux mécanismes de plasticité intragranulaire. La loi de Schmid et Boas [Schmid 1950] est une loi de localisation (passage macro/micro) permettant d'estimer, à partir de l'hypothèse de contrainte homogène appliquée au matériau, la valeur de la cission résolue imposée au grain considéré. Ce changement d'échelle fait clairement apparaître l'effet de l'orientation cristallographique du grain par rapport au chargement macroscopique imposé via l'estimation du facteur de Schmid, qui s'exprime pour un essai de traction simple de la façon suivante (**figure I.34**): $f = \cos\lambda \times \cos\Phi$.

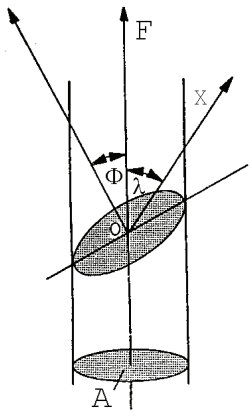


Figure I.34 : Représentation schématique de la loi de Schmid

Ce facteur traduit donc la capacité relative de chaque grain à se déformer en fonction de la sollicitation imposée. Les grains présentant de faibles facteurs de Schmid se déforment peu, car leurs systèmes de déformation sont peu sollicités. Certaines études montrent que la majorité des grains avoisinant une fissure d'IASCC présentait, au moins pour l'un des deux grains, un faible facteur de Schmid [West 2010, McMurtrey 2011, Fukuya 2011].

La taille des grains a elle aussi une influence sur la sensibilité à la fissuration des matériaux. Cette dernière croît avec ce paramètre car les empilements de dislocations sur les joints de grains sont plus

importants (Hall-Petch) ce qui entraîne une contrainte et une déformation locales plus importantes [Was 2007b].

➢ Contrainte macroscopique seuil

Des essais sous charge constante ont montré que des éprouvettes en aciers 304 et 316 ont fissuré pour des contraintes macroscopiques inférieures à la limite d'élasticité avec un seuil correspondant à environ 50% de la limite élastique pour des matériaux irradiés à 10 dpa et plus [Fyfitch 2009]. Quelques éprouvettes ont par ailleurs fissuré pour des valeurs inférieures à 50% de la limite élastique ce qui suggère que ce critère macroscopique est dans certains cas surestimé. Ces données expérimentales sont présentées **figure I.35 et I.36**. Ce seuil semble indépendant de la dose au-delà de10 dpa et jusqu'à 70 dpa.

Outre la contrainte seuil, la **figure I.36** indique également que les durées d'essai pour les éprouvettes qui ont finalement fissuré sont majoritairement inférieures à 600h.

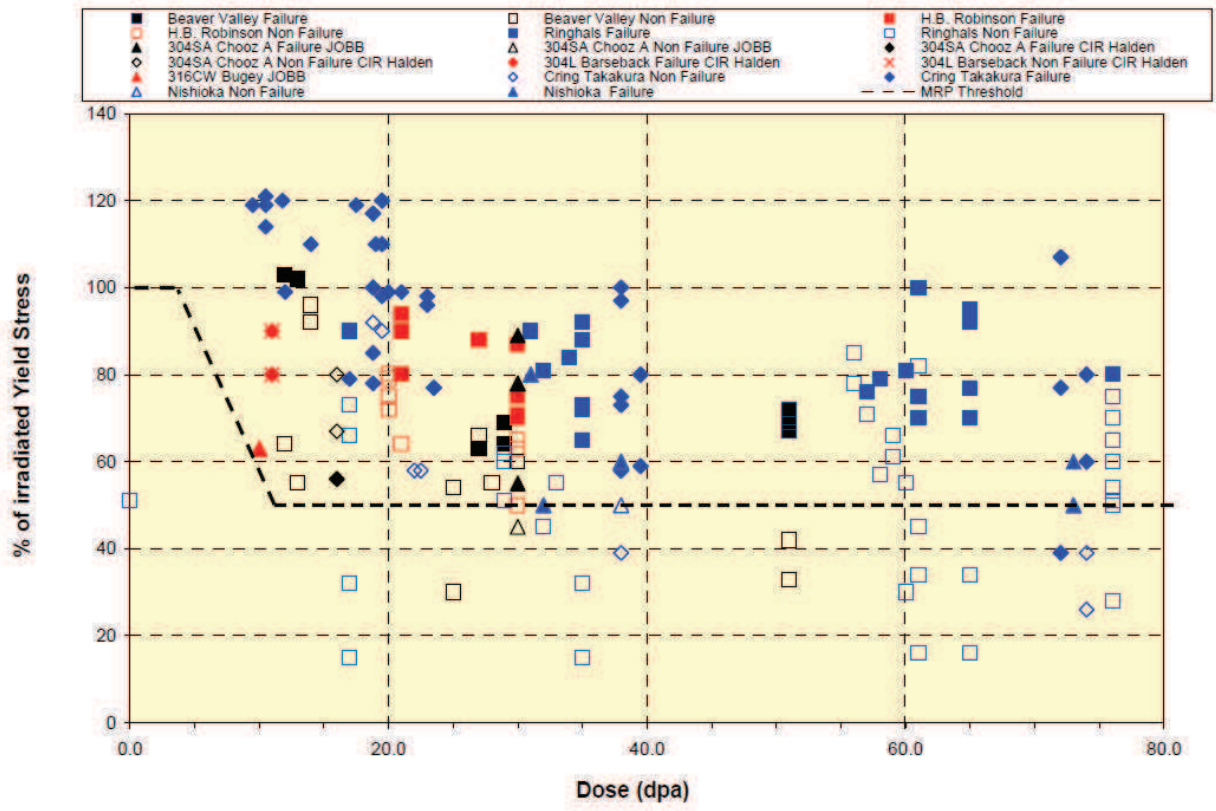


Figure I.35 : Contrainte macroscopique d'amorçage de l'IASCC en fonction de la dose pour des essais sous charge constante[Fyfitch 2009]

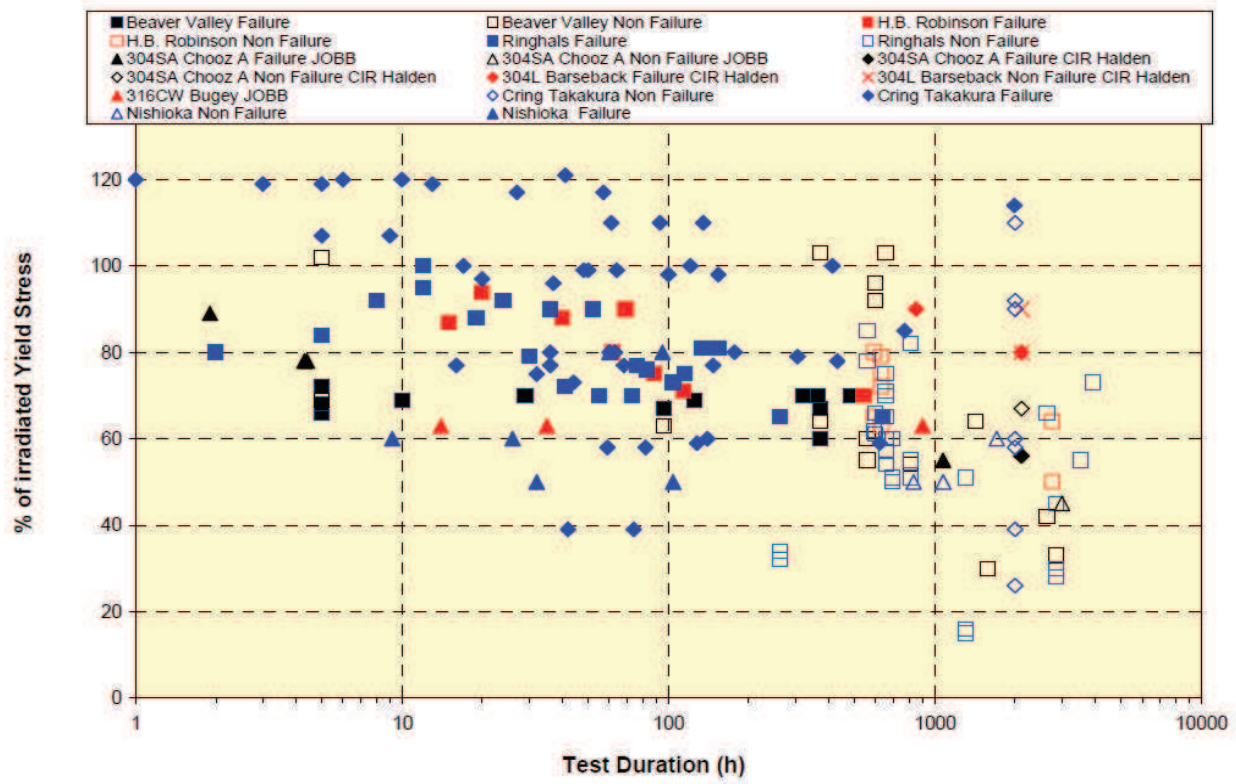


Figure I.36 : Contrainte macroscopique d'amorçage de l'IASCC en fonction de la durée d'essai sous charge constante[Fyfitch 2009]

I.4.5 Localisation de la déformation

Il est avancé depuis quelques années que la localisation de la déformation serait le facteur prépondérant expliquant l'IASCC ou du moins un facteur particulièrement important [Scott 1994, Jiao 2008, Jiao 2010, Jiao 2011, Bailat 2000, West 2010, Onchi 2003, Onchi 2005, Savoie 2007, McMurtrey 2011, Karlsen 2011, Was 2007c, Teysseyre 2006].

Des études sur l'influence de l'énergie de défaut d'empilement sur la sensibilité des aciers inoxydables à l'IASCC renforcent cette hypothèse.

En effet, tout comme l'irradiation, une faible énergie de défaut d'empilement favorise le glissement planaire et agit ainsi comme précurseur de la localisation de la déformation.

Thompson et Bernstein [Thompson 1980] ont montré qu'une augmentation de l'énergie de défaut d'empilement conduit à une amélioration du comportement des aciers inoxydables en CSC. Le même effet a été démontré par Rhodes [Rhodes 1977] et Shramm [Shramm 1975] pour l'IASCC (**figure I.37**) même si les résultats restent très dispersés pour les faibles valeurs d'E.D.E.

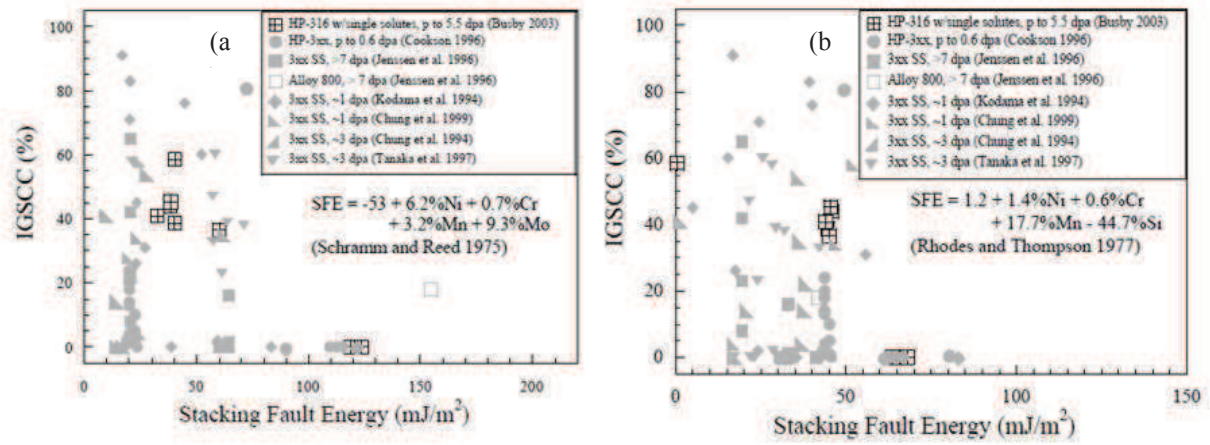


Figure I.37 : Pourcentage de rupture intergranulaire pour différents types d'aciers inoxydables en fonction de l'énergie de défaut d'empilement calculée par Shramm (a) ou Rhodes (b) [Was 2009]

Dans une autre étude [Was 2009], il a aussi été constaté, sur des matériaux irradiés à 5 dpa et déformés jusqu'à 3% en traction lente, un lien entre l'énergie de défaut d'empilement et la hauteur des bandes de glissement à la surface libre. Plus cette énergie est faible et plus la hauteur des marches est importante car la localisation est plus importante. La hauteur des marches est reliée à la densité de dislocations présente dans ces bandes.

L'énergie de défaut d'empilement pourrait également affecter la microstructure d'irradiation [Jiao 2010, Jiao 2011] en agissant sur la population et la taille des boucles de dislocations. En effet, une partie de l'énergie totale des boucles de dislocations est proportionnelle à cette énergie [Jiao 2011]. La **figure I.38** illustre l'ensemble de ces effets.

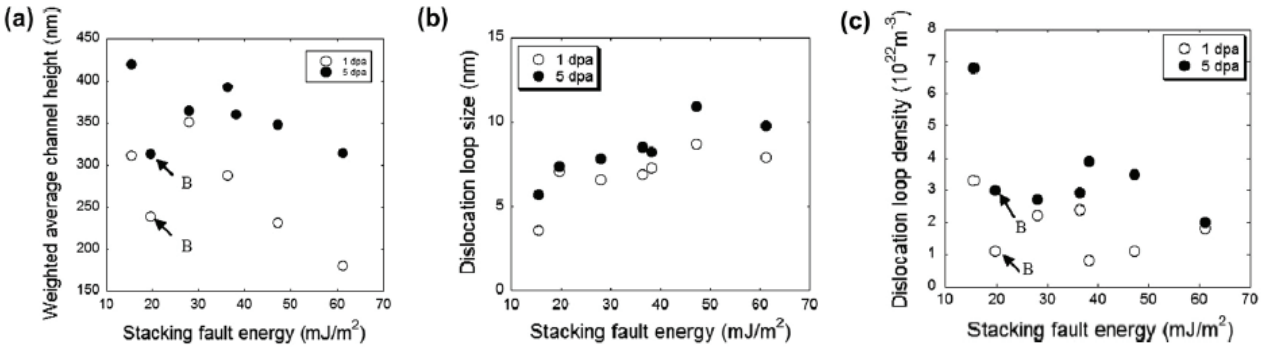


Figure I.38 : Effets de l'E.D.E. sur (a) les hauteurs des marches en surface, (b) la taille et (c) la densité des boucles de dislocation [Jiao 2010]

Il convient cependant d'être prudent sur les valeurs d'EDE qui restent, dans la plupart des études, des valeurs calculées basées sur la composition de l'alliage et le poids des éléments en équivalent nickel.

La déformation induite par les bandes de déformation peut être accommodée de plusieurs façons au niveau des joints de grains:

- les dislocations peuvent être transmises directement d'un grain à l'autre,

- des empilements de dislocations se formant au niveau du joint peuvent induire l'activation de nouvelles sources de dislocations dans le grain voisin,
- les dislocations peuvent être absorbées par le joint et conduire au glissement du joint.

La formation d'empilements de dislocations à l'intersection entre le joint de grains et le canal engendre une contrainte plus élevée au niveau du joint. Si cette contrainte atteint une valeur critique alors le joint peut s'ouvrir suivant le mécanisme de Stroh [Stroh 1958]. En milieu oxydant, ce qui est le cas du milieu REB, cette contrainte peut également provoquer la rupture du film passif et exposer le métal mis à nu au milieu. La déformation du joint lui-même peut également aboutir à la rupture du film passif *via* le glissement de celui-ci.

Selon Alexandreanu [Alexandreanu 2003], les joints généraux sont plus susceptibles de glisser que les joints dits « spéciaux » et les joints qui glissent sont 4 fois plus sensibles à la fissuration en milieu primaire à 360°C que les joints non glissants.

La rupture serait liée au glissement des joints de grains, lui-même lié à la déformation s'accumulant au niveau du joint, comme cela est schématisé sur la **figure I.39**.

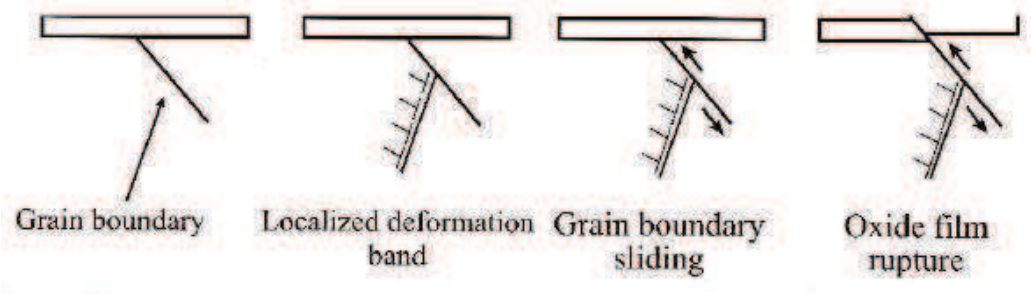


Figure I.39 : Mécanisme schématisé de la rupture du film d'oxyde suite au glissement du joint de grains [Was 2007a]

Cette localisation de la déformation dans les canaux peut aussi expliquer les différences de sensibilité à la corrosion sous contrainte en milieu hydrogéné entre les matériaux irradiés, sensibles (IASCC), et les matériaux écrouis non irradiés, non sensibles. La dureté de ces matériaux est élevée dans les deux cas mais le réseau de dislocations des aciers écrouis non irradiés reste sous forme cellulaire, ce qui pourrait être l'un des facteurs expliquant leur résistance à la fissuration par CSC en milieu REP.

Was et al. [Was 2004] ont proposé un processus illustrant comment la localisation de la déformation pourrait être à l'origine de l'amorçage des fissures en milieu oxydant et de leur propagation (**figure I.40**).

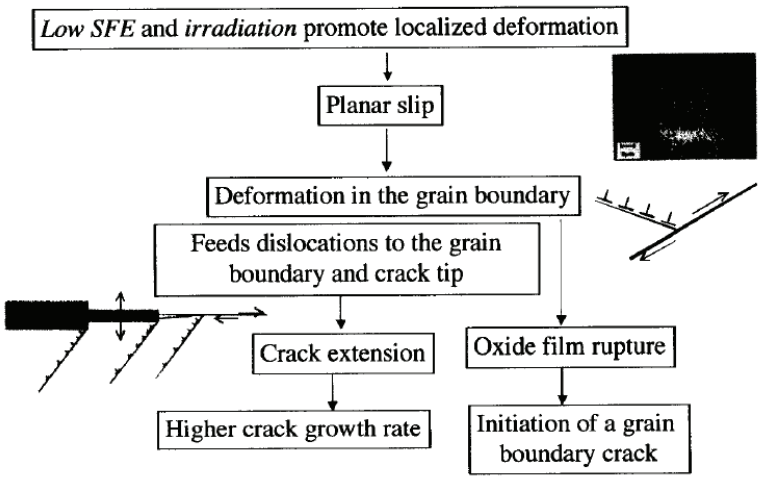


Figure I.40: Processus d'amorçage et de propagation des fissures favorisé par la localisation de la déformation [Was 2004]

L'expansion d'un canal de dislocation entraîne une déformation en cisaillement supplémentaire au niveau de l'intersection entre ce canal et le joint de grains. Cette déformation supplémentaire combinée à une marche importante pourrait jouer un rôle dans l'IASCC par concentration des contraintes [Jiao 2007].

I.5 Présentation de l'étude – objectifs et démarche

La corrosion sous contrainte assistée par l'irradiation est un phénomène complexe qui fait intervenir simultanément environnement, irradiation et chargement mécanique sur un matériau. Aucun de ces facteurs ne peut engendrer à lui seul la fissuration des pièces en service. De même, les modifications microstructurales et microchimiques liées à l'irradiation ne s'avèrent pas suffisantes pour expliquer la sensibilité d'un alliage à l'IASCC lorsqu'elles sont prises séparément.

La localisation de la déformation apparaît comme un potentiel facteur de premier ordre qui, combiné à d'autres facteurs (non continuité du glissement, énergie et orientation du joint, etc….), expliquerait la sensibilité des aciers inoxydables austénitiques à l'IASCC dans les milieux non oxydants REP.

Pour autant et comme indiqué précédemment, des informations quantitatives et statistiques sur la déformation des matériaux irradiés à faible dose et le rôle de la microstructure dans leur comportement manquent. De même, des données, à une échelle plus fine, sur l'évolution des défauts sous irradiation ainsi que le comportement des joints de grains vis-à-vis de l'irradiation et de la présence éventuelle de gaz (hélium ou hydrogène) seraient un plus pour étayer les résultats déjà disponibles afin de comprendre les étapes-clés de l'IASCC et fournir des données expérimentales intéressantes pour la calibration et la validation des modèles en développement.

Ces deux approches seront menées parallèlement avec d'une part l'irradiation aux protons d'un acier commercial 304L suivie d'essais de CSC en milieu primaire REP simulé, afin d'aider à la compréhension des mécanismes mis en jeu dans l'amorçage de l'IASCC. Cette approche est basée sur le couplage, à l'échelle locale, entre microstructure, champs de déformation et fissuration.

D'autre part, des lames minces du même matériau seront irradiées aux ions lourds sur la plateforme expérimentale JANNuS (Orsay) avec suivi *in situ* de l'évolution de la microstructure d'irradiation et implantation simultanée d'hélium. Il s'agit cette fois d'étudier plus finement les conséquences de l'irradiation et de la génération d'hélium par transmutation sur la microstructure. Nous nous intéresserons à l'influence de l'hélium sur les défauts d'irradiations et notamment les cavités ainsi que sur l'interaction entre hélium et joints de grains.

La **figure I.41** illustre la démarche générale de ce travail.

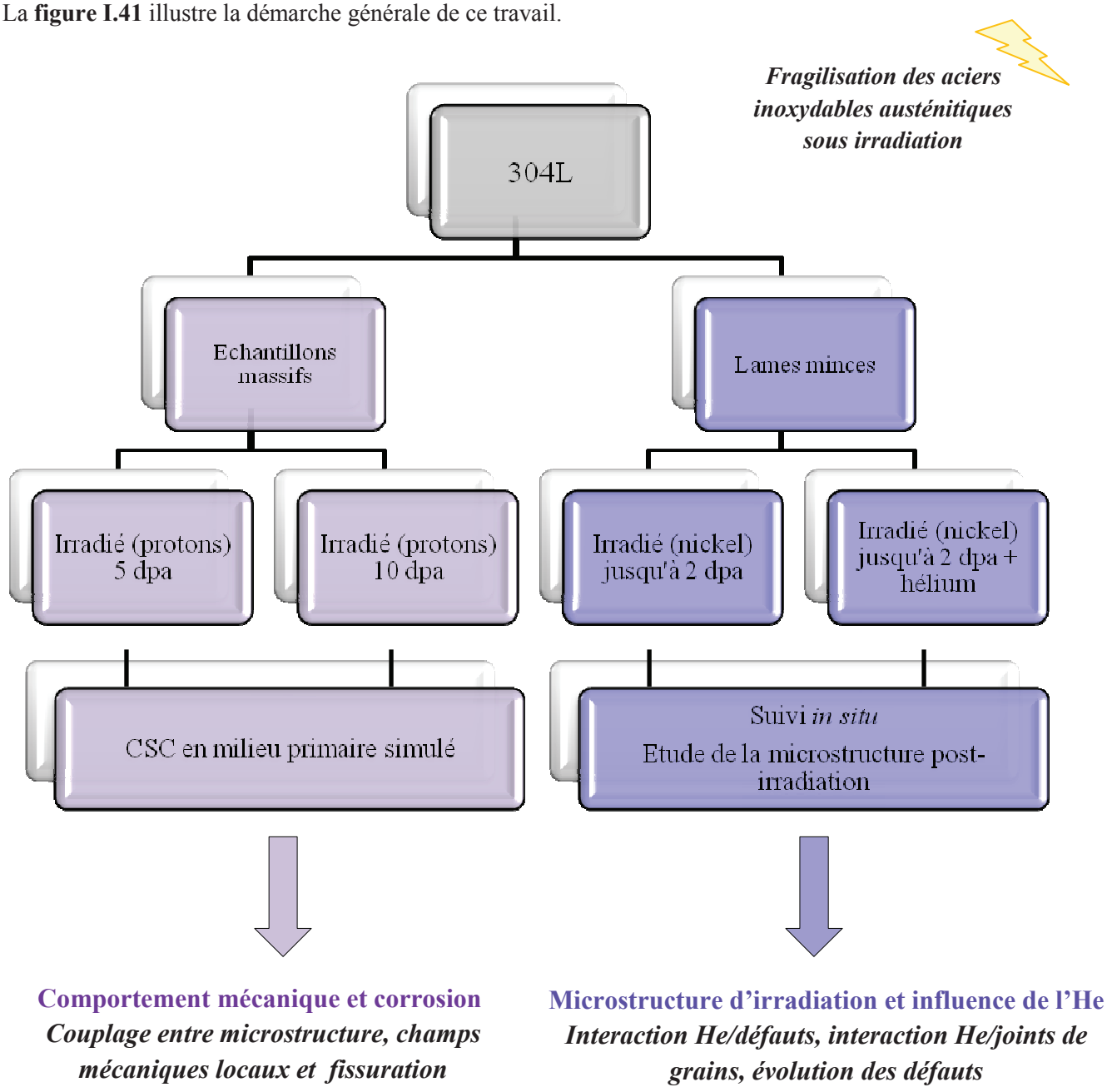


Figure I.41 : Démarche générale de la thèse

Résumé

Les conséquences de l'irradiation sur les aciers inoxydables austénitiques sont multiples et affectent à la fois la chimie du matériau (RIS, précipitation, transmutation) et sa microstructure (formation de boucles de dislocations et de cavités).
Ces modifications ont une influence directe sur les propriétés du matériau et les aciers inoxydables austénitiques se sont révélés sensibles à la corrosion sous contrainte assistée par l'irradiation en milieu REP. En plus de l'IASCC, l'irradiation, *via* la formation de cavités, est également responsable d'un autre phénomène à prendre en considération dans l'étude du vieillissement des internes de cuve à savoir le gonflement.

La microstructure des aciers austénitiques irradiés est caractérisée par la présence de black dots, de boucles de dislocations et de cavités. Cette microstructure dépend notamment de la température d'irradiation et de la dose. Les black dots, amas de défauts ponctuels de 2 à 3 nm, sont majoritaires pour des températures inférieures à 300°C. Dans la gamme de température nominale des Réacteurs à Eau Légère, *ie* autour de 300°C, la microstructure d'irradiation est principalement constituée de boucles fautées sessiles, appelées boucles de Frank, d'une dizaine de nanomètres de diamètre et de vecteurs de Burgers **a**/3 <111>. Leur densité est maximale entre 300°C et 400°C et sature après quelques dpa pour une valeur proche de 1.10^{23} m^{-3}.

Des cavités, formées par agglomération des amas lacunaires, sont présentes dès 300°C. Leur taille augmente avec la dose et la température tandis que leur densité diminue. Le débit de dose a également une influence sur ces défauts avec une densité qui augmente et un diamètre moyen qui diminue pour de faibles débits de dose. Ces cavités sont responsables du gonflement sous irradiation.
Les tétraèdres de faute d'empilement (SFTs), amas lacunaires tridimensionnels, ont été rarement observés dans les aciers commerciaux. La présence de ces défauts sur des aciers inoxydables austénitiques irradiés en réacteur REP n'a jamais été rapportée.

Conjointement à ces modifications microstructurales, la chimie des aciers inoxydables austénitiques est aussi affectée localement par l'irradiation. La ségrégation induite par l'irradiation (RIS) en milieu REP se traduit par un appauvrissement en Cr et en Fe et un enrichissement en Ni et en Si, notamment au niveau des joints de grains. La RIS augmente avec la dose puis sature aux environs de 5 dpa dans une gamme de températures proche de 300°C. En plus de la RIS, des carbures de chrome et des précipités riches en Ni et en Si peuvent être formés dans les conditions d'irradiation des REP et participent ainsi à la modifications des propriétés des internes de cuve.
Enfin, la transmutation du B et du Ni conduit à la formation in situ d'hélium et d'hydrogène. Les quantités d'hélium et d'hydrogène générés sous irradiation augmentent avec la dose. Dans les REP, le rapport He/dpa est de l'ordre de 20 appm/dpa.
L'hélium est insoluble dans les aciers et, en stabilisant les cavités, pourrait favoriser le gonflement à forte température. Il pourrait également fragiliser les joints de grains.

De part ces différents processus, l'irradiation modifie les propriétés mécaniques des aciers inoxydables austénitiques. La limite d'élasticité augmente fortement pour atteindre une valeur de l'ordre de 800

MPa après 5 à 10 dpa. Le durcissement est maximal pour une température de 300°C, ce qui correspond globalement à la densité maximale de boucles de dislocations.
Les mécanismes de déformation sont également affectés par l'irradiation. Les aciers inoxydables austénitiques sont des matériaux à faible E.D.E, ce qui favorise le glissement planaire au détriment du glissement dévié. Cette particularité est fortement accentuée sous irradiation où la déformation est alors localisée sous forme de bandes quasi exemptes de défauts, appelées bandes « claires ». Ces bandes sont formées par maclage ou par canalisation des dislocations, l'un ou l'autre de ces mécanismes étant favorisé en fonction de la dose, de la température, de la vitesse de sollicitation et de la contrainte.

L'effet de l'irradiation se manifeste également par la sensibilité des aciers inoxydables austénitiques à l'IASCC. En effet, ces matériaux ne sont pas, dans les conditions REP, sensibles à la CSC en l'absence de l'irradiation. Une dose seuil de 3 dpa est communément admise pour l'amorçage de l'IASCC des aciers austénitiques en milieu REP. Cette dose est supérieure à la dose seuil de 0,3 à 0,7 dpa en milieu REB, qui est donc considéré comme un milieu plus pénalisant vis-à-vis de l'IASCC. Cependant, les mécanismes responsables de l'amorçage de l'IASCC ne sont pas encore complètement élucidés aujourd'hui. Une contrainte seuil macroscopique équivalente à environ 50% de la limite d'élasticité est généralement nécessaire, bien que quelques cas d'IASCC pour des niveaux de contrainte plus faibles aient cependant été reportés. Toutefois, il a été démontré que ni le durcissement ni la ségrégation induite ne sont des facteurs suffisants pour expliquer la sensibilité des aciers austénitiques à l'IASCC. La localisation de la déformation mentionnée précédemment constitue aujourd'hui une piste intéressante.

Pour étudier les effets de l'irradiation sur ces aciers en s'affranchissant des difficultés liées aux neutrons, des ions, protons ou ions lourds, peuvent être avantageusement utilisés pour simuler les dommages créés par les neutrons. Les écarts de débits de dose sont en partie compensés par une augmentation de la température d'irradiation. Des irradiations aux protons et aux ions Ni seront utilisées pour cette étude.

Summary

The effects of irradiation on austenitic stainless steels are multiple and affect both the chemistry of the material (RIS, precipitation and transmutation) and its microstructure. Those modifications have a direct influence on the material properties and it was shown that austenitic stainless steels were susceptible to Irradiation Assisted Stress Corrosion Cracking (IASCC) in PWR environment. Besides IASCC, the irradiation, causing the formation of cavities, is also at the origin of another phenomenon: void swelling, which needs to be taken into account when studying aging of pressure vessel internals.

The microstructure of irradiated austenitic stainless steels is characterized by the presence of black dots, dislocation loops and cavities. This microstructure depends mainly on the irradiation temperature and dose. The black dots, defect clusters of 2 to 3 nm, are preponderant for temperatures below 300ºC. In the nominal temperature range of LWR, i.e. around 300ºC, the microstructure mainly consists of faulted sessile loops with a Burgers vectors **a**/3 <111>, called Frank loops. The average size of those loops is around 10 nm. They can be vacancy or interstitial type, but due to the instability of the vacancy ones, the loops observed by transmission electron microscopy are mostly interstitial. Their density is maximal between 300ºC and 400ºC, and saturates after a few dpa at a value close to 1.10^{23} m^{-3}.

Cavities formed by agglomeration of vacancy clusters are present as soon as 300ºC. Their size increases with dose and temperature while their density decreases. The dose rate also has an influence on those defects with the density increasing and the average diameter decreasing for low dose rates. Those cavities are responsible for void swelling.
The stacking fault tetrahedra (SFTs), tridimensional vacancy clusters, have been seldom observed in commercial steels but the presence of such defects in austenitic stainless steel irradiated in PWR has never been reported.

Jointly with those microstructural modifications, the chemistry of austenitic stainless steels is also locally affected by irradiation. Radiation-induced segregation (RIS) causes depletion of Cr and Fe and an enrichment of Ni and Si, in particular at the grain boundaries. RIS increases with dose and saturates at around 5 dpa for a temperature close to 300ºC. In addition to RIS, chromium carbides and precipitates rich in Ni and Si can be formed in the irradiation conditions of PWR. They contribute also to the modifications of properties of the internals.
Finally, the transmutation of B and/or Ni leads to *in situ* formation of helium and hydrogen. Their respective quantities increase with the irradiation dose. In PWR, the ratio He/dpa is around 20 appm/dpa. Helium is insoluble in steel and by stabilizing cavities, it could facilitate void swelling at high temperatures. It could also weaken the grain boundaries.

Through those different microstructural modifications, irradiation changes the mechanical properties of austenitic stainless steels. The yield strength increases significantly and reaches values around 800 MPa after 5 to 10 dpa. Hardening is maximum at a temperature of 300ºC, which corresponds to the maximum density of dislocation loops.
The deformation mechanisms of austenitic stainless steels are also affected by irradiation. Non-irradiated austenitic stainless steels have a low S.F.E, which facilitates planar slip versus cross slip.

The irradiation emphasizes this particularity and deformation is then localized in bands nearly free of any defects, called “clear” bands or channels. Those bands are formed by twinning or by dislocation channeling, depending on dose, temperature, strain rate or stress level.

Irradiation also makes austenitic stainless steels susceptible to IASCC. Indeed, without irradiation, these materials are not susceptible to Stress Corrosion Cracking for in-service PWR conditions. A dose limit of 3 dpa is commonly accepted for the onset of IASCC for austenitic stainless steels in PWR environment. This dose is higher than the estimated dose limit of 0.3 to 0.7 dpa in BWR, which is then considered as a more aggressive environment for IASCC. However, the mechanisms responsible for IASCC initiation still need to be elucidated. A macroscopic stress threshold close to 50% of the yield strength has been established, although few cases of IASCC were reported for lower stress levels. However, it has been proven that neither hardening nor radiation-induced segregation are factors contributing enough to justify on their own the susceptibility of austenitic steels to IASCC. Conversely, localized deformation appears to have a major effect on IASCC initiation.

To study the effects of irradiation on steels, while eliminating the difficulties related to neutrons, ions (protons or heavy ions) can be advantageously used to simulate the damages done by neutrons. The variations of dose rate are partially compensated by an increase of the irradiation temperature. Irradiations by protons and ions Ni will be used for this study.

Bibliographie

[Alexandreanu 2003] B. Alexandreanu, G. S. Was, « Grain boundary deformation-induced intergranular stress corrosion cracking of Ni-16Cr-9Fe in 360°C water», Corrosion 59 (2003) 705-720

[Allen 1998] T.R. Allen, J.T. Busby, G.S. Was, E.A. Kenik, « On the mechanism of radiation segregation in austenitic Fe-Cr-Ni alloys», J. Nucl. Mater. 255 (1998) 44-58

[Allen 2006] T.R. Allen, J.I. Cole, C.L. Trybus, D.L. Porter, H. Tsai, F. Garner, E.A. Kenik, T. Yoshitake, J. Ohta, « The effect of dose rate on the response of austenitic stainless steels to neutron radiation », J. Nucl. Mater. 348 (2006) 148-164

[Andresen 2002] P.L. Andresen, «Similarity of Cold Work and Radiation Hardening in Enhancing Yield Strength and SCC Growth of Stainless Steel in Hot Water», Proc. of the NACE Corrosion Conf. and Expo, Denver, USA. (2002) paper 02509

[Andresen 2003] P.L Andresen, P.W Emigh, M. Morra, R.M Horn, «Effect of yield strength, corrosion potential, stress intensity factor, silicon and grain boundary character on the SCC of stainless steels», Proc. 11th International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power System– Water Reactors, Stevenson, WA, USA, (2003) 816-833

[Andresen 2004] P.L. Andresen, M.M. Morra, W.R. Catlin, «Effects of yield strength, corrosion potential, composition and stress intensity factor in SCC of stainless steel», Proc. of the NACE Corrosion Conf. and Expo, New Orleans, USA (2004) paper 04678

[Andresen 2102] P.L Andresen, G.S Was, «Irradiation Assisted Stress Corrosion Cracking», Nuclear Comprehensive Materials, Elsevier 2012

[Angel 1954] T. Angel, «Formation of martensite in austenitic stainless steels» J.I.S.I. (1954) 165-174

[Arioka 2006] K. Arioka, T. Yamada, T. Terachi, R.W Staehle, « Intergranular Stress Corrosion Cracking Behavior of Austenitic Stainless Steels in Hydrogenated High-Temperature Water», Corrosion 62 (2006) 74-83

[ASTM ES21] Standard practice for neutron radiation damage stimulation by charged-particle irradiation Annual book of ASTM Standards; vol. 12.02, American Society of Testing and Materials, Philadelphia, PA

[Bailat 2000] C. Bailat, A. Almazouzi, N. Baluc, R. Schaublin, F. Groschel, M. Victoria, «The effects of irradiation and testing temperature on tensile behaviour of stainless steels», J. Nucl. Mater. 283 (2000) 446-450

[Barbu 2008] A. Barbu, J.P Massoud, « Comportement des matériaux dans le cœur des REP », Techniques de l'Ingénieur, BN 3760 (2008)

[Bruemmer 1999] S.M. Bruemmer, E.P. Simonen, P.M. Scott, P.L. Andresen, G.S. Was, J.L. Nelson, «Radiation-induced material changes and susceptibility to intergranular of light-water-reactor core internals», J. Nucl. Mater. 274 (1999) 299-314

[Busby 2001] J.T Busby, «Isolation of the role of radiation-induced segregation», PhD thesis University of Michigan (2001)

[Busby 2004] J.T. Busby, G.S. Was, «Irradiation assisted stress corrosion cracking in model austenitic alloys with solute additions», Proc. 11th International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors, Stevenson, WA, USA (2003) 995-1014

[Busby 2005] J.T Busby, M.C Hash, G.S Was, «The relationship between hardness and yield stress in irradiated austenitic and ferritic steels», J. Nucl. Mater. 336 (2005) 267-278

[Byun 2003a] T.S. Byun, E.H. Lee, J.H. Hunn, «Plastic deformation in 316LN stainless steel – characterization of deformation microstructures», J. Nucl. Mater. 321 (2003) 29-39

[Byun 2003b] T.S. Byun, «On the stress dependence of partial dislocation separation and deformation microstructure in austenitic stainless steels», Acta Mater. 51 (2003) 3063–3071

[Byun 2004] T.S. Byun, N. Hashimoto, K. Farrell, «Temperature dependence of strain hardening and plastic instability behaviors in austenitic stainless steels», Acta Mater. 52 (2004) 3889-3899

[Byun 2006] T.S Byun, N. Hashimoto, K. Farrell, «Deformation mode map of irradiated 316 stainless steel in true stress–dose space», J. Nucl. Mater. 351 (2006) 303-315

[Chopra 2011] O.K Chopra, A.S Rao, «A review of irradiation effects on LWR core internal materials – IASCC susceptibility and crack growth rates of austenitic stainless steels», J. Nucl. Mater. 409 (2011) 235-256

[Cole 1995] J.I. Cole, J.L Brimhall, J.S Vetrano, and S.M. Bruemmer, « Deformation temperature, strain rate, and irradiation microstructure effects on localized plasticity in 304L SS », Proc. 7th International Symposium on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems - Water Reactor, Breckenridge, CO, USA (1995) 817-827

[Couvant 2005] T. Couvant, L. Legras, F. Vaillant, J.M Boursier and Y. Rouillon, « Effect of Strain-Hardening on Stress Corrosion Cracking of AISI 304L Stainless Steel in PWR Primary Environment at 360°C », Proc. 12th International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems - Water Reactors, Salt Lake City, UT, USA (2005), 1069-1079

[Cunat 2000] P.J. Cunat «Aciers inoxydables, Critères de choix et structure», Techniques de l'ingénieur M 4540 (2000)

[Edwards 2003a] D.J. Edwards, E.P. Simonen, F.A. Garner, L.R. Greenwood, B.M. Oliver, S.M. Bruemmer, «Influence of irradiation temperature and dose gradients on microstructural evolution in neutron-irradiated 316SS», J. Nucl. Mater. 317 (2003) 32-45

[Edwards 2003b] D.J. Edwards, E.P. Simonen, S.M. Bruemmer, «Evolution of fine-scale defects in stainless steels neutron-irradiated at 275°C», J. Nucl. Mater. 317 (2003) 13-31

[Edwards 2004] D.J. Edwards, B.N. Singh, «Evolution of cleared channels in neutron-irradiated pure copper as a function of tensile strain», J. Nucl. Mater. 329–333 (2004) 1072-1077

[Edwards 2005] D.J. Edwards, B.N. Singh, J.B. Bilde-Sørensen, «Initiation and propagation of cleared channels in neutron-irradiated pure copper and a precipitation hardened CuCrZr alloy», J. Nucl. Mater. 342 (2005) 164-178

[Edwards 2006] D.J. Edwards, A. Schemer-kohrn, S. Bruemmer, « Characterization of Neutron-Irradiation 300-Series Stainless Steels », EPRI, Palo Alto, CA (2006) 1009896

[Edwards 2009] D.J. Edwards, F.A. Garner, S.M. Bruemmer, Pål Efsing, «Nano-cavities observed in a 316SS PWR flux thimble tube irradiated to 33 and 70 dpa», J. Nucl. Mater. 384 (2009) 249-255

[Etienne 2009] A. Etienne, « Etude des effets d'irradiations et de la nanostructuration dans des aciers austénitiques inoxydables », Thèse Université de Rouen (2009)

[Farrell 2002] K. Farrell, T. S. Byun and N. Hashimoto, «Mapping flow localization processes in deformation of irradiated reactor structural alloys – Final report» Oak Ridge National Laboratory, report ORNL/TM-2003/63 (2002)

[Farrell 2004] K. Farrell, T.S Byun, N. Hashimoto, «Deformation mode maps for tensile deformation of neutron-irradiated structural alloys» J. Nucl. Mater. 335 (2004) 471-486

[Foreman 1969] A.J.E. Foreman, J.V. Sharp. «A mechanism for the sweeping-up of loops by glide dislocations during deformation», Phil. Mag. 19 (1969) 931-937

[Fournier 2012] L. Fournier, M. Zouari, A. Barbu, J. Smith, R. Reid, A. Demma, «Cluster Dynamics Prediction of Void Swelling in Austenitic Stainless Steels Irradiated under PWR and FBR conditions», International BWR and PWR Materials Reliability Conference and Exhibition, Washington DC, (2012)

[Fujii 2002] K. Fujii, K. Fukuya, G. Furutani, T. Torimaru, A. Kohyama, Y. Katoh, «Swelling in 316 stainless steel irradiated to 53 dpa in a PWR», Proc. 10th International Symposium on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors, Lake Tahoe, NV, USA (2001)

[Fujimoto 2005] K. Fujimoto, T. Yonezawa, E, Wachi, Y. Yamaguchi, M. Nakano, R.P. Shogan, J.P. Massoud, T.R. Mager, «Effect of the Accelerated Irradiation and Hydrogen/Helium Gas on IASCC Characteristics for Highly Irradiated Austenitic Stainless Steels», Proc. 12th International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power System – Water Reactors, Salt Lake City, UT, USA (2005) 299

[Fukuya 2004a] K. Fukuya, M. Nakano, K. Fujii, T. Torimaru, «Role of Radiation-Induced Grain Boundary Segregation in Irradiation Assisted Stress Corrosion Cracking», J. Nucl. Sci. Tech. 41 (2004) 594-600

[Fukuya 2004b] K. Fukuya, M. Nakano, K. Fujii, T. Torimaru and Y. Kitsunai, «Separation of Microstructural and Microchemical Effects in Irradiation Assisted Stress corrosion Cracking using Post-Irradiation Annealing », J. Nucl. Sci. Tech. 41 (2004) 1218-1227

[Fukuya 2006] K. Fukuya, K. Fujii, H. Nishioka, Y. Kitsunai, «Evolution of Microstructure and Microchemistry in Cold-worked 316 Stainless Steels under PWR Irradiation», J. of Nucl. Sci. Tech. 43 (2006) 159-173

[Fukuya 2008] K. Fukuya, H. Nishioka, K. Fujii, M. Kamaya, T. Miura, T. Torimaru, «Fracture behavior of austenitic stainless steels irradiated in PWR», J. Nucl. Mater. 378 (2008) 211-219

[Fukuya 2011] K. Fukuya, H. Nishioka, K. Fujii, T. Miura, T. Torimaru, «An EBSD examination of SUS316 stainless steel irradiated to 73 dpa and deformed at 593 K», J. Nucl. Mater. 417 (2011) 958-962

[Furutani 2001] G. Furutani, N. Nakajima, T. Konishi, M. Kodama, «Stress corrosion cracking on irradiated 316 stainless steel», J. Nucl. Mater. 288 (2001) 179-186

[Garner 2006] F.A. Garner, E.P. Simonen, B.M. Oliver, L.R. Greenwood, M.L. Grossbeck, W.G. Wolfer, P.M. Scott, «Retention of hydrogen in fcc metals irradiated at temperatures leading to high densities of bubbles or voids», J. Nucl. Mater. 356 (2006) 122-135

[Fyfitch 2009] S. Fyfitch1, H. Xu, P. Scott, L. Fournier, A. Demma, «Criteria for initiation of Irradiation-Assisted Stress Corrosion Cracking in stainless steels in PWR systems», Proc. 14th International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Systems, Virginia Beach, VA, USA (2009) 1157-1163

[Garner 2012] F.A Garner, "Radiation Damage in Austenitic Steels", Comprehensive Nuclear Material, Elsevier (2012)

[Gerstman 2001] V.Y Gerstman, S.M Bruemmer, « Study of grain boundary character along intergranular stress corrosion crack paths in austenitic alloys», Acta Mater. 49 (2001) 1589-1598

[Greenfield 1961] G. Greenfield, H.G Wildorf., «Effect of Neutron Irradiation on the Plastic Deformation of Copper Single Crystals», J. Appl Phys, 32 (1961) 827-840

[Hashimoto 2000] N. Hashimoto, S.J. Zinkle, A.F. Rowcliffe, J.P. Robertson, S. Jitsukawa, «Deformation mechanisms in 316 stainless steel irradiated at 60°C and 330°C», J. Nucl. Mater. 283–287 (2000) 528-534

[Hashimoto 2006] N. Hashimoto, T.S. Byun, K. Farrell, «Microstructural analysis of deformation in neutron-irradiated fcc materials», J. Nucl. Mater. 351 (2006) 295-302

[Horiki 1994] M. Horiki, M. Kiritani, « Microstructural evolution in low-dose neutron-irradiated Fe-16Ni-15Cr alloy », J. Nucl. Mater. 212 (1994) 246-251

[Horiki 1996] M. Horiki, M. Kiritani, « Thermal stability of point defect clusters in neutron irradiated Fe-16Ni-15Cr », J. Nucl. Mater. 239 (1996) 34-41

[Horiki 1998] M. Horiki, A. Arai, Y. Satoh, M. Kiritani, « Identification of the nature of small point defect clusters in neutron irradiated Fe–16Ni–15Cr by means of electron irradiation », J. Nucl. Mater. 255 (1998) 165-173

[Huguenin 2012] P. Huguenin, « Amorçage des fissures de corrosion sous contrainte dans les aciers inoxydables austénitiques pré-déformés et exposés au milieu primaire des réacteurs à eau sous pression », Thèse MINES ParisTech (2012)

[Isobe 2009] Y. Isobe, M. Sagisaka, F.A. Garner, S. Fujita, T. Okita, « Precipitate evolution in low-nickel austenitic stainless steels during neutron irradiation at very low dose rates», J. Nucl. Mater. 386-388 (2009) 661-665

[Jenssen 1995] A. Jenssen, L.G. Ljungberg, « Irradiation assisted stress corrosion cracking : post irradiation CERT tests of stainless steels in a BWR test loop», Proc. 7th International Symposium on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactor, Houston, TX, USA (1995) 1043

[Jenssen 2005] A. Jenssen, C. Jansson, J. Sundberg, « The effect of hold time on the crack growth rate of sensitized stainless steel in high temperature water », Proc. 12th International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power System, Salt Lake City, UT, USA (2005) 157-166

[Jiao 2005] Z. Jiao, J.T. Busby, R. Obata, G.S. Was, « Influence of Localized Deformation on Irradiation-Assisted Stress Corrosion Cracking of Proton-Irradiated Austenitic Alloys », Proc. 12th International Conference on Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors, The Minerals, Metals and Materials Society, Warrendale, PA, 2005, 379-388

[Jiao 2007] Z. Jiao Z., J.T Busby, G.S Was, « Deformation microstructure of proton-irradiated stainless steels », J. Nucl. Mater. 361 (2007) 218-227

[Jiao 2008] Z. Jiao, G.S Was, « Localized deformation and IASCC initiation in austenitic stainless steels », J. Nucl. Mater. 382 (2008) 203-209

[Jiao 2010] Z. Jiao, G.S Was, « The role of irradiated microstructure in the localized deformation of austenitic stainless steels », J. Nucl. Mater. 407 (2010) 34-43

[Jiao 2011] Z. Jiao, G.S Was, « Impact of localized deformation on IASCC in austenitic stainless steels », J. Nucl. Mater. 408 (2011) 246-256 [Kiritani 1994] M. Kiritani, T. Yoshiie, M. Iseki, S. Kojima, K. Hamada, M. Horiki, Y. Kizuka, H. Inoue, T. Tada, Y. Ogasawara, « Microstructure evolution by neutron irradiation during cyclic temperature variation», J. Nucl. Mater. 212–215 (1994) 241–254

[Karlsen 2011] W. Karlsen, G. Diego, B. Devrient, «Localized deformation as a key precursor to initiation of intergranular stress corrosion cracking of austenitic stainless steels employed in nuclear power plants», J. Nucl. Mater. 406 (2011) 138-151

[Kiritani 1994] M. Kiritani, « Microstructure evolution during irradiation », J. Nucl. Mater. 216 (1994) 220–264

[Lee 1981] E.H. Lee, P.J. Maziasz, A.F. Rowcliffe, « Phase Stability during Irradiation », J.R. Holland, D.I. Potter, L.K. Mansur (Eds.), Phase Stability during Irradiation, TMS-AIME, Warrendale, PA (1981) 191

[Lee 2001a] E.H. Lee, M.H. Yoo, T.S. Byun, J.D. Hunn, K. Farrell, L.K. Mansur, «On the origin of deformation microstructures in austenitic stainless steel», Acta Mater. 49 (2001) 3277-3287

[Lee 2001b] E.H. Lee, T.S. Byun, J.D. Hunn, K. Farrell, L.K. Mansur, «Origin of hardening and deformation mechanisms in irradiated 316 LN austenitic stainless steel», J. Nucl. Mater. 296 (2001) 183-191

[Lucas 1993] G.E. Lucas, «The evolution of mechanical property change in irradiated austenitic stainless steels», J. Nucl. Mater. 206 (1993) 287–305

[Maziasz 1992] P.J. Maziasz, « Temperature dependence of the dislocation microstructure of PCA austenitic stainless steel irradiated in ORR spectrally-tailored experiment », J. Nucl. Mater. 191 (1992) 701-705.

[Maziasz 1993] P.J. Maziasz, « Overview of microstructural evolution in neutron-irradiated austenitic stainless steels», J. Nucl. Mater. 205 (1993) 118-145

[McMurtrey 2011] M. McMurtrey, G.S Was, L. Patrick, D. Farkas, « Relationship between localized strain and irradiation assisted stress corrosion cracking in an austenitic alloy» Mater. Sci. Eng. A 528 (2011) 3730-3740

[Miura 2009] T. Miura, K. Fujii, K. Fukuya, Y. Ito, «Characterization of deformation structure in ion-irradiated stainless steel», J. Nucl. Mater. 386 (2009) 210-213

[Neuhäuser 1974] H. Neuhäuser, R. Rodloff, «Study of slip band development on neutron-irradiated copper single crystals by high speed cinematography», Acta Met. 22 (1974) 375-384

[Odette 1991] G.R Odette, G.E. Lucas, «The effects of intermediate temperature irradiation on the mechanical behavior of 300-series austenitic stainless steels», J. Nucl. Mater, 179 (1991) 572-576

[Okamoto 1979] P.R Okamoto, L.E Rehn, «Radiated-induced segregation in binary and ternary alloys», J. Nucl. Mater. 83 (1979) 2-23

[Okita 2002] T. Okita, T. Sato, N. Sekimura, F.A. Garner, L.R. Greenwood, « The primary origin of dose rate effects on microstructural evolution of austenitic alloys during neutron irradiation », J. Nucl. Mater. 307 (2002) 322-326

[Onchi 2003] T. Onchi, K.Dohi, N. Soneda, J.R Cowan, R.J Scowen, M.L Castano, «Fractographic and microstructural characterization of irradiated 304 stainless steel intergranularly fractured in inert gas», J. Nucl. Mater. 320 (2003) 194-208

[Onchi 2005] T. Onchi, K.Dohi, N. Soneda, M. Navas, M.L Castano, «Mechanism of irradiation assisted stress corrosion crack initiation in thermally sensitized 304 stainless steel», J. Nucl. Mater. 340 (2005) 219-263

[Pickering 1984] F.B. Pickering, « Physical metallurgical development of stainless steels », in: Proceedings of the Conference on Stainless Steels 84, Gothenberg, Sweden, (1984) p. 2.

[Pokor 2002] C. Pokor, «Caractérisation microstructurales et modélisation du durcissement des aciers austénitiques irradiés des structures internes des réacteurs à eau pressurisée», Thèse Institut National Polytechnique de Grenoble (2002)

[Rémy 1978] L. Rémy, « Kinetics of fcc deformation twinning and its relationship to stress-strain behavior », Mater. Sci. Eng. 36 (1978) 47-63

[Rémy 1981] L. Rémy, «The interaction between slip and twinning systems and yne influence of twinning ion the mechanical behavior of fcc metals and alloys», Met.Trans. A, 12A (1981) 387-408

[Rhodes 1977] C. G. Rhodes and A. W. Thompson, «The Composition Dependence of Stacking Fault Energy in Austenitic Stainless Steels», Met. Trans. A, 8A (1977) 1901-1906

[Sakaguchi 2008] N. Sakaguchi, H. Kinoshita, S. Watanabe, Y. Sueishi, N. Akasaka, H. Takahashi, «Microstructural development in a model austenitic alloy following electron and ion irradiation», J. Nucl. Mater. 382 (2008) 197-202

[Satoh 2007] Y. Satoh, S. Abe, H. Matsui, I. Yamagata, «Void swelling behavior in electron irradiated Fe–Cr–Ni model alloys under temperature variation», J. Nucl. Mater. 367–370 (2007) 972–976

[Savoie 2007] M. Savoie, « Influence de la localisation de la déformation sur la corrosion sous contrainte de l'acier inoxydable austénitique A-286 en milieu primaire des REP », Thèse de l'Ecole des Mines de St Etienne (2007)

[Schibli 2013] R. Schibli, R. Schäublin « On the formation of stacking fault tetrahedra in irradiated austenitic stainless steels: A literature review», J. Nucl. Mater. 442 (2013) S761-S767

[Schramm 1975] R. E. Schramm and R. P. Reed, «Stacking fault energies of seven commercial austenitic stainless steels», Met. Trans. A., 6A (1975) 1345-1351

[Schmid 1950] E. Schmid et W. Boas, « Plasticity of Crystals with Special Reference to Metals», Edt F.A. Hughes, Londres, 1950.

[Scott 1994] P.M. Scott, «A review of irradiation assisted stress corrosion cracking », J. Nucl. Mater. 211 (1994) 101-122

[Shogan 2001] R.P. Shogan, T.R. Mager, «Susceptibility of type 316 stainless steel to irradiation assisted stress corrosion cracking in a PWR environment», Proc. 10th International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors, Lake Tahoe, NV, USA (2001)

[Shoji 1998] T. Shoji, S. Suzuki, K.S Raja, «Current status and future of IASCC research», J. of Nucl. Mater. 258 (1998) 241-251

[Shoji 2003] T. Shoji, G. Li, J. Kwon, S. Matsushima and Z. Lu, «Quantification of Yield Strength Effects in IGSCC of Austenitic Stainless Steels in High Temperature Water », Proc. 11th International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Systems, Stevenson, WA, USA (2003) 834-844

[Shoji 2010] T. Shoji, Z. Lu, H. Murakami, « Formulating stress corrosion cracking growth rates by combination of crack tip mechanics and crack tip oxidation kinetics », Corrosion Science, 52, (2010) 769-779

[Stroh 1958], A. N Stroh, «The Cleavage of Metal Single Crystals», Phil. Mag., 3 (1958) 597-606

[Teysseyre 2006] S. Teysseyre, G. S. Was, «Stress Corrosion Cracking of Austenitic Alloys in Supercritical Water», Corrosion 62 (2006) 1100-1116

[Thomas 1982] L.E. Thomas, J.M. Beeston, «The microstructure of neutron irradiated type-348 stainless steel and its relation to creep and hardening», J. Nucl. Mater. 107 (1982) 159-167

[Thomas 2002] Thomas L. and Bruemmer S.M., «Analytical Transmission Electron Microscopy Characterization of Stress Corrosion Cracks in an Irradiated Type 316 Stainless Steel Core Component», International Symposium Fontevraud V, (2002), 347

[Thompson 1980] A. W. Thompson and I. M. Bernstein, "Advances in Corrosion Science and Technology", edited by R. W. Staehle, and Fontana, M. G., Vol. 7, Plenum Press, New York, NY, (1980) 53

[Tribouilloy 2007] L. Tribouilloy, «Etude de la propagation par corrosion sous contrainte des aciers inoxydables austénitiques écrouis en milieu primaire de REP. Vers un modèle d'amorçage», Thèse Université de Bordeaux I (2007)

[Venables 1963] J.A. Venables, «The nucleation and propagation of deformation twinning», J. Phys. Chem. Solids 25 (1963) 693-700

[Victoria 2000] M. Victoria, N. Baluc, C. Bailat, Y. Dai, M.I Luppo, R. Schaublin , B.N Singh, «The microstructure and associated tensile properties of irradiated fcc and bcc metals», J. Nucl. Mater. 276 (2000) 114-122

[Was 1994] G.S. Was and T. Allen, «Radiation Induced Segregation in Multicomponent Alloys: Effect of Particle Type», Mater. Charact. 32 (1994) 239-255.

[Was 2002] G.S Was, J.T Busby, T. Allen, E.A Kenik, A. Jenssen, S.M Bruemmer, J. Gan, A.D Edwards, P.M Scott, P.L Andresen, «Emulation of neutron irradiation effects with protons: validation of principle », J. Nucl. Mater. 300 (2002) 198-216

[Was 2004] G.S Was, B. Alexandreanu, J.T Busby, «Localized Deformation Induced IGSCC and IASCC of Austenitic Alloys in High Temperature Water», Key Engineering Materials 261 (2004) 885-92

[Was 2007a] G. S. Was, “Fundamentals of Radiation Materials Science: Metals and Alloys”, Springer, Berlin (2007)

[Was 2007b] G.S Was, P.L Andresen, «Stress Corrosion Cracking Behavior of Alloys in Aggressive Nuclear Reactor Core Environments », Corrosion 63 (2007) 19-45

[Was 2007c] G. S. Was, P. Ampornrat, G. Gupta, S. Teysseyre, E. A. West, T. R. Allen, K. Sridharan, L. Tan, Y. Chen, X. Ren, C. Pister, «Corrosion and stress corrosion cracking in supercritical water », J. Nucl. Mater. 371 (2007) 176-201

[Was 2009] G.S Was, P.L Andresen, «The Nature of SCC in Irradiated Stainless Steels and Nickel-base Alloys in LWRs», 17th Inter. Corr. Congress, N° 4038, Nace 2009

[West 2010] E.A West, «Influence of local stress and strain on intergranular cracking of 316L stainless steel in supercritical water», PhD thesis, University of Michigan (2010)

[West 2012] E.A West, M.D McMurtrey, Z. Jiao, G.S Was, «Role of localized deformation in irradiation assisted stress corrosion cracking initiation», Met. and Mater. Trans. A, 43A (2012) 136-146

[Zinkle 1993] S.J. Zinkle, P.J. Maziasz, R.E. Stoller, «Dose dependence of the microstructural evolution in neutron-irradiated austenitic stainless steel », J. Nucl. Mater. 206 (1993) 266-286

[Zouari 2012] M.L. Zouari, «Modélisation par dynamique d’amas des évolutions microstructurales et du gonflement sous irradiation dans les aciers inoxydables austénitiques», Thèse Université de Grenoble (2012)

CHAPITRE II

Démarche expérimentale et caractérisation des microstructures après irradiations aux ions

II. 1 Présentation du matériau étudié

II.1.1 Composition chimique

II.1.2 Microstructure

II.1.3 Propriétés mécaniques

II. 2 Irradiation aux protons sur matériau massif

II.2.1 Présentation de la plateforme d'irradiation du MIBL

II.2.2 Préparation et suivi des irradiations

II.2.3 Caractérisation du matériau irradié

II.2.3 a) Evolution de la dureté

II.2.3 b) Modification de la chimie en surface

II.2.3 c) Evolution de la texture

II.2.3 d) Profondeur d'irradiation et caractérisation des défauts dans le volume

II.3 Irradiation aux ions lourds sur lames minces

II.3.1 Présentation de la plateforme JANNuS Orsay

II.3.2 Plan d'expérience et préparation des lames minces

II.3.2 a) Conditions expérimentales

II.3.2 b) Préparation des lames minces

II.3.3 Suivi in-situ des irradiations mono-faisceau

II.3.3 a) Evolution du réseau de dislocations initial

II.3.3 b) Microstructure d'irradiation

II.3.3 c) Aspect cinétique

II.3.4 Analyses quantitatives post-irradiation

II.3.4 a) Influence de la teneur en hélium

II.3.4 b) Influence de la température d'irradiation

II.3.5 Discussion sur l'évolution de la microstructure sous irradiation aux ions

II.3.5 a) Dislocations initiales et défauts d'irradiation

II.3.5 b) Interaction hélium/défaut – effet de l'hélium sur la microstructure en fonction du rapport He/dpa

Résumé

Bibliographie

Comme nous l'avons vu au chapitre I, les protons et les ions lourds sont souvent utilisés pour simuler les dommages créés par une irradiation neutronique tout en s'affranchissant des rayonnements ionisants de type γ.
Du fait de leur charge électrique, les protons bien que proches par leur masse des neutrons ne pénètrent pas aussi profondément dans la matière que ces derniers. Cependant et contrairement aux ions lourds, les protons entraînent un endommagement homogène sur une distance de l'ordre de quelques micromètres de profondeur, distance qui dépend de l'énergie du flux incident. Cette homogénéité permet d'utiliser de la matière ainsi irradiée pour réaliser sur matériau massif des essais susceptibles de simuler l'IASCC.

En revanche, les réactions neutroniques ne peuvent pas être reproduites. Les réactions de transmutation, qui ont pour conséquence de générer in-situ des molécules d'hélium dans les matériaux métalliques, ne peuvent donc être simulées de cette façon. La présence d'hélium sous forme gazeuse pourrait être impliquée dans le gonflement des structures en acier soumises aux radiations et pourrait également constituer un facteur aggravant pour l'IASCC *via* une interaction avec les défauts d'irradiation et une éventuelle fragilisation des joints de grains.
L'utilisation de plateformes expérimentales avec double ou triple faisceaux permet de contourner cette difficulté puisque de l'hélium peut être simultanément implanté au cours de l'irradiation. Ces irradiations sont généralement effectuées sur lames minces (~100 nm d'épaisseur) ou lames dites « bulk » (~100 µm d'épaisseur, amincies post-irradiation) et les ions lourds sont alors privilégiés car ils rendent possible l'obtention de doses supérieures ou égales à 1 dpa en un temps très court.

Dans ce travail, des plaques ont été irradiées aux protons puis découpées en éprouvettes de traction afin de réaliser des tests de corrosion sous contrainte post-irradiation en milieu primaire simulé.
Parallèlement à ces essais sur matériau massif, des lames minces ont été préparées puis irradiées avec des ions lourds sur la plateforme JANNuS (CSNSM Orsay) avec implantation simultanée d'hélium. Ces irradiations sur lames minces ont permis d'obtenir des informations sur la cinétique d'apparition et de croissance des défauts créés par l'irradiation et de discuter de l'effet de l'hélium sur cette microstructure.

Ce chapitre décrit l'ensemble des irradiations effectuées dans le cadre de cette étude et la caractérisation des microstructures obtenues. La première partie est consacrée à la présentation du matériau avant irradiation.
Les résultats des essais de corrosion sous contrainte après irradiation aux protons seront détaillés dans le chapitre III.

II. 1 Présentation du matériau étudié

Le matériau d'étude est un acier inoxydable austénitique de type 304L hypertrempé, fourni par Areva NP – Le Creusot qui se présente sous la forme d'une plaque laminée de dimensions : 230x145x18 mm^3.

II.1.1 Composition chimique

La composition chimique de l'acier 304L a été déterminée par spectrométrie ICP-OES et est indiquée dans le **tableau II.1**.

Alliage	**Fe**	**C**	**Cr**	**Ni**	**Mn**	**Mo**	**Si**	**Cu**	**S**	**P**	**Co**	**B**	**N**	**Al**
% massique	68,3	0,029	19,38	9,18	1,72	0,356	0,539	0,187	0,002	0,031	0,164	0,002	0,066	0,016
RCC-M		**C**	**Cr**	**Ni**	**Mn**	**Mo**	**Si**	**Cu**	**S**	**P**	**Co**	**B**	**N**	**Al**
% massique	-	≤ 0,035	18,50 à 20,00	9,00 à 10,00	≤ 2,00	-	≤ 1,00	≤ 1,00	≤ 0,03	≤ 0,040	≤ 0,20 et ≥ 0,10	≤ 0,0015	≤ 0,08	-

Tableau II.1 : Composition chimique (en % mass.) déterminée par analyse ICP de l'acier 304L étudié et comparaison avec les spécifications du RCC-M

Nous pouvons constater que la composition chimique de l'alliage est conforme aux spécifications d'approvisionnement décrite dans le RCC-M. D'après la formule de Pickering **(I.2)**, l'énergie de faute d'empilement (E.D.E) de cet acier est estimée à 24 $mJ.m^{-2}$ ce qui correspond bien à la gamme des E.D.E des aciers du type 304L. A partir de cette composition nous pouvons aussi calculer la température Md_{30}. D'après la formule **(I.3)**, Md_{30} est égale à +27°C, température sensiblement équivalente à la température ambiante. Nous en déduisons que, à température ambiante, la transformation martensitique par écrouissage de notre matériau est donc possible.

Une analyse par microsonde de Castaing et microscopie (**figure II.1**) a également révélé la présence de quelques sulfures de manganèse intragranulaires et carbures de chrome intergranulaires. La répartition de ces précipités semble être fortement hétérogène dans l'épaisseur de la plaque.

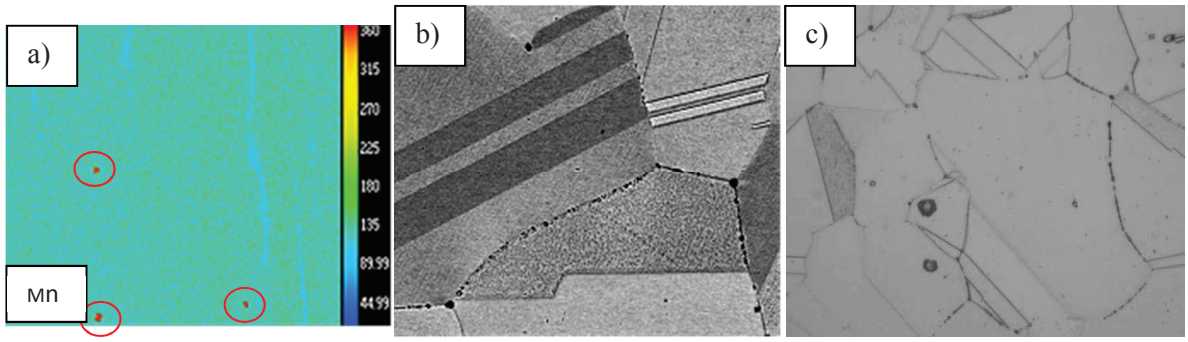


Figure II.1: (a) microsonde de Castaing : sulfures de manganèse, (b) et (c)MEB en électrons rétrodiffusés et microscopie optique : précipités aux joints de grains (carbures de chrome supposés)

II.1.2 Microstructure

La microstructure est biphasée avec la phase majoritaire (97%) qui est composée de grains austénitiques et la phase minoritaire (3%) de grains de ferrite résiduelle (**Figure II.2**).

Les grains austénitiques sont equiaxes et la ferrite résiduelle, constituée elle aussi de grains equiaxes, se présente sous forme de bandes, allongées suivant la direction de laminage.

La taille des grains austénitique a été estimée par EBSD à 40 µm. Les bandes de ferrite sont des zones à petits grains avec une taille moyenne de 14 µm.

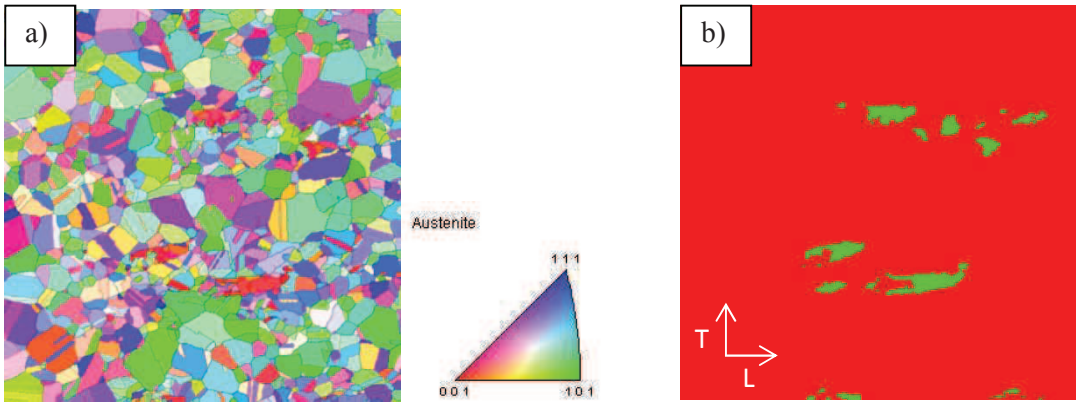


Figure II.2 : (a) Figure de pôles inverse selon [001] et (b) cartographie des phases de l'acier 304L étudié – en rouge l'austénite et en vert la ferrite

Du fait du laminage, le matériau est légèrement texturé autour d'un pôle <110> de l'austénite parallèle à la normale à la tôle comme cela est présenté sur la **figure II.3**.

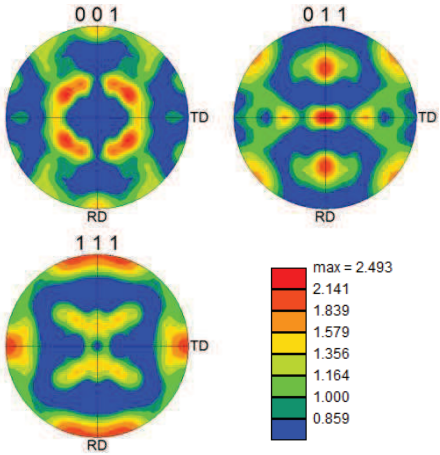


Figure II.3 : Figures de pôles avec symétrie orthotrope de la phase austénitique

Les joints de grains considérés ici sont les joints pour lesquels il existe une désorientation de plus de 15° entre deux pointés consécutifs sur la cartographie EBSD. Nous distinguons les joints dits généraux, qui ne présentent aucune symétrie particulière, des joints spéciaux qui présentent un réseau de coïncidence et dont l'indice Σ est inversement proportionnel à la densité de nœuds communs [Priester 2009].

Dans la suite de ce travail, les joints généraux sont parfois nommés RHABs pour Random High Angle Boundaries, tandis que les joints spéciaux peuvent être désignés par l'acronyme CSLs pour Coincident Site Lattice boundaries.
La désorientation du joint de grains correspond au plus petit angle de rotation autour d'un axe (ou direction) du triangle standard. Les couples angle /direction de désorientation des joints CSLs dans les structures C.F.C. sont donnés dans le **tableau II.2**.

Indice de coïncidence Σ	**Angle θ (°C)**	**Direction <uvw>**
3	60	111
5	36,9	100
7	38,2	111
9	38,9	110

Tableau II.2 : Couples angle/axe de désorientation de quelques joints singuliers

Dans cette microstructure, 29 % des joints de grains sont des joints CSLs et la microstructure est fortement maclée avec 26% de joints Σ3 (**figure II.4**).

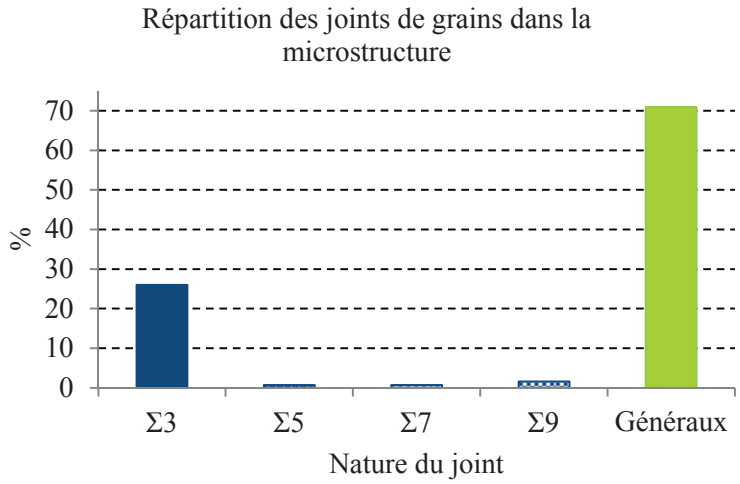


Figure II.4: Répartition des joints de grains dans la microstructure du 304L étudié

II.1.3 Propriétés mécaniques

Les propriétés mécaniques en traction ont été mesurées dans le plan de la tôle en sens long et en sens travers à température ambiante et à 325°C (rapports d'essai en **annexe A**). Elles sont résumées dans le **tableau II.3**.

Sens	Température (°C)	E (GPa)	Rp 0,2 (MPa)	Rm (MPa)	A (%)
Long	20	178	310	588	58
Travers	20	218	329	593	57
Long	325	140	173	439	41
Travers	325	182	203	443	38

Tableau II.3 : Propriétés mécaniques en traction à 20°C et à 325°C de l'acier 304L étudié

II. 2 Irradiation aux protons sur matériau massif

II.2.1 Présentation de la plateforme d'irradiation du MIBL

Les irradiations aux protons ont été réalisées au Michigan Ion Beam Laboratory (MIBL) de l'université du Michigan. Créé en 1986, le MIBL est spécialisé dans les interactions ions-solides et a notamment développé des instruments permettant de modifier et/ou d'analyser la surface des matériaux par faisceau ionique.

Parmi ces instruments, nous citerons un accélérateur Tandetron 1,7 MV équipé de deux lignes, l'une adaptée aux implantations / irradiations et l'autre servant pour l'analyse par faisceau d'ions (spectroscopie de rétrodiffusion de Rutherford (RBS), analyse par réaction nucléaire (NRA)…).
Des protons d'une énergie allant jusqu'à 3,2 MeV sont classiquement utilisés. La chambre est sous un vide de 10^{-5} Pa et l'échantillon peut être chauffé ou refroidi grâce à un porte-échantillon spécifique opérant dans une plage de -196°C à +800°C.

II.2.2 Préparation et suivi des irradiations

Afin de réaliser des essais de CSC sur des éprouvettes préalablement irradiées, nous avons choisi pour les raisons évoquées précédemment une irradiation aux protons. L'énergie des particules incidentes a été fixée à 2 MeV, ce qui constitue un bon compromis entre profondeur irradiée et radioactivité résiduelle. En effet, les réactions nucléaires (p, n) du Ni et du Cr aboutissant à la production des isotopes Cu-61, Cu-64 ou Mn-54 ont des énergies seuil comprises entre 2 MeV et 3 MeV. La radioactivité résiduelle est donc plus faible avec une énergie incidente de 2 MeV que celle résultant de 3 MeV ou plus.
Le profil d'endommagement créé par des protons de 2 MeV dans le 304L a été calculé à l'aide du logiciel Stopping and Range of Ions in Matter (SRIM) [SRIM 2008].

Les énergies de déplacement du Fe, du Ni et du Cr, éléments majoritaires du matériau ont été fixées à 40 eV.
Le profil obtenu (**figure II.5**) présente un plateau homogène sur une quinzaine de µm (zone (1)) suivi du pic de Bragg (pic balistique) (zone (2)). Le reste du matériau est non affecté par l'irradiation (zone (3)).

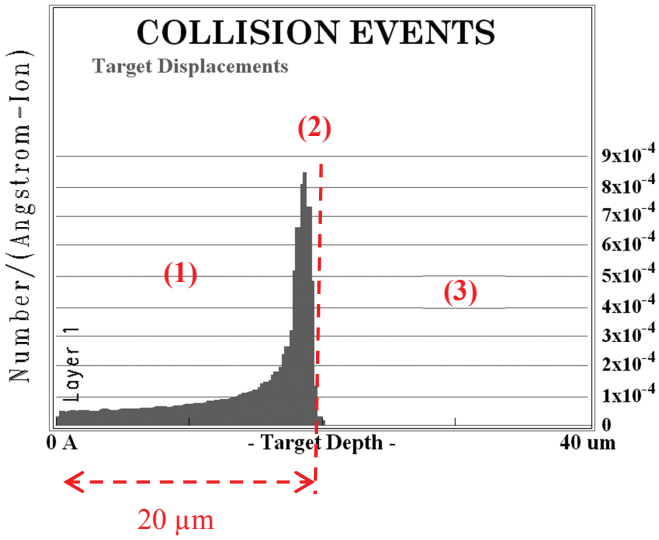


Figure II.5 : Profil d'endommagement d'un acier 304L calculé avec le logiciel SRIM pour des protons de 2 MeV

Pour simuler une irradiation aux neutrons autour de 300°C, la température d'irradiation aux protons choisie est de 360°C (cf. chapitre I.2.4).
Le bon alignement du faisceau et le contrôle de la température sont deux paramètres essentiels qui conditionnent l'uniformité de l'irradiation et la dose. Une variation significative de la température conduirait à l'obtention d'une microstructure différente de celle attendue.
La température est mesurée en cours d'irradiation à l'aide d'une caméra thermique dont le positionnement est illustré sur la **figure II.6**. La calibration de la caméra thermique est réalisée préalablement à l'irradiation à l'aide de quatre thermocouples soudés aux quatre coins de la plaque.

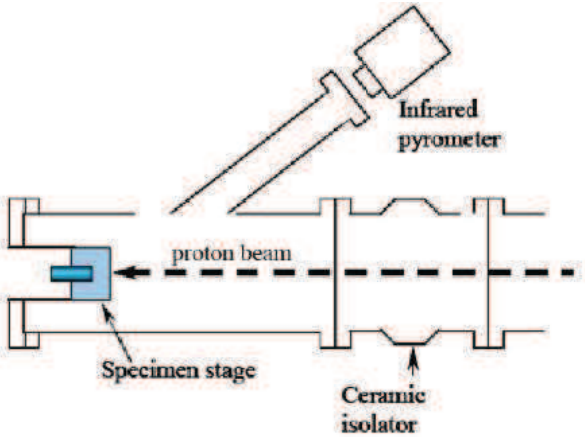


Figure II.6: positionnement de la caméra thermique

Pour contrôler la température, l'échauffement local lié au faisceau incident doit être évacué efficacement. De fines feuilles d'indium sont réparties à cet effet entre le support et le matériau avant l'irradiation (**figure II.7**). Au-delà de 180°C, l'indium fond et la création de cette interface liquide assure une excellente diffusion thermique entre le matériau et le support. La température en cours d'irradiation est maintenue à ± 10°C grâce à un système de refroidissement par flux d'air.

La température des 6 zones suivies par caméra thermique est de 360 ± 6°C (**tableau II.4**).

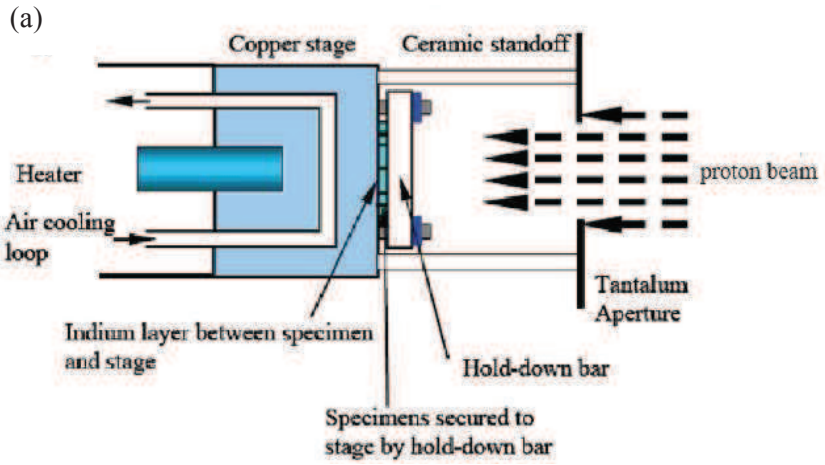
	Zone 1	Zone 2	Zone 3	Zone 4	Zone 5	Zone 6
T moyenne (°C)	360,8	360	359,4	360,3	360,1	359,1
2σ	5,11	5,29	5,48	5,07	5,45	5,49

Tableau II.4 : Moyenne de la température en cours d'irradiation sur 6 zones de l'échantillon

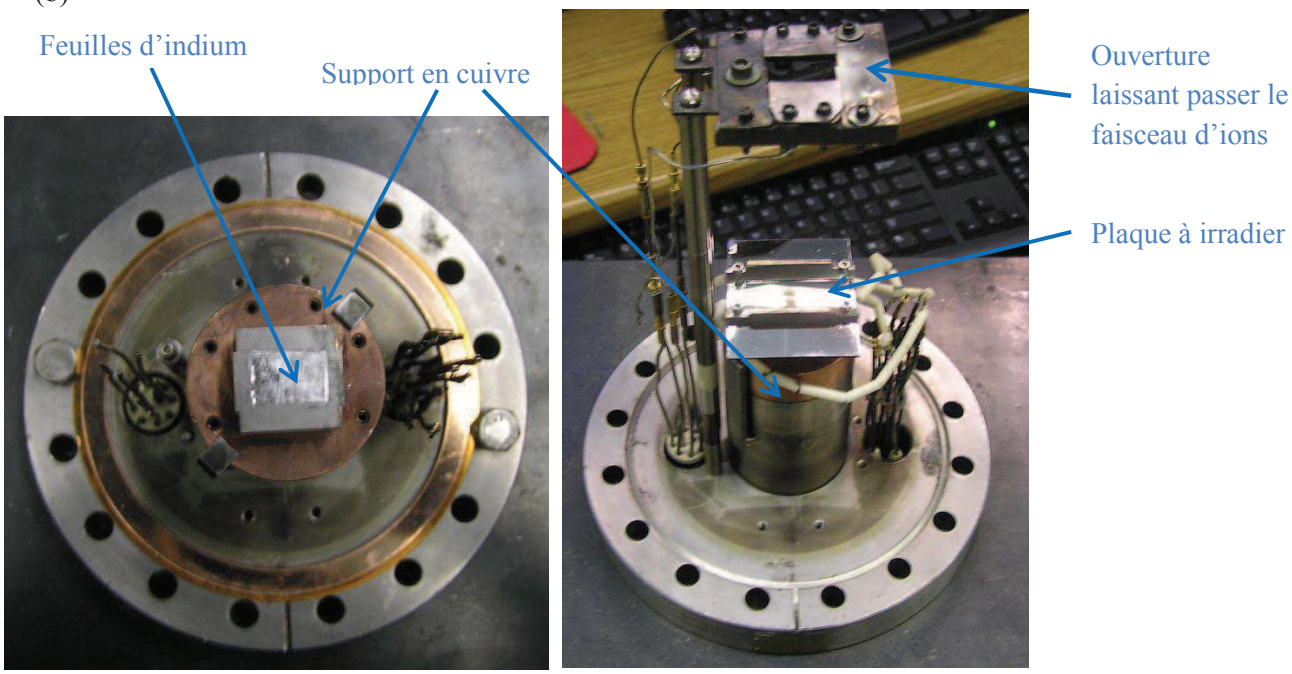
Pour optimiser la surface irradiée disponible pour les essais de CSC et surtout garantir l'homogénéité de la microstructure via un meilleur contrôle de la température, nous avons préféré irradier une plaque entière qui sera par la suite découpée en éprouvettes par électroérosion plutôt que d'irradier directement des éprouvettes prédécoupées.

Une plaque d'acier de 50*40*1 mm^3, polie miroir sur les deux faces, a donc été irradiée à 5 dpa avec des protons d'une énergie de 2 MeV à 360°C.

La taille de la zone irradiée, de 10*18 mm^2, est imposée au niveau du montage par une ouverture en tantale fixée au-dessus de l'échantillon et qui canalise le faisceau d'ions.
La **figure II.7** présente le montage utilisé. Le vide dans la chambre est maintenu pendant toute la durée de l'irradiation entre 10^{-5} et 10^{-6} Pa.



(b)



Figures II.7 : (a) Schéma de l'ensemble du montage utilisé pour irradier le matériau et contrôler la température de l'échantillon [West 2010] et (b) photos du montage utilisé au MIBL pour l'irradiation aux protons

La durée de l'irradiation est calculée de la façon suivante.
D'après le profil d'endommagement de la **figure II.5**, le taux de déplacements dans la partie homogène est égal à $8{,}65.10^{-5}$ déplacements/proton/Å (valeur lue à 60% du pic de Bragg). A partir de ce taux de déplacement, nous pouvons calculer la vitesse d'irradiation à l'aide de la formule **(II.1)**.

$$\text{Vitesse d'endommagement (dpa.s}^{-1}) = \frac{\text{flux de protons} \times \text{taux de déplacements}}{\text{densité atomique}} \qquad \textbf{(II.1)}$$

Le flux de protons (protons.cm^{-2}.s^{-1}) est calculé à partir de la densité de courant du faisceau incident. Le proton étant une particule avec une seule charge électrique, un électron mesuré correspond à un proton incident.

Le courant de faisceau est de 40 µA (**figure II.8**) pour une surface irradiée de 1,8 cm^2 soit une densité de courant de l'ordre de 22,2 µA.cm^{-2}.

En utilisant la conversion 1A = 1 Coulombs.s^{-1} = $6{,}25.10^{18}$ électrons.s^{-1}, nous déduisons que le flux de protons est égal à :

$$\text{Flux de protons} = 22{,}2.10^{-6}\ \frac{\text{A}}{\text{cm}^2} \times 6{,}25.10^{18}\ \frac{\text{protons}}{\text{s}} = 1{,}39.10^{14}\ \frac{\text{protons}}{\text{cm}^2.\text{s}} \qquad \textbf{(II.2)}$$

La densité atomique du 304L est de $8{,}45.10^{22}$ atomes.cm^{-3} soit $8{,}45.10^{14}$ atomes.cm^{-2}.Å^{-1}.

En combinant les équations **(II.1)** et **(II.2)** on obtient :

$$\text{Vitesse d'endommagement (dpa.s}^{-1}) = \frac{1{,}39.10^{14} \times 8{,}65.10^{-5}}{8{,}45.10^{14}} \approx 1{,}43.10^{-5}\ dpa.s^{-1} \qquad \textbf{(II.3)}$$

Pour un endommagement de 5 dpa, il faut donc compter une centaine d'heures d'irradiation.
Cette vitesse d'endommagement est de 2 à 4 ordres de grandeur supérieurs à la vitesse d'endommagement sous neutrons.

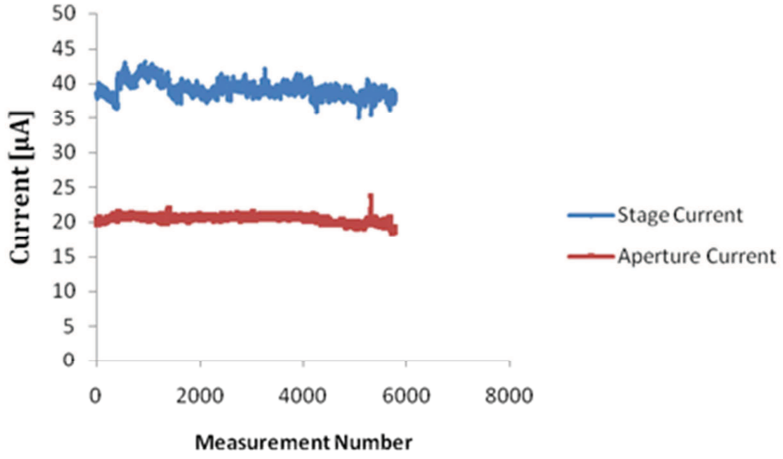


Figure II.8 : Suivi du courant de faisceau au niveau du montage (en bleu) et du courant correspondant à l'ouverture en tantale fixée au-dessus de la zone à irradier (en rouge) durant l'irradiation

Nous avons vu que le flux de protons au cours de l'irradiation était de $1{,}39.10^{14}$ protons.cm^{-2}.s^{-1}. Pour une surface irradiée de 1,8 cm^2 et une irradiation de 100 h, cela représente donc une implantation dans le matériau de $2{,}5.10^{14}$ protons.

D'un point de vue semi-quantitatif et en première approximation, si nous supposons qu'une fois implantés les protons diffusent de manière homogène dans l'ensemble du volume de la plaque, nous avons alors injecté dans le volume environ $4{,}4.10^{13}$ protons.cm^{-3} pour « 5 dpa ».
La densité atomique du matériau étant de 8,45 atomes.cm^{-3}, cela représente 1 proton pour environ 2.10^9 atomes, ce qui reste donc négligeable.

II.2.3 Caractérisation du matériau irradié

II.2.3 a) Evolution de la dureté

La quantité de dommages créés en surface devrait être homogène sur les 1,8 cm^2 mais un faisceau incident défocalisé ou mal aligné peut conduire à un résultat inhomogène.
L'irradiation conduit à une augmentation notable de la dureté du matériau et pour vérifier son homogénéité nous avons donc réalisé en surface une série de mesures de microdureté.

Une charge de 25grammes a été appliquée à l'aide d'une pointe pyramidale à base carrée de type Vickers. La profondeur impactée par la charge peut être calculée à partir des longueurs des diagonales (d) de la marque via la formule **(II.4)**.

$$H\ (\mu m) = \frac{d\ (\mu m)}{2\sqrt{2}(tan68°)} \quad \textbf{(II. 4)}$$

Sous cette charge, la profondeur testée pour la zone irradiée oscille entre 1,5 et 2 µm ce qui est très inférieur à la profondeur de cette zone estimée à environ 20 µm.
Les duretés mesurées sur la zone irradiée et la zone non irradiée de la plaque sont recensées dans le **tableau II.5**.

	Zone irradiée	Zone non irradiée
Dureté ($HV_{0,25}$)	433	218
Déviation standard σ	21,5	17,8

Tableau II.5 : Comparaison des duretés de l'acier 304L avant et après irradiation aux protons à 5 dpa

La dureté de la zone irradiée est deux fois plus élevée que celle de la zone non irradiée. En utilisant l'équation **(I.4)** qui relie limite d'élasticité et dureté, nous en déduisons que la limite d'élasticité a augmenté de 650 MPa et se situe donc autour de 850 MPa pour la zone irradiée.

Le profil de dureté obtenu en surface sur la zone irradiée est présenté sur la **figure II.9**. Ce profil est homogène sur l'ensemble de la longueur.

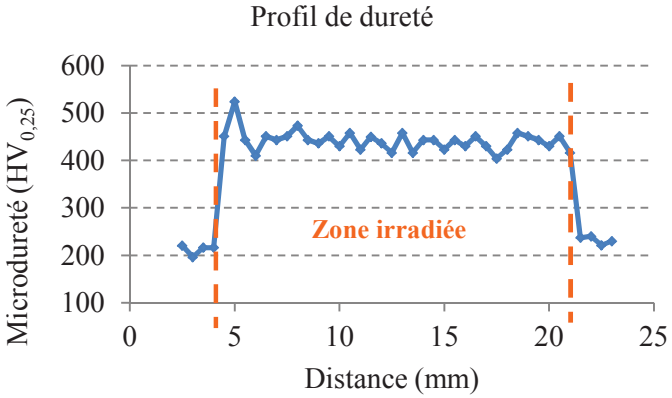


Figure II.9: Profil de dureté le long de la longueur (L=18mm) de la zone irradiée ; la charge appliquée est de 25g

II.2.3 b) Modification de la chimie en surface

Suite à l'irradiation, une pellicule sombre s'est formée en surface du matériau. Des analyses XPS ont été conduites au CEMEF (Centre de Mise en Forme des Matériaux - Mines ParisTech, Sophia-Antipolis) sur une partie irradiée et non irradiée de la plaque pour mesurer les teneurs des principaux

éléments de l'alliage en surface et identifier la nature de la couche sombre observée après irradiation. Les conditions de manipulation et de nettoyage ont été strictement identiques pour les deux coupons.
Les spectres globaux en extrême surface pour les coupons irradié (I) et non irradié (M) sont donnés sur la **figure II.10**. Les profils de composition des éléments sélectionnés ont ensuite été déterminés par abrasion du matériau.
Pour plus de détails sur les conditions d'analyses, le lecteur est invité à consulter l'**annexe B**.

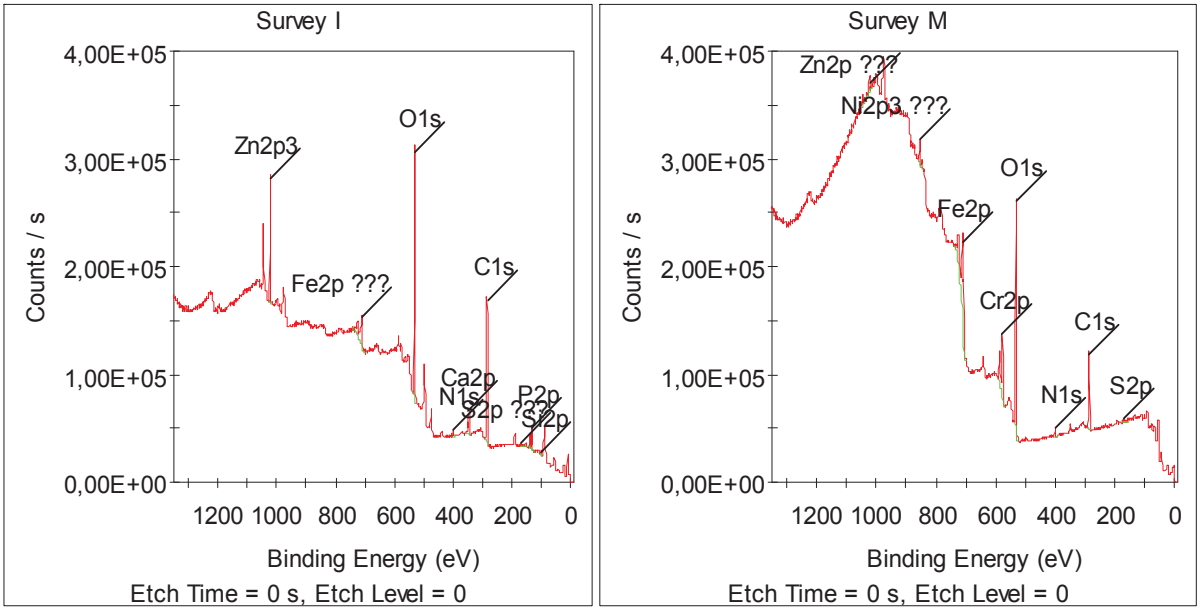


Figure II.10: Spectre XPS global en extrême surface obtenu sur matériau irradié (I) et non irradié (M)

Le pic attribué au Zn n'est pas expliqué mais provient probablement d'une pollution des coupons. Nous retrouvons les éléments classiques constitutifs du 304L, à savoir le Fe, le Ni et le Cr. A ces éléments s'ajoutent le carbone et l'oxygène, deux éléments attendus en analyse d'extrême surface. Enfin, nous notons la présence éventuelle de soufre et d'azote ainsi qu'un pic attribué au phosphore et un autre au silicium sur le matériau irradié uniquement.

Les **figures II.11** et **II.12** représentent les profils de composition obtenus par abrasion des coupons irradié et non irradié pour les éléments majoritaires Fe, Ni et Cr d'une part ainsi que pour les éléments minoritaires et impuretés P, Si, C et O d'autre part.
La profondeur indiquée sur les graphes est une profondeur calculée à partir du temps d'abrasion et de la vitesse estimée de celle-ci (estimation donnée par le logiciel de traitement des données et basée sur l'abrasion du Ta_2O_5).Pour les mesures indiquées de 0 à 28 nm, la vitesse d'abrasion est estimée à 0,93 nm/s alors que pour celles indiquées de 28 à 140 nm, elle est estimée à 2,67 nm/s. Les conditions de préparation et d'abrasion des échantillons ont été en tous points similaires entre les deux coupons et nous savons que leur composition sera également très proches, ce qui nous autorise d'une part à considérer que les vitesses d'abrasion dans les conditions choisies seront identiques pour les deux échantillons et d'autre part à comparer les résultats indépendamment des valeurs réelles ou supposées de la profondeur. Les mesures obtenues pour la profondeur estimée de 28 nm sont quasi identiques pour les deux séries de mesures et ce pour les deux échantillons. Les valeurs retenues pour les figures suivantes sont issues de la première série.

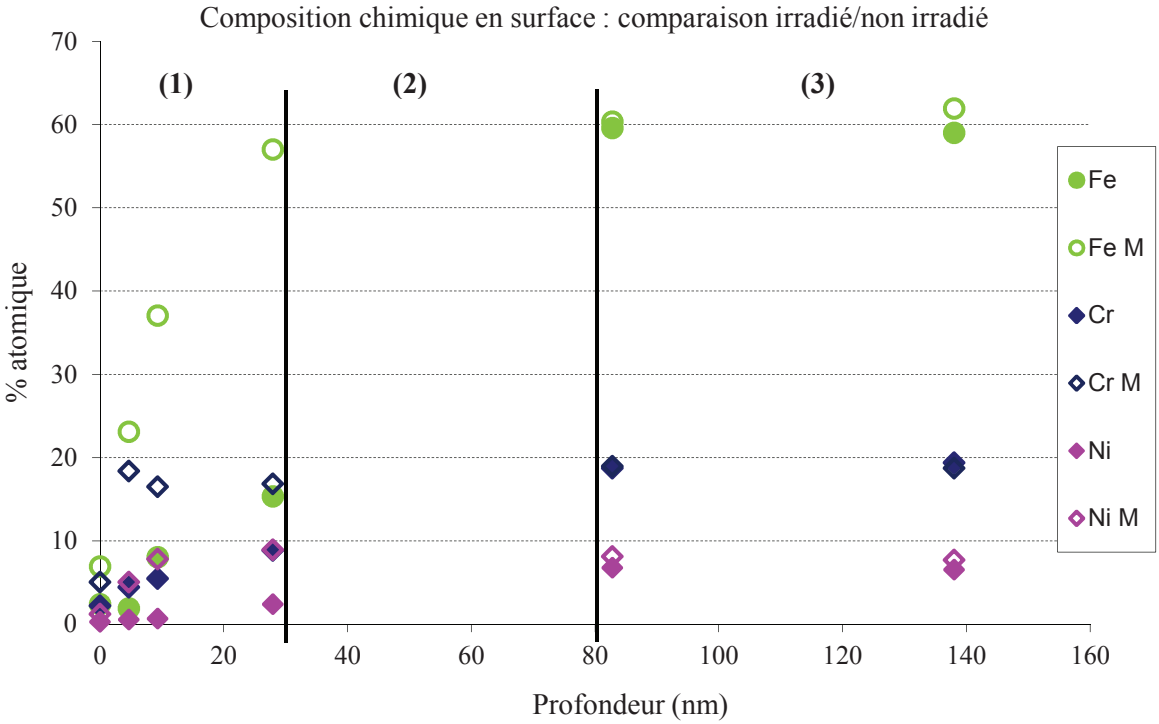


Figure II.11 : Analyses XPS de 0 à 140 nm des éléments majoritaires du 304L avec M=matériau non irradié

Au-delà de 80 nm de profondeur (zone **(3)**), les teneurs des principaux éléments sont similaires et stables pour le matériau irradié et non irradié. Le matériau irradié n'est donc plus affecté du point de vue de la composition chimique globale par les conditions d'irradiation. L'absence de pointés en zone **(2)** ne nous permet de pas de juger si cet équilibre est déjà atteint entre 30 et 80 nm.
En zone **(1)**, sur les 30 premiers nanomètres, les trois principaux éléments présentent des profils différents entre les deux états de ce même matériau.

De la même façon que pour les éléments majoritaires, nous retrouvons pour les éléments minoritaires plusieurs zones avec une composition chimique globale identique entre irradié et non irradié au-delà de 80 nm. En ce qui concerne la zone **(1)**, les teneurs en O, P, Si et C sont supérieures sur le matériau irradié (**figure II.12**).

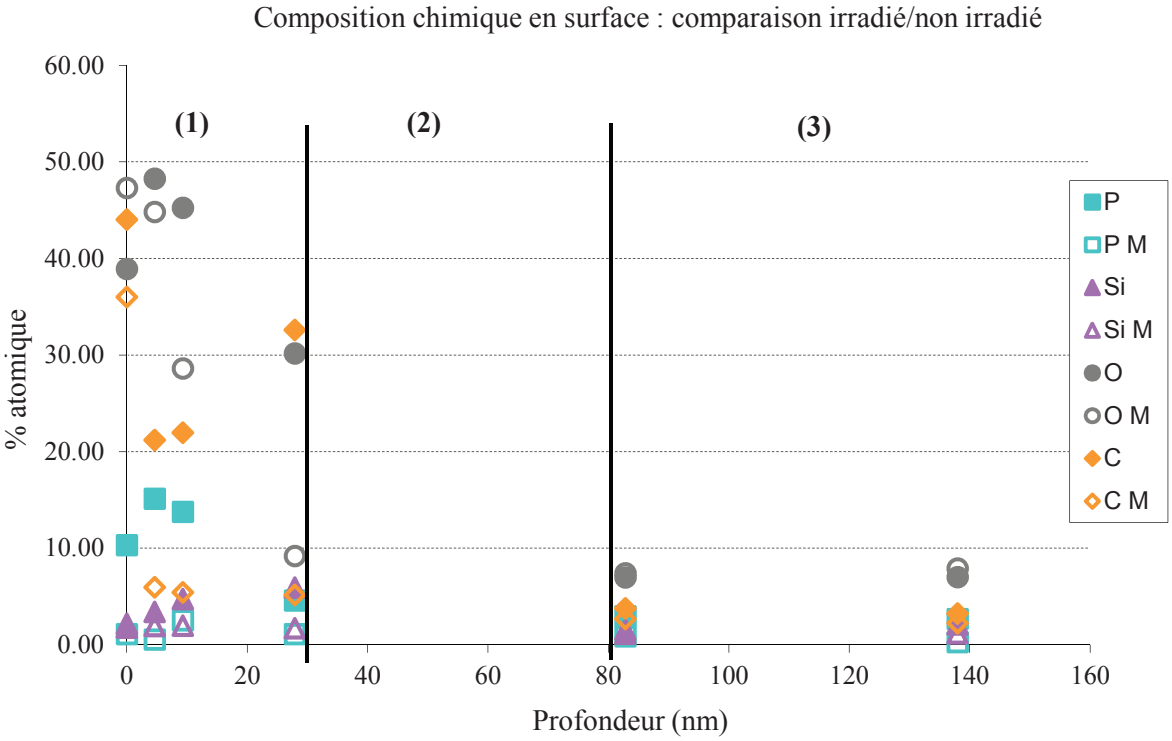


Figure II.12 : Analyses XPS de 0 à 140 nm des éléments minoritaires et impuretés du 304L avec M=matériau non irradié

Les **figures II.13** et **II.14** représentent les profils de composition de ces mêmes éléments de 0 à 30 nm (zone **(1)**) sur les deux coupons.

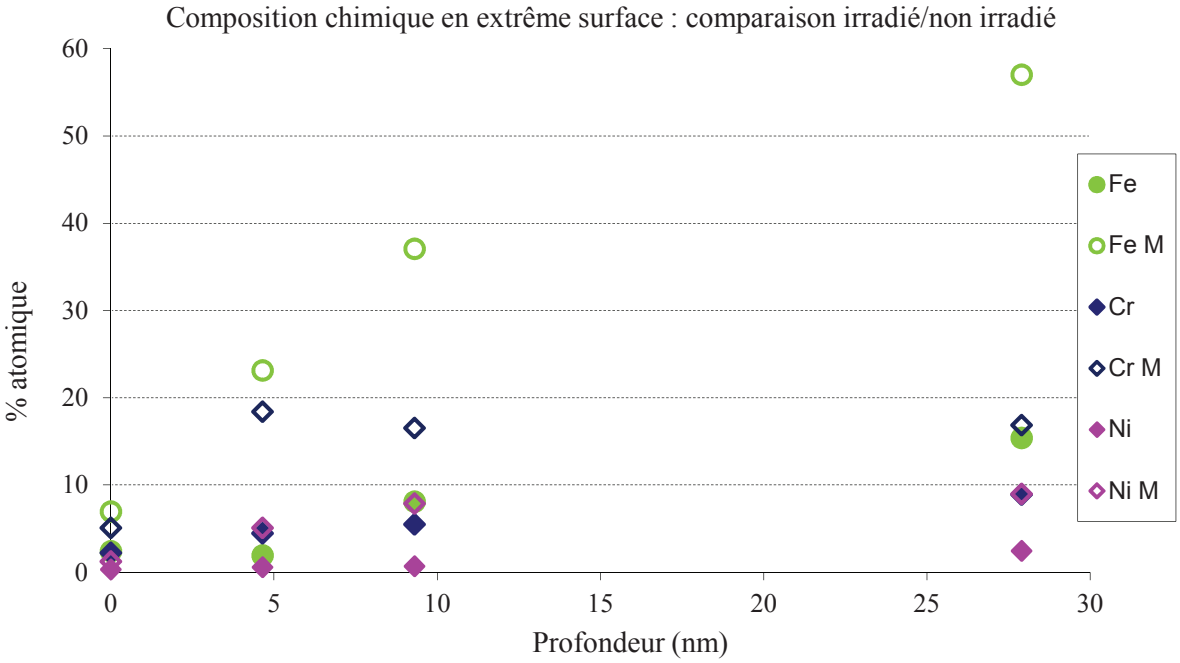


Figure II.13 : Analyses XPS de 0 à 28 nm des éléments majoritaires du 304L avec M=matériau non irradié

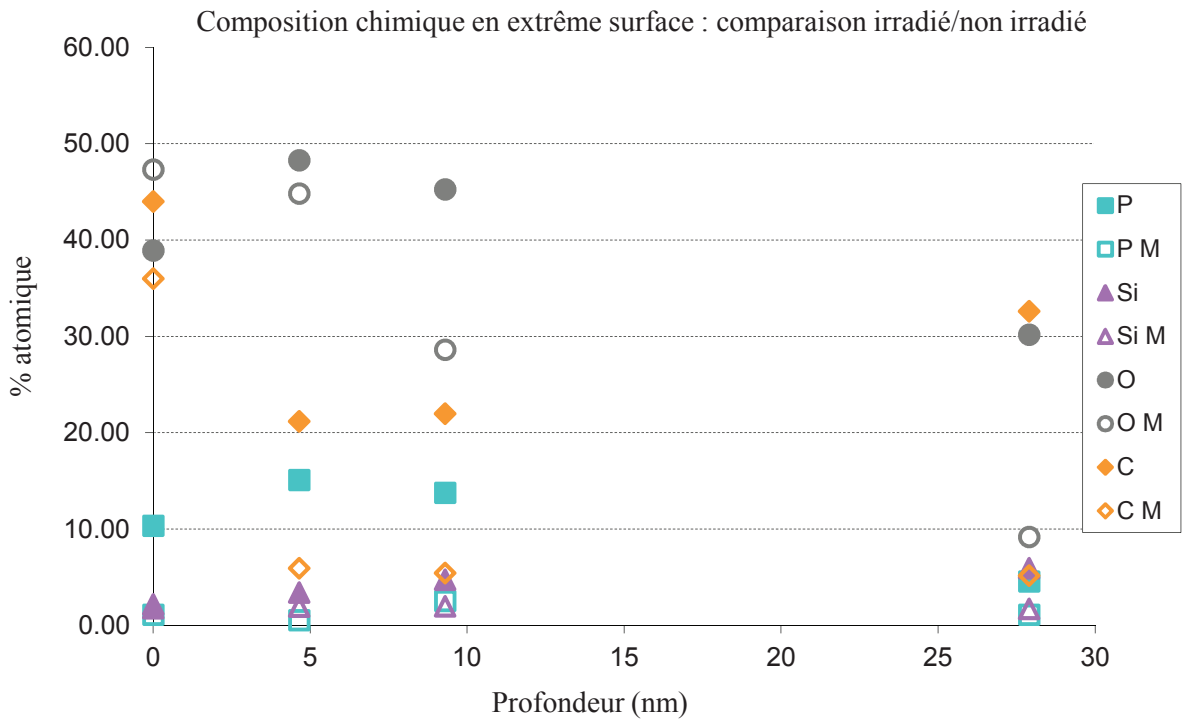


Figure II.14 : Analyses XPS de 0 à 28 nm des éléments minoritaires et impuretés du 304L avec M=matériau non irradié

Les concentrations relatives en C, en O et en P sont plus élevées pour le matériau irradié. En contrepartie, les proportions relatives des éléments principaux Fe, Cr et Ni sont plus faibles.
Les teneurs supérieures en C et O sont dues à l'exposition du matériau au faisceau en température, malgré le maintien d'un vide secondaire durant l'irradiation (à $1{,}33.10^{-5}$ Pa). Elles expliquent la présence de la fine couche sombre en surface de ladite zone.
En éliminant les contributions du C et de l'O sur les concentrations relatives en Si, P, Fe, Ni et Cr et en normalisant les profils de ces derniers, nous confirmons que le Si et le P sont enrichis en surface du matériau irradié tandis que les éléments majoritaires Fe, Ni et Cr sont appauvris. Les résultats d'enrichissement en Si et P sont cohérents avec la RIS classiquement observée pour les aciers inoxydables austénitiques irradiés (cf. Chapitre I.). L'appauvrissement en Fe et Cr est également cohérent avec le RIS tandis que l'appauvrissement en Ni ne correspond pas à ce qui est attendu car le coefficient de diffusion de ce dernier (comparativement à celui des autres éléments) induit son enrichissement aux abords des surfaces libres et des puits de potentiels. La formation d'une couche d'oxyde riche en Fe et Cr et pauvre en Ni est probable et les effets de cette oxydation sur la composition de surface sont en compétition avec ceux attendus pour la RIS des éléments majoritaires.

Les diagonales des marques de dureté effectuées en surface de la plaque irradiée ont été mesurées à chaque étape d'un polissage incrémental à l'OPS. Ce fin polissage avait pour objectif d'éliminer la pellicule sombre visible en extrême surface et la mesure des diagonales a permis de déterminer que l'épaisseur de celle-ci était inférieure à 200 nm.
A la vue de ces résultats, nous avons décidé de pratiquer ce léger polissage sur chaque éprouvette irradiée avant essai afin de s'affranchir de ces effets de surface vis-à-vis de nos essais de CSC.

II.2.3 c) Evolution de la texture

Un faisceau d'ions avec une incidence normale à la surface peut induire pour un matériau de structure C.F.C. une modification de l'orientation de certains grains de {111} à {110} et donc une évolution de la texture. Les conséquences sur la texture seront différentes suivant la cristallographie initiale du matériau et l'angle du faisceau. Cet effet est d'autant plus marqué que le faisceau est énergétique [Was 2007]. Dans le cas présent, le matériau initial est légèrement texturé suivant l'axe <110> du fait du laminage de la plaque. La texture d'une zone irradiée est représentée sur la **figure II.15**. Pour comparaison, les figures de pôles d'une zone non irradiée sont également présentées. L'évolution de la texture entre zones irradiée et non irradiée ne semble pas être significative.

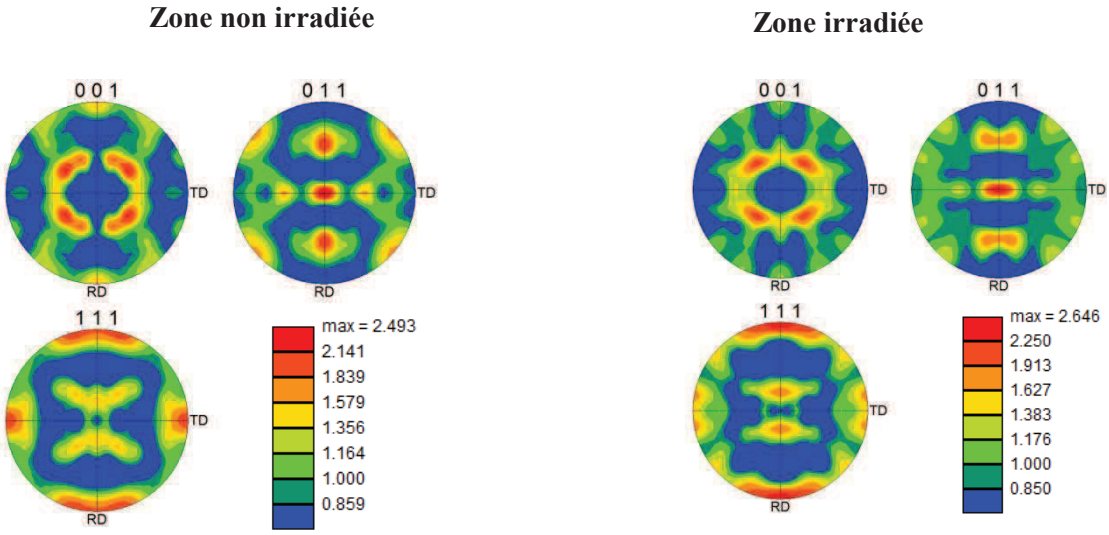


Figure II.15: Figures de pôles de la matrice austénitique – comparaison entre zones irradiée et non irradiée

II.2.3 d) Profondeur d'irradiation et caractérisation des défauts dans le volume

La profondeur d'irradiation déterminée par le logiciel SRIM est de 20µm. Une lame mince a donc été prélevée par FIB (Focused Ion Beam) pour confirmer par microscopie électronique en transmission (MET) la profondeur d'irradiation et l'absence de défauts d'irradiation au-delà de l'interface présumée entre zone irradiée et zone non irradiée. Cette lame nous a également permis de caractériser les populations de défauts présents dans le volume après 5 dpa aux protons à 360°C.
Les boucles de dislocations fautées ont été imagées grâce à la technique de la traînée de diffusion appelée aussi technique du « relrod » qui permet d'observer, en champ sombre, la faute d'empilement de ces boucles [Jenkins 1994]. Les techniques d'observation des défauts d'irradiation (boucles et cavités) ainsi que la méthodologie mise en place pour les mesures de tailles et de densités sont détaillées en **annexe C**.

La lame FIB couvre une zone allant de 10 à 30 µm sous la surface, ce qui englobe l'emplacement supposé du pic de Bragg comme indiqué sur la **figure II.16**.

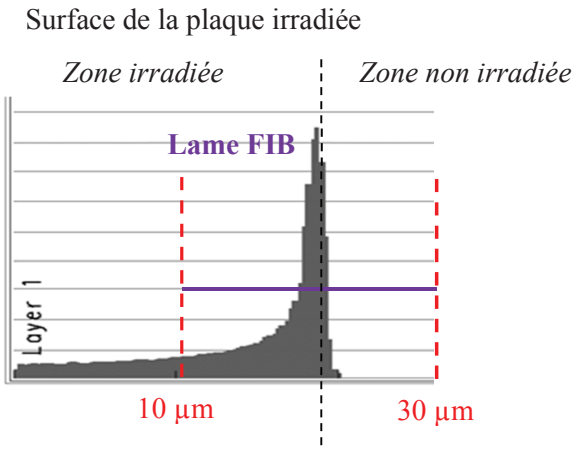


Figure II.16 : Zone de prélèvement de la lame FIB sur le matériau irradié à 5 dpa

La population des défauts d'irradiation après 5 dpa à 360°C est constituée de boucles de Frank et de cavités. Les densités et tailles de ces défauts ont été mesurées dans la partie homogène du plateau, ainsi qu'au niveau du pic de Bragg et dans la zone dite « non irradiée ». L'épaisseur de la lame a été estimée par EELS (**annexe C**) et varie entre 81 et 126 nm.

Dans les aciers inoxydables austénitiques, de structure C.F.C., il existe quatre familles de boucles de Frank orientées suivant les 4 plans denses {111}. Les mesures de taille et de densité ont été effectuées sur une de ces quatre familles de boucles. Nous supposons que la répartition des boucles est homogène sur les 4 familles [Edwards 2009] et la densité totale est calculée en multipliant par 4 la densité mesurée pour une famille.

Les images MET en champ sombre (**figure II.17)** montrent la distribution d'une de ces 4 familles de boucles de Frank en fonction de la profondeur.
Nous constatons que quelques boucles sont toujours visibles dans la zone « non irradiée » (zone (3)) mais dans une proportion nettement inférieure à celle mesurée dans les parties (1) et (2) qui correspondent à la zone irradiée. Au niveau de la zone (2), nous observons des boucles plus grandes. Au contraire, dans la zone (1), les boucles sont beaucoup plus petites.

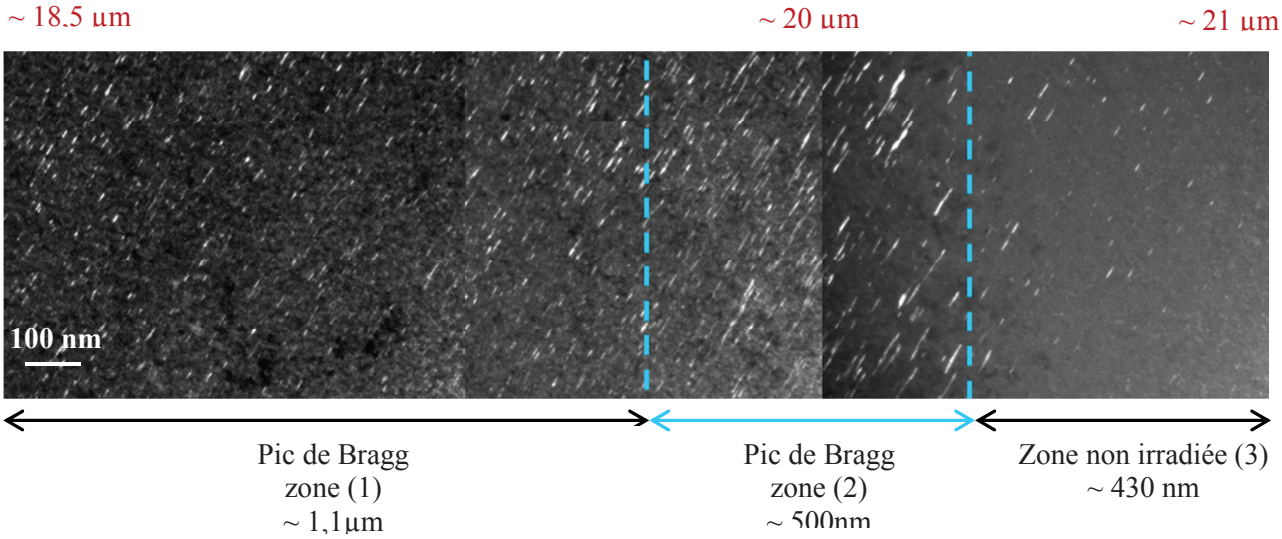


Figure II.17 : Boucles de dislocation imagées grâce à la technique de la traînée diffuse le long de la lame FIB suite à l'irradiation aux protons à 360°C et 5 dpa du 304L – les profondeurs depuis la surface du matériau sont indiquées en rouge

Les cavités ont été imagées sur une zone comprise entre environ 17 µm et 20 µm de profondeur et qui inclut les zones (1) et (2) mentionnées précédemment (**figure II.18**). Aucune cavité n'a été observée dans la zone non irradiée.

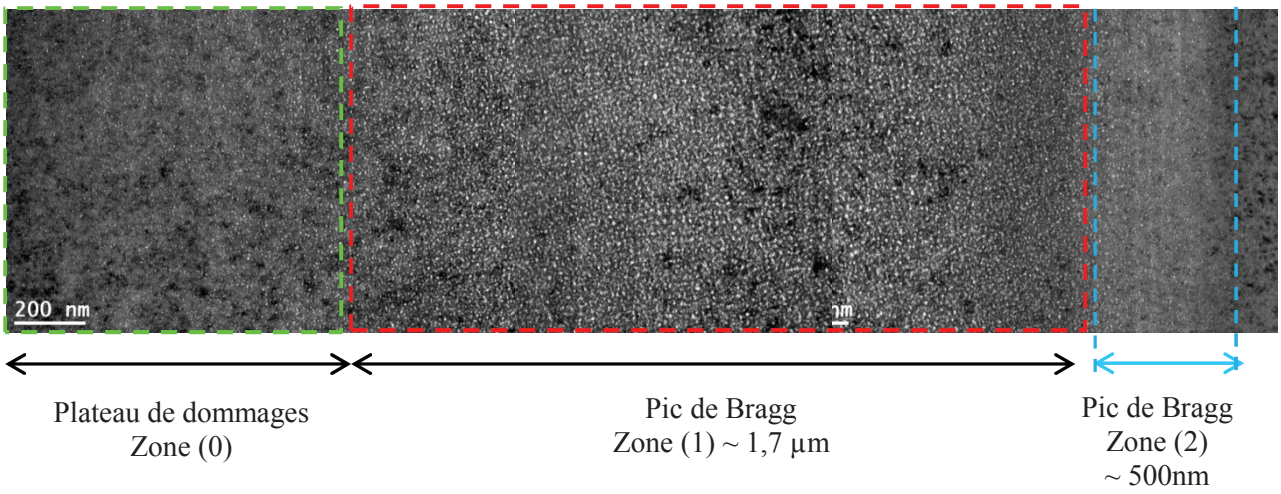


Figure II.18 : Cavités imagées en sous-focalisation le long de la lame FIB suite à l'irradiation aux protons à 360°C et 5 dpa de l'acier 304L

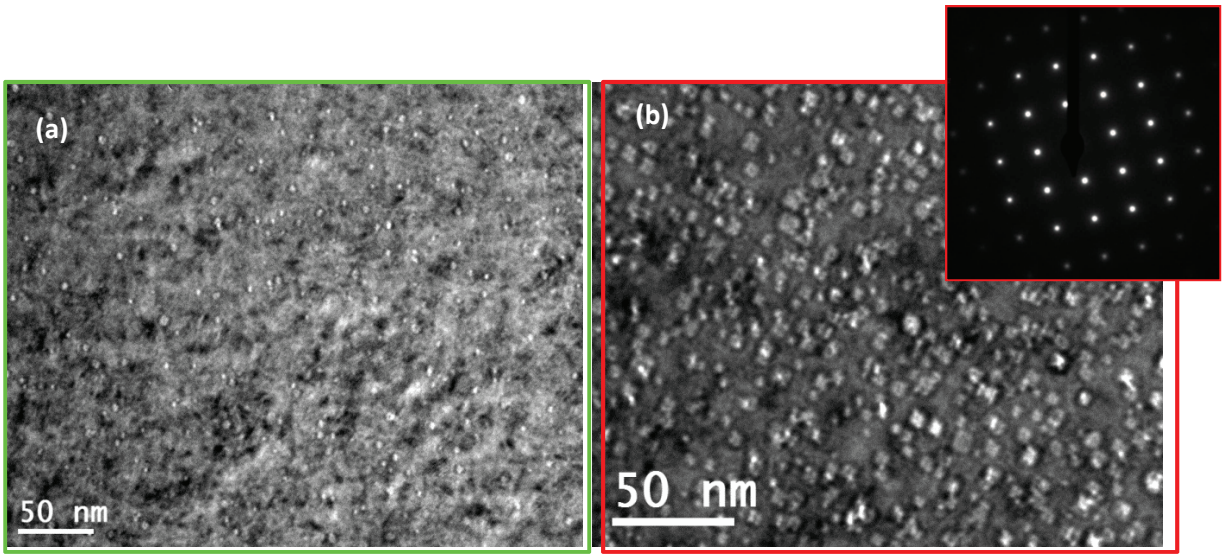


Figure II.19 : Cavités imagées (a) sous-focalisation, zone irradiée (0) sur le plateau de dommages et (b) sur-focalisation, pic de Bragg, zone irradiée (1) – cliché de diffraction, axe de zone <001>

Les cavités observées au niveau de la zone (1) ont un diamètre moyen compris entre 2 et 8 nm et sont facettées (**figure II.19**). Les facettes sont parallèles aux plans {110} (cf. cliché de diffraction de la **figure II.19**). A l'inverse, celles présentes dans les zones (0) et (2) sont plus petites (entre 2 et 4 nm) et de forme sphérique.

Ces résultats montrent que la région du pic de Bragg est scindée en deux zones. La zone proche du plateau de dommages (zone (1)) est constituée de boucles de taille moyenne (10 nm) mais dont la densité est inférieure à celle du plateau, ainsi que de grandes cavités facettées. La seconde zone (zone (2)), qui se situe à 20 µm de profondeur, à l'interface avec la zone non irradiée, est constituée de grandes boucles (19 nm) en densité équivalente à celle de la zone précédente (*i.e.* inférieure à celle du plateau) ainsi que de petites cavités sphériques. Au total, la dimension de ces deux zones est estimée à ~2 µm, ce qui est cohérent avec la largeur à mi-hauteur du pic de Bragg de la simulation SRIM.

Le graphique **(figure II.20)** présente les densités et tailles des boucles et cavités obtenues après 5 dpa sur les zones (0), (1+2) et (3) correspondant respectivement au plateau, au pic de Bragg et à la partie non irradiée dans l'épaisseur du matériau. L'incertitude sur la densité de défauts est estimée à 20%.

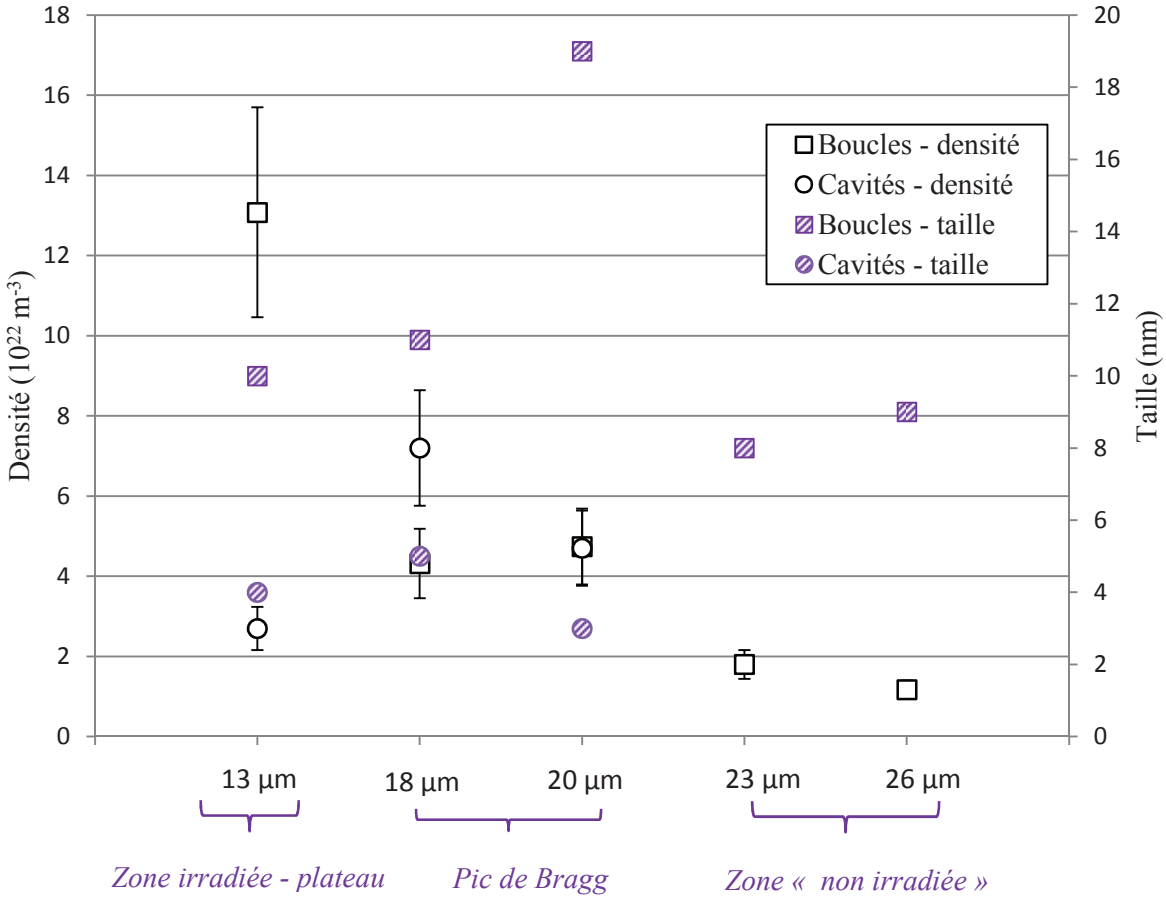


Figure II.20 : Evolution des densités et tailles de défauts en fonction de la profondeur d'irradiation sur un 304L – irradiation aux protons 2 MeV à 5 dpa et 360°C

La densité de boucles est plus importante dans la zone irradiée loin de l'interface qu'au niveau du pic de Bragg avec une densité de $13{,}1.10^{22}$ m^{-3} contre $4{,}7.10^{22}$ m^{-3}. Par contre la taille des boucles est de 19 nm au niveau du pic, ce qui est très supérieur au diamètre moyen de celles recensées au niveau du plateau (loin de l'interface) qui est de 9 nm.

Pour le pic de Bragg (zones (1) et (2)), nous observons que la diminution de la densité des boucles va de pair avec une augmentation de la densité des cavités. Concernant les tailles de ces défauts, les deux zones présentent des défauts de taille importante avec d'un côté de grandes cavités (zone la plus proche de la surface) et de l'autre de grandes boucles (zone située du côté non irradié).
La densité des cavités au niveau de la zone (1) (grandes cavités facettées) est certainement sous-estimée.

Le **tableau II.6** résume les résultats des quantifications effectuées pour chaque zone étudiée et les deux populations de défauts.

	Boucles		Cavités		
Zone	**Densité (m^{-3})**	**Taille (nm)**	**Densité (m^{-3})**	**Taille (nm)**	**Commentaires**
13 µm	$13,08 \pm 3,92.10^{22}$	10	$2,7 \pm 0,8.10^{22}$	2 à 4	
18 µm	$4,32 \pm 1,3.10^{22}$	11	$7,2 \pm 2,3.10^{22}$	2 à 8	Grandes cavités facettées
20 µm	$4,74 \pm 1,42.10^{22}$	19	$4,7 \pm 1,4.10^{22}$	2 à 4	Grandes boucles et cavités sphériques
23 µm	$1,8 \pm 0,54.10^{22}$	8	-	-	Pas de cavités
26 µm	$1,17 \pm 0,35.10^{22}$	9	-	-	Pas de cavités

Tableau II.6 : Quantification des densités et tailles de boucles et cavités en fonction de la profondeur

Les boucles visibles dans la zone « non irradiée » ont également été quantifiées. Leur densité de $11,7.10^{21}$ m^{-3} est beaucoup plus faible que celles mesurées sur le plateau de dommages ($13,08.10^{22}$ m^{-3}) et dans la zone du pic de Bragg ($4,74.10^{22}$ m^{-3}). Elle diminue encore lorsque l'on s'éloigne de l'interface. D'après ces mesures, la délimitation zone irradiée/zone non irradiée ne semble pas aussi abrupte que celle du profil SRIM. Cependant, la position du pic de Bragg déterminée expérimentalement est bien cohérente avec celle déterminée à partir de ce profil et est située à 20 µm sous la surface.

Par ailleurs, une lame mince a été prélevée sur le même matériau après irradiation, dans les mêmes conditions (protons, 2MeV, 360°C), à une dose de 10 dpa. Les densités et tailles moyennes comparées à celles mesurées à 5 dpa loin du pic de Bragg sont indiquées dans le **tableau II. 7**. Dans les deux cas, les données correspondent à celles mesurées sur le plateau de dommages.

	10 dpa		5 dpa	
	Densité (m^{-3})	**Taille moyenne (nm)**	**Densité (m^{-3})**	**Taille moyenne (nm)**
Boucles de Frank	$12,2 \pm 2,4.10^{22}$	9 ± 2	$13,1 \pm 2,6.10^{22}$	10 ± 2
Cavités	$2,4 \pm 0,5.10^{22}$	4 ± 2	$2.3 \pm 0,5.10^{22}$	4 ± 2

Tableau II. 7: Densités et tailles moyennes des boucles et cavités mesurées sur l'acier 304L irradié à 10 dpa et 5 dpa à 360°C avec des protons de 2MeV.

Les densités des boucles et des cavités sont tout à fait similaires entre 5 et 10 dpa. De même, les tailles sont semblables. Ces résultats sont cohérents avec ce qui est attendu au-delà de 5 dpa pour la taille et la densité de boucles à une température donnée. Des mesures de microdureté effectuées sur la plaque

irradiée à 10 dpa ont d'ailleurs donné des valeurs similaires à celles obtenues sur le matériau irradié à 5 dpa.

La **figure II.21** illustre les comparaisons entre ces résultats et ceux rapportés dans la littérature.

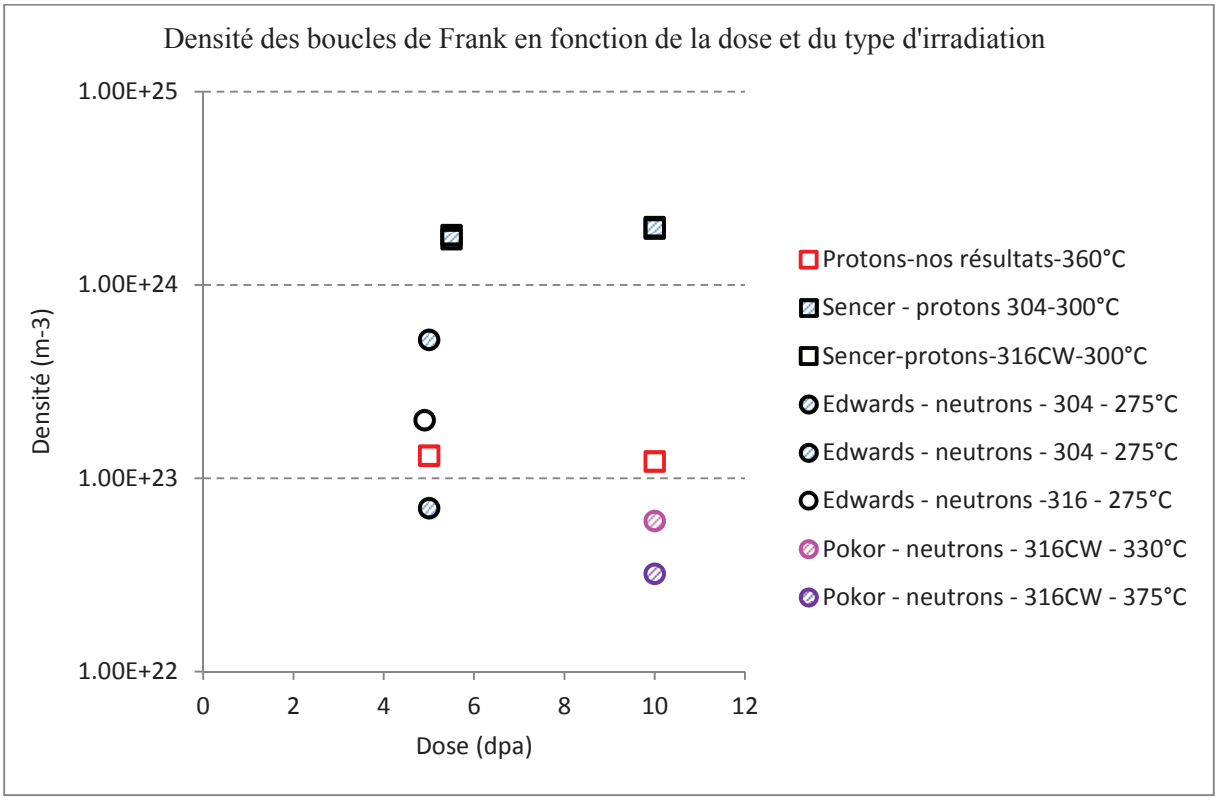


Figure II.21 : Comparaison des densités de boucles de Frank mesurées sur des aciers de type 304 et 316 après irradiations aux protons et neutrons pour 5 et 10 dpa – les résultats comparatifs sont issus de [Sencer 2003], [Edwards 2003] et [Pokor 2004]

Les densités des boucles de Frank mesurées dans notre microstructure après une irradiation aux protons à 5 et 10 dpa et à 360°C sont tout à fait cohérentes avec celles des irradiations aux neutrons dans une gamme de températures comprises entre 275 et 375°C. Le type d'aciers, 304 ou 316, n'a pas d'influence sur ces densités.
La comparaison de nos résultats avec ceux de Sencer [Sencer 2003] montre quelques différences. Les densités de boucles mesurées par Sencer sont en effet plus élevées d'un ordre de grandeur, mais la température d'irradiation était de 300°C. Cette température inférieure à celle que nous avons choisie explique certainement que la densité de défauts soit plus importante. Inversement, une augmentation de la température conduit a priori à une diminution de la densité de boucles, ce qui est vérifié dans les résultats après irradiation aux neutrons à 330°C et 375°C de Pokor présentés sur le graphe.
La taille moyenne des boucles est comprise entre 7 et 12 nm, quelle que soit la nature de la particule incidente ou la température.

Nous avons noté en revanche que la présence de cavités n'était pas à notre connaissance rapportée dans la littérature pour des irradiations aux protons dans cette gamme de températures sur des aciers commerciaux de type 316 et 304. Elles sont cependant observées après une irradiation aux neutrons.

La **figure II.22** présente la densité des cavités mesurée dans cette étude en comparaison avec quelques résultats rapportés dans la littérature pour des irradiations aux neutrons dans la même gamme de dose sur ces matériaux.

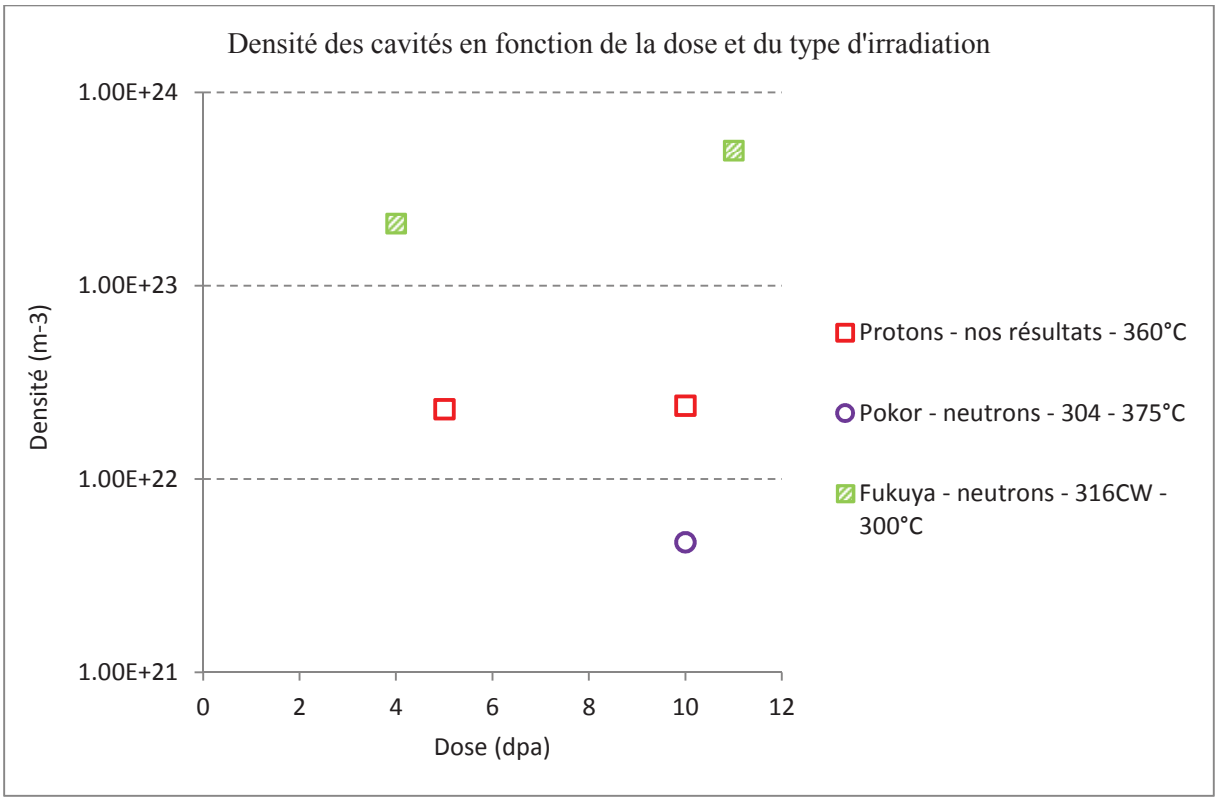


Figure II.22 : Comparaison des densités de cavités mesurées sur des aciers commerciaux de type 304 et 316 après irradiations aux protons et neutrons pour 5 et 10 dpa - les résultats comparatifs sont issus de [Pokor 2004] et [Fukuya 2006]

Nous remarquons que les densités obtenues dans cette étude sont intermédiaires aux valeurs rapportées par Pokor et Fukuya [Pokor 2004, Fukuya 2006]. Les diamètres moyens sont également intermédiaires avec 4 nm mesuré dans cette étude contre 5 nm et 1 nm respectivement pour les études de Pokor et Fukuya. L'écart de température explique que la densité de cavités soit plus élevée et la taille moyenne plus faible avec des neutrons à 300°C (Fukuya) en comparaison avec des neutrons à 375°C (Pokor).
Les irradiations aux protons à 360°C ont pour objectif de simuler les dommages créés par neutrons dans cette gamme de température. Les résultats obtenus en termes de densités et tailles de boucles et cavités confirment que cet objectif est atteint.

Bien que non mentionné dans la littérature à notre connaissance, nous avons identifié sans doute possible la présence de cavités sur un acier 304L commercial après irradiation aux protons, *ie* sans implantation d'hélium et sans réactions de transmutation.
Les irradiations aux ions Ni++ sur lames minces avec et sans implantation d'hélium nous fourniront des données supplémentaires pour discuter des conséquences de l'hélium sur les populations des défauts d'irradiation.

II.3 Irradiation aux ions lourds sur lames minces

Les ions lourds avec un haut flux sont très utilisés pour atteindre des doses de plusieurs dpa en seulement quelques heures. Couplées à un MET, ces irradiations permettent de suivre *in situ* la formation et l'évolution des défauts avec l'augmentation de la dose. De telles expérimentations ont été conduites sur la plateforme JANNuS du Centre des Sciences Nucléaires et Sciences de la Matière (CSNSM) à Orsay en collaboration avec B. Décamps. Du fait de la présence d'un double faisceau, cette plateforme offre la possibilité d'irradier et d'implanter simultanément de l'hélium. Ceci simule les réactions de transmutation et permet de se rapprocher ainsi un peu plus des microstructures observées en conditions d'exploitation.
Dans cette partie, nous nous intéressons d'une part à la cinétique d'apparition et de croissance des défauts engendrés par l'irradiation et d'autre part à l'effet de l'hélium sur la microstructure d'irradiation et aux éventuelles interactions He / joints de grains.

II.3.1 Présentation de la plateforme JANNuS Orsay

Décidée en 2004, la plateforme JANNuS (Jumelage d'Accélérateurs pour les Nanosciences, le Nucléaire et la Simulation) est un ensemble d'accélérateurs de particules couplés, principalement destinés à deux grands domaines de recherche : les nanosciences (microélectronique, optique, etc...) et le nucléaire. Cette plateforme s'organise autour de deux sites expérimentaux, situés respectivement au sein du CEA Saclay et de l'université d'Orsay (CNRS – IN2P3).

Dans le cadre de cette étude, nous avons bénéficié d'un accès aux faisceaux de la plateforme JANNuS-Orsay (**figure II.23**). Cette plateforme dispose d'un microscope électronique en transmission de type FEI TECNAI $G^2$20 Twin 200 kV à filament LaB_6, couplé à deux accélérateurs d'ions, un tandem Van de Graaff de 2 MeV (ARAMIS) et un implanteur de 190 keV (IRMA). Le porte-objet est un porte-objet double-tilt chauffant qui peut atteindre théoriquement une température de + 800°C, pour un vide de 5.10^{-6} Pa. Il est aminci à son extrémité afin que les faisceaux d'ions couvrent un maximum de la surface de la lame mince. Les deux lignes des accélérateurs arrivent dans le microscope avec un angle de 22° par rapport à l'horizontale et sont séparées l'une de l'autre de 45°.

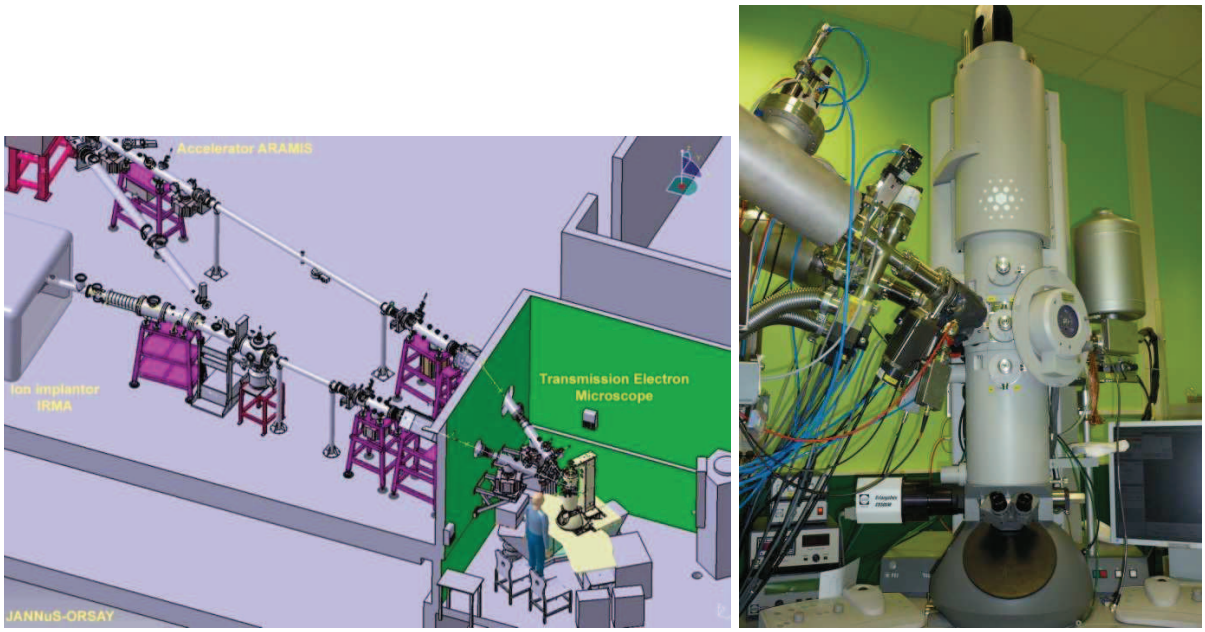


Figure II.23 : Schéma du fonctionnement et photo de la plateforme JANNuS Orsay

II.3.2 Plan d'expérience et préparation des lames minces

II.3.2 a) Conditions expérimentales

Nous avons choisi de procéder à une irradiation aux ions nickel à 500°C pour simuler les dommages créés par les neutrons à 300°C dans les aciers austénitiques en milieu REP. Du fait de la composition du matériau étudié, l'implantation d'ions nickel ne bouleversera pas la composition chimique de cet alliage déjà riche en nickel.
La transmutation du bore et du nickel en hélium lors des irradiations neutroniques ne peut pas être reproduite par des irradiations ioniques. Pour évaluer les effets de l'hélium sur la microstructure des matériaux irradiés, les études menées jusqu'alors impliquaient une implantation préalable d'hélium suivie d'une irradiation aux ions [Sencer 2003]. Grâce au couplage des deux faisceaux ARAMIS et IRMA, nous pouvons nous affranchir de cette difficulté en implantant simultanément de l'hélium au cours de l'irradiation.

Deux configurations différentes ont été utilisées:

- des irradiations mono faisceau Ni - 500keV (ARAMIS)
- des irradiations/implantations double faisceaux Ni - 500 keV / He - 20 keV (ARAMIS / IRMA)

Les énergies des particules nécessaires à ces expérimentations ont été calculées avec le logiciel SRIM (**figure II.24**). Les lames ayant une épaisseur moyenne de 100 nm, les énergies ont été calculées de façon à obtenir le pic de Bragg (pic de défauts et d'implantation) proche de la mi-épaisseur de la lame. En tenant compte de l'inclinaison de l'échantillon dans le MET, cela revient à positionner le pic de Bragg à une profondeur proche de 70 nm.

Des essais en température à + 500°C et sous vide secondaire ont été menés pendant 2h et 4h afin de tester la tenue des lames en température avant les expérimentations. Seuls quelques carbures de chrome sont apparus en bord de lame. Les résultats détaillés sont présentés en **annexe D**.
Ces essais préparatoires nous ont permis de vérifier que les conséquences de l'irradiation sur la microstructure ne seront pas confondues avec des effets thermiques. Cependant, la lame se dégrade sous l'action du faisceau et en température du fait de son oxydation à laquelle s'ajoute un phénomène de distorsion.
Afin d'éviter une dégradation trop importante de la lame sous les faisceaux, les irradiations n'excèderont pas 2 heures. Cette durée maximale limite la dose que nous pouvons obtenir avec les flux disponibles sur la plateforme. Les irradiations ont été conduites à 400°C et 500°C pour des doses calculées comprises entre 0,6 et 2,2 dpa pour un flux d'ions Ni^{++} de l'ordre de 6.10^{10} ions.cm^{-2}.s^{-1}.

Deux niveaux d'implantation d'hélium ont été choisis : un premier ratio de 35 appm/dpa, proche des conditions REP réelles, et un second ratio d'environ 760 appm/dpa dans le but d'amplifier les éventuels effets de l'hélium.
Pour éviter les zones d'ombre dues au porte-échantillon, l'échantillon doit être théoriquement incliné à 45° par rapport aux faisceaux d'ions. Pour atteindre ces angles d'incidence, les angles d'inclinaison du porte-objet doivent être respectivement de 23° autour de l'axe α et -10° autour de l'axe β.

L'ensemble des conditions d'irradiation des lames est résumé dans le **tableau II.8.** Le profil d'endommagement obtenu pour des ions nickel à 500 keV et le profil d'implantation obtenu pour des ions hélium à 20 keV (profils obtenus à l'aide du logiciel SRIM) sont présentés sur la **figure II.24**.

Le débit de dose aux ions Ni^{++} est de l'ordre de 3.10^{-4} dpa.s^{-1}, soit un ordre de grandeur supérieur au débit de dose des irradiations aux protons et 3 à 5 ordres de grandeurs supérieurs à celui des irradiations neutroniques.

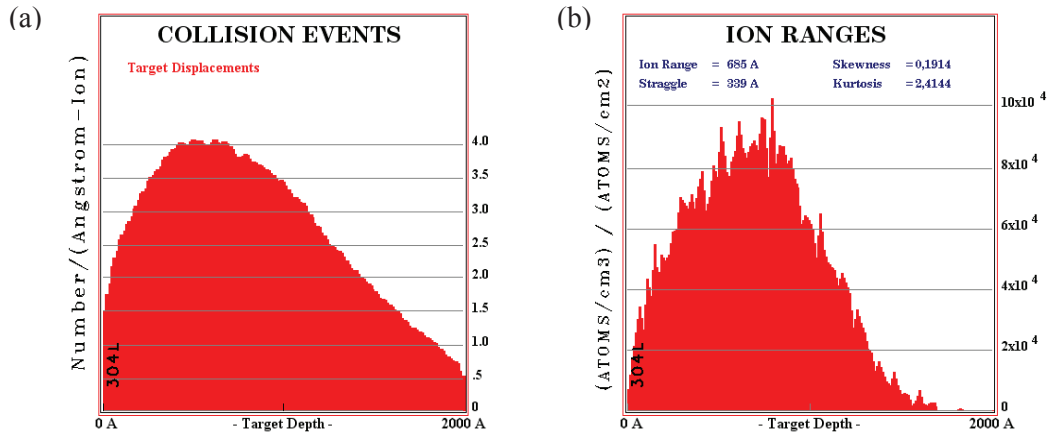


Figure II.24 : Simulations SRIM (a) du profil d'endommagement pour une irradiation aux ions Ni^{++} à 500 keV et un angle d'incidence de 45° et (b) du profil d'implantation des ions He à 20 keV et un angle d'incidence de 45°

Lame	T (°C)	Energie (keV)	Dose (ion/cm²)	Dose (dpa)	He appm/dpa	Flux (ion/cm².s)	Temps (min)
JB52	500	Ni – 500	$3,83.10^{14}$	2	-	$5,5.10^{10}$	120
JB53	500	Ni – 500 He – 20	$4,15.10^{14}$ $1,44.10^{15}$	2	767	$5,8.10^{10}$ 2.10^{11}	120
JB45	500	Ni – 500 He – 20	$4,15.10^{14}$ $6,48.10^{13}$	2	34,5	$5,8.10^{10}$ 9.10^{9}	120
JB3	400	Ni – 500	$4,6.10^{14}$	2,2	-	$6,3.10^{10}$	120
JB57	500	Ni – 500	$1,71.10^{14}$	0,8	-	$6,8.10^{10}$	40
JB58	400	Ni – 500	$1,39.10^{14}$	0,7	-	$5,85.10^{10}$	40
JB49	400 (40 min) 500 (80 min)	Ni – 500	$4,13.10^{14}$	2	-	$5,73.10^{10}$	120

Tableau II.8 : Conditions expérimentales d'irradiations et implantations des lames minces

II.3.2 b) Préparation des lames minces

Au cours de l'irradiation, ces lames devront supporter une température de 500°C pendant quelques heures. A cela s'ajoute le fait que les défauts d'irradiation à visualiser sont de tailles nanométriques. L'état de surface initial doit donc être particulièrement soigné et il faut notamment éviter toute distorsion de la lame.

Les lames ont été prélevées à partir de cylindres de 3mm de diamètre usinés par électroérosion puis découpés en tranches de 350 µm d'épaisseur. Chaque tranche est ensuite polie mécaniquement sur papier SiC 1200 jusqu'à une épaisseur de 100 µm puis amincie par voie électrolytique. Les conditions d'amincissement sont résumées dans le **tableau II.9**.

	Amincissement électrolytique
Solution	87% d'éthanol 11% d'acide perchlorique 2% de butoxyéthanol
Température	T= -20°C
Tension	U=20V
Rinçage	A froid – éthanol absolu

Tableau II.9. Conditions d'amincissement électrolytique

Chaque lame amincie a été ensuite cartographiée par EBSD afin de connaître l'orientation cristallographique des grains en bord de lame ainsi que la nature des joints de grains (**figure II.25**).

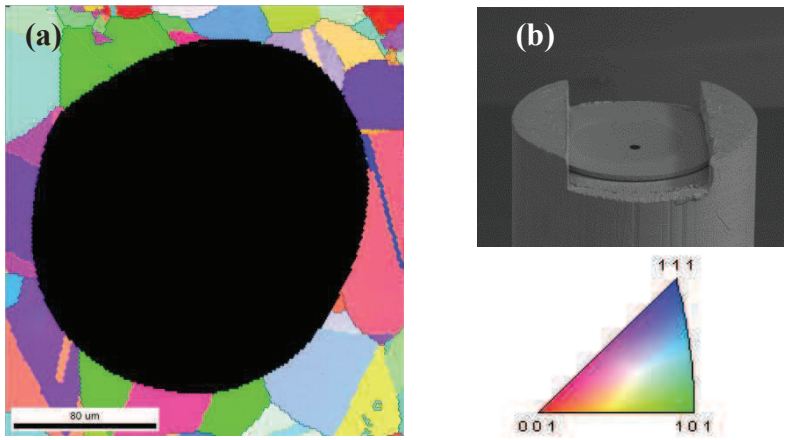


Figure II.25 : a) Figure de pôles [001] inverse d'une lame mince de 304L – b) Montage développé pour introduire les lames minces dans le MEB.

Les cartographies ont été réalisées le plus rapidement possible pour éviter une trop grande contamination de la surface. La tension appliquée était de 30 kV pour un courant de sonde de 800 pA et un pas de 1,5 µm.

Les figures de pôles inverses confirment la présence de nombreux joints de grains sur la zone la plus mince et l'absence, en général, d'une orientation cristallographique préférentielle.

La contamination au carbone engendrée en surface par ces caractérisations a été éliminée par un nettoyage des lames au « plasma cleaner » sous un flux Ar/H_2 avant l'introduction de la lame dans le MET de la plateforme.

II.3.3 Suivi in-situ des irradiations mono-faisceau

Une caméra CCD ES500W est reliée au microscope et permet de suivre et d'enregistrer en direct l'évolution de la microstructure sous le faisceau dans le cas des irradiations aux ions Ni++ seuls. Une image est enregistrée toutes les 30 ms. En revanche, une limitation technique empêche l'enregistrement d'une expérience en double faisceaux. En effet, le champ magnétique de la lentille objectif perturbe la trajectoire des ions de faible énergie (ions He dans notre cas) et la lentille doit donc être coupée. L'étude sur les effets de l'hélium est réalisée entièrement post-irradiation.

Un film a été enregistré pour chaque irradiation mono-faisceau. La zone de travail a été choisie de telle sorte qu'une fois inclinée avec les angles α et β définis précédemment pour être bien orientée par rapport au faisceau, celle-ci se trouve en conditions de diffraction proche de « deux ondes ». Les quatre familles de boucles de Frank sont ainsi visibles. En revanche, l'évolution des cavités n'a pas pu être suivie car cela aurait nécessité d'être en condition de défocalisation. Les films ont tous été réalisés en fond clair.

II.3.3 a) Evolution du réseau de dislocations initial

Des images ont été acquises en parallèle des films de façon à obtenir des données sur l'évolution de la microstructure avec une résolution supérieure à celle des vidéos. La microstructure initiale du matériau est composée d'un réseau de dislocations visible sur la première micrographie de la **figure II.26**.
Le réseau de dislocations initial de chacune des lames observées reste conservé en grande majorité au cours des irradiations, quelle que soit la température et y compris pour les doses les plus élevées (jusqu'à 2,2 dpa). Des évolutions sont néanmoins visibles et certaines dislocations semblent disparaître, comme cela est illustré sur la **figure II.26** (cercles). D'autres en revanche sont aisément reconnaissables après 40 min et 2h (**figure II.26**, flèches). Il est possible que les dislocations qui semblent disparaître soient toujours présentes mais que leur contraste, fortement perturbé par l'augmentation de la densité de défauts d'irradiation, ne permette plus de les distinguer. Enfin, notons que sous l'effet de la température la lame se distord, ce qui entraîne localement une perte des conditions de contraste maximal et accentue de fait la difficulté à observer ces dislocations.

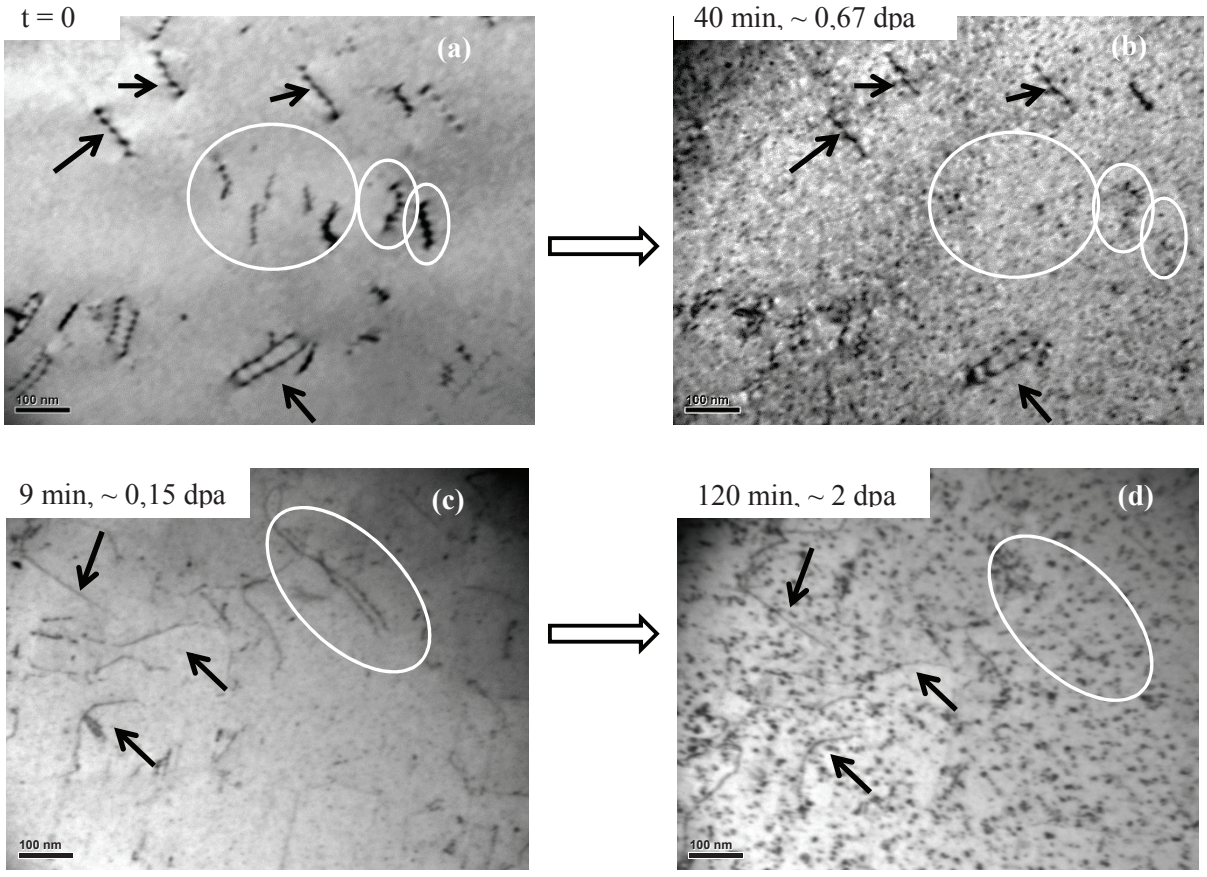


Figure II.26 : Evolution du réseau de dislocations initial en cours d'irradiation aux ions Ni++: (a) et (b) évolution entre l'état initial et 0,7 dpa à 400°C ; (c) et (d) évolution après 0,15 dpa à 400°C et 2 dpa à 500°C sur la même zone

II.3.3 b) Microstructure d'irradiation

De nombreux défauts apparaissent avec l'augmentation de la dose. Ils se présentent sous forme de points noirs ou « black dots ». Leur taille ne permet pas de définir s'il s'agit d'amas de défauts de type SFTs ou de boucles trop petites pour être résolues. Ces black dots se forment dans la matrice mais également le long des lignes de dislocation sous forme de grappes comme cela est indiqué sur la **figure II.27** par les flèches roses. Ces grappes de défauts engendrent des ondulations marquées de certaines dislocations.

Brimbal [Brimbal 2011] indique que la présence d'un taux élevé de chrome ou d'hélium diminue la mobilité des boucles dans les alliages de type Fe-Cr. Au cours de ces expérimentations, les défauts sont immobiles et ce sans implantation d'hélium.
Dès leur apparition dans la microstructure, les black dots visibles restent stables. Aucune mobilité n'a été constatée dans cet alliage commercial contrairement à ce qui est classiquement calculé et observé dans les métaux purs de type cuivre ou fer ou dans les alliages modèles Fe-Cr [Jenkins 2009, Kiritani 1997].

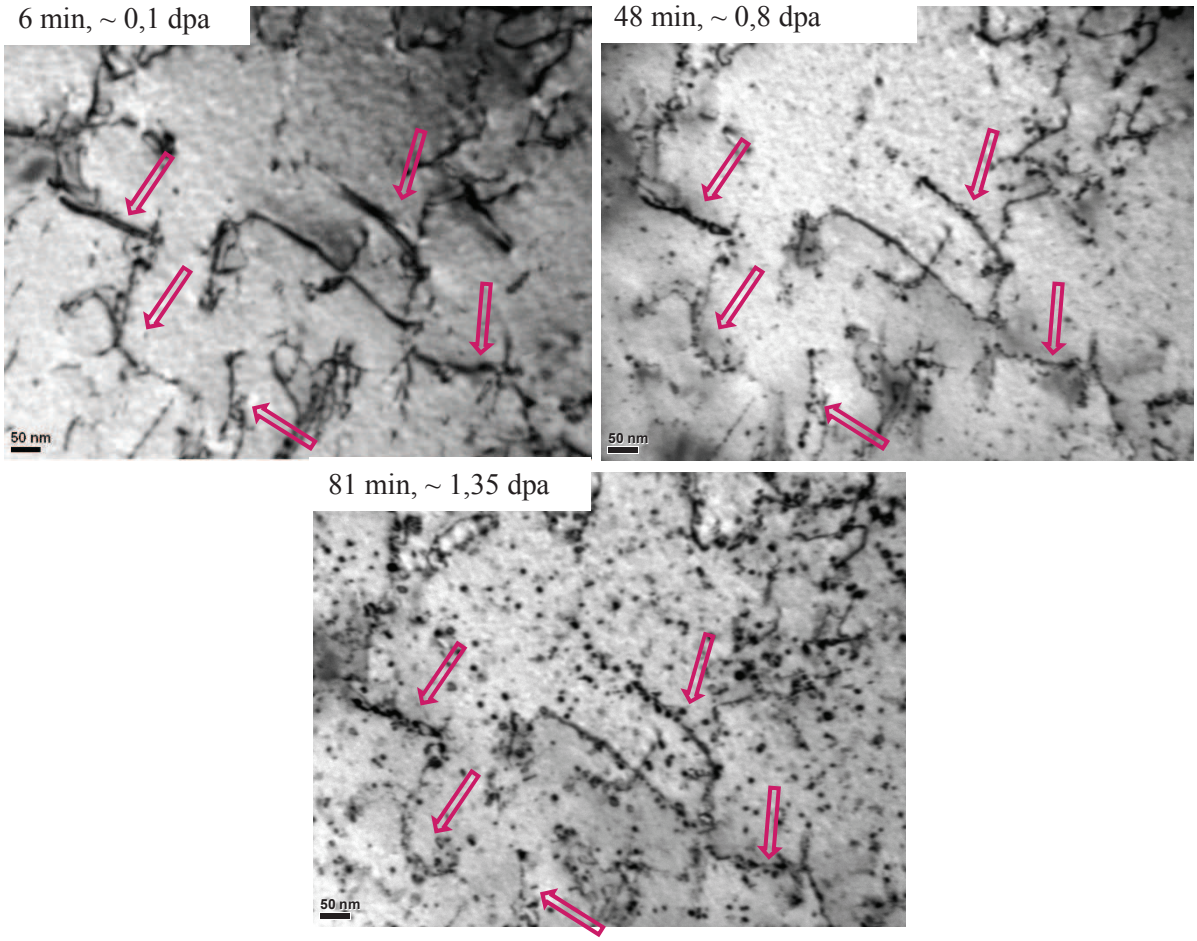


Figure II.27 : Apparition et croissance des défauts à 500°C - les flèches roses pointent des lignes de dislocations sur lesquelles se forment des amas de défauts. Les premiers défauts visibles apparaissent après 0,6 dpa environ

II.3.3 c) Aspect cinétique

Pour les irradiations menées à 500°C, les premiers défauts observables, *i.e.* les défauts d'une taille supérieure à 2 nm, apparaissent aux environs de 40 min, ce qui correspond à une dose de l'ordre de 0,6 - 0,7 dpa (**figure II.28**).
Le temps caractéristique d'une cascade de déplacement est de l'ordre de la picoseconde et les recombinaisons, formation d'amas et émission de défauts interviennent aux environs de 10^{-8} s après la collision. La visualisation des défauts est donc tardive vis-à-vis de ce qui est théoriquement prévu pour la germination des boucles. Ce retard est probablement lié à la résolution spatiale du MET dans les conditions utilisées. Ces black dots germent plus tôt mais ne deviennent visibles qu'après avoir atteint une taille critique.

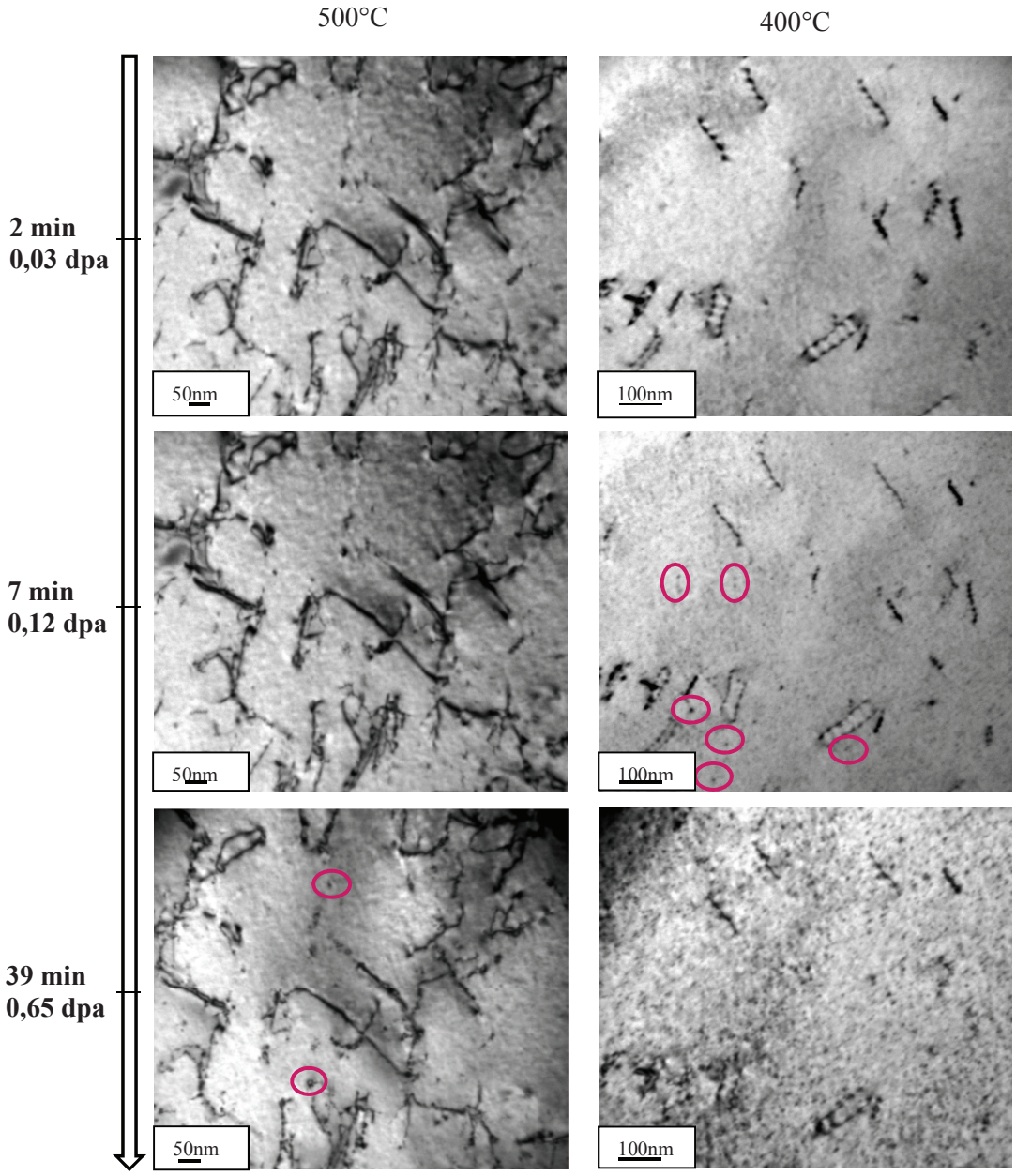


Figure II.28 : Evolution de la microstructure de 0 à 0,65 dpa à 500°C et 400°C en cours d'irradiation Ni++ 500 keV - en rose, les premiers défauts (non exhaustif).

A 400°C, l'apparition des premiers défauts est plus rapide et les premiers black dots sont visibles après seulement une dizaine de minutes *i.e.* pour une dose inférieure à 0,1 dpa, comme le montre la **figure II.28**.

En utilisant les images acquises par la caméra ainsi que les micrographies prises en cours d'irradiation, nous pouvons tracer les courbes d'évolution de la densité de défauts visibles sur la zone observée (**figure II.29**). Les conditions d'observation ne sont pas optimales pour le comptage des défauts mais les quatre familles de boucles sont visibles et cela permet d'obtenir une évolution semi-quantitative de la densité de défauts en fonction de la dose et des conditions d'irradiation.

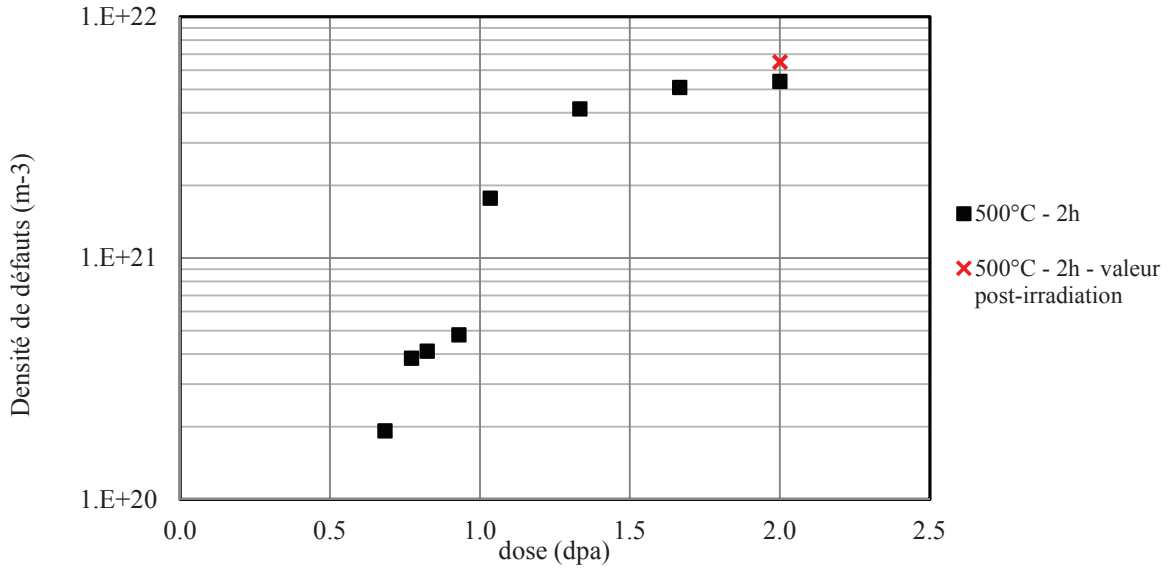


Figure II.29 : Evolution de la densité de boucles visibles en fonction de la dose, au cours d'une irradiation aux ions Ni+ jusqu'à 2 dpa à 500°C

La densité de défauts observés augmente en cours d'irradiation. Les défauts comptabilisés ici comprennent les black dots d'une taille supérieure à 2 nm et les boucles résolues.
La densité de défaut à 0,9 dpa est certainement sous-estimée du fait des conditions d'observation. La lame se distord sous l'action de la température et de l'irradiation et l'orientation de la lame doit être réajustée régulièrement pour maintenir le contraste. Passé 1 dpa, les défauts étant plus grands, les résultats sont plus fiables. Ainsi, au-delà de 1 dpa, de nombreux défauts sont visibles sur le film ainsi que sur les micrographies et des boucles résolues d'une taille supérieure ou égale à 8 nm sont aisément observables (**figure II.30**). Ceci pourrait expliquer le saut enregistré au-delà de 1 dpa pour la densité de boucles apparaissant sur la **figure II.29**. En effet, du fait de la taille des défauts, la densité de boucles est certainement sous-estimée en-deçà de 1 dpa.
L'augmentation du nombre de défauts ralentit ensuite passé 1,3 dpa et la densité semble se stabiliser après 1,5 dpa.

D'un point de vue semi-quantitatif, la densité de défauts après 2 heures d'irradiation à 500°C est estimée, à partir des micrographies acquises en cours d'irradiation, à 5.10^{21} m^{-3}. Cette densité est proche de la valeur mesurée post-irradiation *via* la technique de la traînée diffuse, indiquée en rouge

sur le graphique. Ce constat conforte nos observations sur la cinétique d'évolution des boucles dans la microstructure.

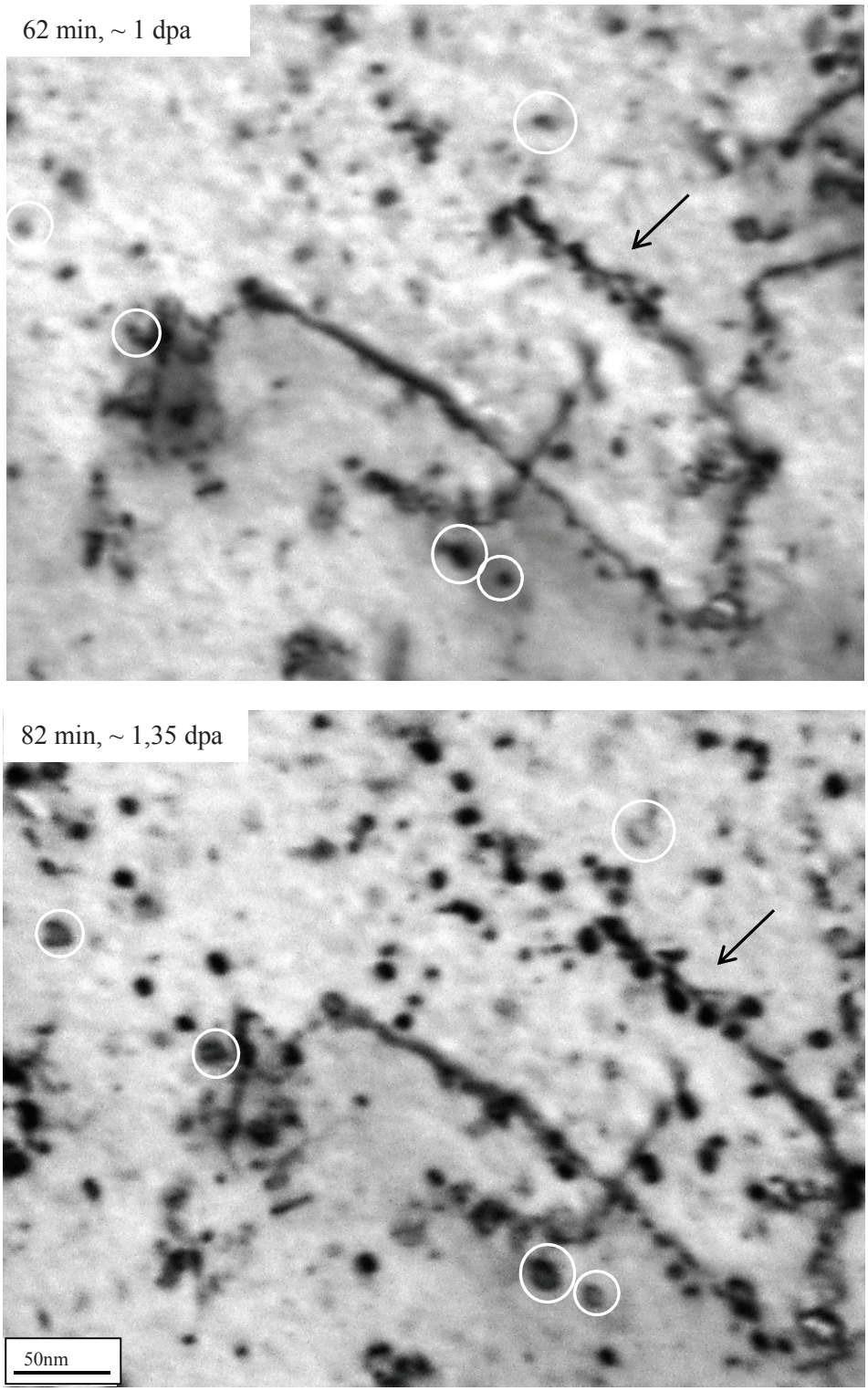


Figure II.30 : Boucles de dislocations après 1 et 1,35 dpa à 500°C – la flèche indique une grappe de défaut sur une ligne de dislocation et les cercles entourent les black dots (1 dpa) évoluant en boucles bien résolues (1,35 dpa)

L'état de la lame irradiée jusqu'à 2 dpa à 400°C s'est fortement dégradé au cours de l'expérimentation et ne nous permet malheureusement pas d'établir la même courbe pour cette température. Les défauts, qualitativement plus petits et plus nombreux, sont trop difficilement dénombrables dans ces conditions. Une comparaison qualitative est présentée sur la **figure II.31**. Aucune boucle résolue n'a été observée durant les 2h d'irradiation à 400°C.

A 500°C, les boucles résolues observées proviennent de l'évolution en cours d'irradiation de certains black dots (**figure II.30**), ce qui laisse penser que ces black dots sont des petites boucles non résolues. D'après cette hypothèse et dans la mesure où nous avons estimé que la taille minimale de résolution des boucles dans nos conditions d'observation est de 7 à 8 nm, cela suggère donc que les boucles de Frank formées à 400°C jusqu'à 2 dpa ont une taille inférieure à 7 nm puisqu'aucune boucle résolue n'a pu être observée. Cette hypothèse sera vérifiée par des mesures post-irradiation.

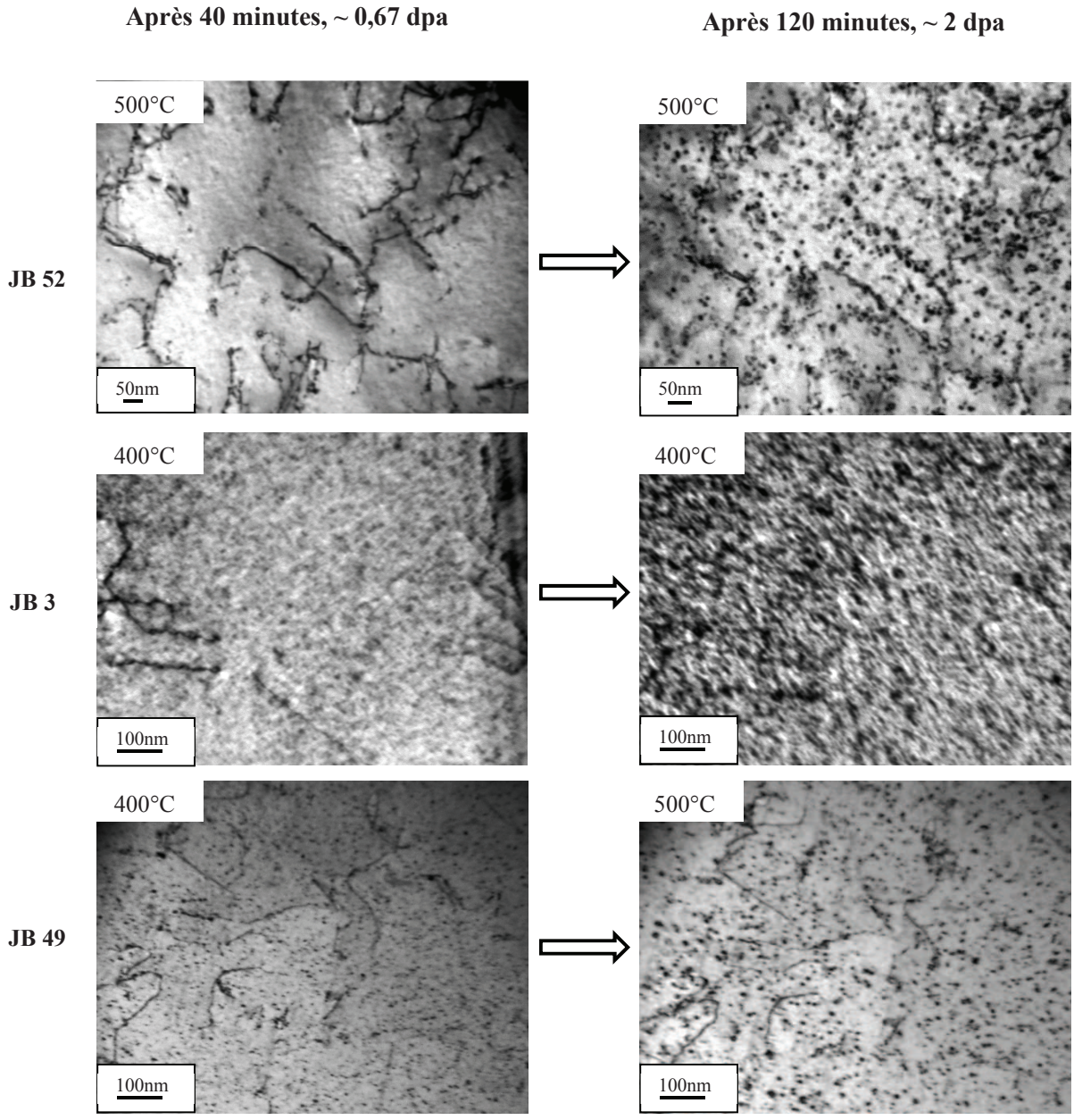


Figure II.31 : Evolution de la microstructure en fonction de la température après 0,67 dpa et 2 dpa

II.3.4 Analyses quantitatives post-irradiation

Les défauts d'irradiation observables ici au MET sont les défauts dont la taille est supérieure à 2 nm. Les petits amas dont la taille est de l'ordre du nm restent donc difficilement quantifiables et ne seront pas pris en compte. La RIS et la précipitation sous irradiation n'ont pas fait l'objet d'une étude au cours de ce travail.

Nous précisons également que quelques boucles parfaites ont été identifiées. Cependant ces boucles ne constituent pas la majorité des défauts attendus et observés. En conséquence, les résultats présentés ici se concentrent sur les boucles de Frank et les cavités.

Toutes les analyses quantitatives ont été conduites sur une zone d'épaisseur connue et sensiblement équivalente pour chaque lame et dans des grains d'orientation proche de <110>. Ces conditions équivalentes pour chaque lame nous permettent de comparer nos résultats en s'affranchissant, d'un point de vue comparatif, des éventuels effets de surface.
Il est primordial de prendre en considération les effets d'épaisseur car l'amincissement électrolytique conduit à l'obtention d'une zone mince dite « en coin » et dont l'épaisseur n'est pas constante. Celle-ci croît avec la distance au bord et doit donc être mesurée sur la zone de travail.
Une zone dénudée de boucles a été observée en bord de lame pour des épaisseurs inférieures à 50 nm (**figure II.32**). Cette zone dénudée est la conséquence d'un effet de surface libre puisque les défauts ponctuels viennent s'éliminer sur ce puits de potentiel. A contrario, le même effet n'a pas été constaté pour les cavités, ni en bord de lame ni autour des joints de grains, contrairement à ce qui est indiqué dans d'autres études [Simonen 1999].

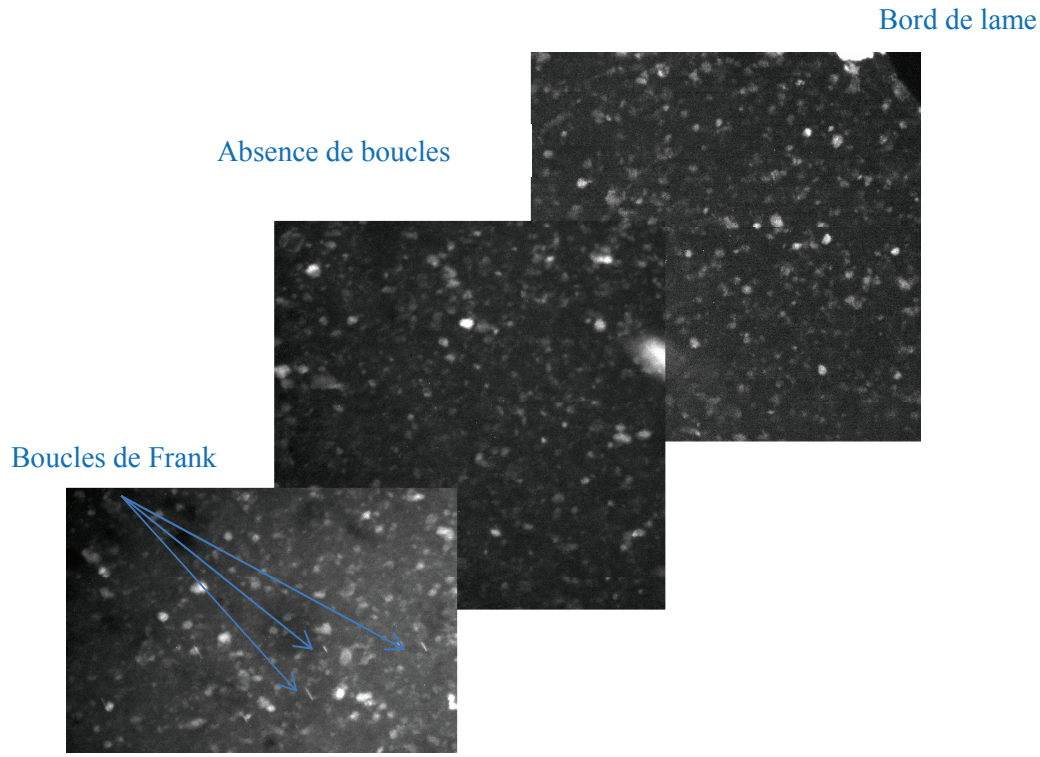


Figure II.32 : Zone dénudée en boucles de Frank en bord de lame. Apparition des premières boucles pour une épaisseur supérieure à 50 nm.

Pour ne pas diminuer artificiellement le nombre de défauts, le bord de lame n'est pas pris en compte dans les mesures de densité de boucles. De même, une épaisseur trop importante diminue la densité des défauts visibles du fait de leur recouvrement dans la microstructure et empêche une bonne utilisation de la microscopie électronique en transmission. Pour éviter ces artefacts, les mesures ont été effectuées sur des zones d'épaisseur comprise entre 100 et 150 nm.

Au même titre que les surfaces libres, les joins de grains agissent comme des puits de potentiels et peuvent conduire à l'obtention de zones dénudées. Bien que de telles zones n'aient pas été observées, du moins pour les cavités, toutes les mesures détaillées ici ont été réalisées loin des joints de grains.

Les boucles de Frank ont été imagées grâce à la technique de la traînée diffuse tandis que les cavités sont imagées en champ clair et à fort grandissement par la méthode de sous-focalisation / sur-focalisation. Le principe de ces mesures est détaillé dans l'**annexe C**.

Sur les lames irradiées à 2 dpa et 500°C en mono-faisceau, les populations de 2 familles de boucles ont été mesurées. Les résultats obtenus sur l'une de ces lames sont présentés à titre d'exemple sur la **figure II.33**.

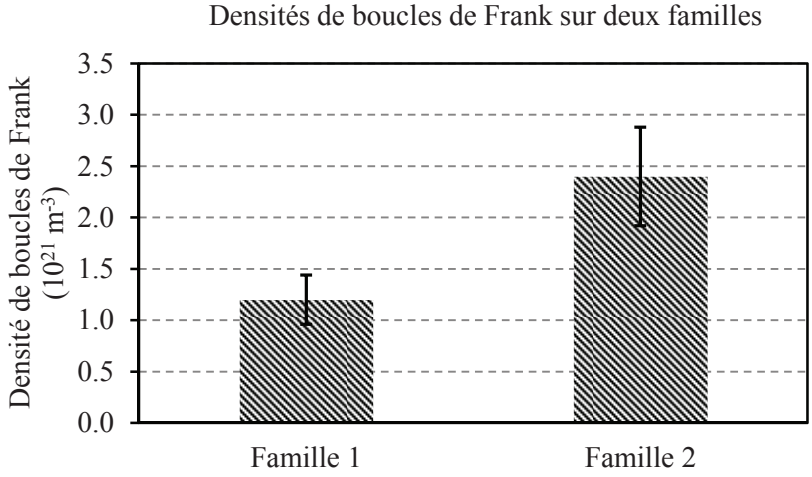


Figure II.33 : Densité des boucles de Frank pour 2 familles, après 2 dpa à 500°C et 0 appm He/dpa

La population de la famille 1 est égale à ~ $1{,}2.10^{21}.m^{-3}$. En revanche, la population de la famille 2 est plus importante avec une densité égale à ~ $2{,}4.10^{21}.m^{-3}$. Pour autant, l'ordre de grandeur est équivalent. En se basant sur ces mesures, la moyenne sur les 4 familles donne une densité de $7{,}2.10^{21}.m^{-3}$, qui concorde avec le résultat reporté précédemment dans l'étude cinétique. La taille moyenne des boucles est équivalente pour les 2 familles étudiées et égale à 13nm.

Les résultats présentés par la suite ont été systématiquement acquis pour 2 familles de boucles par lame. La densité totale est calculée comme étant deux fois la somme sur ces 2 familles ce qui, au vu de l'homogénéité des résultats précédents, reste une bonne approximation de la densité globale réelle.

II.3.4 a) Influence de la teneur en hélium

Dans un souci de facilité d'exploitation des résultats après 2 dpa et de représentativité vis-à-vis des conditions REP, nous avons fait le choix de privilégier l'implantation d'hélium pour une température de 500°C. Les résultats présentés ci-dessous ne montrent donc pas l'évolution des densités de boucles et de cavités en fonction du rapport He/dpa à 400°C.

L'influence de l'hélium sur la microstructure d'irradiation a été évaluée pour une température de 500°C et un flux de Ni^{++} d'environ 6.10^{10} ions.cm^{-20}.s^{-1}. L'hélium a été implanté avec un rapport de 35 et 760 appm d'He/dpa soit un flux compris entre 9.10^{9} et 2.10^{11} ions.cm^{-2}.s^{-1}. La quantité totale d'He injecté varie donc de 0 à 1520 appm.
Le **tableau II.10** ci-dessous résume les résultats obtenus en termes de densité et taille de boucles de Frank et de cavités.

Dose (dpa)	He (appm)	Densité de boucles (m^{-3})	Taille de boucles (nm)	Densité de cavités (m^{-3})	Taille de cavités (nm)
2	0	$6,5 \pm 1,3.10^{21}$	13 ± 2	$8,5 \pm 1,7.10^{22}$	2-3
2	70	$8,2 \pm 1,6.10^{21}$	11 ± 2	$7,2 \pm 1,4.10^{22}$	2-3
2	1520	$3,6 \pm 0,7.10^{21}$	13 ± 2	$12,2 \pm 6,1.10^{22}$	2-3

Tableau II.10 : Evolution des densités de boucles de Frank et de cavités et de leur taille moyenne en fonction de la teneur en hélium

Pour une implantation d'hélium de 760 appm/dpa, la présence de bulles, *i.e.* de cavités pleines de gaz, est probable. Cependant, la présence d'hélium dans les cavités n'est pas directement identifiable et des cavités sont d'ores et déjà présentes dans la microstructure post-irradiation en l'absence d'hélium. Nous avons donc choisi de garder le terme cavité, indépendamment des conditions d'irradiation.

La densité des cavités n'augmente pas lorsque la quantité d'hélium implanté est de 70 appm et celle des boucles n'est pas plus impactée par cette augmentation de la teneur en hélium.
En revanche, lorsque la quantité totale d'hélium implanté est de 1520 appm, l'effet sur les populations de boucles et cavités est sensible. La population de boucles diminue et passe d'environ 7.10^{21} m^{-3} à $3,6.10^{21}$ m^{-3} tandis que celle des cavités augmente légèrement de $8,5.10^{22}$ à $12,2.10^{22}$ m^{-3}.
La taille des boucles et cavités demeure inchangée, quelle que soit la teneur en hélium, avec un diamètre d'environ 11à 13 nm pour les boucles et 2 à 3 nm pour les cavités.

Ces cavités sont réparties de manière homogène dans la matrice, et également à proximité du bord de lame. Nous en avons également détectées dans les joints de grains, y compris dans le cas des irradiations sans implantation d'hélium. Des cavités ont ainsi été systématiquement détectées dans les joints de macles et plusieurs ont été identifiées sur certains joints généraux (**figure II.34**).

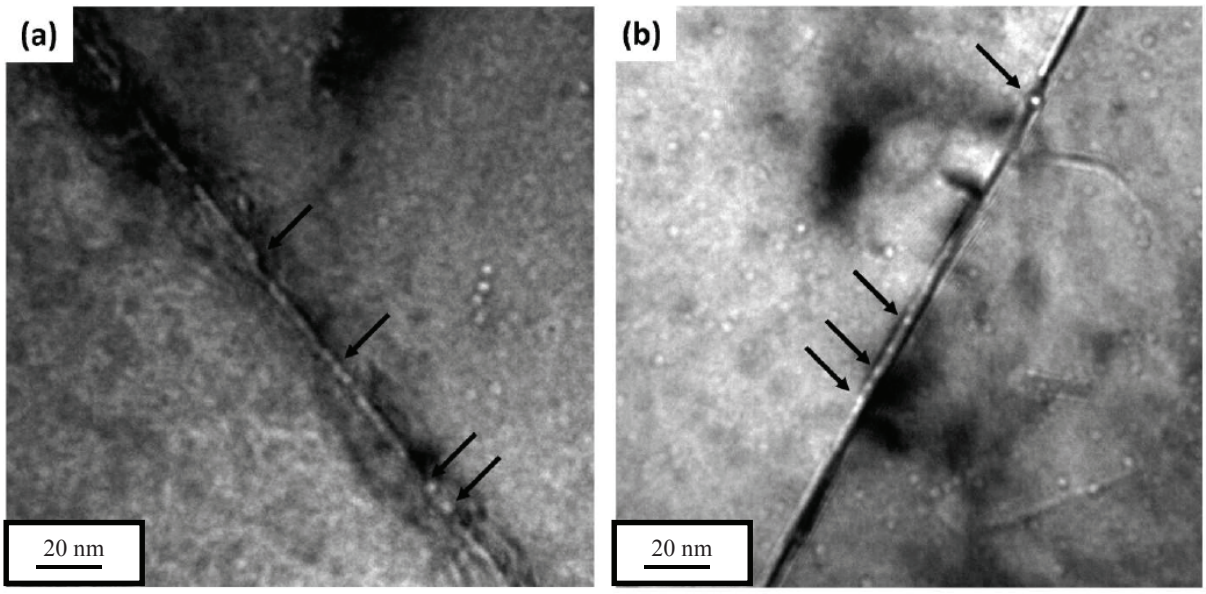


Figure II.34: Micrographies MET en fond clair sous-focalisées révélant la présence de cavités aux joints de grains (flèches noires) avec (a) joint général et 0 appm He et (b) joint Σ3 et 70 appm He

A la vue de ces résultats, rien ne nous permet d'affirmer aujourd'hui que l'hélium généré par transmutation fragilise les joints de grains généraux et contribuerait de manière prépondérante à l'IASCC des internes de cuve.

II.3.4 b) Influence de la température d'irradiation

De la même façon que précédemment, nous avons mesuré et comparé les densités de défauts et leur taille pour évaluer l'effet de la température sur la microstructure d'irradiation. Les résultats présentés dans le **tableau II.11** sont issus des irradiations mono-faisceau (sans implantation d'hélium).

Dose (dpa)	T (°C)	Densité de boucles (m^{-3})	Taille de boucles (nm)	Densité de cavités (m^{-3})	Taille de cavités (nm)
2	500	$6,5 \pm 1,3.10^{21}$	13 ± 2	$8,5 \pm 1,7.10^{22}$	2-3
2	400	$21,2 \pm 4,2.10^{21}$	7 ± 2	$2,5 \pm 0,5.10^{22}$	2-3

Tableau II.11. Evolution des densités de boucles de Frank et de cavités et de leur taille moyenne en fonction de la température d'irradiation

Ces résultats quantitatifs confirment ce que nous avions observé qualitativement en cours d'irradiation pour la densité mais également pour la taille des boucles de Frank. Ces tailles moyennes sont en accord avec la taille minimale des boucles résolues estimée, sur les films et micrographies acquis en cours d'irradiation, à 7 nm.
La diminution de la température d'irradiation entraîne une augmentation d'un facteur 3 de la densité de boucles. Cette forte augmentation s'accompagne d'une diminution significative d'un facteur 2 de leur taille.

Ces résultats sont cohérents avec les effets attendus pour une baisse de la température. Sous irradiation neutronique et pour une dose d'irradiation donnée, la densité de boucles augmente progressivement avec la température et est maximale aux environs de 300°C (cf. **figure I.6**). L'augmentation de la densité des boucles s'accompagne d'une diminution de leur taille, ce qui est également retrouvé ici.
En revanche, la diminution de la température s'accompagne d'une diminution d'un facteur 3 de la densité des cavités tandis que leur diamètre moyen n'évolue pas.

La **figure II.35** ci-dessous résume les effets de l'hélium et de la température sur les densités de boucles et de cavités pour 2 dpa.

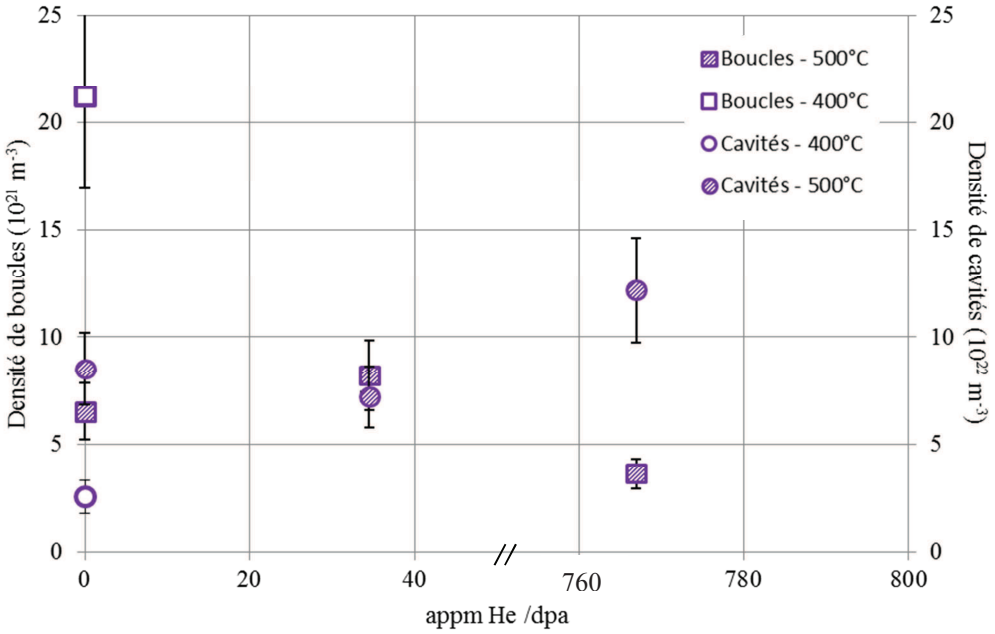


Figure II.35 : Densité de boucles et de cavités en fonction du taux d'hélium implanté et de la température d'irradiation à 2 dpa

Indépendamment de leur densité, la taille des cavités n'évolue pas en fonction de la température et de la quantité d'hélium, contrairement aux boucles pour lesquelles une augmentation de la densité est associée à une diminution en taille. Les distributions de taille de boucles en fonction de la température et de la quantité d'hélium implanté sont reportées sur la **figure II.36**.

La taille moyenne des boucles chute avec la diminution de la température. Cet effet se retrouve dans la distribution de taille entre 400°C et 500°C pour 0 appm d'He. La distribution des tailles de boucles est également plus resserrée à 400°C qu'à 500°C.
En revanche, l'implantation d'hélium en forte proportion ne conduit pas à une évolution de la taille moyenne des boucles malgré une légère diminution de leur densité. Cependant, les distributions de taille de boucles à 500°C pour 0 et 1520 appm d'He ne sont pas tout à fait équivalentes. Les très petites tailles (0 à 9 nm) et les très grandes tailles (20 à 35 nm) enregistrent une légère hausse avec l'implantation de 1520 appm d'hélium. Cette tendance ne se retrouve pas pour 70 appm d'hélium.
En conclusion, l'effet de l'hélium sur les densités et tailles des boucles d'irradiation est très limité.

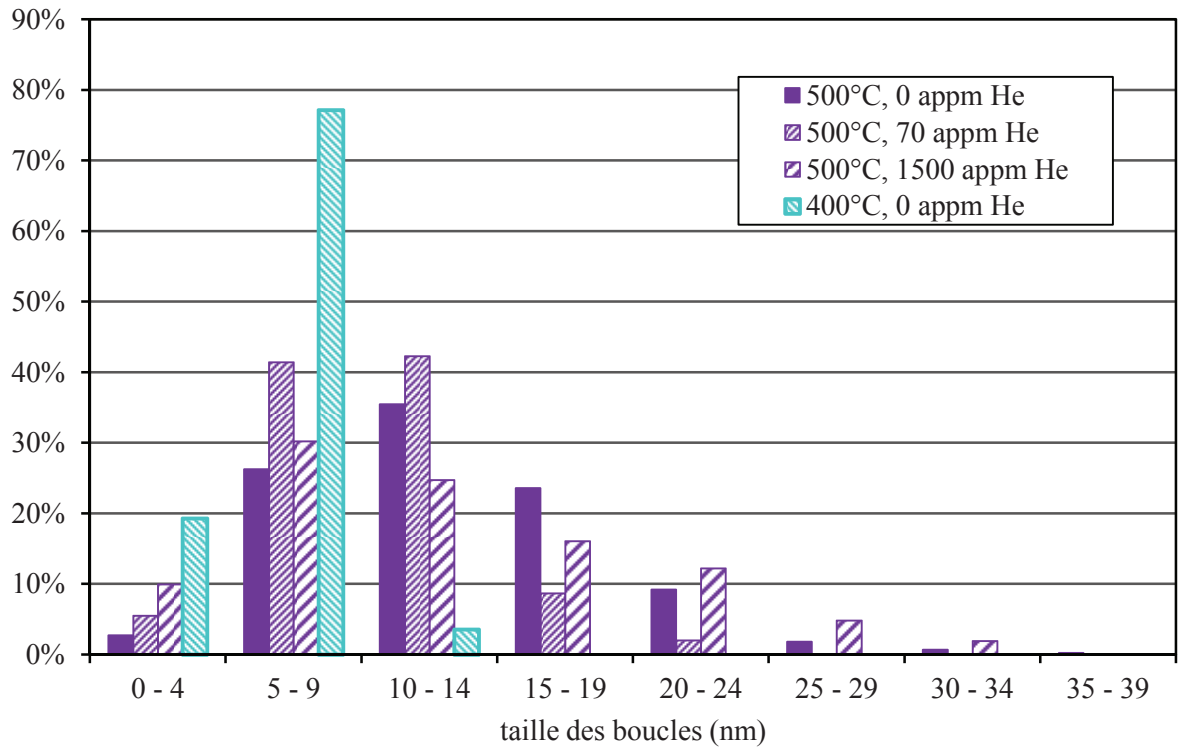


Figure II.36 : Distribution de la taille des boucles en fonction de la température et de la quantité d'hélium implanté à 2 dpa

II.3.5 Discussion sur l'évolution de la microstructure sous irradiation aux ions

L'irradiation aux ions lourds de lames minces présente des inconvénients liés notamment aux effets de surface libre et à l'absence de propriétés de volume d'une part ainsi qu'à un fort débit de dose d'autre part.
Les résultats issus de ces irradiations ne sont donc pas représentatifs *stricto-sensu* d'une irradiation aux neutrons. Cependant, elles offrent un intérêt indiscutable dans la compréhension des mécanismes et l'identification des étapes-clés grâce au suivi in-situ et à l'implantation simultanée d'hélium.
Ces résultats peuvent ainsi être utilisés pour calibrer des modèles [Xu 2012, Zouari 2012] et comparer valeurs issues de la modélisation et valeurs expérimentales. Les résultats discutés ci-dessous s'inscrivent dans cette démarche.

II.3.5 a) Dislocations initiales et défauts d'irradiation

Il est généralement admis que le réseau de dislocations initial n'a pas d'influence sur la densité du réseau de dislocations à saturation mesurée après irradiation de quelques dpa.
Dans les structures C.F.C., les boucles de Frank créées sous irradiation croissent et se défautent pour devenir des boucles glissiles de vecteur **b** =1/2 <110> et peuvent ainsi former un nouveau réseau de dislocations [Maziasz 1993]. La densité de dislocations initiale d'un acier remis en solution augmente donc par le défautement et l'incorporation de ces boucles tandis que la densité de dislocations initiale d'un acier écroui diminue sous irradiation par recuit.

Dans les RNRs, la saturation du réseau de dislocations est atteinte autour de 20 dpa pour les aciers remis en solution. La densité de dislocations est de l'ordre de 10^{10} à 10^{11} cm^{-2} et est indépendante de la température. Des irradiations avec des ions Ni^{++} 500 keV à 25 dpa et à 600°C sur des aciers 316L hypertrempé et écrouis à 10 et 20% confirment ces résultats avec une densité de dislocations égale à 3.10^{10} cm^{-2} dans les trois configurations [Delaplace 1973].
En revanche, le réseau de dislocations initial de matériaux irradiés en milieu REP n'a jamais été observé expérimentalement. La disparition totale du réseau de dislocations paraît pourtant peu probable et la saturation des densités et tailles des boucles de Frank semble prouver que ce réseau demeure. L'hypothèse avancée par Zouari et al. [Zouari 2012] est que l'absence d'observation expérimentale de ce réseau au MET est en réalité lié à la difficulté de le mettre en évidence du fait du contraste des nombreux défauts créés sous irradiation.
Les résultats obtenus dans cette étude vont dans ce sens. En effet, bien que la dose d'irradiation atteinte ici soit encore faible, nous avons constaté que les dislocations initiales sont toujours présentes mais pour certaines plus difficiles à observer du fait des boucles créées et notamment de celles qui ont germé le long des lignes de dislocations. D'ailleurs, la germination de ces boucles le long des lignes induit plutôt un ancrage de celles-ci et empêcherait donc leur annihilation, ce qui est contradictoire avec la disparition du réseau.

Les densités de boucles de Frank formées pendant les irradiations ont été mesurées et comparées aux résultats obtenus par irradiation aux neutrons ou aux ions lourds et détaillés dans la littérature. La **figure II.37** illustre cette comparaison.

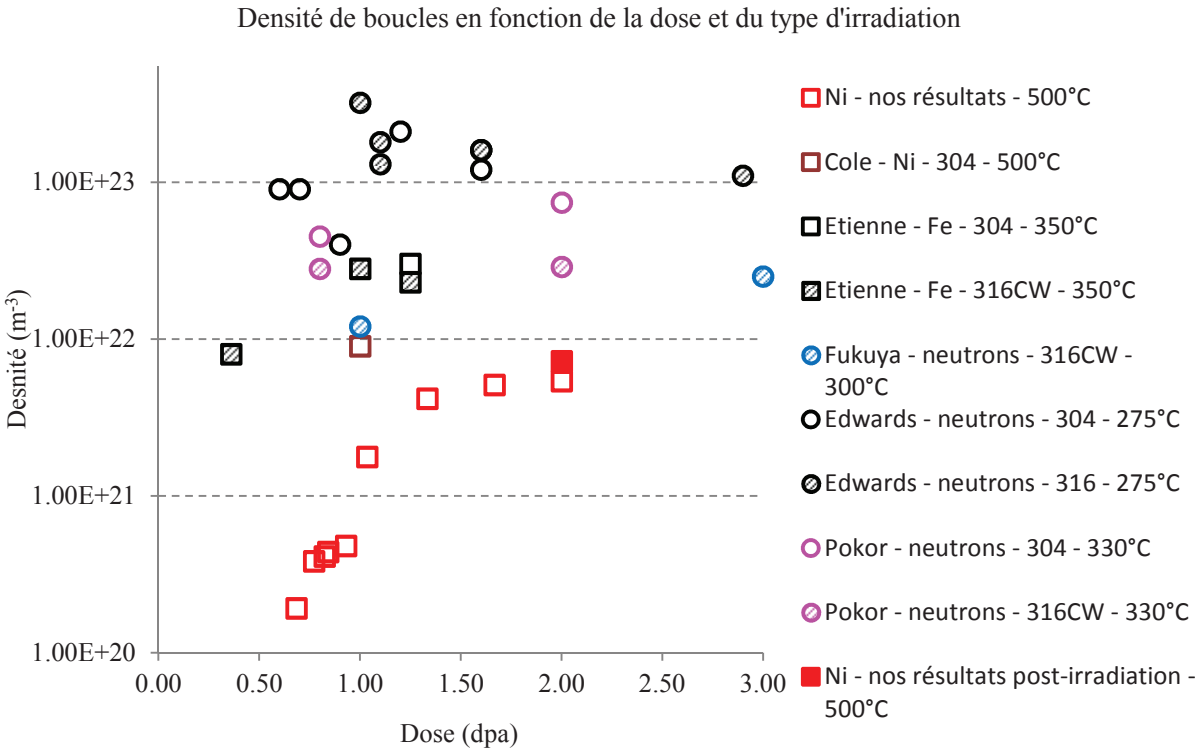


Figure II.37 : Comparaison des densités de boucles de Frank mesurées après des irradiations aux neutrons et aux ions lourds en fonction de la dose – les résultats présentés sont issus des références [Etienne 2010], [Cole 1995], [Fukuya 2006], [Edwards 2003] et [Pokor 2004]

Les densités mesurées dans notre étude sont plus faibles que celles rapportées dans la littérature pour des irradiations aux neutrons d'une part et des irradiations aux ions Ni à 500°C et Fe à 350°C d'autre part, pour des doses inférieures ou égales à 2 dpa.
Cependant, les valeurs indiquées de 0 à 2 dpa (carrés rouges vides, figure II.37) sont issues de l'étude cinétique réalisée à partir des films et des micrographies prises en cours d'irradiation dans les conditions d'observations imposées par l'expérience (deux ondes, angles de tilt imposés). Or les quantifications post-irradiation à partir des boucles imagées par la technique de la traînée diffuse sont plus précises et notamment aux plus petites doses pour lesquelles les faibles tailles des défauts rendent leur observation difficile. Ainsi, bien que la densité à 2 dpa mesurée en cours d'irradiation soit tout à fait cohérente avec la mesure post-irradiation (carré rouge plein), nous pouvons supposer que les densités indiquées pour les plus faibles doses sont sous-estimées pour les raisons évoquées précédemment.
La densité des boucles obtenue post-irradiation reste cependant inférieure aux résultats de la littérature bien que dans le même ordre de grandeur.
Plus que la difficulté d'observation des défauts, nous attirons l'attention du lecteur sur l'effet de surface libre rencontré lors des irradiations de lames minces. Les défauts d'irradiation s'éliminant sur les puits de potentiels et donc les surfaces libres, cet effet explique certainement la plus faible densité de défauts observés. Par contre le diamètre moyen de 13 nm est supérieur aux diamètres moyens reportés pour les irradiations aux neutrons autour de 2 dpa qui oscillent entre 6 et 10 nm en fonction de la température. En résumé, les densités de boucles sur lames minces irradiées aux ions Ni à 500°C jusqu'à 2 dpa sont plus faibles que les irradiations aux neutrons autour de 300°C et pour les mêmes doses mais la taille de ces défauts est plus grande.

Concernant les cavités, les conditions d'observation (sous-focalisation/sur-focalisation) empêchent de suivre leur évolution en cours d'irradiation. A 2 dpa et sans implantation d'hélium, leur densité est de $8{,}5.10^{22}$ m^{-3} et leur diamètre moyen de 2 à 3 nm.
Les travaux de Fukuya [Fukuya 2006] font état de densités de 1,20 et $3{,}6.10^{23}$ m^{-3} sur un acier 316 écroui et pour des irradiations aux neutrons à 1 et 3 dpa respectivement et des températures de 300 à 325°C. Les tailles associées sont de 0,9 nm. Plusieurs facteurs peuvent expliquer ces différences. Tout d'abord l'effet de surface libre qui une fois encore entraîne probablement une densité plus faible des défauts observés sur lames minces. A cela s'ajoute la composition du matériau. Les travaux de Fukuya portent sur un acier 316 écroui. Or contrairement aux boucles de Frank pour lesquelles les résultats de tailles et densités sont similaires entre 304 et 316, quels que soient la composition et l'état métallurgique du matériau, les cavités semblent plus sensibles à ces deux paramètres. Ainsi des études portant sur des aciers 316 et 316L écrouis irradiés respectivement entre 290°C/325°C et 320°C/360°C ont montré des différences significatives sur les populations de cavités recensées [d'après Zouari 2012]. Le 316L présente une plus faible densité de cavités avec un diamètre moyen plus élevé. L'écart de température est certainement la cause prépondérante de ces différences. Toutefois la différence de taux de carbone entre les deux alliages pourrait avoir une influence.

II.3.5 b) Interaction hélium/défaut – effet de l'hélium sur la microstructure en fonction du rapport He/dpa

L'implantation simultanée d'hélium rendue possible par le couplage des deux faisceaux de la plateforme est un atout pour simuler le comportement sous irradiation des structures internes. La **figure II.38** illustre les différences engendrées par les conditions d'implantation de l'hélium sur la

microstructure de cavités d'un alliage Fe-Ni-Cr remis en solution. Les différences constatées justifient l'intérêt de réaliser des expérimentations avec implantation simultanée d'He pour simuler les réactions de transmutation concomitantes aux modifications microstructurales causées par l'irradiation.

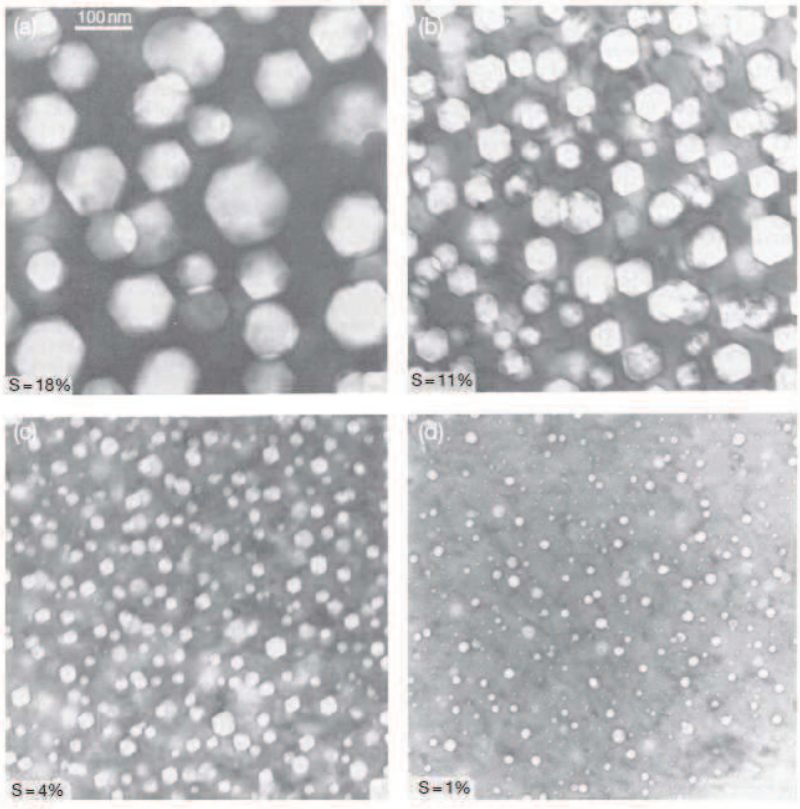


Figure II.38 : Morphologies des cavités observées sur un alliage Fe-Ni-Cr irradié à 70 dpa et 625°C avec (a) 0 appm d'He, (b) 1400 appm d'He co-implanté, (c)1400 appm d'He pré-injecté à chaud et (d) 1400 d'He pré-implanté à froid [Packan 1979, d'après Dai 2012]

D'après [Lee 2000], la présence d'une forte teneur en hélium (irradiation aux ions He 360 keV à 200°C) conduit à une diminution de la taille des boucles car les bulles d'hélium piègent les défauts ponctuels (recombinaison) et bloquent l'évolution et le défautement des boucles en comparaison avec des irradiations aux ions Fe 3,5 MeV et 200°C sans hélium.

A basse température et pour des rapports He/dpa inférieurs à 1000 appm/dpa, l'influence de l'hélium sur les cavités et les boucles a été simulée grâce à un modèle développé par Zouari [Zouari 2012] et apparaît comme peu significative.
Cette tendance se confirme pour les boucles y compris pour des rapports supérieurs à 1000 appm He/dpa et à plus haute température, ce qui est cohérent avec nos résultats où la variation de 0 à 760 appm He/dpa n'a pas conduit sous irradiations aux ions Ni à 500°C à une modification notable de la taille et de la densité des boucles.

Pour les cavités en revanche, l'effet deviendrait remarquable au-delà de 420°C pour des irradiations aux neutrons comme présenté sur la **figure II.39**. L'hélium, mobile et non soluble, stabilise les cavités et cet effet est d'autant plus important à haute température ce qui expliquerait ce comportement.

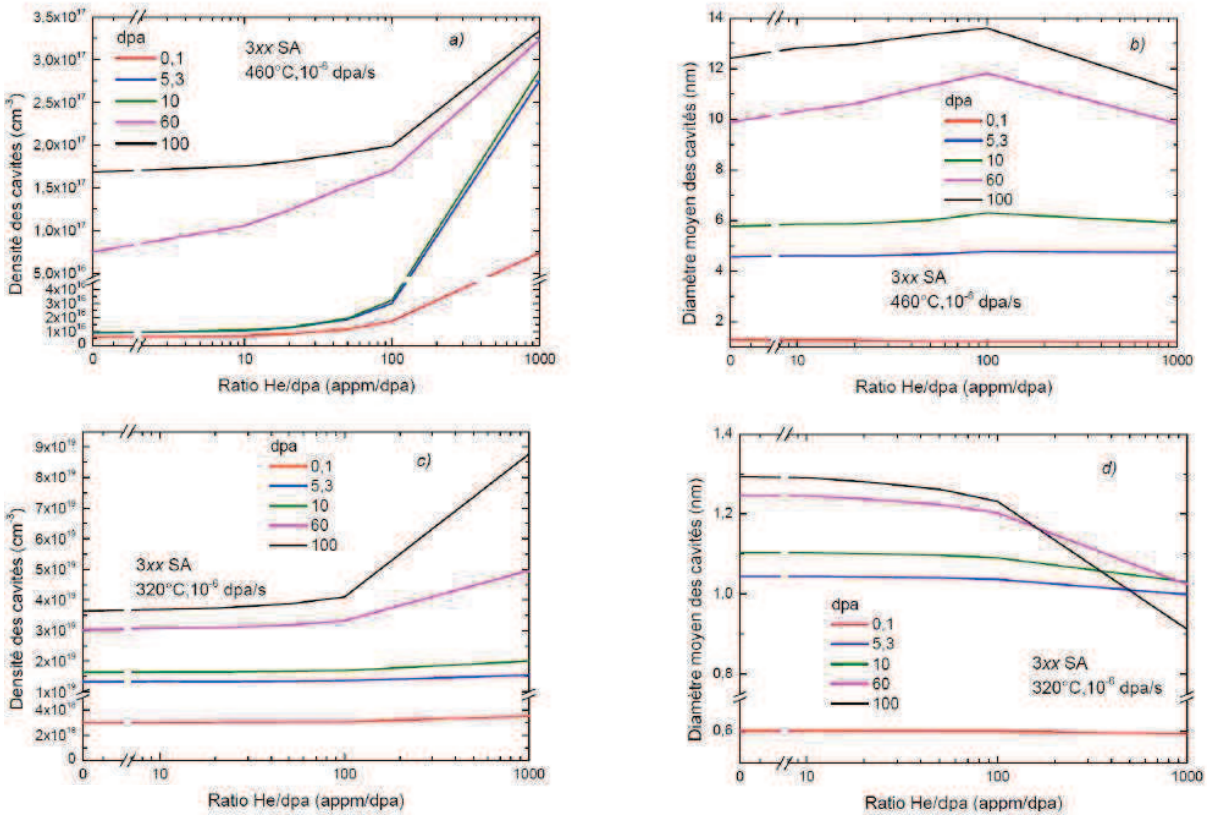


Figure II.39 : Prédiction du modèle en termes d'évolution avec le rapport He/dpa, entre 0 et 1000 appm/dpa, de la densité (a, c) et de la taille moyenne des cavités (b,d) pour un acier de type 3xx SA irradié avec un débit de dose de 10^{-6} dpa.s^{-1}, à 460°C (a,b) et 320°C (c,d) [Zouari 2012]

Pour les températures supérieures à 400°C, la densité de cavités augmente avec l'augmentation du rapport He/dpa mais l'effet sur la taille est non monotone avec un pic à 100 appm d'He/dpa à 460°C.
Pour des températures de l'ordre de 320°C, les diamètres moyens des cavités sont constants lorsque le rapport est inférieur à 100 appm/dpa et diminue au-delà de 1000 appm/dpa. Ces densités et tailles ont été calculées pour des débits de dose de 10^{-6} dpa/s, *i.e.* des débits inférieurs de 2 ordres de grandeurs aux débits de dose des irradiations expérimentales de cette étude.

Les données expérimentales permettant de vérifier les résultats des modèles sont principalement issues d'irradiation aux ions en double faisceaux et donc avec des débits de dose nettement supérieurs aux débits de dose des réacteurs à eau légère.
Aucune différence d'importance n'a été observée sur les populations de boucles entre REP et RNR pour des températures inférieures à 360°C malgré un débit de dose plus faible et un taux de génération d'hélium plus élevé dans les REP.
Cependant, le débit de dose est connu pour avoir une influence notable sur la densité et la taille moyenne des cavités pour des températures supérieures à 360°C. Plus le débit de dose est faible, comme c'est le cas pour des irradiations aux neutrons, et plus les densités de défauts diminuent tandis que les tailles augmentent [Allen 2006].

En 1994, Katoh [Katoh 1994] a réalisé des irradiations en double faisceaux aux ions Ni à 600°C (débit de dose de 2.10^{-3} dpa.s^{-1}) sur un acier 316 avec une variation du rapport He/dpa de 0 à 50 appm/dpa. Il montre un effet non linéaire du rapport He/dpa sur la densité et la taille moyenne des cavités. La densité et le diamètre moyen des cavités augmentent dans un premier temps avec l'augmentation de la quantité d'hélium, passent par un maximum puis diminuent (**figure II.40**). Les densités, diamètres et évolution de ces deux paramètres avec la quantité d'hélium implanté semblent fortement dépendre de la dose. La densité de boucles a également tendance à augmenter mais cet effet reste faible.

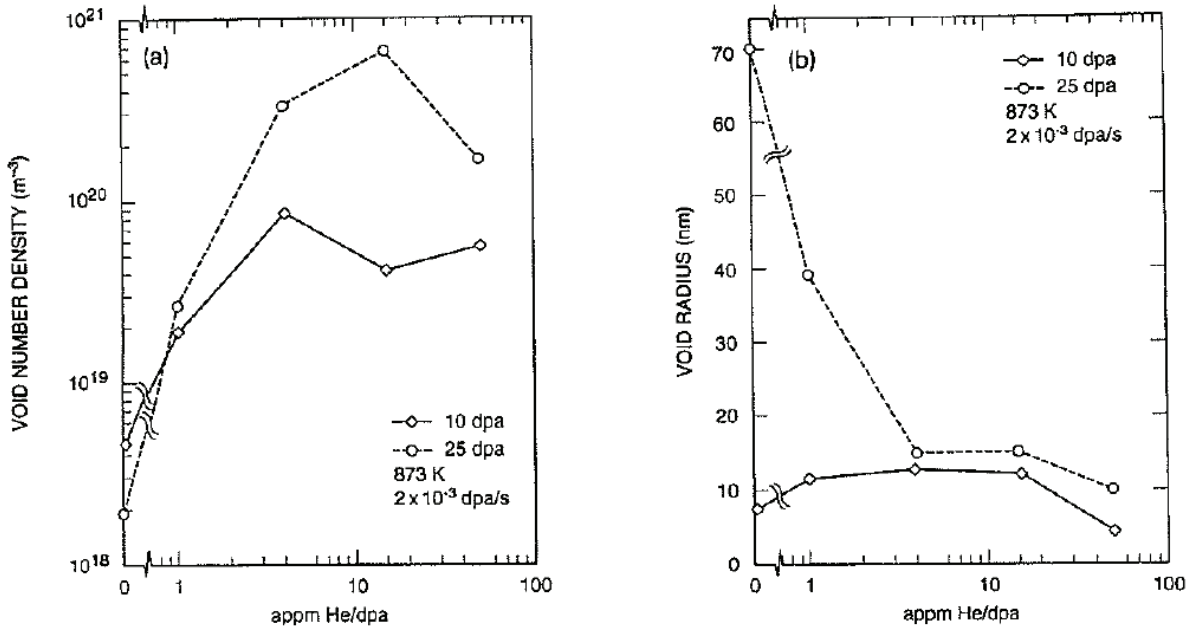


Figure II.40 : Dépendance au rapport He/dpa de la densité et de la taille moyenne des cavités dans un acier 316 irradié aux ions Ni à 600°C et 2.10^{-3} dpa.s^{-1} – les doses de 10 et 25 dpa ont été calculées via SRIM avec une énergie de déplacement du Fe fixée à 25 eV [Katoh 1994]

En l'absence de données expérimentales pour des irradiations aux ions lourds et en double faisceaux pour de faibles doses, il semble difficile de comparer les résultats obtenus sur les tailles et densités de cavités dans cette étude avec ceux de Katoh et al., d'autant que l'effet de l'hélium est non monotone.

Cependant, les variations de tailles et densités de boucles et cavités mesurées dans le cadre de cette étude pour des taux inférieurs à 1000 appm/dpa sont négligeables. Des cavités ont par ailleurs été observées sans implantation d'hélium.
Ces résultats confirment l'absence d'un changement significatif de la microstructure d'irradiation en présence d'hélium pour une faible température, un rapport He/dpa inférieur à 1000 appm/dpa et un débit de dose de 10^{-4} dpa.s^{-1}. Les résultats obtenus par modélisation dans des conditions de température et de quantité d'hélium similaires mais pour un débit de dose de 10^{-6} dpa.s^{-1} vont également dans ce sens [Zouari 2012].
L''implantation d'He dans le cas d'une irradiation aux ions ou la présence de ce gaz par transmutation dans le cas d'irradiations neutroniques ne modifient donc pas drastiquement les caractéristiques des populations de boucles et de cavités à basse température et faible ratio He/dpa, et ce quel que soit le débit de dose.

La **figure II.41** montre les prédictions du modèle développé par Zouari [Zouari 2012] sur le nombre d'atomes d'He par lacune en fonction de la dose et du nombre de lacunes par cavités dans des conditions REP. D'après ces prédictions, les cavités contenant le plus d'atomes d'He sont celles constituées de 10 à 100 lacunes ce qui correspond à des cavités de diamètre moyen de 0.6 à 1.2 nm. Ces cavités ne présentent d'ailleurs pas une taille qui permette de les étudier expérimentalement au MET pour lequel un diamètre moyen de 2 nm est la limite basse de résolution de ces objets.

Le niveau du nombre d'atomes d'He par cavité atteint reste dans tous les cas très faible, y compris à forte dose. Selon les auteurs, aucun effet de l'hélium sur le gonflement ne serait donc attendu dans ces conditions.

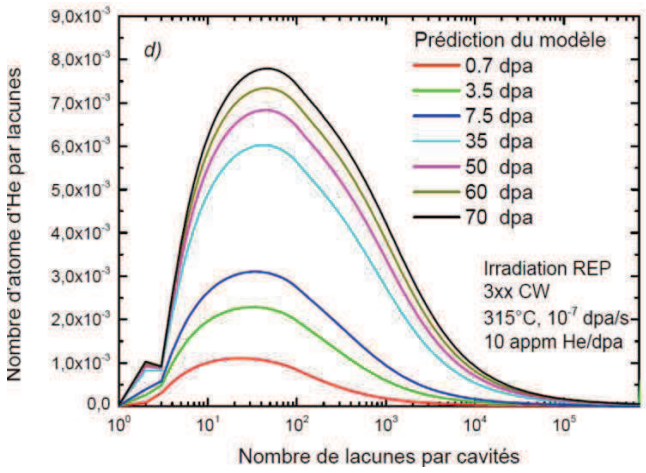


Figure II.41 : Evolution avec la dose du nombre d'atomes d'He par lacune dans un acier inoxydable austénitique écroui irradié en conditions REP [Zouari 2012]

En revanche, nous venons de voir que des cavités sont d'ores et déjà présentes dans la microstructure, sans présence d'hélium. En effet, de même que pour les irradiations aux Ni sans implantation d'hélium, des cavités ont été observées dans cette étude après irradiation aux protons à 360°C pour un débit de dose intermédiaire de 10^{-5} dpa/s. Si l'on considère de plus le fait que le MET ne nous permette pas de visualiser les cavités d'un diamètre inférieur à 2 nm, nous pouvons alors supposer que les populations de cavités recensées ici après irradiation aux protons et Ni sans hélium sont sous-estimées.

L'écart de température choisi pour nos conditions d'irradiation (+ 60°C pour les protons et + 200°C pour les ions Ni pour simuler une irradiation aux neutrons à environ 300°C) a pour objectif de compenser les variations de débit de dose. A titre indicatif, les densités de cavités mesurées après 5 dpa aux protons et 2 dpa aux ions Ni sont de l'ordre de 10^{22} m^{-3} pour une taille de 2 à 4 nm. Malgré tout, les comparaisons entre des irradiations sur lames minces aux ions lourds et des irradiations sur matériaux massifs aux protons sont à considérer avec beaucoup de précautions.

Résumé

Afin de reproduire les dommages microstructuraux générés en réacteurs par les neutrons, nous avons utilisé en parallèle deux types d'irradiation aux ions sur le matériau d'étude :

- des irradiations aux protons 2 MeV à 360°C sur matériau massif,
- des irradiations aux ions Ni^{++} 500 keV à 400°C et 500°C sur lames minces avec et sans implantation simultanée d'hélium.

Les doses atteintes *via* les irradiations aux protons sont de 5 et 10 dpa. Ces irradiations offrent l'avantage de générer un profil d'endommagement homogène jusqu'à 20 µm environ sous la surface. La microstructure d'irradiation le long de ce profil d'endommagement a été quantifiée par microscopie électronique en transmission sur une lame FIB prélevée dans le matériau irradié à 5 dpa. Pour comparaison, la microstructure après 10 dpa a été caractérisée sur le plateau d'endommagement. Des cavités ont été observées pour les deux doses.

La caractérisation de la microstructure d'irradiation dans l'épaisseur du matériau a permis de valider la profondeur d'irradiation indiquée par le logiciel SRIM®, bien que la séparation irradié/non irradié soit en réalité moins abrupte que celle calculée.
Au niveau du pic de Bragg, deux zones distinctes apparaissent. Proche de l'interface avec le matériau non irradié, la microstructure est constituée de grandes boucles de 19 nm en moyenne et de petites cavités sphériques. A l'inverse, la zone située côté irradié, proche du plateau d'endommagement, est constituée de grandes cavités facettées (8 nm) et de boucles de taille moyenne (12 nm) mais en plus faible densité.

Les densités de boucles et cavités mesurées au niveau du plateau sont du même ordre de grandeur que celles rapportées dans la littérature pour des irradiations aux neutrons dans cette gamme de température. Elles sont de plus identiques entre 5 et 10 dpa, ce qui implique que le plateau de saturation est atteint dès 5 dpa. Des mesures de microdureté ont confirmé ces résultats, avec des valeurs similaires de l'ordre de 420 HV. Cette dureté correspond à une limite d'élasticité d'environ 850 MPa, soit 4 fois la limite d'élasticité du matériau non irradié.

Parallèlement à cette étude, des irradiations sur lames minces ont été réalisées *in situ* dans un microscope électronique en transmission sur la plateforme Jannus Orsay. L'évolution de la microstructure a été suivie en direct de façon à obtenir des informations sur l'apparition et la croissance des boucles de dislocations au cours du temps. L'exploitation post-irradiation de ces lames a également permis d'obtenir des données quantitatives sur les populations des boucles et cavités formées en fonction de la température. L'implantation simultanée d'hélium avait pour objectif de reproduire la génération par transmutation de ce gaz dans les structures internes et ainsi de quantifier, pour différents rapports He/dpa, l'influence de ce dernier sur les populations des défauts d'irradiation.

Les principales conclusions de ce travail sont les suivantes :

- Les amas de défauts visibles au MET dans les conditions d'observation imposées par l'expérience sont immobiles,
- Durant les premiers instants de l'irradiation, les boucles germent préférentiellement le long des lignes de dislocations,

- Pour des doses allant jusqu'à 2 dpa, le réseau de dislocation initial est toujours présent bien que plus difficilement visible,
- Une diminution de la température entraîne une augmentation de la densité de boucles et une diminution de leur taille moyenne alors qu'une diminution de la densité de cavités, sans évolution de la taille, est observée,
- Des cavités sont formées sans implantation d'hélium,
- L'implantation d'hélium n'a que très peu d'influence sur les populations de boucles et cavités, y compris pour un rapport He/dpa de 760, soit près de 40 fois le rapport constaté en milieu REP,
- Des cavités sont présentes de manière homogène dans la matrice mais également dans les joints de grains, et notamment les joints de type Σ3. La présence de ces cavités peut diminuer l'énergie de cohésion des joints,
- Les populations de boucles et cavités mesurées sont inférieures à celles observées sur matériau massif après irradiation aux neutrons. Cette différence pourrait être, entre autres, expliquée par des effets de surface libre.

La présence de bulles d'He/cavités aux joints de grains pourrait constituer un facteur de fragilisation pour le matériau lorsque ce dernier est soumis à un chargement mécanique.
En revanche, les populations de boucles et de cavités ne sont pas impactées par la présence de ce gaz pour un rapport He/dpa inférieur ou égal à 760 et une température d'irradiation aux ions lourds de 500°C.

Summary

To reproduce microstructural damages generated in reactors by neutrons, we used in parallel two types of ion irradiations on the studied material:

- 2 MeV protons irradiations at 360°C on a plate,
- 500 keV Ni^{++} irradiations at 400°C and 500°C on thin foils with and without simultaneous helium implantation.

Doses reached *via* protons irradiations are 5 and 10 dpa. This kind of irradiations offers the advantage to generate a homogeneous damage profile until approximately 20 µm under the surface. The irradiation microstructure along this profile was characterized by transmission electronic microscopy on a FIB foil taken in the 5 dpa irradiated material. For comparison, the microstructure after 10 dpa was also characterized. Cavities were observed for both doses.

The characterization of the irradiation microstructure in the thickness of the material allowed validating the depth of irradiation indicated by the SRIM® software.
At the Bragg peak location, two different zones appear. Close to the interface with the non-irradiated material, the microstructure consists of large loops of 19 nm on average and small spherical cavities. On the contrary, the irradiated-side zone, close to the homogeneous damage profile, is characterized by large faceted cavities (8 nm) and medium-sized loops (12 nm).

The densities of loops and cavities measured on the homogeneous damage profile are in the same order of magnitude than those reported in the literature for neutron irradiations in this range of temperature. They are also identical between 5 and 10 dpa, which involves that saturation is reached by 5 dpa. Measures of micro-hardness confirmed these results, with similar values around 420 HV for both doses. This hardness corresponds to a yield strength of about 850 MPa, which is 4 times the non-irradiated material yield strength.

In parallel to this study, irradiations on thin foils were carried out *in situ* in a Transmission Electron Microscope on the Jannus platform (Orsay). The evolution of the microstructure was followed in real time for obtaining information on the dislocation loops nucleation and growth. In addition, post-irradiation exploitation of these foils allowed obtaining quantitative data on the loops and cavities evolution according to the temperature. The simultaneous helium implantation had for objective to reproduce the generation by transmutation of this gas in the internal structures and so to quantify, for various He appm/dpa ratios, its influence on the radiation defect populations.

The main conclusions of this work are the following:

- Clusters of visible defects in the TEM observation conditions imposed by the experiments (2 to 3 nm) are not mobiles,
- At the first stages of irradiation, loops nucleate preferentially along the dislocations lines,
- For doses up to 2 dpa, the initial network of dislocations is still present although it is harder to observe due to radiation defects,

- A decrease of the temperature leads to an increase of the loop density and a decrease of their average size whereas the cavity density decreases with no evolution of their diameter,
- Cavities are formed without helium implantation,
- Helium implantation has only a little impact on the populations of loops and cavities, even for a ratio He/dpa of 760 appm/dpa, close to 40 times the ratio representative of PWR environment,
- Cavities are homogeneously distributed in the matrix and are also found in the grain boundaries, in particular the Σ3 type boundaries. The presence of these cavities can decrease the cohesion energy of those boundaries,
- The loop and cavity densities measured are slightly lower than those observed on bulk specimens after neutrons irradiation. This difference could be, amongst others, explained by free surface effects.

The presence of cavities in the grain boundaries could be a factor of embrittlement for the material when it is submitted to a mechanical loading. On the other hand, the populations of loops and cavities are not impacted by the presence of He for a ratio He/dpa lower or equal to 760 appm/dpa and an heavy ion irradiation temperature of 500°C.

Bibliographie

[Allen 2006] T.R Allen, J.I Cole, C.L Trybus, D.L Porter, H. Tsai, F. Garner, E.AKenik, T. Yoshitake, Joji Ohta, « The effect of dose rate on response of austenitic stainless steels to neutron radiation », J. Nucl. Mater. 348 (2006) 148-164

[Brimbal 2011] D. Brimbal, «Evolution microstructurale du fer pur et d'un alliage Fe-Cr sous irradiation avec injection simultanée d'hélium: étude expérimentale et modélisation », Thèse Université Paris Sud (2011)

[Cole 1995] J.I. Cole, S.M. Bruemmer, « Post-irradiation deformation characteristics of heavy-ion irradiated 304L SS », J. Nucl. Mater. 225 (1995) 53-58

[Dai 2012] Y. Dai, «The Effects of Helium in Irradiated Structural Alloys», Nuclear Comprehensive Materials, Elsevier (2012)

[Delaplace 1973] J. Delaplace, N Azam, L. Le Naour, M. Lott, C. Fiche, « Simulation par bombardement d'ions Ni+ de moyenne énergie des effets d'irradiation en pile dans le nickel et les aciers austénitiques », J. Phys. Colloques, 34 (1973) C5 11-18

[Edwards 2003] D.J. Edwards, E.P. Simonen, S.M. Bruemmer, «Evolution of fine-scale defects in stainless steels neutron-irradiated at 275 .C», J. Nucl. Mater. 317 (2003) 13-31

[Edwards 2009] D.J. Edwards, F.A. Garner, S.M. Bruemmer, P. Efsing, «Nano-cavities observed in a 316SS PWR flux thimble tube irradiated to 33 and 70 dpa», J. Nucl. Mater. 384 (2009) 249-255

[Etienne 2010] A. Etienne, M. Hernandez-Mayoral, C. Genevois, B. Radiguet, P. Pareige, « Dislocation loop evolution under ion irradiation in austenitic stainless steels », J. Nucl. Mater. 400 (2010) 56-63

[Fukuya 2006] K. Fukuya, K. Fujii, H. Nishioka, Y. Kitsunai, « Evolution of Microstructure and Microchemistry in Cold-worked 316 Stainless Steels under PWR Irradiation », J. Nucl. Sci. Tech. 43 (2006) 159-173

[Jenkins 1994] M.L. Jenkins, «Characterization of radiation-damage microstructures by TEM», J. Nucl. Mater., 216 (1994) 124-156

[Jenkins 2009] M.L. Jenkins, Z. Yao, M. Hernandez-Mayoral, M.A. Kirk, « Dynamic observations of heavy-ion damage in Fe and Fe–Cr alloys » ,J. Nucl. Mater. 389 (2009) 197-202

[Katoh 1994] Y. Katoh, R.E Stoller, Y. Kohno, A. Kohyama, « The influence of He/dpa ratio and displacement rate on microstructural evolution: a comparison of theory and experiment», J. Nucl. Mater. 201 (1994) 290-302

[Kiritani 1997] M. Kiritani, « Defect interaction processes controlling the accumulation of defects produced by high energy recoils », J. Nucl. Mater. 257 (1997) 237-251

[Lee 2000] E.H. Lee, J.D. Hunn, T.S. Byun, L.K. Mansur, « Effects of helium on radiation-induced defect microstructure in austenitic stainless steel », J. Nucl. Mater. 280 (2000) 18-24

[Maziasz 1993] P.J Maziasz, « Overview of microstructural evolution in neutron-irradiated austenitic stainless steels », J. Nucl. Mater. 205 (1993) 118-145

[Packan 1979] N.H Packan, K.J Farrell, « Simulation of first wall damage: Effects of the method of gas implantation», J. Nucl. Mater. 85–86 (1979) 677–681

[Priester 2009] L. Priester, « Les joints de grains – de la théorie à l'ingénierie », Ed. EDP Sciences (2006)

[Pokor 2004] C. Pokor, Y. Brechet, P. Dubuisson, J.-P. Massoud, A. Barbu, « Irradiation damage in 304 and 316 stainless steels: experimental investigation and modeling. Part I: Evolution of the microstructure », J. Nucl. Mater. 326 (2004) 19-29

[Sencer 2003] B. H. Sencer, G.S. Was, M. Sagisaka, Y. Isobe, G.M. Bond, F.A. Garner, « Proton irradiation emulation of PWR neutron damage microstructures in solution annealed 304 and cold-worked 316 stainless steels », J. Nucl. Mater. 323 (2003) 18–28

[Simonen 1999] E.P. Simonen, D.J. Edwards, S.M. Bruemmer, « Local evolution of microstructure and microchemistry near grain boundaries in irradiated austenitic stainless steels », Proc. 9th International Conference on Environmental Degradation of Nuclear Materials in Nuclear Power Systems-Water Reactors, Newport Beach, CA, USA (1999)

[SRIM 2008] J.F. Ziegler, « The Stopping and Range of Ions in Matter », http://www.srim.org

[Was 2007] G. S. Was, « Fundamentals of Radiation Materials Science: Metals and Alloys », Springer, Berlin (2007)

[West 2010] E.A West, « Influence of local stress and strain on intergranular cracking of 316L stainless steel in supercritical water », PhD thesis University of Michigan (2010)

[Xu 2012] D. Xu, B. D. Wirth, M. Li, M.A. Kirk, « Combining in situ transmission electron microscopy irradiation experiments with cluster dynamics modeling to study nanoscale defect agglomeration in structural metals », Acta Mater. 60 (2012) 4286-4302

[Zouari 2012] M.L. Zouari, «Modélisation par dynamique d'amas des évolutions microstructurales et du gonflement sous irradiation dans les aciers inoxydables austénitiques», Thèse Université de Grenoble (2012)

CHAPITRE III

Corrosion sous contrainte en milieu REP simulé

III. 1 Plan d'expériences et préparation des éprouvettes
III. 2 Mise en place et suivi des essais de corrosion sous contrainte
III. 3 Caractérisation des réseaux de fissures
III.3.1 Méthodologie
III.3.1 a) Estimation de la surface élémentaire représentative
III.3.1 b) Protocole d'analyse des réseaux de fissure par microscopie électronique à balayage
III.3.1 c) Comparaison MO/MEB
III.3.2 Résultats
III.3.2 a) Caractéristiques générales
III.3.2 b) Influence du trajet de chargement et du taux de déformation
III.3.2 c) Influence de la dose d'irradiation
III.4 Comportement mécanique à l'échelle du grain
III.4.1 Influence des mécanismes de plasticité sur les mécanismes de fissuration
III.4.2 Analyse des champs locaux de déformation
III.4.2 a) Principe de la microextensométrie par corrélation d'images
III.4.2 b) Champs de déformation
Résumé
Bibliographie

Comme nous l'avons précédemment évoqué, les irradiations aux protons permettent, sous certaines conditions, de simuler les dommages microstructuraux engendrés en réacteurs par les neutrons. Leur principal avantage, comparativement aux ions lourds, réside dans l'obtention d'un profil d'endommagement homogène sur plusieurs dizaines de micromètres.
Cette situation a été avantageusement mise à profit dans le cadre des études sur l'IASCC grâce à la possibilité de réaliser en laboratoire des essais de CSC en milieu simulé REP ou REB sur des éprouvettes ainsi irradiées.

S'il ne s'agit pas à proprement dit d'essais de corrosion sous contrainte assistée par l'irradiation dans la mesure où les effets de l'irradiation et de la corrosion sous contrainte ne sont pas couplés de façon simultanée, ces essais post-irradiation permettent néanmoins de travailler en milieu et en température sur un matériau « massif » (et donc en s'affranchissant des éventuels effets de surface) qui présente les conséquences microstructurales et microchimiques caractéristiques d'un matériau irradié aux neutrons. Or, ce sont bien les effets durables provoqués par l'irradiation sur ces matériaux qui sont mis en cause dans la fissuration intergranulaire par IASCC.

Les études de CSC post-irradiation réalisées jusqu'à aujourd'hui se sont principalement concentrées sur l'influence de la composition de l'alliage, et donc de la ségrégation chimique induite par l'irradiation ou de la variation de l'énergie de faute d'empilement, ou encore de son état métallurgique initial sur la sensibilité des aciers inoxydables austénitiques à l'IASCC à une échelle macroscopique. Cette sensibilité étant estimée notamment *via* le pourcentage de rupture intergranulaire sur les faciès de rupture des éprouvettes.
A notre connaissance, peu d'entre elles en revanche se sont intéressées aux premières étapes de la fissuration et aux mécanismes d'amorçage de l'IASCC et notamment pour de faibles doses d'irradiation.
Comme nous l'avons souligné dans le chapitre I, la localisation de la déformation observée suite à l'irradiation constitue une piste intéressante. Cependant, parmi les quelques études essayant de corréler les conséquences de l'irradiation à l'échelle mésoscopique avec l'amorçage de la fissuration par IASCC, aucune ne relie à la fois les paramètres microstructuraux du matériau, l'hétérogénéité locale des champs de déformation après irradiation et la fissuration intergranulaire, de manière quantitative et statistique.
C'est ce que nous proposons de réaliser dans le cadre de cette étude, sur un acier de type 304L irradié aux protons 2 MeV à 5 et 10 dpa et testés en CSC en milieu primaire simulé à 350°C.

Ce chapitre commence par la présentation du plan d'expériences suivi ainsi que de la méthodologie mise en place pour réaliser le couplage susmentionné entre microstructure, déformation locale et fissuration. Ceci fait l'objet des parties I et II.
Une étape préliminaire de ce travail a été de définir une surface élémentaire représentative et de déterminer, sur cette surface, les effets de la dose, du type de chargement mécanique ou encore du taux de déformation sur le réseau de fissures intergranulaires en surface et en volume. Les résultats obtenus sont détaillés dans la troisième partie de ce chapitre.
Nous abordons dans une quatrième et dernière partie, le couplage entre microstructure, champs locaux de déformation et fissuration. Ce couplage a été possible grâce à une préparation minutieuse des éprouvettes avant essai. Les paramètres microstructuraux ont été obtenus par EBSD et les données expérimentales locales des champs de déformation ont été obtenues par microextensométrie, ce qui a nécessité le dépôt au préalable d'un marquage sur la surface de la zone d'étude.

La préparation des éprouvettes et le principe de la technique de microextensométrie sont détaillées respectivement dans les paragraphes I et IV.

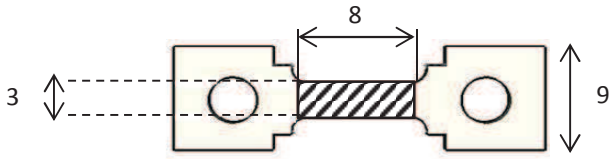
III.1 Plan d'expériences et préparation des éprouvettes

L'ensemble des essais de corrosion sous contrainte réalisés dans le cadre de cette étude sont des essais de traction lente en milieu primaire REP simulé. La vitesse de déformation a été fixée à $2.10^{-7}s^{-1}$, soit 3 à 4 ordres de grandeur inférieurs à celle d'un essai de traction standard. Ces vitesses de déformation sont classiques pour des études d'amorçage en corrosion sous contrainte du fait de la cinétique de l'endommagement étudié [Andresen 2012].

- Prélèvement des éprouvettes

Les éprouvettes de traction ont été prélevées par électroérosion à partir des plaques irradiées au MIBL à 5 et 10 dpa (cf. **chapitre II**). Afin d'optimiser la proportion de surface irradiée pour la réalisation de nos essais de CSC, deux géométries d'éprouvette ont été retenues. Les schémas correspondants sont présentés sur la **figure III.1.**

Géométrie 1



Géométrie 2

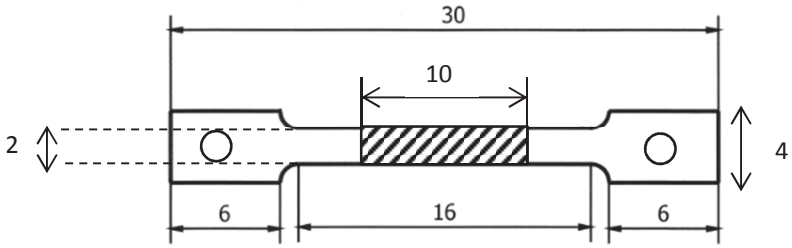


Figure III.1 : Géométries des éprouvettes utilisées pour les essais de traction lente. La zone hachurée représente la partie irradiée de l'éprouvette. Pour la deuxième géométrie, deux zones non irradiées de 3 x 2 mm² chacune encadrent la partie irradiée.

La surface de la zone irradiée de 10x18 mm^2 est fixée par le montage utilisé au MIBL. Cette contrainte doit être prise en compte dans le plan de découpe des éprouvettes. La seconde géométrie offre l'avantage de maximiser le nombre d'éprouvettes à prélever par plaque, suivant le plan exposé sur la **figure III.2**.

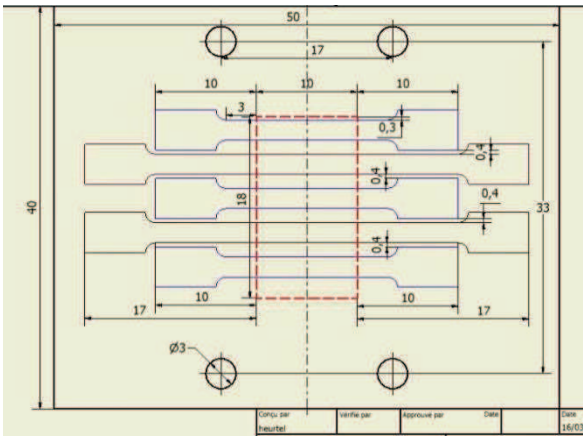


Figure III.2 : Plan de découpe des éprouvettes – la zone irradiée de la plaque est symbolisée par le rectangle rouge. Les éprouvettes bleues correspondent à la géométrie 2. Les éprouvettes plus longues (en noir sur le schéma) n'ont pas été utilisées dans cette étude.

Les éprouvettes A et B, issues d'une première génération de plaque irradiée, ont été découpées suivant la géométrie n°1. La direction de traction est parallèle à la direction de laminage de la plaque.
En revanche, les éprouvettes nommées respectivement C, D et E, issues d'une seconde génération de plaque irradiée, ont été prélevées suivant la géométrie n°2. Pour celles-ci, la direction de traction a été choisie perpendiculaire à la direction de laminage.

L'utilisation des protons ne nous permet pas d'irradier la totalité de l'épaisseur de la plaque d'acier de 1 mm. Pour une énergie de faisceau de 2MeV, seuls les 20 premiers micromètres sont affectés par l'irradiation (cf. **chapitre II**). Nous rappelons que l'épaisseur irradiée est indépendante de la dose.

Pour une éprouvette dont la zone utile est de 16x2x1 mm^3 (éprouvettes C, D et E), la partie irradiée représente donc 1,25% du volume total et 62,5% d'une des deux « surfaces » de la zone utile des éprouvettes testées (**figure III.3**).
Pour une éprouvette dont la zone utile est de 8x3x1 mm^3 (éprouvettes A et B), la partie irradiée représente 2% du volume total et 100% d'une des deux « surfaces » de la zone utile des éprouvettes testées.

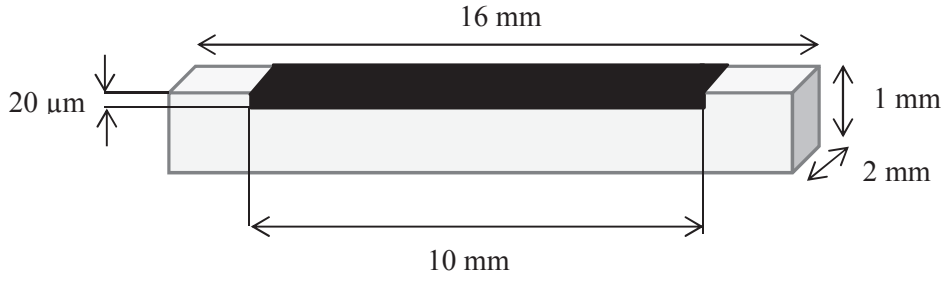


Figure III.3 : Dimensions de la zone utile des éprouvettes C, D et E. La zone irradiée est représentée en noire.

Deux types de chargement ont été retenus pour ces essais : un chargement monotone et un chargement dit « séquentiel », *i.e.* avec chargements et déchargements successifs pour suivre sur une même éprouvette l'évolution de la fissuration avec l'augmentation de la déformation appliquée.
Le **tableau III.1** ci-dessous présente la matrice expérimentale mise en place pour cette étude.

Eprouvette	Dose (dpa)	Chargement	EBSD	Microgrilles	Taux de déformation total
A	5	Monotone	Non	Non	10%
B	10	Monotone	Non	Non	10%
C	5	Monotone	Oui	Oui	5%
D	5	Monotone	Oui	Oui	2%
E	5	Séquentiel	Oui*	Oui*	1% puis 5% puis 10%

Tableau III.1 : Matrice expérimentale (zone non irradiée incluse)*

Les taux de déformation indiqués pour l'essai séquentiel (éprouvette E) sont les taux de déformation macroscopique vus par l'éprouvette à la fin de chacune des séquences, *i.e.* l'éprouvette à la fin de la troisième et dernière séquence a donc été déformée de 10% au total.
Les taux de déformation macroscopique des essais C, D et E ont été suivis en cours d'essai *via* le déplacement de traverse puis mesurés après essai. Les mesures sont basées sur l'évolution de la distance entre des marques de microdureté situées aux extrémités de la zone utile. Elles ont été effectuées grâce à la platine micrométrique du microduromètre. La déformation macroscopique de la dernière étape de l'essai E (10%) n'a pu être vérifiée car du fait de la forte déformation et oxydation du matériau les marques de microdureté n'étaient malheureusement plus visibles.

Les éprouvettes C, D et E ont été équipées de microgrilles préalablement aux essais afin de pouvoir évaluer l'hétérogénéité des champs de déformation. Nous détaillerons par la suite la préparation de ces éprouvettes.

- Cartographies EBSD

Les données microstructurales associées au matériau sont corrélées aux champs de déformation, mesurés à l'échelle locale. Ces données sont obtenues grâce à des cartographies EBSD, réalisées sur une partie des zones utiles des éprouvettes C, D et E. Les cartographies ont été effectuées sur un MEB LEO 1450 VP. Le logiciel d'acquisition et de traitement des données est le logiciel OIM^{TM}.
Près de 6 mm^2 sur chaque éprouvette ont ainsi été cartographiés par zones de 1mm x 1mm (soit 6 zones), avec un pas de 2,5 µm. Pour rappel, la taille moyenne des grains est de 40 µm. Sur l'éprouvette E, en plus des 6 mm^2 de la zone irradiée, nous avons également cartographié suivant le même principe 2 mm^2 de la zone non irradiée.

- Dépôt de microgrilles et prises d'images de référence

La technique de corrélation d'images ou DIC (Digital Image Correlation) est basée sur la reconnaissance de points homologues entre deux images représentant deux configurations de la même

scène acquises à des moments différents. Cette technique nécessite un marquage suffisamment contrasté pour pouvoir différencier les points du substrat [Doumalin 2000]. Ce marquage peut être naturellement présent ou déposé artificiellement sur la surface. Le principe de la corrélation d'images sera détaillé au paragraphe III.4.2.
Nous avons choisi ici de déposer des microgrilles d'or par lithographie électronique. L'or est un métal inerte dans l'eau à 350°C et le contraste chimique entre ce métal (N° atomique : 79) et l'acier (N° atomique du Fe : 26) est excellent, ce qui en fait une solution de choix vis-à-vis du contraste en niveau de gris recherché pour des observations réalisées au MEB en électrons rétrodiffusés. Enfin, c'est un métal ductile qui épousera parfaitement la déformation du matériau étudié sans la gêner.

La lithographie électronique est un procédé qui revient à dessiner sur une résine électro-sensible, préalablement appliquée sur le matériau, le motif choisi via un faisceau électronique, en l'occurrence celui d'un MEB. Une fois le motif tracé, la dissolution de la résine irradiée permet de mettre localement la surface du substrat à nu. Cette surface est ensuite métallisée avec le métal sélectionné (Au, W, Pt, etc..) puis le restant de résine dissous. Seul le métal directement déposé sur le matériau (motif tracé par le gravage initial de la résine) reste présent à la fin de cette étape [Allais 1995].
Dans ce travail, nous avons utilisé comme résine du polyméthacrylate de méthyle (PMMA), appliquée sous forme de couche mince par centrifugation. Les éprouvettes sont ensuite placées dans une étuve à 130°C pendant 30 min pour assurer la polymérisation du film. La lithographie a été effectuée avec un MEB Philips XL40 au Laboratoire de Mécanique des Solides (LMS – Ecole Polytechnique, Palaiseau – France). Le courant de sonde a été déterminé expérimentalement et fixé à 1 nA. La métallisation à l'or fut ensuite effectuée en deux temps : d'abord par pulvérisation cathodique avec un dépôt de 0,7 nm pour assurer une bonne adhérence du dépôt sur le substrat, puis par évaporation sous vide pour former une couche de 12 nm qui permet une bonne tenue des grilles.
Un schéma récapitulatif est proposé sur la **figure III.4**.

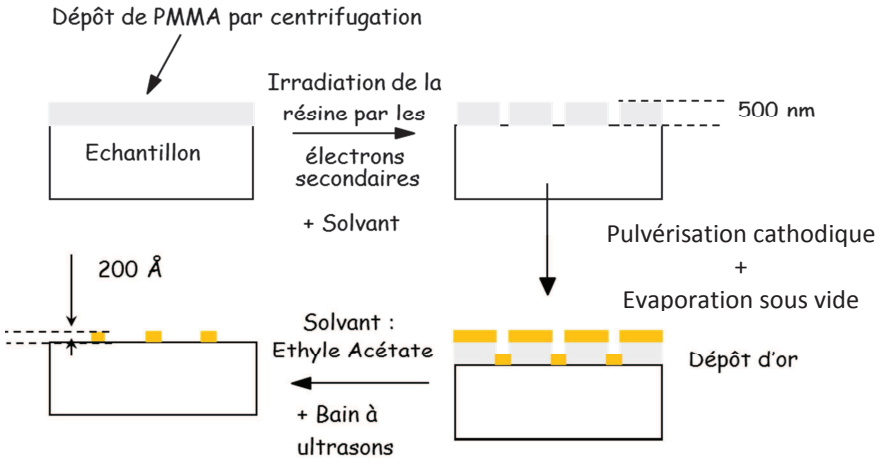


Figure III.4 : Schéma de principe de la microlithographie électronique [Doumalin 2000]

Nous avons fixé le pas de la grille à 4 µm, soit 1/10ème de la taille de grains moyenne. Nous accèderons donc à des informations sur les déformations intragranulaires puisqu'il faut environ une centaine de points pour mailler un grain. L'épaisseur des barreaux est de 300 nm. La taille d'une grille individuelle étant de 470 x 470 µm², quatre grilles sont donc nécessaires pour couvrir une « zone EBSD » de 1 mm x 1 mm en assurant des zones de recouvrement soit un total de 24 grilles pour la zone globale de 6 mm^2.

Une fois déposée, chaque grille est prise en photo à forte résolution grâce à un MEB-FEG FEI Quanta 600. Un minimum de 3 pixels par barreau de grille, soit 1 pixel pour 100 nm, est requis pour avoir une précision suffisante sur la position du barreau lors de l'étape de corrélation d'images [Doumalin 2000] (**figure III.5**). Ces images sont qualifiées par la suite d'images de « référence » en opposition aux images « post-essai » prises pour les mêmes zones et avec le même équipement après l'essai de CSC.

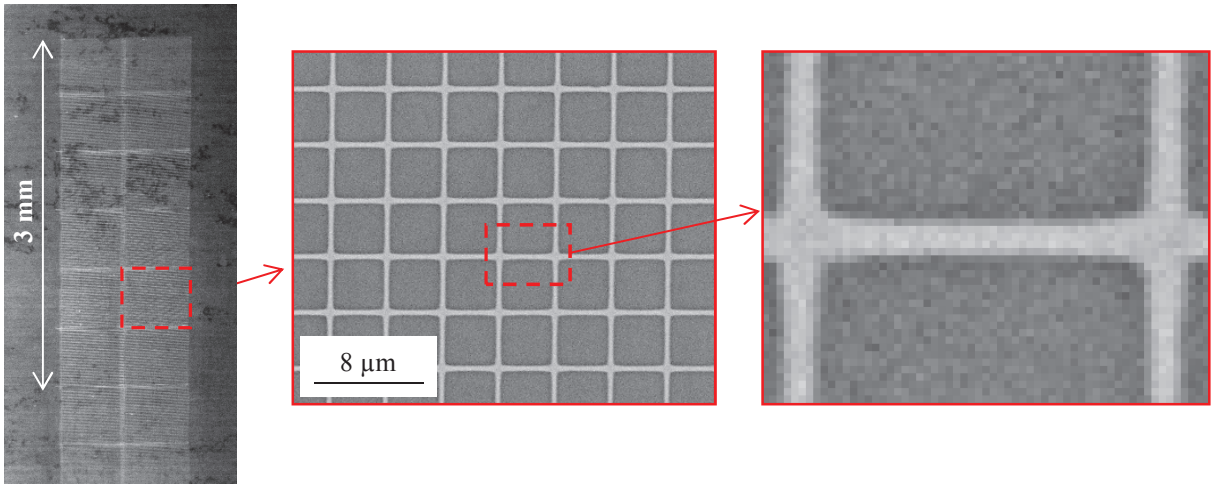


Figure III.5 : Exemple de grilles déposées par microlithographie électronique. La taille des barreaux est de 300 nm et le pas de grille de 4 µm

Bien que des dépôts d'or aient déjà été employés avec succès dans d'autres travaux en milieu primaire REP et à cette température [Clair 2011, Karlsen 2010], nous avons constaté une dégradation des grilles par « globulisation » de l'or (**figure III.6**) à la suite d'un premier essai. Des tests de dépôt de tungstène, plus résistant en température, ne se sont pas révélés plus concluants. Pour plus de renseignements, le lecteur pourra se reporter à l'**annexe E**.

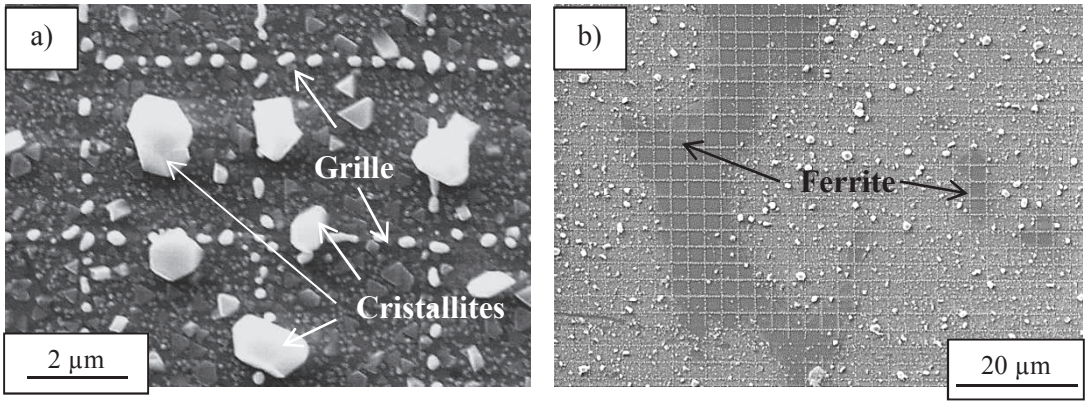


Figure III.6 : Dégradation des grilles d'or après exposition en milieu primaire REP à 350°C pendant environ 210h – les micrographies sont volontairement très contrastées pour faire apparaître (a) la globulisation de l'or et (b) la différence d'oxydation de la ferrite

Ce constat nous a amené à modifier sensiblement notre processus de préparation car la présence de cristallites en surface après essais, associée à la dégradation de la grille, conduisent à de fortes différences de contraste entre les images de « références » et les images « post-essai ». Ces

modifications de contraste ne nous permettaient donc pas d'assurer la reconnaissance des points homologues, étape essentielle de la corrélation.
Suite à cela, nous avons donc mis en place une étape dite de « préoxydation » qui consiste en un premier passage de l'éprouvette en milieu primaire et en température (hors sollicitation mécanique) pendant une à deux semaines. Cette première étape nous permet d'obtenir, avant l'essai de CSC proprement dit, à la fois la globulisation de l'or mais aussi le dépôt des cristallites d'oxyde riches en Fe et en Ni en surface. Ces deux paramètres n'étant que très peu modifiés lors de la remise en milieu de l'éprouvette (pas de dissolution des cristallites et cinétiques de globulisation de l'or et de croissance des cristallites faibles), cette opération nous offre la possibilité d'acquérir des images de référence, après la préoxydation, suffisamment semblables aux images post-essai pour réaliser la corrélation dans de bonnes conditions.
La présence de cristallites procure par ailleurs l'avantage d'un double marquage en surface (grille + cristallites), hormis pour les 3% de ferrite qui ne présentent que très peu de cristallites (**figure III.6 b)**).

Nota : La taille des zones cartographiées en EBSD ainsi que le nombre de grilles déposées ont été choisis volontairement plus grands que ce qui était nécessaire à l'étude de notre surface élémentaire représentative, ceci afin de compenser les éventuelles dérives des platines des deux MEB utilisés ou une dégradation locale de la grille. L'estimation de la surface élémentaire représentative sera discutée au paragraphe III.3.1 a).

III.2 Mise en place et suivi des essais de corrosion sous contrainte

Une fois préparées, les éprouvettes sont testées en autoclave en milieu primaire simulé REP au Centre Technique du Creusot (Areva NP – France). Le même autoclave a été utilisé pour l'ensemble des essais. Le milieu primaire simulé est composé d'eau désaérée maintenue en phase liquide à 350°C et 155 bar à laquelle sont ajoutés 0,3 bar d'hydrogène, 2 mg/L de lithium sous forme de lithine et 1200 mg/L de bore sous forme d'acide borique. Le montage est présenté sur la **figure III.7**. La température, la pression, la force et l'allongement sont mesurés et enregistrés toutes les 30 s. Une sonde à hydrogène peut être ajoutée afin de vérifier en continu la teneur en hydrogène du milieu.

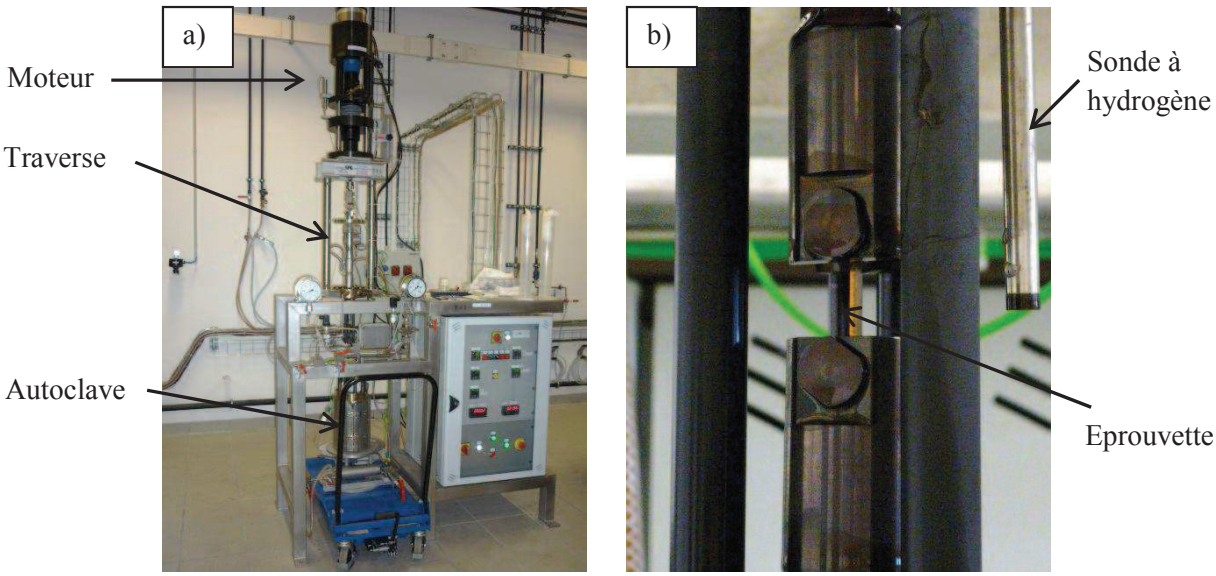


Figure III.7 : a) Machine de traction et autoclave, b) Système de maintien de l'éprouvette

L'éprouvette est montée sur la ligne d'amarrage en laissant volontairement un jeu pour rattraper les effets associés à la différence de coefficient de dilatation thermique entre l'éprouvette et les matériaux constitutifs de la ligne et contrôler le démarrage de la mise sous tension de l'échantillon.
Pour s'assurer de l'étanchéité de l'autoclave avant l'essai, celui-ci est mis sous pression à 100 bar avec de l'argon. L'étanchéité est considérée correcte si la pression ne chute pas de plus de 10 bar en 4 heures. Une fois l'étanchéité vérifiée, un bullage à l'argon est réalisé pendant 12 heures à une température de 120°C afin de désaérer le milieu. Le taux d'oxygène dissous est ensuite mesuré. Si la mesure est satisfaisante, la température est augmentée jusqu'à atteindre 350°C. Lorsque la température et la pression sont stabilisées, l'essai démarre. La récupération du jeu se fait en quelques jours.

III.3 Caractérisation des réseaux de fissures

Les essais de traction lente sont des essais particulièrement sévères et des fissures ont pu être observées en surface dès le premier pourcent de déformation macroscopique appliquée. Afin d'identifier les caractéristiques de ces réseaux de fissures, nous avons choisi de développer une méthode statistique s'appuyant sur l'analyse d'images. La première étape de cette méthode a consisté à définir les dimensions de la surface élémentaire représentative vis-à-vis du comportement à la fissuration afin de délimiter la taille de la zone d'étude qu'il faut prendre en considération pour avoir une vision statistique de l'influence de paramètres tels que la dose d'irradiation, le taux de déformation macroscopique ou encore la nature du trajet de chargement sur la sensibilité de l'acier 304L à l'IASCC en milieu REP.

III.3.1 Méthodologie

III.3.1 a) Estimation de la surface élémentaire représentative

Préalablement à l'analyse des réseaux de fissures, nous avons voulu déterminer les dimensions de la surface élémentaire représentative (SER) du matériau d'étude dans nos conditions d'essais. Les zones utiles des éprouvettes A et B, irradiées à 5 et 10 dpa puis déformées jusqu'à 10%, ont été reconstituées intégralement à partir d'images acquises en microscopie optique. La **figure III.8** en est un exemple. Chaque image a été prise de façon à assurer une zone de recouvrement avec les images voisines. Au total près de 900 micrographies ont ainsi été nécessaires pour reconstituer chaque zone. De cette façon, les 24 mm^2 de la zone utile de chacune des deux éprouvettes ont été reproduits sur une échelle de quelques mètres.

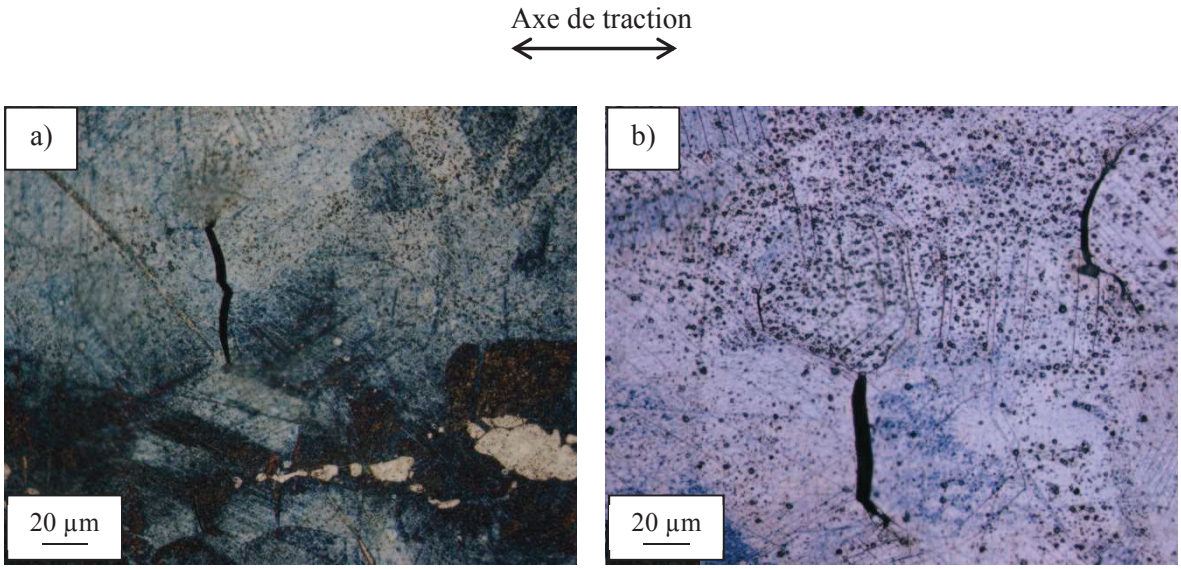
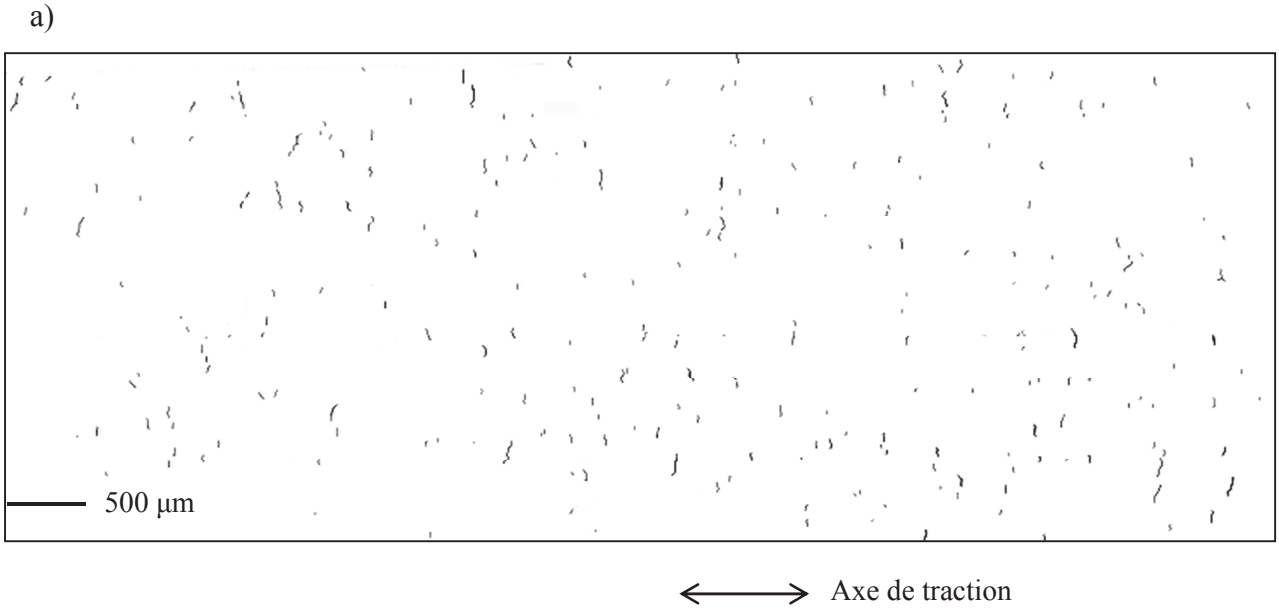


Figure III.8 : Exemples d'images de microscopie optique utilisées pour déterminer la SER du matériau:(a) éprouvette A, 5 dpa, 10% de déformation, (b) éprouvette B, 10 dpa, 10% de déformation

Cette reconstitution a permis un seuillage visuel, où chaque fissure a été repérée puis décalquée. Ces calques ont ensuite été scannés pour reformer numériquement les zones utiles seuillées. L'ensemble obtenu pour ces deux échantillons est reporté sur la **figure III.9**.

Les caractéristiques de ces fissures ont été estimées grâce à un programme Matlab® d'analyse d'images, développé au Centre des Matériaux. Ce programme permet notamment de calculer l'ouverture (largeur), la longueur (projection) et l'orientation des fissures par rapport à l'axe de traction à partir des images seuillées prises sur l'ensemble de la zone.



b)

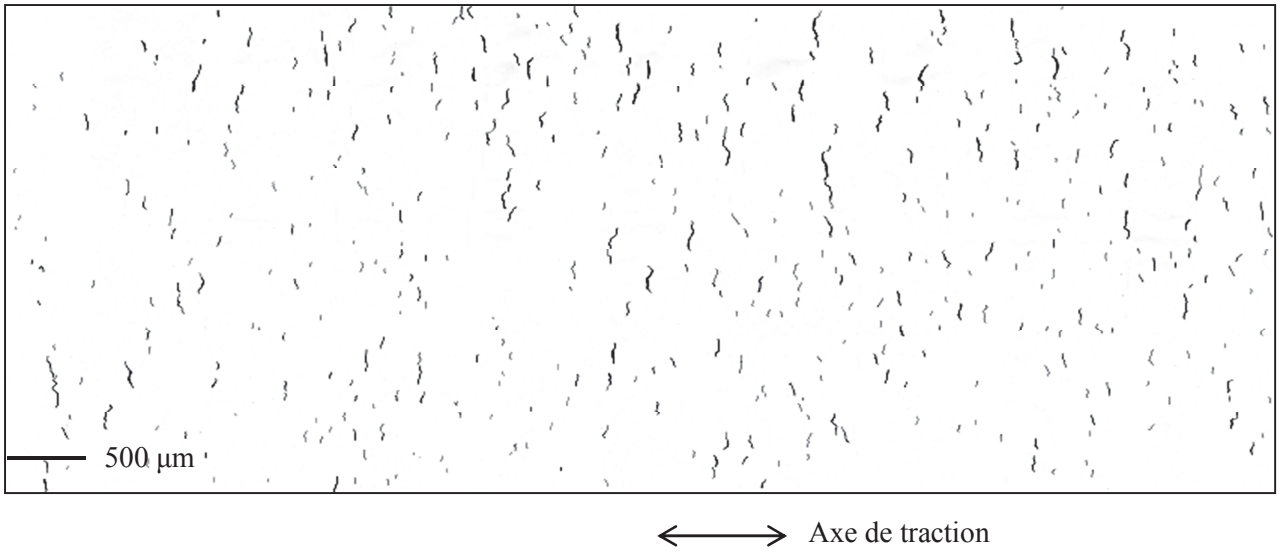


Figure III.9 : Reconstitutions seuillées des zones utiles à partir des images de microscopie optique : (a) éprouvette A, 5 dpa 10% de déformation imposée et (b) éprouvette B, 10 dpa, 10% de déformation imposée. Chaque ligne représente une fissure.

En plus de ces paramètres, nous avons également déterminé le pas de fissuration, en comptant statistiquement le nombre de fissures interceptant des lignes perpendiculaires à celles-ci et espacées régulièrement sur toute la largeur de la zone utile. L'espacement de ces lignes a été fixé à 30 µm, distance qui limite le risque de comptabiliser plusieurs fois la même fissure. L'ensemble des résultats est présenté dans le **tableau III.2**.

Le pas de fissuration a été estimé à une centaine de micromètres pour l'éprouvette A (5 dpa et 10% de déformation) et une quarantaine de micromètres pour l'éprouvette B (10 dpa et 10% de déformation). La densité linéique a été calculée comme étant le rapport entre la longueur totale de fissure (en mm) et la surface totale de la zone étudiée (en mm^2). L'ensemble des résultats concernant le réseau de fissures des éprouvettes A et B sera commenté ultérieurement.

	A ***(5 dpa – 10% de déformation)***	**B** ***(10dpa – 10% de déformation)***
Densité linéique (mm^{-1})	0,57	1,5
Longueur moyenne (µm)	52	79
Ouverture moyenne (µm)	12	13
Pas de fissuration (µm)	122	41
Orientation / axe de traction (°)	77	78

Tableau III.2 : Caractéristiques du réseau de fissuration des éprouvettes A et B

Les essais de CSC qui ont suivi ont été menés sur des éprouvettes irradiées à 5 dpa et déformées à des taux inférieurs ou égaux à 10% (**tableau III.1**). Nous pouvons donc logiquement supposer que le pas

de fissuration pour celles-ci sera supérieur ou égal à celui mesuré pour l'éprouvette A. En se basant sur une surface d'étude de 1mm^2, soit près de 9 fois le pas de fissuration de l'éprouvette A, nous estimons que le réseau de fissuration pourra être correctement décrit pour chacun des essais suivants. De plus, cette surface, carrée, s'accorde bien à la taille et la géométrie des microgrilles déposées.

Si le microscope optique constitue ici un outil intéressant pour cette première approche, les grandissements accessibles et la résolution de l'appareil sont insuffisants pour caractériser de manière fiable des fissures d'une taille inférieure à 30 µm. La question de la résolution nécessaire et donc de l'outil à choisir pour décrire correctement les réseaux de fissures doit être posée. En se basant sur notre surface élémentaire de 1 mm^2, nous avons pu étudier à plus fort grandissement le réseau de chacune des éprouvettes mentionnées dans le **tableau III.1** par microscopie électronique à balayage. La méthodologie mise en œuvre est décrite ci-dessous et la comparaison entre les résultats obtenus par MEB et microscopie optique détaillée.

III.3.1 b) Protocole d'analyse des réseaux de fissures par microscopie électronique à balayage

Une zone de 1mm^2 a systématiquement été imagée à un grandissement de x400 avec une résolution de 100 nm. Deux images, l'une en électrons secondaires et l'autre en électrons rétrodiffusés ont été acquises simultanément (**figure III.10**).

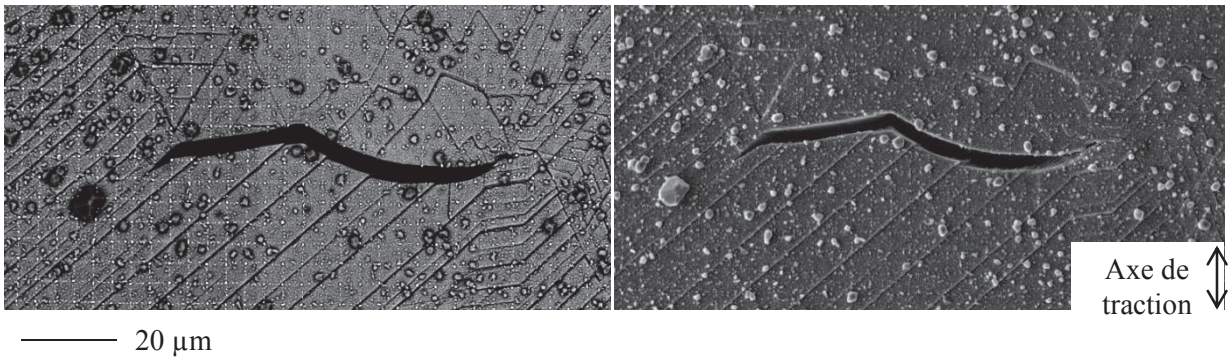


Figure III.10 : Fissure intergranulaire présente en surface de l'éprouvette D (5 dpa, 2% de déformation) imagée (a) en électrons rétrodiffusés et (b) en électrons secondaires.

Les images prises en électrons rétrodiffusés présentent l'avantage d'un contraste marqué entre fissures et matrice. La reconnaissance des fissures s'effectue ainsi par seuillage en niveau de gris à l'aide du logiciel Photoshop®. Les images en électrons secondaires permettent un double contrôle visuel, notamment pour différencier le marquage prononcé d'un joint d'une réelle ouverture. Ces dernières nous permettent également d'appréhender le relief et ainsi différencier les bandes de déformation émergentes visibles en surface des grains et les fissures. La **figure III.11** illustre ces remarques.

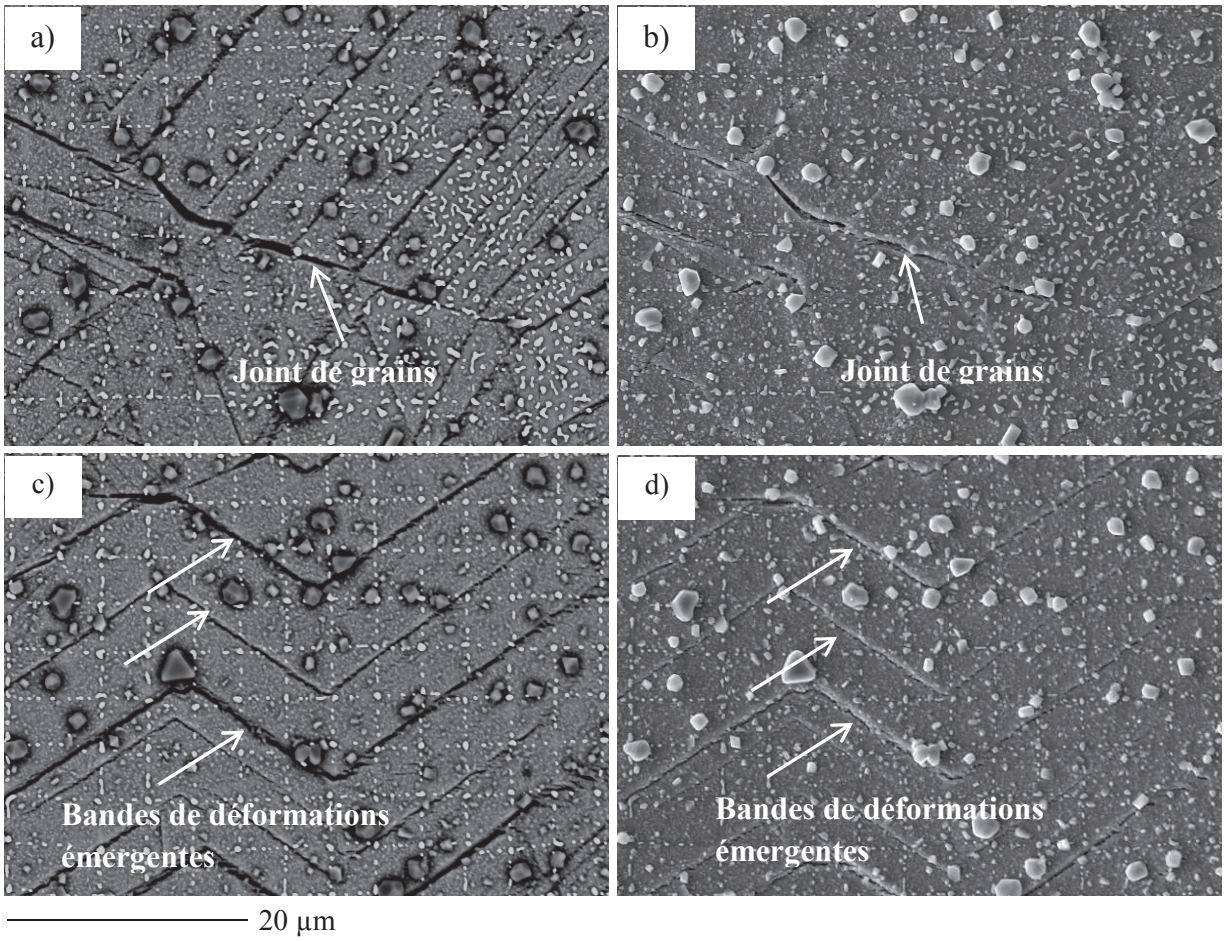


Figure III.11 : Exemple d'images (a) et (c) en électrons rétrodiffusés, (b) et (d) en électrons secondaires de deux zones de la surface de l'éprouvette E (5 dpa) après 10% de déformation

Une fois le seuillage effectué, le programme Matlab® mentionné ci-dessus nous fournit les informations souhaitées sur leurs caractéristiques morphologiques (longueur, largeur, orientation vis-à-vis de l'axe de traction).

III.3.2 c) Comparaison MO/MEB

Le **tableau III. 3** reprend les résultats comparatifs pour 5 et 10 dpa entre ces deux systèmes d'imagerie. Les résultats obtenus via l'analyse MEB diffèrent sensiblement de ceux obtenus par microscopie optique. Nous rappelons que la surface analysée est de 1mm^2 au MEB et 24 mm^2 en optique.

	5 dpa - 10% (éprouvette A)		10 dpa - 10% (éprouvette B)	
	MO (24 mm^2)	MEB (1 mm^2)	MO (24 mm^2)	MEB (1 mm^2)
Densité de fissures (mm^{-2})	10	121	19	126
Longueur moyenne (µm)	52	16	79	35
Ouverture moyenne (µm)	-	0,6	-	1,4

Tableau III. 3 : Comparaison de la densité surfacique et de la longueur moyenne de fissures mesurées pour les éprouvettes A et B en fonction de l'outil de caractérisation utilisé

Le nombre de fissures détectées est plus élevé au MEB qu'en microscopie optique avec un écart de densité de 111 fissures/mm^2 pour l'éprouvette A et 107 fissures/mm^2 pour l'éprouvette B. La longueur moyenne de ces fissures est quant à elle inférieure d'un facteur 2 à 3 lorsqu'elle est mesurée à partir des images MEB. En plus de la longueur moyenne, il est intéressant de comparer la distribution des densités de fissures par longueur telles que détectées au moyen de ces deux outils. La distribution pour l'éprouvette A est représentée sur la **figure III.12**.

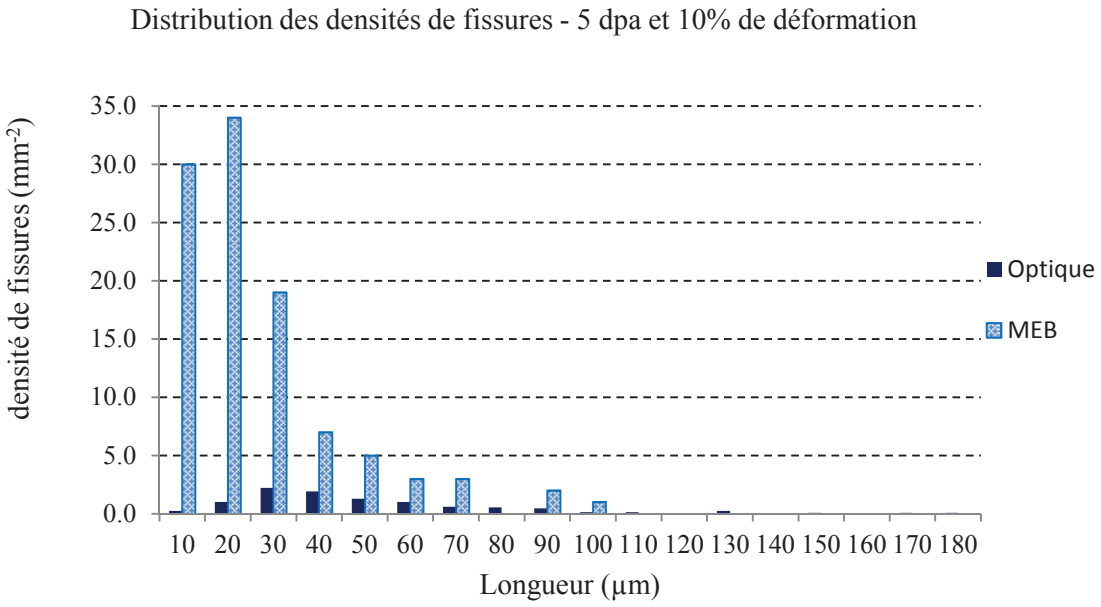


Figure III.12 : Distribution des densités de fissures détectées par longueur sur l'éprouvette A en fonction de l'outil de détection

La densité de fissures détectées est plus élevée au MEB et cela est vrai pour toutes les longueurs. Cependant, nous constatons que cet écart est plus élevé vers les petites longueurs de fissures. L'écart de densité entre les deux outils de détection est en effet d'autant plus grand que les fissures sont courtes. Cet écart est compris entre 20 et 30 fissures/mm^2 pour les longueurs de 1 à 30 µm, entre 2 à 5 fissures/ mm^2 pour les longueurs de 40 à 80 µm et est inférieur à 1 fissure/mm^2 pour les longueurs supérieures à 80 µm.

Cet écart s'explique très logiquement par le plus fort grandissement employé et la meilleure résolution du MEB, assurant ainsi une meilleure détection des plus petits objets et une meilleure précision sur la longueur des fissures.
En résumé, le nombre de fissures détectées augmente avec l'utilisation du MEB et la population supplémentaire détectée est majoritairement constituée de petites fissures, ce qui induit une longueur moyenne de fissure plus faible avec une distribution de densité décalée vers les faibles longueurs.

Nous remarquons également que ces écarts entre MEB et MO sur le nombre et la longueur de fissures comptabilisées sont aussi observés pour l'éprouvette irradiée à 10 dpa. Bien que les fissures soient plus larges et plus longues sur l'éprouvette irradiée à 10 dpa (et donc plus facilement détectables en optique), l'écart entre les deux systèmes reste considérable. La distribution des densités de fissures détectées par optique et MEB sur l'éprouvette B est représentée sur la **figure III.13**.

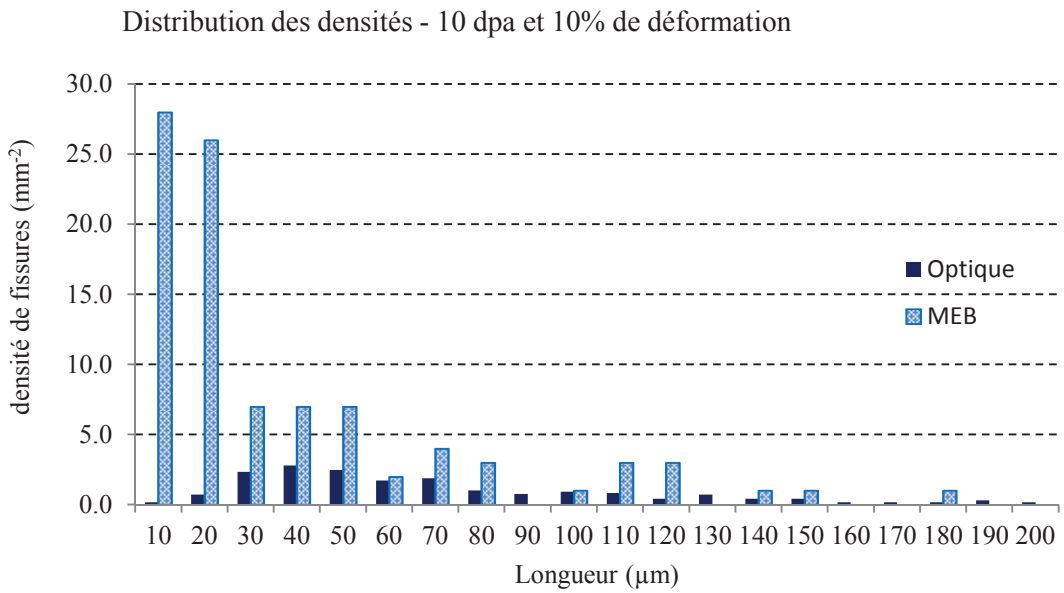


Figure III.13 : Distribution des densités de fissures détectées par longueur sur l'éprouvette B en fonction de l'outil de détection

De même que pour l'éprouvette A, les écarts de détection sont d'autant plus grands que les fissures sont petites. L'écart est compris entre 25 et 30 fissures/mm^2 pour les longueurs 10 et 20 µm ce qui est identique aux écarts constatés pour ces mêmes longueurs pour l'éprouvette A. La classe 30 µm est par contre mieux prise en compte avec un écart compris entre 2 et 5 fissures/mm^2 de 30 à 80 µm.
L'utilisation du MEB s'avère donc indispensable pour décrire au mieux le réseau de fissures sur toutes les éprouvettes.

La **figure III.14** représente la distribution des longueurs de fissures pour les éprouvettes A (5 dpa) et B (10 dpa), telle que déterminée par l'analyse MEB.

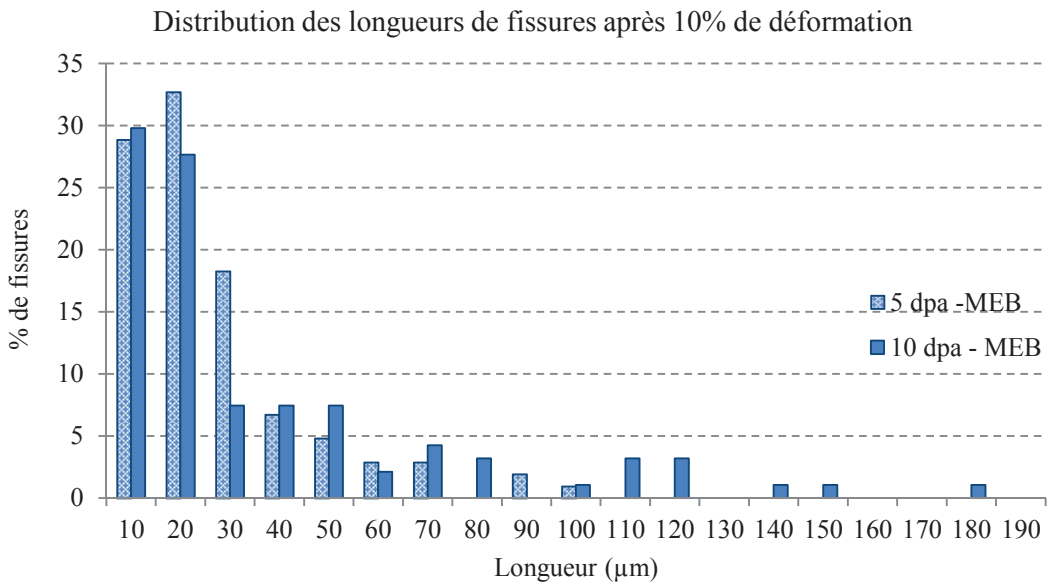


Figure III.14 : Distribution des longueurs de fissures pour 5 et 10 dpa après 10% de déformation Analyse MEB

Si la longueur moyenne des fissures est effectivement plus élevée pour le matériau irradié à 10 dpa, la distribution nous indique cependant que 60% environ des fissures se situent dans la gamme 10-20 µm quelle que soit la dose. L'influence de la dose d'irradiation sur la sensibilité de l'acier 304L à l'IASCC sera discutée plus en détail par ailleurs (§ III.3.2 b)).

En conclusion, l'utilisation du MEB nous offre la possibilité de détecter sans difficulté les petites fissures, contrairement au microscope optique. De plus, les contrastes accessibles par électrons secondaires et rétrodiffusés conduisent à une meilleure reconnaissance des fissures et ainsi à une plus grande robustesse de la méthode mise en place. Au vu des premières caractéristiques des réseaux de fissures étudiés (forte population de fissures d'une taille comprise entre 10 et 30 µm), l'utilisation du MEB s'avère nécessaire pour assurer la fiabilité de nos résultats et des conclusions qui en découlent.
La méthodologie décrite ci-dessus a donc été mise en œuvre pour déterminer quelle était l'influence du type de chargement, du taux de déformation ou encore de la dose d'irradiation sur la fissuration par IASCC d'un acier inoxydable austénitique de type 304L en milieu primaire REP. Ces résultats seront détaillés dans les paragraphes suivants.

III.3.2 Résultats

III.3.2 a) Caractéristiques générales

Comme mentionné précédemment, les essais de traction lente en milieu primaire simulé sont des essais particulièrement sévères. Des fissures ont été observées sur la totalité de nos éprouvettes.

Nous avons constaté que certaines caractéristiques de ces fissures ne sont influencées ni par les conditions de chargement ni par la dose d'irradiation. Dans cette première partie, nous allons donc

décrire toutes les caractéristiques de fissuration qui sont communes à l'ensemble des éprouvettes indépendamment de la dose, du trajet de chargement ou de la déformation macroscopique appliquée.

- Nature des fissures

Les fissures observées en surface des zones utiles irradiées de l'ensemble de nos éprouvettes sont intergranulaires. Un exemple est illustré sur la **figure III.15** par la superposition de l'image MEB d'une fissure avec la cartographie EBSD correspondante.

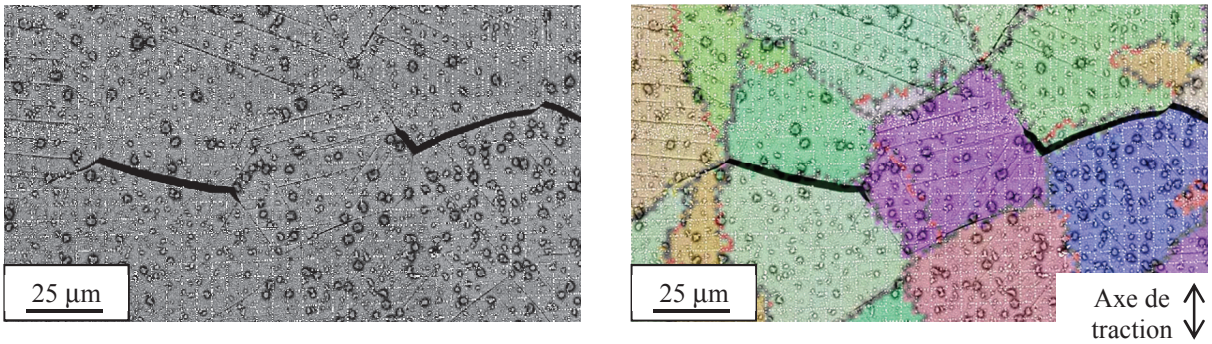


Figure III.15: Fissures intergranulaires en surface de l'éprouvette D (5 dpa) après 2% de déformation - à droite la superposition MEB/EBSD confirme leur caractère intergranulaire

- Morphologie

La grande majorité des fissures répertoriées sur les surfaces de l'ensemble des éprouvettes sont des ouvertures continues telles que celles présentées sur la **figure III.15**.
Quelques fissures affichent cependant une morphologie différente avec une discontinuité qui semble liée à l'intersection du joint de grains avec des bandes de déformation émergentes. Ces fissures ont été observées sur toutes les éprouvettes quelles que soient les conditions d'essai (**figure III.16**).

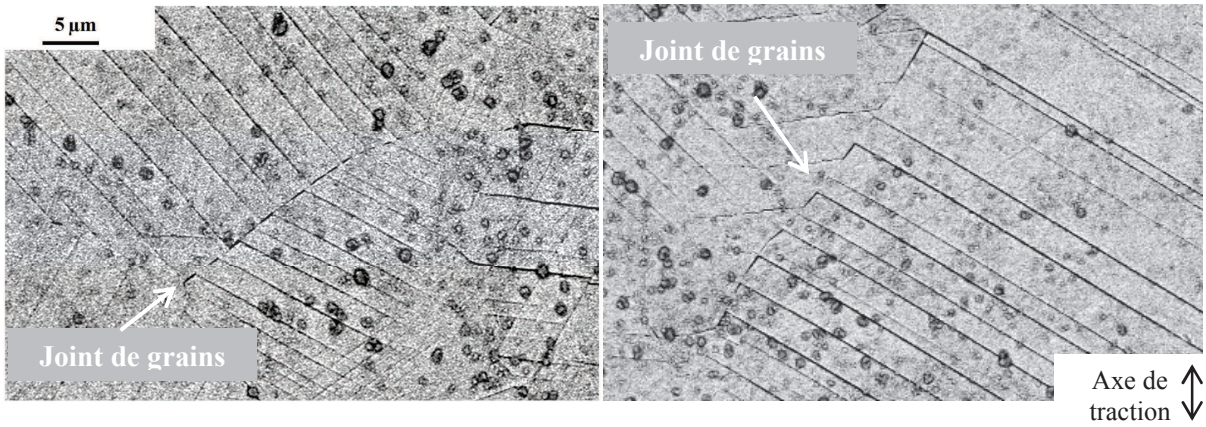


Figure III.16 : Exemples d'ouvertures discontinues présentes en surface de l'éprouvette A (5 dpa) après 10% de déformation en milieu primaire REP

Des fissures similaires ont été observées sur un acier de type 316L irradié à 7 dpa et déformé à 5% à 400°C en eau supercritique [West 2010]. Cependant, et contrairement à la situation décrite par West, cette configuration ne constitue pas la majorité des fissures détectées dans notre cas.

Dans son étude, West a également indiqué que ces fissures n'évoluaient pas en fissures continues avec l'augmentation du taux de déformation au cours d'un essai séquentiel.
La **figure III.17** montre l'évolution d'une telle fissure sur l'éprouvette E entre 1 et 5% de déformation. La fissure discontinue n'évolue pas en fissure continue malgré l'augmentation du taux de déformation, ce qui concorde avec les résultats présentés par West.
En revanche, la **figure III.18** présente un exemple de fissure discontinue évoluant en fissure continue entre les étapes 5% puis 10% de déformation de la même éprouvette. L'évolution de ces fissures discontinues n'a donc aucun caractère systématique dans nos conditions d'essai.

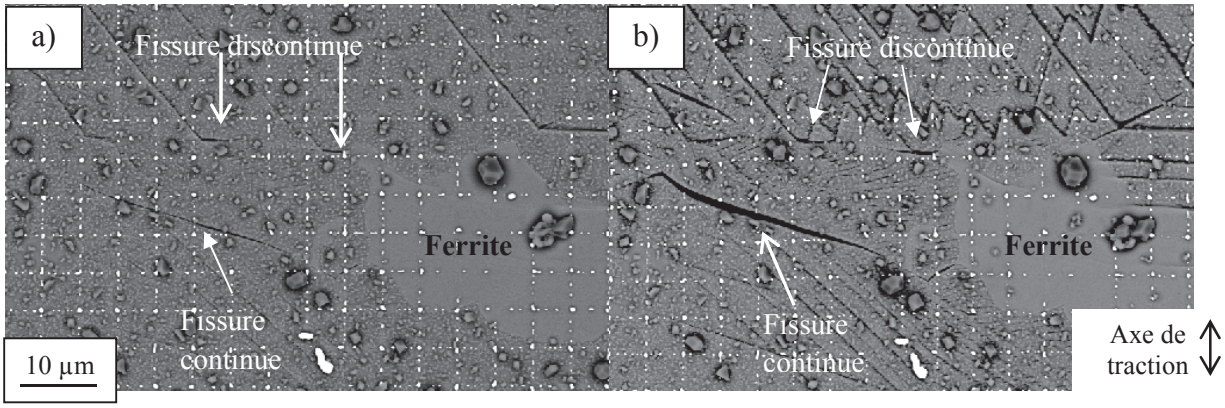


Figure III.17 : (a) Eprouvette E après 1% de déformation, (b) même zone après 5% de déformation

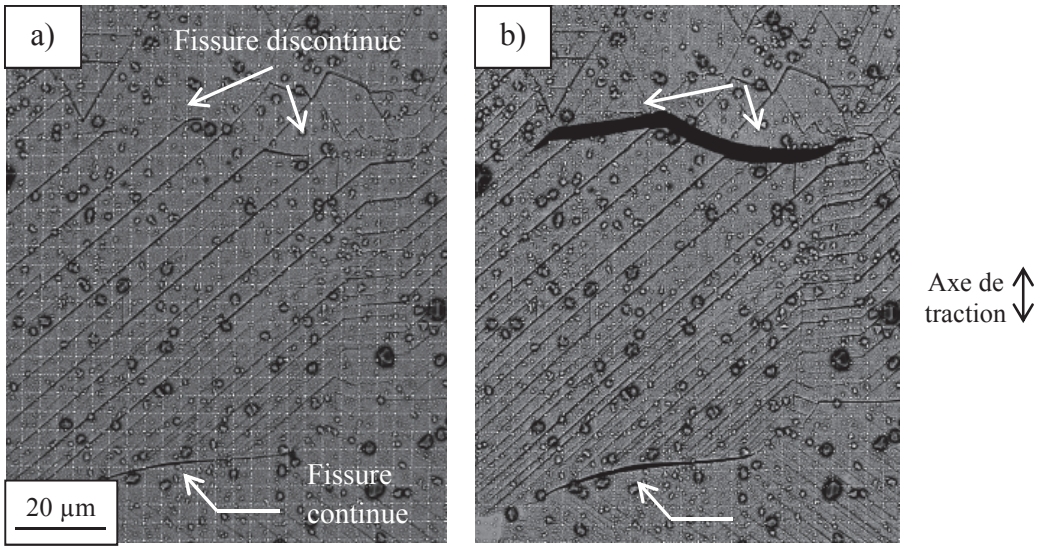


Figure III.18 : (a) Eprouvette E après 5% de déformation, (b) même zone après 10% de déformation

Au vu de leur très faible occurrence, les fissures discontinues n'ont pas été prises en considération pour l'étude statistique des réseaux de fissures détaillée ci-après.

➢ Nature des joins de grains fissurés

Dans le cas d'une fissuration intergranulaire, la nature du joint de grains est un paramètre important. Pour l'IASCC, les résultats reportés dans la littérature font état d'une résistance accrue des joints CSL et notamment des Σ3. Cette tendance est confirmée dans ce travail puisque la totalité des fissures répertoriées concernent des joints sans symétrie particulière (RHABs). Quelle que soit l'éprouvette considérée, aucun joint de faible désorientation, *i.e.* une désorientation comprise entre 10° et 15°, n'a fissuré.

➢ Orientation des fissures par rapport à l'axe de traction

L'orientation évoquée ici est définie par l'angle formé entre la projection de la fissure dans le plan d'observation et l'axe de traction. On parlera par la suite d'angle d'inclinaison. Il s'agit d'une variable topologique.
Le graphique **(figure III.19)** présente les résultats obtenus à 5 et 10% de déformation pour les essais A, B, C et E sur la distribution de ces inclinaisons.

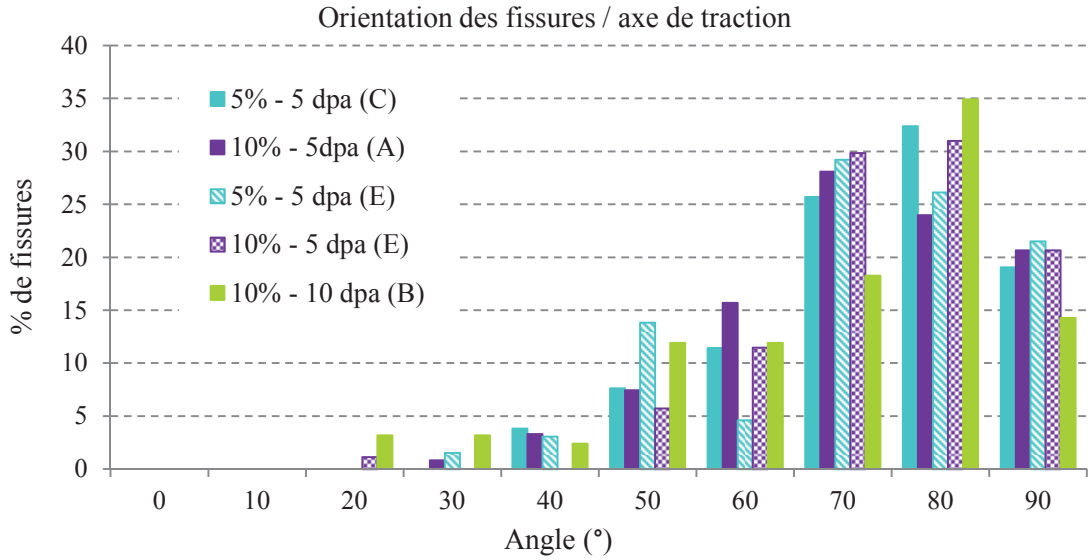


Figure III.19: Distribution des inclinaisons des fissures par rapport à l'axe de traction pour les essais A et C (monotone, 5 dpa), B (monotone, 10 dpa) et E (séquentiel, 5 dpa)

La distribution des inclinaisons est principalement centrée sur la tranche 70°/90° avec un pourcentage variant entre 70 et 80% des fissures comprises dans cette gamme quels que soient le taux de déformation, la dose ou le trajet de chargement. Les fissures sont donc majoritairement orientées quasi-perpendiculairement à la direction de sollicitation. Nous constatons néanmoins qu'entre 10 et 15% d'entre elles environ sont orientées autour de 45°, orientation qui correspond à la direction du cisaillement maximal pour une sollicitation de traction simple. Ces observations sont cohérentes avec les résultats présentés dans la littérature [West 2010, McMurtrey 2011, Fukuya 2011]. Notons toutefois que quelques fissures d'une orientation proche de la direction de sollicitation sont aussi dénombrées sur l'éprouvette irradiée à 10 dpa.

L'inclinaison du joint fissuré en surface ne nous renseigne cependant pas sur l'orientation tridimensionnelle du plan du joint en question. Pour accéder à l'information dans le volume, une coupe transverse des éprouvettes A et B a été préparée et examinée au MEB, en imagerie secondaire et rétrodiffusée ainsi qu'en EBSD. La préparation des coupes est illustrée sur la **figure III.20** et quelques résultats sont présentés sur la **figure III.21**.

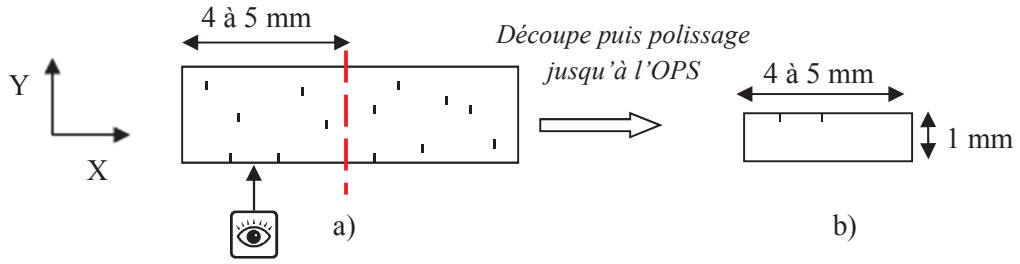
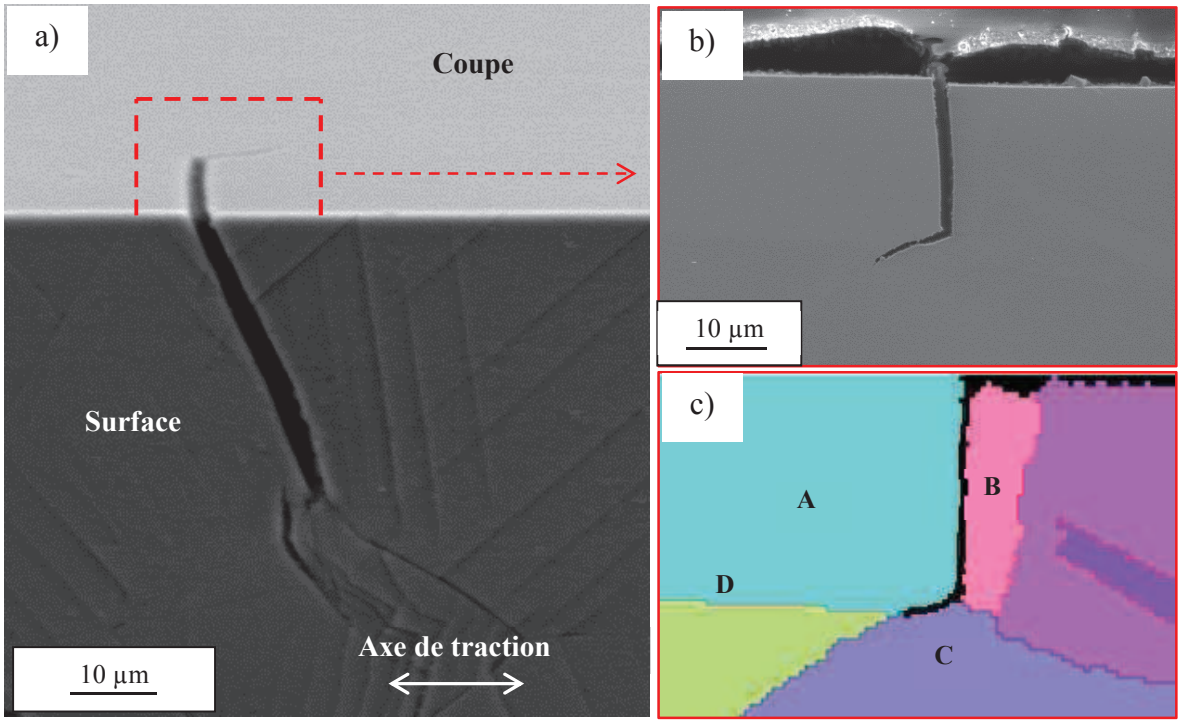


Figure III.20 : Schéma d'une coupe a) vue du dessus (plan XY), b) coupe perpendiculaire à la surface (plan XZ) – les fissures représentées sur le schéma sont indicatives



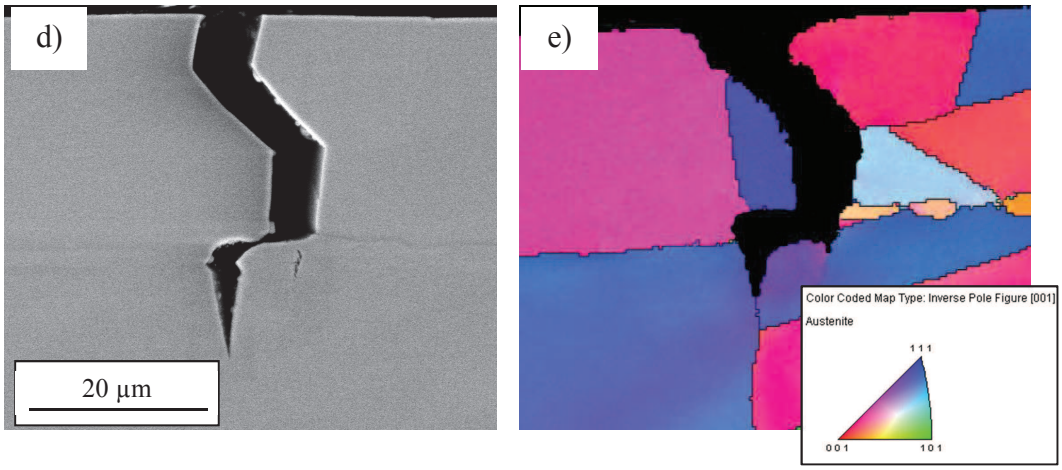


Figure III.21 : Coupes transverses - a) Observation MEB de l'arête de l'éprouvette A, (b) Observation MEB de la tranche de l'éprouvette A, (c) Figure de pôles inverse (axe normal au plan d'observation) autour de la fissure (b) de l'éprouvette A - (d) Observation MEB de la tranche de l'éprouvette B, (e) Figure de pôles inverse autour de la fissure (d) de l'éprouvette B

Le pas de mesure de l'EBSD est de 0,3 µm. Les cartographies confirment le caractère intergranulaire des fissures. De plus, nous connaissons désormais les orientations des grains adjacents à ces fissures dans le volume. Ainsi, les 15 fissures cartographiées se sont toutes propagées dans le volume le long de joints généraux.
La grande majorité des premiers joints fissurés (*i.e.* ceux situés au plus proche de la surface) possèdent un plan quasi-perpendiculaire à l'axe de traction, comme c'est le cas pour les fissures présentées sur la **figure III.21**. En revanche, la propagation de la fissure dans le volume n'est pas conditionnée par l'orientation des joints suivants. Sur la **figure III.21 c)**, nous observons que la fissure ne s'arrête pas au point triple formé par les grains A, B et C malgré l'absence de joint dont le plan est perpendiculaire à la sollicitation. Au contraire, la fissure se propage sur quelques microns sur un joint (défini par les grains A et C) dont le plan est quasiment parallèle à l'axe de traction. Bien que cela ne soit pas visible sur la **figure III.21 c)** du fait du « nettoyage » de la cartographie, la fissure se propage même sur une courte distance entre les grains D et C. De la même façon, sur les **figures III.21 d)** et **e)**, nous constatons que la propagation intergranulaire de la fissure dans le volume ne suit pas nécessairement les joints dont les plans sont les plus proches d'une inclinaison perpendiculaire à l'axe de traction.

- Influence de la ferrite résiduelle sur la fissuration

La teneur en ferrite résiduelle dans notre matériau a été estimée par EBSD à environ 3%. Elle se présente sous forme de bandes, allongées dans la direction de laminage. Les éprouvettes A et B ont été découpées de telle sorte que la direction de laminage soit parallèle à la direction de sollicitation. En coupe transverse, les bandes de ferrite sont donc perpendiculaires aux fissures (**figure III.22**). Les images 2D obtenues ne fournissent pas d'informations sur la profondeur et l'orientation des grains sous-jacents. Néanmoins nous avons pu observer que la présence de ferrite ne constituait pas nécessairement un obstacle à la propagation d'une fissure dans le volume, comme cela est visible sur la **figure III.22 c)**.

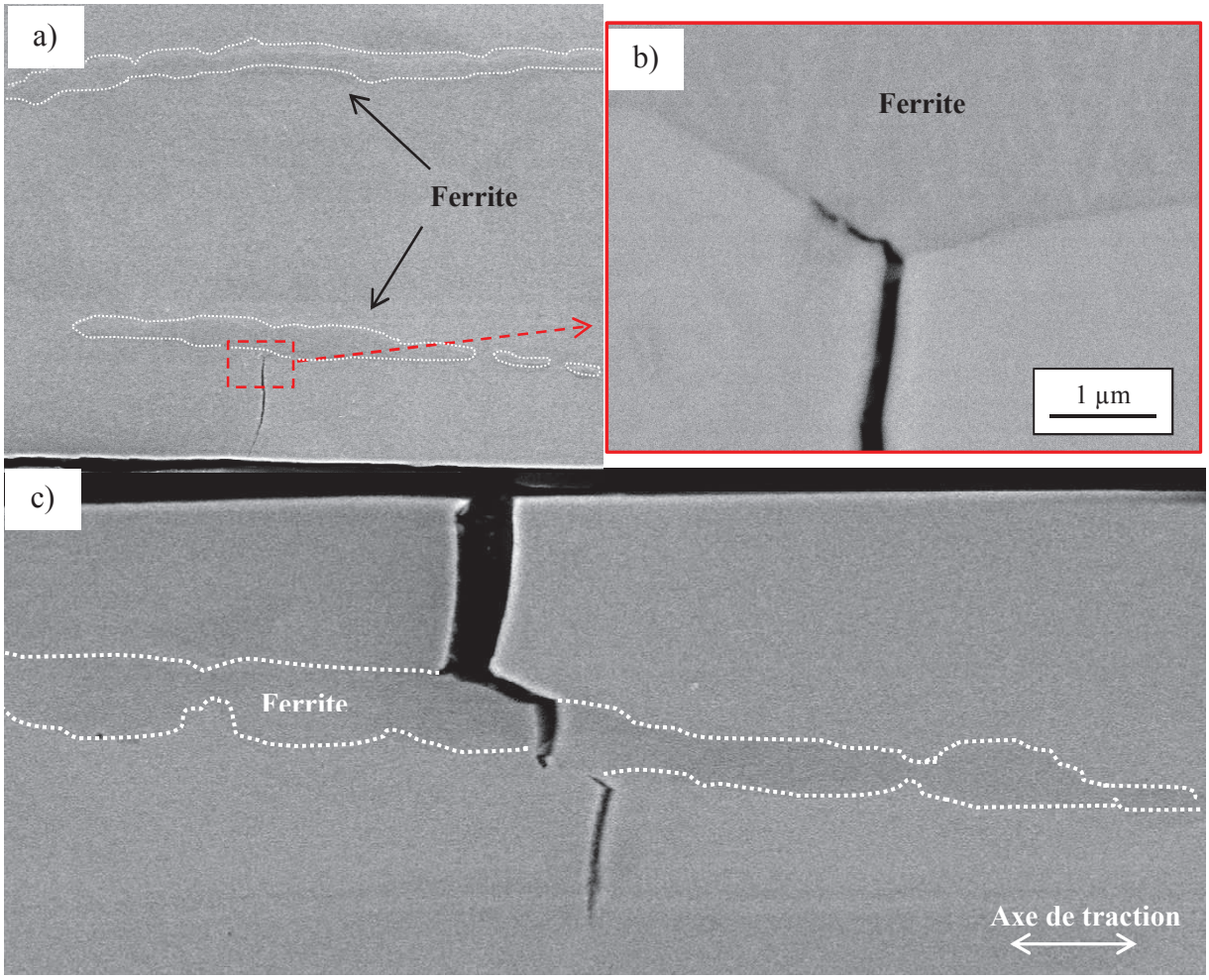


Figure III.22: Coupes transverses MEB : (a) et (b) éprouvette A, 10% de déformation et 5 dpa, (c) éprouvette B, 10% de déformation et 10 dpa

Contrairement à ce que l'on peut observer sur la **figure III.22 c)**, la fissure de la **figure III.22 b)** n'a pas traversé la bande de ferrite interceptée. Cependant, dans les deux cas nous constatons une propagation le long de l'interface austénite / ferrite. Cette propagation reste cependant limitée dans nos conditions d'essai et aucune fissure à l'interface ferrite / austénite n'a été constaté en surface des éprouvettes. De plus, bien que la présence de ferrite, plus dure que l'austénite, induise une perturbation de la matrice austénitique aux alentours des bandes de ferrite avec un écrouissage important localement, les grains austénitiques de ces zones ne sont pas apparus statistiquement plus sensibles à la fissuration.
En conclusion, la ferrite n'empêche pas la fissuration mais ne semble pas non plus la favoriser.

La ferrite résiduelle est connue pour être un site d'amorçage privilégié dans le cadre de la fissuration par fatigue [Rho 98]. En revanche, la présence de ferrite ne semble pas constituer un point de faiblesse pour la fissuration par IASCC.

- Profondeur de fissures et épaisseur irradiée

Nous avons vu précédemment que la propagation dans le volume n'était stoppée ni par la présence de point triple, ni par une orientation des joints parallèle à l'axe de traction, ni par la présence de ferrite. L'objectif ici est de confirmer ou non leur propagation au-delà de l'interface irradié / non irradié. Pour mémoire, l'épaisseur de la zone irradiée est de 20 µm. Les résultats présentés ici concernent les éprouvettes déformées à 10%, *i.e.* celles pour lesquelles la propagation au-delà de cette interface, si elle a lieu, est la plus probable.

Pour l'ensemble des éprouvettes A, B et E, certaines fissures se propagent au-delà de l'épaisseur irradiée (**figures III.23 a)**, **b)** et **c)**). La profondeur maximale obtenue pour 5 dpa après 10% de déformation (essai A) est d'environ 30 µm (**figure III.23 a)**) et celle de l'essai E est d'environ 23 µm (**figure III.23 b)**).
La profondeur maximale de chaque fissure n'est pas nécessairement observée du fait du caractère aléatoire du plan de coupe, ce qui pourrait expliquer la différence constatée, pour 5 dpa et 10% de déformation, entre l'essai (E) pour lequel la profondeur maximale mesurée est de 23 µm et l'essai (A) où elle est de 30 µm. Nous pouvons toutefois affirmer que la propagation en dehors de la zone irradiée reste très limitée pour ces deux éprouvettes. En effet, sur l'ensemble des 16 fissures analysées pour l'éprouvette A, seules 2 d'entre elles se propagent dans la partie non irradiée. De même pour l'éprouvette E, 1 seule fissure sur 16 a une profondeur excédant l'épaisseur de la zone irradiée et ce de seulement 3 µm. Ce chiffre est malgré tout à nuancer du fait des limitations de la méthode évoquées précédemment.

Indépendamment de la profondeur de la zone irradiée, nous pourrions objecter que la plupart des fissures s'arrêtent dans la zone des 20 µm car cela correspond à la longueur moyenne des joints de grains dans notre microstructure. En effet, nous avons pu constater sur les cartographies EBSD (cf. exemples **figure III.21**) que la longueur de la plupart des joints de grains fissurés observés ne dépasse pas une vingtaine de µm.
Un contre-exemple est présenté sur la **figure III.23 d)**. Sur cette micrographie prise par microscopie optique, la finition OPS a permis de révéler un grain et une fissure se propageant le long d'un de ces joints. Le joint, long de 44 µm, se prolonge largement au-delà de la zone irradiée. Pour autant la fissure de 16 µm s'est arrêtée dans cette couche. Au vu de la morphologie de la fissure tout au long du polissage, nous pouvons affirmer que le maximum de la fissure a été légèrement dépassé et que notre constat n'est pas biaisé par le caractère 2D de l'information.
Cela confirme que la pénétration des fissures dans la zone non irradiée reste faible pour les éprouvettes irradiées à 5 dpa.

Les fissures observées pour l'éprouvette B, irradiée à 10 dpa, sont plus profondes que celles observées à 5 dpa. La profondeur maximale observée est de l'ordre de 40 µm (**figure III.23c)**). Sur 14 fissures observées, 4 d'entre elles se propagent au-delà de l'interface irradié / non irradié.

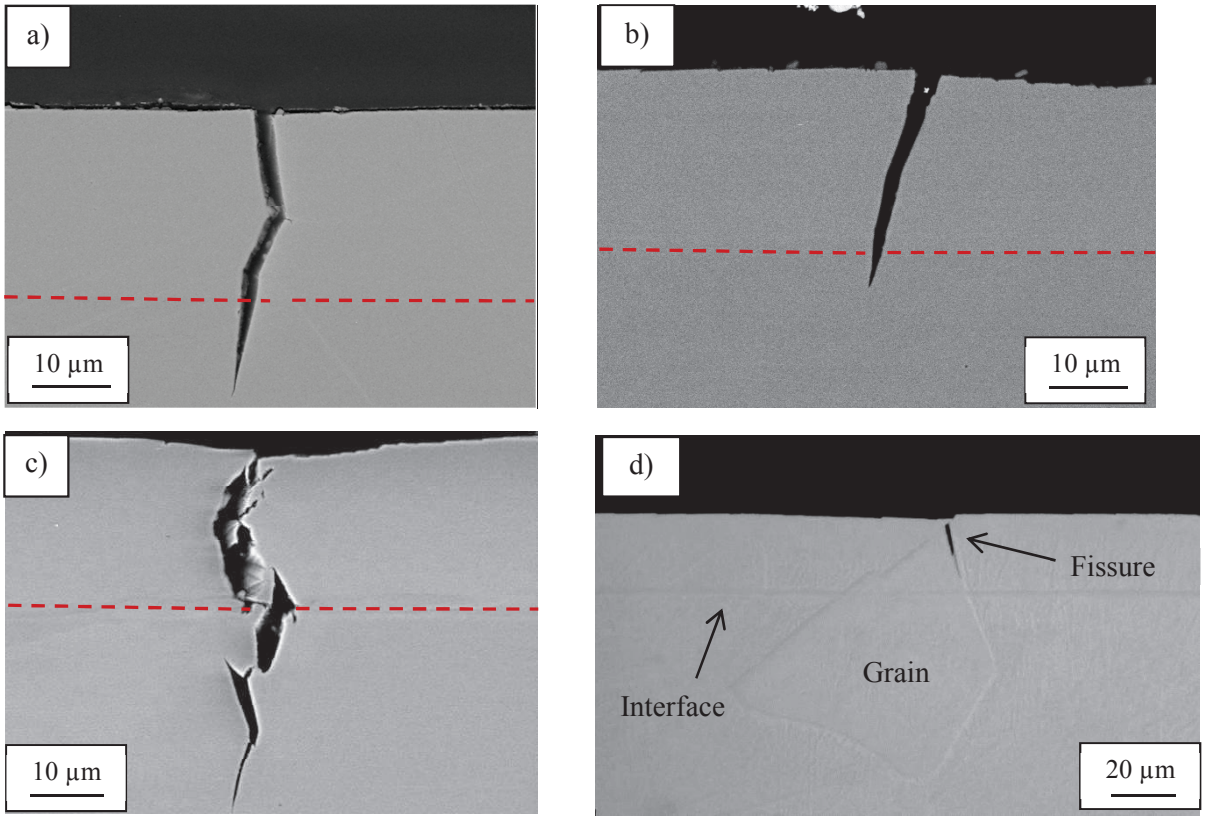


Figure III.23 : Coupes transverses (a) éprouvette A, 5dpa, 10% de déformation (monotone), (b) éprouvette E 5 dpa, 10% de déformation (pseudo-cyclique), (c) éprouvette B, 10 dpa, 10% de déformation (monotone), (d) éprouvette A, microscopie optique. L'interface irradié / non irradié est en pointillés rouges sur les images a, b et c.

En conclusion, la propagation des fissures dans le substrat non irradié est possible mais reste limitée pour les éprouvettes irradiées à 5 dpa. Elle est en revanche plus importante, en profondeur et en nombre, pour l'éprouvette la plus irradiée (10 dpa).

III.3.2 b) Influence du trajet de chargement et du taux de déformation

Nous comparons ici les résultats obtenus pour des chargements de type monotone (essais A, C et D) avec ceux obtenus pour l'essai E, de type séquentiel *i.e.* avec chargements et déchargements successifs. Ce dernier essai s'apparente donc à un pseudo-cyclage. La dose d'irradiation, 5 dpa, est identique pour tous.

La **figure III.24** présente l'évolution de la densité de fissures avec le taux de déformation appliqué pour ces deux types de chargement. La première étape de l'essai E sera considérée à la fois comme une étape de l'essai séquentiel et comme un chargement monotone jusqu'à 1% de déformation.
Nous constatons que la densité de fissures est plus importante pour les chargements monotones.
Pour autant, cette densité augmente bien entre chaque étape de l'essai séquentiel. Cette augmentation suit d'ailleurs proportionnellement la même évolution que celle observée pour les chargements monotones, exception faite de l'étape entre 1 et 2% de déformation pour laquelle nous ne pouvons pas conclure.

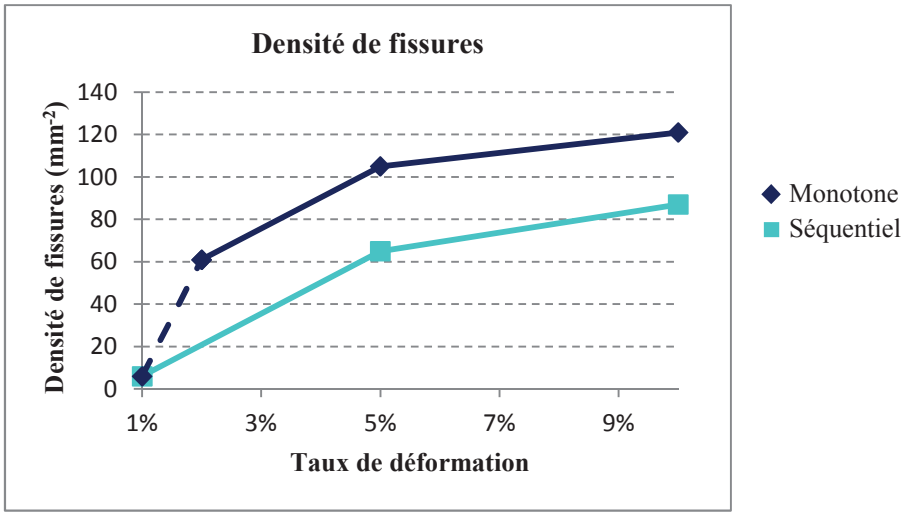


Figure III.24: Evolution de la densité de fissures avec le taux de déformation en fonction du trajet de chargement (acier 304L irradié à 5 dpa)

Nous remarquons dans les deux cas que la progression de la densité de fissures ralentit au-delà de 5% de déformation et semble tendre vers une valeur à saturation.

La **figure III.25** présente l'évolution de la longueur et de l'ouverture moyenne des fissures.

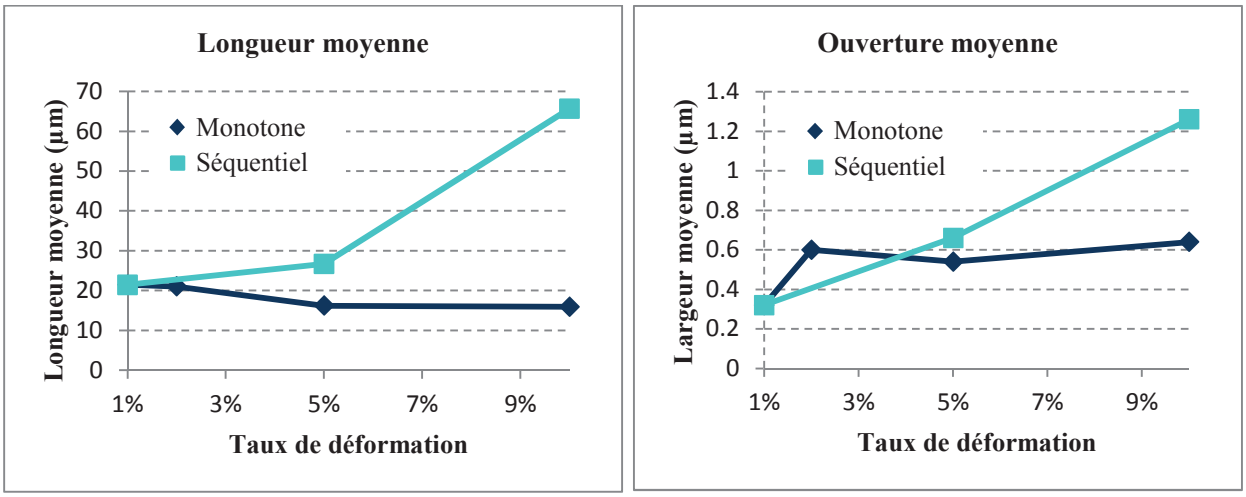


Figure III.25: Evolution de la longueur et de l'ouverture moyennes des fissures avec le taux de déformation en fonction du trajet de chargement (acier 304 L irradié à 5 dpa)

L'augmentation du taux de déformation n'a pas d'effet sur les longueurs moyennes des fissures pour les trajets monotones. Ce paramètre est sensiblement constant, avec une longueur moyenne estimée à environ 20 µm et qui est atteinte dès 1% de déformation. En revanche, nous constatons une ouverture des fissures entre 1 et 2% de déformation, puis une stabilisation de cette ouverture aux alentours de 0,6 µm dès 2% de déformation. La longueur moyenne de 20 µm est comparable à la longueur moyenne des joints de grains orientés entre 70 et 90° par rapport à l'axe de traction. Sous chargement monotone, nous avons donc majoritairement des fissures couvrant un joint de grains, quel que soit le taux de déformation.

A contrario, l'augmentation du taux de déformation induit une augmentation conséquente de la longueur et de l'ouverture des fissures pour l'essai séquentiel (essai E). Cette évolution est particulièrement marquée entre 5 et 10% pour le paramètre « longueur ». De plus, les fissures sont plus longues et plus ouvertes à 5 puis 10% de déformation pour l'essai E en comparaison avec les essais monotones C et A, à taux de déformation équivalents. Ceci suggère que les fissures formées lors de la première étape de l'essai séquentiel (essai E) à 1% de déformation se sont élargies et propagées lors des étapes suivantes. Après 10% de déformation, la longueur moyenne des fissures est de l'ordre de 60µm ce qui signifie que les fissures se propagent, en surface, sur trois joints de grains en moyenne.

Les distributions des longueurs de fissures sont similaires entre 5 et 10% de déformation pour les essais monotones avec une distribution majoritairement située dans la gamme 5 – 30 µm, comme le montre la **figure III.26**.

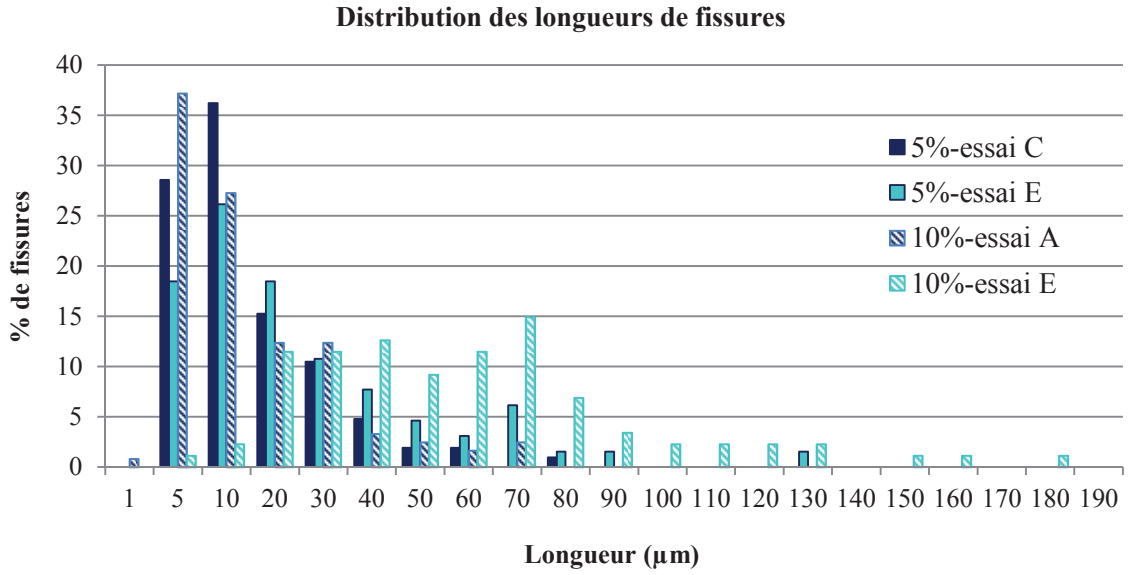


Figure III.26: Distributions des longueurs de fissures à 5 dpa pour 5 et 10% de déformation sous chargement interrompu (éprouvette E) et monotone (éprouvettes A et C)

A taux de déformation différent, les populations de fissures pour les chargements monotones possèdent donc les mêmes caractéristiques morphologiques (même longueur moyenne, même distribution des longueurs et même ouverture).

En comparaison, les distributions des longueurs à 5 puis 10% de déformation pour l'essai séquentiel E sont décalées vers les grandes valeurs et leur amplitude est plus large. Cette tendance s'accentue d'autant plus que l'on augmente le taux de déformation. Après 5%, la distribution s'apparente à une distribution bimodale avec deux pics centrés sur 10 µm et 70 µm respectivement. Le pic centré sur 10 µm est lié très probablement à l'apparition de nouvelles fissures tandis que le pic à 70 µm est représentatif de la propagation en surface des fissures préexistantes. Pour 10% de déformation, nous ne retrouvons pas de pic à 10 µm, mais une distribution très étalée avec un pic à 70 µm. Peu de nouvelles fissures se sont créées comparativement au nombre de fissures existantes ce qui est cohérent avec le début de saturation que l'on semble voir sur la **figure III.24**.

La densité de fissures inférieure pour l'essai séquentiel, combinée à une longueur et une ouverture de fissure plus élevées, confirme que ce type de chargement a privilégié la propagation des fissures existantes (*i.e.* celles créées lors de la première étape à 1%) au détriment de la création de nouvelles.

Le **tableau III.4** résume l'influence du type de chargement sur le réseau de fissures en surface lorsque l'on augmente le taux de déformation:

	Monotone	**Séquentiel**
Longueur moyenne	Constante (≈ 20 µm soit 1 joint de grains)	Augmente (> à 20µm)
Ouverture moyenne	Constante dès 2% (≈ 0,6 µm)	Augmente (> à 0,6 µm au-delà de 5%)
Densité	Augmente	Augmente mais reste < au monotone

Tableau III.4: Effet de l'augmentation du taux de déformation jusqu'à 10% sur le réseau de fissures en fonction du type de chargement

En conclusion, si l'on considère que la propagation en surface et l'ouverture des fissures sont des critères d'endommagement plus sévères que le nombre de fissures lui-même, alors le chargement pseudo-cyclique est plus dommageable que le chargement monotone.
Enfin, on constate que la plage comprise entre 1 et 2% du taux de déformation constitue une étape clé de l'amorçage de la fissuration avec une forte augmentation de l'ouverture des fissures et surtout de leur nombre pour un même type de chargement.

III.3.2 c) Influence de la dose d'irradiation

Nous rappelons que la géométrie des éprouvettes A et B est identique et que ces éprouvettes ont été prélevées de sorte que la totalité de cette zone utile soit irradiée.
En revanche, pour les éprouvettes C, D et E, la zone utile comprend une zone irradiée couvrant une longueur de 10 mm, encadrée par deux zones non irradiées. La partie non irradiée a été étudiée, lors de l'essai E, à titre de comparaison et comme référence du comportement hors irradiation.

Les résultats présentés sont issus de l'analyse des éprouvettes irradiées à 5 et 10 dpa puis déformées jusqu'à 10% sous chargement monotone (essai A et B, 1ère géométrie). A cela, nous ajoutons la dernière étape de l'essai E (10% de déformation également, 2ème géométrie) pour la partie irradiée (5 dpa) et la partie non irradiée (0 dpa) de la zone utile.

Nous venons de voir que la nature pseudo-cyclique du chargement avait pour effet une longueur de fissure en surface plus importante, à dose d'irradiation égale (5 dpa). Les résultats acquis entre l'essai séquentiel E d'une part et les essais monotones A et B d'autre part seront donc discutés séparément.

- Effet de la dose – chargements monotones

Nous constatons, pour les essais monotones (**figure III.27**), une augmentation de la longueur et de l'ouverture des fissures avec l'augmentation de la dose. La densité de fissures quant à elle reste relativement stable entre 5 et 10 dpa avec un peu plus de 100 fissures par mm^2.

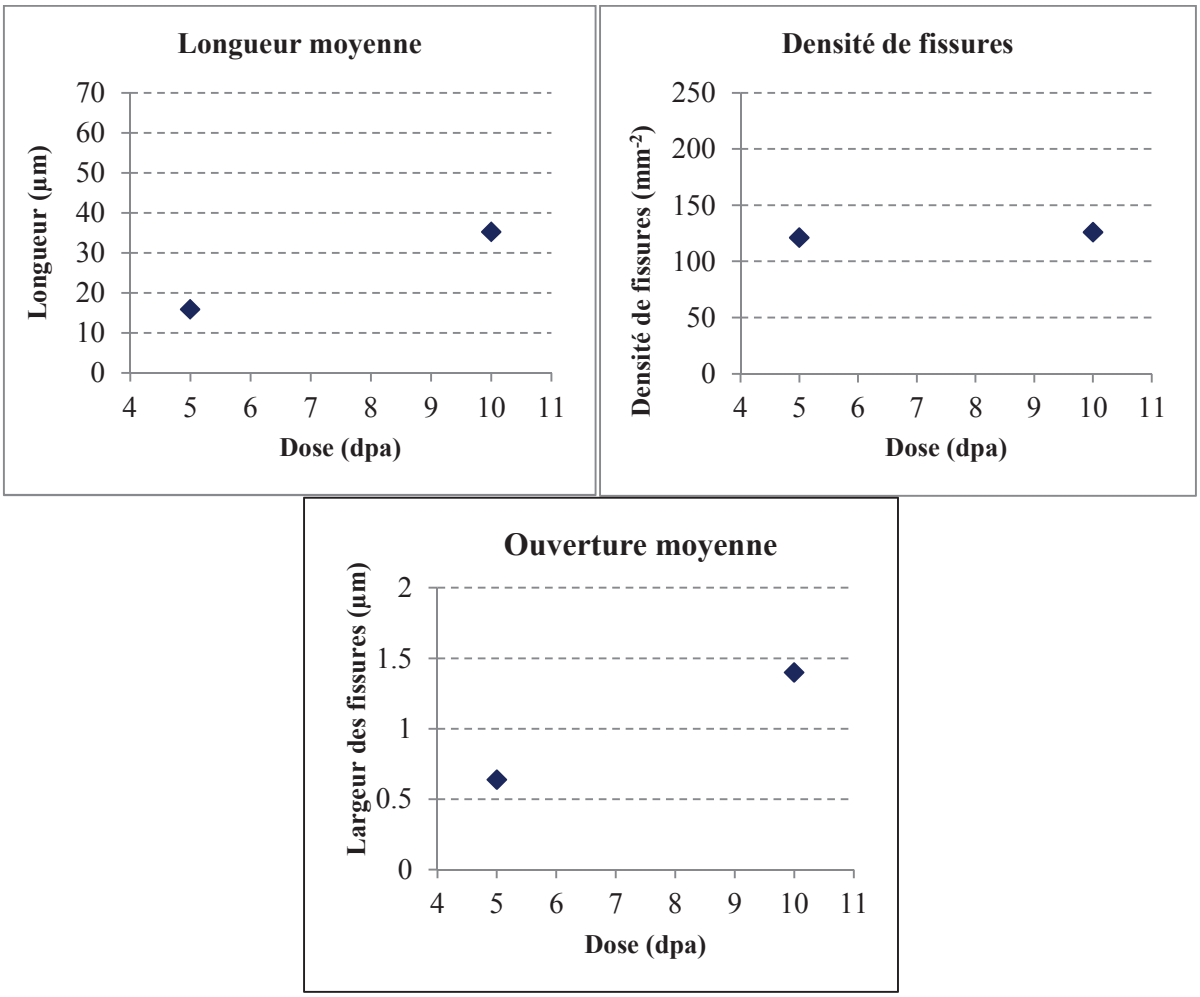


Figure III.27: Evolution du réseau de fissures d'un acier 304L déformé sous chargement monotone jusqu'à 10% en fonction de la dose d'irradiation

A taux de déformation équivalent, l'augmentation de la dose a donc conduit à une propagation plus importante des fissures en surface, ce qui implique une propagation le long de plusieurs joints. Au vu de la longueur moyenne de ces fissures à 10 dpa (36 µm), il s'agit d'une propagation le long de 2 joints de grains en moyenne. En revanche, le nombre de fissures, constant, semble indiquer que la sensibilité à la fissuration des joints de grains ne soit pas dépendante de la dose d'irradiation dans la gamme étudiée dans ce travail.

Quelques ouvertures de joints ont été repérées de manière sporadique sur des zones non irradiées pour des chargements monotones, comme cela est montré sur la **figure III.28**. Cependant, ces ouvertures restent superficielles et aucune propagation dans le volume n'a été constatée après 5% de déformation

(**figure III.29**). Nous avons donc choisi de considérer que le nombre de fissures était nul à 0 dpa dans ces conditions de chargement.

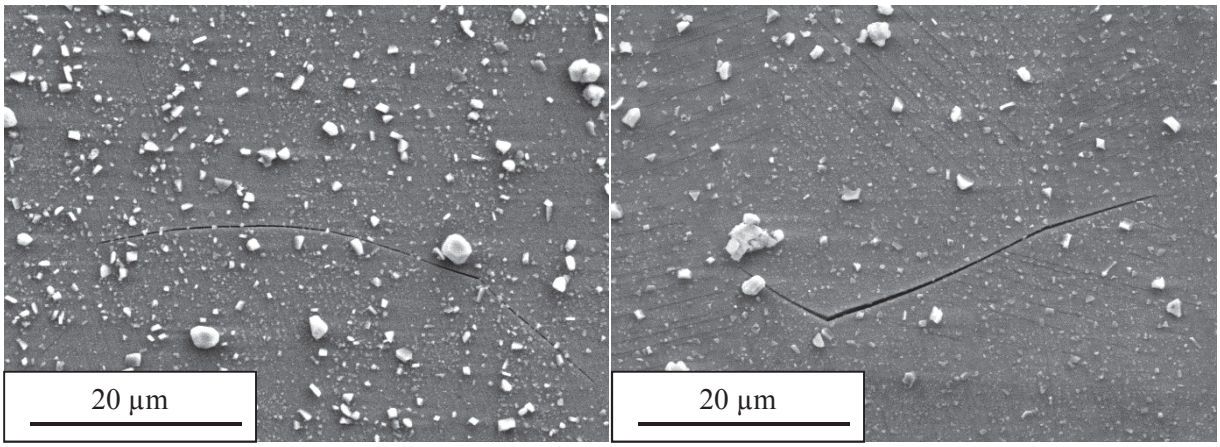


Figure III.28 : Fissures détectées au MEB sur la zone non irradiée de l'éprouvette C, après 5% de déformation macroscopique.

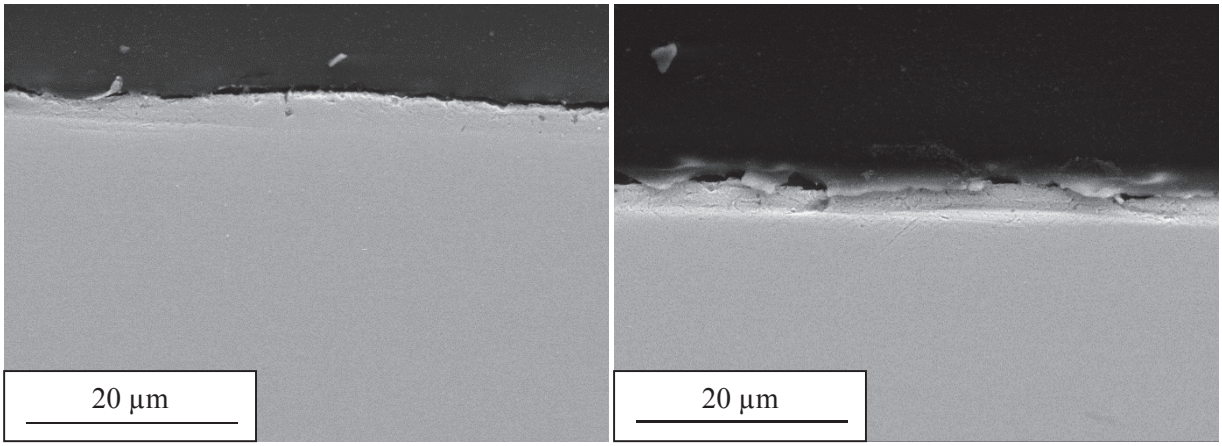


Figure III.29 : Observations MEB en coupe transverse de la zone non irradiée de l'éprouvette C, après 5% de déformation macroscopique. Aucune fissure n'est visible en volume sur la zone non irradiée.

- Effet de la dose – chargement pseudo-cyclique

Contrairement à ce que nous avons constaté pour les zones non irradiées des éprouvettes déformées en traction monotone, de nombreuses fissures ont été observées sur la zone non irradiée de l'éprouvette E et ce dès la première étape de l'essai (1% de déformation macroscopique) comme présenté sur la **figure III.30**. Aucune coupe transverse ne pouvait être préparée sur l'éprouvette après cette étape pour vérifier la profondeur de ces fissures, mais au vu des résultats obtenus sur les coupes après 5% de déformation sous chargement monotone, nous pouvons supposer que ces ouvertures sont uniquement des marquages superficiels des joints de grains.

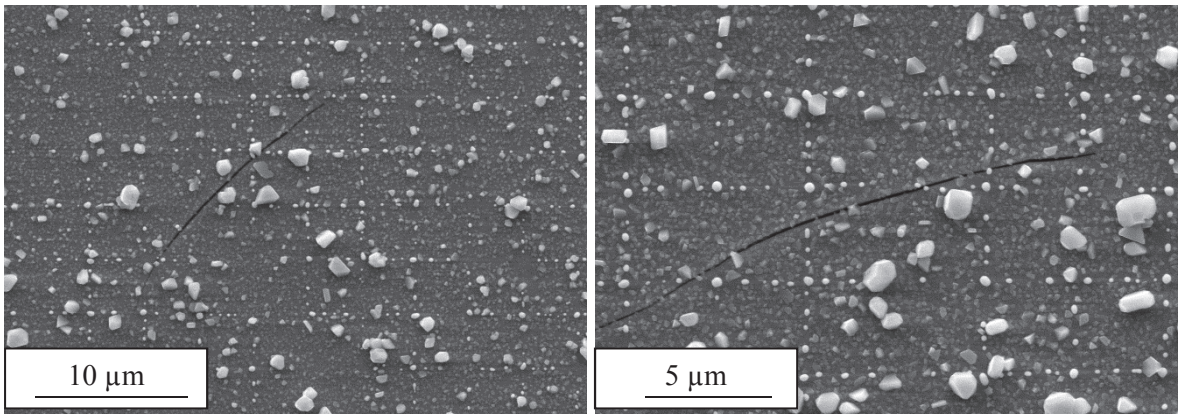


Figure III.30: Fissures apparues en surface de la zone non irradiée de l'éprouvette E après 1% de déformation

La propagation des fissures en profondeur a été étudiée sur une section de l'éprouvette E après 10% de déformation. Cette section regroupe la partie irradiée (5 dpa) et non irradiée (0 dpa) de l'éprouvette.

Les profondeurs obtenues sur ces deux zones sont significativement différentes, avec une propagation pouvant atteindre 23 µm pour la partie irradiée et seulement 4 µm pour la partie non irradiée (**figure III.31**).

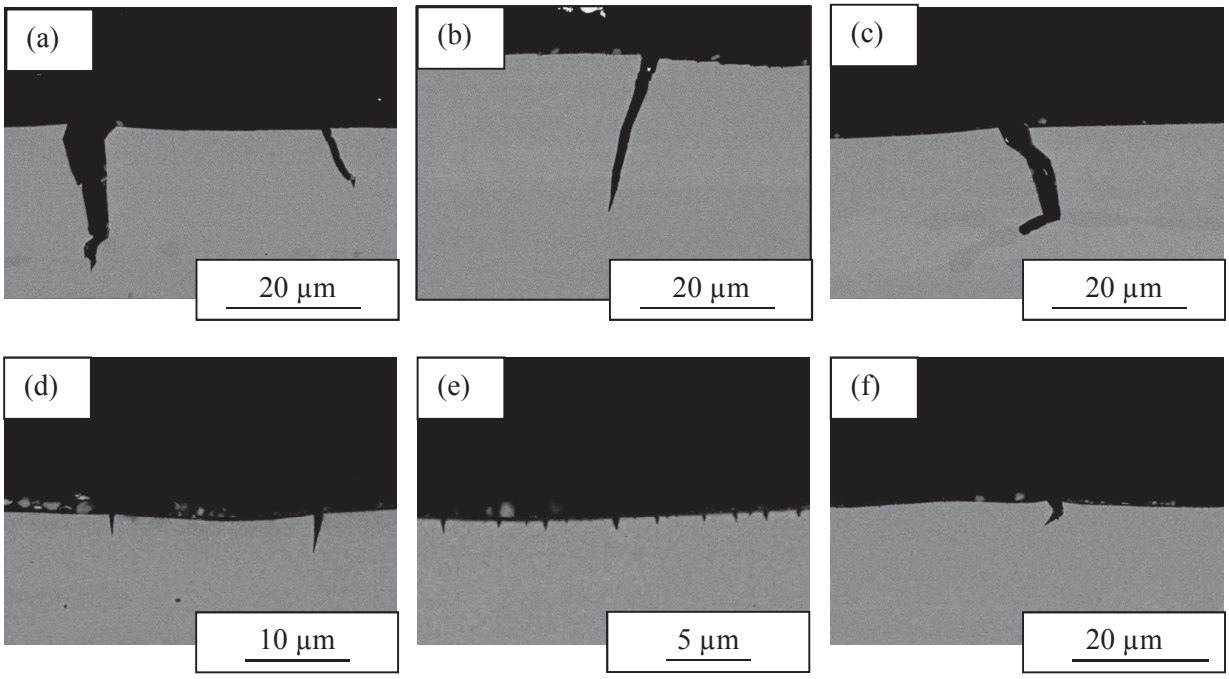


Figure III.31 : Images MEB en coupe de l'éprouvette E après 10% de déformation (a, b et c) pour la zone irradiée, (d, e et f) pour la partie non irradiée

Les fissures présentes en coupe sur la zone non irradiée sont très certainement liées à l'existence de défauts en surface après la première étape du chargement (**figure III.31**). Si ces défauts n'étaient à l'origine que des marquages de joints de grains, les chargements successifs ont conduit à une faible propagation de fissures dans l'épaisseur du matériau. En plus de ces petites fissures intergranulaires, la

coupe transverse de la zone non irradiée a révélée des microfissures, très proches les unes des autres, de nature intragranulaire (**figure III.31 (e)**).
L'écart de propagation en profondeur entre ces deux zones est important (et ce même après des conditions d'essais sévères) ce qui confirme, puisque toute chose est égale par ailleurs, que seule l'irradiation engendre une fragilisation de l'acier 304L vis-à-vis de la CSC en milieu réducteur.

III.4 Comportement mécanique à l'échelle du grain

III.4.1 Influence des mécanismes de plasticité sur les mécanismes de fissuration

- Plasticité et facteurs de Schmid

Déterminer des données quantitatives sur la plasticité d'un polycristal est particulièrement complexe au vu de la diversité des mécanismes mis en jeu, des contributions multi-échelles, de la non-linéarité des phénomènes à décrire ou encore de la forte dépendance de ces caractéristiques aux conditions d'essai (température, trajet de chargement, vitesse de sollicitation, etc.).

En 1928, Sachs [Sachs 1928] a proposé un modèle permettant de définir pour une structure C.F.C. non texturée une borne inférieure au rapport entre la contrainte macroscopique (sous chargement uniaxial) appliquée à un polycristal et la cission résolue maximale subie par les systèmes de glissement. Dans ce modèle, ce rapport est déterminé comme étant nécessairement supérieur à 2, *i.e.* que la cission résolue maximale ne peut dépasser 0,5 fois la contrainte macroscopique appliquée.
Ce modèle s'appuie sur l'hypothèse que le champ des contraintes est homogène et donc que tous les grains sont soumis au même état de contrainte. Cette hypothèse est vérifiée en cas de comportement élastique isotrope d'une part et au seuil de plasticité d'autre part. Elle semble réaliste dans le cas des matériaux possédant peu de systèmes de glissement comme les matériaux de structure hexagonale compacte (3 systèmes de glissement).

Suite à ces travaux, Taylor en 1938 [Taylor 1938] a développé un second modèle qui propose cette fois une borne supérieure au rapport entre la contrainte macroscopique appliquée et la cission résolue maximale. Dans ce modèle le rapport est déterminé comme étant nécessairement inférieur à 3,06 pour un C.F.C.
Dans ce cas, c'est le champ de déformation qui est supposé homogène. La plasticité est générale et le glissement a lieu sur plusieurs systèmes de glissement simultanément. Cette hypothèse est vérifiée si au minium 5 systèmes de glissement indépendants sont activés par grain.

Dans un cristal, un système de glissement est défini par un plan de glissement auquel est associé n, la normale au plan et une direction de glissement, notée m. La contrainte résolue, notée τ, associée à ce système est définie de la façon suivante dans le cas d'un essai uniaxial de traction (**figure III.32**):

$$\tau = \frac{F}{S_0} \times cos\theta \; cos\chi \qquad \textbf{(III.1)}$$

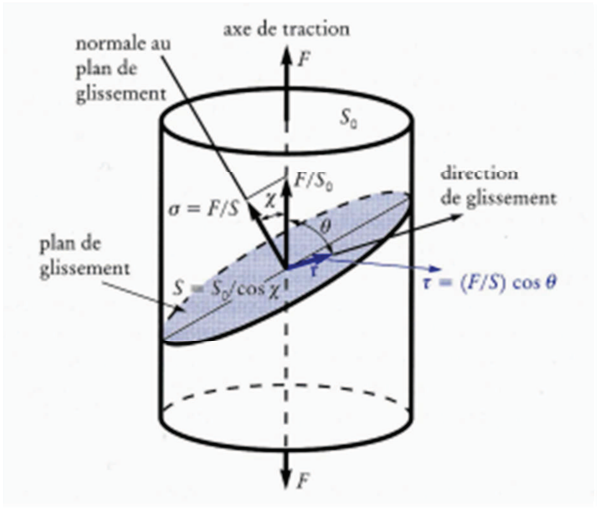


Figure III.32: Représentation schématique de la loi de Schmid [Schmid 1950]

Le terme cosθ cosχ est appelé facteur de Schmid (noté par la suite FS). Ce critère géométrique est compris entre 0 et 0,5 pour une sollicitation uniaxiale.

S'appuyant sur le modèle de Sachs, la loi de Schmid considère qu'un système de glissement est activé lorsque la cission résolue τ atteint une valeur critique τ_c Le système de glissement ayant la cission résolue la plus élevée est donc activé. La cission résolue est directement proportionnelle au facteur de Schmid (**III.1**). De cela nous en déduisons que les systèmes orientés de telle sorte que leur facteur de Schmid est proche de 0,5 (valeur maximale) sont les premiers systèmes activés et que les grains possédant l'orientation adéquate sont ceux qui se déformeront le plus facilement. Notons que cette règle d'activation suppose que l'état de contrainte soit homogène et que la cission résolue critique de tous les systèmes potentiellement activables ait la même valeur.
La **figure III.33** représente la distribution des facteurs de Schmid en fonction de l'orientation cristalline dans un système C.F.C.

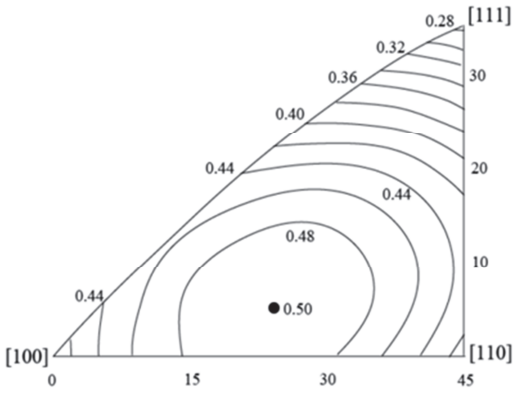


Figure III.33 : Cartographie des facteurs de Schmid en fonction de l'orientation cristalline dans un C.F.C.

Bien que l'hypothèse de Taylor paraisse au premier abord plus réaliste lorsqu'il existe un grand nombre de systèmes de glissement comme c'est le cas pour les structures cristallines cubiques, le nombre de plans de glissement actifs par grain émergeant en surface de notre matériau après irradiation est relativement faible. La configuration majoritaire observée est très éloignée des 5

systèmes de glissements indépendants activés requis dans le modèle de Taylor et ce quel que soit le taux de déformation. La déformation semble également très hétérogène. La **figure III.34** est un exemple des systèmes de glissement qui émergent en surface de l'éprouvette E après le plus fort taux de déformation appliqué dans le cadre de ce travail, *i.e.* 10% de déformation macroscopique.

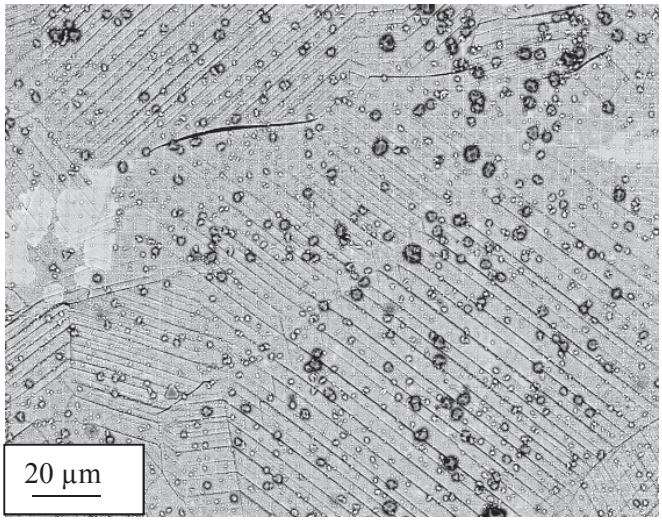


Figure III.34 : Systèmes de déformation activés et émergeant en surface et fissures intergranulaires pour l'éprouvette E, 5dpa et 10% de déformation

Le même constat avait été reporté par Byun et al. [Byun 2003] sur un acier 316LN irradié à faible dose. Ces observations sont cohérentes avec la réduction de l'écrouissage observé lors de la sollicitation des aciers inoxydables austénitiques irradiés en comparaison des aciers non irradiés. Enfin, une précédente étude [West 2010] indiquait que la corrélation entre le facteur de Schmid et la fissuration était meilleure que celle établie suivant le même mode opératoire avec le facteur de Taylor.

West et McMurtrey ont montré dans leurs travaux en milieu eau supercritique et en milieu REB que la fissuration intergranulaire des aciers austénitiques irradiés à 7 dpa était entre autre corrélée à la présence d'au moins un grain présentant un faible facteur de Schmid adjacent au joint de grains fissuré [West 2010, McMurtrey 2011].
Nous avons cherché à vérifier si cette configuration se retrouvait pour l'acier 304L irradié à 5 dpa et testé en milieu primaire REP. Nous cherchons donc à savoir si la capacité présumée d'un couple de grains à se déformer dans un champ de contrainte homogène a une influence forte sur la fissuration par IASCC en milieu REP. La démarche utilisée est celle décrite par West [West 2010] et les résultats statistiques présentés ici sont issus d'une zone représentative de $1mm^2$.

Comme nous l'avons vu, différents mécanismes de déformation peuvent se produire simultanément, les deux principaux étant le glissement des dislocations et le maclage. Après irradiation, le mécanisme de déformation majoritairement observé pour les matériaux à faible E.D.E. est la canalisation des dislocations, *i.e.* un mécanisme de glissement des dislocations. Dans les C.F.C., ce glissement se produit sur les systèmes {111} <110>, soit douze possibilités de glissement.

Les facteurs de Schmid pour chaque système de glissement potentiellement activable ont été calculés pour chaque grain par le logiciel OIM® suite à la détermination des orientations cristallines effectuée

par EBSD. Les valeurs présentées ici correspondent, pour chaque grain, au facteur de Schmid du premier système activable (dit système primaire). Il s'agit donc du plus élevé des 12 facteurs associés aux 12 systèmes de glissement possibles.
Dans le cas d'un comportement élastique isotrope, justifiant de l'hypothèse, au seuil de plasticité, de contrainte homogène dans l'éprouvette, et en tenant compte de la texture du matériau il apparaît que les facteurs de Schmid sont compris entre 0,27 et 0,5. Un exemple de distribution des facteurs de Schmid sur une zone de 1mm^2 est présenté sur la **figure III.35**. Les catégories Faible/Medium/Fort sont définies par équi-répartition des grains dans chacune de ces classes.

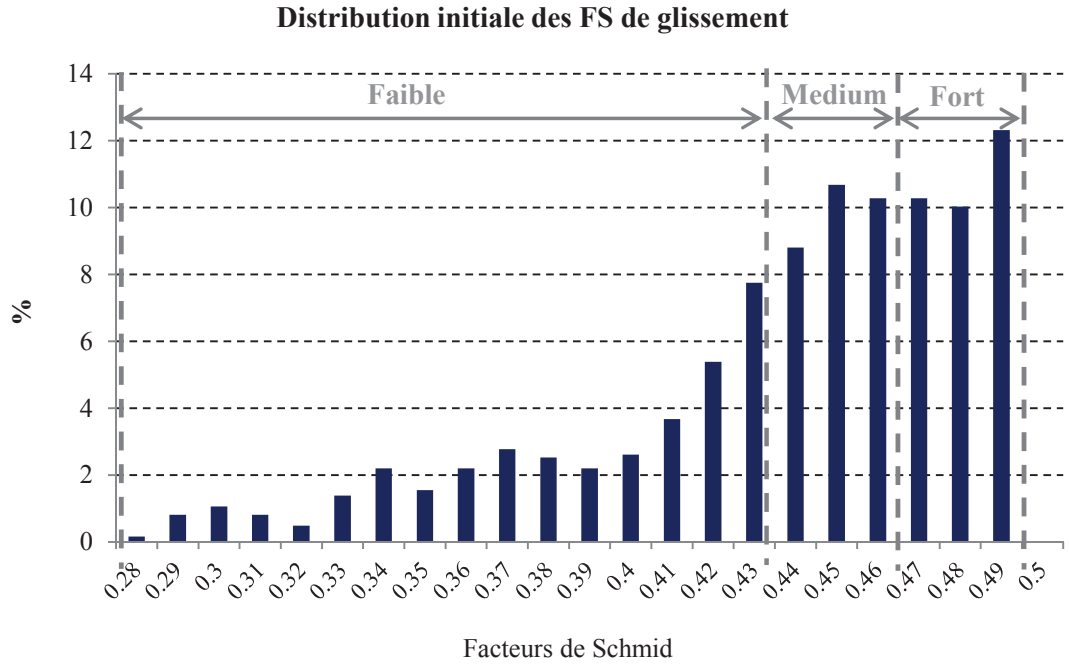


Figure III.35 : Distribution avant déformation des facteurs de Schmid d'une zone de 1mm^2 de l'éprouvette E (chargement séquentiel)

Les résultats présentés ci-après concernent les deux éprouvettes D et E pour lesquelles une zone représentative de la partie utile avait été cartographiée par EBSD avant l'essai de CSC.

Seules les éprouvettes D et E ont été cartographiées par EBSD et analysées suivant le processus complet EBSD/CSC/corrélation d'images. Pour l'éprouvette E, près de 54% des grains possèdent un facteur de Schmid supérieur ou égal à 0.45. Concernant l'éprouvette D, près de 61% des grains présentent un facteur de Schmid supérieur à cette valeur. Les zones EBSD sont des zones représentatives de 1mm^2 et le nombre de grains pris en considération sur cette surface est de 1226 pour l'éprouvette E et 1513 pour l'éprouvette D, ce qui représente respectivement 3479 et 4272 joints de grains.

Pour prendre en compte le fait que les valeurs des facteurs de Schmid dans notre microstructure sont naturellement proches de 0,5 et éviter de biaiser notre approche, la distribution a été segmentée en trois classes, équivalentes en nombre de grains, nommées respectivement « faible », « medium » et « fort » (**figure III.35**). Cette méthodologie est identique à celle décrite dans la littérature [West 2010, McMurtrey 2011, West 2013] et les résultats pourront donc être directement comparés entre eux.

Les cartographies des facteurs de Schmid des éprouvettes D et E ainsi réparties en trois catégories sont présentées en **annexe F**.

Grâce à la complémentarité des informations obtenues au MEB et par EBSD sur chacune des zones, le maximum des facteurs de Schmid de glissement (FS) de chaque grain adjacent à une fissure est connu. Les couples de FS sont donc définis avec les catégories « faible », « medium » et « fort » suivant les 9 combinaisons possibles. Sur ces 9 combinaisons, certaines sont plus probables que d'autres puisque les combinaisons faible/medium et medium/faible sont équivalentes ainsi que faible/fort et fort/faible ou encore fort/medium et medium/fort. La probabilité d'avoir une combinaison du type faible/faible, medium/medium et fort/fort est donc de 1/9 tandis que celle des autres configurations est de 2/9. Ce raisonnement a été vérifié pour l'éprouvette E où la proportion de couples faible/faible comptés correspond bien à 1/9ème du nombre total de joints de grains sur la zone étudiée.
Une fois ces probabilités d'occurrence prises en compte, le poids de chacune des configurations rencontrées et associées à la fissuration peut être normalisé par la probabilité d'occurrence de chacune des configurations dans la microstructure.

Les résultats pour les éprouvettes D et E sont présentés sur la **figure III.36**.

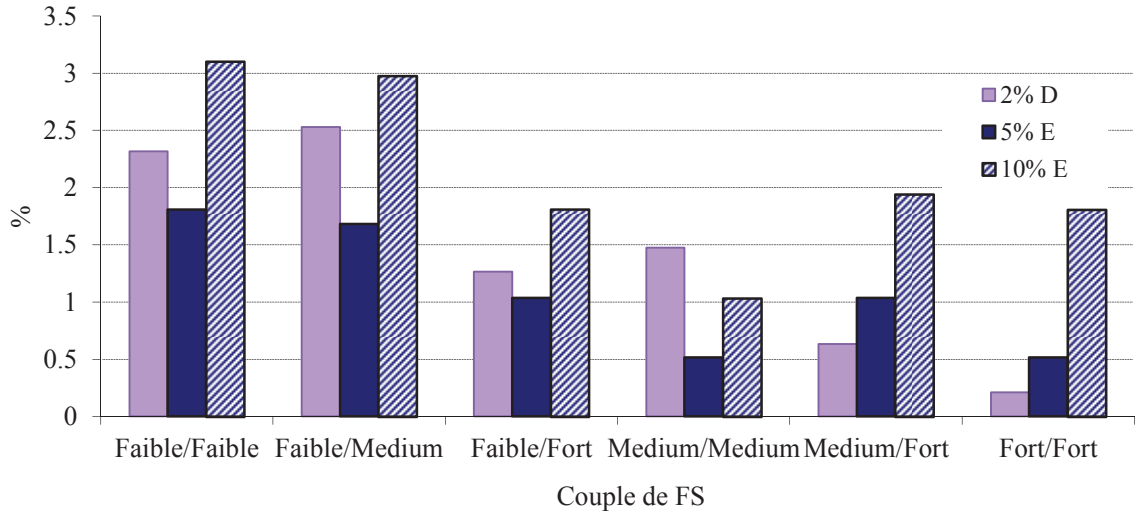


Figure III.36 : Distribution normalisée des couples de FS des grains adjacents à une fissure sur une zone de 1mm^2 pour les essais D et E – Pour les fissures se propageant sur plusieurs joints, chaque joint a été pris en compte.

Pour tous les essais, l'ensemble des 3 configurations avec au moins un faible FS d'un côté ou de l'autre de la fissure correspond à la majorité des fissures recensées. Si la présence d'un faible FS reste majoritaire, cette tendance diminue avec l'augmentation du taux de déformation. Ces résultats concordent avec ceux rapportés par West et McMurtrey [West 2010, McMurtrey 2011].

Les pourcentages normalisés des joints de grains fissurés dont au moins l'un des deux grains adjacents présente un faible FS sont répertoriés dans le **tableau III.5** pour chaque essai.

	Essai D 2% de déformation	Essai E 5% de déformation	Essai E 10% de déformation
% de joints fissurés dont au moins l'un des grains adjacents a un faible FS	72,5%	68,63%	62,25%

Tableau III.5 : Pourcentages normalisés des joints de grains fissurés dont au moins un des grains adjacents a un faible FS de glissement en fonction du taux de déformation

Bien que la corrélation avec la fissuration ait tendance à diminuer avec l'augmentation du taux de déformation total, il reste néanmoins près de 2/3 des joints fissurés qui sont entourés par au moins un grain possédant un faible FS après 10% de déformation.

Ces tendances peuvent être affinées si l'on prend en considération d'autres critères tels que la nature du joint de grains ou son orientation par rapport à l'axe de traction. En effet, nous avons vu que les fissures concernent systématiquement des joints généraux et que la plupart d'entre elles présente une inclinaison comprise entre 70° et 90° par rapport à l'axe de traction.
Nous pouvons donc éliminer de l'étude les joints « spéciaux » et pondérer le rapport nombre de joints fissurés/nombre de joints total en fonction de leur inclinaison.
La caractérisation initiale de la microstructure avait montré que près de 30% des joints sont des joints spéciaux. Parmi les joints généraux restants, seuls certains d'entre eux sont favorablement orientés du point de vue de la fissuration.

Le **tableau III.6** suivant résume les résultats obtenus entre les étapes 5 et 10% de déformation de l'essai séquentiel E après avoir éliminé les CSLs et les joints non perpendiculaires. Par souci de simplification, nous supposons que 100% des fissures concernent des joints inclinés entre 70 et 90° par rapport à la sollicitation.

	5% - essai E	10% - essai E
% de joints généraux fissurés	1,64%	3,08%
% de joints généraux et perpendiculaires à la sollicitation fissurés	5,92%	11,1%
% de joints généraux dont au moins un des grains adjacents a un faible FS fissurés	2,07%	3,62%
% de joints généraux perpendiculaires à la sollicitation et dont au moins un des grains adjacents présente un faible FS fissurés	7,21%	12,6%

Tableau III.6 : Proportion des joints fissurés en fonction de leur nature, de leur inclinaison vis-à-vis de la sollicitation et du FS des grains adjacents après 5 et 10% de déformation

Nous avons supposé que toutes les fissures étaient perpendiculaires à la traction mais 10 à 15% d'entre elles présentent un angle < à 70°. Les pourcentages de joints généraux et perpendiculaires fissurés sont donc en réalité légèrement plus faibles que ceux avancés dans le tableau. Néanmoins, le paramètre « inclinaison du joint » a beaucoup plus de poids sur la fissuration que le paramètre « faible FS ». Le poids de ces différents facteurs sur la fissuration peut être classé par ordre d'importance avec :

nature du joint (général) > inclinaison du joint (perpendiculaire) > présence d'un faible FS

En combinant les facteurs « inclinaison perpendiculaire » et « faible FS », le pourcentage de joints de grains appartenant à ces deux populations et qui ont effectivement fissuré est d'environ 7% après une déformation totale de 5% et d'environ 13% après une déformation totale de 10%. Autrement dit, même après 10% de déformation, plus de 85% des joints généraux, perpendiculaires et entourés par un faible facteur de Schmid de glissement ne fissurent pas.

La présence d'un faible FS de glissement n'est pas une condition nécessaire puisque l'ensemble des configurations (y compris les couples fort/fort) sont représentées. De plus, la combinaison faible/faible n'est pas systématiquement la configuration la plus critique en termes de fissuration.
La présence d'un faible FS, combiné avec le caractère général du joint et son inclinaison perpendiculaire ne constitue pas non plus un critère suffisant pour amorcer une fissure.

Enfin, cette analyse par FS prédéterminés ne prend pas en compte l'évolution de la texture du matériau avec la déformation. L'analyse de la fissuration *via* le facteur de Schmid des grains est une approche intéressante qui pose la question de l'hétérogénéité de déformation et des éventuelles incompatibilités intergranulaires qui en découlent, mais elle est insuffisante pour décrire quantitativement cette hétérogénéité et est inadéquate pour la décrire en cours de déformation.

La microextensométrie par corrélation d'images permet au contraire de décrire correctement les champs de déformation plastique d'un matériau à l'échelle locale lorsque le marquage est en adéquation avec la microstructure du matériau étudié.

III.4.2 Analyse des champs locaux de déformation

III.4.2 a) Principe de la microextensométrie par corrélation d'images

La mesure des champs de déformation par corrélation d'images (DIC) a été développée dans les années 80 [Peters 1982, Sutton 1986]. C'est une technique proche de la vélocimétrie par image des particules (PIV) utilisée en mécanique des fluides.

Bien que d'autres techniques existent, notamment les techniques dites d'interférométrie (holographie, moiré, etc.), la DIC est de plus en plus prisée car c'est une méthode sans contact (donc non intrusive), d'un coût modéré pour la précision obtenue et surtout il est possible de l'utiliser dans des conditions d'essai difficiles (haute température, milieux corrosifs, etc…).
Les principales limites de cette méthode sont liées au fait que les surfaces observables doivent être planes (ou quasi-planes) et que les informations *a priori* accessibles ne concernent que la surface du matériau. Pour contourner ces difficultés, une technique « 3D » de stéréocorrélation utilisant une caméra supplémentaire peut être mise en place afin d'accéder aux déplacements hors plan. Un système

basé sur la tomographie par rayons X peut également être employé pour obtenir des données sur quelques centaines de micromètres sous la surface [Buffière 2005, Morgeneyer 2011]. Ces techniques ne seront toutefois pas discutées dans la suite de ce travail.

Le principe de base de la DIC repose sur la mesure du champ de déplacement de points homologues répartis aléatoirement ou régulièrement sur la surface du matériau. Cette mesure est réalisée par corrélation entre le domaine (souvent appelé imagette) référence et le domaine déformé (**figure III.37**). Le champ de déformation associé est ensuite déduit par calcul.

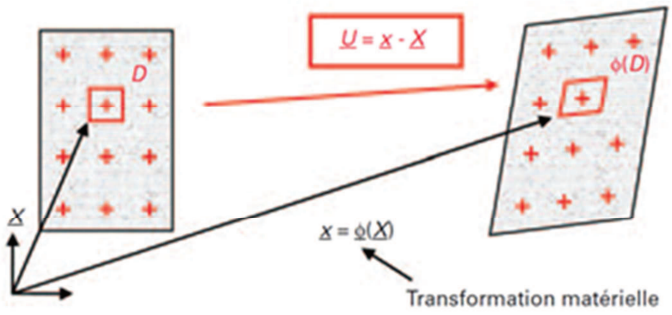


Figure III.37 : Principe de la mesure de champ par corrélation d'images, U est le champ de déplacement [Brémand 2011]

La méthode de suivi pour la mesure du champ de déplacement est souvent une méthode optique par caméra CCD [Hild 2006], mais un suivi par imagerie électronique (type MEB) peut être utilisé de la même façon comme c'est le cas dans cette étude.
Dans le cas d'un essai où le suivi en direct n'est pas possible, le processus de corrélation est réalisé en trois étapes principales listées ci-dessous :

1- préparation des échantillons
2- enregistrement des images, de la même zone, avant et après chargement mécanique
3- utilisation d'un logiciel pour obtenir, à partir des images précitées, les champs de déplacement puis de déformation. Le logiciel utilisé dans ce travail est le logiciel *CorrelManuV*, développé au LMS de l'école Polytechnique et à l'Institut Navier de l'Ecole des Ponts et Chaussées [Doumalin, 2000].

Dans le cas d'un suivi par MEB, la corrélation entre l'état de référence et l'état déformé est réalisée par l'évaluation de la ressemblance entre les niveaux de gris de chaque imagette. La mesure par DIC dépend donc fortement de la qualité des images d'une part et de la distribution des niveaux de gris d'autre part. Cette distribution doit idéalement éviter toute saturation et être répartie sur l'ensemble des 256 niveaux de gris pour une image 8 bits (**figure III.38**) [Doumalin 2000].

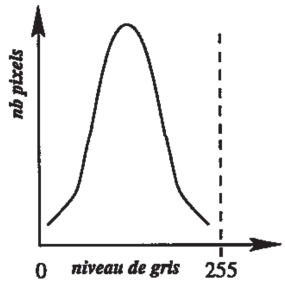


Figure III.38 : Histogramme idéal de la répartition des niveaux de gris de l'image codée en 8 bits

Lorsque le marquage « repère » sur le matériau est matérialisé par une grille, les intersections des barreaux constituent les points où le contraste est maximal et sont donc utilisés pour la corrélation d'images (**figure III.39**).

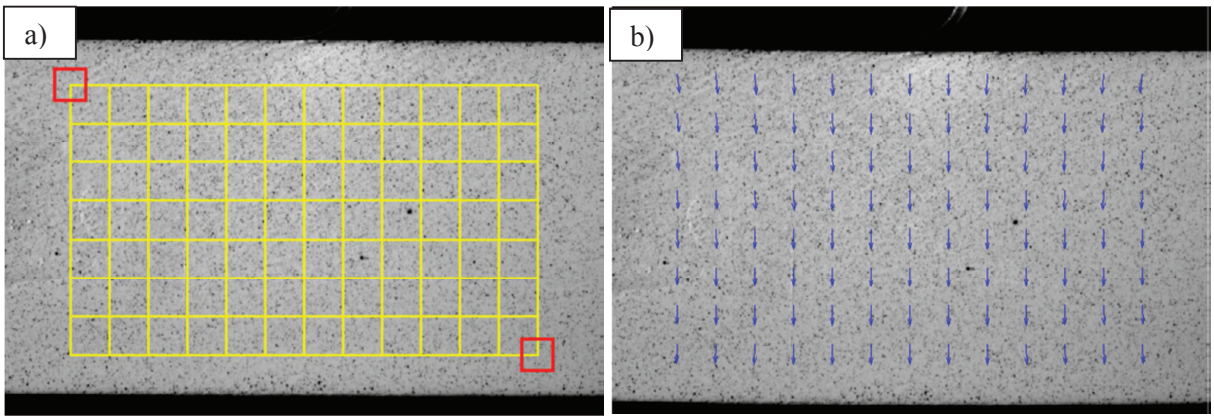


Figure III.39: (a) Définition de la première et de la dernière imagettes référence (en rouge) à partir de la grille et (b) obtention des vecteurs de déplacement après déformation [Pan 2009]

L'incertitude sur la détermination de la déformation est liée à l'incertitude sur la mesure du déplacement. Ainsi l'incertitude décroît comme l'inverse du nombre de pixels considérés dans la base de mesure locale.
En utilisant un grand motif de corrélation, on obtient une plus grande précision pour la reconnaissance entre état déformé et état de référence car la quantité d'information (le nombre de pixels) contenue dans l'image est plus importante. Mais ce gain s'accompagne d'une perte d'information sur le caractère local. L'information est plus moyennée, plus diffuse. Avec un petit motif, l'information est très locale, ce qui est adapté pour des champs irréguliers et complexes mais la précision sur la corrélation est moindre. En fonction de ce que l'on souhaite mettre en évidence, il s'agit donc de trouver le meilleur compromis entre précision de la corrélation et caractère local de la mesure.
Dans ce travail, nous avons choisi un pas de grille de 4 µm, soit un pas 10 fois plus petit que la taille de grain moyenne, et une base de mesure pour la corrélation de 8 µm.

Plusieurs méthodes permettent de remonter du champ de déplacement mesuré au champ de déformation calculé. La méthode la plus couramment employée passe par le calcul du tenseur de Green-Lagrange **(III.2)** où F, gradient de transformation lagrangienne, est calculé en chaque point par différences finies à partir du déplacement des points voisins.

$$\underline{\underline{E}} = \frac{1}{2}(\underline{\underline{F}}^T.\underline{\underline{F}} - \underline{\underline{1}}) \quad (\mathbf{III.2})$$

III.4.2 b) Champs de déformation

Les champs de déformation locaux ont été obtenus par corrélation d'images sur des zones irradiées et non irradiées du matériau après différents taux de déformation.
Nous présentons en première partie les résultats obtenus sur matériau irradié pour les plus faibles taux de déformation, *i.e.* après 1% et 2% de déformation totale. Nous comparons ensuite les résultats obtenus après 1% de déformation sur la zone irradiée de l'éprouvette E avec les champs de déformation d'une partie non irradiée de la même éprouvette. Enfin, nous commentons les évolutions du champ de déformation et de la fissuration avec l'augmentation du taux de déformation (essai séquentiel).

Nota : Pour toutes les figures suivantes, la direction de traction est systématiquement suivant l'axe vertical de la feuille. Pour les toutes cartes de champs de déformation qui suivent, l'échelle des déformations est comprise entre 0% (couleur bleue) et 10% et plus (couleur rouge).

- Champs de déformation sur matériau irradié après un faible taux de déformation total

Champs de déformation locaux après 2% de déformation totale

Le champ de déformation après 2% de déformation totale et superposé à la microstructure est présenté sur la **figure III.40**. La taille de la zone est de 934 x 946 μm^2 et donc légèrement inférieure à notre surface élémentaire représentative fixée à $1mm^2$, ceci en raison d'un décalage de recouvrement entre la zone cartographiée par EBSD et la zone de corrélation. Nous avons vérifié que la déformation moyenne de l'ensemble de la zone présentée est bien égale à 2% et le comportement étudié sur cette zone de 0,88 mm^2 peut être considéré comme représentatif du comportement de la zone irradiée de l'éprouvette.

Si la déformation de la zone est bien équivalente à celle appliquée à l'ensemble de l'éprouvette, une forte hétérogénéité est cependant visible. Grâce à la superposition avec la microstructure, nous sommes capables d'identifier les zones de faible et de forte déformation et d'y associer une valeur de déformation.

De fortes hétérogénéités de déformation, comprises entre 4 et 30%, sont observables sous forme de bandes à l'intérieur des grains ou dans des zones autour de certains joints de grains.
Ces zones de forte déformation correspondent à des zones où des bandes/lignes émergentes sont visibles en surface au MEB. Du fait de la base de mesure de 8 µm, ces bandes localisées ne représentent pas de manière individuelle les bandes de déformations observées au MEB. Cependant, nous pouvons logiquement supposer que ces déformations sont représentatives d'un groupe de ces bandes.

Certains joints de grains sont également fortement déformés. Après 2%, plusieurs fissures sont présentes en surface. Ces fissures augmentent artificiellement la déformation calculée localement car elles augmentent le déplacement mesuré associé aux points matériels du fait de leur ouverture. Cependant, les fissures ont été repérées sur la microstructure grâce au couplage des informations MEB

(fissures) et EBSD (microstructure) et nous sommes donc en mesure de différencier les joints fortement déformés mais non fissurés de ceux qui le sont.
Dans un souci de lisibilité de la figure, seuls les principaux joints fissurés sont signalés sur la **figure III.40** par des cercles roses. Des exemples de micrographies MEB de fissures et des champs associés sont présentés sur les **figures III.41 et III.42**.
Les joints fortement déformés mais non fissurés sont signalés sur la **figure III.40** par les flèches noires pour les joints généraux et par des flèches jaunes pour les CSLs. Ces joints sont répartis à parts égales entre généraux et CSLs et leur inclinaison est tout aussi bien à 45° vis-à-vis de l'axe de traction que perpendiculaire. Dans la mesure où les joints généraux représentent 70% des joints de grains dans notre microstructure et les CSLs 30%, cela signifie que la proportion de joints spéciaux très déformés mais non fissurés est plus importante que celle des joints généraux dans les mêmes conditions. Les joints spéciaux, et notamment les Σ3, sont connus pour être peu sensibles à la fissuration par IASCC, ce qui peut expliquer cette configuration.

Les zones très peu déformées apparaissent en bleu sur la **figure III.40**. Les bandes de ferrite (cercles noires de la **figure III.40**), qui sont des zones à petits grains, en font partie. Les interfaces austénite/ferrite ne sont pas le lieu d'une déformation notable et les grains d'austénite environnant la ferrite ne sont pas plus déformés que d'autres grains de la matrice austénitique.

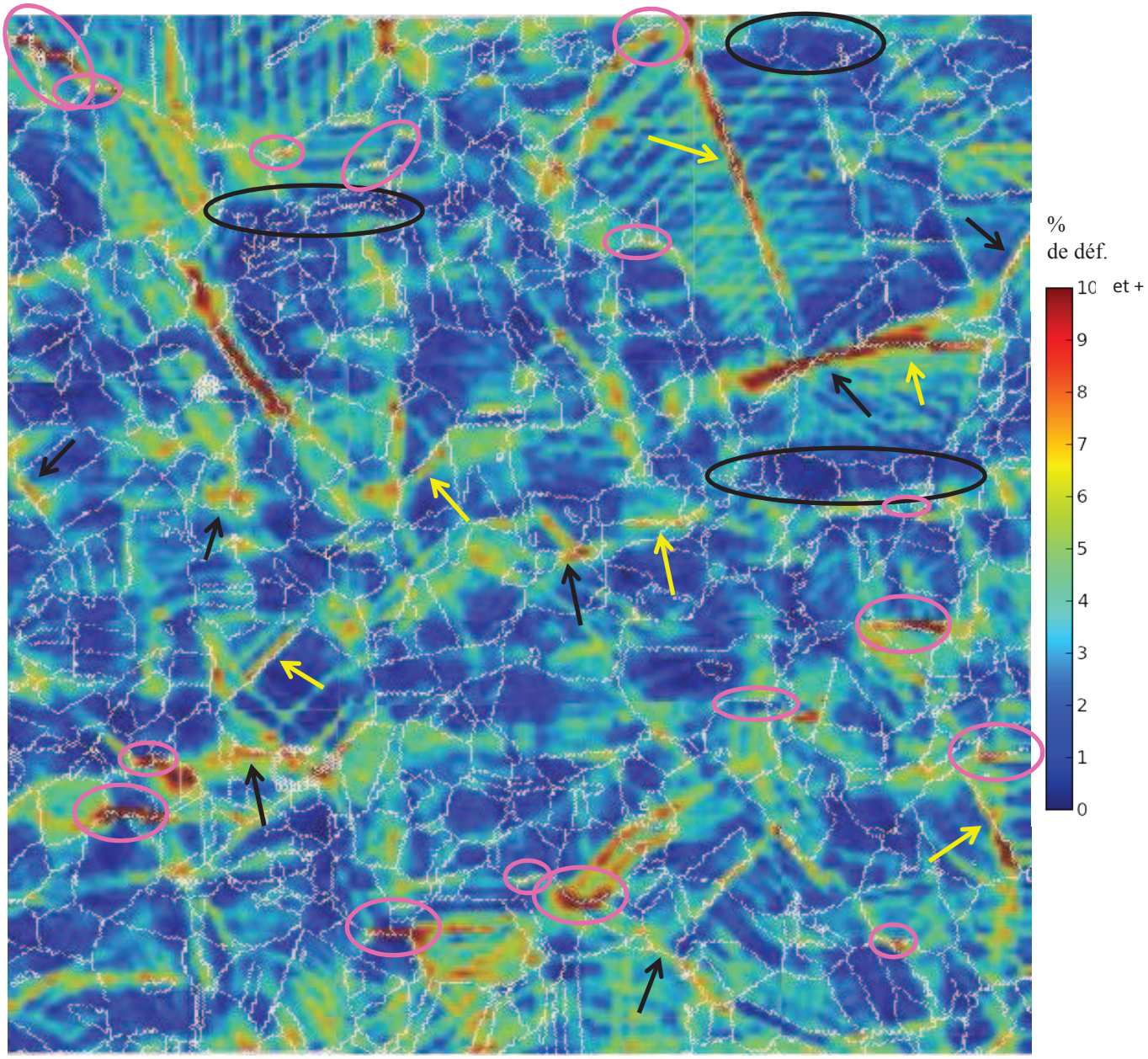


Figure III.40 : Champ de déformation équivalente de Von Mises sur l'acier 304L irradié à 5 dpa et déformé jusqu'à 2% de déformation macroscopique à 2.10^{-7} s^{-1}. Les zones en bleu sont les moins déformées et celles en rouge les plus déformées. Les cercles roses désignent les principaux joints fissurés. Les flèches noires et jaunes signalent respectivement les joints généraux et spéciaux fortement déformés mais non fissurés et les cercles noirs les bandes de ferrite.

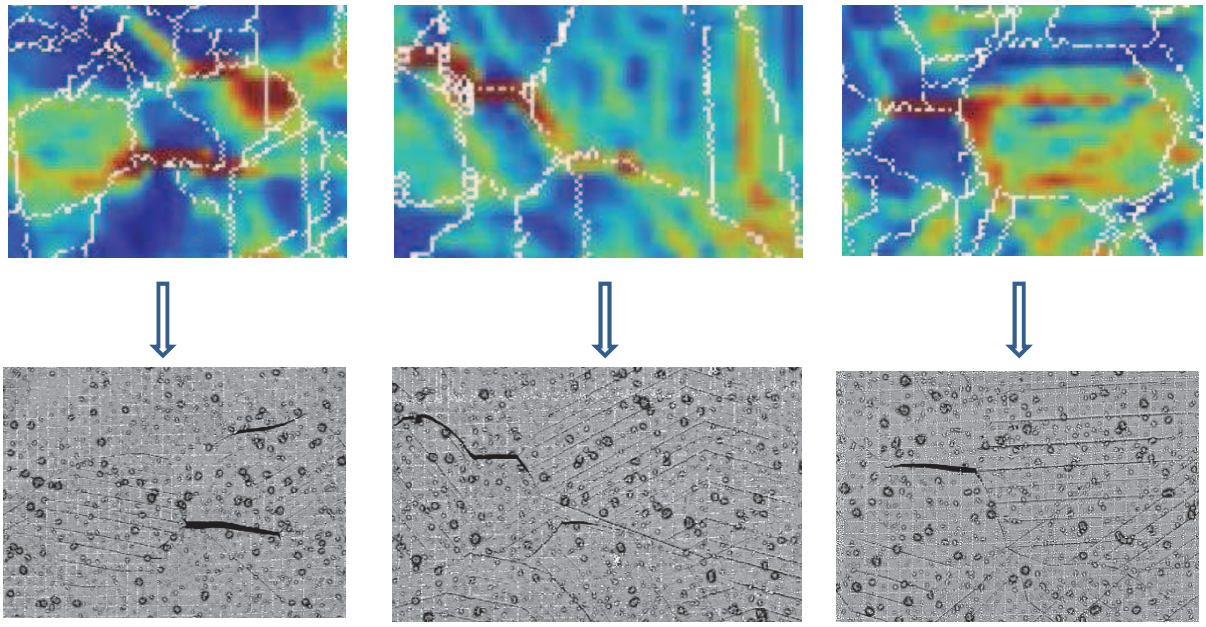


Figure III.41 : Exemples de joints fissurés et champs de déformation associés. Des bandes de déformation émergentes sont reconnaissables en surface des grains qui apparaissent fortement déformés sur les champs.

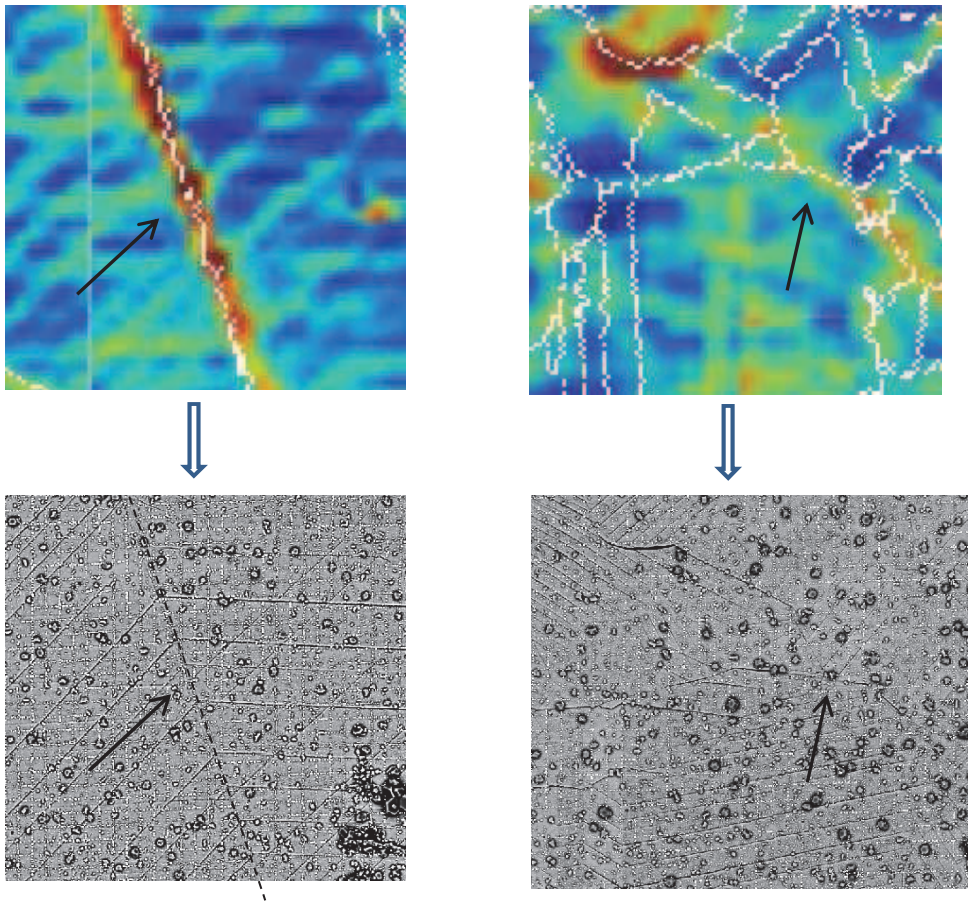


Figure III.41 : Exemples de joints fortement déformés mais non fissurés et champs de déformation associés.

Nous avons comparé les résultats obtenus sur les champs de déformation avec les cartographies de FS. La **figure III.43** illustre ces comparaisons.

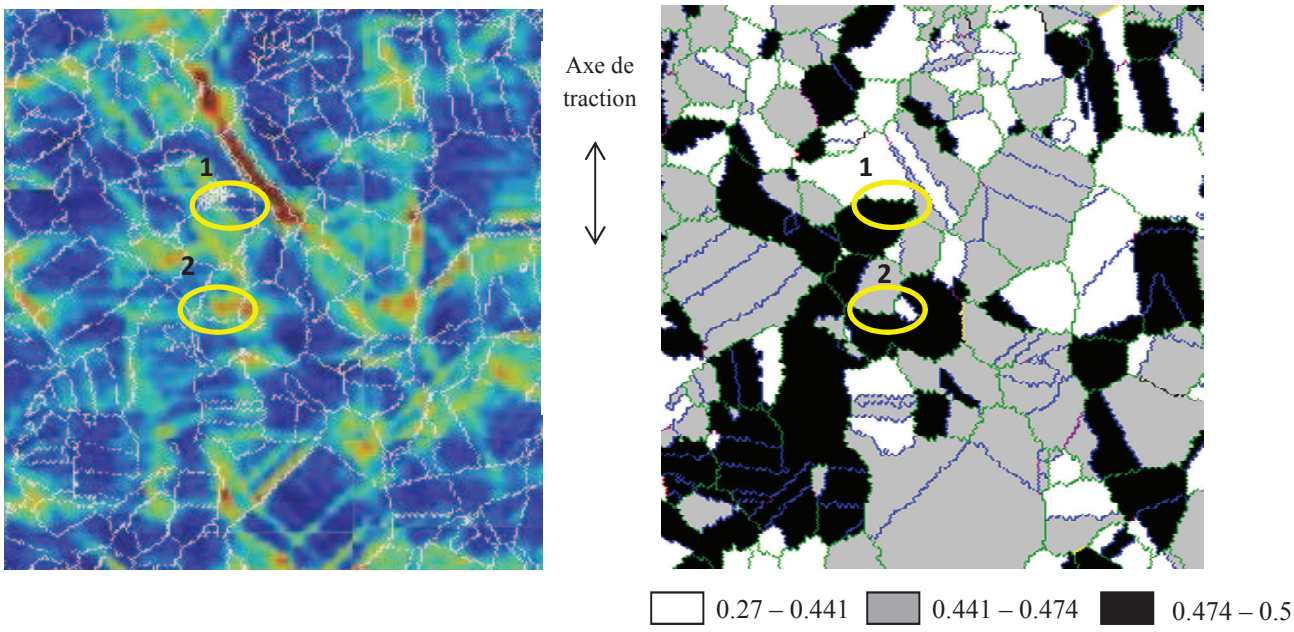


Figure III.43 : Champs de déformation et cartographie de FS associée ; en jaune deux joints généraux perpendiculaires à l'axe de traction et non fissurés.

Les deux joints non fissurés présentés sur la **figure III.43** sont des joints généraux et perpendiculaires à l'axe de traction. Ils possèdent donc deux caractéristiques qui les rendent susceptibles de fissurer. Le joint 1 apparaît comme étant peu déformé (1%) tandis que le joint 2 jouxte une zone déformée d'environ 7 à 8%. Les couples de FS de ces deux joints sont Faible/Fort et Medium/Fort. Un couple Faible/Fort laisse supposer que l'un des deux grains se déforme beaucoup plus facilement que l'autre et donc à une localisation de la déformation liée à l'impossibilité éventuelle de transmettre le glissement au grain de faible FS. Dans le cas du joint 1, en dépit d'une telle situation, il n'y a pas de localisation autour du joint, contrairement au joint 2 pour lequel le couple de FS est Medium/Fort.

Les joints 1, 2, 3 et 5 de la **figure III.44**, sont également très déformés, jusqu'à 30%, alors même que les couples de grains adjacents sont favorablement orientés pour se déformer facilement. La transmission des bandes de déformation de part et d'autre du joint 1 est d'ailleurs bien visible.
Les joints 1, 2 et 3 sont des joints Σ3, ce qui suffirait à justifier que ces joints n'aient pas fissuré. En revanche, le joint 5 est un joint général et quasi-perpendiculaire à l'axe de traction. La déformation autour du joint 5 atteint près de 22%, pourtant il est entouré par deux grains possédants un fort FS. Parmi les joints qui ont fissuré, le joint 10 est d'ailleurs dans une configuration Fort /Fort.

Les joints généraux 9 et 11 n'ont pas fissuré malgré une localisation de la déformation et au moins un grain adjacent de faible FS, mais leur inclinaison est à 45° par rapport à l'axe de sollicitation.

Si l'on regarde les grains possédants un faible FS, plusieurs d'entre eux présentent des systèmes de déformation activés (flèches noires **figure III.44**) tandis que certains grains avec un fort FS paraissent moins déformés (flèches blanches **figure III.44**).

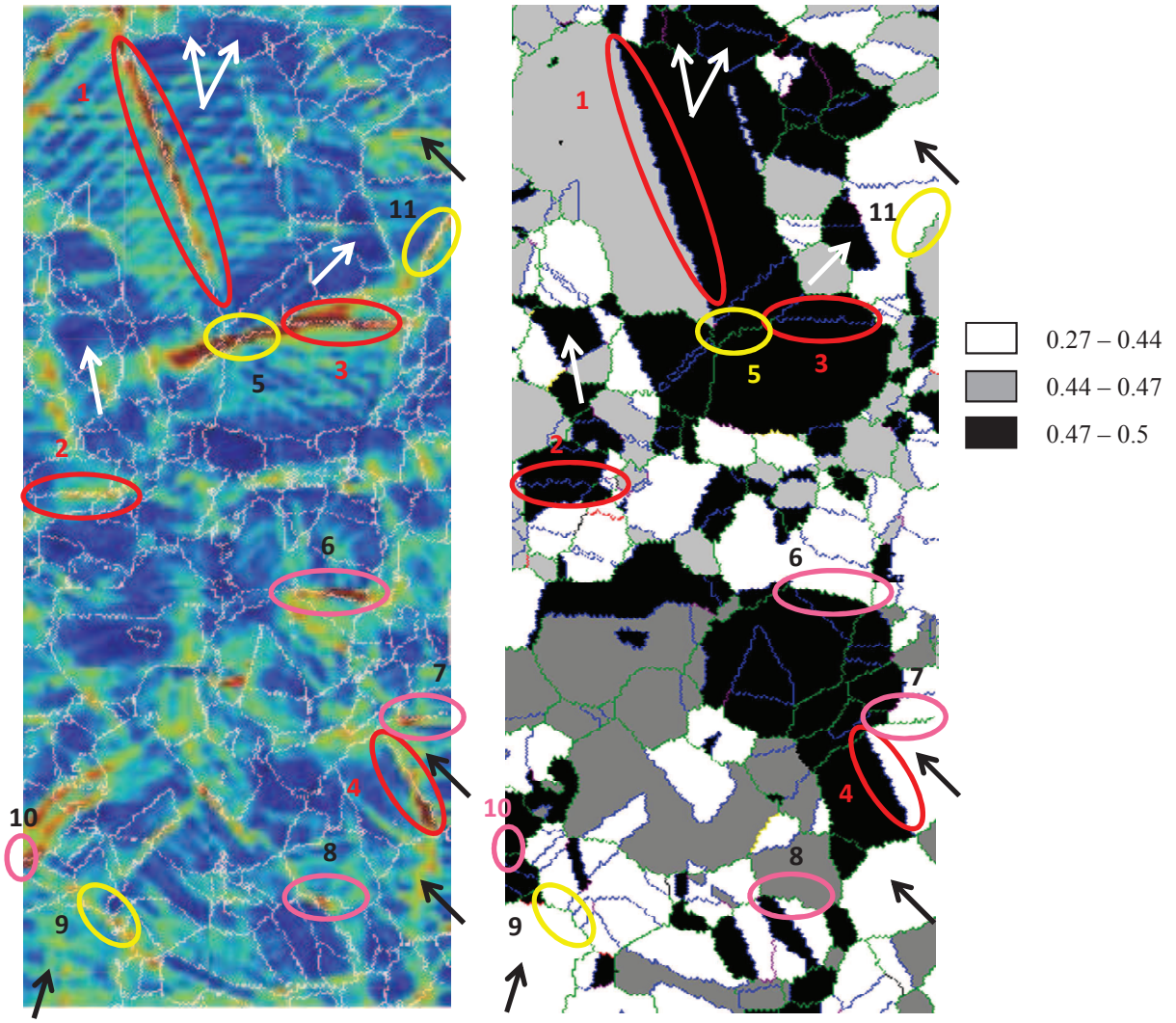


Figure III.44 : Comparaison entre champs de déformation et cartographie de FS. En rouge les joints Σ3 et en jaune les joints généraux qui sont fortement déformés mais non fissurés. Les joints fissurés sont signalés en rose. Les flèches noires indiquent des grains ayant un faible FS mais pourtant déformés ; les flèches blanches indiquent des grains ayant un FS élevé mais pourtant peu déformés.

L'analyse des champs de déformation sur une zone irradiée et déformée macroscopiquement à 2% nous a permis de mettre en lumière une forte hétérogénéité de la déformation locale. Cette localisation apparait sous forme de bandes intragranulaires pouvant atteindre 10% de déformation mais également autour de certains joints de grains avec des valeurs pouvant atteindre plus de 20%.

Nous avons également mis en évidence le fait que la valeur initiale du FS et donc la facilité supposée d'un grain ou couple de grains à se déformer ou non n'est pas systématiquement un bon indicateur du comportement réel sous chargement des grains en question. Il semble donc difficile de relier dans notre cas la localisation de la déformation et les FS de glissement.

Par ailleurs pour établir le lien entre fissuration et localisation de la déformation, il nous faut pouvoir suivre l'évolution de la déformation et de la fissuration de façon concomitante. Pour cela, il est donc

nécessaire de réaliser un essai interrompu (éprouvette E) pour lequel nous pouvons suivre à chaque étape l'évolution du matériau. En comparant avec le comportement d'une zone non irradiée de la même éprouvette, nous pourrons également discuter de l'influence de l'irradiation sur le comportement mécanique local de l'acier 304L.

En choisissant de commencer à 1% de déformation totale, nous nous plaçons dans la situation avantageuse d'être dans la première phase de l'amorçage. Après 1%, la déformation globale est suffisante pour que les mécanismes de déformation plastique locaux se soient mis en place et soient observables et la fissuration est suffisamment faible pour ne pas trop influer sur les mesures de champs (localisation artificielle liée à l'ouverture des fissures, relaxation autour d'elles, …).

Champs locaux de déformation après 1% de déformation totale

- Comportement mécanique du matériau irradié

Le champ de déformation d'une zone irradiée après 1% de déformation totale et superposé à la microstructure est présenté sur la **figure III.45**. La déformation globale de cette zone est bien égale à 1%. Peu de fissures sont présentes après cette première étape. Elles sont signalées sur la **figure III.45** par les cercles roses.

La localisation de la déformation sous forme de bandes intragranulaires est clairement visible après seulement 1% de déformation macroscopique. La déformation atteint localement des valeurs proches de 8% dans certaines zones. De plus, certains joints sont déjà le lieu d'une forte déformation, de 6 à 7%, du fait de la présence de ces bandes intragranulaires dans leur environnement. Ces joints sont signalés en jaunes sur la **figure III.45**.
Si la déformation est bien hétérogène localement, la répartition de cette hétérogénéité est en revanche homogène sur l'ensemble de la zone irradiée.

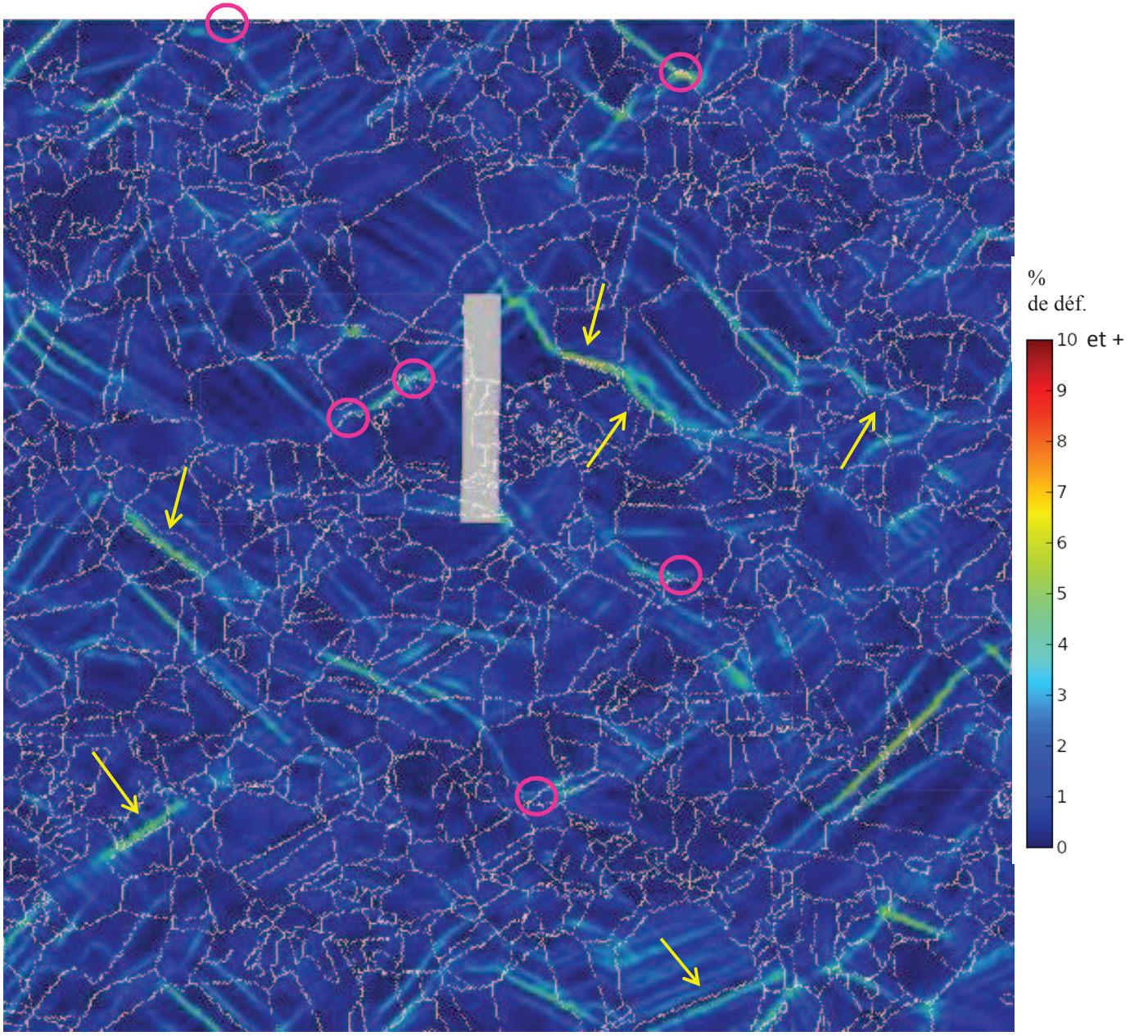


Figure III.45 : Champ de déformation équivalente de Von Mises après 1% de déformation macroscopique à 2.10^{-7} s^{-1}sur l'acier 304L irradié à 5 dpa. Les cercles roses désignent les principaux joints fissurés. Les flèches jaunes indiquent les joints déformés non fissurés (CSLs ou généraux).

De la même façon qu'après 2% de déformation, les grains les plus déformés ne sont pas nécessairement ceux qui présentent un fort FS de glissement et des systèmes de déformation ont été activés dans des grains présentant un faible FS (**figure III.46**).
L'activation des systèmes de déformation dans un grain et donc la déformation intragranulaire résultante dépend certes de leur facilité à s'activer, fonction de l'orientation cristallographique du grain par rapport à l'axe de traction mais également de son environnement dans le polycristal et de la façon dont les grains avoisinants se comportent sous la sollicitation. De plus, les facteurs Schmid considérés ici ont été calculés pour un mécanisme de déformation par glissement, qui est le mécanisme le plus rapporté dans la littérature pour ce type de sollicitation, en température et sur matériau irradié à une dose supérieure à 0,1 dpa (cf. **figure I.27**).

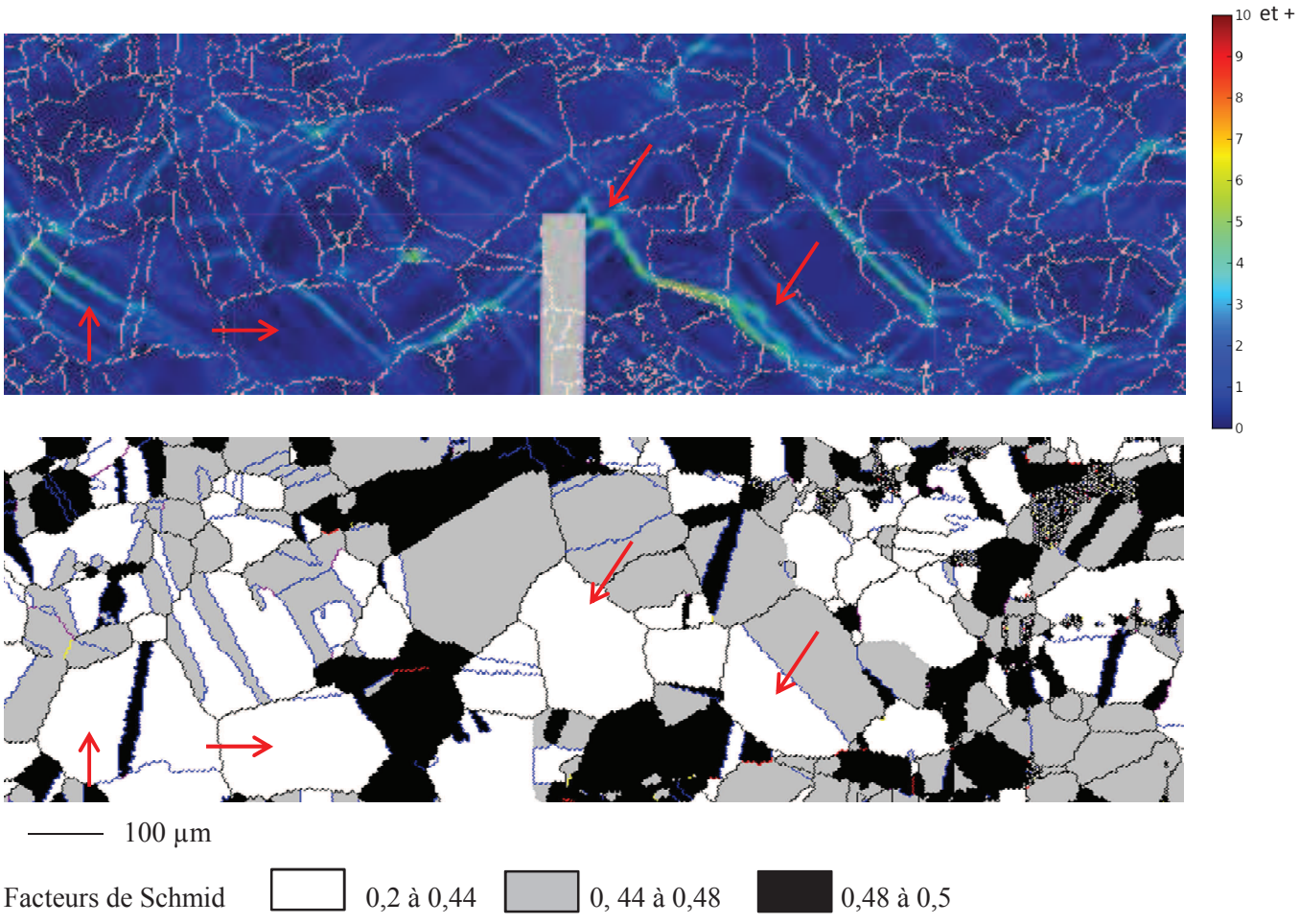


Figure III.46 : Comparaison entre le champ de déformation et les cartographies EBSD des facteurs de Schmid. Les flèches rouges indiquent des grains avec un faible FS mais qui sont parmi les plus déformés après 1% de déformation totale sur la zone irradiée.

- Comparaison après 1% de déformation entre matériau irradié et non irradié

Le champ de déformation de la zone non irradiée montre un comportement différent de celui de la zone irradiée (**figure III.47**), à l'échelle intragranulaire mais également au niveau de la zone globale étudiée.

En effet, la déformation globale de cette zone est égale à 2%, contre 1% pour la zone irradiée. Au vu des propriétés mécaniques du 304L irradié en comparaison du même matériau non irradié, la déformation plus importante de la zone non irradiée n'est pas un résultat surprenant. La limite d'élasticité du matériau non irradié à 325°C est d'environ 200 MPa tandis que celle de la zone irradiée a été estimée (à partir des valeurs de dureté) à environ 800 MPa. Les deux parties sont parfaitement solidaires puisqu'il s'agit initialement du même matériau, aussi lorsque le substrat entre en plasticité, il impose la déformation de la partie irradiée. Cependant, celle-ci, plus dure que le reste de la zone utile, tend à moins se déformer que les zones non irradiées qui l'entourent.

Au niveau local, le champ de déformation de la zone non irradiée montre également une hétérogénéité de déformation, mais cette hétérogénéité est plus diffuse et se situe plus à l'échelle du grain ou du groupe de grains. On ne reconnaît pas de bandes de déformation localisée intragranulaires comme on pouvait en rencontrer dans la zone irradiée, même si localement, la déformation peut atteindre 9,5%, ce qui est supérieur à la valeur maximale enregistrée sur la zone irradiée. La déformation globale de la partie non irradiée étant plus élevée, cela explique que la valeur maximale enregistrée sur la zone non irradiée puisse être supérieure à celle de la zone irradiée. En normalisant les valeurs locales par la déformation globale, nous avons constaté que celles-ci sont plus fortes dans la zone irradiée de l'éprouvette.

Les champs de déformation prouvent que le comportement de la zone irradiée est significativement différent de celui de la zone non irradiée. Une localisation de la déformation est d'ores et déjà présente après une faible déformation macroscopique sur la zone irradiée. Les différences de comportement quantifiées par corrélation d'images sont cohérentes avec ce que l'on peut observer en surface de l'éprouvette entre les zones irradiée et non irradiée après 1% de déformation (**figure III.48**).

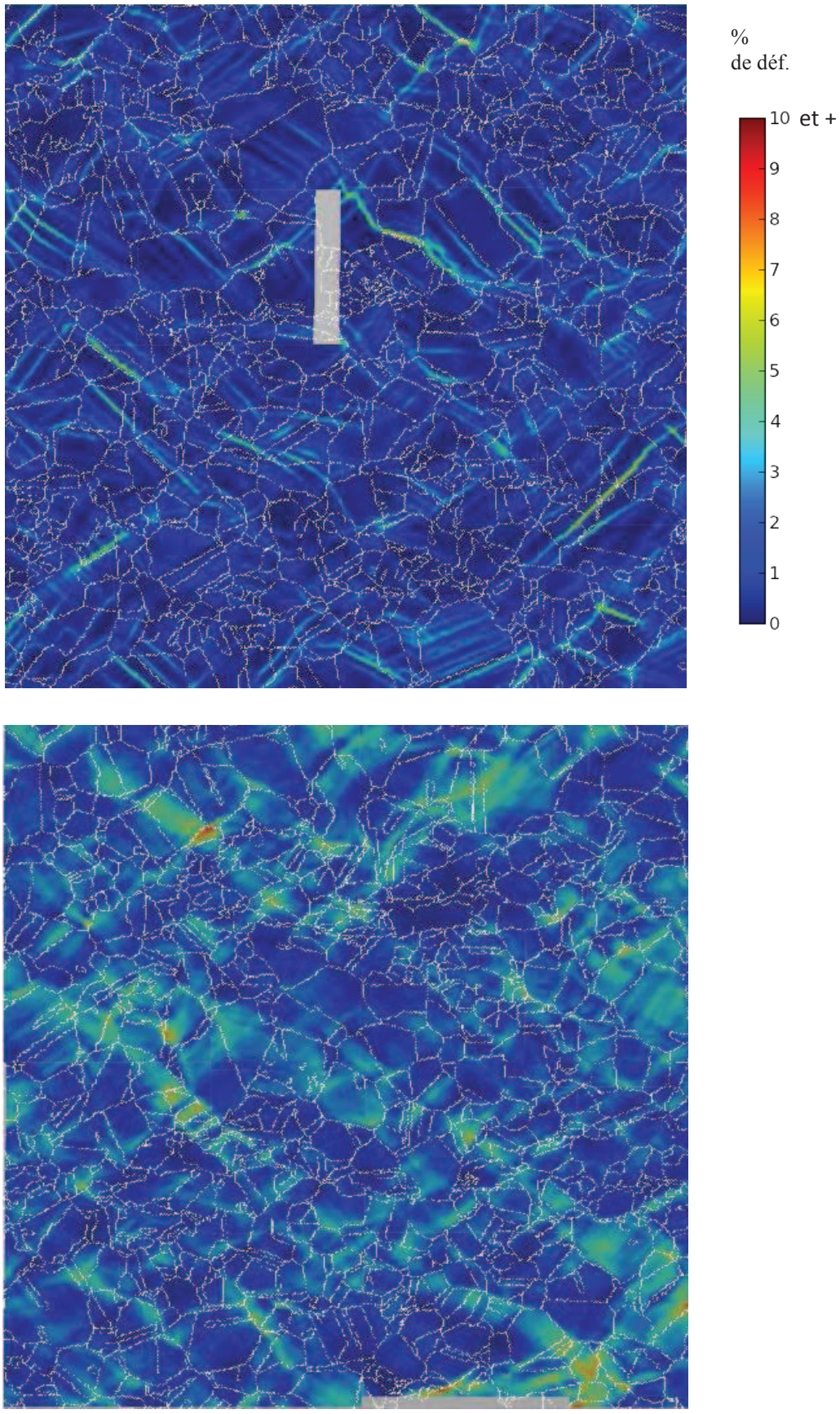
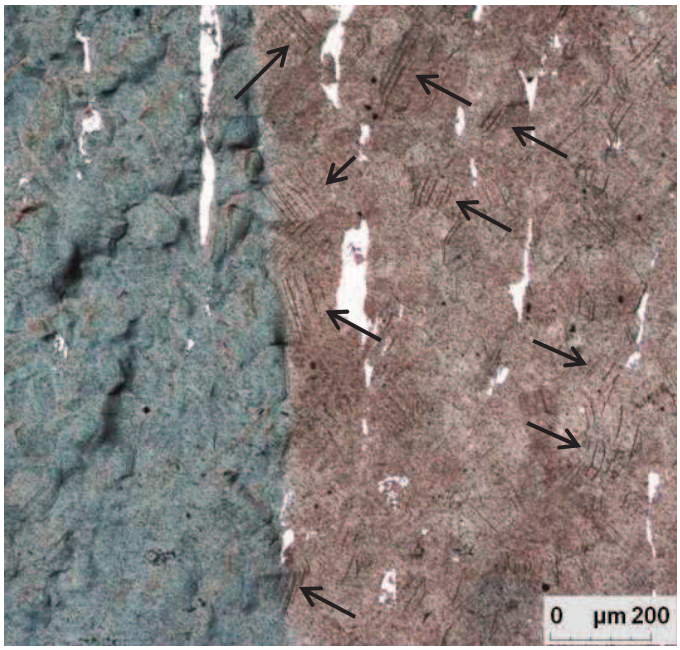


Figure III.47 : Champs de déformation équivalente de Von Mises après 1% de déformation à 2.10^{-7} s^{-1} pour (a) une zone irradiée (5 dpa) et (b) une zone non irradiée de l'éprouvette E

Zone non irradiée



Zone irradiée

Figure III.48 : Image par microscopie optique de l'interface irradiée / non irradiée en surface de l'éprouvette E après 1% de déformation macroscopique –à droite la zone irradiée et à gauche la zone non irradiée. Les bandes blanches sont des bandes de ferrite. Les flèches noires désignent les bandes de déformation visibles sur la zone irradiée.

La distribution des déformations calculées en chaque point de corrélation sur chacune des deux zones est présentée sur la **figure III.49**. La déformation globale de la zone non irradiée étant plus élevée que celle de la zone irradiée, ces distributions ont été normalisées par la déformation moyenne de chaque zone.

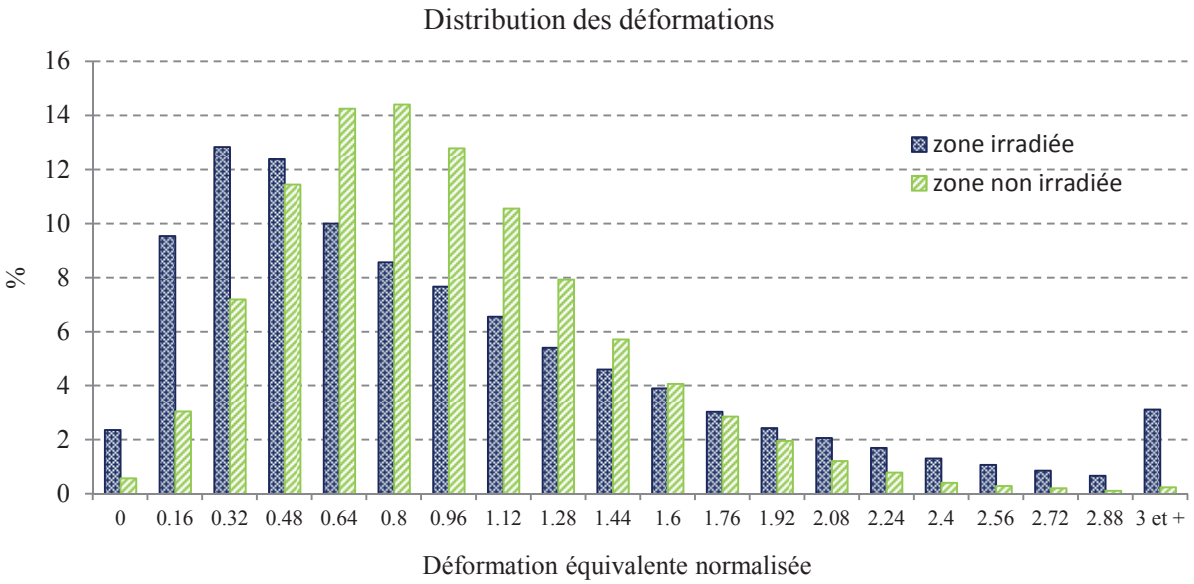
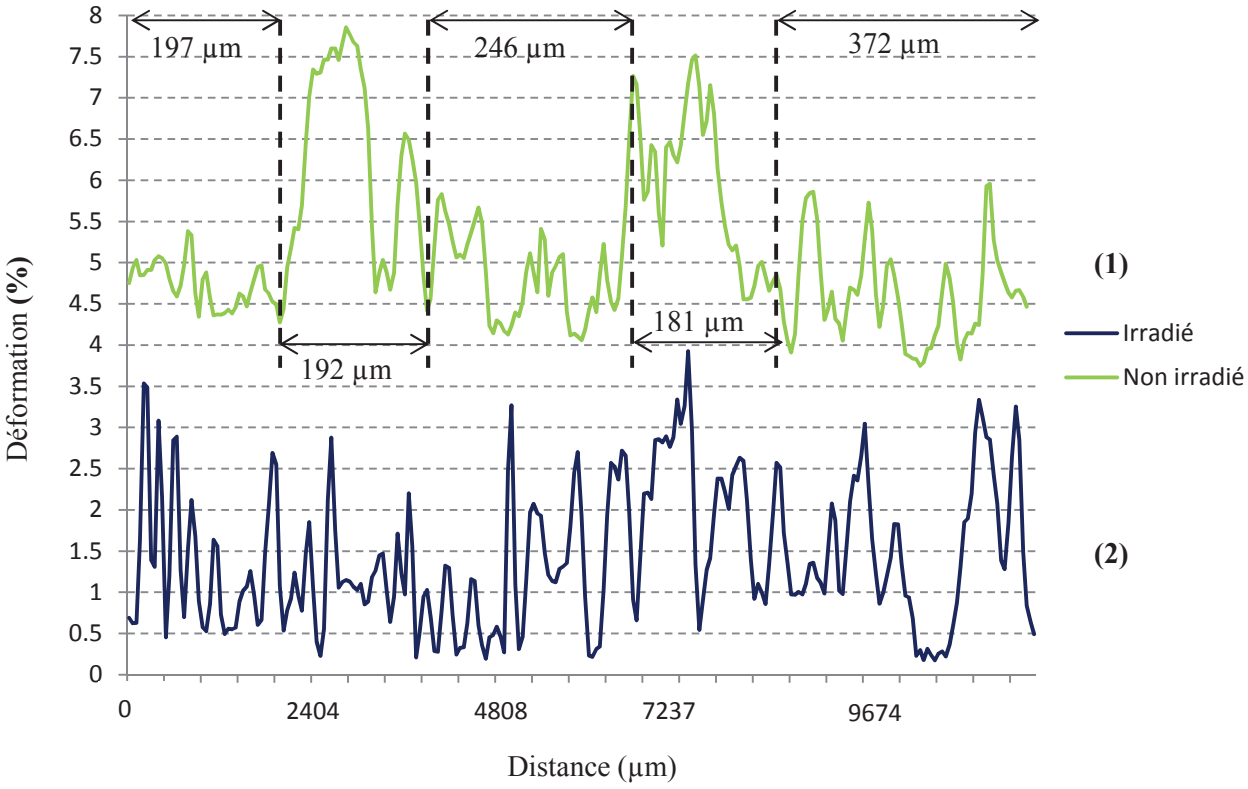


Figure III.49 :Distributions normalisées des déformations locales sur les zones irradiée et non irradiée de l'éprouvette E après 1% de déformation macroscopique

Nous constatons que la distribution des déformations de la zone non irradiée est centrée autour de 0,8. Le profil de distribution pour la zone irradiée est en revanche décalé vers les valeurs extrêmes et notamment vers les faibles valeurs de déformation avec en parallèle une proportion élevée de déformations supérieures à 3 fois la valeur moyenne. En effet, la proportion des valeurs les plus fortes, *i.e.* celles qui sont au-delà de 1,7 fois la valeur moyenne, est supérieure sur la zone irradiée par rapport au matériau non irradié. Cela est particulièrement marqué dans la catégorie « 3 et + ». La valeur normalisée maximale est de 8 pour la zone irradiée et de seulement 4,5 pour la zone non irradiée.
Du fait de la quasi-absence de fissures sur la zone étudiée, ce profil de distribution n'est pas perturbé par des valeurs élevées « artificielles » causées par les fissures et ces différences de distribution sont donc exclusivement due à l'irradiation du matériau et à la localisation des mécanismes de plasticité.
La même tendance sur le décalage de la répartition entre irradiée et non irradié est constatée pour les valeurs de déformation les plus faibles.

Ces distributions mettent en évidence le fait que les écarts de valeurs de déformation locale, *i.e.* l'amplitude de la distribution, sont plus importants pour la zone irradiée mais elles ne donnent pas d'information sur la répartition spatiale de ces valeurs. Nous avons tracé des profils de déformation le long d'une ligne pour ces deux zones (**figure III.50**), de façon à discuter de l'alternance des fortes et des faibles déformations dans les deux cas.
Le profil de la zone non irradiée a été volontairement décalé de 4% pour une plus grande lisibilité de la figure. Les lignes correspondantes sur les champs de déformation sont représentées sur la **figure III.50 b)**.

(a) Profil de déformation sur une ligne– comparaison irradié vs non irradié



(b)

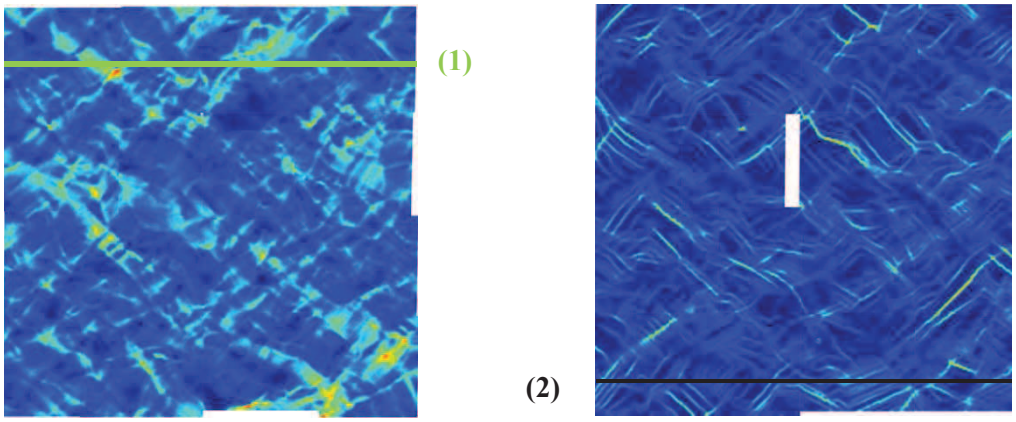


Figure III.50 : (a) Profils sur une ligne des déformations (non normalisées) des zones irradiée et non irradiée après 1% de déformation macroscopique et (b) lignes correspondantes sur les champs de déformation

Les profils confirment que l'alternance de fortes et faibles déformations est beaucoup plus rapide dans le cas de la partie irradiée. Sur la zone non irradiée, les variations des valeurs de déformation ont une fréquence moins élevée avec un profil en forme de créneau d'une largeur proche de 200 µm. La taille moyenne des grains est de 40 µm et ces profils confirment que les déformations de la zone non irradiée se situent plus à l'échelle du groupe de grains.
Au contraire, les rapides variations sur la zone irradiée démontrent que des zones très étroites qui localisent fortement la déformation jouxtent des parties peu ou pas déformées. Ces profils complètent la distribution des déformations en apportant une précision sur leur localisation spatiale car ce n'est pas tant les fortes valeurs de déformation qui semblent importantes dans la sensibilité des matériaux à l'IASCC mais bien leur répartition dans la microstructure et par là même les contraintes qu'elles génèrent localement sur les joints de grains.

- Evolution du champ de déformation et de la fissuration avec l'augmentation du taux de déformation macroscopique

Nota : Les étapes dites à 5 puis 10% de déformation correspondent à un incrément de déformation entre 1 et 5% pour la seconde étape et entre 5 puis 10% de déformation pour la troisième et dernière étape de l'essai. Les champs de déformation présentés ci-après correspondent à ces incréments, il ne s'agit pas des cartographies de déformation pour un total de 5% et 10% de déformation macroscopique.

Les champs de déformation des zones irradiées et de leurs homologues non irradiées à chacune des étapes de l'essai séquentiel sont donnés sur la **figure III.51**. On y retrouve les différences de répartition des déformations entre le matériau irradié et non irradié. Elles mettent également en évidence l'évolution des champs de déformation avec l'augmentation du taux de déformation.
Si la première étape présente des différences flagrantes sur la répartition des déformations au sein du matériau entre les deux états, ces différences tendent à s'estomper avec l'augmentation de la déformation macroscopique appliquée.

Le substrat, qui se déforme plus facilement, influence de plus en plus la réponse de la couche irradiée avec une déformation qui se globalise à l'échelle du grain ou du groupe de grains. Des différences nettes sur la localisation de la déformation restent néanmoins visibles.

L'évolution de la fissuration sur la zone irradiée entre 1 et 5% puis entre 5 et 10% est illustrée sur les **figures III.52** et **III.53**.
L'augmentation du nombre de fissures avec la déformation est cohérente avec les résultats de l'étude MEB sur les réseaux de fissures.
Il apparaît que les joints ayant fissuré après 5% de déformation n'étaient pas nécessairement ceux qui présentaient une localisation directe de la déformation après la première sollicitation. En revanche, ils avaient tous à proximité des zones de fortes déformations. L'environnement proche semble être primordial dans la fissuration des joints de grains, plus que la localisation sur le joint en tant que telle.

L'analyse entre 5 et 10% de déformation macroscopique est plus délicate car bon nombre de joints fissurés après 10% présentaient déjà à 5% les prémices d'une fissuration. Ces zones apparaissaient donc déjà comme déformées du fait d'un début d'ouverture de ces joints.

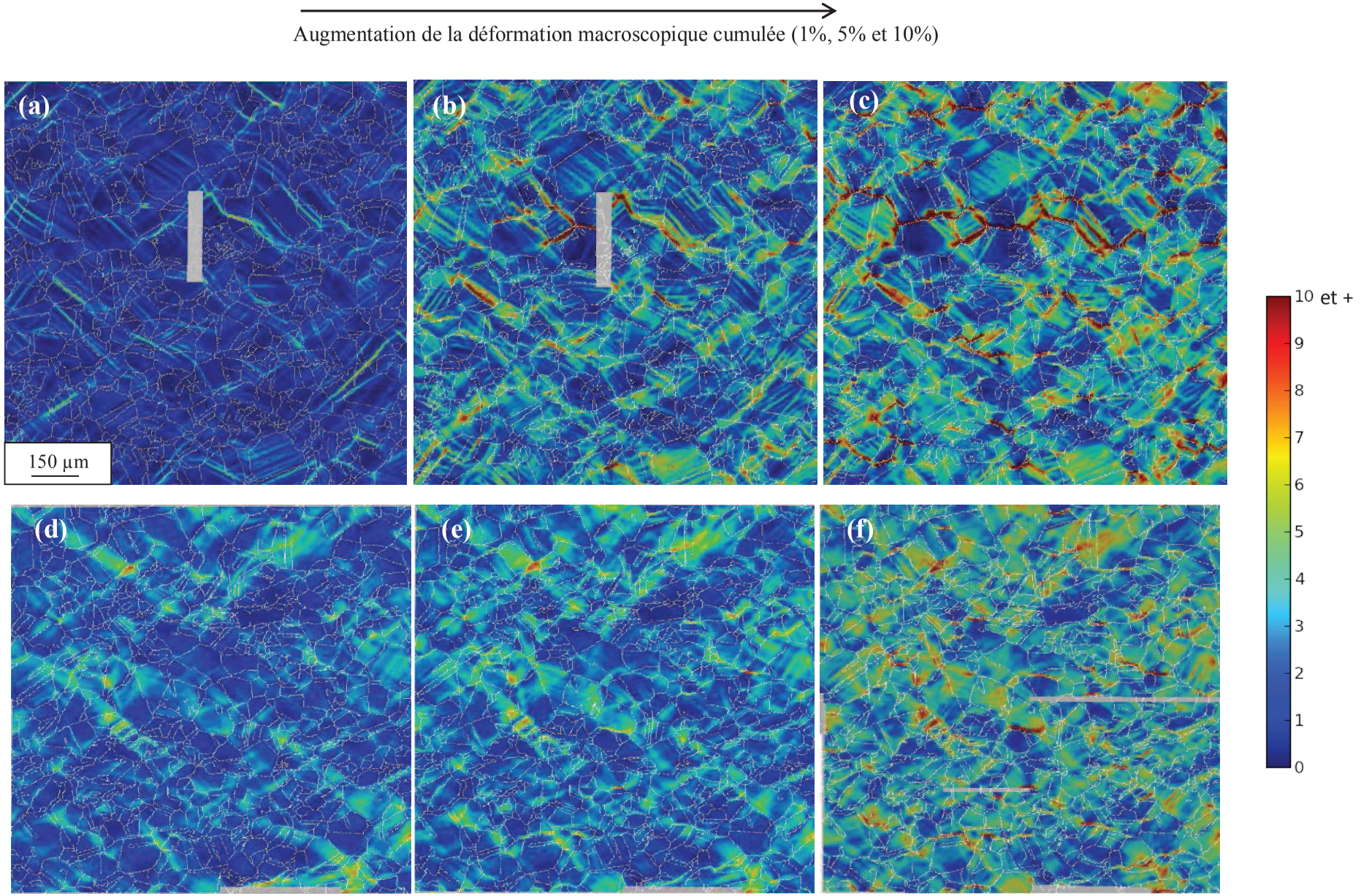


Figure III.51 : (a), (b) et (c) Champs de déformation après 1%, 5% et 10% de déformation totale sur la zone irradiée ; (d), (e) et (f) Champs de déformation après 1%, 5% et 10% de déformation totale sur la zone non irradiée

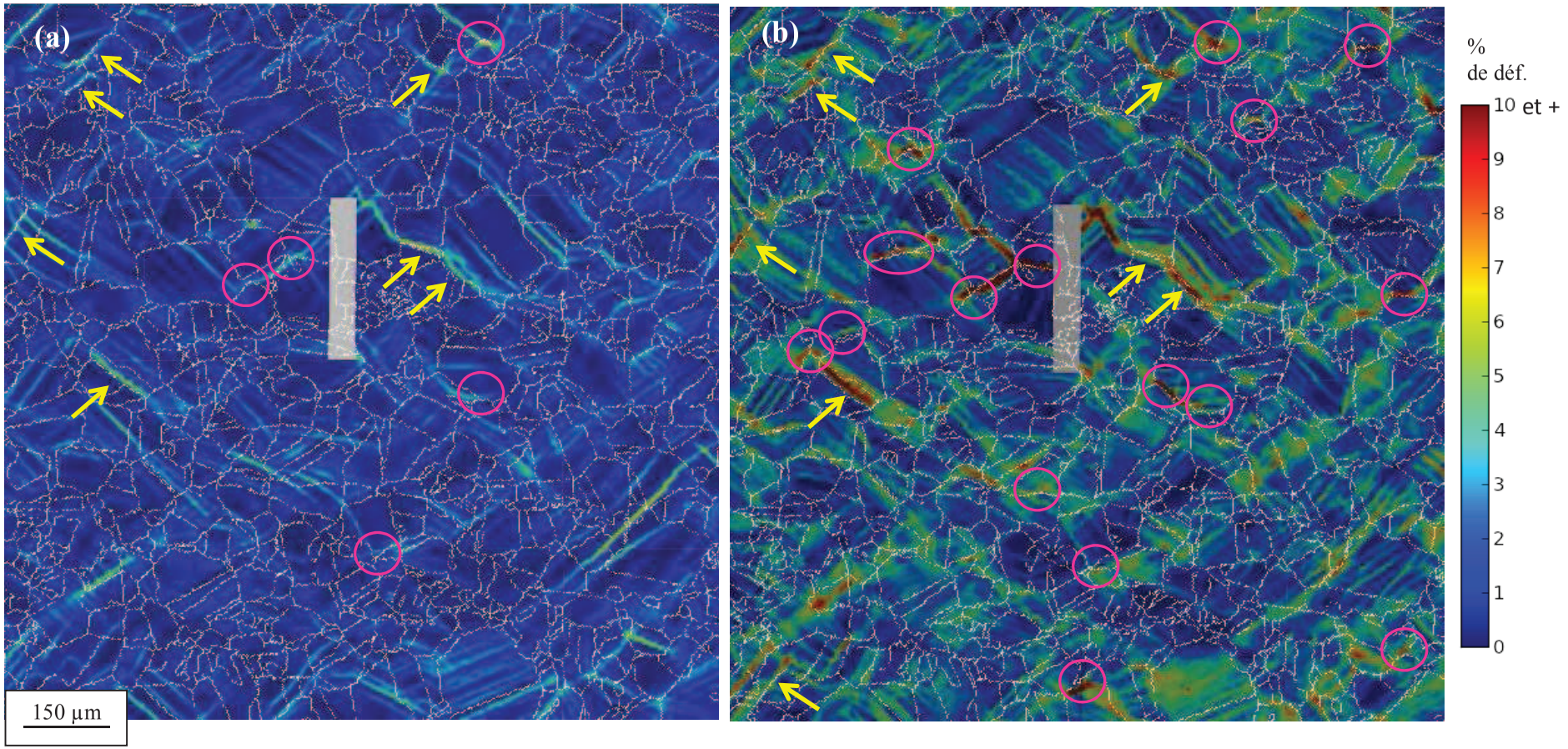


Figure III.52: Déformation équivalente de Von Mises sur la zone irradiée (a) après 1% et (b) après 5% - les cercles roses signalent les principales fissures et les flèches jaunes les joints déformés mais non fissurés

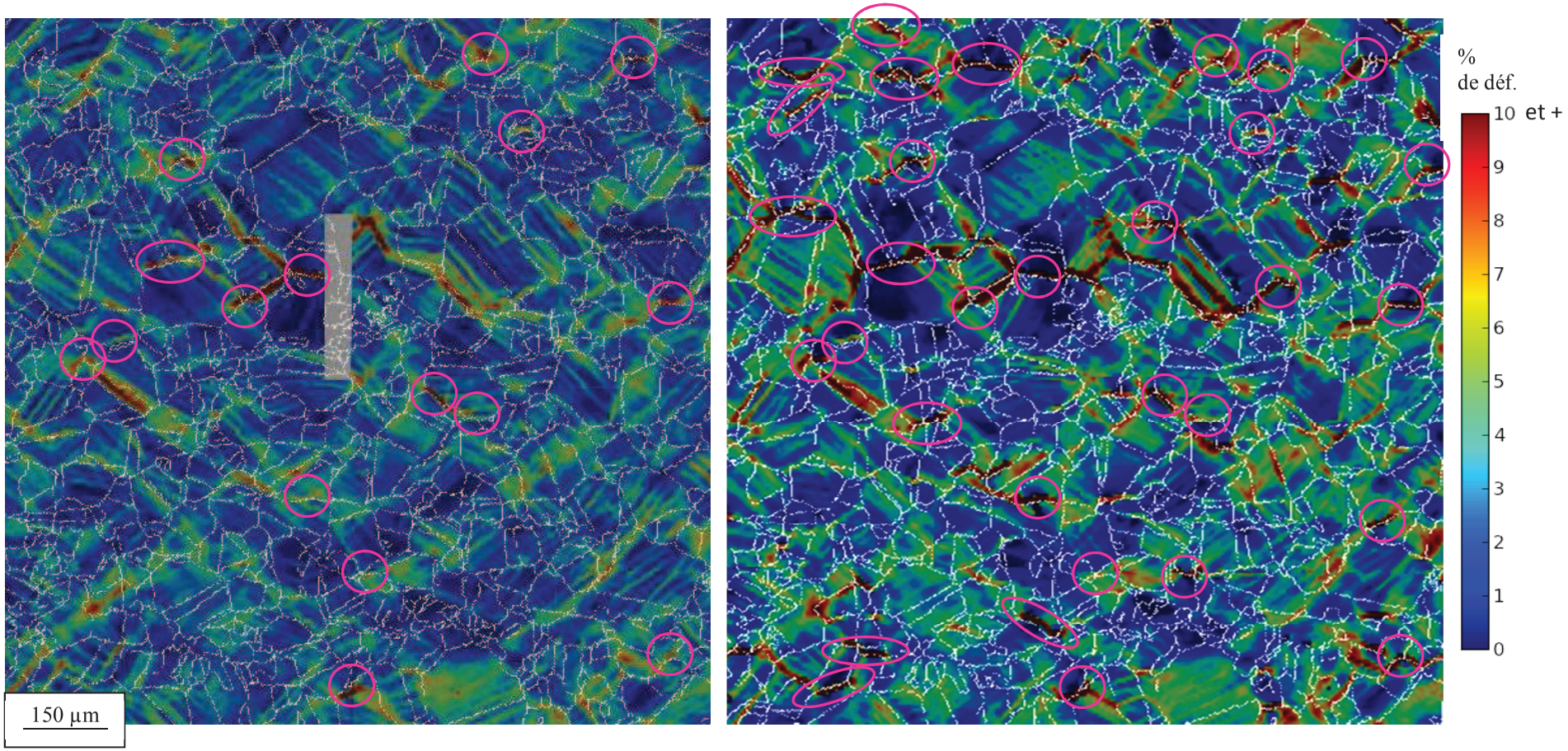


Figure III.53: Déformation équivalente de Von Mises sur la zone irradiée (a) après 5% et (b) après 10% - les cercles roses signalent les principales fissures

Les distributions des déformations sur les zones irradiée et non irradiée après 5 et 10% de déformation macroscopique sont présentées sur la **figure III.54**. De la même façon que précédemment, ces distributions sont normalisées par la déformation moyenne de chaque zone.
Après 5 et 10% de déformation, de nombreuses fissures sont présentes en surface. Les valeurs « artificielles » de déformation liées avec certitude à la fissuration ont été systématiquement retirées.

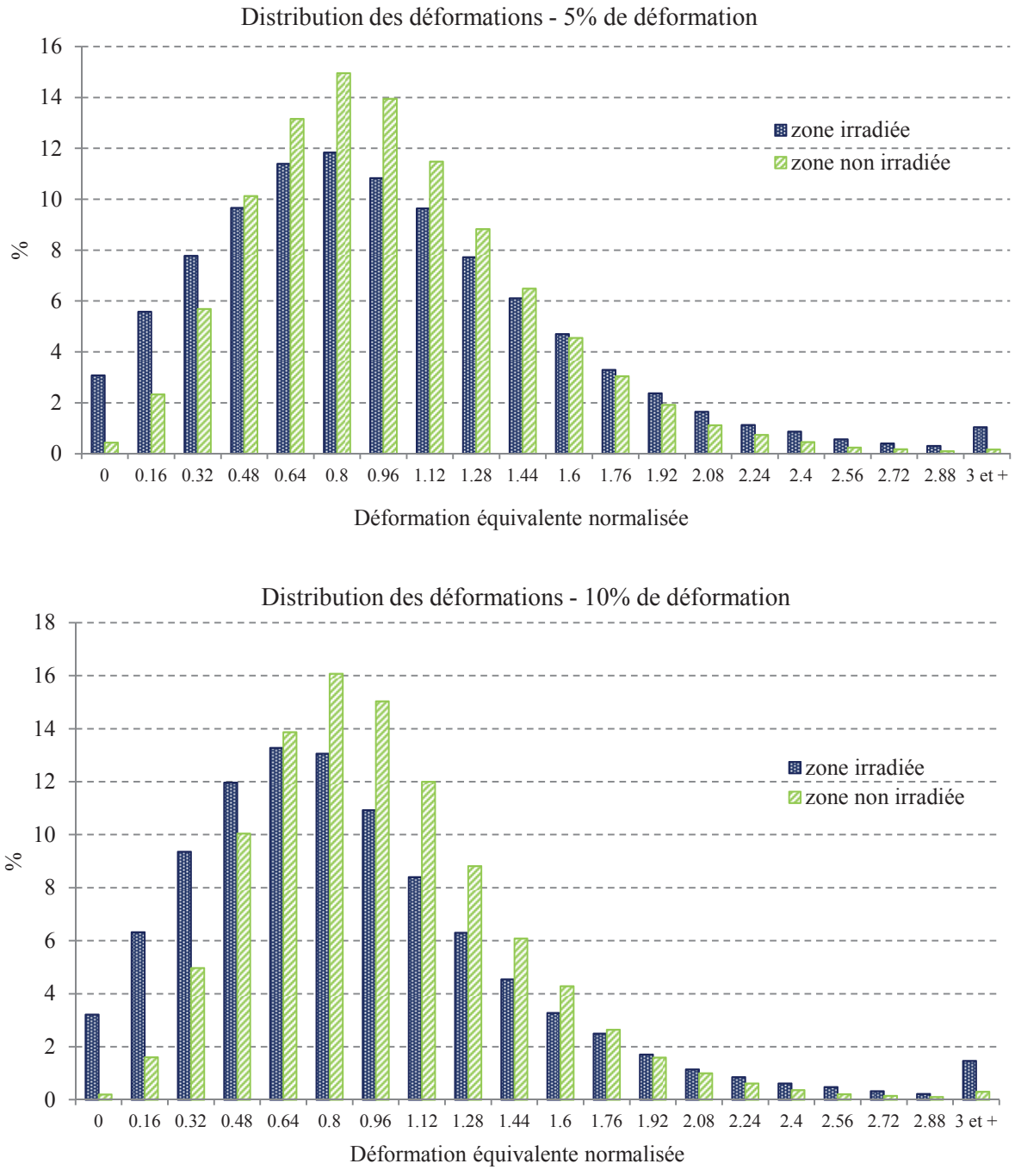


Figure III.54: Distributions normalisées des déformations après 5% (2ème étape) et 10% (3ème étape) de déformation macroscopique pour les zones irradiée et non irradiée de l'éprouvette E

Les distributions après 5 et 10% de déformation confirment que les valeurs extrêmes sont toujours plus importantes sur la zone irradiée. Nous constatons également que les distributions de la zone irradiée tendent à se recentrer et à ressembler à celles de la zone non irradiée. Elles apportent ainsi une confirmation quantitative au phénomène que l'on observait sur les cartographies de champs, à savoir que la déformation sur la zone irradiée semblait plus diffuse et plus moyennée par grain avec l'augmentation de la déformation macroscopique, autrement dit que le comportement à l'échelle locale de la zone irradiée est de plus en plus influencé par celui du substrat avec l'augmentation de la déformation appliquée.

Résumé

Le matériau irradié aux protons a été utilisé pour mener des essais de CSC en milieu primaire simulé à 350°C.

De façon à coupler les données microstructurales du matériau aux champs locaux de déformation, nous avons cartographié par EBSD puis déposé des microgrilles d'or par lithographie électronique sur une surface élémentaire représentative de notre matériau.
Cette surface élémentaire représentative, estimée à 1 mm^2, a été déterminée à partir de l'analyse du réseau de fissures de deux éprouvettes irradiées respectivement à 5 et 10 dpa et testées préalablement à cette étude.

Les éprouvettes ainsi préparées ont été testées en traction lente sous chargement monotone ou séquentiel à différents taux de déformation macroscopique.
Des fissures intergranulaires sont apparues dès 1% de déformation macroscopique. Les joints de grains fissurés sont systématiquement des joints généraux, majoritairement orientés perpendiculairement à l'axe de traction.
L'analyse des réseaux de fissures a permis de déterminer l'influence du chargement, de la dose et du taux de déformation sur la longueur, l'ouverture et la densité de fissures. Il apparaît que la longueur et l'ouverture moyennes des fissures ne varient pas en fonction du taux de déformation pour les chargements monotones à partir de 2% de déformation tandis que leur densité augmente. L'étape entre 1 et 2% de déformation macroscopique constitue une étape clé de l'amorçage avec une forte augmentation de l'ouverture. La longueur moyenne des fissures reste en revanche toujours constante avec une valeur de l'ordre de 20 µm ce qui correspond à la longueur moyenne d'un joint de grains dans cette microstructure.
Au contraire, sous chargement séquentiel, les longueurs et ouvertures moyennes augmentent avec le taux de déformation. Il en est de même pour la densité bien que dans une moindre mesure en comparaison de l'augmentation enregistrée pour les chargements monotones. Il est en effet plus favorable pour le système de propager les défauts existants suite aux déchargements et rechargements successifs, ce qui explique cette plus grande ouverture et propagation en surface au détriment de la création de nouvelles fissures.
Du point de vue de l'ouverture et de la longueur, un chargement séquentiel s'avère donc plus pénalisant qu'un chargement monotone.
Enfin, l'augmentation de la dose entre 5 et 10 dpa ne modifie pas la densité de fissures mais les longueurs et ouvertures moyennes augmentent avec l'augmentation de la dose.
Les profondeurs des fissures observées sur les éprouvettes déformées à 10% après un chargement monotone et séquentiel sur matériau irradié à 5 dpa ne dépassent pas ou peu la zone irradiée. Après un chargement monotone sur matériau irradié à 10 dpa, quelques fissures sont plus profondes bien que majoritairement comprises dans la zone irradiée.

Concernant l'amorçage de la fissuration par IASCC, des travaux précédents [West 2010, McMurtrey 2011] ont mis en évidence une corrélation entre fissuration intergranulaire en milieu REB ou eau supercritique et présence d'un grain ayant un faible facteur de Schmid (FS) de glissement d'un côté du joint de grains. Nous avons repris la même méthodologie pour confirmer ou infirmer cette hypothèse

sur les éprouvettes irradiées à 5 dpa et testées en milieu primaire simulé. Les résultats montrent qu'entre 60 et 73% des joints fissurés sont adjacents à un grain présentant un faible FS. Cependant la nature du joint et son inclinaison, perpendiculaire à l'axe de traction, sont des paramètres plus importants que la présence d'un faible FS et plus de 85% des joints généraux, perpendiculaires et entourés par un faible FS ne fissurent pas. Ces critères ne semblent donc pas suffisants pour décrire l'amorçage de l'IASCC.

Si les FS ne sont pas adaptés pour rendre compte de l'évolution de la texture sous chargement et de l'hétérogénéité de la déformation, la technique de microextensométrie par corrélation d'images permet de décrire correctement les champs locaux en utilisant un marquage approprié.
Les cartographies des champs de déformation obtenues sur le matériau irradié montrent une forte hétérogénéité intragranulaire, localisée sous forme de bandes, avec des déformations atteignant jusqu'à 30% pour une déformation macroscopique de 2%. La localisation se retrouve également autour de certains joints de grains, et notamment des joints de type Σ3, peu sensibles à l'IASCC.
A l'inverse, les champs de déformation sur le matériau non irradié montrent une hétérogénéité à l'échelle du grain ou du groupe de grains.
Grâce à l'essai séquentiel, nous avons pu suivre l'évolution de la déformation conjointement à l'évolution de la fissuration. Il est apparu que les joints fortement déformés ne sont pas nécessairement ceux qui fissurent et qu'à l'inverse des joints très peu déformés au cours de la première étape fissuraient après rechargement de l'éprouvette. Par contre, les joints fissurés présentent tous dans leur voisinage une zone fortement déformée.
La distribution des déformations locales calculées en chaque point de corrélation (distribution normalisée par la déformation macroscopique de la zone d'étude) est décalée vers les valeurs extrêmes (basses et hautes) pour la zone irradiée comparée à la zone non irradiée. L'alternance entre ces fortes et faibles valeurs est également observée sur des distances beaucoup plus courtes. Cette configuration spatiale, très localisée, est susceptible de générer de fortes contraintes sur les joints de grains. L'état local de contrainte sur le joint de grains semble primer sur son niveau de déformation pour amorcer la fissuration.

Summary

The proton irradiated 304L stainless steel was used to carry out SCC tests in simulated primary environment at 350°C.

To couple microstructural data with local deformation fields, we scanned by EBSD and then deposited gold microgrids by electronic lithography on a representative elementary surface of our material.
This representative elementary surface, estimated of 1 mm^2, was determined from the analysis of the cracking network of two samples irradiated respectively at 5 and 10 dpa.
Slow strain rate tests were performed on the as-prepared samples under monotonic or sequential loading at various levels of macroscopic deformation.

Intergranular cracks appeared as soon as 1 % of macroscopic deformation. The cracked grain boundaries are systematically general boundaries, mainly oriented perpendicularly to the tensile axis.
The analysis of the cracking networks allowed determining the influence of the loading mode, the dose and the macroscopic deformation on the crack length and opening and the crack density. It seems that the average length and opening of the cracks do not vary with the deformation level from 2 % for the monotonic loading, whereas their density increases. The step between 1 and 2 % of macroscopic deformation is a key stage for the initiation with a strong increase of the average opening. On the other hand, the average length remains always constant with a value of the order of 20 µm, which corresponds to the average grain boundary length in this microstructure.
On the contrary, under a sequential loading, the mean length and opening increase. The crack density increases as well as although to a lesser extent in comparison with the increase recorded for the monotonic loadings. It is indeed easier for the system to propagate existing defects during subsequent unloading and reloading steps rather than initiating new cracks.
If we consider that higher crack opening and length are more damaging for the material than a higher crack density, a sequential loading is then more severe than a monotonic one.
Finally, the dose increase from 5 to 10 dpa does not modify the crack density whereas the average length and opening increase with dose.
The crack depths observed on samples strained to 10 % under monotonic and sequential loading on the 5 dpa irradiated material do not exceed (or slightly) the irradiated layer. For the 10 dpa irradiated material, some cracks are deeper although most of them stop in the irradiated layer.

Regarding IASCC initiation, previous works [West 2010, McMurtrey 2011] have shown a correlation between cracking and presence of a grain having a low Schmid factor (SF) (for slip) in BWR and supercritical water environments. The same methodology was used in this work to confirm or invalidate this hypothesis on the 5 dpa samples strained in simulated primary environment. The results show that between 60 and 73 % of the cracked boundaries are adjacent to a grain having a low SF. However the nature of the boundary and its orientation to the tensile axis have a stronger effect than the presence of a low SF and more than 85 % of general boundaries, perpendicular to the tensile axis and adjacent to a grain with a low SF do not crack. These criteria are then not sufficient to fully describe IASCC initiation.

The SF are not adequate to account for texture evolution under loading and deformation heterogeneities. Therefore, microextensometry by digital image correlation technique was used to measure the local deformation fields using an appropriate marking.

The obtained deformation maps show strong transgranular heterogeneities, localized inside bands, with local deformations reaching up to 30 % for a macroscopic deformation of 2 % for the irradiated material. Localization is also found around some grain boundaries, in particular around Σ3 boundaries, less susceptible to IASCC.

On the contrary, deformation fields on the non-irradiated material show heterogeneities at the grain or grain group scale.

Thanks to the sequential test, we were able to follow the evolution of the deformation jointly with the cracking evolution. It seemed that the strongly deformed boundaries were not necessarily the ones that cracked and conversely non-deformed (or sparsely deformed) boundaries during the first stage cracked after reloading of the sample. On the other hand, strong localized deformation occurred in the neighborhood of all the cracked boundaries.

The distribution of the local deformations calculated in each point of correlation (the distribution is normalized by the macroscopic deformation of the studied area) is shifted towards extreme values (both low and high) for the irradiated zone by comparison with the non-irradiated one. In addition, the alternation between high and low values occurs over a much shorter distance and may generate strong stress on the grain boundaries. The local stress state applying on the grain boundaries seems to prevail over the local deformation state for crack initiation.

Bibliographie

[Allais 1995] L. Allais, M. Bornert., T. Bretheau, D. Caldemaison, « Experimental characterization of the local strain field in a heterogeneous elastoplastic material», Acta. Metall. Mater. 42 (1994) 3865-3880

[Andresen 2012] P.L. Andresen, G.S. Was, « Irradiation Assisted Stress Corrosion Cracking », Comprehensive Nuclear Materials 5, Elsevier Ltd, (2012) 177-205

[Brémand 2011] F. Brémand, M. Cottron, P. Doumalin, J.C. Dupré, A. Germaneau, V. Valle, « Mesures en mécanique par méthodes optiques », Techniques de l'Ingénieur, R1850 (2011)

[Buffière 2005] J.-Y. Buffière, H. Proudhon, E. Ferrie, W. Ludwig, E. Maire, P. Cloetens « Three dimensional imaging of damage in structural materials using high resolution micro-tomography », Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 238 (2005) 75-82

[Byun 2003] T. Byun, E. Lee, D. Hunn, « Plastic deformation in 316LN stainless steel-characterization of deformation microstructures », J. of Nucl. Mater. 321 (2003) 29-39

[Clair 2011] A. Clair « Caractérisation expérimentale des propriétés micromécaniques et micromorphologiques des alliages base nickel contraints par la croissance d'une couche d'oxydes formée dans le milieu primaire d'une centrale nucléaire », Thèse Université de Bourgogne (2011)

[Doumalin 2000] P. Doumalin, « Microextensométrie locale par corrélation d'images numériques ; Application aux études micromécaniques par microscopie électronique à balayage », Thèse Ecole Polytechnique (2000)

[Fukuya 2011] K. Fukuya, H. Nishioka, K. Fujii, T. Miura, T. Torimaru, «An EBSD examination of SUS316 stainless steel irradiated to 73 dpa and deformed at 593 K», J. of Nucl. Mater. 417 (2011) 958-962

[Hild 2006] F. Hild, S.Roux, « Digital Image Correlation: from Displacement Measurements to Identification of Elastic Properties – a Review », Strain 42 (2006) 62-80

[Karlsen 2010] W. Karlsen, G. Diego, B. Devrient « The effect of prior cold-work on the deformation behaviour of neutron irradiated AISI 304 austenitic stainless steel », J. of Nucl. Mater. 406 (2010) 138-151

[McMurtrey 2011] M. McMurtrey, G.S Was, L. Patrick, D. Farkas, « Relationship between localized strain and irradiation assisted stress corrosion cracking in an austenitic alloy» Mater. Sci. and Eng. A 528 (2011) 3730-3740

[Morgeneyer 2011] T.F. Morgeneyer, J. Besson, « Flat to slant ductile fracture transition: Tomography examination and simulations using shear-controlled void nucleation », Scripta Mater, 65 (2011) 1002-1005

[Pan 2009] B. Pan, K. Qian, H. Xie, A. Asundi, « Two-dimensional digital image correlation for in-plane displacement and strain measurement: A review », Meas. Sci. Technol. 20 (2009) 1-17

[Peters 1982] W. Peters, W. Ranson, « Digital imaging techniques in experimental stress analysis », Opt. Eng. 21 (1982) 427–31

[Rho 1998] B. S Rho, H.U Hong, S.W Nam, « The fatigue crack initiation at the interface between matrix and d-ferrite in 304L stainless steel », Scripta Mater. 39 (1998) 1407-1412

[Sachs 1928] G. Sachs, « Zur Ableitung einer Fliessbedingung », Z. Ver. Dtsch. Ing. 72 (1928) 734–736

[Schmid 1950] E. Schmid et W. Boas, « Plasticity of Crystals with Special Reference to Metals», Edt F.A. Hughes, Londres, 1950.

[Sutton 1986] M. Sutton, C. Mingqi, W.H Peters, Y.J Chao, S.R McNeill «Application of an optimized digital correlation method to planar deformation analysis», Image Vis. Comput 4 (1986) 143–150

[Taylor 1938] G.I Taylor, « Plastic Strain in Metals», Journal of the Institute of Metals 62 (1938) 307-324

[West 2010] E.A West, «Influence of local stress and strain on intergranular cracking of 316L stainless steel in supercritical water», PhD thesis University of Michigan (2010)

[West 2013] E.A. West, G.S. Was, « Strain incompatibilities and their role in intergranular cracking of irradiated 316L stainless steel », J. Nucl. Mater. 441 (2013) 623-632

CHAPITRE IV

Amorçage de la corrosion sous contrainte assistée par l'irradiation en milieu REP : discussion

IV.1 Lien entre localisation de la déformation et fissuration

IV.1.1 Maclage ou canalisation des dislocations

IV.1.2 Corrélation entre facteurs de Schmid de maclage et fissuration

IV.1.3 Influence sur la fissuration de la discontinuité de la déformation entre deux grains

IV.2 Influence sur la fissuration du trajet de chargement et de la profondeur de la couche irradiée

IV.2.1 Paramètres de modélisation : géométrie et lois de comportement

IV.2.2 Champs mécaniques en pointe de fissure

IV.3 Perspectives

Résumé

Bibliographie

IV.1 Lien entre localisation de la déformation et fissuration

Nous avons vu au chapitre III que les champs de déformation des zones irradiée et non irradiée de l'éprouvette E étaient singulièrement différents toutes choses égales par ailleurs. Il est important d'insister sur le fait que la microstructure initiale en termes de nature et répartition des joints de grains ou encore de taille de grains ou de densité de dislocations, est tout à fait identique entre ces deux zones puisqu'il s'agit de la même éprouvette. Nous avons également vérifié que la texture cristallographique n'a pas été modifiée par l'irradiation (phénomène de recristallisation). Enfin, les conditions d'essai (température, vitesse de déformation et milieu) sont également strictement équivalentes pour les mêmes raisons.
Il est indéniable pourtant que les champs de déformation observés à l'échelle des grains ne sont pas similaires entre les deux zones. Les parties irradiée et non irradiée de l'éprouvette réagissent différemment bien que soumises au même chargement et ces différences ne peuvent être imputées qu'à l'irradiation et aux conséquences de l'irradiation sur les mécanismes de déformation du matériau.

IV.1.1 Maclage ou canalisation des dislocations

La canalisation des dislocations est souvent décrite comme le mode de déformation prépondérant pour les aciers inoxydables austénitiques irradiés et cette affirmation s'appuie en partie sur les travaux de Sharp [Sharp 1967] et Edwards [Edwards 2004, Edwards 2005], réalisés sur des métaux purs cristallisant en structure C.F.C. comme le cuivre, après irradiation de quelques dpa. Or, l'énergie de défaut d'empilement des métaux purs est significativement plus élevée que celle des aciers inoxydables austénitiques et cette différence n'est pas sans conséquence sur le mécanisme de déformation adopté par le matériau.

Le maclage mécanique est habituellement considéré comme un mécanisme se développant à basse température (T ambiante ou inférieure) et à forte vitesse de déformation (typiquement 10^{-1} à 10^{-3} s^{-1}) ce qui ne correspond pas aux conditions des essais classiques de CSC pratiqués en laboratoire. Certaines études associent donc naturellement la présence de bandes de déformation visibles en surface des aciers 304 et 316 irradiés après essais de traction lente à haute température en milieu inerte ou en milieu eau légère à la canalisation des dislocations. Les auteurs considèrent de fait que ces bandes sont formées par glissement des dislocations parfaites dans des canaux privilégiés appelés canaux de dislocations ou parfois bandes claires car quasi-exempts de défauts. Or les macles peuvent tout à fait apparaître comme des bandes claires au sens où elles sont elles aussi exemptes de défauts. Effectivement, les boucles de Frank peuvent être éliminées de manière conjointe à la formation des macles. Si l'annihilation des boucles par le balayage des dislocations glissiles est bien connue pour la formation des canaux, un défautement des boucles sous l'action des dislocations partielles de Shockley est également possible. Ces mécanismes ont été étudiés et décrits par Lee [Lee 2001]. Selon lui, le mécanisme le plus probable correspond à un défautement de la boucle par la contrainte induite par la nucléation d'une partielle de Shockley à l'intérieur de celle-ci durant la déformation.

Les travaux post-irradiation de Lee [Lee 2001], Onchi [Onchi 2003], Hashimoto [Hashimoto 2006] et Byun [Byun 2006] démontrent ainsi que les microstructures de déformation après irradiation sont complexes et que les mécanismes mis en jeu pour des températures supérieures à la température ambiante doivent être étudiés avec précaution.

Des macles et des fautes d'empilement ont ainsi été observées à de nombreuses reprises sur des aciers de type 304 et 316 irradiés et testés dans des conditions très différentes.
Onchi [Onchi 2003] a observé sur un acier 304 sensibilisé et irradié aux neutrons en réacteur expérimental de type REB puis testé à 290°C en milieu inerte à $3{,}5.10^{-7}$ s^{-1}, la formation de canaux et / ou de macles, cette formation étant fonction du niveau supposé de déformation du grain (**figure IV.1**). Le niveau de déformation des grains a été estimé qualitativement en fonction de leur distance par rapport à la striction de l'éprouvette, le grain le plus proche de la striction étant considéré comme le plus déformé. Onchi précise que les « canaux » ou bandes claires visibles sont soit des canaux de dislocations bordés de micromacles, soit des macles elles-mêmes.
La détermination de la nature de la bande de déformation (macle ou canal de dislocations) n'est pas si aisée puisque des bandes claires qui apparaissent comme étant des canaux de dislocations dans certaines conditions d'imagerie peuvent en réalité être des macles, visibles sous d'autres conditions comme cela est illustré sur la **figure IV.1.** En tout état de cause, en l'absence de cliché de diffraction pris au niveau de ces bandes claires, il est impossible de déterminer s'il s'agit de canaux de dislocations ou de macles.

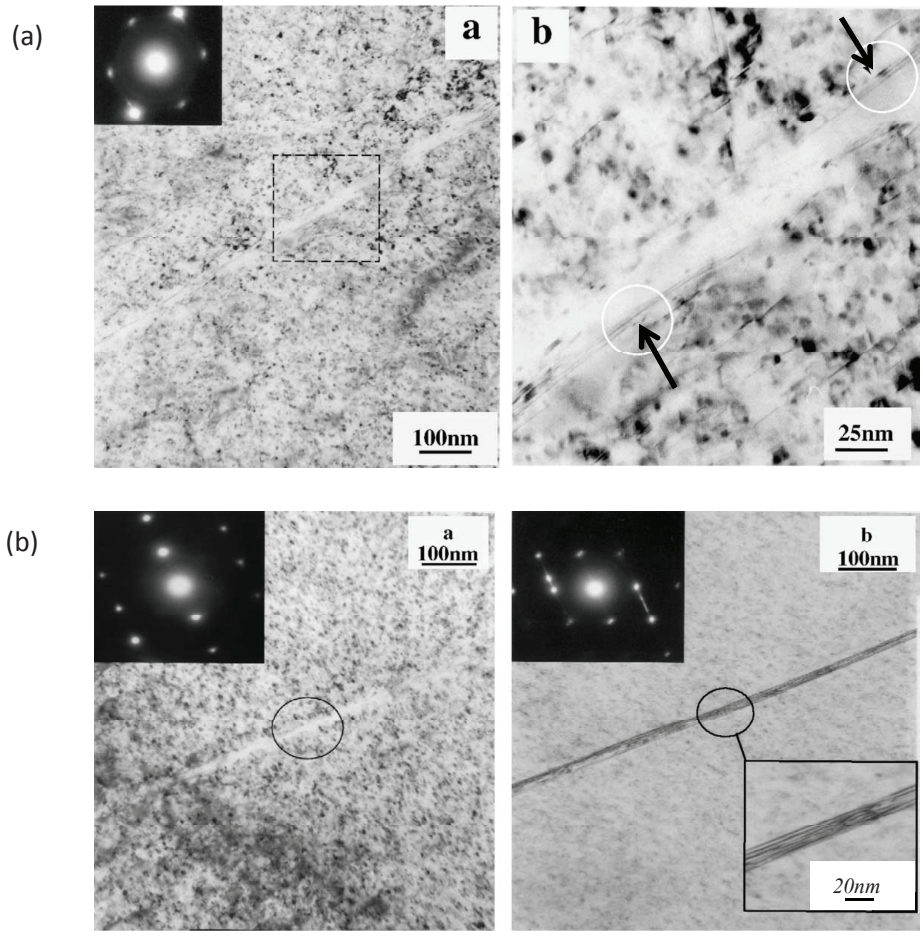


Figure IV.1 : Fond clair sur un acier 304 irradié puis testé en traction lente jusqu'à rupture (a) grain faiblement déformé (loin de la striction) en axe de zone <101>, bande claire bordée de micromacles (flèches noires) (b) grain fortement déformé (proche de la striction) en axe de zone <112> puis <101>, macle apparaissant comme une bande claire suivant les conditions d'orientation de la lame [Onchi 2003]

Pour Onchi [Onchi 2003], le mécanisme adopté est fonction du taux de déformation avec présence de canaux de dislocations pour des déformations qualifiées de faibles ou intermédiaires et maclage pour les déformations plus élevées. Notons que les niveaux de déformations évoqués ici sont estimés de façon qualitative.

La dose est également un paramètre important. Byun [Byun 2006] a tracé une carte des modes de déformation (en fonction de la contrainte vraie appliquée) pour les aciers irradiés puis déformés à température ambiante (**figure IV.2**). Les frontières entre mécanismes ont été calculées et les résultats confirmés par analyses MET. Pour des doses inférieures à 0,1 dpa, le maclage est activé au-delà d'une contrainte vraie de 600 MPa. En-deçà de cette contrainte et toujours pour de faibles doses (< à 0,3 dpa), fautes d'empilement et glissement des dislocations prévalent.
En revanche, Byun indique que la déformation des aciers irradiés au-delà de 0,3 dpa peut se faire par maclage et / ou canalisation des dislocations avec une prédilection pour la canalisation pour les plus faibles niveaux de contrainte (mais toujours supérieurs à 600 MPa).

D'un point de vue général, les deux mécanismes, maclage et canalisation, présentent des similitudes en ce sens qu'ils sont générés en présence d'une contrainte vraie supérieure à 600 MPa, que les bandes de déformation formées sont exemptes ou quasi-exemptes de boucles de dislocations et qu'ils conduisent à une localisation de la déformation, *a priori* dommageable pour la résistance du matériau en service.
Il existe cependant des différences majeures sur le mécanisme d'annihilation des boucles et de formation de ces bandes de déformation avec d'un côté la formation des canaux liée au glissement des dislocations parfaites « ordinaires » ou des partielles de Shockley et de l'autre le maclage lié à la création des fautes d'empilements générées par ces mêmes partielles.

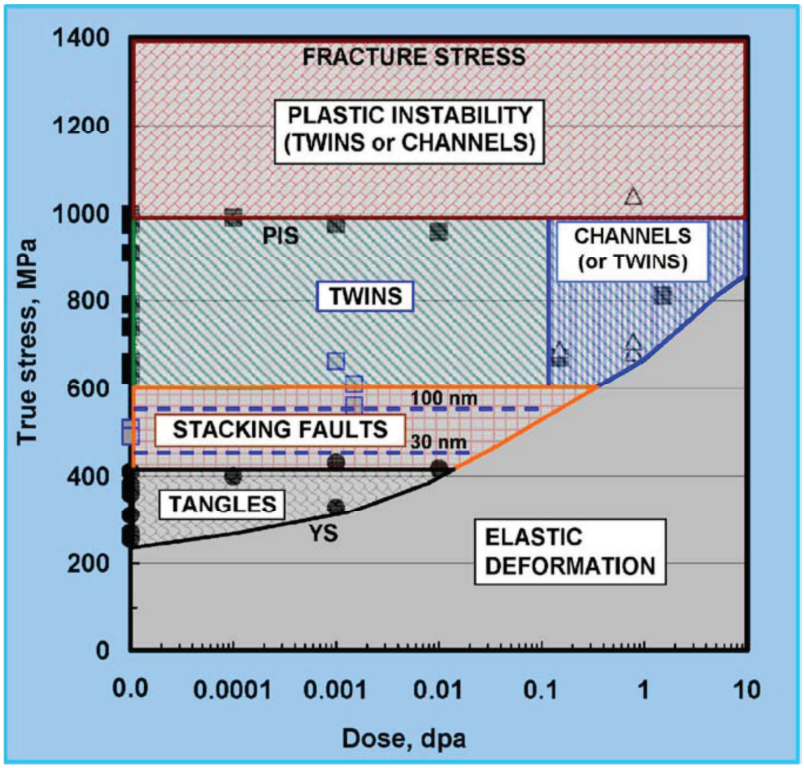


Figure IV.2: Carte des modes de déformation en fonction de la contrainte vraie et de la dose des aciers inoxydables austénitiques [Byun 2006]

Nous avons donc cherché à déterminer quel(s) étai(en)t le(s) mécanisme(s) de déformation actif(s) dans nos conditions d'essai (350°C, vitesse de déformation de 10^{-7} s^{-1}) et d'irradiation (5 dpa) et à établir un lien entre localisation de la déformation et fissuration. Pour ce faire, deux fissures provenant des éprouvettes irradiées à 5 dpa puis déformées sous chargement monotone jusqu'à respectivement 2% et 10% de déformation ont été prélevées par FIB par SERMA Technologies (Grenoble, France) puis analysées par MET.
Les taux de déformation macroscopique choisis correspondent aux deux niveaux extrêmes de notre gamme d'essais et disponibles pour ce prélèvement.

- Présentation générale des fissures

Pour plus de commodités, les fissures seront nommées D et A afin de désigner respectivement la fissure prélevée sur l'éprouvette D (5 dpa, 2% de déformation) et celle prélevée sur l'éprouvette A (5 dpa, 10% de déformation).

La fissure D, provenant de l'éprouvette la moins déformée (2%), a été choisie selon deux critères :
- une faible ouverture de façon à assurer la tenue de la lame mince
- au moins un grain adjacent avec un faible FS de glissement (**figure IV.3**)

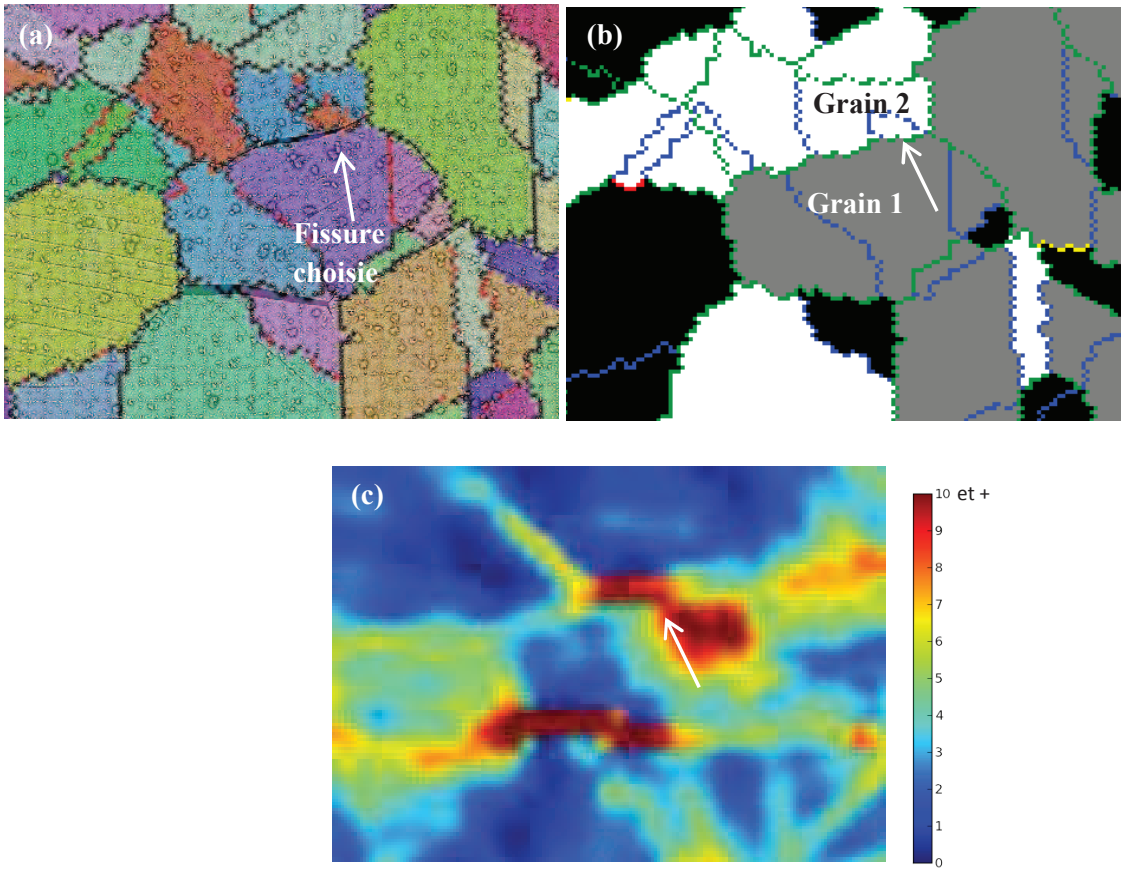


Figure IV.3 : Fissure D indiquée par la flèche blanche avec (a) superposition MEB/EBSD (b) cartographie des facteurs de Schmid de glissement, les catégories « faible », « medium » et « fort » des FS sont symbolisées par les couleurs blanc, gris et noir respectivement. Les joints de grains généraux sont représentés en vert et les CSLs en bleu (c) carte des champs de déformation de la zone après 2% de déformation macroscopique

Le prélèvement a été effectué perpendiculairement à la surface. La **figure IV.4** présente les étapes de prélèvement et la vue générale de la lame mince.

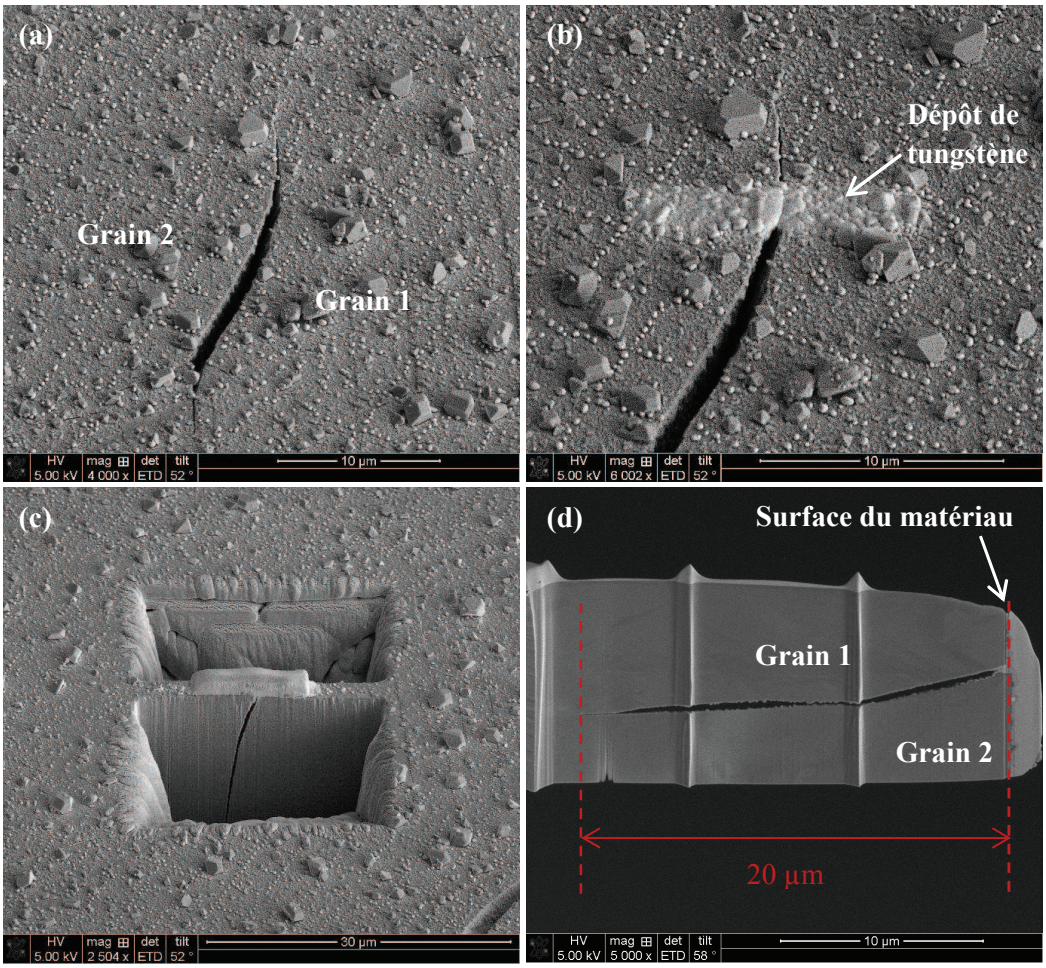


Figure IV.4 : Prélèvement par FIB de la fissure D, (a) vue générale en surface, (b) zone de prélèvement ; la trace de contraste plus clair indique le dépôt de tungstène fait en surface avant le prélèvement, (c) vue en cours d'amincissement, (d) vue générale de la lame mince

La **figure IV.5** est une vue d'ensemble de la fissure en champ clair. La partie supérieure de la fissure est adjacente à un seul grain (nommé grain 1) tandis que la partie inférieure jouxte trois grains (respectivement les grains 2, 3 et 4).

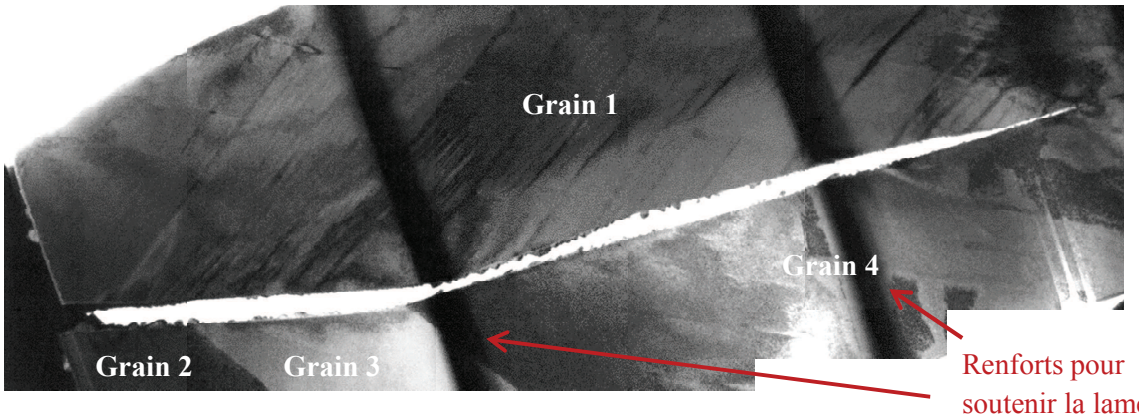


Figure IV.5 : Vue d'ensemble de la fissure D en fond clair

D'après la cartographie des champs de déformation, le grain 1 est beaucoup plus déformé que les grains 2, 3 et 4. (cf. **figure IV.3**). La présence de nombreuses bandes de déformation immédiatement visibles dans le grain 1 sur la **figure IV.5** est cohérente avec ce résultat.

La fissure s'est arrêtée à une profondeur d'environ 20 µm sous la surface, ce qui correspond à la profondeur de la zone irradiée (cf. chapitre II). Cependant, la lame a été prélevée à une extrémité de la fissure sur la partie la moins ouverte en surface ; nous n'avons donc pas d'information sur la profondeur de celle-ci lorsque son ouverture est maximale en surface. Le détail de la pointe de fissure est présenté sur la **figure IV.6**.

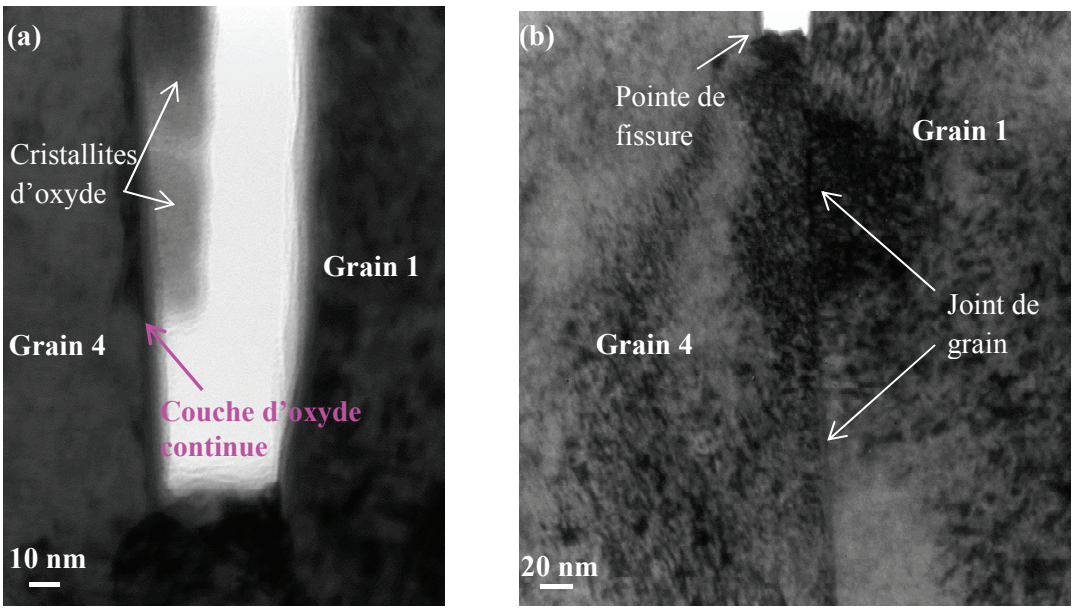


Figure IV.6 : (a) Image en fond clair de la pointe de fissure, la défocalisation permet de visualiser la couche d'oxyde continue (b) Image en fond clair de la zone sous la pointe de fissure – fissure D

La pointe de fissure est émoussée et la fissure s'est arrêtée à l'interface irradiée/non irradiée *i.e.* au niveau du pic de Bragg malgré une prolongation du joint de grain au-delà de la zone irradiée perpendiculairement à l'axe de traction (**figure IV.6 b)**). La taille et la morphologie des boucles de Frank et des cavités en pointe de fissure (**figure IV.7)** confirment que la pointe de fissure s'est arrêtée au niveau du pic de Bragg (cf. chapitre II).

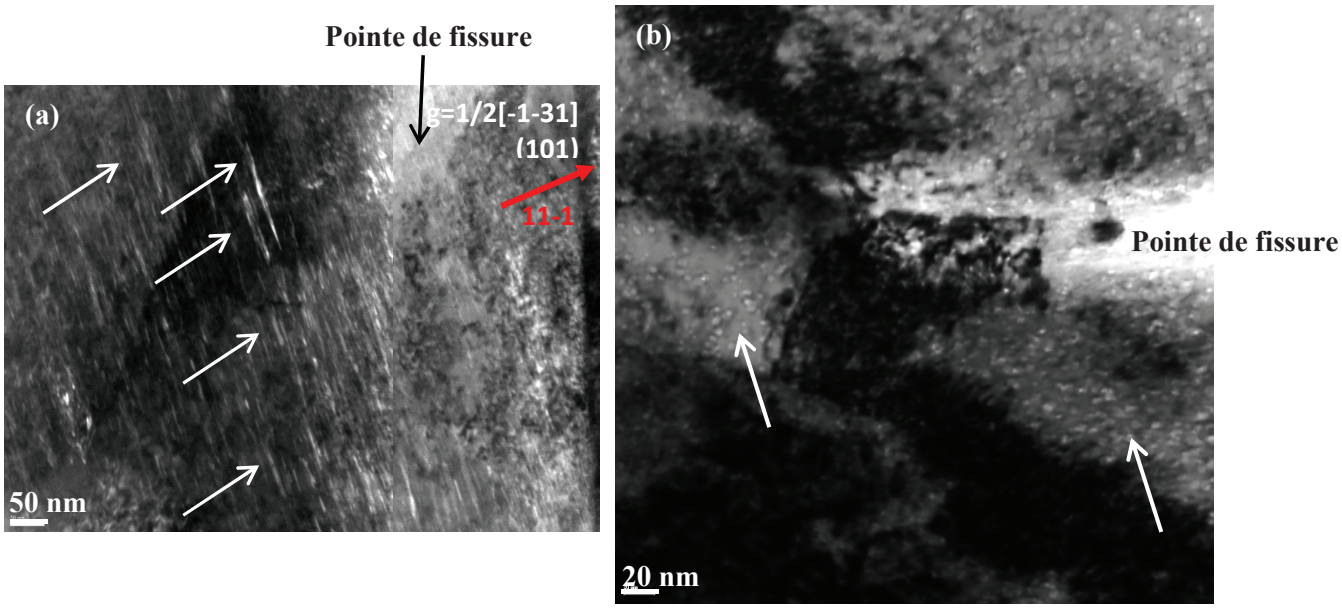


Figure IV.7 : Pointe de la fissure D (a) Micrographie en fond noir d'une famille de boucles de Frank (b) micrographie en fond clair sous-focalisée des cavités

Nous observons également que la fissure est dissymétrique par rapport au joint de grains avec une ouverture qui s'est effectuée du côté du grain 4 uniquement, *i.e.* le grain le moins déformé.
Comme nous pouvons le voir sur la **figure IV.5**, plusieurs bandes de déformation apparaissent dans le grain 1. Il peut s'agir de macles ou de canaux de dislocations. Des bandes de déformation sont également visibles dans le grain 4 mais elles sont moins nombreuses ce qui laisse supposer que l'ouverture du joint s'est bien effectuée du côté du grain le moins déformé.

La seconde fissure a été prélevée après 10% de déformation (éprouvette A). Nous rappelons au lecteur que cette éprouvette n'avait pas été équipée de microgrilles et nous n'avons donc pas caractérisé les champs de déformation locaux. Le prélèvement a été réalisé à partir d'une coupe transverse polie miroir. La résine utilisée pour l'enrobage de la coupe transverse est une résine polymérisant à froid et sous vide, ce qui a permis de combler la fissure sélectionnée et ainsi, après désenrobage de l'échantillon, d'améliorer la tenue mécanique de la lame en cours d'amincissement.

La fissure se propage en profondeur le long d'un joint général jusqu'à une bande de ferrite. Elle est présentée dans son ensemble sur la **figure IV.8**. Contrairement à ce que l'on pourrait supposer par la cartographie EBSD réalisée en coupe (**figures IV.8 a) et b)**), la fissure continue sur une courte distance le long de l'interface austénite/ferrite. La ferrite a représenté un obstacle pour la propagation de la fissure et cette dernière, contrairement à la fissure D, s'est donc arrêtée bien avant le pic de Bragg, à environ 11 µm sous la surface. La fissure observée à l'intérieur du grain C est un artefact de préparation de la lame et n'est en aucun cas caractéristique du phénomène d'IASCC.

Sur l'image MET en fond clair (**figure IV.8 c)**), nous pouvons voir que la pointe de la fissure est multiple. Du fait de l'obstacle représenté par la ferrite, celle-ci s'est en effet divisée en deux parties qui longent une interface austénite/austénite ou austénite/ferrite (ferrite et austénite sont superposées à cet endroit dans l'épaisseur de la lame comme en atteste le cliché de diffraction présenté sur la **figure IV.8**).

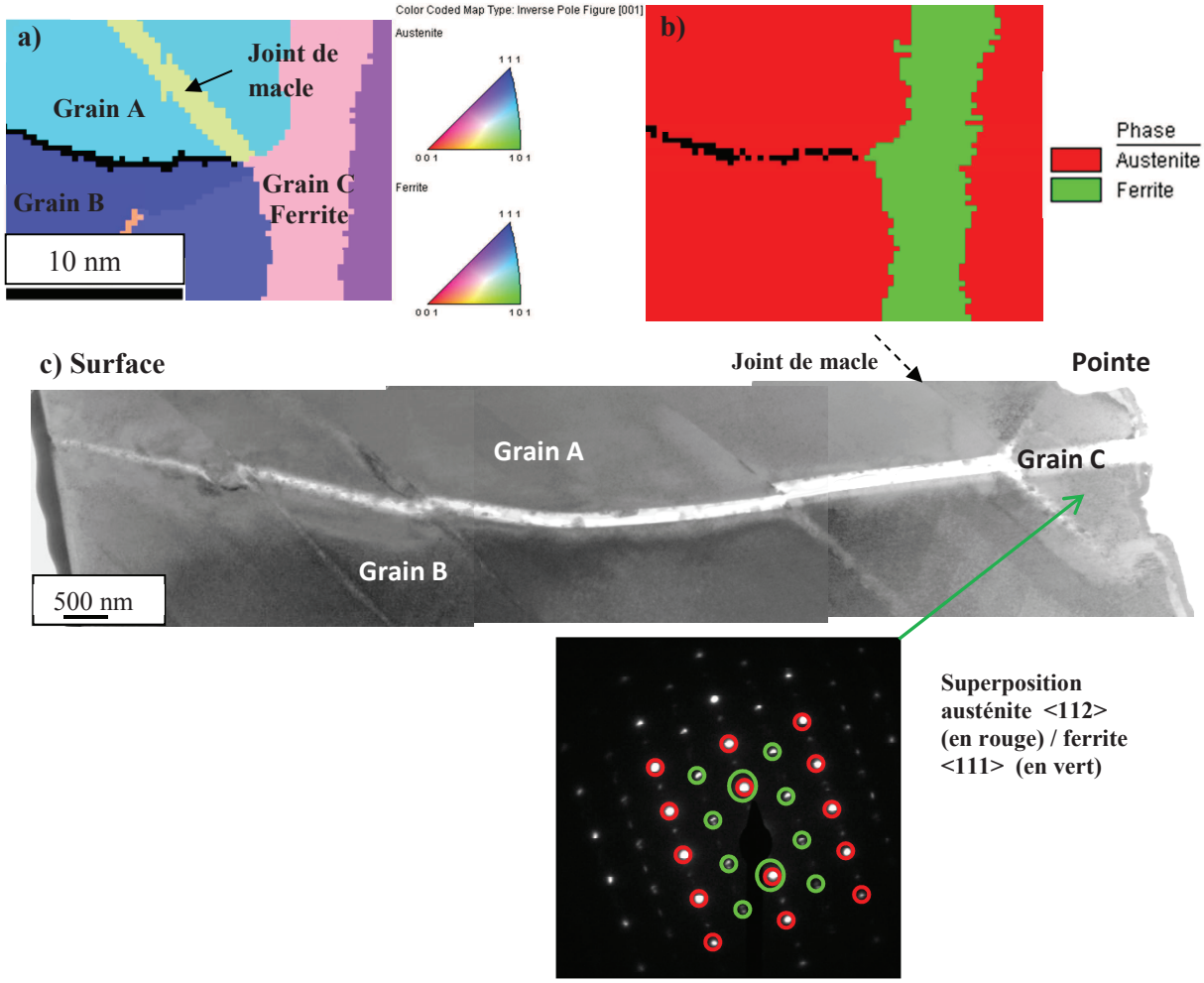


Figure IV.8 : Présentation générale de la fissure A, (a) figure de pôles inverses et (b) identification de phase par EBSD réalisée en coupe transverse, (c) micrographies MET en fond clair et cliché de diffraction obtenu dans la zone indiquée par la flèche verte

Les deux pointes de fissures de la fissure A possèdent une morphologie très différente du premier cas. Elles ne semblent pas émoussées mais apparaissent larges et pleines d'oxydes et / ou poreuses suivant les conditions d'orientation de la lame. Cette morphologie rappelle celle commentée par Bruemmer *et al.* [Bruemmer 2006] sur un acier 304L irradié à 0,7 dpa et déformé en milieu REB. Elle y est qualifiée de « finger-like » (**figure IV.9**).

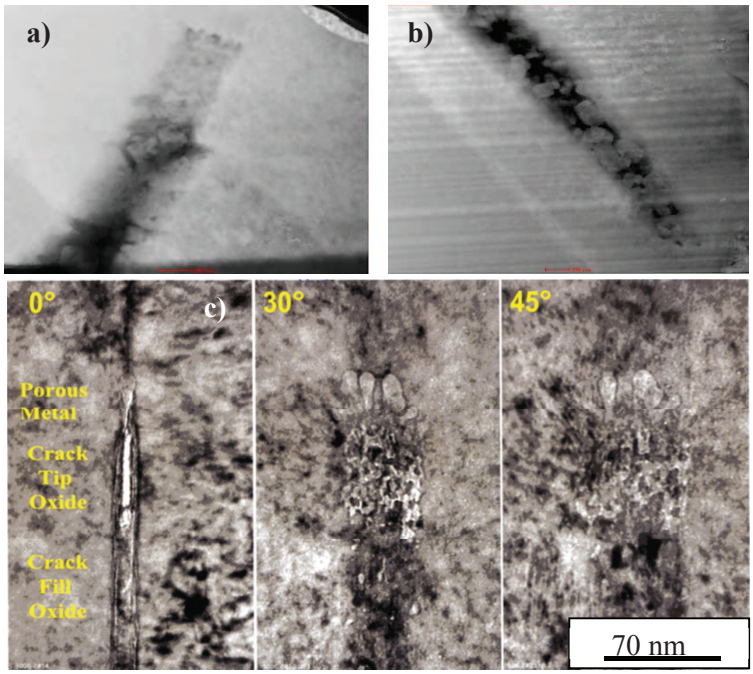


Figure IV.9 : Fissure A – (a) et (b) Images en STEM-HAADF des deux pointes de fissure, (c) Micrographies MET d'une pointe de fissure d'un acier 304L irradié à 0,7 dpa et déformé en milieu BWR [Bruemmer 2006]

- Mécanismes de déformation

A priori, nous pourrions penser que la fissure prélevée sur l'éprouvette la moins déformée macroscopiquement est celle qui est la plus susceptible de présenter plusieurs mécanismes de déformation avec éventuellement coexistence de macles et de canaux de dislocations.
Cependant, nous avons observé que les déformations locales peuvent être très élevées, y compris après 2% de déformation macroscopique. En l'absence de données sur la déformation atteinte localement autour de la fissure de l'éprouvette A, nous ne pouvons être catégoriques sur la comparaison du taux de déformation au voisinage de ces deux fissures.

Fissure D – 2% de déformation

Des bandes de déformation sont visibles dans le grain 1 avec deux systèmes orientés parallèlement à des plans {111} que nous nommerons par la suite S1 et S2 (**figure IV.10**).

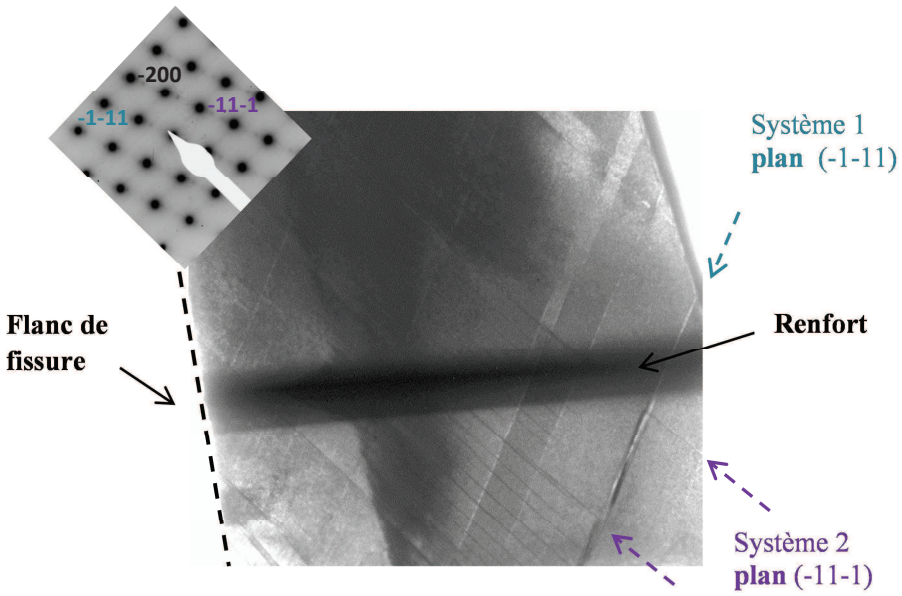
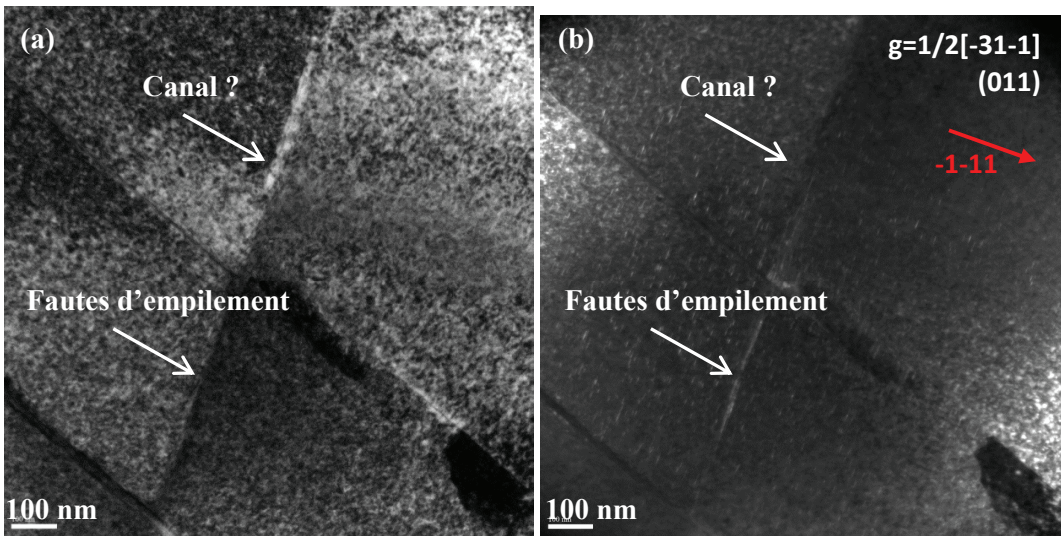


Figure IV.10 : Fissure D - fond clair dans le grain 1 en axe de zone [011] – bandes de déformation orientées parallèlement aux plans (-1-11) et (-11-1)

La nature des bandes de déformation du système S1 n'a pas pu être déterminée avec certitude (**figure IV. 11**). Des fautes d'empilement/macles apparaissent en fond noir et clair mais ne couvrent pas toute la longueur des bandes de déformation. La partie la plus claire, sur l'image en fond clair, de la bande pourrait être un canal (au sens canalisation des dislocations) mais ces résultats sont à considérer avec prudence. Une microstucture qui semble similaire a été observée par Byun sur un acier 316 faiblement irradié et déformé macroscopiquement à 6% [Byun 2006].



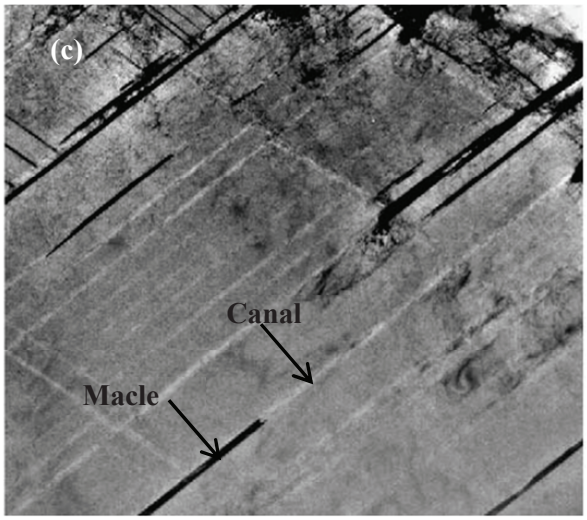


Figure IV.11: (a) Fond clair, micrographie prise en proche conditions deux ondes avec g=1/2[-31-1], bande de déformation du système S1 et (b) fond noir associé, (c) image en fond clair sur un acier 316 irradié à 0,15 dpa et 6% de déformation – en contraste noir les macles et en blanc les canaux de dislocation, l'orientation de la lame n'est pas indiquée [Byun 2006]

En revanche, les bandes de déformation du système S2 ont été identifiées de manière certaine comme étant des macles, comme en atteste le cliché de diffraction présenté sur la **figure IV.12**.
La largeur de ces macles est comprise entre 40 et 80 nm et leur espacement varie de 30 à 180 nm.
Elles interagissent avec la fissure (**figure IV.12**) mais nous n'avons détecté aucune marche à l'intersection macles/fissure.

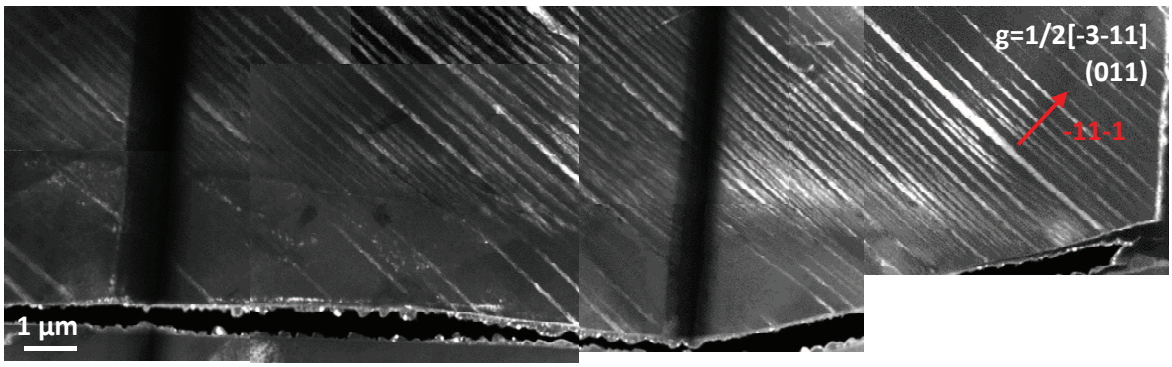


Figure IV.12 : Fissure D –fond noir sur la traînée de diffusion correspondant aux plans (-11-1) dans le grain 1, visualisation des macles du système 2 ;

Ces macles ne contiennent pas de boucles de Frank dans les plans (-1-11), ce qui est illustré sur la **figure IV.13**.

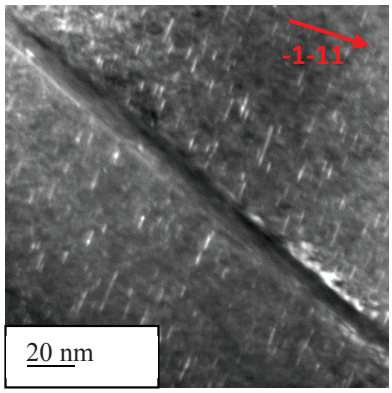


Figure IV.13 : Micrographie en fond noir, visualisation des boucles de Frank dans la matrice en conditions deux ondes g= 1/2(-31-1)

Fissure A – 10% de déformation

Comme nous pouvons le voir sur la **figure IV.14**, plusieurs bandes de déformation apparaissent nettement dans le grain A jouxtant la fissure A. Tout comme pour la fissure D, deux systèmes de bandes de déformation notés S1 et S2 et orientés parallèlement à des plans {111} et à 60° l'un par rapport à l'autre, ont ainsi été mis en évidence.

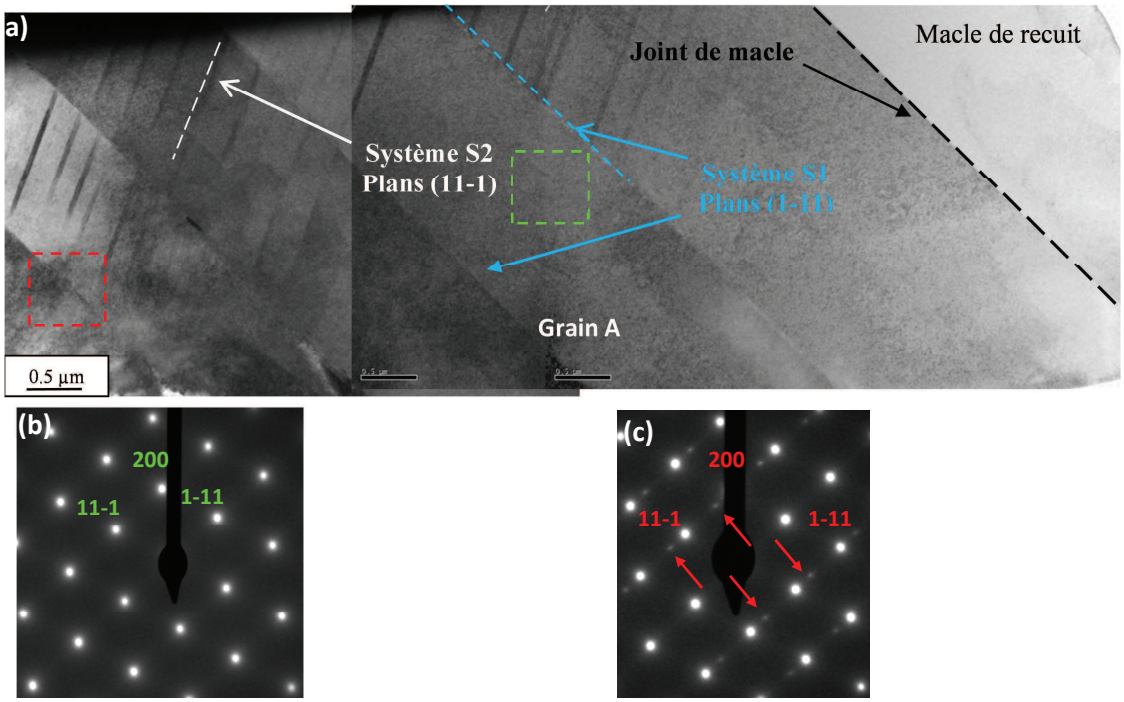


Figure IV.14 : Fissure A – (a) micrographie MET en fond clair du grain A en condition d'axe de zone [011] (b) cliché de diffraction correspondant au carré vert – un cliché de diffraction similaire est trouvé pour toute zone située entre les bandes de déformation des systèmes S1 et S2, (c) cliché de diffraction correspondant à la zone entourée en rouge – des taches de diffraction caractéristique d'une macle sont indiquées par des flèches rouges (plans de macle (1-11))

Le cliché de diffraction de la **figure IV.14 c)** montre que la bande de déformation du système S1 entourée en rouge sur la **figure IV.14 a)** est une micromacle. Le plan de macle est un plan (1-11). Un

cliché de diffraction similaire est obtenu sur les autres bandes de déformation du système S1. Celles-ci sont espacées de 1 à 2 µm et la largeur mesurée maximale est de l'ordre de 25 nm.

Les micrographies en fond clair et fond noir d'une bande de déformation du système S1 (**figure IV.15**) ainsi que le cliché de diffraction associé confirment qu'il s'agit bien d'une macle. Le fond noir est réalisé sur la traînée de diffusion indiquée par une flèche rouge.

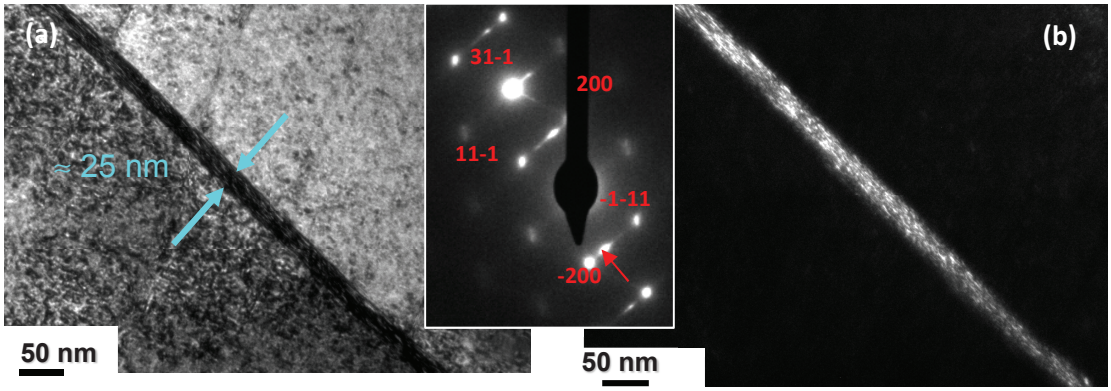


Figure IV.15 : Bande de déformation du système S1 - micrographie MET et cliché de diffraction associé (a) fond clair (b) fond noir réalisé sur la traînée de diffusion indiquée par une flèche rouge.

Une analyse similaire est réalisée sur les bandes de déformation du système S2 (**figure IV.16**). La micrographie en fond noir réalisée sur la traînée de diffusion (flèche rouge du cliché de diffraction de la **figure IV.16**) indique qu'il s'agit là aussi de micromacles.

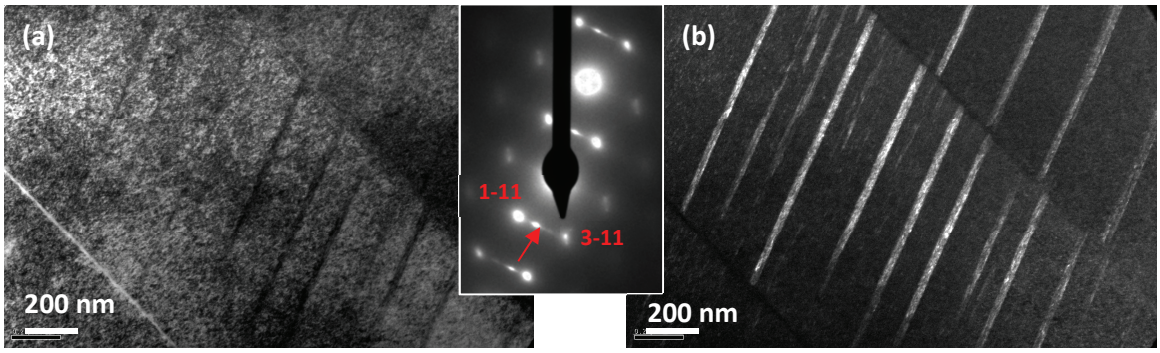


Figure IV.16 : Bande de déformation du système S2 - micrographie MET et cliché de diffraction associé (a) fond clair (b) fond noir réalisé sur la traînée de diffusion indiquée par une flèche rouge.

Les macles du système S2 sont plus courtes que celles du système S1 et espacées de 100 à 250 nm. Par contre, aucune macle du système S2 n'est détecté à proximité de la fissure.

Certaines des macles principales (système S1) interagissent avec la fissure, ce qui aboutit dans certains cas à la formation de marches de 30 à 100 nm (**figure IV.17**). Ces marches ne sont pas formées systématiquement à l'intersection entre les macles et la fissure.
La présence de telles marches à l'intersection entre fissure et bandes de cisaillement avaient été rapportées par Thomas et Bruemmer [Thomas 2002, Bruemmer 2006] après analyse d'une fissure

provenant d'une vis en acier 316 écroui et irradiée en milieu REP après 20 ans de service. La hauteur des marches avait été estimée à 20-50 nm, un exemple est donné **figure IV.18**.

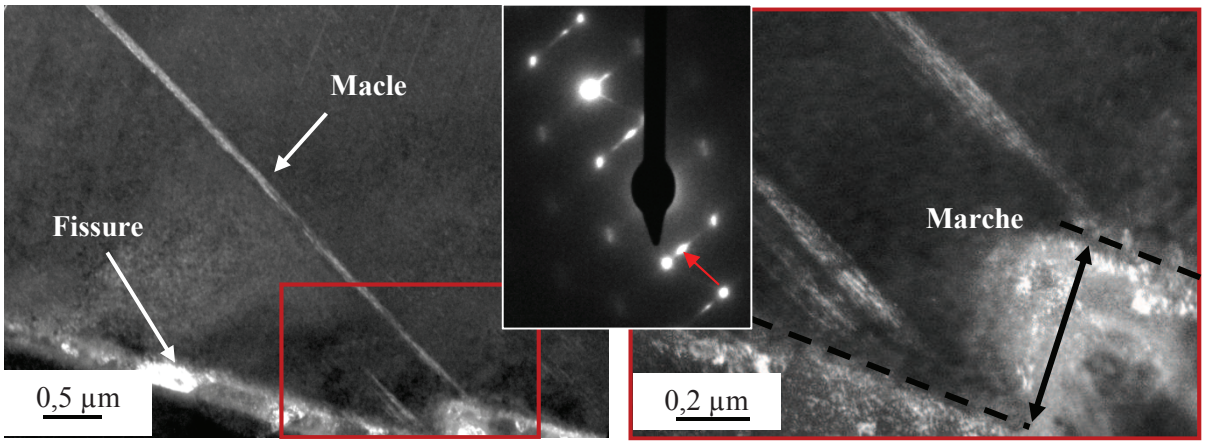


Figure IV.17 : Fond noir sur la traînée de diffusion – Intersection entre les macles du système primaire et la fissure A, formation d'une marche

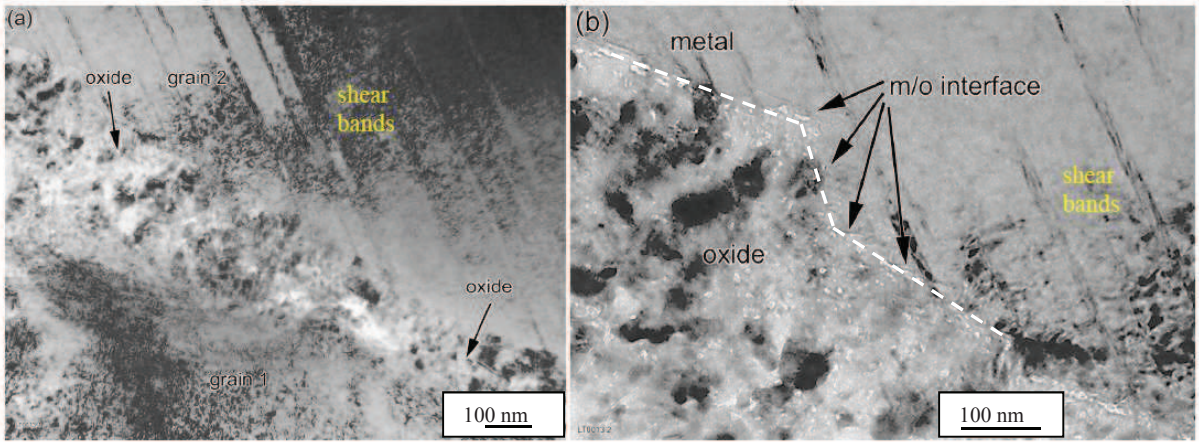


Figure IV.18: Micrographies MET (fond clair) d'une fissure sur un acier 316CW (vis) irradié à 8,5 dpa en milieu REP – (a) vue générale avec présence de nombreuses bandes de cisaillement interagissant avec les flancs de la fissure, (b) interface bandes de cisaillement et flancs de fissure, création d'une marche [Bruemmer 2006]

Une légère rotation du réseau cristallin a également été observée à l'intersection de certaines bandes de déformation avec la fissure, comme indiqué sur la **figure IV.19**. Des rotations similaires avaient été observées dans des travaux préalables [Jiao 2007]. Un exemple d'une telle rotation est donné sur la **figure IV.20** pour un acier austénitique modèle irradié à 5,5 dpa puis déformé jusqu'à 7%. La bande de déformation visible est décrite par les auteurs comme étant un canal de dislocations.

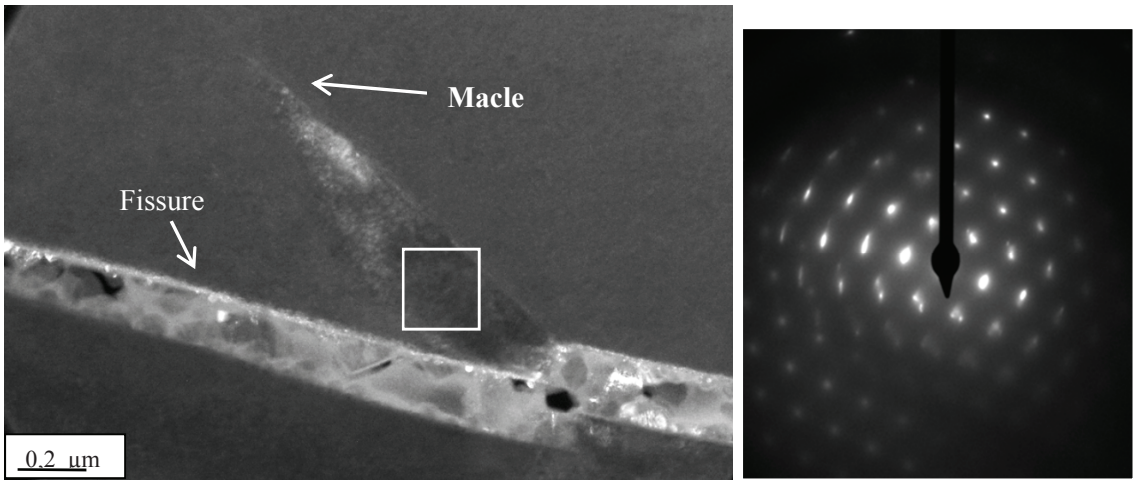


Figure IV.19 : (a) Micrograhie en fond noir au niveau de l'intersection entre une macle et la fissure, élargissement de la bande de déformation, (b) cliché de diffraction en axe de zone <110> au niveau de l'élargissement – rotation du réseau cristallin de l'ordre de 12°

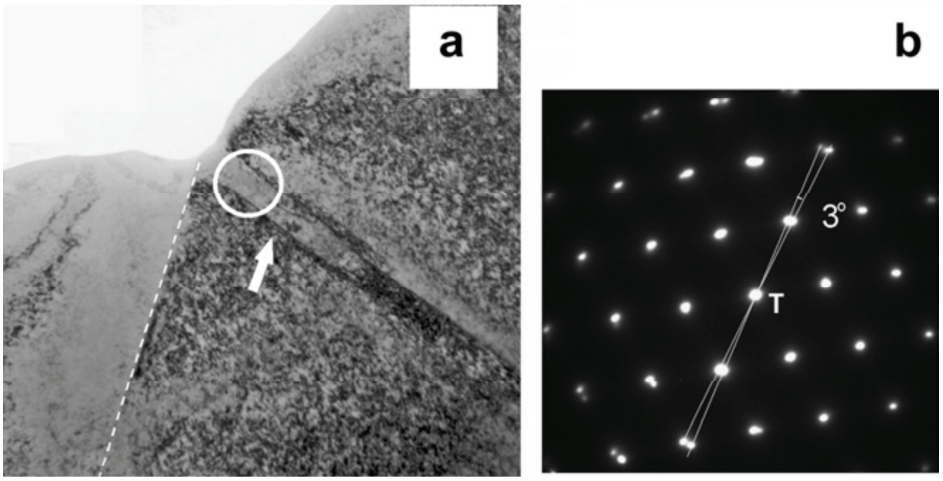


Figure IV.20 : Micrographie en fond clair sur un acier austénitique modèle irradié à 5,5 dpa et déformé à 7% – (a) intersection entre un joint de grains (en pointillé) et une bande de déformation, (b) cliché de diffraction en axe de zone <110> - rotation du réseau cristallin de l'ordre de 3°au niveau de l'élargissement de la bande de déformation à l'intersection avec la fissure [Jiao 2007]

Mécanismes de déformation activés - conclusion

Les informations obtenues sur ces deux fissures nous indiquent que le maclage ne peut pas être négligé dans notre étude puisqu'il a été observé sur les deux lames minces, après 2 et 10% de déformation macroscopique. Cependant, d'autres mécanismes de déformation semblent pouvoir être activés comme l'indiquent les analyses faites sur l'un des grains de la fissure D (2% de déformation). D'autres analyses seraient toutefois nécessaires afin d'établir le lien, s'il existe, entre taux de déformation local et mécanismes activés.

Cependant, à la vue de ces résultats, nous pouvons émettre deux hypothèses :

(1) La contrainte résolue associée au maclage est plus élevée que la contrainte critique et supérieure à celle du glissement dans certains grains. Le maclage est alors le mécanisme prépondérant, y compris à faible taux de déformation. Nous savons que cette contrainte critique est directement proportionnelle à l'énergie de faute d'empilement et donc d'autant plus basse que l'énergie est faible [Rémy 1981].
Dans ce cas, il serait pertinent de prendre également en considération les FS de maclage pour une éventuelle corrélation entre faible FS de maclage et fissuration.

(2) Le glissement (et donc la canalisation des dislocations dans le matériau irradié) est le premier mode activé pour les faibles déformations puis le maclage deviendrait prépondérant avec l'augmentation de la déformation. Cette dernière hypothèse est basée sur le fait que l'augmentation du taux de déformation entraîne localement un écrouissage suffisant permettant l'activation du maclage, dont la contrainte critique d'activation serait supérieure à celle du glissement. Dans un matériau polycristallin, où le champ de contrainte est multiaxial du fait de l'anisotropie de déformation des grains, les macles peuvent être une alternative au glissement pour accommoder le champ de contrainte. Malheureusement, la valeur de la contrainte locale n'est pas une donnée connue expérimentalement et les FS ne peuvent en rendre compte. Nous pouvons cependant imaginer privilégier les FS de glissement pour les faibles taux de déformation et éventuellement les FS de maclage pour les forts taux de déformation.

Quoi qu'il en soit, les deux modes de déformation sont en compétition et il semble difficile de déterminer quels sont les facteurs de Schmid les plus pertinents à prendre en considération, d'autant que la situation peut varier d'un grain à l'autre.

Suite à ce constat, nous avons réexaminé le rapport entre FS et fissuration, en prenant cette fois en considération les FS du maclage. Nous rappelons que dans les structures C.F.C, le maclage s'effectue dans les plans {111} selon des directions <112>.

IV.1.2 Corrélation entre facteurs de Schmid de maclage et fissuration

Nous avons donc réalisé la même étude que celle décrite précédemment sur les FS de glissement avec ceux relatifs au maclage. La méthodologie utilisée est identique à savoir une répartition équitable des facteurs de Schmid entre grains, avec trois catégories : « faible », « medium » et fort ». Six couples sont possibles avec une probabilité d'occurrence dans la microstructure de 1/9 ou 2/9 selon la catégorie du couple. Les résultats obtenus sur le pourcentage de joints fissurés pour chaque couple sont détaillés ci-dessous (**figure IV.21**).

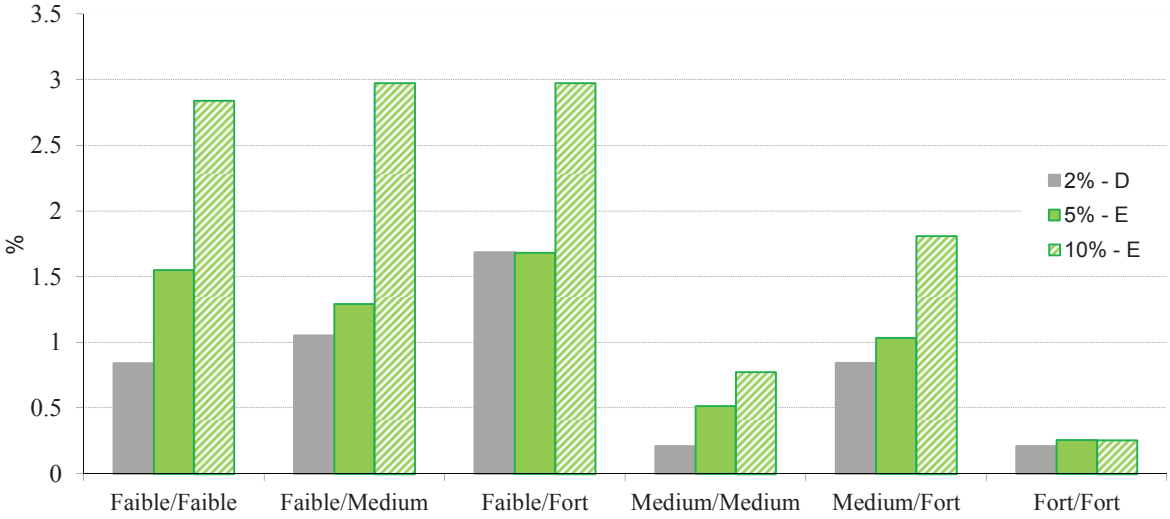


Figure IV.21 : Pourcentage de joints fissurés pour chacune des catégories en fonction du taux de déformation macroscopique

Nous constatons que, de façon similaire aux FS de glissement, les catégories de population possédant le critère « faible » sont les plus touchées par la fissuration et ce quel que soit le taux de déformation macroscopique. L'enveloppe générale des trois distributions est d'ailleurs similaire.
La forte augmentation constatée entre 5 et 10% de l'essai séquentiel est directement liée à l'augmentation de la densité de fissures entre ces deux taux de déformation. Il est toutefois intéressant de constater que toutes les catégories n'ont pas subi une augmentation équivalente. Les augmentations sont indiquées sur le graphique **(figure IV.22)** ainsi que la comparaison entre maclage et glissement.

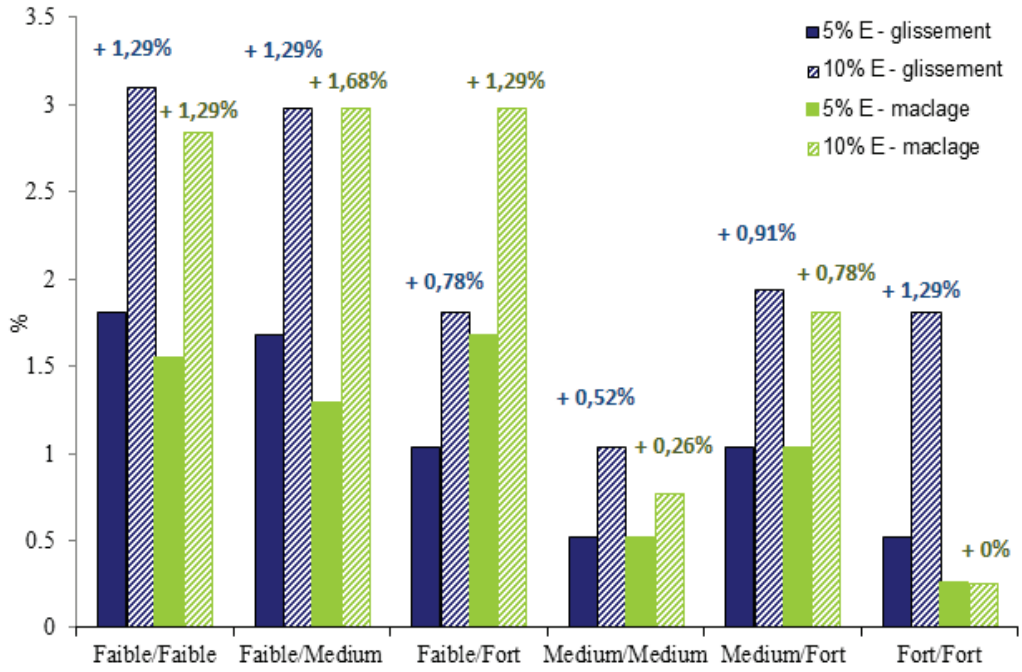


Figure IV.22 : Comparaison glissement / maclage sur le pourcentage de joints fissurés pour chacune des catégories en fonction du taux de déformation macroscopique – les pourcentages indiqués sont indépendants les uns des autres et les augmentations entre 5 et 10% de déformation sont signalés au-dessus des barres correspondantes

Nous remarquons que l'augmentation pour les populations « faible » est plus importante après 10% de déformation lorsqu'il s'agit du maclage.
Le comparatif entre glissement et maclage sur les joints généraux, perpendiculaires et ayant un faible FS qui ont fissuré est donné dans le **tableau IV. 1**.

	Glissement		**Maclage**	
	5% - E	10% - E	5% - E	10% - E
% de joints généraux fissurés dont un des grains adjacent a un faible FS	2,07%	3,62%	2,14%	4,21%
% de joints généraux fissurés perpendiculaires à l'axe de traction et dont l'un des grains adjacent a un faible FS	7,21%	12,60%	7,51%	14,75%

Tableau IV. 1 : Comparatif glissement/maclage

Les valeurs des pourcentages de joints fissurés à 5% de déformation sont tout à fait comparables entre glissement et maclage. Après 10% de déformation, l'écart, à la hausse pour le maclage, est un peu plus marqué. Sur l'ensemble de la population des joints généraux bordés par un faible FS et dont la trace est perpendiculaire à la sollicitation, 12,60% d'entre eux fissurent lorsqu'il s'agit d'un faible facteur de Schmid de glissement et 14,75% (soit environ 2% de plus) fissurent lorsqu'il s'agit d'un faible facteur de Schmid associé au maclage.
Les joints bordés par un grain possédant un faible facteur de Schmid de maclage semblent donc être plus sensibles à la fissuration pour un fort taux de déformation. Nous pouvons supposer que ceci est le résultat d'une incapacité de ces grains à accommoder la forte déformation intragranulaire par activation du maclage alors même que la contrainte locale atteinte est de plus en plus forte.
Mais qu'en est-il du glissement ? En effet, en considérant les facteurs de Schmid de façon isolée (maclage ou glissement séparément), nous ne prenons pas en compte la compétition entre les deux modes de déformation et la possibilité pour le système d'accommoder la déformation en activant l'un ou l'autre de ces modes.

Grâce au couplage entre EBSD et images MEB prises après les essais de CSC, nous connaissons pour chaque fissure la configuration du couple de FS de glissement mais également celui du maclage. Nous avons donc pour chaque fissure créée de nouvelles catégories qui associent le couple de facteur de Schmid de glissement avec celui du maclage.
Par combinaison entre glissement et maclage, nous obtenons 36 configurations possibles. La probabilité d'occurrence de chacune de ces configurations serait *a priori* de 1/81 à 4/81 en fonction de la configuration. Cependant, après vérification sur la microstructure réelle, il apparaît que la statistique ne décrit pas correctement la distribution effective des configurations couplées. Par exemple, il apparaît que les couples de grains en configuration Faible/Faible pour se déformer par glissement sont également plus souvent en configuration Faible/Faible pour le maclage. Nous avons donc compté, sur la microstructure réelle, le nombre total de joints concernés pour chaque configuration et le **tableau IV. 2** ci-dessous donne les pourcentages de joints fissurés par catégorie après 10% de déformation (essai séquentiel).

Glissement/ Maclage	**Faible/ Faible**	**Faible/ medium**	**Faible/ Fort**	**Medium/ Medium**	**Medium/ Fort**	**Fort/ Fort**
Faible/Faible	2.40	4.46	2.99	0	0	0
Faible/Medium	1.90	1.18	3.86	2.94	4.50	1.67
Faible/Fort	4.50	2.45	1.16	0	1.23	0
Medium/Medium	0	0	1.33	4.55	1.71	0
Medium/Fort	4.80	3.33	**6.67**	0	1.95	0
Fort/Fort	0	**8.33**	0	0.67	0.88	0

Tableau IV. 2 : Pourcentages de joints fissurés par catégorie pour les deux modes de déformation après 10% de déformation (essai E) – les catégories pour le glissement sont présentées de haut en bas et celles pour le maclage de gauche à droite

D'un point de vue global, les catégories les plus impactées sont les couples qui présentent un faible FS à la fois pour le glissement et pour le maclage. La fissuration de joints bordés par des grains ayant une forte capacité à se déformer par maclage est en revanche très faible voire inexistante quelle que soit la configuration pour le glissement et la présence d'un faible FS de maclage semble toujours plus dommageable que celle d'un faible FS de glissement.
Les populations qui ont enregistré les plus grandes proportions de joints fissurés (% indiqués en gras dans le **tableau IV.2**) ne figurent pas dans le quart du tableau où les catégories associent un faible facteur de Schmid pour les deux systèmes de déformation. Il s'agit des catégories Fort/Fort (glissement)-Faible/Medium (maclage) et Medium/Fort (glissement)-Faible/Fort (maclage). Il s'agit donc de joints pour lesquels les deux grains ont *a priori* la possibilité de se déformer par activation des systèmes de glissement mais qui présentent en revanche une plus faible capacité pour l'un des deux à activer les systèmes de maclage. Pourtant aucun joint dans les configurations Fort/Fort (glissement) – Faible/Faible ou Faible/Fort (maclage) n'a fissuré, ce qui invalide l'aspect systématique de cette hypothèse. Néanmoins, cette approche ne prend pas en considération le caractère du joint de grains ou son orientation par rapport à l'axe de traction.

Au final, la corrélation entre faible FS et fissuration donne des résultats très similaires entre maclage et glissement, avec une corrélation un peu plus importante entre maclage et fissuration pour les plus forts taux de déformation.
Les réserves émises précédemment (cf. chapitre III) restent cependant valables. Les facteurs calculés avant essai ne prennent pas en compte l'évolution de la texture du polycristal avec la déformation et surtout ils ne rendent pas compte des déformations et contraintes atteintes localement alors même qu'elles conditionnent le comportement des grains sous sollicitation.

IV.1.3 Influence sur la fissuration de la discontinuité de la déformation entre deux grains

La combinaison de facteurs tels que la nature du joint de grains, son orientation vis-à-vis de l'axe de traction et la présence d'un faible FS (qu'il s'agisse de glissement ou de maclage) ne peut pas suffire à expliquer l'amorçage de la fissuration par IASCC. De fait, dans les mêmes configurations, le matériau non irradié ne fissure pas. Pourtant les zones irradiée et non irradiée de l'éprouvette E présentent bien une microstructure initiale identique ce qui implique que la répartition des facteurs de Schmid est elle aussi analogue.

L'approche mécanique semble pourtant être essentielle dans la fissuration par IASCC en milieu REP, comme en attestent les travaux de Thomas et Bruemmer [Thomas 2002]. Après analyses MET d'une fissure provenant d'une vis en acier 316 écroui et irradiée en milieu REP, les auteurs indiquent que les interactions entre oxyde et bandes de déformation prouvent que la déformation est antérieure à l'oxydation. Selon eux, la fissure avance par un mécanisme discontinu de rupture fragile du joint. Des études réalisées en milieu inerte ont également donné lieu à de la fissuration intergranulaire [Furutani 2001, West 2010, Nishioka 2008, Fukuya 2011], y compris pour de faibles doses d'irradiation.

Ces résultats appuient l'hypothèse selon laquelle la localisation de la déformation (bien visible sur les champs de déformation de la zone irradiée) est un facteur prépondérant dans l'amorçage de l'IASCC en milieu primaire. La nature des joints, leur inclinaison vis-à-vis de l'axe de sollicitation ou encore la présence d'un faible FS sont des facteurs sensibilisants et /ou aggravants car ils sont liés à l'énergie de cohésion du joint pour le premier et jouent sur la contrainte locale effective s'appliquant sur le joint pour les deux autres.

Contrairement au mécanisme récemment proposé dans un article de revue par Hojna [Hojna 2013] et essentiellement basé sur celui proposé par Was [Was 2003] (**figure IV.23**), nos résultats montrent que la localisation de la déformation au niveau du joint lui-même n'est pas un critère systématique de fissuration. En effet, les joints ayant fissuré entre 1 et 5% de déformation au cours de l'essai séquentiel ne présentaient pas nécessairement de localisation de la déformation. En revanche, tous étaient entourés de zones fortement et localement très déformées. Au contraire, certains joints très déformés n'ont pas fissuré, y compris après 10% de déformation (**figure IV.24**).

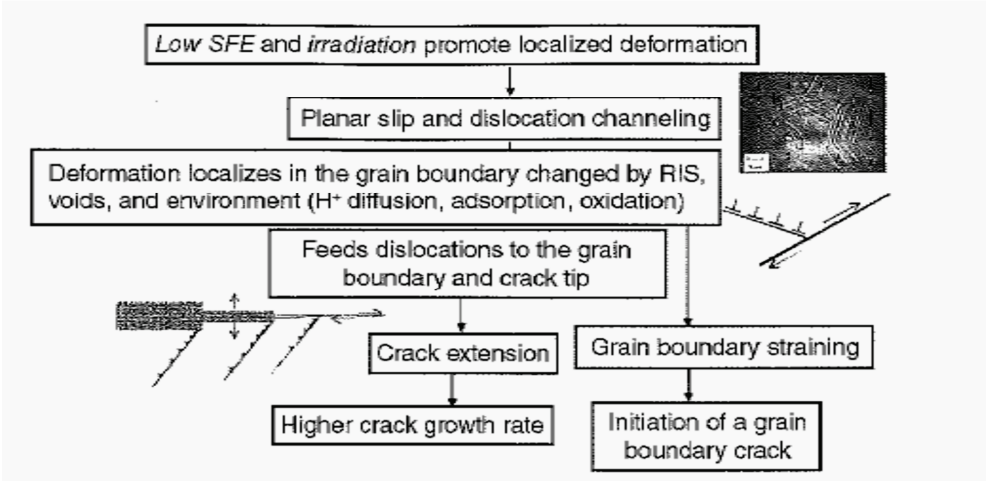


Figure IV.23 : Schéma du mécanisme proposé par Hojna [Hojna 2013] pour expliquer la fissuration par IASCC, modifié d'après le mécanisme proposé par Was [Was 2003]

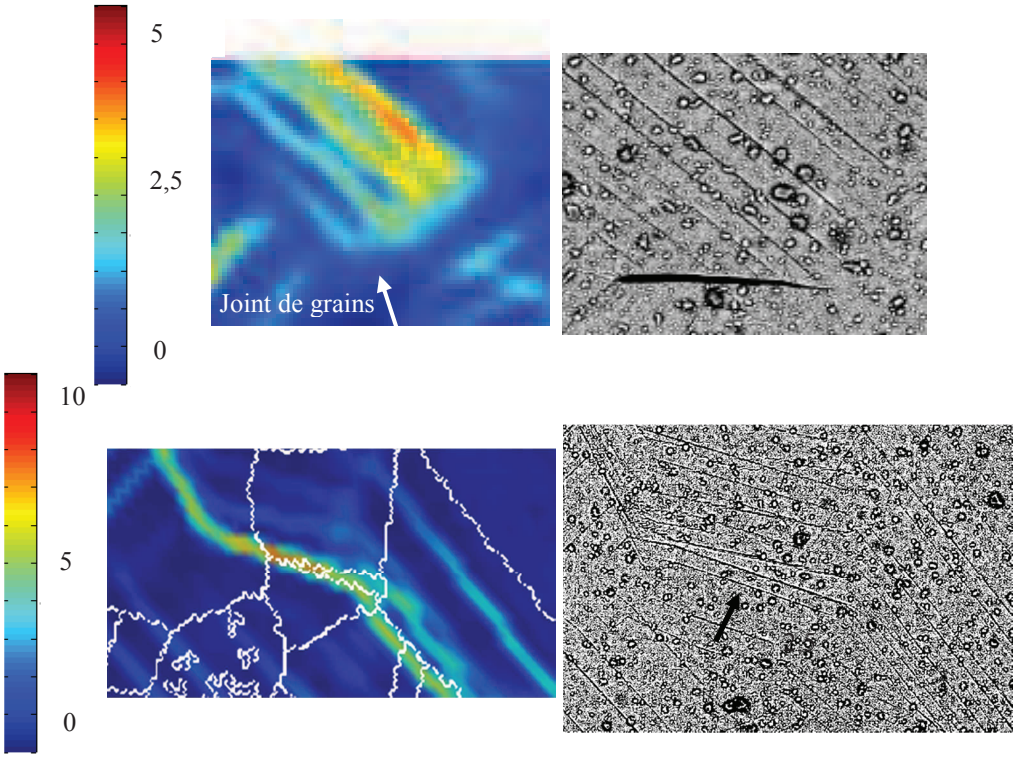


Figure IV.24 : (a) Localisation de la déformation intragranulaire après 1% de déformation macroscopique, pas de localisation sur le joint, (b) image MEB de la même zone après 5% de déformation, le joint a fissuré – (c) Localisation de la déformation sur un joint de grains après 1% de déformation et (d) image MEB de la même zone après 5% de déformation, joint non fissuré

Si la localisation de la déformation dans le joint n'est pas directement impliquée dans la fissuration, la localisation intragranulaire a un impact significatif sur l'état de contrainte à l'échelle des grains dans le polycristal. Il ne s'agit donc pas de chercher les joints fortement déformés mais d'identifier ce qui dans l'environnement d'un joint va conduire à ce que localement la contrainte normale s'appliquant sur celui-ci dépasse sa contrainte de rupture afin d'identifier les mécanismes qui relient localisation de la déformation et fissuration.
L'inclinaison du joint par rapport à l'axe de traction a une conséquence directe sur la contrainte normale au joint qui est maximale pour les joints perpendiculaires à l'axe de sollicitation. En plus de son inclinaison, la probabilité d'avoir une contrainte locale élevée sur le joint de grains est souvent associée à une discontinuité de la déformation de part et d'autre du joint.
Nous avons donc cherché à associer fissures et continuité/discontinuité de la déformation. Trois configurations possibles autour des fissures ont été observées :

1) Continuité de la déformation *i.e.* transmission d'un grain à l'autre à travers le joint de grains avec continuité des bandes de déformation (les bandes peuvent avoir une inclinaison différente de part et d'autre du joint de grains).
2) Discontinuité de la déformation soit par absence de système activé dans le deuxième grain, soit par incompatibilité du(es) système(s) activé(s).
3) Absence de bandes de déformation visibles de part et d'autre du joint de grains.

Lorsqu'il existe un doute sur la configuration, le joint de grains fissuré n'est pas pris en compte dans la statistique. Un exemple de chacune des configurations est présenté sur la **figure IV.25**. Les résultats

pour les éprouvettes D (monotone, 2% de déformation) et E (séquentiel, 5 et 10% de déformation) sont résumés dans le **tableau IV.3**.

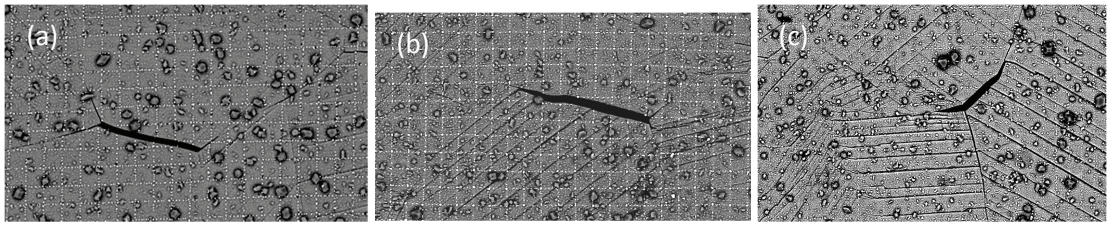


Figure IV.25 : Exemples de configuration des bandes de déformation en surface de l'éprouvette de part et d'autre d'une fissure avec (a) non visibles, (b) discontinues, (c) continues

Eprouvette	**D**	**C**	**A**	**B (10 dpa)**	**E**		
Déformation macroscopique	**2%**	**5%**	**10%**	**10%**	**1%**	**5%**	**10%**
Discontinuité	64%	92%	100%	96%	67%	91%	91%
Continuité	6%	4%	0%	0%	0%	9%	8%
Non visibles	30%	4%	0%	4%	33%	0%	1%

Tableau IV.3 : Configuration des bandes de déformation de part et d'autre des joints fissurés pour chaque essai

Les bandes de déformation des grains situés de part et d'autre d'une fissure sont majoritairement discontinues, pour tous les taux de déformation, sous chargement monotone ou séquentiel et quelle que soit la dose d'irradiation (5 ou 10 dpa). Au-delà de 5% de déformation, la proportion de fissures avec discontinuité des bandes de déformation oscille entre 91 et 100%, ce qui confère à ce paramètre un caractère indiscutable pour l'amorçage de la fissuration par IASCC.

Les résultats de l'essai E à 1% de déformation sont donnés à titre indicatif et doivent être jugés avec prudence car le nombre très limité de fissures ne permet pas d'avoir un regard statistique. En revanche, la densité de fissures après 2% de déformation est beaucoup plus importante et nous constatons qu'environ 30% des fissures dénombrées étaient entourées de grains sans bandes de déformation visibles. Ce pourcentage chute ensuite drastiquement avec l'augmentation du taux de déformation. Ces résultats sont cohérents. En effet, en augmentant la déformation globale, les systèmes de glissement et/ou de maclage sont plus nombreux à être activés et visibles.
Les configurations des joints fissurés après 5% de déformation sous chargement séquentiel (E) ou monotone (C) ne sont pas similaires pour les catégories « Non visibles » et « Continues », sans raison apparente outre le fait que l'éprouvette E avait déjà été sollicitée en traction avant d'être rechargée. Les résultats obtenus aux étapes à 5% et 10% de déformation de l'essai E sont similaires mais la densité de fissures à 10% est plus importante qu'à 5%. Retrouver les mêmes pourcentages pour chaque catégorie indique donc qu'il y a eu à 10% de déformation, apparition de nouvelles fissures dans chacune des catégories concernées avec la même proportion relative que pour 5%.

La forte proportion de fissures montrant une discontinuité de la déformation confirme l'hypothèse qu'une telle discontinuité, associée à une faible énergie de cohésion du joint (joint général) et une contrainte normale au joint maximale (inclinaison du joint à 90°) entraîne une contrainte locale suffisamment élevée pour être responsable de la rupture des joints de grains.
Dans de récentes études [West 2011, West 2013 et McMurtrey 2011], les auteurs indiquent que la probabilité d'avoir une discontinuité de la déformation est fortement dépendante de l'inclinaison du joint de grains et des facteurs de Schmid ou Taylor adjacents aux joints de grains. Elle serait beaucoup plus forte si le grain possède un faible facteur de Schmid (ou fort facteur de Taylor) et s'il est incliné perpendiculairement à la traction (**figure IV.26**). La dépendance entre discontinuité et faible facteur de Schmid s'explique par la faible probabilité, vu le nombre de systèmes potentiellement activables des grains avec un faible FS, qu'il y en ait un qui soit compatible avec ceux éventuellement activés dans le grain voisin. Cependant, et en dépit de cette faible probabilité, deux grains possédant des FS de catégorie « médium » ou « fort » peuvent donc se trouver dans une configuration où le(s) système(s) activé(s) ne sont pas compatibles entre eux et cela explique également en partie que la corrélation entre FS et fissuration ne soit pas aussi indiscutable que celle observée entre discontinuité de la déformation et fissuration.

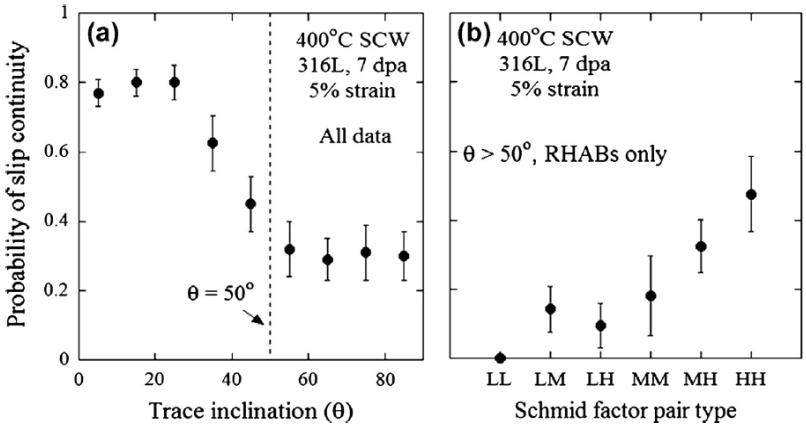


Figure IV.26 : Probabilité de continuité de la déformation en fonction (a) de l'inclinaison du joint de grains et (b) du facteur de Schmid des grains adjacents [West 2013]

D'après Nishioka [Nishioka 2008], il existe trois possibilités pour le joint d'accommoder la déformation (**figure IV.27**) :
(1) Glissement du joint par absorption de dislocations (cas GB1)
(2) Accumulation de la déformation au joint (cas GB2)
(3) Transmission d'un grain à l'autre à travers le joint de grains (cas GB3)

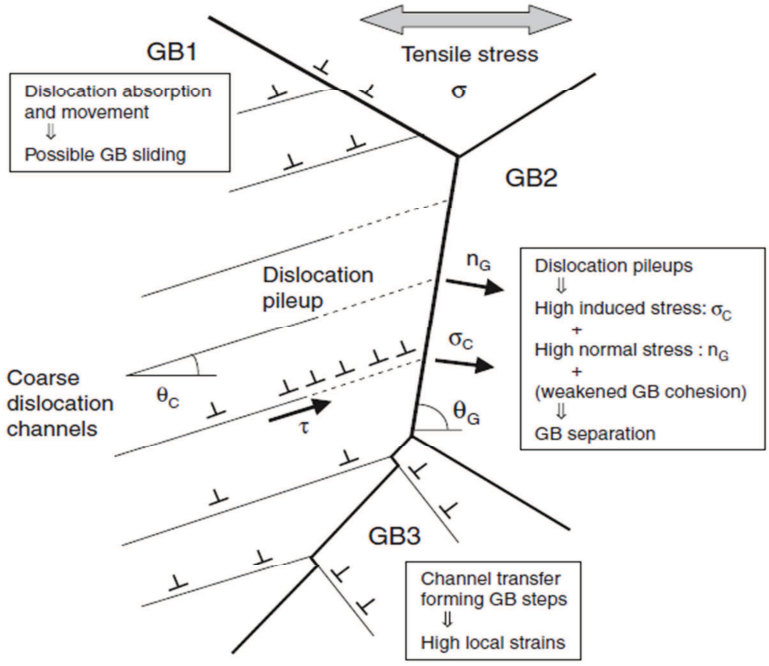


Figure IV.27 : Représentation schématique des possibilités d'accommodation de la déformation par un joint de grains [Nishioka 2008]

Les cas (1) et (2) entraînent une discontinuité de la déformation mais avec dans le premier cas une déformation du joint de grains. Pour Nishioka, la configuration (2) conduit à la rupture si l'état de contrainte local, *ie* l'état de contrainte macroscopique additionné de la contrainte induite par les canaux de dislocations, est supérieur à la contrainte de rupture du joint. L'énergie de cohésion du joint, proportionnelle à la contrainte critique de rupture pour une déformation donnée, peut d'ailleurs être diminuée sous irradiation du fait de la ségrégation chimique et de la présence éventuelle de cavités.

Selon Nishioka, les macles n'engendrent pas d'accumulation de contraintes à l'intersection avec un joint de grains lorsque la déformation macroscopique augmente (contrairement aux empilements de dislocations). Il estime en outre que l'absence de fissures intergranulaires en milieu inerte pour de fortes vitesses de déformation est causée par la suppression des canaux de dislocations en faveur du maclage.

Bailat [Bailat 2000] a étudié des aciers de type 304 et 316 irradiés aux protons ou aux neutrons à 0,15, 1,5 et 7,5 dpa puis déformés à différentes températures. Il estime que la meilleure résistance de l'acier 316 vis-à-vis du 304 est liée à son mode de déformation qui privilégie le maclage. La localisation de la déformation serait plus importante dans le cas de la canalisation des dislocations. Cependant, il confirme que le maclage est un mode de déformation important pour les aciers irradiés et qu'il peut engendrer de la fissuration intergranulaire.

D'ailleurs, si les empilements de dislocations, selon le mécanisme dit de Zener-Stroh, peuvent effectivement induire en tête d'empilement une forte contrainte et la formation de microfissures (**figure IV.28 a)**), il a été démontré que les macles sont par exemple à l'origine d'un phénomène identique dans les intermétalliques de type TiAl (**figure IV.28 b)**) [Simkin 2007, Bieler 2006].

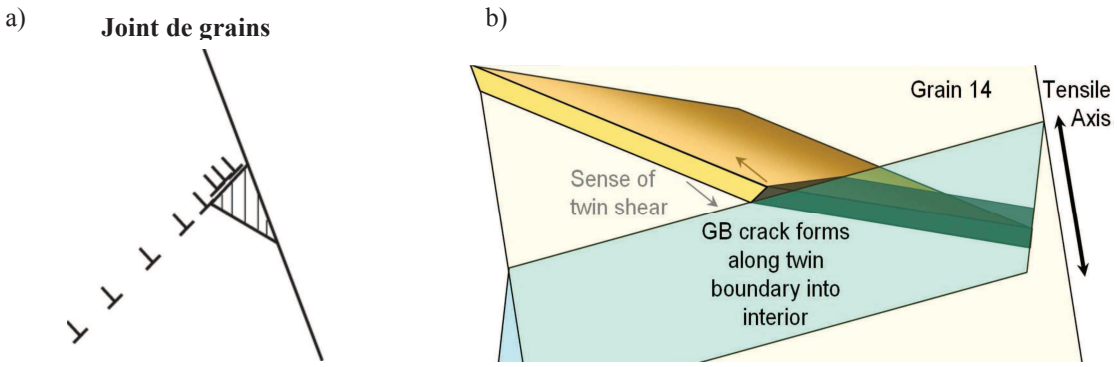


Figure IV.28: (a) Formation d'une microfissure à l'intersection canal / joint de grains du fait de la contrainte générée par l'empilement des dislocations selon le mécanisme dit de Zener-Stroh ; (b) Formation d'une microcavité à l'intersection macle / joint de grain [Bieler 2006]

Les résultats de cette étude vont dans ce sens et ont démontré que le maclage pouvait entraîner un endommagement du matériau à l'intersection entre joints de grains et macles.
Cependant, plus que le type de mécanisme activé, nous avons confirmé que c'est bien l'incompatibilité des systèmes de déformation entre grains, quels qu'ils soient, que nous exprimons sous le terme de discontinuité, qui prime dans l'amorçage des fissures par IASCC.
Cette incompatibilité ne peut pas être correctement décrite par les facteurs de Schmid pour les raisons évoquées précédemment. Parmi les configurations conduisant à une discontinuité, le joint de grains peut être déformé ou non. Les résultats obtenus dans cette étude montrent que le deuxième cas de figure est privilégié.

IV.2 Influence sur la fissuration du trajet de chargement et de la profondeur de la couche irradiée

L'ensemble des calculs présentés dans cette partie ont été réalisés par F. Jambon, post-doctorante MinesParisTech, à l'aide du logiciel de calcul par éléments finis Z-set développé par le Centre des Matériaux (Mines ParisTech), l'ONERA et l'entreprise Northwest Numerics.

Il s'agit de jeter les bases de simulations numériques susceptibles d'apporter quelques éclaircissements ou pistes de réflexion concernant les caractérisations expérimentales effectuées au cours des chapitres précédents.

En effet, du fait de la faible profondeur de pénétration des protons 2MeV dans le matériau (20 µm), celui-ci peut être considéré comme un matériau bicouche composé d'une couche « mince » (20 µm << 1 mm) dure et fragile déposée sur un substrat ductile et dont l'adhérence serait parfaite. Cette situation n'est pas comparable à une irradiation avec des neutrons qui pénètrent sur plusieurs centimètres de profondeur.

Des travaux de Busby [Busby 2001] montrent toutefois, qu'à dose équivalente, un matériau irradié aux protons présente le même pourcentage de rupture intergranulaire, estimé à partir du faciès de rupture, qu'un matériau irradié aux neutrons, et d'après West [West 2010], ce résultat prouve que la « caractéristique bicouche » engendrée par l'irradiation aux protons n'a pas une influence primordiale

sur la sensibilité du matériau à l'amorçage de fissures et notamment sur la densité de fissures. Néanmoins, ces études ne permettent pas de conclure quant à l'influence de cette hétérogénéité de propriétés sur la propagation dans le volume des fissures en question.
En plus de l'influence de la nature du chargement et de l'écrouissage, nous avons donc cherché à qualifier les conséquences de cette configuration bi-matériau sur la fissuration.

IV.2.1 Paramètres de modélisation : géométrie et lois de comportement

Le maillage retenu consiste à représenter à l'aide d'éléments c2d8 quadratiques à 9 points d'intégration, une demi-structure (pour des raisons de symétrie) composée d'un matériau bi-couche (substrat/couche irradiée) en présence d'une fissure simulée par une entaille de fond semi-circulaire (**figure IV.29***)*. Le calcul a été effectué en 2D et en déformation plane. La zone de l'entaille est maillée très finement pour éviter les effets de taille de maille (indépendance au maillage). Le rapport entre l'épaisseur de la couche externe, qui simule la couche irradiée, et le reste de la structure, qui simule le substrat ductile, *i.e.* le rapport entre épaisseur irradiée et non irradiée est de 100, soit 2,5 fois le rapport réel après irradiation aux protons 2MeV de notre matériau d'étude.

Trois profondeurs différentes ont été attribuées aux entailles de façon à reproduire la présence d'une fissure s'arrêtant :

(1) à 1/10 de la profondeur irradiée – géométrie nommée « S » pour surface
(2) à mi-épaisseur de la couche irradiée – géométrie nommée « M » pour mi-épaisseur
(3) dans le substrat peu après la couche irradiée – géométrie nommée « N » pour non irradié

Le maillage des entailles en fonction de ces trois géométries est illustré sur la **figure IV.29**.

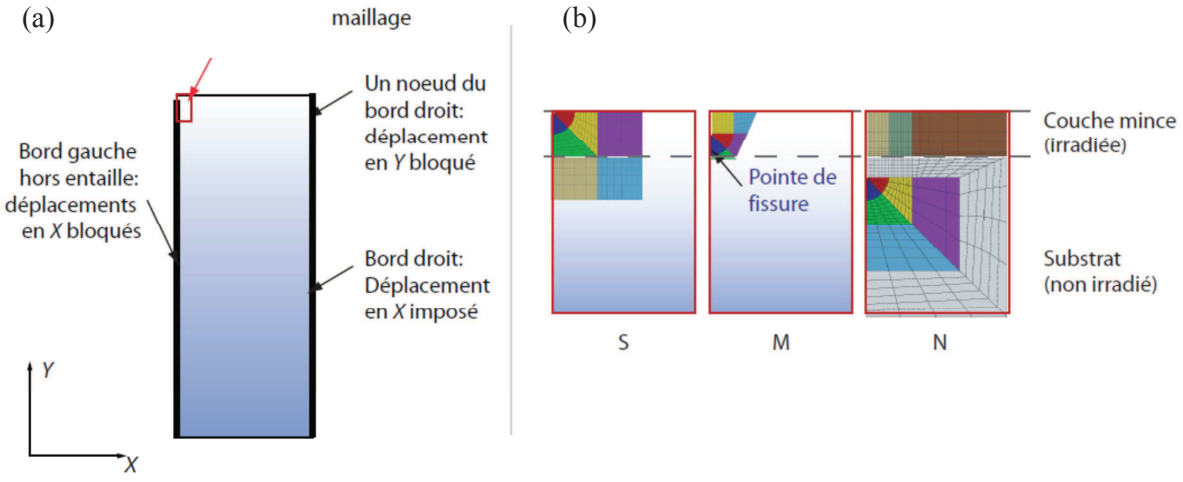


Figure IV.29 : (a) Vision globale de la géométrie utilisée et (b) maillage des trois types d'entailles

La déformation de la structure est simulée en imposant un déplacement unilatéral suivant l'axe horizontal (X). Le déplacement suivant l'axe X du bord gauche de la structure est nul pour raison de symétrie et les bords supérieur et inférieur de la structure sont laissés libres (contrainte nulle sur la surface libre).

Pour comparaison, les deux types de chargement ont été imposés suivant l'axe X sur chacune de ces géométries avec une déformation macroscopique de 2% pour le chargement monotone et de 1, 2 et 3% de déformation pour le chargement séquentiel.

Choisir une loi de comportement pour le matériau irradié et non irradié qui soit compatible avec les paramètres des essais expérimentaux (température, faible vitesse de déformation…) est particulièrement complexe. Une loi de comportement isotrope et cinématique non linéaire de type Chaboche a été utilisée (**eq. IV.1**). Ce choix s'appuie sur les travaux de thèse de De Baglion [De Baglion 2011] portant sur des sollicitations de traction uniaxiale et de fatigue oligocyclique à 300°C, auquel on ajoute un faible écrouissage linéaire pour faciliter la convergence du calcul.
Les paramètres de ces lois de comportement ont été ajustés en fonction des données connues sur notre matériau suite aux essais de traction réalisés par AREVA NP à 325°C sur le matériau non irradié et grâce aux données disponibles dans la littérature [De Baglion 2011, Pokor 2002].

$$\sigma = R_0 + Q\,(1 - e^{-b\varepsilon p}) + H\varepsilon p + C/D\,(1 - e^{-D\varepsilon p}) \quad \textbf{(IV.1)}$$

Avec H=50 MPa (arbitraire), Q = 96 MPa, C= 40243,7 MPa ; b=3.65 ; D=335.
R_0, la limite d'élasticité, est fixée à 200 MPa pour le matériau non irradié, le module de Young à 150 GPa et le coefficient de Poisson à 0,3. εp désigne la déformation plastique cumulée.

Pour la couche irradiée, les paramètres ont été fixés à l'aide des courbes expérimentales obtenues par Pokor [Pokor 2002]. Le module de Young est supposé identique à celui du matériau de base et la limite d'élasticité, de 800 MPa, a été calculée via l'équation **(I.4)** à partir des résultats de microdureté.

IV.2.2 Champs mécaniques en pointe de fissure

Nous avons vu que l'irradiation conduisait à une augmentation notable de la limite d'élasticité, avec une valeur près de 4 fois supérieure à celle du matériau de base. Comme nous l'avons précédemment évoqué, la pénétration des protons dans le matériau et donc le volume irradié reste faible au regard du volume total de l'éprouvette. Du fait de leurs propriétés mécaniques respectives, et pour les conditions aux limites imposées au système, le substrat non irradié va entrer en plasticité et imposer sa déformation à la couche irradiée. Celle-ci présentant une limite d'élasticité beaucoup plus élevée que celle du substrat, un état de surcontrainte va donc apparaître dans ladite couche ce qui peut faciliter sa fissuration. Dans le cas où une amorce de fissure est présente, cette surcontrainte risque de modifier la réponse du matériau vis-à-vis de la propagation de la fissuration.

Nous avons vérifié quelle était l'influence du durcissement engendré par l'irradiation sur les champs mécaniques en pointe de fissure pour une entaille s'arrêtant à mi-épaisseur de la couche. La **figure IV.30** indique, par comparaison avec le chargement macroscopique appliqué (courbe continue noire), les réponses en contrainte et déformation en pointe de fissure lorsque la couche a des propriétés similaires au substrat (en bleu) ou au contraire lorsqu'elle est durcie (en rouge).

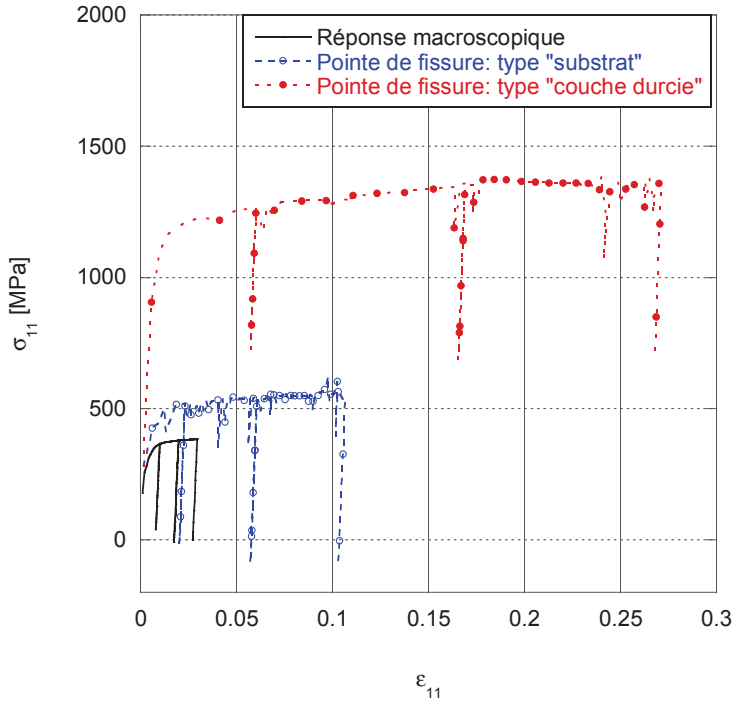


Figure IV.30 : Courbes contrainte – déformation en pointe de fissure à mi-épaisseur (M) de la couche irradiée pour un chargement séquentiel à 1, 2 puis 3% de déformation en fonction des propriétés mécaniques de la couche. En bleu, propriétés identiques au substrat, en rouge couche durcie. En noir, réponse globale de la structure

Pour une même géométrie d'entaille et un même chargement macroscopique, nous constatons bien que le durcissement de la zone irradiée a une influence indiscutable sur les champs mécaniques en pointe de fissure et conduit à une augmentation significative de l'état local de contrainte et de déformation, conduisant à une très forte localisation des déformations, pouvant atteindre dans cet exemple un taux supérieur à 25% pour un chargement macroscopique de 3%.

Nous avons ensuite cherché à simuler par calcul les contraintes et déformations en fond de fissure en fonction de la profondeur de l'entaille (configurations S, M , N), comparées là encore à la réponse macroscopique de la structure. Les résultats obtenus sont présentés sur la **figure IV.31** pour un taux de déformation macroscopique imposé de 2% (chargement monotone).

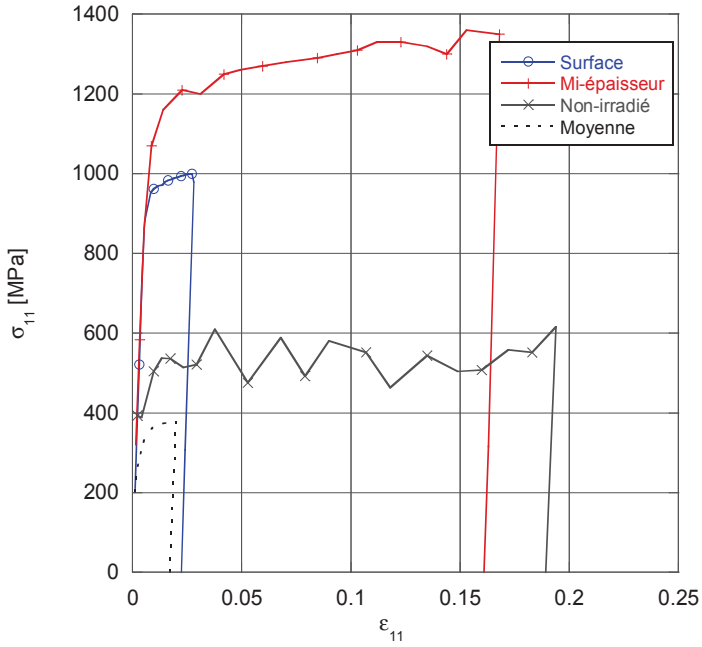


Figure IV.31 : Courbes contrainte – déformation en pointe de fissure en fonction de sa profondeur pour 2% de déformation macroscopique imposée par traction monotone

Nous constatons que la surcontrainte générée dans la partie irradiée du matériau entraîne l'apparition d'une importante concentration de contrainte en pointe de fissure lorsque celle-ci s'arrête dans cette couche. La surcontrainte est d'autant plus élevée que la fissure est profonde. Par contre, pour la profondeur d'entaille allant au-delà de la zone irradiée, *i.e.* dans la zone ductile du matériau, nous constatons une chute du niveau de contrainte locale due à la différence de propriétés. Par contre la localisation de la déformation apparaît plus sévère (20% pour un chargement macroscopique de 2%) .

La surcontrainte générée dans la couche irradiée du fait que la déformation de cette zone soit imposée par la déformation plastique du substrat (déformation qui intervient pour une contrainte macroscopique 4 fois inférieure à limite d'élasticité du matériau irradié) a un impact non négligeable sur la concentration de contrainte en pointe de fissure. Cette concentration est telle, qu'une fois la fissure amorcée, celle-ci se propagera dans l'ensemble de la couche irradiée. En revanche, au-delà de l'interface irradié/non irradié, nous avons vu que les contraintes en pointe de fissure étaient beaucoup plus faibles et avec une déformation plus importante. Le substrat, ductile, permet en effet une meilleure accommodation du défaut par la matrice. La contrainte en pointe de fissure chutant brutalement entre la zone irradiée et non irradiée du matériau, la force motrice de la propagation de cette fissure disparaît ce qui explique que quasiment toutes les fissures observées expérimentalement s'arrêtent à l'interface.
Cette situation est certainement plus marquée dans les matériaux irradiés aux ions du fait de la présence du pic de Bragg et donc d'une limite d'élasticité encore plus élevée à l'interface entre zones irradiée et non irradiée.
Dans le cas des pièces utilisées en réacteur, en revanche, les neutrons pénètrent suffisamment dans la matière pour qu'il n'y ait pas présence d'un substrat non irradié et donc ductile. La surcontrainte générée dans le film irradié par l'entrée en plasticité du substrat n'est donc pas représentative de l'état de contrainte d'une pièce irradiée aux neutrons. Les essais de CSC réalisés sur des matériaux irradiés

aux ions devraient donc conduire à une propagation des fissures plus importante et donc plus dommageable que dans le cas d'une irradiation aux neutrons.
Cependant, les variations de température et de dose relevées sur une même pièce en fonction de leur position dans le réacteur [Edwards 2003], conduisent également à un gradient des propriétés mécaniques au sein du composant et donc éventuellement à la création de surcontrainte dans certaines zones de la pièce. La surcontrainte est d'autant plus importante que l'écart entre les limites d'élasticité est grand. Malgré tout, ces considérations sont à évaluer avec prudence et ne concerneraient que les premiers stades d'irradiation en service, avant que les limites d'élasticité de chaque zone ne soient stabilisées entre 800 et 1000 MPa après une dose comprise entre 5 et 10 dpa.

IV.3 Perspectives

Nous avons vu que pour un même taux de déformation, la réponse du matériau en termes de densité linéique de fissures dépendait du mode de chargement (monotone ou séquentiel). Ces différences sont supposées être liées à l'irréversibilité partielle du chargement dû à la présence des fissures en surface de l'éprouvette, générées par les étapes précédentes dans le cas d'un chargement séquentiel. Le principe du chargement séquentiel est illustré sur la **figure IV.32**.

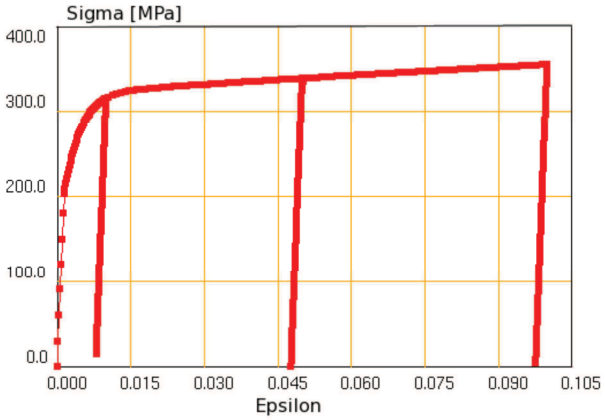


Figure IV.32: Courbe contrainte-déformation schématique dans le cas d'un chargement séquentiel

En plus des défauts d'ores et déjà présents en surface avant rechargement de l'éprouvette, l'effet du trajet de chargement peut également avoir des conséquences observables sur l'évolution du profil de fissuration en fonction du comportement des matériaux, comme cela a déjà été rapporté dans la littérature ([Couvant 2005], [Huguenin 2012]). Les déchargements et rechargements successifs de l'éprouvette peuvent en effet entraîner un phénomène de localisation des champs mécaniques en pointe de fissure, lié à l'aspect fortement cinématique de l'écrouissage. Nous avons donc cherché à déterminer par simulations numériques aux éléments finis quelle était l'influence du trajet de chargement sur le comportement mécanique en pointe de fissure.

La **figure IV.33**. illustre les résultats de cette étude. Nous n'avons pas pu mettre en évidence une différence de réponse entre les deux types de chargement en pointe de fissure. Ceci peut être dû à l'identification des paramètres d'écrouissage qui ne seraient pas optimum, notamment la partition entre cinématique et isotrope, partition sans aucune conséquence pour un chargement monotone mais qui trouve tout son sens lors de l'étude des changements de trajets de chargement. Il serait intéressant de mener cette même étude à partir d'essais sur éprouvette en croix comme le pratique Couvant (Couvant et al.) afin d'exacerber le phénomène de localisation et de permettre d'illustrer les effets observés expérimentalement dans cette étude.

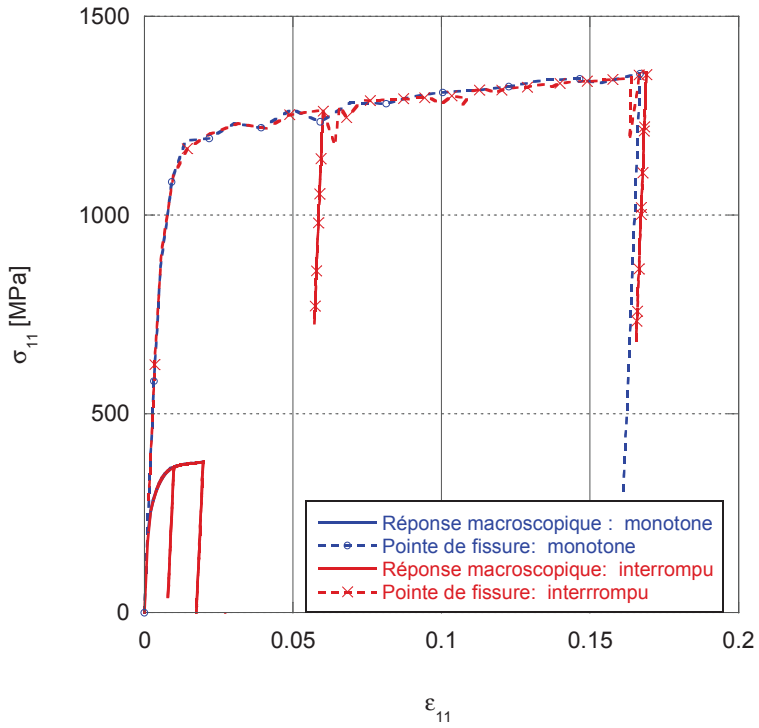


Figure IV.33 : Courbes contrainte –déformation en pointe de fissure pour 2% de déformation macroscopique imposée par traction monotone (pointillés bleus) ou en séquentiel 1% puis 2% (pointillés rouges) pour la profondeur d'entaille « mi-épaisseur » (M), en trait plein la réponse macroscopique de la structure pour les deux types de chargement

D'autre part, il a été estimé que l'IASCC de composants irradiés aux neutrons s'amorçait à partir d'une contrainte macroscopique pouvant être jusqu'à deux fois plus faible que la limite d'élasticité du matériau irradié [Fyfitch 2009]. Or, nous venons de voir, que la contrainte atteinte localement peut en réalité être supérieure à cette limite d'élasticité et donc conduire à l'activation de systèmes de déformation. Sous irradiation, cette déformation est localisée en bandes étroites, soit par glissement avec un phénomène de canalisation des dislocations soit par maclage. Cette localisation peut elle-même entraîner, dans certains cas, une augmentation de la déformation au niveau des joints de grains si celle-ci est transmise au grain adjacent à travers le joint (comme c'est souvent le cas pour les macles de recuit) ou si le joint est cisaillé (par absorption des dislocations mobiles). Elle peut également être source d'incompatibilité de déformation à l'origine d'une forte augmentation de la contrainte à l'intersection entre les bandes de déformation et le joint de grains dans le cas où celui-ci ne se déformerait pas.
La plus forte sensibilité des joints de grains généraux comparés aux joints de macle Σ3 peut s'expliquer par leur plus faible énergie de cohésion. Celle-ci peut encore être diminuée par la ségrégation d'impuretés et la présence de cavités, ces deux derniers points n'étant d'ailleurs pas limités aux joints généraux.
Nous avons vu que l'inclinaison du joint de grains à 90° par rapport à la direction de sollicitation, en lien avec la discontinuité de la déformation, est un paramètre aggravant qui augmente le risque de fissuration par une augmentation de la contrainte locale normale sur le joint.

Toutefois, les déformations et contraintes locales générées par les bandes de déformation localisées ne semblent pas être suffisantes pour induire une fissuration des joints de grains en milieu inerte lorsque

la contrainte macroscopique est faible. Jambon [Jambon 2012] suggère en effet, pour de faibles niveaux de contrainte extérieure, une contribution liée à l'absorption d'hydrogène, pour promouvoir une fissuration par IASCC en milieu réducteur.

Néanmoins l'influence de la contribution mécanique sur l'amorçage de la fissuration intergranulaire par IASCC reste essentielle. Si la localisation de la déformation est de plus en plus citée comme un facteur clé de la fissuration intergranulaire sous irradiation, nous avons montré que le paramètre à déterminer n'est pas le niveau de déformation au niveau du joint en tant que tel mais bien son état de contrainte. Il est actuellement encore impossible expérimentalement de mesurer des champs de contrainte à l'échelle locale comme nous avons pu le faire pour la déformation. Cependant, ils peuvent être estimés *via* une simulation numérique par éléments finis. Pour cela, la connaissance des conditions locales de déformation de la microstructure en traction est indispensable. Appliquée sur un agrégat polycristallin maillé à partir d'une microstructure réelle, la connaissance de ces conditions aux limites, représentatives de la localisation de la déformation intragranulaire, couplée aux mécanismes de déformation observés *via* la loi de comportement utilisée, permettra de déterminer de façon réaliste les champs de contrainte dans la microstructure et de mettre en lumière les zones de concentration de contrainte et les valeurs associées. Une illustration de cette démarche est donnée sur la **figure IV.34** où il apparaît que certains joints de grains orientés quasi-perpendiculairement à l'axe de traction sont très fortement contraints alors que d'autres présentant la même orientation le sont peu. Toutefois la correspondance avec les joints ayant réellement fissuré est loin d'être parfaite ceci peut notamment être dû au fait que nous ne prenons pas en compte dans la simulation numérique présentée ici le mécanisme de maclage. Or nous avons vu que ce dernier ne peut être négligé, ce qui fera l'objet des prochains développements.

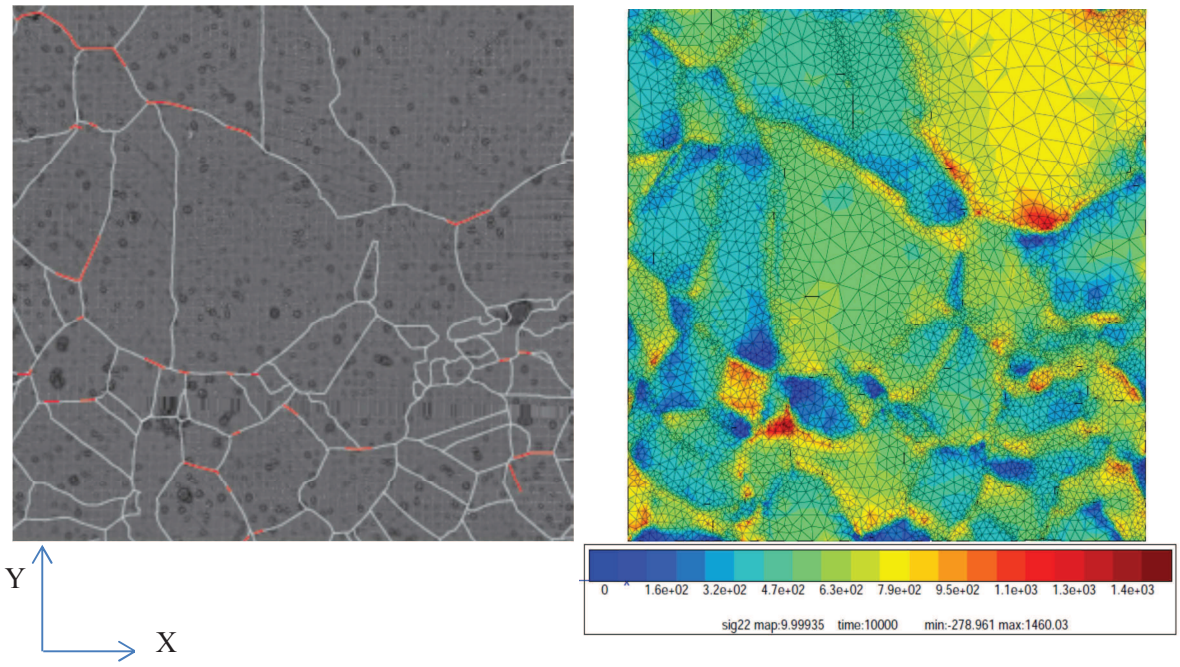


Figure IV.34: A gauche, microstructure réelle de l'éprouvette D (5 dpa, monotone, 2% de déformation) utilisée pour le maillage ; les joints fissurés lors de l'essai sont indiqués en rouge ; à droite, champs de contrainte calculés sur un polycristal 2D – composantes suivant l'axe Y correspondant à l'axe de traction

Résumé

Deux mécanismes de déformation peuvent être activés dans les aciers inoxydables austénitiques irradiés, à savoir le maclage et la canalisation des dislocations. Les deux mécanismes aboutissent à la formation de bandes exemptes de défauts, dites bandes claires, et, au microscope électronique en transmission, les macles peuvent présenter un contraste similaire à celui des canaux de dislocations selon les conditions d'orientation de la lame mince.
La formation de canaux de dislocations est considérée comme le mécanisme principal pour des doses supérieures à 0.1 dpa dans une gamme de températures supérieure ou égale à la température ambiante. Cependant, du maclage a été observé à plusieurs reprises, y compris pour des températures de l'ordre de 300°C avec une faible vitesse de sollicitation et un matériau irradié à une dose supérieure à 0.1 dpa. De fait, les conditions de contrainte/déformation, dose d'irradiation et température conduisant au maclage n'ont pas été clairement identifiées.

Afin d'identifier quel(s) étai(en)t le(s) mécanisme(s) à l'origine de la localisation de la déformation pour nos conditions d'essai (2.10^{-7} s^{-1} et 350°C), des analyses par MET ont été effectuées sur deux pointes de fissures prélevées respectivement sur les éprouvettes irradiées à 5 dpa et déformées par chargement monotone à 2 et 10% de déformation macroscopique. Ces analyses démontrent que du maclage a été activé dans les deux cas. Sur la lame provenant de l'éprouvette déformée à 10%, certaines macles forment des marches d'une cinquantaine de nanomètres à l'intersection avec la fissure et une distorsion du réseau de quelques degrés a été observée à l'une de ces intersections.
Bien que les systèmes de déformation n'aient pas pu être tous identifiés avec certitude sur la fissure provenant de l'éprouvette déformée à 2%, nous avons constaté que des macles s'étaient également formées. Qu'il s'agisse de maclage ou de canalisation, les deux systèmes induisent une forte localisation de la déformation, mais ces résultats nous ont incités à revoir notre étude sur la corrélation entre facteurs de Schmid et fissuration en considérant les facteurs de Schmid de maclage.

Cette analyse a donné des résultats très similaires à celle menée sur les FS de glissement, avec cependant une meilleure corrélation entre FS de maclage et fissuration pour le plus fort taux de déformation. Ainsi près de 14.8% des joints généraux dont la trace est inclinée à 90° vis-à-vis de l'axe de traction et adjacents à un grain de faible FS de maclage ont fissurés, contre 12.6% pour des joints de même nature et inclinaison mais adjacents à au moins un grain de faible FS de glissement. Les catégories de joints les plus impactées sont d'ailleurs ceux qui sont entourés par des couples de grains qui présentent un faible FS à la fois pour le glissement et le maclage. Il n'en reste pas moins que ce critère n'a pas une dimension systématique et que les FS ne peuvent rendre compte des déformations et contraintes atteintes localement, paramètres essentiels pour décrire le comportement sous sollicitation d'un polycristal dans lequel la déformation est fortement localisée.

Si la présence d'un faible FS n'est pas systématique, la discontinuité de la déformation de part et d'autre des joints fissurés l'est quasiment. Cette discontinuité, associée à une faible énergie de cohésion (joint général) et une contrainte normale au joint maximale (incliné à 90° par rapport à la traction), entraîne une contrainte locale suffisamment élevée pour rompre le joint de grains. Cette situation peut d'ailleurs concerner des grains qui présentent des FS élevés mais dont les systèmes activés ne sont pas compatibles, ce qui explique que la corrélation entre fissuration et faible FS ne soit pas aussi indiscutable que celle observée entre discontinuité et fissuration.

Plus que la déformation locale autour des joints de grains, c'est la connaissance de l'état local de contrainte qui devrait permettre de décrire correctement l'amorçage de l'IASCC en milieu REP et de définir un critère d'ouverture.

Pour finir, les bases d'une étude par simulation numérique aux éléments finis ont été posées afin d'apporter quelques éléments aux résultats expérimentaux obtenus sur les essais de CSC. Ainsi, une structure bicouche constituée d'un substrat ductile (matériau non irradié) recouvert d'une couche mince dure (matériau irradié) a été maillée. Une loi de comportement a été définie pour le substrat non irradié d'une part et la couche irradiée d'autre part à l'aide des propriétés mécaniques connues de notre matériau et des données disponibles dans la littérature. La présence d'une fissure a été simulée par une entaille semi-circulaire s'arrêtant dans la partie irradiée ou non irradiée de la structure et les champs mécaniques en pointe de fissure ont été calculés pour ces différentes configurations.
Les champs mécaniques en pointe de fissure sont fortement impactés par le durcissement de la zone irradiée. Dans le cas d'une entaille s'arrêtant à mi-épaisseur de cette zone, la contrainte générée en fond d'entaille est particulièrement élevée comparativement à celle calculée en pointe d'une fissure s'arrêtant dans la partie non irradiée du matériau. Une telle contrainte explique la propagation des fissures dans l'épaisseur irradiée. En revanche, la chute de contrainte une fois le matériau non irradié atteint explique que les fissures observées expérimentalement ne se propagent pas ou peu au-delà de l'interface. Le gradient de propriétés lié aux limites expérimentales des irradiations aux ions n'est pas représentatif d'une irradiation aux neutrons et les essais de CSC pratiqués en laboratoire sur ces matériaux conduiraient donc à une plus grande propagation des fissures dans le volume irradié.

Summary

Two deformation mechanisms can be activated in irradiated austenitic stainless steels: twinning and dislocation channeling deformation (DCD). Both result in the formation of bands cleared of radiation defects (often named clear bands), and, when observed by transmission electron microscopy, twins can present a contrast similar to channels depending on the thin foil orientation.
The formation of dislocation channels is considered as the main mechanism for doses higher than 0.1 dpa and in a range of temperature greater than or equal to room temperature. However, twinning was already observed, even for temperatures close to 300°C, a slow strain rate and an irradiation dose greater than 0.1 dpa. Actually, the conditions of stress/ deformation, dose and temperature leading to twinning were not clearly identified.

To identify the mechanisms responsible for strain localization in the experimental conditions used in this work (2.10^{-7} s^{-1} and 350°C), TEM analyses were performed on two crack tips taken from the samples irradiated to 5 dpa and strained to 2 and 10 % of macroscopic deformation (monotonic loading). TEM analyses demonstrate that twinning was activated in both cases. On the thin foil taken on the sample strained to 10 %, some twins form steps of about fifty nanometers at the intersection with the crack and a distortion of the crystalline network of few degrees was observed at one of these intersections.
Although we were not able to identify with certainty all the deformation mechanisms on the sample strained to 2 %, deformation twins were observed. Whatever the system activated, both lead to a strong localization of the deformation, but these results led us to examine again our study on the correlation between Schmid factors and cracking by considering the Schmid factor (SF) calculated for twinning.

This analysis gave very similar results to the slipping SF one, although a better correlation exists between twinning SF and cracking for the highest deformation. About 14.8 % of the RHABs boundaries with an orientation of 90° to the tensile axis and neighbored by at least one grain with a low twinning SF cracked, against 12.6 % for boundaries of the same nature and orientation but neighbored by a grain with a low slipping SF. However, the grain boundaries more prone to cracking are those surrounded by couples of grains which present a low FS for both slipping and twinning. Nevertheless, this criterion is not systematic and SF cannot describe local deformations and stress which are essential parameters to describe the behavior of a polycrystal in which the deformation is strongly localized.

If the presence of a low SF is not systematic, the discontinuity of the deformation on both sides of the cracked boundaries is almost always observed. This discontinuity, associated with low cohesion energy grain boundary (RHABs) and a normal stress maximal when perpendicular to the boundary (boundary perpendicular to the tensile axis), leads to a local stress which can be high enough to break the grain boundary. This configuration can also exist for two grains presenting high SF but without compatible activated systems. This explains why the correlation between cracking and low SF is not as unquestionable as the one between deformation discontinuities and cracking.
More than the local deformation around the grain boundaries, it is the knowledge of the local stress state that will allow correctly describing IASCC initiation in PWR environment and defining an opening criterion for cracking.

Besides, the bases of a study by finite element simulation were brought in order to complete the experimental results of the SCC tests. A bi-layer structure, consisting of a ductile substrate (non-irradiated material) covered by a hard thin layer (irradiated material) was meshed. A constitutive law was used for the non-irradiated substrate on one hand and the irradiated layer on the other hand based the mechanical properties measured for our material and data available in the literature. A crack was simulated by a semi-circular notch stopping in the irradiated or non-irradiated part and the mechanical fields at the crack tips were calculated for these various configurations.

The mechanical fields at crack tips are strongly impacted by the hardening of the irradiated area. When the notch stops at the mid-thickness of this layer, the stress generated at the crack tip is particularly raised up compared with the one calculated for crack stopping in the non-irradiated part of the material. Such a stress explains the propagation of cracks in the irradiated thickness. On the other hand, the stress strongly decreases once the non-irradiated material is reached. This explains that the cracks experimentally observed do not propagate (or slightly) beyond the interface. The gradient of properties created by the experimental limits of ion irradiations is not representative of neutron irradiation and laboratory SSRT tests carried out on this kind of materials would thus lead to deeper crack propagation in the irradiated volume.

Bibliographie

[Bailat 2000] C. Bailat, A. Almazouzi, N. Baluc, R. Schaublin, F. Groschel, M. Victoria, «The effects of irradiation and testing temperature on tensile behaviour of stainless steels», J. Nucl. Mater. 283 (2000) 446-450

[Bieler 2006] T.R Bieler, M.A. Crimp, A. Ma, F. Roters, D. Raabe, «Slip Interactions Leading to Damage Nucleation in Grain Boundaries», Plasticity Conference, Halifax, Canada (2006)

[Bruemmer 2006] S.M Bruemmer, L.E Thomas, «High-resolution characterization of stress corrosion crack tips in stainless steel core internals», International Symposium Fontevraud VI (2006)

[Busby 2001] J.T Busby, «Isolation of the role of radiation-induced segregation» PhD thesis, University of Michigan (2001)

[Byun 2006] T.S Byun, N. Hashimoto, K. Farrell, «Deformation mode map of irradiated 316 stainless steel in true stress–dose space», J. Nucl. Mater. 351 (2006) 303-315

[Couvant 2005] T. Couvant, L. Legras, F. Vaillant, J.M Boursier and Y. Rouillon, « Effect of Strain-Hardening on Stress Corrosion Cracking of AISI 304L Stainless Steel in PWR Primary Environment at 360°C », Proc. 12th International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems - Water Reactors, Salt Lake City, UT, USA (2005), 1069-1079

[De Baglion 2011] L. De Baglion, «Comportement et endommagement en fatigue oligocyclique d'un acier inoxydable austénitique 304L en fonction de l'environnement (vide, air, eau primaire REP) à 300°C», thèse ENSMA (2011)

[Edwards 2003] D.J. Edwards, E.P. Simonen, S.M. Bruemmer, «Evolution of fine-scale defects in stainless steels neutron-irradiated at 275°C», J. Nucl. Mater. 317 (2003) 13-31

[Edwards 2004] D.J. Edwards, B.N. Singh, «Evolution of cleared channels in neutron-irradiated pure copper as a function of tensile strain», J. Nucl. Mater. 329–333 (2004) 1072-1077

[Edwards 2005] D.J. Edwards, B.N. Singh, J.B. Bilde-Sørensen, «Initiation and propagation of cleared channels in neutron-irradiated pure copper and a precipitation hardened CuCrZr alloy», J. Nucl. Mater. 342 (2005) 164-178

[Fukuya 2011] K. Fukuya, H. Nishioka, K. Fujii, T. Miura, T. Torimaru, «An EBSD examination of SUS316 stainless steel irradiated to 73 dpa and deformed at 593 K», J. Nucl. Mater. 417 (2011) 958-962

[Furutani 2001] G. Furutani, N. Nakajima, T. Konishi, M. Kodama, «Stress corrosion cracking on irradiated 316 stainless steel», J. Nucl. Mater. 288 (2001) 179-186

[Fyfitch 2009] S. Fyfitch, H. Xu, P. Scott, L. Fournier, A. Demma, «Criteria for initiation of irradiation-assisted stress corrosion cracking in stainless steels in PWR systems», Proc. 14th International Conference on Environmental Degradation of materials in Nuclear Power Systems – Water Reactors, Virginia Beach, VA, USA (2009)

[Hashimoto 2006] N. Hashimoto, T.S. Byun, K. Farrell, «Microstructural analysis of deformation in neutron-irradiated fcc materials», J. Nucl. Mater. 351 (2006) 295-302

[Hojna 2013] A. Hojna, « Irradiation-Assisted Stress Corrosion Cracking and Impact on Life Extension » Corrosion 69 (2013) 964-97

[Huguenin 2012] P. Huguenin, « Amorçage des fissures de corrosion sous contrainte dans les aciers inoxydables austénitiques pré déformés et exposés au milieu primaire des réacteurs à eau sous pression », thèse MINES ParisTech (2012)

[Jambon 2012] F. Jambon, « Mécanismes d'absorption d'hydrogène et interactions hydrogène – défauts : implications en corrosion sous contrainte des alliages à base nickel en milieu primaire des réacteurs à eau pressurisée », thèse Université d'Evry Val d'Essonne (2012)

[Jiao 2007] Z. Jiao; J.T. Busby; G.S. Was, «Deformation microstructure of proton-irradiated stainless steels», J. Nucl. Mater., 361 (2007) 218-227

[Lee 2001] E.H. Lee, M.H. Yoo, T.S. Byun; J.D. Hunn, K. Farrell, L.K. Mansur, « On the origin of deformation microstructures in austenitic stainless steel: Part II – Mechanisms », Acta Mater. 49 (2001) 3277-3287

[McMurtrey 2011] M.D. McMurtrey, G.S. Was, L. Patrick, D. Farkas, « Relationship between localized strain and irradiation assisted stress corrosion cracking in an austenitic alloy », Mater. Sci. Eng. A 528 (2011) 3730-3740

[Nishioka 2008] H. Nishioka, K. Fukuya, K. Fujji et Y. Kitsunai, «Deformation Structure in Highly Irradiated Stainless Steels», J. of Nucl. Sci. and Tech. 45 (2008) 274-287

[Onchi 2003] T. Onchi, K.Dohi, N. Soneda, J.R Cowan, R.J Scowen, M.L Castano, «Fractographic and microstructural characterization of irradiated 304 stainless steel intergranularly fractured in inert gas», J. Nucl. Mater. 320 (2003) 194-208

[Pokor 2002] C. Pokor, « Caractérisation microstructurales et modélisation du durcissement des aciers austénitiques irradiés des structures internes des réacteurs à eau pressurisée », thèse Institut National Polytechnique de Grenoble, 2002

[Rémy 1981] L. Rémy, «The interaction between slip and twinning systems and yne influence of twinning ion the mechanical behavior of fcc metals and alloys», Met.Trans. 12A (1981) 387-408

[Simkin 2007] B.A. Simkin, B.C. Ng, M.A. Crimp, T.R. Bieler, «Crack opening due to deformation twin shear at grain boundaries in near-γ TiAl», Intermetallics 15 (2007) 55-60

[Sharp 1967] J.V Sharp, «Deformation of neutron-irradiated copper single crystals», Phil. Mag. 16 (1967) 77-96.

[Thomas 2002] L. Thomas and S.M. Bruemmer, «Analytical Transmission Electron Microscopy Characterization of Stress Corrosion Cracks in an Irradiated Type 316 Stainless Steel Core Component», International Symposium Fontevraud V, (2002), 347-358

[Was 2003] G.S Was, «Recent Developments in Understanding Irradiation Assisted Stress Corrosion Cracking», Proc 11th International Conference Environmental Degradation of Materials in Nuclear Systems – Water Reactors, Stevenson, WA, USA (2003) 965-985

[West 2010] E.A West, « Influence of local stress and strain on intergranular cracking of 316L stainless steel in supercritical water », PhD thesis University of Michigan (2010)

[West 2011] E.A West, M.D McMurtrey, Z. Jiao, G.S Was, «Role of localized deformation in irradiation assisted stress corrosion cracking initiation», Metal. and Mater. Trans. 43A (2012) 136-146

[West 2013] E.A West, G. Was, «Strain incompatibilities and their role in intergranular cracking of irradiated 316L stainless steel», J. Nucl. Mater. 441 (2013) 623–632

Conclusion générale et perspectives

Le comportement des matériaux métalliques sous irradiation est une problématique majeure pour le dimensionnement, l'exploitation et la maintenance du parc nucléaire mondial. Parmi les phénomènes rencontrés, la corrosion sous contrainte assistée par l'irradiation (IASCC) des aciers inoxydables austénitiques et le gonflement sous irradiation de ces mêmes matériaux sont parmi les plus importants.

Nous avons cherché au cours de ce travail à améliorer la compréhension des mécanismes mis en jeu dans l'amorçage de l'IASCC des aciers inoxydables austénitiques en milieu REP grâce à une approche couplée entre microstructure, comportement mécanique local et fissuration.
Nous nous sommes par ailleurs intéressés à l'évolution de la microstructure de ces aciers sous irradiation et notamment à l'influence de l'hélium sur cette évolution et la possible fragilisation des joints de grains.

Pour ce faire, nous avons choisi de travailler sur un acier commercial de type 304L, nuance caractéristique de la famille des austénitiques et matériau connu pour sa sensibilité à l'IASCC. Les dommages microstructuraux engendrés par les neutrons en service ont été simulés par des irradiations aux ions de manière à s'affranchir des contraintes liées à la radioactivité.
Deux types d'irradiation aux ions ont été conduits sur le matériau d'étude avec des irradiations aux ions lourds à 400°C et 500°C sur lames minces et des irradiations aux protons à 360°C sur matériau massif.

Les irradiations sur lames minces ont été réalisées *in situ* dans un microscope électronique en transmission sur la plateforme Jannus Orsay. L'évolution de la microstructure en fonction de la dose a ainsi pu être suivie en cours d'irradiation fournissant par là-même des informations qualitative sur la cinétique d'apparition et la croissance des boucles de dislocations en fonction de la dose. L'exploitation post-irradiation de ces lames a également permis d'obtenir des données quantitatives sur les populations des boucles et cavités formées en fonction de la température.
Enfin, l'implantation simultanée d'hélium avait pour objectif de reproduire la génération par transmutation de ce gaz dans les structures internes et ainsi de quantifier, pour différents rapports He/dpa, l'influence de ce dernier sur les populations des défauts d'irradiation.

A partir de ce travail, nous avons pu établir que :

- Les amas de défauts visibles au MET dans les conditions d'observation imposées par l'expérience (d'une taille minimale de 2 à 3 nm) sont immobiles,
- Durant les premiers instants (ie pour de très faibles doses) de l'irradiation, les boucles germent préférentiellement le long des lignes de dislocations,
- Pour des doses allant jusqu'à 2 dpa, le réseau de dislocations initial est toujours présent bien que plus difficilement visible du fait de la distorsion de la lame mince,
- Une diminution de la température entraîne une augmentation de la densité de boucles et une diminution de leur taille moyenne associée à une diminution de la densité de cavités sans évolution de leur diamètre,
- Des cavités sont formées sans implantation d'hélium,

- L'implantation d'hélium n'a que très peu d'influence sur les populations de boucles et cavités, y compris pour un rapport He/dpa de 760 appm/dpa, soit près de 40 fois le rapport constaté en milieu REP,
- Des cavités sont présentes de manière homogène dans la matrice mais également dans les joints de grains, et notamment les joints de type Σ3.
- Les densités de boucles et cavités mesurées sont inférieures à celles observées sur matériau massif après irradiation aux neutrons, cette différence peut être en partie expliquée par des effets de surface libre.

Vis-à-vis de l'IASCC, la présence de cavités aux joints de grains constatée dans cette étude pourrait constituer un facteur de fragilisation pour le matériau.
Les irradiations en double-faisceaux avec implantation simultanée d'hélium ont également permis de valider que les populations de cavités n'étaient pas impactées par la présence d'hélium pour un rapport He/dpa inférieur ou égal à 760 appm/dpa et une température d'irradiation *a priori* représentative d'une irradiation aux neutrons à 300°C. L'impact de l'hélium sur le gonflement dans ces conditions serait donc limité.

Parallèlement à cette étude, des irradiations sur matériau massif ont été réalisées avec des protons de 2 MeV à 360°C pour atteindre des doses de 5 et 10 dpa. Ces irradiations offrent l'avantage de générer un profil d'endommagement homogène jusqu'à 20 µm environ sous la surface.

La caractérisation de la microstructure d'irradiation aux protons a montré que les densités de boucles étaient proches de celles générées par des irradiations aux neutrons et que des cavités étaient également présentes après 5 et 10 dpa. Les populations de boucles et cavités possèdent les mêmes caractéristiques en termes de taille moyenne et de densité pour ces deux doses d'irradiation, observations confirmées par des valeurs de microdureté similaires.

Le matériau ainsi irradié a pu être utilisé pour des essais de corrosion sous contrainte en milieu primaire simulé à 350°C, ce qui nous ont permis d'étudier l'évolution du réseau de fissures en fonction de l'influence du taux de déformation, de la nature du chargement mécanique et de la dose.

Nous retiendrons de cette étude les conclusions suivantes :

- Les joints de grains fissurés sont systématiquement des joints généraux,
- Ils sont majoritairement orientés perpendiculairement à l'axe de sollicitation,
- L'augmentation de la dose d'irradiation entre 5 et 10 dpa n'a pas de conséquence sur la densité de fissures observée,
- En revanche, l'augmentation de la dose conduit à une plus grande ouverture et longueur moyenne des fissures bien que les densités et tailles de défauts d'irradiation soient équivalentes entre ces deux doses,
- Un chargement pseudo-cyclique (séquentiel) entraîne une plus forte ouverture et longueur moyenne de fissure comparé à un chargement monotone,
- La densité de fissures augmente avec l'augmentation du taux de déformation pour les deux types de chargement mais est systématiquement supérieure dans le cas d'un chargement monotone,
- La profondeur des fissures dans le volume excède rarement l'épaisseur de la couche irradiée.

A partir de simulations par éléments finis d'un matériau bicouche présentant en surface une couche mince durcie, nous avons cherché à déterminer l'influence de cette configuration sur la propagation

des fissures dans le volume comparativement à ce qui serait attendu dans le cas d'un matériau irradié aux neutrons.
Ces calculs ont montré que la concentration de contrainte en pointe de fissure était très élevée dans la couche irradiée mais chutait drastiquement dès lors que l'on atteignait le substrat ductile. Ces résultats sont cohérents avec la profondeur des fissures mesurée expérimentalement puisque la majorité des fissures observées en coupe transverse s'arrêtent dans la couche irradiée ou à l'interface irradiée/non irradiée.
Ils suggèrent également que l'utilisation d'éprouvettes irradiées aux ions et donc avec un fort gradient de propriétés mécaniques conduit certainement à une propagation plus importante des fissures dans le volume en comparaison avec un matériau irradié uniformément pour des essais réalisés sur un montage parallèle comme peut l'être l'essai de traction lente sur matériau bi-couche. Des essais dans ces conditions entraîneraient un endommagement plus sévère du fait de la surcontrainte générée dans la couche irradiée par ce gradient de propriétés.
Il serait intéressant par la suite de déterminer expérimentalement les champs de déformation locaux à l'interface entre ces deux couches et la façon dont la déformation activée dans le substrat ductile entré en plasticité est transmise à la couche irradiée.

Concernant les critères d'amorçage de l'IASCC, la présence d'un faible facteur de Schmid de glissement (le mécanisme de déformation supposé étant la canalisation des dislocations) dans l'un ou l'autre des grains entourant un joint de grains avait été récemment mise en avant comme un critère intéressant pour l'amorçage de la fissuration intergranulaire post-irradiation après des essais de CSC en milieux simulés REB et eau supercritique.
Nous avons souhaité confirmer que le mécanisme de déformation activé dans nos conditions d'essai était la canalisation des dislocations et vérifier la corrélation faible FS/fissuration. Il apparaît que :

- La détermination du ou des mécanisme(s) de déformation activé(s) après irradiation est complexe. Du maclage a été observé après 2 et 10% de déformation macroscopique, mais la présence d'autre(s) mécanisme(s) de déformation n'est pas exclue,
- Entre 60 et 75% des joints de grains fissurés sont adjacents à un grain possédant un faible FS, qu'il s'agisse du glissement ou du maclage,
- La corrélation entre fissuration et faible FS de maclage est plus élevée que celle définie entre fissuration et faible FS de glissement pour un fort taux de déformation macroscopique,
- La nature du joint (général ou singulier) est un facteur prépondérant sur son inclinaison vis-à-vis de la sollicitation, elle-même prépondérante sur la présence d'un faible FS.

En plus de ces résultats, le couplage entre les données microstructurales acquises par EBSD et les champs locaux de déformation obtenus par corrélation d'images (microextensométrie) a fourni des informations quantitatives et statistiques sur la déformation des aciers inoxydables austénitiques irradiés. Informations précieuses pour la poursuite de ce travail sur les facteurs d'amorçage car elles permettront à l'avenir de modéliser le comportement de ces matériaux en intégrant dans les conditions aux limites la forte localisation de la déformation observée après irradiation à l'échelle du polycristal. Les champs de contrainte locaux pourront ainsi être calculés au plus proche des conditions d'essai et du comportement du matériau irradié réels.
Les cartographies de déformation obtenues ont par ailleurs démontré que les facteurs de Schmid, calculés pour le maclage ou le glissement, n'étaient pas nécessairement représentatifs du comportement réel du grain dans le polycristal.

- La déformation du matériau irradié est fortement localisée sous forme de bandes intragranulaires dans lesquelles la déformation peut atteindre plusieurs dizaines de % pour seulement 1 ou 2% de déformation macroscopique,
- La déformation du matériau non irradié est également hétérogène mais sans localisation intragranulaire,
- Les distributions (normalisées par la déformation macroscopique) des déformations locales montrent une forte disparité avec une sur-représentation des fortes et faibles valeurs pour la zone irradiée,
- La non transmission de la déformation d'un grain à l'autre (discontinuité de la déformation) est observée systématiquement pour les joints fissurés et semble donc être un critère prépondérant pour l'amorçage de la fissuration.
- La déformation du joint de grains ne semble pas être un critère d'amorçage, il sera nécessaire de connaître l'état de contrainte au niveau du joint pour prédire l'apparition des fissures.

Nous avons vu qu'un joint à faible énergie de cohésion et une inclinaison perpendiculaire à l'axe de sollicitation sont des paramètres aggravants mais non suffisants pour expliquer l'amorçage. L'introduction d'éléments cohésifs dans la modélisation de l'agrégat polycristallin permettrait de tenir compte des caractéristiques des joints de grains. Par comparaison avec les résultats expérimentaux sur les réseaux de fissures, nous pourrions alors définir des critères d'amorçage qui intègrent l'ensemble des paramètres microstructuraux et mécaniques représentatifs des essais de CSC post-irradiation des aciers inoxydables austénitiques.

General conclusion and Outlook

The behavior of metallic materials under neutron irradiation is a major issue for design, operation and maintenance of the world nuclear fleet. In particular, Irradiation Assisted Stress Corrosion Cracking (IASCC) and void swelling of austenitic stainless steels are among the most important ageing phenomena encountered for pressure vessel internals.

To improve the understanding of the mechanisms involved in IASCC initiation of austenitic stainless steels in PWR environment, an approach coupling microstructure, local mechanical fields and cracking was developed. Besides, we were interested in the microstructure evolution of these steels under irradiation with and without helium implantation, as helium can play a role in the possible embrittlement of the grain boundaries.

We chose to work on a 304L commercial austenitic stainless steel, known to be susceptible to IASCC. The microstructural damages caused by neutrons in operation were simulated by ion irradiations to avoid activation of the material. Two types of ion irradiation were used: heavy ions at 400°C and 500°C on thin foils and protons at 360°C on bulk material.

Irradiations on thin foils were realized *in situ* in a Transmission Electron Microscope on the Jannus platform (Orsay). The evolution of the microstructure, as a function of dose, was followed during the irradiation experiments for obtaining qualitative information on the nucleation and growth of the dislocation loops. Post-irradiation analyses of the thin foils also allowed obtaining quantitative data on the loop and cavity populations as a function of the temperature.

Finally, simultaneous implantation of helium was performed to reproduce the generation by transmutation of this gas in the internal structures and thus to quantify, for various appm He / dpa ratios, the influence of that gas on the radiation defect populations.

From this work, we were able to establish that:

- Clusters of visible defects in TEM in the conditions of observation imposed by the experiment (minimum size of 2 to 3 nm) are motionless,
- During the first stages of irradiation (*ie* for very low doses), loops nucleate preferentially along dislocation lines,
- For doses up to 2 dpa, the initial network of dislocations is still present although it is harder to see due to radiation defects and thin foil distorsion,
- A decrease of the temperature leads to an increase of the loop density and a decrease of their average size, associated with a decrease of the cavity density with no evolution of their diameter,
- Cavities are nucleated even without helium implantation,
- The simultaneous implantation of helium has a only little influence on the populations of loops and cavities, including for a appm He / dpa ratio of 760 appm/dpa, close to 40 times the ratio in PWR environment,
- Cavities are homogeneously distributed in the matrix but also in the grains boundaries, in particular the Σ3 type boundaries.

- The densities of loops and cavities measured here are lower than those observed on bulk material after neutron irradiation; this difference could be partly explained by free surface effects.

Regarding IASCC, the presence of cavities in the grain boundaries, noticed in this study, could be an embrittlement factor for the material.
Dual-beam irradiations with simultaneous implantation of helium also allowed validating that the population of cavities was not affected by the presence of He for a He / dpa ratio lower or equal to 760 appm/dpa and a temperature of irradiation representative in theory of a neutron irradiation at 300°C. The impact of helium on void swelling in these conditions would thus be limited.

In parallel to this study, irradiations on bulk material were carried out with 2 MeV protons at 360°C to reach doses up to 5 and 10 dpa. This kind of irradiations offers the advantage to generate a profile of homogeneous damage until approximately 20 µm under the surface.
The characterization of the microstructure after proton irradiation showed that the loop densities were close to those generated by neutron irradiations and that cavities were also present after 5 and 10 dpa. The populations of loops and cavities present the same characteristics in average size and density for both doses; these observations were confirmed by similar values of micro-hardness.

The as-irradiated material was used for stress corrosion cracking tests at a 350°C in simulated primary environment, which allowed us to study the cracking network evolution as a function of macroscopic deformation, mechanical loading type and dose.

The following conclusions can be drawn:

- The cracked grain boundaries are systematically Random High Angle boundaries,
- They are mainly oriented perpendicularly to the tensile axis,
- The increase of the dose from 5 to 10 dpa has no consequence on the observed density of cracks,
- The dose increase induces higher average opening and length of cracks although the densities and sizes of radiation defects are equivalent for both doses,
- A sequential or pseudo-cyclic loading leads to higher average opening and length of cracks in comparison with a monotonic loading,
- The crack density increases with macroscopic deformation for both types of loading but it is systematically higher in the case of a monotonic loading,
- The depth of cracks in the volume rarely exceeds the thickness of the irradiated layer.

Finite elements simulations performed on a double-layer material with a hardened thin layer on its surface show that stress concentration at crack tip is very high in the irradiated layer but falls down drastically once the ductile substrate is reached. These results are coherent with the moderate crack depth experimentally observed, where most of the cracks stop in the irradiated layer or at the irradiated /non irradiated interface.
These simulations also suggest that using samples irradiated by ions and thus having a strong mechanical properties gradient, induces certainly deeper crack propagation in the volume, in comparison with an uniformly irradiated material, for tests on parallel assemblies like SSRT tests on bi-layer material.
Tests in these conditions would generate more severe damages because of the over-stress generated in the irradiated layer by this gradient of properties. It would be interesting afterwards to determine

experimentally the local strain fields at the interface between these two layers and the way the deformation activated in the ductile substrate entered in plasticity is transmitted in the irradiated layer.

Concerning initiation criteria of IASCC, the presence of a low Schmid factor for slip systems (the deformation mechanism is supposed being dislocations channeling (DCD)) in one of the two grains surrounding the grain boundary, has recently been advanced as an interesting criterion after SCC tests in simulated BWR and supercritical water environment.
We wanted to confirm that the deformation mechanism activated in our testing conditions was DCD and to verify the correlation between a low SF and cracking. It appears that:

- The determination of the deformation mechanisms activated after irradiation is complex. Twinning was observed after 2 and 10 % of macroscopic deformation, but the presence of other mechanisms of deformation is not excluded,
- From 60 to 75 % of cracked grain boundaries are neighbored by a grain having a low SF, whether for slipping or twinning,
- The correlation between cracking and a low twinning SF is stronger than the one between cracking and a low slipping SF for high macroscopic deformation,
- The nature of the boundary (RHABs or CSls) has a major effect on cracking followed by its orientation to the tensile axis and finally by the presence of at least a grain with a low SF.

Besides these results, the coupling between the microstructural data acquired by EBSD and the local deformation fields obtained by digital image correlation supplied quantitative and statistical information on the deformation of irradiated austenitic stainless steels. These information are valuable for the continuation of this work on the initiation factors because they will allow modeling the behavior of these materials by including into the limit conditions the strong localization of the deformation observed after irradiation to the scale of the polycrystal. The local stress fields could be then calculated as closest as possible to the real conditions and behavior of the irradiated material.

Besides, the obtained maps of deformation demonstrated that the Schmid factors, calculated for twinning or slipping, were not really representative of the real behavior of the grain in the polycrystal.

- Deformation of the irradiated material is strongly localized inside transgranular bands in which the deformation can reach several tens of % for only 1 or 2 % of macroscopic deformation,
- The deformation of the non-irradiated material is also heterogeneous but without transgranular localization,
- The distributions (normalized by the macroscopic deformation) of the local deformations show a strong disparity with an over-representation of the strongest and the lowest values for the irradiated zone,
- The deformation discontinuity from a grain to another is systematically observed for the cracked boundaries and thus seems to be a dominating criterion for crack initiation.
- The deformation of the grain boundary does not seem to be an initiation criterion, it will be necessary to know the local stress state level of the boundaries to predict the nucleation of cracks.

We saw that a boundary with a low energy of cohesion and a perpendicular orientation to the tensile axis are aggravating but not sufficient parameters to explain solely the initiation. The introduction of cohesive elements in the polycrystalline aggregate modeling of the stress fields would allow taking

into account the characteristics of the grain boundaries. Compared with the experimental results on the cracking networks, we could then define initiation criteria which integrate all the representative microstructural and mechanical parameters of post-irradiated SCC tests of austenitic stainless steels.

Annexe A : Propriétés mécaniques en traction du matériau d'étude

Les propriétés en traction de l'acier 304L étudié ont été déterminées à température ambiante et à 325°C par la société A2M accréditée COFRAC.

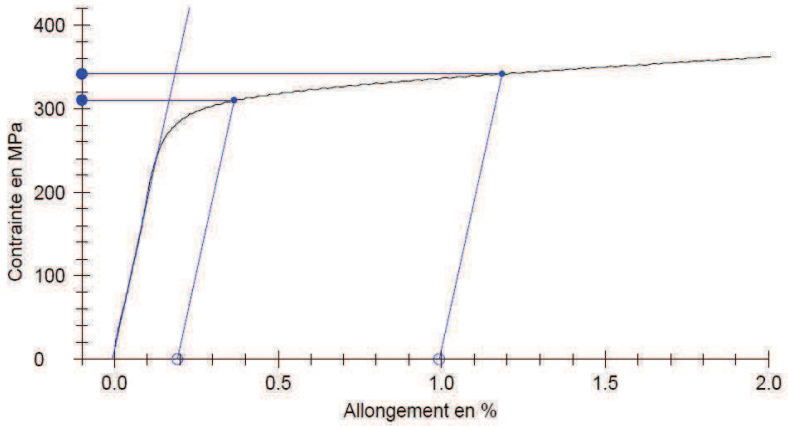
Les essais ont été menés sur des éprouvettes prélevées à quart d'épaisseur suivant la norme NF EN ISO 3785 (07/95). Les résultats obtenus sont présentés ci-dessous.

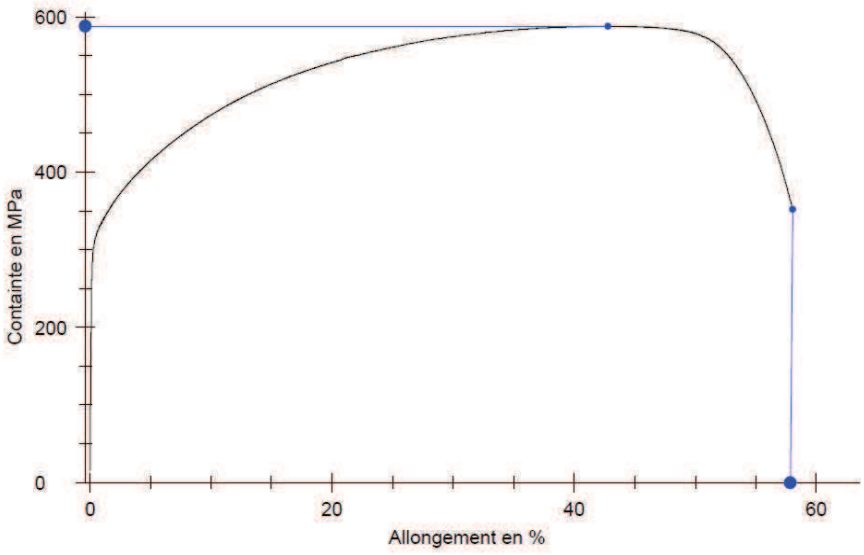
Prélèvement	T (°C)	L_0 (mm)	E (GPa)	$Rp_{0.2}$ (MPa)	Rm (MPa)	A (%)	Z (%)	Rp_1 (MPa)	Position rupture
Long	20	50	178	310	588	58	79	342	2/3 L_0
Travers	20	50	218	329	593	57	77	363	2/3 L_0
Long	325	50	140	173	439	41	77	207	2/3 L_0
Travers	325	50	182	203	443	38	71	230	2/3 L_0

Tableau A.1 : Propriétés mécaniques en traction de l'acier 304L de l'étude à température ambiante et à 325°C

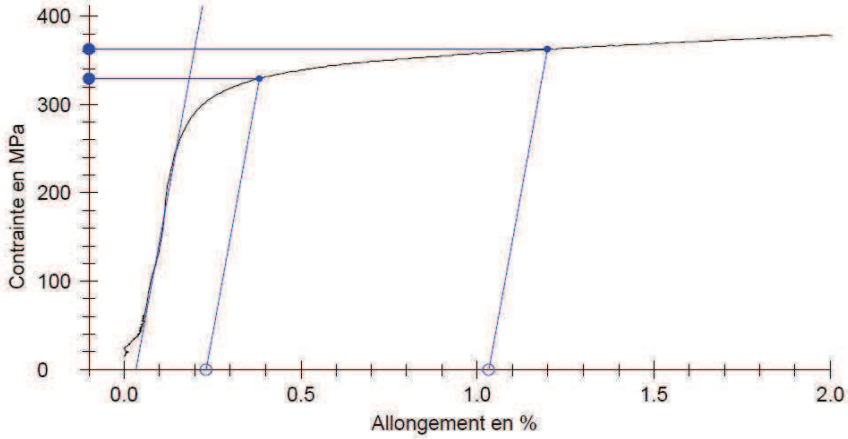
Les incertitudes de mesure sont les suivantes :
$Rp_{0,2}$: ±2%, Rm : ±1,5%, A% : ±2,5% et Z% : ±7%

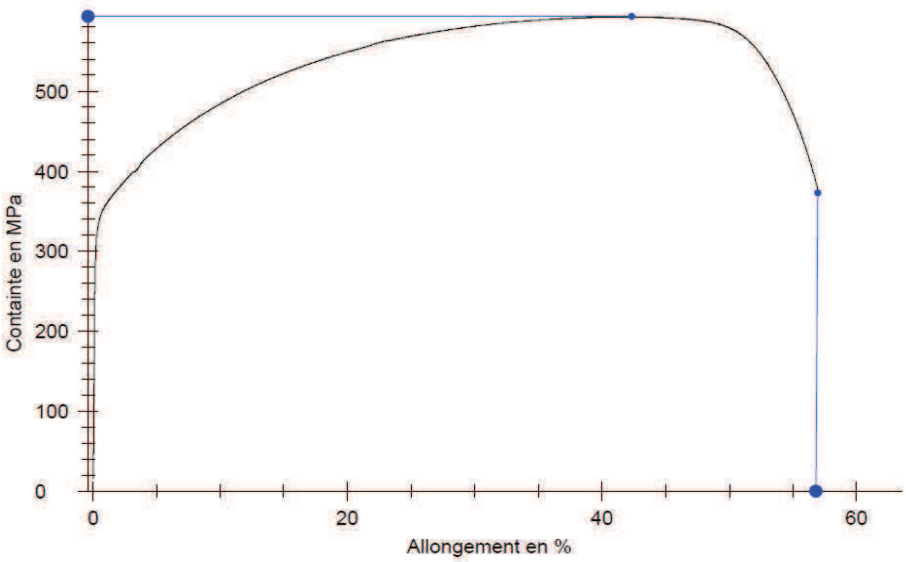
Sens long – 20°C



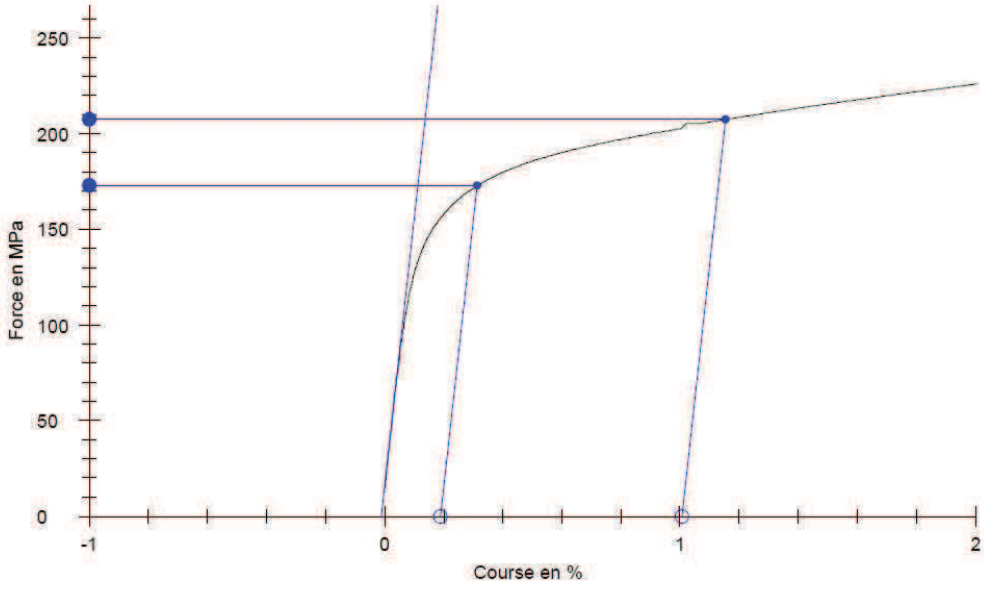


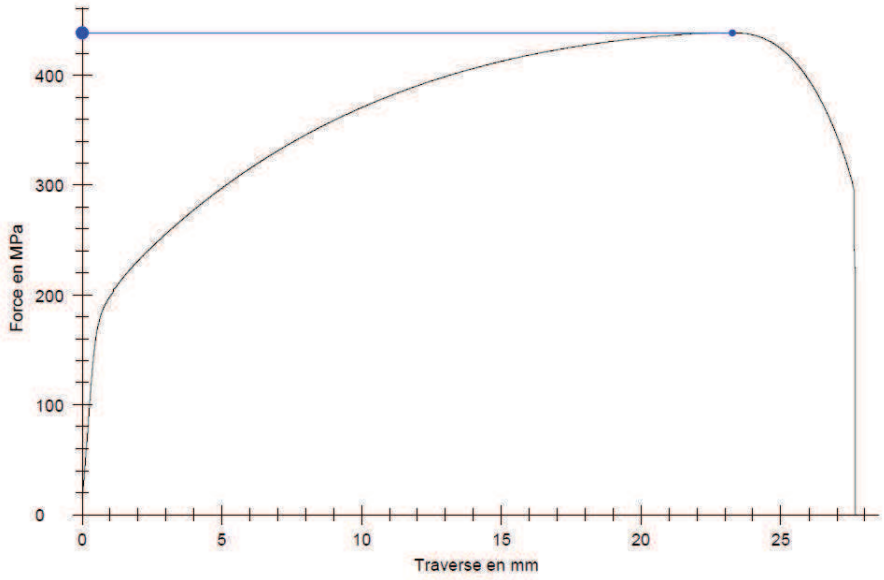
Sens travers – 20°C



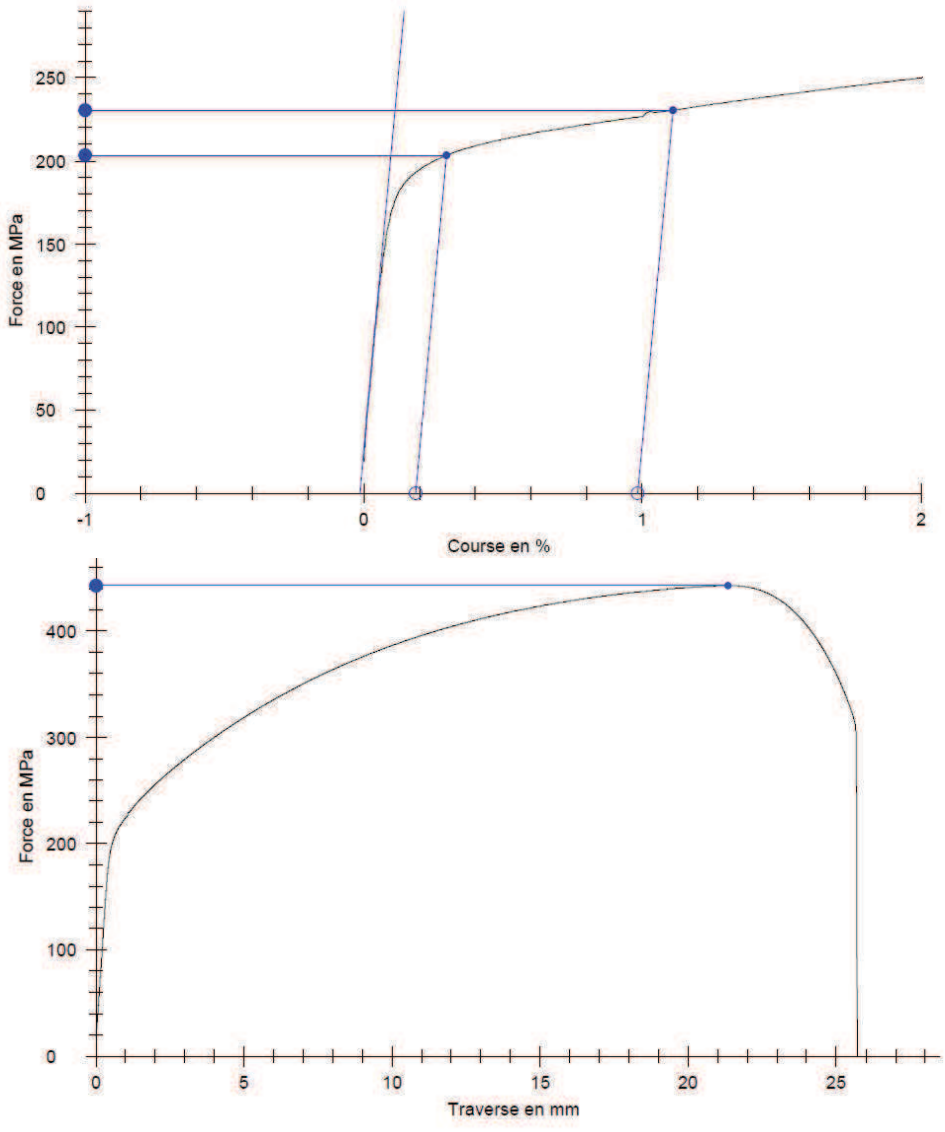


Sens long – 325°C





Sens travers – 325°C



Annexe B : Analyse de la chimie de surface par XPS

Des analyses par XPS ont été menées au CEMEF (Sophia-Antipolis, Mines ParisTech) sur le matériau après irradiation pour évaluer les conséquences de celle-ci sur la chimie d'extrême surface.

Par ailleurs, l'état de surface des éprouvettes testées en corrosion sous contrainte est un paramètre important à contrôler car il peut jouer sur l'amorçage des fissures de CSC. Un polissage avec finition OPS suivi de cartographies EBSD ont été réalisés sur les éprouvettes testées en CSC. Les analyses XPS nous ont permis de déterminer quel était l'impact de cette préparation sur la chimie de surface.
De même, la préparation des éprouvettes pour la corrélation d'images (grilles d'or) induit le dépôt puis la dissolution d'une résine électro-sensible (PMMA). Des analyses par XPS ont donc été menées en parallèle à celles réalisées sur matériau irradié afin de vérifier que la procédure de dissolution du PMMA et de nettoyage des éprouvettes était suffisante pour assurer l'obtention d'un état de surface similaire à celui d'une éprouvette sans microgrilles (à l'exception de la présence de l'or).

1) Principe général de fonctionnement de l'XPS

L'XPS (X-ray photoelectron spectroscopy) est une technique d'analyse de surface qui permet de déterminer quantitativement les éléments présents en surface et de définir la nature des liaisons chimiques de ces éléments. La profondeur analysée est comprise entre 2 et 10 nm mais des séquences abrasion-analyse permettent d'obtenir un profil dans la profondeur du matériau à la convenance de l'utilisateur. Ce décapage ionique est généralement réalisé à l'aide d'ions Argon.
Cette technique ne nécessite aucune préparation spécifique, si ce n'est une manipulation précautionneuse des échantillons afin d'éviter toute contamination.

Le principe de d'analyse par XPS est basé sur la mesure de l'énergie cinétique des électrons émis par le matériau suite à l'interaction entre les photons X et la matière. L'énergie de liaison de ces électrons peut alors être déduite par soustraction de leur énergie cinétique à celle des photons incidents. L'environnement chimique de l'élément entraîne une variation de l'énergie de liaison pouvant aller jusqu'à quelques eV.

$$E_{liaison} = h\gamma - E_{cinétique}$$ où $h\gamma$ est l'énergie des photons incidents

Le spectre obtenu est caractéristique des éléments en fonction de leur environnement et la quantification est basée sur l'intensité des raies détectées. Les concentrations atomiques sont déterminées en relatif, par un rapport avec les autres éléments détectés.

2) Paramètres utilisés lors des analyses XPS

L'appareil utilisé dans cette étude est un système K Alpha Thermo-Fischer fonctionnant avec comme source d'émission la raie Kα monochromatée de l'aluminium ($h\gamma$ = 1486.6 eV). La taille de la zone d'analyse est de 300 µm.
Les éléments détectés et analysés pour ce travail sont le fer, le nickel, le chrome, l'oxygène, le carbone, le silicium et le phosphore. Les analyses ont été effectuées avec un profil d'abrasion (décapage ionique par Argon) et la vitesse d'abrasion est estimée en fonction de la vitesse étalon mesurée sur échantillon témoin de Ta_2O_5.
Les profondeurs analysées sont donc des approximations mais dans la mesure où les mêmes réglages sont appliqués et où la composition des coupons étudiés est similaire, ces analyses peuvent être utilisées de façon comparative.

3) Résultats

Les résultats obtenus sur l'échantillon irradié sont détaillés au chapitre II.

Les éprouvettes sur lesquelles les champs de déformation ont été mesurés (éprouvettes C, D et E du chapitre III) sont polies sur papier SiC jusqu'au grade 1200 puis à la pâte diamantée jusqu'à ¼ µm. Un polissage de finition à l'OPS est ensuite réalisé sur table vibrante. Les éprouvettes sont ensuite analysées par EBSD puis le dépôt des grilles d'or nécessaires pour la corrélation d'images est effectué.

Le PMMA (polyméthacrylate de méthyle) employé en tant que résine électro-sensible pour la déposition de microgrilles d'or en surface des éprouvettes est un polymère de formule brute $(C_5H_8O_2)_n$. La présence de carbone en surface devrait donc être fortement détectée en cas de présence de résidus de résine.
La comparaison des spectres obtenus en extrême surface pour le carbone entre un coupon n'ayant pas été recouvert de résine (M), un coupon avec dépôt puis dissolution du PMMA (P2) et un coupon avec dépôt de résine (P) est donnée sur la **figure B.1**. Les échantillons sont issus du même matériau et le protocole de polissage a été réalisé à l'identique hormis pour l'étape de finition, réalisée avec de la silice colloïdale pour les échantillons P et P2 seulement. Le signal relatif au silicium résiduel a donc été volontairement écarté. Les pourcentages atomiques sont indiqués sur les spectres.

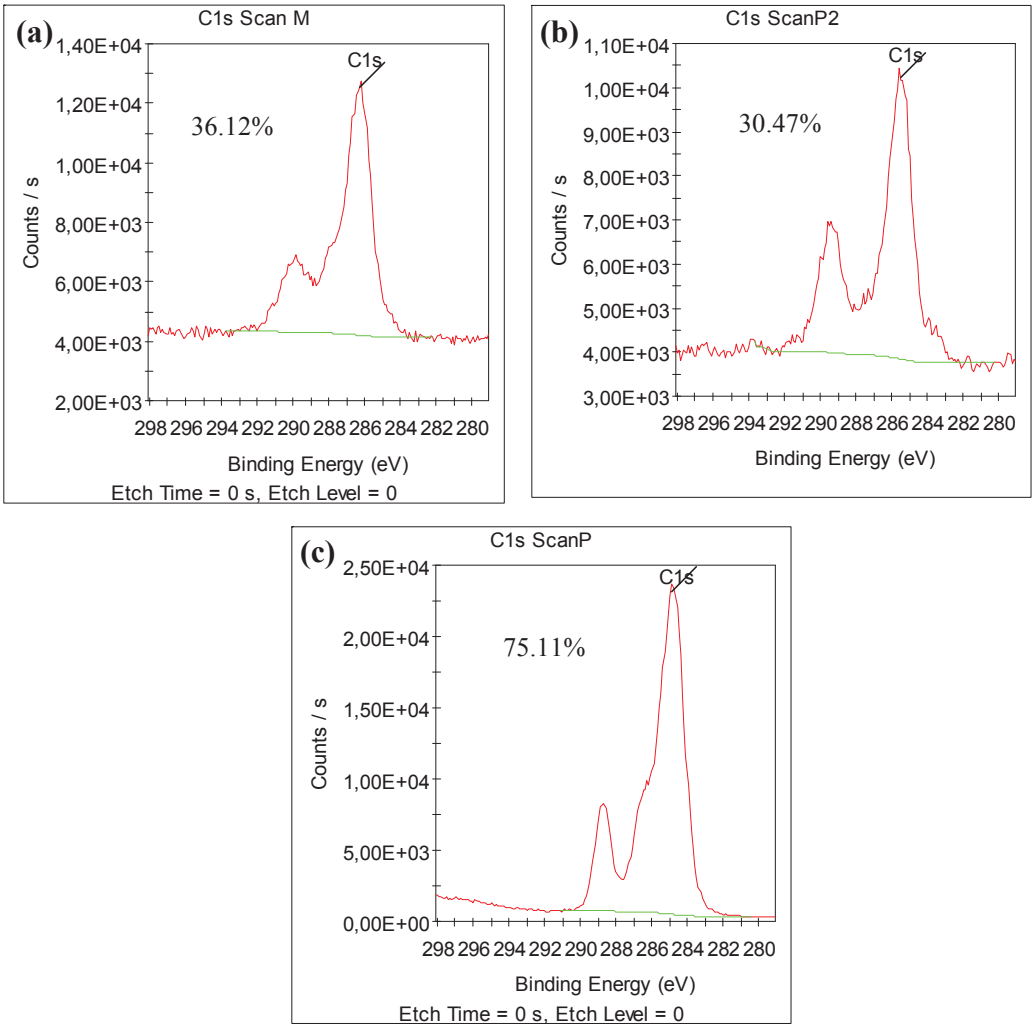


Figure B.1 : Spectres obtenus pour le carbone en extrême surface (sans abrasion) pour (a) échantillon 'brut', (b) échantillon avec dépôt puis dissolution de la résine et (c) échantillon recouvert de PMMA

Comme attendu, le pourcentage atomique relevé pour l'échantillon avec résine est cohérent avec la forte présence de carbone. Ce pourcentage est beaucoup plus élevé que ceux déterminés pour les

échantillons ‘brut’ (M) et ‘nettoyé’ (P2). Un pourcentage équivalent de l’ordre de 30 à 35% pour ces deux derniers indique que la procédure de nettoyage a été suffisamment efficace pour éliminer le PPMA et les valeurs obtenues sont les valeurs classiques d’une contamination d’extrême surface inévitable. Après abrasion, les pourcentages atomiques du carbone pour les échantillons ‘bruts’ et ‘nettoyés’ sont toujours similaires et de l’ordre de 2 à 4%.
Par ailleurs, des analyses réalisées sur des coupons polis jusqu’à l’OPS avant et après EBSD n’ont montré aucune pollution supplémentaire en carbone après EBSD. En revanche, la pratique d’un polissage de finition avec de la silice colloïdale (OPS) induit une augmentation (de 2 à 4%) de la quantité de silicium détecté en surface. Ce polissage de finition reste néanmoins nécessaire pour éliminer la fine couche de carbone présente en surface après irradiation (cf. chapitre II).
Ces analyses par XPS nous ont permis de vérifier que le protocole de préparation des échantillons était satisfaisant et aucun artefact lié à cette préparation n’est attendu pour les résultats de CSC.

ANNEXE C : Microcopie électronique en transmission – imagerie des défauts d'irradiation et détermination des tailles et des densités

Les caractérisations effectuées par microscopie électronique en transmission ont été réalisées grâce à un MET à effet de champ FEG TECNAI F20ST (200 kV) équipé d'un détecteur EDX, d'un détecteur HAADF (High Angle Annular Dark Field) ainsi que d'un filtre en énergie et un MET à filament LaB_6 de type TECNAI $G^2$30 (300 kV).
Les défauts d'irradiation observés et quantifiés dans cette étude sont des boucles de Frank fautées de vecteurs de Burgers **1/3**<111> et des cavités.

a) Mesure de l'épaisseur des lames minces par spectroscopie des pertes d'énergie

La mesure de l'épaisseur de la zone de travail est indispensable pour quantifier de manière fiable les densités de boucles et de cavités. En effet, l'amincissement par polissage électrolytique conduit à l'obtention d'une lame en coin avec une épaisseur qui augmente avec la distance au bord.

Plusieurs techniques peuvent être employées pour estimer cette épaisseur comme les franges d'égales épaisseurs ou la spectroscopie des pertes d'énergie (ou EELS pour Electron Energy-Loss Spectroscopy).

Un exemple de spectre EELS est donné sur la **figure C.1**. Le premier pic, appelé pic sans perte (zero loss en anglais) correspond aux électrons transmis quasi-élastiquement tandis que les seconde et troisième zones correspondent respectivement aux pertes faibles (essentiellement dues aux plasmons) et aux pertes élevées (seuils d'ionisation).

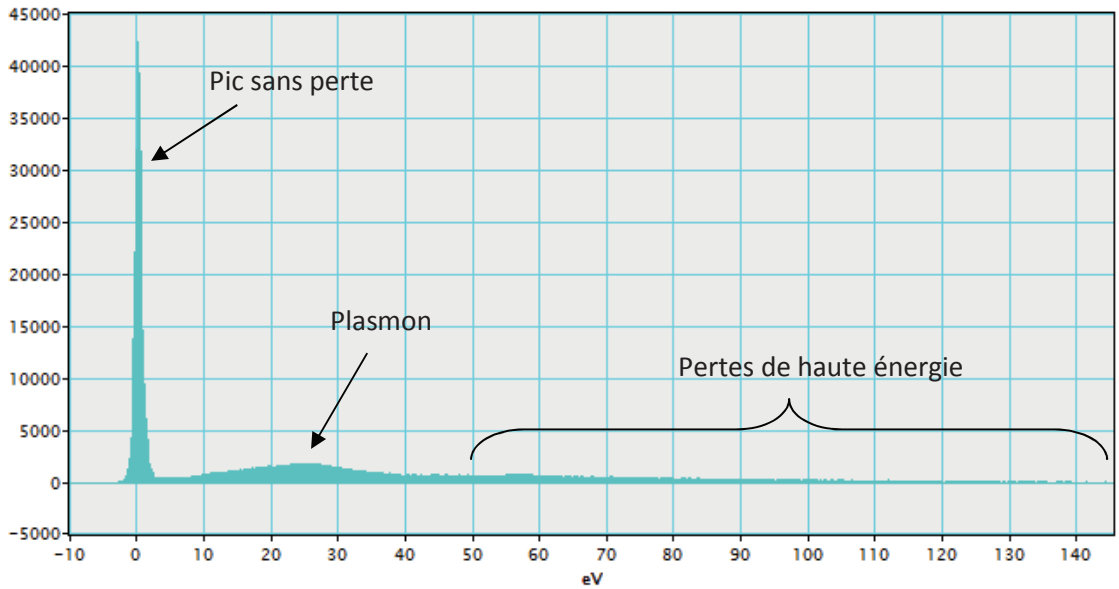


Figure C.1 : Exemple de spectre EELS d'un acier 304L irradié à 5 dpa à 360°C

Différentes méthodes peuvent être utilisées pour déterminer l'épaisseur d'une lame mince par EELS [Egerton 2011]. Nous avons choisi de réaliser des cartographies d'épaisseur relative. Pour cela, deux images de la même zone, l'une en fond clair, l'autre sur le pic sans perte, sont acquises dans des

conditions d'illumination identiques. L'épaisseur relative t/λ, avec t l'épaisseur de la lame et λ le libre parcours moyen des électrons diffusés inélastiquement, est alors calculée en chaque point de l'image selon la méthode du log-ratio à l'aide d'un script implémenté dans DigitalMicrograph. Une cartographie d'épaisseur relative est alors obtenue (**figure C.2 (a)**). Connaissant le libre parcours moyen λ, il est alors possible d'extraire l'épaisseur absolue en chaque point de l'image voire de tracer des profils d'épaisseur (**figure C.2 (b)**).

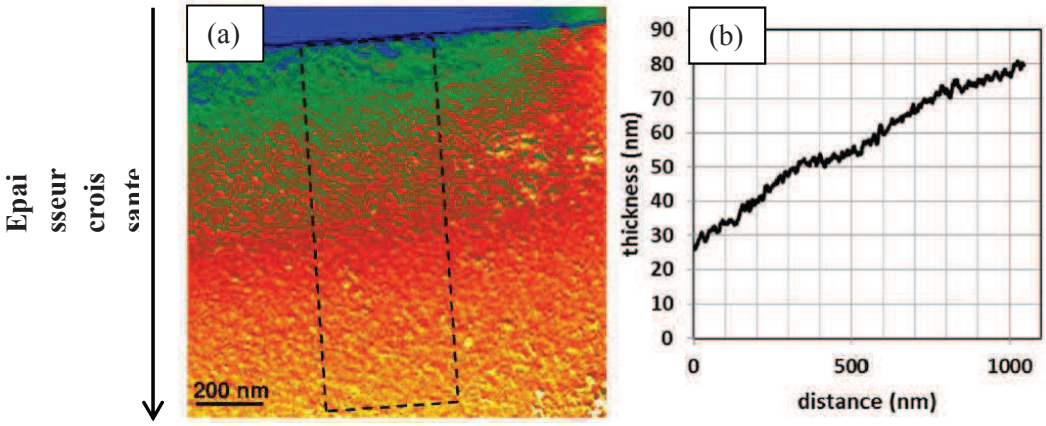


Figure C.2 : (a) Cartographie de l'épaisseur relative en bord de lame et (b) évolution de l'épaisseur avec la distance au bord correspondant au rectangle de l'image (a). Les couleurs de la cartographie donnent une information qualitative de l'épaisseur. Plus l'image est rouge, plus la lame est épaisse.

La méthode log-ratio repose sur le calcul du rapport entre l'aire totale sous le spectre (I_t) et l'aire du pic sans perte (I_0). Ce rapport renseigne directement sur l'épaisseur moyenne t de la zone analysée normalisée par le libre parcours moyen des électrons diffusés inélastiquement λ (équation **C.1)**.

$$\frac{t}{\lambda} = \ln\left(\frac{I_t}{I_0}\right) \quad \textbf{(C.1)}$$

t: épaisseur
λ: libre parcours moyen
I_t: intensité totale
I_0: intensité du pic sans perte

Cette méthode nécessite de connaître avec précision le libre parcours moyen λ qui dépend à la fois du matériau considéré et des conditions d'acquisition du spectre. Plusieurs expressions de λ sont proposées dans la littérature [Egerton 2011]. Nous avons opté pour celle proposée par Malis [Malis 1988] communément utilisée dans la littérature (équation **C.2**) :

$$\lambda \approx \frac{106F(E_0/E_m)}{\ln(2\beta n_0/E_m)} \quad \textbf{(C.2)}$$

avec E_0 l'énergie des électrons incidents (200 kV), F un facteur relativiste (F = 0.618 pour E_0 = 200 kV), β le demi-angle de collection et E_m la perte d'énergie moyenne.
E_m est donnée par l'équation **C.3** [Malis 1988] :

$$E_m = 7.6Z_{eff}^{0.36} \quad \textbf{(C.3)}$$

avec Z_{eff} le numéro atomique moyen de l'alliage considéré (Z_{eff} = 25.8 dans notre cas).

Pour l'acier 304L étudié et dans les conditions d'acquisition utilisées (diaphragme objectif de 30 µm de diamètre soit un demi-angle de collection β égal à 15 mrad), la valeur du libre parcours moyen est donc égale à 97 nm. L'incertitude sur l'épaisseur déterminée à partir de la méthode log-ratio provient essentiellement de l'incertitude sur la valeur du libre parcours moyen et est estimée à ± 20% [Bardal 2000]. En moyenne, l'épaisseur des zones sur lesquelles ont été réalisées les caractérisations des défauts d'irradiation est de l'ordre de 100 nm.

b) Caractérisation des boucles de Frank

Il existe plusieurs méthodes d'observation des boucles de Frank fautées, telles que la méthode classique de conditions deux ondes en champs clair, mais celle qui donne lieu au comptage le plus précis est la technique de la traînée de diffusion, appelée également « Rel-Rod Dark Field » [Edwards 2003, Sencer 2003, Garnier 2007, Etienne 2009]. Elle permet d'imager la faute d'empilement contenue dans les boucles fautées en s'affranchissant du contraste de la matrice (**figure C.3 (b)**).
La faute d'empilement des boucles de Frank entraîne l'apparition d'une traînée dite diffuse sur le cliché de diffraction en fonction de l'orientation du cristal. Ainsi, en plaçant l'échantillon en axe de zone <110> puis en éclairant la tache de diffraction (3-11) (condition deux ondes), une traînée diffuse, parallèle à une direction <111> apparaît entre les spots (1-11) et (200) (**figure C.3 (a)**). Une image en fond noir réalisée à partir de cette traînée diffuse laisse apparaître l'ensemble des boucles fautées qui prennent la forme de bâtonnets elliptiques comme le montre la **figure C.3 (b)**. Le contraste entre la matrice et les boucles est alors suffisant pour comptabiliser correctement les boucles sur la zone de travail et déterminer leur taille.

Les boucles de Frank sont situées dans des plans {111}. Il existe donc 4 familles de boucles. Les caractérisations effectuées sur les échantillons irradiés aux protons au MIBL ont été réalisées sur une famille de boucles. La densité totale est alors obtenue en multipliant par 4 la densité obtenue pour cette famille. Pour les lames irradiées sur la plateforme Jannus, deux familles de boucles ont été caractérisées. La densité totale est alors obtenue en multipliant par deux la somme des densités mesurées sur ces deux familles.

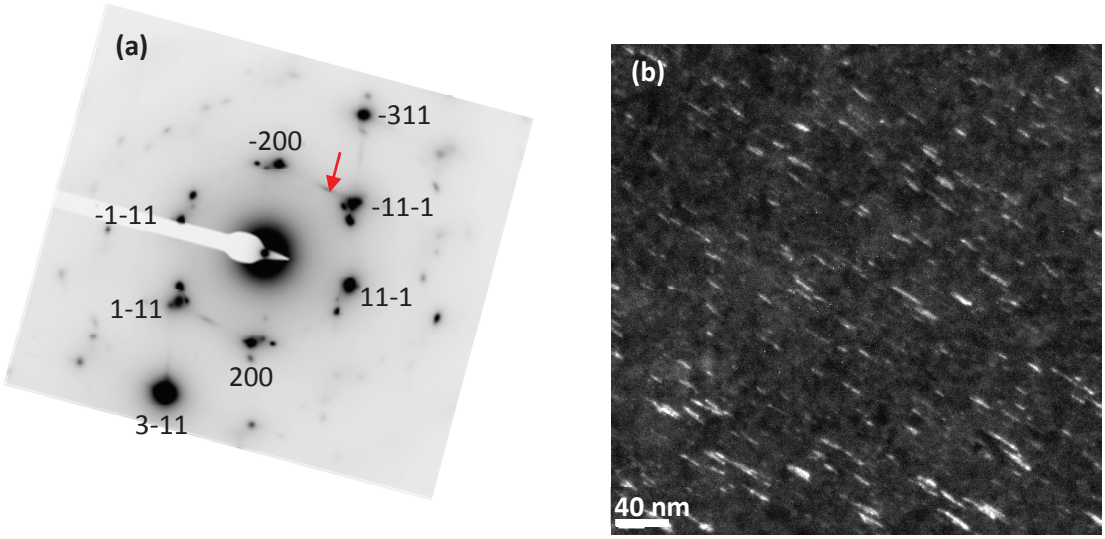


Figure C.3 : (a) Cliché de diffraction de l'acier 304L irradié aux protons 2MeV à 5 dpa à 360°C proche des conditions deux ondes avec g= 3-11 (b) image en fond noir associée. Le fond noir est réalisé en utilisant la traînée diffuse indiquée par une flèche rouge.

Le comptage a été effectué manuellement. Un trait de longueur identique à celle de la boucle est dessiné sur chacune des boucles dans DigitalMicrograph. L'image de l'ensemble de ces traits est ensuite traitée par analyse d'images dans ImageJ de façon à obtenir le nombre et la taille des objets. Pour chaque échantillon, entre 300 et 400 boucles ont été analysées afin d'avoir une statistique suffisamment représentative. L'incertitude sur l'épaisseur mesurée constitue la principale incertitude pour l'estimation de la densité de boucles. L'incertitude sur l'épaisseur étant de ± 20%, l'incertitude sur les densités mesurées est également estimée à ± 20%. L'incertitude sur le diamètre des boucles provient principalement de l'erreur commise lors du tracé du trait et est estimée à ± 2 nm.

c) Caractérisation des cavités

Les cavités sont imagées en microscopie conventionnelle en fond clair hors conditions deux ondes et en se plaçant dans des conditions de sous-focalisation / sur-focalisation. Elles apparaissent sous forme de disques blancs entourés d'une frange noire dans le premier cas et inversement sous forme de disques noirs entourés d'une frange blanche dans le second cas. La figure **C.4** est un exemple de cavités imagées sur une même zone en sous et sur-focalisation pour un échantillon d'acier 304L irradié aux ions Ni^{++} à 2 dpa et 500°C.

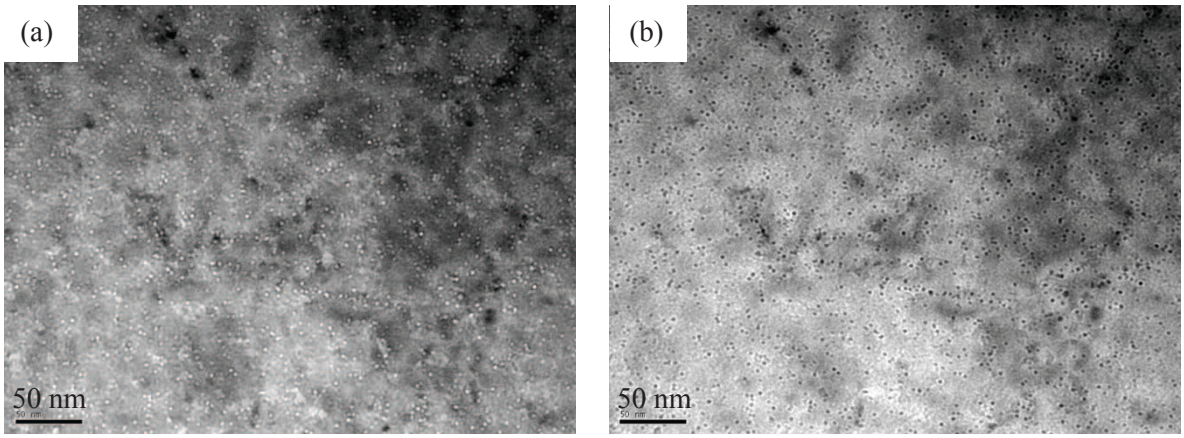


Figure C.4 : 304L irradié aux ions nickel à 2 dpa et 500°C en (a) sous-focalisation et (b) sur-focalisation (b) – présence de cavités

Les cavités ont été comptées manuellement et leur taille moyenne a été déterminée en mesurant le diamètre interne des disques (frange non comprise).
De la même façon que pour les boucles, l'incertitude est majoritairement liée à la mesure de l'épaisseur de la zone d'étude et a été estimée à ± 20%. L'incertitude sur la taille des cavités est quant à elle estimée à ± 1 nm.

Références

[Bardal 2000] A. Bardal, K. Lie, « Measuring the thickness of aluminium alloy thin foils using electron energy loss spectroscopy », Mater. Charact. 44 (2000) 329-343

[Edwards 2003] D.J. Edwards, E.P. Simonen, F.A. Garner, L.R. Greenwood, B.M. Oliver, S.M. Bruemmer, « Influence of irradiation temperature and dose gradients on microstructural evolution in neutron-irradiated 316SS », J. Nucl. Mater. 317 (2003) 32-45

[Egerton 2011] R.F. Egerton, « Electron energy-loss spectroscopy in the electron microscope », Ed. Springer (2011) 293-306

[Etienne 2009] A. Etienne, « Etude des effets d'irradiations et de la nanostructuration dans des aciers austénitiques inoxydables », Thèse Université de Rouen (2009)

[Garnier 2007] J. Garnier, « Déformation sous flux des aciers austénitiques des structures internes des réacteurs à eau pressurisée », Thèse de l'Institut National Polytechnique de Grenoble (2007)

[Malis 1988] T. Malis, S.C. Cheng, R.F. Egerton, « EELS log-ratio technique for specimen-thickness measurement in the TEM », J. Electron Microscope Technique, 8 (1988) 193-200

[Sencer 2003] B. Sencer, G. Was, M. Sagisaka, Y. Isobe, G. Bond, F. Garner, «Proton irradiation emulation of PWR neutron damage microstructures in solution annealed 304 and cold-worked 316 Stainless Steels », J. Nucl. Mater. 323 (2003) 18-28

Annexe D : Préparation des lames minces JANNuS : tenue en température des lames et état de surface

Pour une question de représentativité vis-à-vis des irradions aux neutrons à 300°C, les irradiations aux ions Ni^{++} sont conduites à une température de 500°C. Il est donc important de vérifier au préalable la bonne tenue des lames en température. En effet, la taille des défauts d'irradiation à observer impose que l'état de surface de la lame à 500°C ne soit pas trop dégradé au risque de masquer une partie des défauts.
Nous avions initialement pensé utiliser des lames avec deux états métallurgiques : en l'état de réception et après un recuit à 1050°C pendant 30 min suivi d'une trempe à l'eau. L'objectif du traitement thermique était de réduire la densité de dislocations initialement présentes dans le matériau. Nous avons donc vérifié la bonne tenue en température des lames pour ces deux états métallurgiques.

Pour cela, nous avons réalisé des traitements thermiques dans un four sous vide secondaire à 490°C d'une part ainsi qu'*in situ* à 500°C dans le microscope électronique de la plateforme JANNuS Orsay d'autre part.
Chacune des lames irradiées lors de la campagne JANNuS aura été auparavant cartographiée par EBSD. Il était donc également important de vérifier qu'un nettoyage des lames par plasma cleaner éliminait efficacement la contamination engendrée par l'EBSD. Les essais en température ont permis de valider le nettoyage Ar/H2 effectué (réglage du plasma cleaner : Ar 30 sccm, H_2 6.4 sccm, 2 minutes en une séquence et une puissance de 50 watts).

Pour les traitements thermiques en four sous vide secondaire, deux durées de maintien à 490°C ont été testées, à savoir 2h30 et 4h.
Des précipités ont été formés au cours du recuit pour l'ensemble des lames testées dans ces conditions. Un exemple de l'état de surface obtenu après un maintien de 2h30 à 490°C est présenté sur la **figure D.1**.

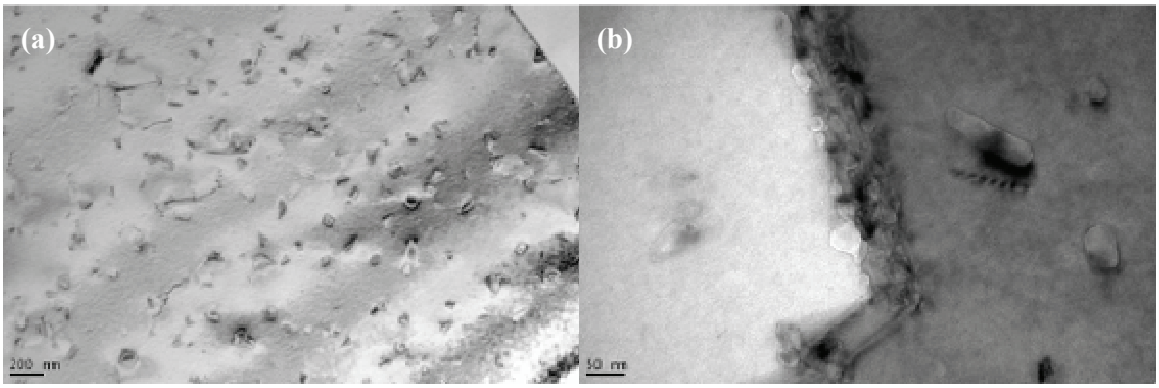


Figure D.1 : Micrographie en fond clair après recuit de 2h30 à 490°C sous vide secondaire (a) état de surface (b) joint de grains – présence de précipités

Un polissage électrolytique durant 1s dans les conditions utilisées pour l'amincissement d'une des lames observées après traitement thermique a permis d'éliminer ces précipités, preuve que ceux-ci avaient été formés uniquement en surface (**figure D.2**).

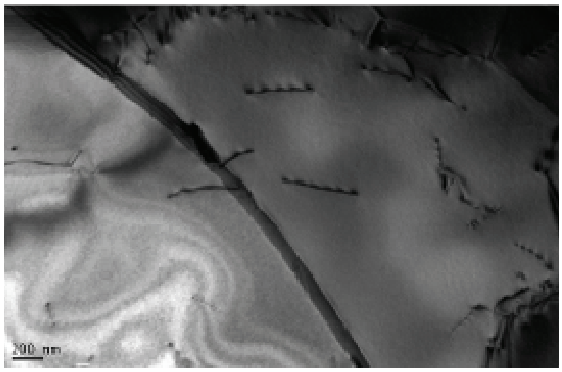


Figure D.2 : Micrographie en fond clair après recuit de 2h30 à 490°C puis polissage électrolytique d'1s – absence de précipités

Un essai in situ dans le MET à 500°C pendant 2h avec réalisation d'une vidéo au cours du maintien en température a montré que les précipités apparaissaient durant les 30 premières minutes du traitement thermique. Les joints de grains sont systématiquement impactés et des analyses EDX indiquent qu'il s'agit principalement de carbures de chrome (**figure D.3**) et de quelques précipités riches en Fe.

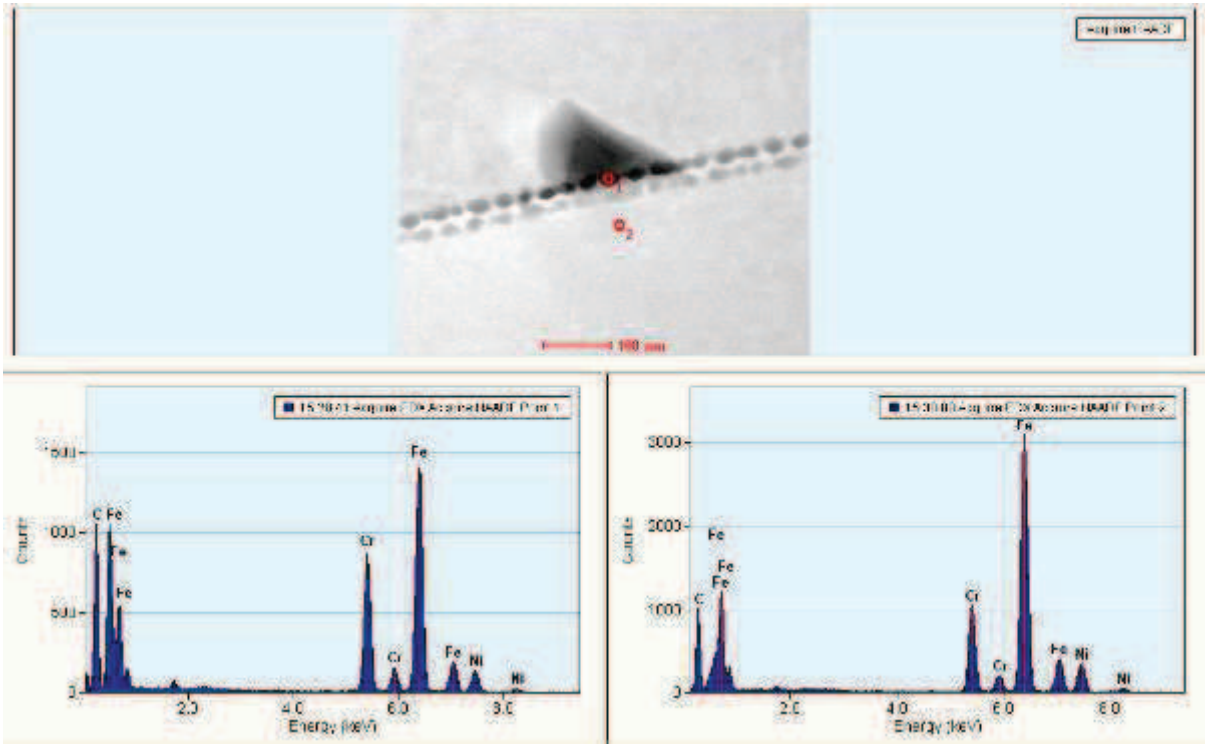


Figure D.3 : Micrographie en STEM-HAADF d'un joint de grains après traitement thermique in situ à 500°C pendant 2h d'une lame après recuit à 1050°C et analyses EDX : comparaison entre la matrice (point 2) et le précipité (point 1). Il s'agit d'un carbure de chrome.

En revanche, les essais à 500°C sur les lames « en l'état de réception » n'ont pas donné lieu à une évolution notable de celles-ci. Seuls quelques précipités sont apparus en bord de lame, comme indiqué sur la **figure D.4**.

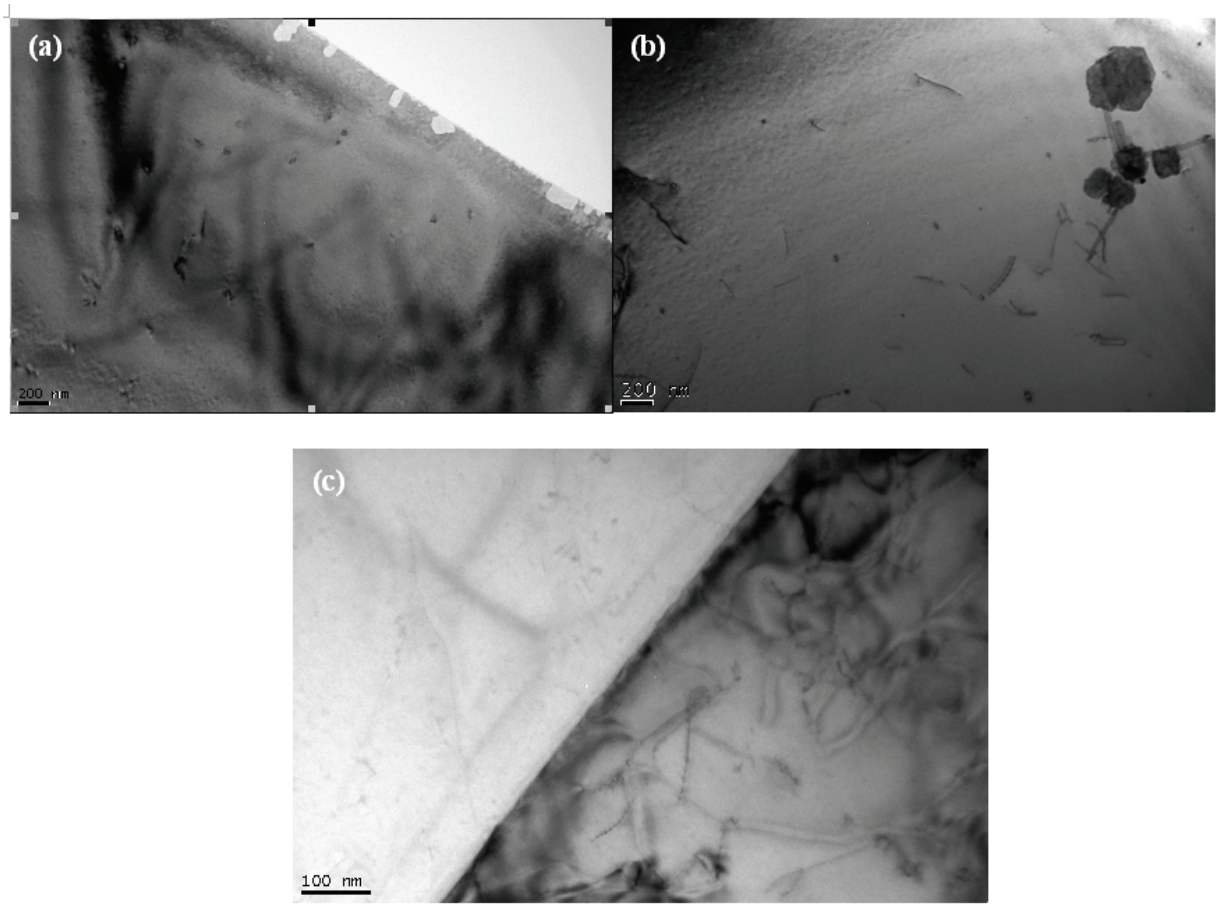


Figure D.4 : Micrographies en fond clair après traitement thermique à 500°C pendant 2h30 d'une lame « en l'état de réception », (a) et (b) présence de précipités en bord de lame et (c) joint de grain, pas de carbures de chrome

Nous avons noté une déformation de la lame et une dégradation progressive de l'état de surface avec la durée du maintien en température.
Suite à l'ensemble de ces tests, nous avons décidé de travailler exclusivement sur des lames « en l'état de réception » et de ne pas excéder une durée d'irradiation de 2h afin de limiter la dégradation de l'état de surface.

Annexe E : Préparation des essais de corrosion sous contrainte – comparaison entre or et tungstène pour le dépôt des microgrilles

L'obtention des champs de déformation locaux par corrélation d'images nécessite de disposer en surface des éprouvettes d'un marquage (naturel ou déposé) qui servira de repère au cours de la déformation.
Dans cette étude, nous avons choisi de déposer un marquage régulier sous forme de grilles en utilisant l'or comme métal de dépôt. Ce métal possède un bon contraste chimique vis-à-vis de l'acier et est suffisamment ductile pour s'adapter à la déformation de l'éprouvette.
Suite à un premier essai en milieu primaire simulé, nous avons constaté un phénomène de globulisation de l'or. De ce fait, les intersections des barreaux des grilles, points utilisés pour la corrélation d'images, peuvent disparaître ou être dégradées.
Cette dégradation des grilles dans le milieu primaire simulé à 350°C est certainement liée à un problème de tension de surface, mais cette hypothèse n'a pas été vérifiée.

D'autres métaux peuvent être employés pour former un marquage en surface des matériaux métalliques tels que l'acier. Pour des essais réalisés à haute température (typiquement 700°C), l'or est généralement remplacé par du tungstène, plus résistant à ces températures. Le dépôt des grilles est effectué suivant le même principe avec utilisation d'une résine électro-sensible et dépôt du métal par évaporation sous vide.
Pour tester la possibilité d'utiliser du tungstène en lieu et place de l'or, 4 grilles de 500x500 μm^2 ont été réalisées à l'aide de ces deux métaux par microlithographie électronique sur deux coupons non irradiés et polis miroir du matériau d'étude. Le dépôt des grilles de tungstène a été effectué sans difficulté. Le résultat est visible sur la **figure E.1**. Les coupons ont ensuite été placés en milieu primaire simulé à 350°C sans application de contrainte durant 2 semaines.

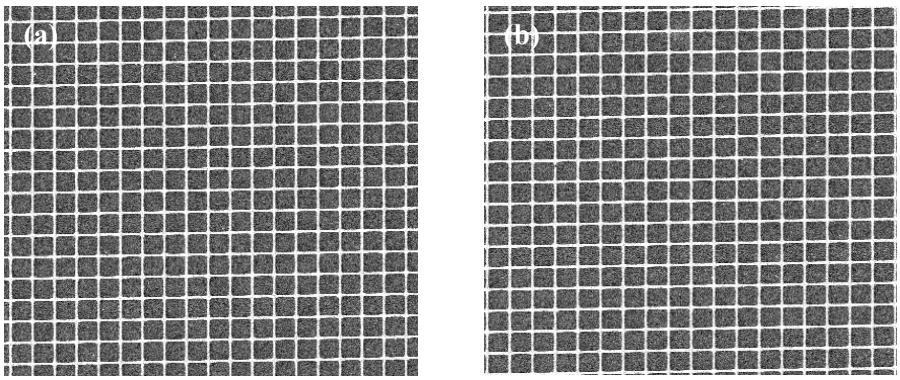


Figure E.1 : Observation MEB en électrons rétrodiffusés de la surface du matériau d'étude avant mise en milieu des coupons (a) grille d'or et (b) grille de tungstène – la distance entre deux barreaux est de 4 μm.

Les observations MEB de la surface après ces 2 semaines en milieu sont illustrées sur la **figure E.2**.

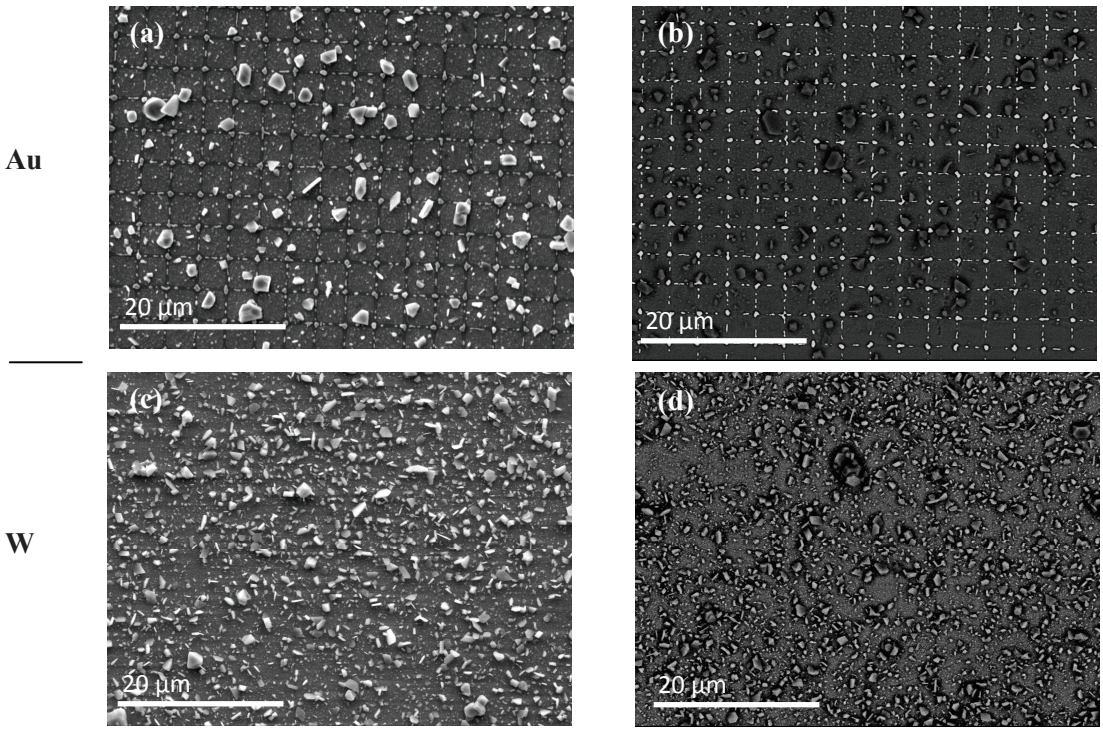


Figure E.2 : Observations MEB après 2 semaines en milieu primaire simulé à 350°C de la surface non irradiée du matériau d'étude (304L) avec grilles d'or (a) en électrons secondaires (b) en électrons rétrodiffusés ; avec grilles de tungstène (c) en électrons secondaires (d) en électrons rétrodiffusés

Une globulisation de l'or est observée de la même façon sur le matériau non irradié et ne résulte donc pas d'un effet d'irradiation. Des cristallites d'oxyde sont également visibles.
Les micrographies prises sur la surface où étaient initialement présentes les grilles de tungstène révèlent la disparition totale de celles –ci. Aucune trace de tungstène n'a été retrouvée en contraste chimique par électrons rétrodiffusés.
Le dépôt de tungstène ne peut donc être une alternative à l'or pour ces conditions d'essais.

Des essais de corrélations d'image ont montré que la présence des cristallites d'oxydes en surface associés aux grilles d'or (dégradées mais toujours présentes), étaient des marqueurs suffisants pour réaliser la corrélation avec une précision correcte à condition que les images de référence soient proches des images post-déformation. Cette dernière condition est obtenue par la mise en milieu, sans chargement mécanique, de l'éprouvette durant 1 à 2 semaines afin de globuliser l'or et de former les cristallites en surface. La globulisation de la grille évolue peu une fois le phénomène amorcé et les cristallites ne sont pas dissous après remise en milieu de l'éprouvette pour l'essai de CSC. De ce fait, les images références après « préoxydation » sont proches des images post-déformation.
Cette technique a été appliquée à l'ensemble des éprouvettes utilisées dans cette étude une fois cette problématique identifiée (éprouvettes D et E).

Annexe F : Répartition des facteurs de Schmid – éprouvette E

Les facteurs de Schmid de chaque grain ont été déterminés via le logiciel OIM® en prenant en considération l'orientation de l'axe de sollicitation vis-à-vis du référentiel de l'échantillon.

Le facteur de Schmid est calculé pour chaque système de déformation possible (soit 12 systèmes dans les structures CFC) en se basant sur l'hypothèse que la cission critique résolue est la même pour tous les systèmes de déformation. Le facteur retenu pour chaque grain correspond au maximum des 12 facteurs calculés.

La répartition en trois catégories (« Faible », « Medium » et « Fort ») des facteurs de Schmid correspondant au glissement et au maclage est présentée sur les cartographies ci-après. Chaque classe contient un nombre identique de grains.

Pour l'ensemble des cartographies, les catégories de FS et la légende correspondant aux joints de grains sont données sur la **figure F.1**.

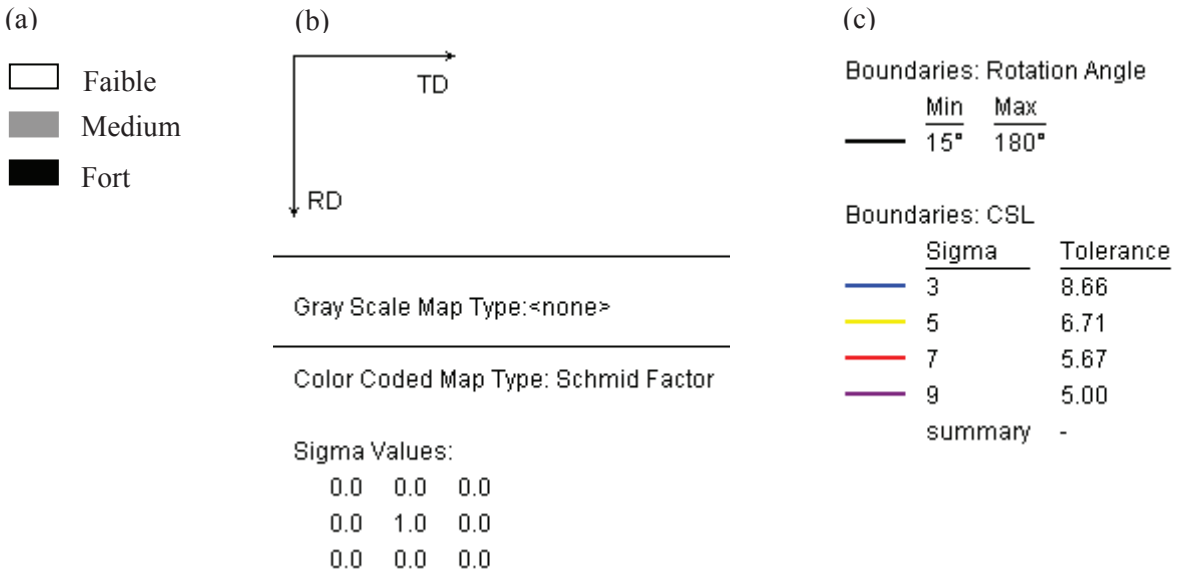


Figure F.1 : (a) catégories de FS, (b) définition de l'axe de sollicitation et (c) légende des joints de grains (la tolérance correspond au critère de Brandon)

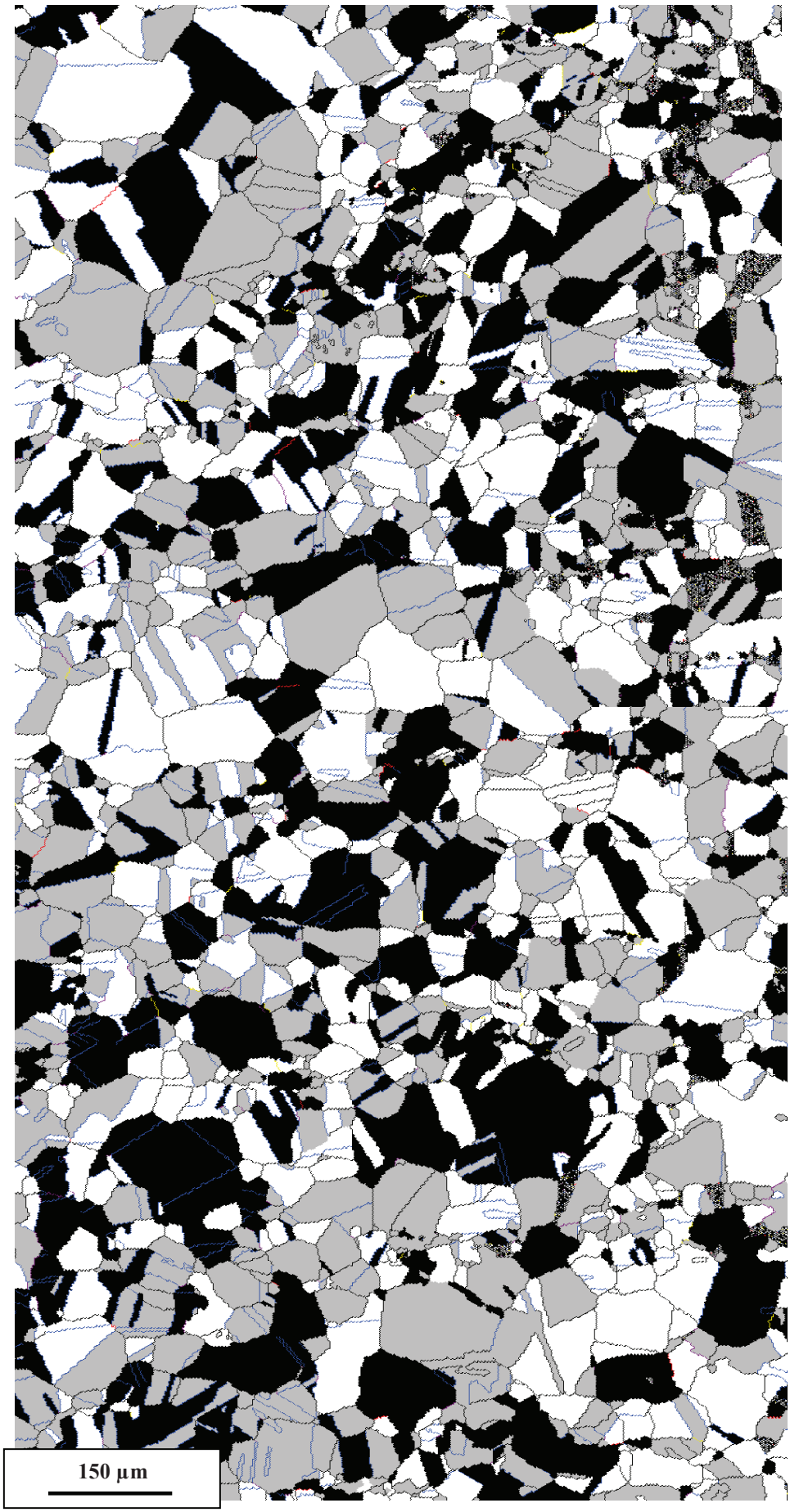


Figure F.2 : Répartition des FS de glissement sur l'éprouvette E

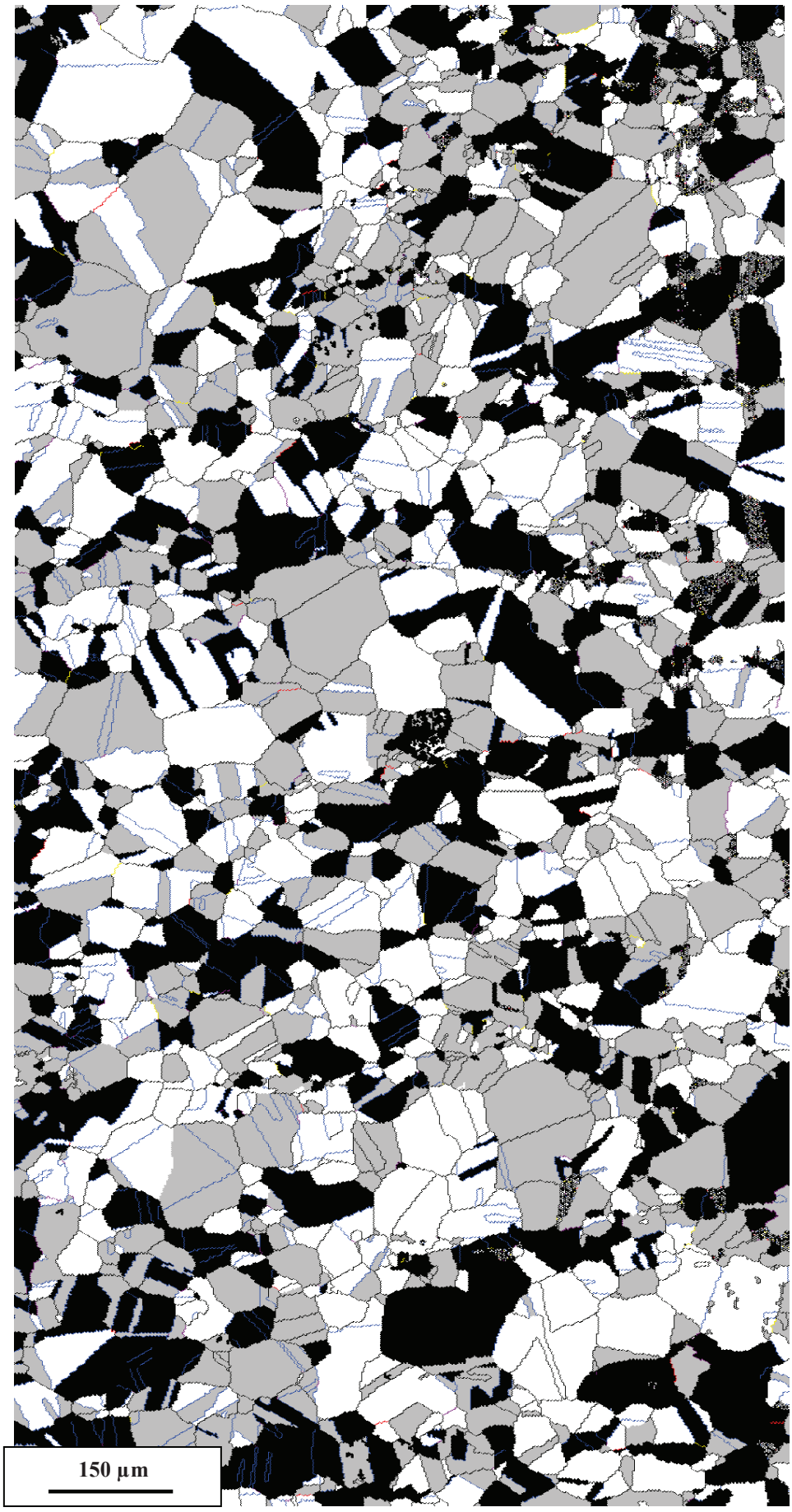


Figure F.3 : Répartition des FS de maclage sur l'éprouvette E

Fragilisation des aciers inoxydables austénitiques sous irradiation : évolution de la microstructure et de l'amorçage de la corrosion sous contrainte assistée par l'irradiation en milieu REP

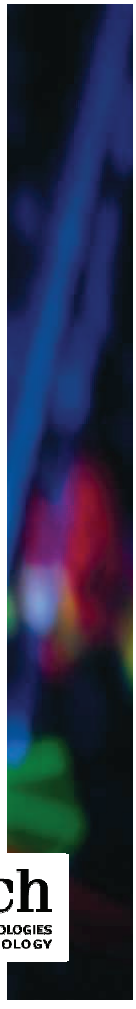
RESUME : Cette étude porte sur l'évolution de la microstructure des aciers inoxydables austénitiques sous irradiation et les conséquences de cette évolution sur leur comportement en milieu REP. Un acier 304L a été irradié aux protons à 360°C à 5 et 10 dpa. Suite à ces irradiations, la sensibilité du matériau à l'IASCC a été étudiée en milieu primaire simulé à 350°C, avec suivi par microextensométrie des champs locaux de déformation. Parallèlement à ce travail, des lames minces ont été irradiées *in situ* aux ions Ni^{++} à 500°C jusqu'à 2 dpa avec implantation simultanée d'hélium. Ces expérimentations nous ont permis (i) grâce au couplage microstructure /champs mécaniques /fissuration de mieux comprendre les paramètres responsables de l'amorçage de l'IASCC en milieu réducteur (ii) de définir le rôle joué par l'hélium sur l'évolution des défauts d'irradiation. Il s'avère que, dans les conditions d'étude, l'implantation d'hélium n'a qu'un effet limité sur les populations de boucles de dislocation et de cavités pour des rapports inférieurs à 800 appm He/dpa. Des cavités ont été observées avec et sans implantation d'hélium, y compris dans les joints de grains ce qui pourrait être un facteur de fragilisation. L'ensemble des essais de corrosion sous contrainte ont validé que la densité de fissures augmente avec l'augmentation du taux de déformation et qu'un chargement séquentiel conduit à une plus grande ouverture et propagation en surface des fissures. Ces fissures se propagent en profondeur dans la couche irradiée notamment du fait de la surcontrainte générée par le fort gradient de propriétés entre la zone irradiée et non irradiée du matériau. Les mécanismes de déformation activés sont complexes et du maclage a été observé après 2 et 10% de déformation macroscopique. La déformation après irradiation est fortement localisée sous forme de bandes intragranulaires et autour de certains joints de grains, mais la déformation de ces joints ne semble pas constituer un critère d'amorçage. L'absence de transmission de la déformation de part et d'autre des joints fissurés est par contre systématiquement observée et la connaissance de l'état de contrainte local s'avère indispensable pour décrire l'amorçage de l'IASCC en milieu réducteur. Une méthodologie basée sur l'exploitation des résultats expérimentaux (champs d'orientation cristallographique, champs cinématique) appliquée à une simulation aux éléments finis permet d'estimer l'état local de contrainte, seul à même de discriminer un critère d'ouverture de fissure.

Mots clés: Aciers inoxydables austénitiques, irradiation, corrosion sous contrainte, hélium

Austenitic stainless steels under irradiation: microstructure evolution and the initiation of irradiation assisted stress corrosion cracking in PWR environment

ABSTRACT: This work deals with the microstructure evolution of austenitic stainless steels under irradiation and the consequences of this evolution on their behavior in PWR environment. 304L steel was proton-irradiated at 360°C to 5 and 10 dpa. Following these irradiations, IASCC was studied in a 350°C simulated primary water, with strain fields measurements using digital image correlation. In parallel, thin foils were irradiated *in situ* with Ni^{++} ions at 500°C up to 2 dpa with simultaneous helium implantation. These experiments allowed us (i) to have a better understanding of the key parameters responsible of the IASCC initiation in reducing environment thanks to the coupling between microstructure, mechanical fields and cracking (ii) to define the role of helium on the nucleation and evolution of radiation defects. It turns out that, in the studied conditions, the implantation of helium has only a limited effect on the dislocation loop and cavity populations for ratios lower than 800 appm He/dpa. Cavities were observed with and without helium, including in the grain boundaries which could be a factor of embrittlement. The stress corrosion cracking tests resulted in an increase of the crack density with the increase of the macroscopic deformation and in a bigger opening and on-surface propagation of cracks after a sequential loading. These cracks propagate deeply in the irradiated layer partly because of the overstress generated by the strong gradient of mechanical properties between the irradiated and non-irradiated zones of the material. The activated deformation mechanisms are complex and twinning was observed after 2 and 10% of macroscopic deformation. The deformation after irradiation is strongly localized in transgranular bands and around some grain boundaries, but it appears that the strong deformation around boundaries is not an initiation criterion. Deformation discontinuity on both sides of cracked boundaries is systematically observed and evaluation of the local stress state appears to be essential to describe IASCC initiation. This local stress state could be calculated by finite elements, taking into account the experimental results in terms of crystallographic orientation fields or Kinematics fields strong heterogeneity of local deformation quantified in this work.

Keywords: Austenitic stainless steels, irradiation, stress corrosion cracking, helium



MINES ParisTech

ParisTech
INSTITUT DES SCIENCES ET TECHNOLOGIES
PARIS INSTITUTE OF TECHNOLOGY