



**HAL**  
open science

## On the liquid metal embrittlement problem in nuclear safety field

Gregory Nicaise

► **To cite this version:**

Gregory Nicaise. On the liquid metal embrittlement problem in nuclear safety field. DSR/SAGR n°84, IRSN - Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire. 2009. irsn-04275492

**HAL Id: irsn-04275492**

**<https://irsn.hal.science/irsn-04275492>**

Submitted on 8 Nov 2023

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

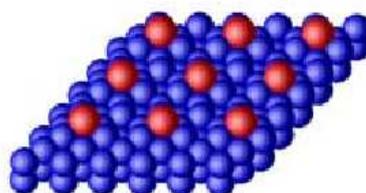
L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Copyright

**IRSN**INSTITUT  
DE RADIOPROTECTION  
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

# PROBLEMATIQUE DE LA FRAGILISATION PAR LES METAUX LIQUIDES

Phénoménologie, enjeux et cadrage du projet de  
recherche exploratoire DSR



RAPPORT DSR/SAGR N° 84

Septembre 2009

**DIRECTION DE LA SURETE DES REACTEURS**  
SERVICE D'EVALUATION DES ACCIDENTS GRAVES ET DES REJETS  
RADIOACTIFS

Demandeur	
Référence de la demande	
Numéro de la fiche programme	08D/T0B-001/02
Processus de rattachement	Recherche exploratoire

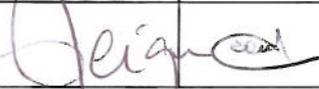
## PROBLEMATIQUE DE LA FRAGILISATION PAR LES METAUX LIQUIDES

Phénoménologie, enjeux et cadrage du projet de  
recherche exploratoire DSR

Grégory NICAISE

Bureau de Physique des Accidents Graves (DSR/SAGR/BPhAG)

Rapport DSR/SAGR n° 84

	Réservé à l'unité		Visas pour diffusion		
	Auteur(s)	Vérificateur	Chef du DSR/SAGR/BPhAG	Chef du DSR/SAGR	Directeur de la sûreté des réacteurs
Noms	G. NICAISE (DSR/SAGR)	R. MEIGNEN (DSR/SAGR)	C. CAROLI	F. PICHEREAU E. RAISON	M. JOREL
Dates	27/07/2009	29/07/2009	29/07/2009	07 09/2009	/ /2009
Signatures					

DIFFUSION : Libre  Interne  Limitée

---



---

## HISTORIQUE DES MODIFICATIONS

Version	Date	Auteur	Pages ou paragraphes modifiés	Description ou commentaires
0	24/07/2008	G. NICAISE		
1	28/07/2009	G. NICAISE	§2.3.5	nouveau paragraphe
2	07/09/2009	G. NICAISE		corrections mineures

---



---

## LISTE DE DIFFUSION

Nom	Organisme
MM. Jorel, Bruna	IRSN/DSR
Mme Pichereau, M. Raimond	IRSN/DSR/SAGR
MM. Caroli, Bonneville, Meignen, Nicaise	IRSN/DSR/SAGR/BPhAG
M. Baudrand	IRSN/DSR/SEGRE/BESTARE
M. Barrachin	IRSN/DPAM/SEMIC/LETR
MM. Schwarz, Evrard, Jacquemain, Hache, Thierry	IRSN/DS
Circulation interne	IRSN/DSR/SAGR/BPhAG
MM. Combescure, Coret	LAMCOS INSA-Lyon UMR CNRS 5259

---

---

## RESUME

Ce document présente le cadrage scientifique du projet de recherche exploratoire DSR visant à modéliser le phénomène de fragilisation par les métaux liquides à l'aide de calculs en éléments finis.

Ce phénomène, concernant un matériau métallique solide sous contraintes soumis au simple contact de surface d'un métal liquide, est susceptible de déclencher des ruptures fragiles très brutales, là où le matériau serait normalement ductile.

Ce projet de recherche exploratoire intéresse la sûreté des réacteurs sur deux plans : les REP en situation d'accident avec fusion de cœur et présence de corium en fond de cuve, ainsi que les réacteurs de 4<sup>ème</sup> génération utilisant les métaux liquides, notamment les réacteurs BREST ou les réacteurs hydrides de type ADS (Accelerated Driven System) où le plomb ou le plomb-bismuth liquides sont destinés à la fonction caloportrice.

Ce document synthétise les résultats expérimentaux à exploiter pour modéliser le phénomène en éléments finis. Il présente également les éléments de théorie et d'interprétations nécessaires à la compréhension du mécanisme physique de la fragilisation par les métaux liquides.

---

---

## MOTS-CLES

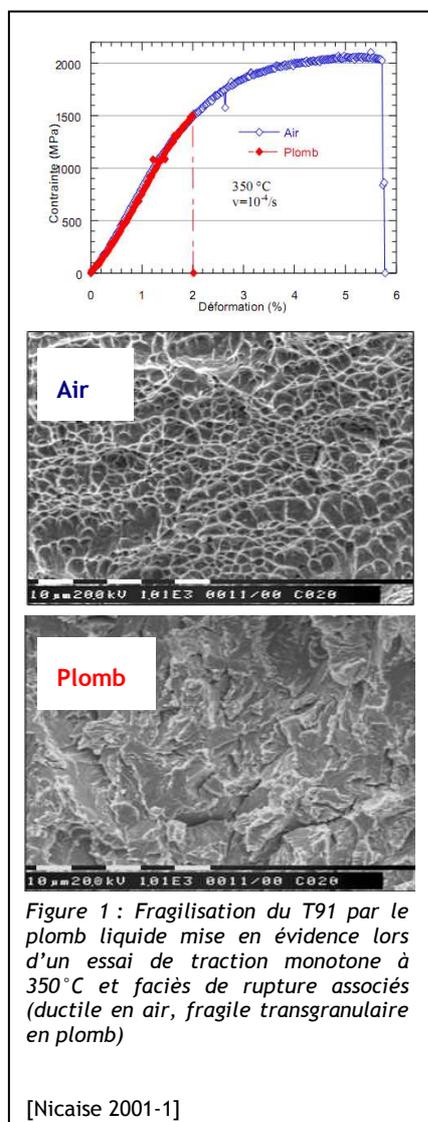
Fragilisation par les métaux liquides, interaction plasticité-environnement, compétition fragilité-plasticité, ruptures fragiles par clivage, réduction d'énergie de surface induite par adsorption, contrainte théorique de clivage, éléments finis, acier T91, plomb/plomb-bismuth liquides.

# SOMMAIRE

<b>POSITION DU PROBLEME .....</b>	<b>6</b>
<b>1-SYNTHESE DE L'ETAT DE L'ART .....</b>	<b>8</b>
<b>2-RESULTATS A EXPLOITER.....</b>	<b>10</b>
2.1 CARACTERISTIQUES MICROSTRUCTURALES DE L'ACIER T91 .....	10
2.2 FRAGILISATION DU T91 PAR LE PLOMB LIQUIDE .....	12
2.2.1 DISPOSITIF EXPERIMENTAL MIS EN PLACE.....	12
2.2.2 PREMIERS ESSAIS REALISES SUR L'ACIER T91 STANDARD .....	14
2.2.2 MECANISME PHYSIQUE ENVISAGE ET STRATEGIE ADOPTEE POUR L'ISOLEMENT DES CONDITIONS DE FRAGILISATION .....	15
2.3 CARACTERISATIONS DU PHENOMENE .....	27
2.3.1 VARIATION DE L'ENERGIE DE RUPTURE .....	27
2.3.2 NATURE DU METAL LIQUIDE ET FRAGILISATION PAR L'EUTECTIQUE PLOMB-BISMUTH.....	27
2.3.3 COMPETITION FRAGILITE/PLASTICITE ET RECOUVREMENT DE DUCTILITE .....	28
2.3.4 CARACTERE NON-DIFFUSIONNEL DU MECANISME PHYSIQUE DE FRAGILISATION : LA PREUVE PAR L'EXPERIENCE.....	32
2.3.5 ESTIMATIONS DE LA REDUCTION D'ENERGIE DE SURFACE INDUITE PAR ADSORPTION: CALCULS AB-INITIO .....	35
<b>3-INTERPRETATION PHYSIQUE .....</b>	<b>37</b>
3.1 ELEMENTS DE THEORIE SUR LA RUPTURE FRAGILE EN ELASTO-PLASTICITE .....	37
3.1.1 RUPTURE FRAGILE EN ELASTICITE PURE .....	37
3.1.2 RUPTURE FRAGILE EN ELASTICITO-PLASTICITE .....	39
3.2 INTERPRETATION DE LA FRAGILISATION DU T91 DEMONTREE EXPERIMENTALEMENT .....	42
3.2.1 INITIATEUR PHYSIQUE DE LA RUPTURE FRAGILE .....	42
3.2.2 DECLENCHEMENT DE LA RUPTURE FRAGILE ET PROPAGATION .....	42
3.2.3 RUPTURES MIXTES, COMPETITION PLASTICITE-FRAGILITE, RECOUVREMENT DE DUCTILITE ....	45
<b>4-CADRAGE DE LA MODELISATION EN ELEMENTS FINIS.....</b>	<b>47</b>
<b>5-CONCLUSION ET RETOUR SUR LES ENJEUX .....</b>	<b>49</b>
<b>REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....</b>	<b>50</b>
<b>ANNEXE 1 : COURBE DE TRANSITION DUCTILE-FRAGILE DU T91 .....</b>	<b>52</b>
<b>ANNEXE 2 : FISSURATION DE LA COUCHE ECROUIE .....</b>	<b>53</b>
<b>ANNEXE 3 : DOSSIER INITIAL DE PRESENTATION DU PROJET.....</b>	<b>54</b>

# POSITION DU PROBLEME

La **fragilisation par les métaux liquides (FML)** se traduit par une **modification radicale du comportement mécanique** de substrats métalliques, sous contraintes, en présence de métal liquide (ML). Un acier qui présenterait un comportement ductile à chaud peut ainsi se rompre, sous contraintes, de façon fragile en contact avec un métal fondu, toutes conditions identiques par ailleurs (température notamment). La rupture en milieu ML peut alors présenter des caractéristiques (mode et énergie de rupture) comparables à celles obtenues sur le même acier, en l'absence de ML, en dessous de sa température de transition ductile-fragile, à très basse température par exemple (80K).



Le phénomène s'apparente ainsi à une **transition ductile-fragile induite par effet d'environnement**. La rupture peut être amorcée en dessous des limites d'élasticité du matériau et se propager brutalement, à une vitesse de l'ordre de plusieurs  $\text{m.s}^{-1}$ . Ce phénomène entre dans la catégorie des effets d'environnement susceptibles d'influencer le comportement mécanique des matériaux qui y sont soumis et dont les plus fréquents, à l'échelle industrielle, sont la corrosion sous contraintes (en environnement marin par exemple), ou la fragilisation par l'hydrogène. Néanmoins, en milieu métal liquide, le phénomène se démarque de ces derniers par un **mécanisme n'impliquant aucune diffusion atomique** de l'environnement dans le substrat. Une simple adsorption du ML en surface est suffisante pour induire la fragilisation et mener à des ruptures catastrophiques n'ayant donné aucun signe avant-coureur. On percevra alors tout le mystère apparent du phénomène : comment un effet de perturbation local en surface (adsorption de ML et réduction de l'énergie de surface) peut-il induire la variation drastique d'une propriété volumique macroscopique d'un matériau (énergie de rupture par exemple) ? Le chapitre 3 présente une interprétation du phénomène étayée sur la base de certains résultats expérimentaux.

On notera qu'un autre phénomène peut intervenir lors du contact plus ou moins prolongé entre un substrat métallique et les métaux

liquides : celui de la dégradation de propriétés mécaniques par pénétration du ML aux joints de grains, qui, contrairement à la fragilisation, implique une certaine diffusion et donc un certain temps d'incubation.

Depuis le début des investigations (XX<sup>ème</sup> siècle) sur l'interaction métal (ou alliage) solide (MS)/métal liquide (ML), ces deux phénomènes de fragilisation et de dégradation ont été fréquemment confondus dans la littérature. Une démonstration expérimentale récente [Nicaise 2001-1, 2] a néanmoins permis d'aider à clarifier la situation, et amène aujourd'hui à revoir certaines interprétations sur les conditions d'émergence du phénomène (par exemple la fragilisation pour un système MS/ML formant des intermétalliques, longtemps et abondamment décrite comme impossible, a été démontrée dans [Nicaise 2001-1] sur un système acier/étain liquide).

Dans le domaine de l'industrie électronucléaire, présente et future, la problématique de la FML peut concrètement se poser dans certaines situations d'accidents graves susceptibles de survenir sur un réacteur nucléaire. En effet, en cas de fusion du cœur nucléaire sur les REP, on peut retrouver à plus ou moins court terme, au fond de la cuve du réacteur, un bain métallique fondu constitué du combustible, des gaines de zirconium, des aciers de structure et des barres de commande. La possibilité de FML dans ces situations est discutée en conclusion.

La problématique de la FML se pose également, à la conception, pour les réacteurs/surgénérateur de 4<sup>ème</sup> génération fonctionnant aux neutrons rapides comme les projets de réacteurs russes de type BREST [Adamov 1997] ou « hybrides » ADS (Accelerated Driven System) où le plomb liquide ou l'eutectique plomb-bismuth liquide ( $T_f=403K$ ) sont prévus pour faire office de caloporteur [Fazio 2008]. Les réacteurs au sodium ne sont pas évoqués ici pour deux raisons : la première est que le sodium est un métal très différent (métal alcalin), vis-à-vis de l'adsorption sur une surface métallique, des métaux de type Pb (métalloïdes dits « pauvres »), la seconde est que ces réacteurs existent déjà et qu'aucune fragilisation inattendue n'a été reporté (par contre les problèmes à plus long terme de corrosion existent pour ces réacteurs).

C'est en regard de ces enjeux que la Direction de Sûreté des Réacteurs de l'IRSN a proposé un projet de recherche exploratoire portant sur une première tentative de modélisation du phénomène de fragilisation par les métaux liquides, par le biais d'une formulation du problème en mécanique des milieux continus (annexe 3). On présente ici les principaux résultats et éléments de théorie à utiliser, ainsi que le cadrage scientifique de ce projet et la stratégie visée pour parvenir à une modélisation physique rigoureuse et exportable aux diverses situations pouvant être rencontrées. Le projet se décline en deux phases successives (d'une année chacune). La première consistera à formuler et maîtriser la modélisation du phénomène à l'échelle mésoscopique, la seconde sera destinée à l'application des modèles développés à l'échelle réacteur, où seront envisagées les possibilités d'émergence du phénomène, afin notamment d'évaluer le risque encouru en situation d'accident sur les REP, ou en fonctionnement sur les concepts de réacteurs aux métaux liquides.

# 1-SYNTHESE DE L'ETAT DE L'ART

Le premier article portant sur le phénomène de fragilisation par les métaux liquides a été publié par W.H. Johnson (Grande-Bretagne) en 1874. La fragilisation du zinc amalgamé (plongé dans le mercure liquide) est observée et interprétée par l'auteur de la façon suivante : « *le zinc amalgamé est fragilisé du fait que les pores ou interstices entre les molécules du métal sont remplis de mercure ce qui rend le mouvement d'une molécule sur l'autre impossible* » [Johnson 1874]. Par suite la fragilisation par les métaux liquides a été étudiée « au coup par coup » lors du XX<sup>ème</sup> siècle, sans réelle concertation entre les différents groupements de chercheurs, ce qui a conduit certains à établir des règles prédictives qui ont été contredites par d'autres. Il y a, à la lumière de l'ensemble des résultats obtenus, une primordiale nécessité de séparer deux phénomènes longtemps confondus en un seul.

Le phénomène de **fragilisation par les ML** conduisant à une inhibition partielle ou totale de plasticité et à une rupture brutale par clivage (séparation nette au travers des plans atomiques lors de la propagation de la rupture) est à distinguer des fragilisations obtenues dans le cas de la « **corrosion ou dégradation par les ML** ». La plupart du temps, ces derniers phénomènes se manifestent lors d'un contact prolongé (plusieurs mois ou années) entre le substrat métallique et le ML. Il y a alors, suivant le couple métal/métal liquide et ses interactions (solubilité mutuelle ou non, formation éventuelle d'intermétalliques...), possibilité de pénétration du ML aux joints de grains du substrat. La présence, en volume, du ML dans le substrat vient alors naturellement modifier son comportement mécanique sous contraintes. Les ruptures observées sont quasiment toujours intergranulaires. Si le problème de la corrosion par le sodium liquide dans les réacteurs déjà existant a été étudié, celui de la fragilisation brutale dans les réacteurs au plomb ou plomb-bismuth est un champ de recherches naissant.

Ces phénomènes, impliquant à la fois un certain temps d'incubation et une décohésion du matériau induite par le ML aux joints de grains ont été largement décrits et analysés dans la littérature, notamment par les travaux de E.E Glickman dans les années 1975-1995 (par exemple [Glickman 1978]).

Il existe néanmoins une autre interaction, plus directe et plus brutale, entre le ML et le substrat impliquant une simple adsorption en surface et ne nécessitant donc pas de contact prolongé. C'est le cas de la **fragilisation par les ML** proprement dite, dont le mécanisme théorique est suggéré au travers des travaux de P.A Reh binder, publiés dans les années 1930-1950 (par exemple [Reh binder 1947]), au sujet de **l'abaissement de l'énergie de surface induit par adsorption de ML**. Il se trouve en effet que la contrainte théorique de clivage en traction  $\sigma_c$  d'un matériau cristallin dépend explicitement de l'énergie de surface  $\gamma_s$  (dépendance en  $\gamma_s^{1/2}$ ). Habituellement, cette contrainte théorique n'est jamais atteinte car la plastification (accommodation de la contrainte mécanique par mouvement étendu des dislocations) se produit au-delà de la limite élastique du matériau. En présence de ML, et si, par

adsorption, la contrainte théorique de clivage est localement réduite en dessous de la limite d'élasticité, la rupture fragile dans le domaine élastique est possible.

En 2001 le phénomène de fragilisation induite par adsorption de ML a été clairement mis en évidence expérimentalement sur un système non idéal (acier martensitique/Pb, Pb-Bi, Sn liquides) [Nicaise 2001-1,2, Legris 2000, 2002]. Il a été notamment démontré que l'émergence du phénomène ne saurait obéir à des règles prédictives se basant uniquement sur la description des interactions chimiques MS/ML. Le mode de dissipation de la plasticité dans le matériau métallique solide est également un paramètre de premier ordre qui peut tantôt masquer, tantôt dévoiler la fragilisation par les métaux liquides. En ce sens, contrairement aux idées abondamment développées dans la littérature jusqu'en 2001, il n'est pas possible de stipuler que certains couples MS/ML sont sensibles ou non au phénomène sans étudier la compétition entre l'interaction chimique MS/ML de surface ou de volume et le comportement mécanique local du MS sous contraintes. Ainsi, deux voies s'offrent pour évaluer la sensibilité d'un couple MS/ML à la fragilisation : multiplier les essais mécaniques en étudiant toutes les conditions mécaniques susceptibles d'être encourues par le MS, y compris les problèmes de vieillissement capables d'influer sur sa loi de comportement, et/ou tenter une approche par la modélisation de la fragilisation par les métaux liquides sur un système MS/ML où les conditions de fragilisation ont été clairement isolées et suffisamment bien décrites.

Le projet de recherche exploratoire engagé par la Direction de la Sûreté des Réacteurs de l'IRSN s'inscrit dans cette optique de modélisation, où vont être exploités les résultats obtenus sur la fragilisation d'un acier martensitique par divers métaux liquides, afin de comprendre les fondements théoriques du couplage plasticité/effet d'environnement impliqués. Cette approche, où le problème sera formulé en mécanique des milieux continus et modélisé par éléments finis, n'a encore jamais été engagée, et pourra donc constituer une voie de progression dans la connaissance académique du phénomène.

# 2-RESULTATS A EXPLOITER

La phase 1 du projet de recherche exploratoire consiste en la modélisation par éléments finis (à l'aide du code ABAQUS) des résultats obtenus dans la thèse [Nicaise 2001-1]. Ce travail portait sur la recherche d'une possibilité de fragilisation de l'acier martensitique Z10CDNbV9-1 (acier à 9% de chrome, couramment dénommé T91) par le plomb ou l'eutectique plomb-bismuth, à l'état liquide. On expose ci-dessous un résumé de la thèse [Nicaise 2001-1], avec les résultats essentiels devant être utilisés dans le cadre de la phase 1 du projet.

## 2.1 CARACTERISTIQUES MICROSTRUCTURALES DE L'ACIER T91

L'acier T91 est celui destiné à plusieurs structures essentielles des réacteurs hybrides ADS, en contact avec le plomb ou l'eutectique plomb-bismuth. C'est un acier martensitique (acier trempé dont la microstructure permet de limiter le phénomène de gonflement sous irradiation neutronique) qui possède par ailleurs une assez bonne tenue à l'oxydation (9% de chrome). Sa composition chimique est la suivante :

Elément	C	Cr	Mo	Nb	V	Si	Mn	Ni	Cu	Co	P	Si	Fe
Teneur massique	0.11	8.80	1.00	0.073	0.25	0.41	0.38	0.17	0.07	0.06	0.006	0.0025	Balance

Tableau 1 : composition de l'acier T91 testé dans la thèse [Nicaise 2001-1] (fabrication Creusot Loire Industries, Analyse par Fluorescence X EDF Renardières)

Le traitement thermique d'origine sur cet acier est le suivant :

- austénitisation à 1050°C pendant une heure
- trempé à l'air jusqu'à l'ambiante
- revenu à 750°C pendant une heure.

L'évolution de la microstructure au cours de ce traitement thermique est présentée en figure 2.

Durant l'austénitisation à 1050°C, l'acier T91 contient déjà des précipités primaires non dissous de type MC (M= Cr, V, Mo, Fe, Nb) apparus lors de son élaboration. Une durée d'austénitisation d'une heure à cette température amène une **taille de grains d'environ 20 µm** (figure 3). Au cours de la trempé, la martensite colonise les anciens grains d'austénite sous forme de lattes riches en carbone qui s'arrangent parallèlement en paquets désorientés les uns par rapport aux autres, et dont les jonctions forment des sous-joints, où la densité de dislocations est plus importante.

Pendant la phase de revenu à 750°C, des carbures de type  $M_{23}C_6$  précipitent au niveau des joints des anciens grains d'austénite et des joints de lattes de martensite. De nouvelles particules de type MC et  $M_4C_3$  se forment également.

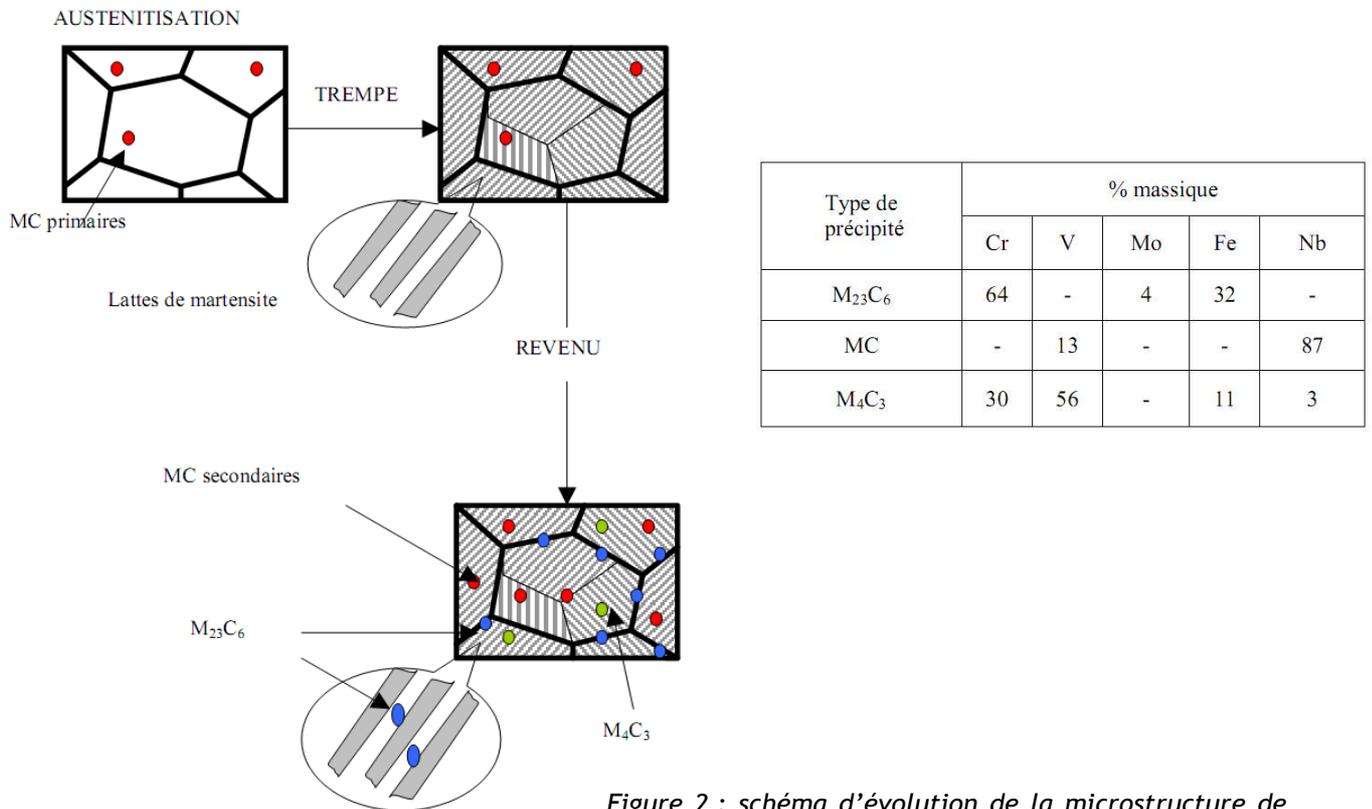


Figure 2 : schéma d'évolution de la microstructure de l'acier T91 lors de son traitement thermique de base [Nicaise 2001-1]

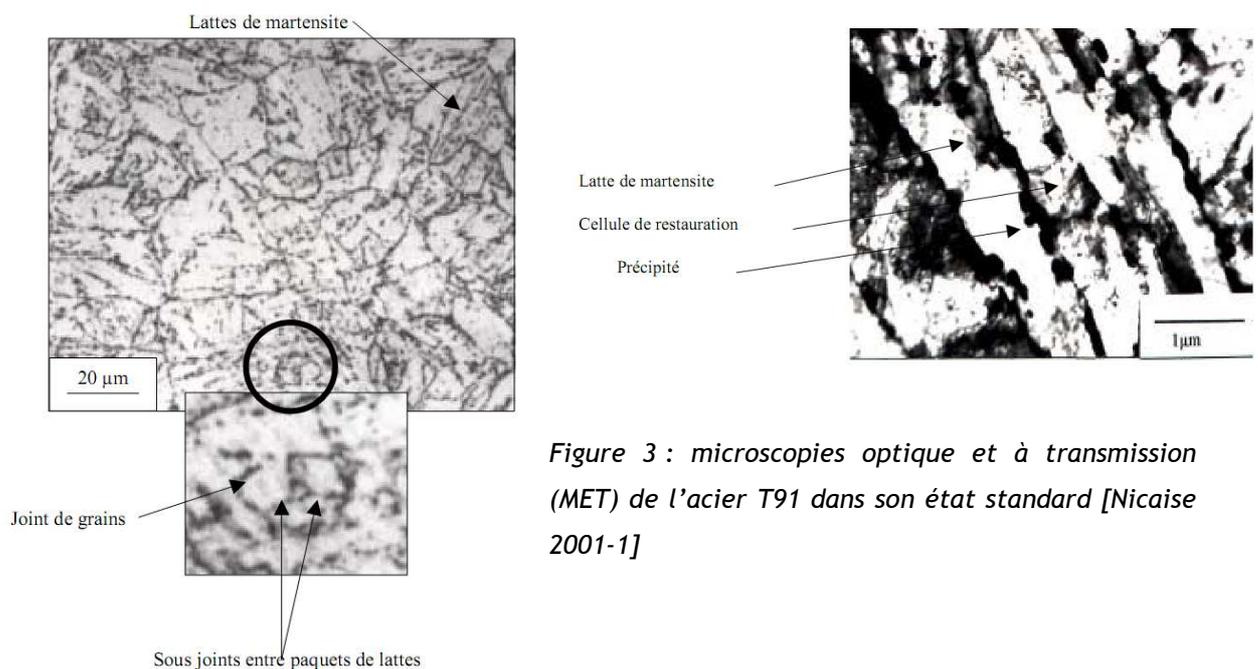


Figure 3 : microscopies optique et à transmission (MET) de l'acier T91 dans son état standard [Nicaise 2001-1]

La microscopie optique présentée en figure 3 montre que l'acier tel qu'élaboré dans son état standard par Creusot Loire Industries n'est pas affecté par un sens de laminage particulier. L'orientation des grains semble parfaitement équiaxe. Par ailleurs, une analyse de diffraction X (figure 4) révèle que la structure cristallographique est cubique centrée avec un paramètre de maille de 0,286 nm. Cette structure correspond à la phase ferritique du fer et ne présente donc aucune quadraticité.

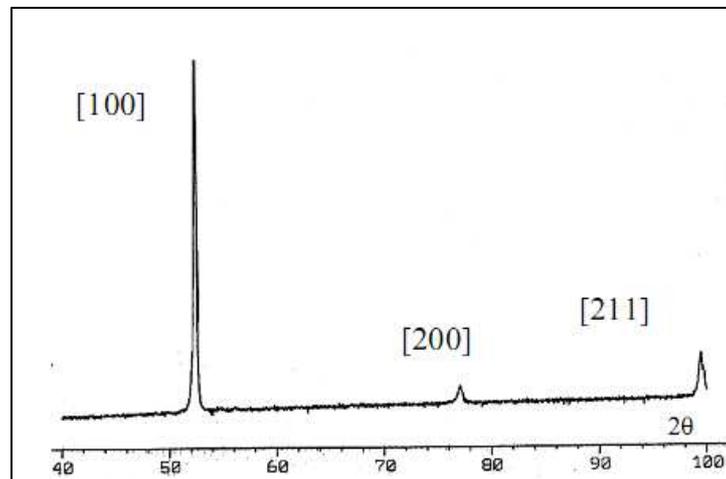


Figure 4 : cliché de diffraction X sur l'acier T91 dans son état standard (traitement thermique standard)

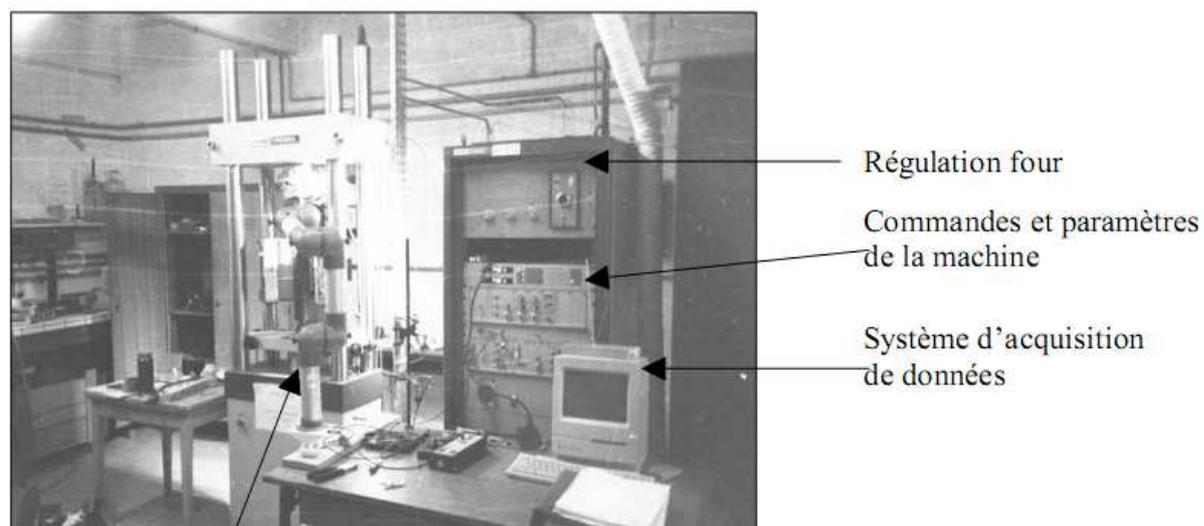
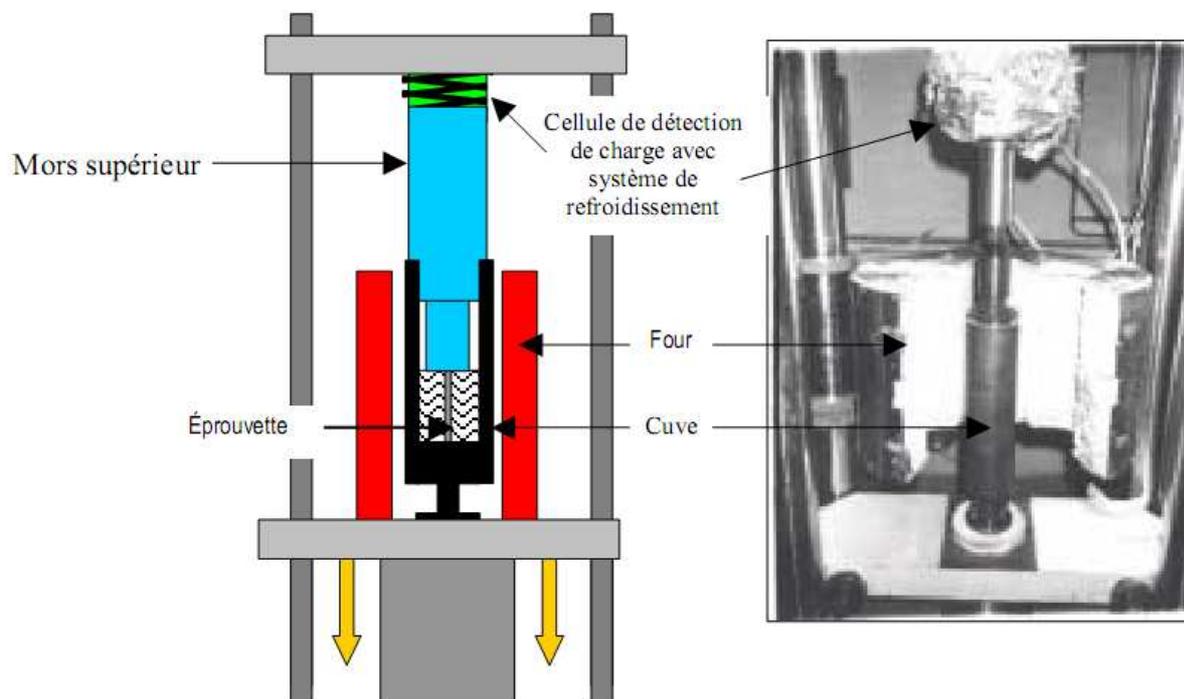
Les propriétés mécaniques de l'acier T91 peuvent donc être considérées comme globalement isotropes, en regard de la microstructure.

## 2.2 FRAGILISATION DU T91 PAR LE PLOMB LIQUIDE

### 2.2.1 DISPOSITIF EXPERIMENTAL MIS EN PLACE

Pour la thèse [Nicaise 2001-1], un dispositif inédit d'essais mécaniques en milieu métal liquide à chaud a été conçu et mis en place en 1999 par G. Nicaise et J.B. Vogt du Laboratoire de Métallurgie Physique et Génie des Matériaux de l'Université des Sciences et Technologies de Lille (UMR CNRS 8517).

Ce dispositif expérimental permet la réalisation d'essais de traction monotone en milieu métal liquide pour des températures allant jusqu'à 800°C (limitation de la puissance de la source de chaleur), sur une machine de traction uniaxiale Schenck de type RMC 100 à commande électro-mécanique, d'une capacité de chargement de 50 kN (figure 5). Les éprouvettes d'essais sont cylindriques, de 20 mm de longueur utile et 4 mm de diamètre, et leur surface est polie mécaniquement puis électrolytiquement.



Système d'extraction des vapeurs de métal liquide

Figure 5 : ensemble du dispositif expérimental mis en place pour l'étude de la fragilisation par les métaux liquides de l'acier T91 [Nicaise 2001-1]

## 2.2.2 PREMIERS ESSAIS REALISES SUR L'ACIER T91 STANDARD

On entend ici par « standard », l'acier T91 à son traitement thermique standard tel que présenté au §2.1.

Les premiers essais, à 350°C, ont consisté à fixer un déplacement de la traverse mobile de 0.12 mm/min pour obtenir une vitesse de déformation de  $10^{-4}\text{s}^{-1}$ . Les courbes conventionnelles contrainte-déformation sont obtenues en divisant la force mesurée (par la cellule de détection de charge) par la section initiale  $S_0$  de l'éprouvette supposée constante jusqu'à la fin de l'essai ( $S_0= 12.56 \text{ mm}^2$ ). La déformation s'obtient en divisant le déplacement de la traverse mobile par la longueur utile initiale (20 mm).

Les courbes contrainte-déformation présentées ici sont une image homothétique des courbes force-déplacement que l'on dérivera en loi de comportement pour la modélisation en éléments finis (la contrainte et la déformation lues sur les courbes n'ont plus de sens au-delà du début de striction, i.e. à l'atteinte de la contrainte maximale).

La figure 6 montre les résultats préliminaires obtenus en termes de comportement mécanique mais aussi en termes de sensibilité ou non de l'acier à la fragilisation par le plomb liquide. Le T91 présente à 350°C, et sous une vitesse de déformation de  $10^{-4}\text{s}^{-1}$ , une limite élastique  $\sigma_y$  de 400MPa, un module de d'élasticité E en traction de 20GPa, une charge maximale  $\sigma_m$  de 520MPa. Par ailleurs, aucun effet de fragilisation par la présence de plomb liquide n'est observé. Dans les deux cas, la rupture est ductile (figure 7).

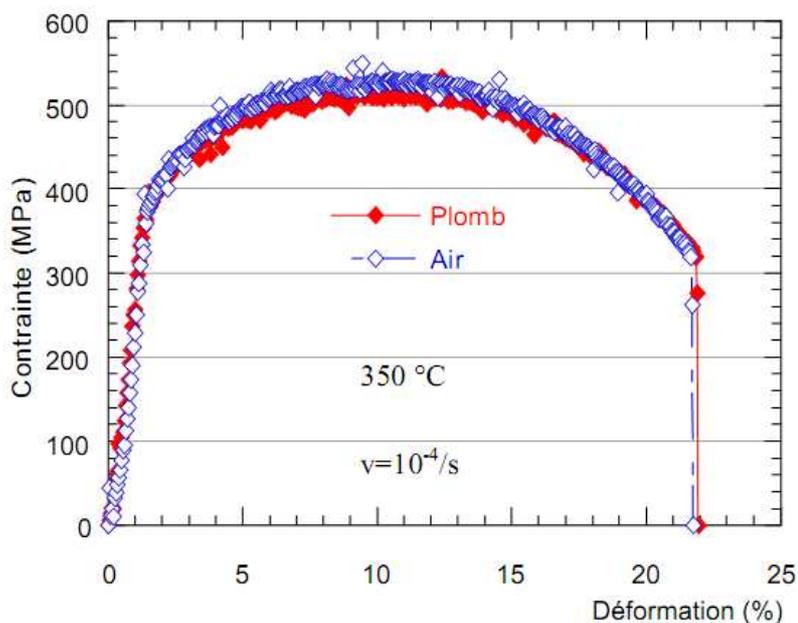


Figure 6 : comportements mécaniques à 350°C de l'acier T91 en air et en plomb liquide. ( $T=350^\circ\text{C}$ ,  $v=10^{-4}\text{s}^{-1}$ ) [Nicaise 2001-1]

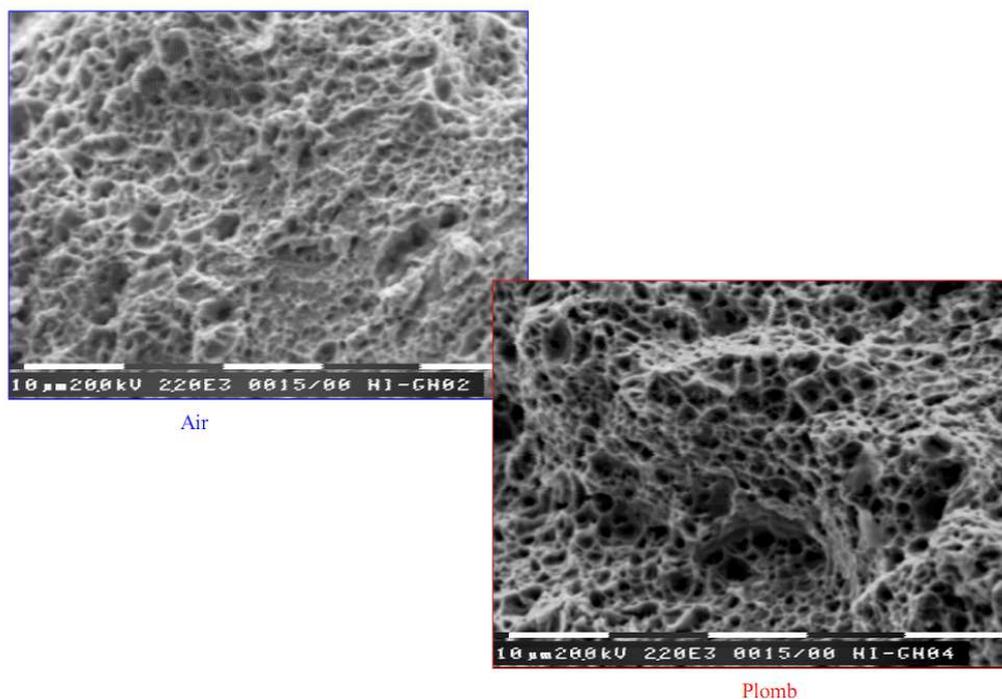


Figure 7 : Images MEB des faciès de rupture d'éprouvettes d'acier T91 standard testées à l'air et dans le plomb liquide ( $T=350^{\circ}\text{C}$ ,  $v=10^{-4}\text{s}^{-1}$ ) [Nicaise 2001-1]

### 2.2.2 MECANISME PHYSIQUE ENVISAGE ET STRATEGIE ADOPTEE POUR L'ISOLEMENT DES CONDITIONS DE FRAGILISATION

Au premier abord, l'essai précédent tend à montrer que les conditions expérimentales choisies ne sont pas propices à l'émergence d'un phénomène de fragilisation par le plomb liquide.

L'analyse des interactions chimiques possibles entre l'acier T91 et le plomb liquide s'est limitée en première approximation à l'observation du diagramme de phases fer-plomb (figure 8) sur lequel on constate qu'aucune interaction chimique de type dissolutive n'est à envisager. La solubilité mutuelle du fer solide et du plomb liquide est quasi-nulle et il n'y a pas de formation d'éventuels d'intermétalliques. Cette analyse a ainsi orienté les recherches vers l'isolement des conditions de fragilisation dans le cadre d'un mécanisme purement de surface, impliquant uniquement l'effet Rehbinder (réduction d'énergie de surface induite par adsorption).

Ce mécanisme a été proposé indépendamment par Stoloff et Johnson, et par Westwood et Kamdar dans les années 1960. Il est entièrement décrit dans [Stoloff 1982], et dénommé « modèle SJWK ».

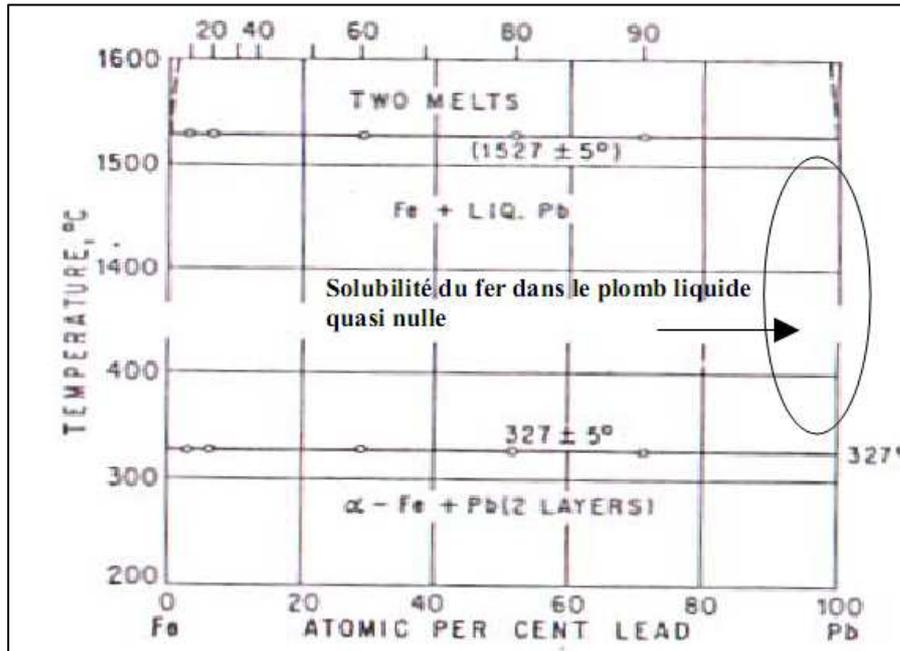


Figure 8 : diagramme de phases fer-plomb [BAPD 1990-1]

Le critère de Griffith pour la rupture fragile par clivage (séparation de deux plan atomiques liés) est donné par :

$$\sigma_c = 2 \sqrt{\frac{E \gamma_s}{\pi a}}$$

où  $\sigma_c$  est la contrainte de traction à appliquer pour la propagation d'une fissure par clivage (en mode ouverture),  $E$  le module de Young,  $\gamma_s$  l'énergie de surface, et  $a$  la longueur de fissure. Une réduction de l'énergie de surface entraîne alors une diminution de cette contrainte théorique de propagation. La formule précédente est obtenue à partir d'un bilan énergétique qui se base sur la conversion de l'énergie élastique emmagasinée dans le solide, déjà fissuré, en énergie de surface lors de la propagation de la fissure. Notons qu'un critère équivalent existe aussi pour le clivage en cisaillement en faisant intervenir le module d'élasticité en cisaillement et l'énergie de surface.

Stoloff et Johnson [Stoloff 1963] ont apporté une précision sur ce modèle en prenant en compte l'énergie dissipée par la plasticité développée au niveau du fond de fissure. En effet, pour établir son équation, Griffith a supposé que l'avancée de la fissure dans un matériau parfaitement élastique s'accompagne uniquement d'une relaxation d'énergie élastique, parfaitement compensée par le terme d'énergie de surface  $\gamma_s$ . Dans la réalité, pour les alliages métalliques par exemple, la plupart de l'énergie fournie pour faire avancer la fissure est dissipée par l'émission et le glissement de dislocations depuis le fond de fissure. Ce phénomène de plastification en fond de fissure provient de la démultiplication du champ de contrainte par rapport à celui des contraintes appliquées. Cette démultiplication  $K$  dépend de la profondeur  $a$  de la fissure et de son rayon de courbure  $\rho$  selon la relation :  $K=1+2(a/\rho)^{1/2}$ . Elle décroît sur une distance proche de  $\rho$  dans le cœur du matériau, à partir du fond de fissure. La limite d'élasticité peut alors être dépassée localement et entraîner l'émission et

la propagation de dislocations. La plastification en fond de fissure crée ainsi un frein à la propagation de la fissure en dissipant l'énergie fournie, essentiellement sous forme de chaleur (forces de friction de réseau au glissement des dislocations). Le critère de rupture fragile par clivage devient ainsi :

$$\sigma_c = 2\sqrt{\frac{E\gamma_f}{\pi a}}$$

où  $\gamma_f = \gamma_p + \gamma_s$ ,  $\gamma_p$  s'assimilant à l'énergie plastique dissipée par unité de surface au cours de la propagation. En général, pour les matériaux ductiles,  $\gamma_p$  est très grand devant  $\gamma_s$  mais il peut en dépendre de telle sorte qu'une variation de  $\gamma_s$  entraîne une modification sensible de  $\sigma_c$  ( $\gamma_p = 4200\gamma_s$  pour l'aluminium [Fernandes 1997]).

La stratégie pour isoler d'éventuelles conditions de fragilisation s'est donc basée sur le raisonnement suivant : la restriction des possibilités de dissipation d'énergie plastique  $\gamma_p$  via certains facteurs métallurgiques peut promouvoir l'émergence de la FML induite par adsorption pure. Pour le premier essai réalisé (figure 6), il est en effet possible que la plastification du matériau ait masqué une potentielle fragilisation car la limite élastique est plus faible que la contrainte théorique de clivage même localement diminuée par adsorption de ML. La première solution métallurgique choisie pour augmenter cette limite d'élasticité a été d'opter pour un traitement thermique de l'acier le durcissant au maximum, tout en conservant sa microstructure martensitique.

La figure 9 présente l'évolution de la dureté de l'acier T91 en fonction de la température de revenu (appliquée pendant une heure) après austénitisation (d'une heure à 1050°C) et trempe à l'air.

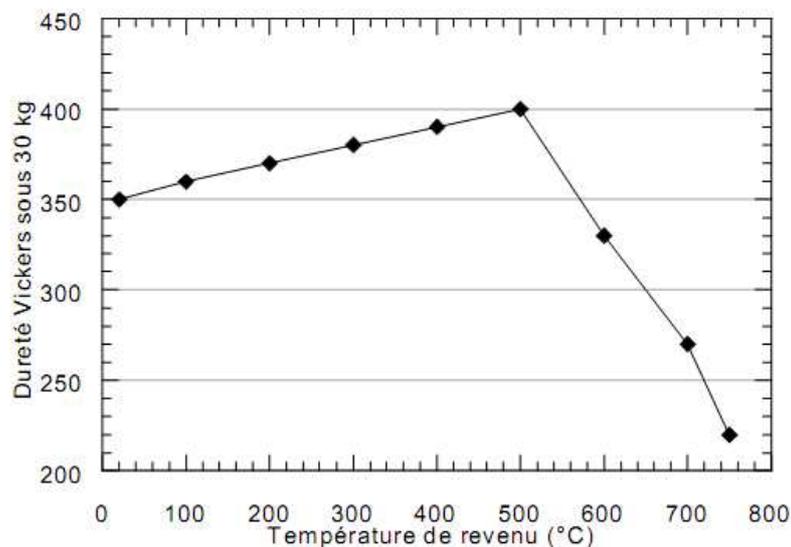


Figure 9 : Evolution de la dureté de l'acier T91 en fonction de la température de revenu (revenu d'une heure). L'austénitisation précédant cette phase a été réalisée à 1050°C pendant une heure [Nicaise 2001-1].

Le pic de dureté pour un revenu de 500°C concorde avec les observations recueillies dans [Speich 1969] sur les aciers martensitiques à 12% de chrome. Pour des températures de revenu en dessous de 500°C, l'augmentation de la dureté est attribuée à la formation de précipités (telle que décrite au §2.1) qui agissent comme des barrières au mouvement des dislocations et augmentent la résistance mécanique. Au delà de 500°C, ces précipités ont tendance à coalescer. La diminution de leur nombre entraîne ainsi une chute de la dureté. En outre, le grossissement des précipités favorise le réarrangement des dislocations en faisant ainsi fortement chuter leur densité, ce qui intensifie la baisse de dureté pour des revenus compris entre 500°C et 750°C.

L'évolution des caractéristiques mécaniques, suite au traitement thermique avec un revenu à 500°C, est clairement visible en figure 10, lors d'un essai de traction à 350°C. La limite d'élasticité en traction passe en effet de 400 MPa à 800 MPa et la résistance à la traction (contrainte maximale) passe de 520 MPa à 1300 MPa. Le domaine de plasticité est par ailleurs visiblement réduit.

Un spectre de diffraction X effectué sur un échantillon revenu à 500°C montre néanmoins qu'il n'y a eu aucun changement dans la structure cristallographique de l'acier qui reste cubique centré avec le même paramètre de maille [Nicaise 2001-1]. L'effet d'un revenu à 500°C est ainsi uniquement à attribuer à un changement microstructural où l'état de précipitation et l'arrangement des dislocations ont été modifiés. Notons qu'une telle variation de microstructure amène une variation de propriétés mécanique similaire à celle provoquée par le vieillissement ou les dommages d'irradiation, consistant en un durcissement par restriction de plasticité.

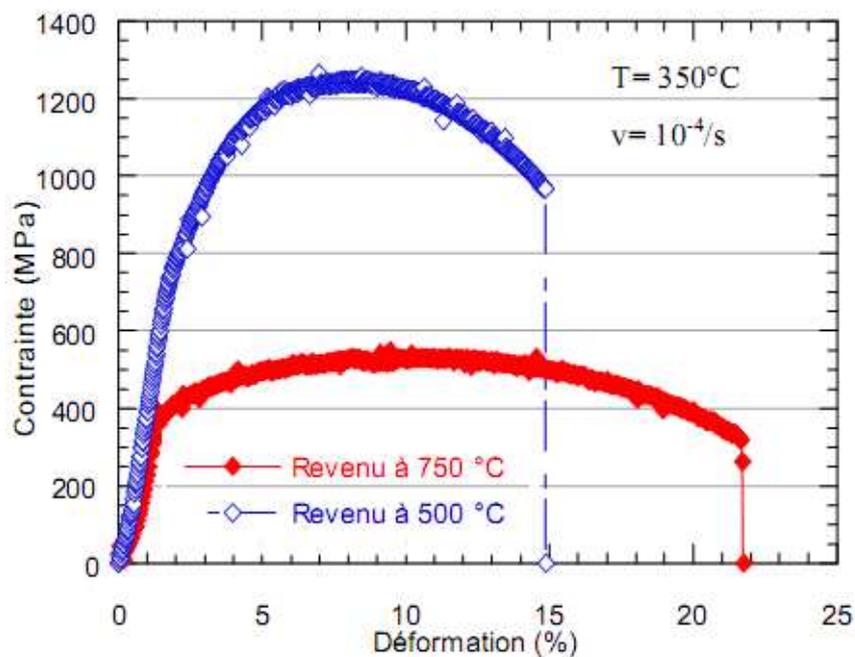


Figure 10 : Influence d'une température de revenu de 500°C sur les caractéristiques mécaniques de l'acier T91, testé en traction à 350°C sous une vitesse de déformation de  $10^{-4}s^{-1}$  [Nicaise 2001-1]

Dans la suite, on désignera les éprouvettes ayant subi ce traitement thermique durcissant par la dénomination TT1. La figure 11 montre que ce traitement thermique, et la restriction de plasticité qu'il engendre, n'amènent pas l'acier T91 à être sensible, dans ce nouvel état microstructural, à la fragilisation par le plomb liquide. En et hors plomb, les ruptures restent bien ductiles. On peut néanmoins constater en figure 12 que la profondeur des cupules est considérablement réduite par le traitement thermique TT1 (faciès de rupture à comparer avec ceux de la figure 7) ce qui souligne une fois de plus la restriction de plasticité induite.

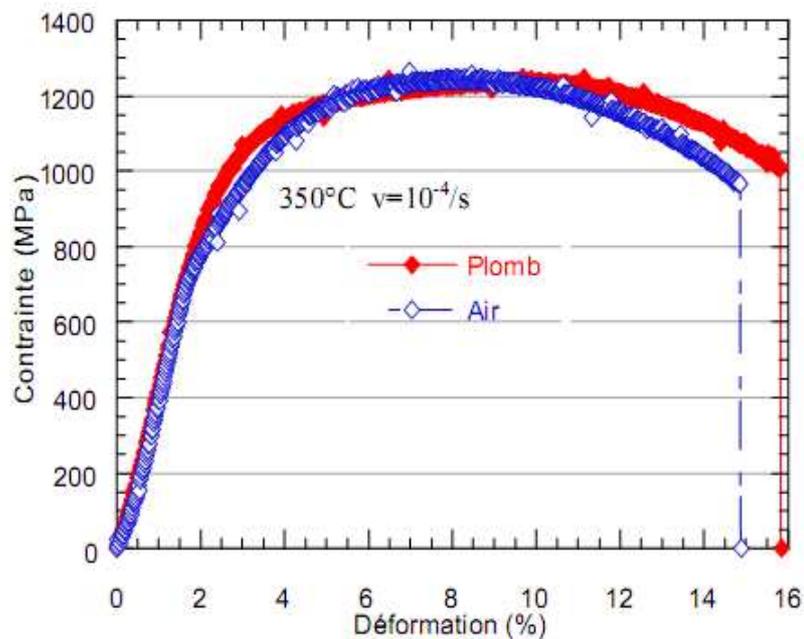


Figure 11 : Réponse mécanique des éprouvettes de type TT1 en présence ou non de plomb liquide à 350 °C [Nicaise 2001-1]

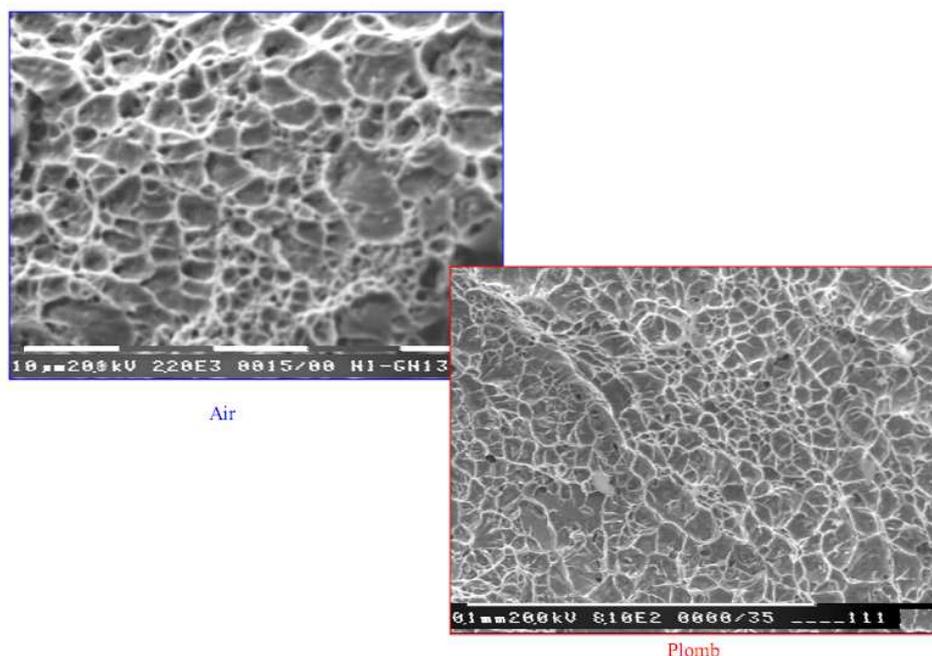


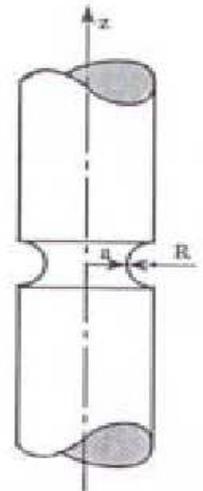
Figure 12 : Images MEB des faciès de rupture des éprouvettes TT1 testées à l'air et dans le plomb liquide à 350 °C [Nicaise 2001-1]

Une deuxième solution, mécanique cette fois-ci, a été employée pour augmenter localement la limite d'élasticité : utiliser l'effet de triaxialité des contraintes en entaillant les éprouvettes de traction. Les calculs de Bridgman [Bridgman 1944] montrent que la charge limite est très supérieure à ce qu'elle serait à section utile égale en l'absence d'entaille. En effet, un cylindre de matière dans la section entaillée, s'il était isolé, s'allongerait selon son axe et se contracterait selon son diamètre de façon à conserver son volume constant, dans le domaine élastique. Inclus dans l'entaille, entre les deux parties non entaillées qui demeurent dans le domaine élastique et ne se déforment pratiquement pas, il ne peut se déformer sans faire apparaître des contraintes radiales de tension. Ce phénomène est couramment dénommé par la « triaxialité de contraintes »\*.

En considérant une entaille de rayon de courbure  $R$  et une section modifiée de rayon  $a$ , Bridgman montre ainsi que, pour  $r$  compris entre 0 et  $a$  (en coordonnées cylindriques) :

$$\sigma_{rr} = \sigma_{\theta\theta} = \bar{\sigma} \ln\left(1 + \frac{a^2 - r^2}{2aR}\right)$$

$$\sigma_{zz} = \bar{\sigma} \left[ 1 + \ln\left(1 + \frac{a^2 - r^2}{2aR}\right) \right]$$



où  $\bar{\sigma}$  est la contrainte qui serait produite sur une éprouvette lisse ayant une section de rayon  $a$ ,  $\sigma_{rr}$  et  $\sigma_{\theta\theta}$  sont les contraintes radiales générées par l'effet de triaxialité et  $\sigma_{zz}$  la contrainte axiale.

Une expression de la contrainte axiale moyenne, qui est celle mesurée lors de l'essai de traction en découle alors directement:

$$\bar{\sigma}_{zz} = \bar{\sigma} \left( 1 + \frac{2R}{a} \right) \ln\left( 1 + \frac{a}{2R} \right)$$

Pour une entaille de 200  $\mu\text{m}$  de rayon de courbure et de 500  $\mu\text{m}$  de profondeur, la limite d'élasticité en traction serait ainsi multipliée par 1.97. Des éprouvettes de l'acier standard ont ainsi été entaillées en utilisant ces derniers paramètres afin de doubler la limite d'élasticité accessible en traction (figure 13).

\* En considérant un tenseur de contraintes  $\Sigma$  de composantes  $\sigma_{ij}$ , de valeurs principales  $\sigma_i$ , le critère de limite d'élasticité de Tresca ou du cisaillement maximal implique que :  $\text{Sup}_i(\sigma_i) - \text{Inf}_j(\sigma_j) = 2\tau_c$  où  $\tau_c$  est la limite d'élasticité en cisaillement.  $\text{Sup}_i(\sigma_i)$  s'apparente évidemment à la contrainte axiale lors d'un essai de traction et l'effet de triaxialité de contraintes implique alors une augmentation de  $\text{Inf}_j(\sigma_j)$ . Pour respecter le critère de Tresca, la rentrée dans le domaine plastique s'accompagne ainsi d'une augmentation de  $\text{Sup}(\sigma_i)$ . Ce raisonnement est directement applicable à la limite d'élasticité en traction, i.e. pour  $\text{Sup}(\sigma_i) = \sigma_y$ .

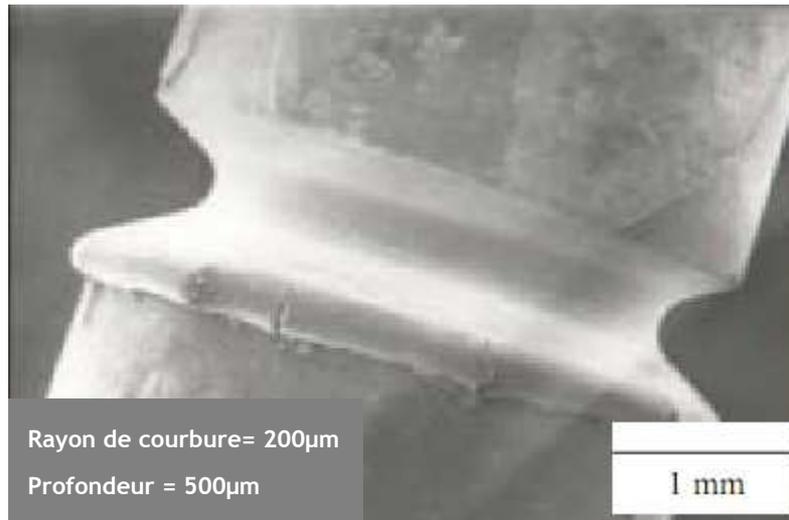


Figure 13 : entaille réalisée (au tour) sur les éprouvettes de traction [Nicaise 2001-1]

La figure 14 montre la répercussion de ce type d'entaille sur le comportement mécanique de l'acier soumis au traitement thermique standard. La représentation contrainte-déformation a peu de sens pour une éprouvette entaillée. La contrainte appliquée n'est en effet plus uniaxiale et la déformation est quasi entièrement localisée dans la section entaillée. Ainsi, une représentation  $(\sigma, \epsilon)$  où la déformation conventionnelle serait calculée par le rapport de l'allongement sur la longueur initiale de l'éprouvette (20 mm) n'est plus adaptée (dans le cas des éprouvette entaillées considérées ici, la longueur utile peut être estimée à 1mm max ce qui conduit à multiplier par 20 la déformation lue sur en figure 14 pour l'éprouvette entaillée). Néanmoins, dans l'optique d'une simple comparaison en contrainte de la réponse mécanique macroscopique de ce type d'éprouvette avec les éprouvettes lisses, cette représentation est conservée. La contrainte est calculée en divisant la force appliquée par la section entaillée. Les informations principales qui nous intéressent ici sont en effet l'évolution de la limite élastique et de la contrainte à rupture. La limite d'élasticité en traction passe de 400 MPa à 700 MPa comme suggéré par le calcul de Bridgman (ici le rapport des limites d'élasticité vaut 1.75).

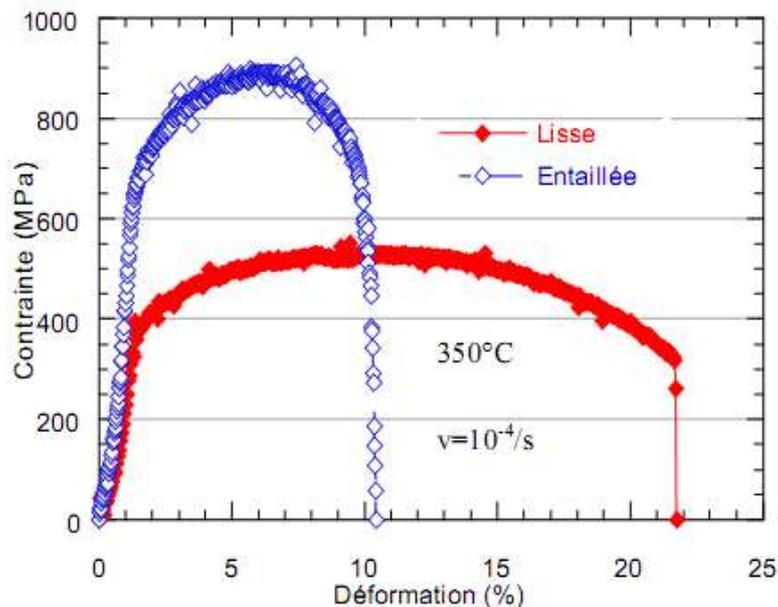


Figure 14 : Influence de l'effet d'entaille sur les caractéristiques mécaniques T91 au traitement thermique standard. Essai réalisé à 350 °C [Nicaise 2001-1]

La figure 15 montre que, pour ce type d'éprouvettes entaillées, au traitement thermique standard, aucun effet de fragilisation par le plomb liquide n'est observé. Les ruptures en air ou en plomb sont ductiles et les faciès de rupture ont les mêmes caractéristiques (figure 16).

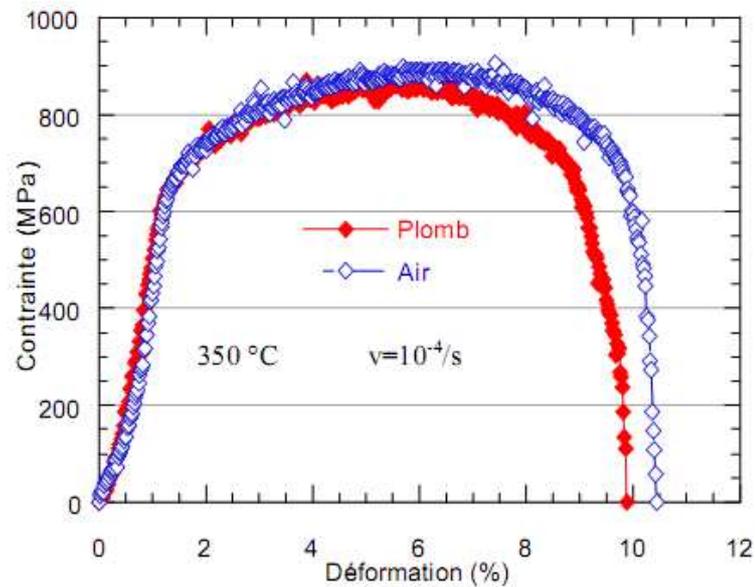


Figure 15 : réponse mécanique des éprouvettes entaillées au traitement thermique standard en et hors plomb liquide, à 350 °C [Nicaise 2001-1]

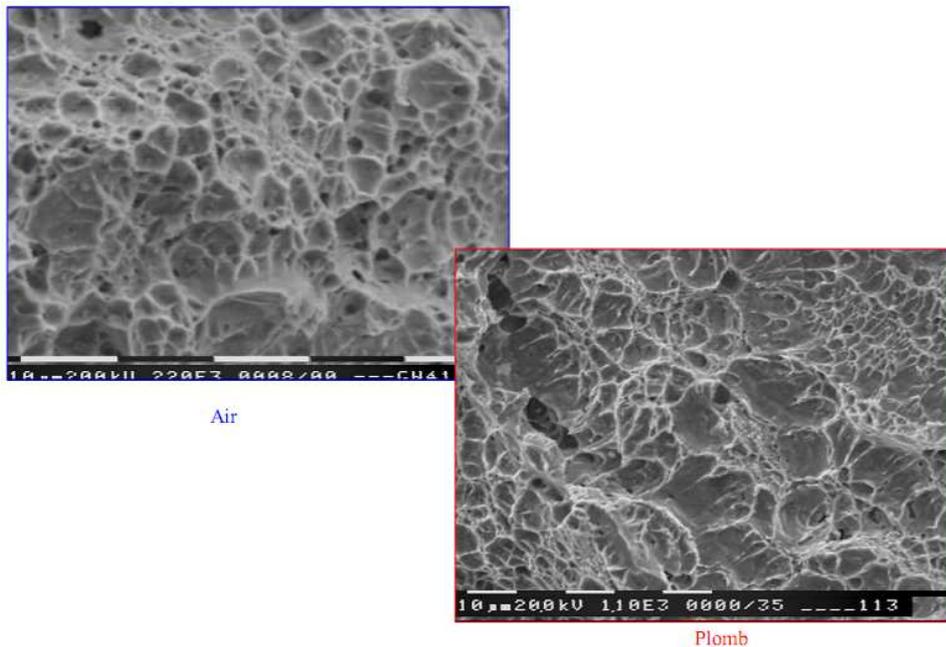


Figure 16 : faciès de rupture des éprouvettes entaillées, en et hors plomb liquide [Nicaise 2001-1]

Remarque (essentielle pour la suite) :

Plusieurs techniques sont possibles pour entailler une éprouvette. Les deux principales sont l'électroérosion et l'usinage au tour à l'aide d'un outil pointu. Ces deux méthodes introduisent en surface du matériau des défauts qui peuvent constituer des sites de concentration de contraintes. Le choix de la méthode s'est orienté vers l'usinage, supposé écrouir fortement le matériau sur une certaine profondeur à partir de la surface de l'éprouvette. Cette couche écrouie devant être bien plus fragile que le cœur du matériau, il est fort probable qu'elle se fissure au cours de l'essai de traction, permettant ainsi une concentration locale de la contrainte afin d'éventuellement atteindre la contrainte théorique de clivage abaissée par l'adsorption de métal liquide. L'électroérosion induit également une microfissuration en surface lors de la réalisation de l'entaille. Il y a néanmoins un risque que le métal liquide ne puisse pas s'adsorber sur l'acier du fait d'un dépôt de couche d'oxyde au fond de ces microfissures. L'avantage de l'usinage, technique plus rapide et plus accessible, est que la microfissuration de la surface de l'éprouvette va se produire in situ au cours de l'essai dans le métal liquide, créant ainsi des surfaces fraîches dépourvues d'oxyde et où le métal liquide est susceptible de s'adsorber.

La figure 17 montre qu'une couche d'une dizaine de microns d'épaisseur en surface de l'éprouvette entaillée a un aspect et un comportement mécanique différents de ceux du cœur. La fissuration de cette couche et son aspect écaillé sont très probablement révélateurs d'une fragilité intrinsèque. Notons que cette couche présente exactement le même aspect de fissuration pour un essai dans l'air ou dans le plomb. Il est donc exclu que sa fissuration provienne d'un quelconque effet du métal liquide seul. Par ailleurs, la figure 16 montre que la fissuration de cette couche ne déclenche pas la propagation d'une rupture fragile de l'éprouvette. Nous allons voir par la suite que cette microfissuration in situ en essai de traction est d'une importance capitale dans l'émergence du phénomène de fragilisation par les métaux liquides par adsorption de surface.

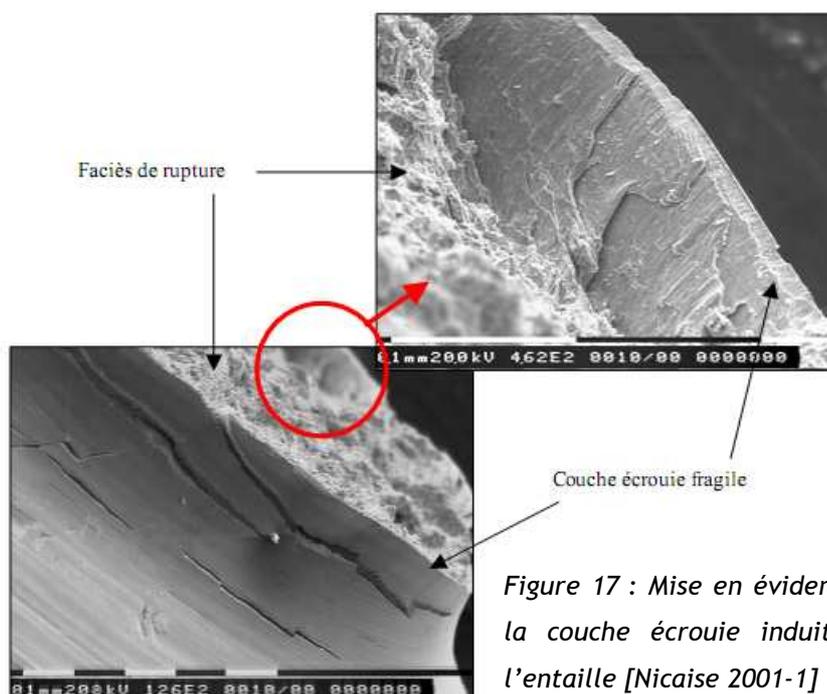


Figure 17 : Mise en évidence de la fragilité de la couche écrouie induite par l'usinage de l'entaille [Nicaise 2001-1]

Les deux précédentes solutions métallurgiques/mécaniques pour augmenter la limite d'élasticité en traction, tout en conservant une rupture ductile, n'ont pas permis de dégager une quelconque influence de la présence de plomb liquide sur le comportement mécanique de l'acier T91.

Il restait donc une dernière solution, consistant à combiner l'effet d'entaille et le traitement thermique durcissant TT1.

La figure 18 montre le comportement mécanique d'une éprouvette entaillée (même caractéristiques d'entaille que précédemment, à savoir 200 $\mu$ m de rayon de courbure et 500 $\mu$ m de profondeur) ayant subi le traitement thermique TT1 (l'entaille est réalisée après le traitement thermique). L'augmentation de la limite d'élasticité en traction est ici considérable puisqu'elle atteint près de 1800 MPa.

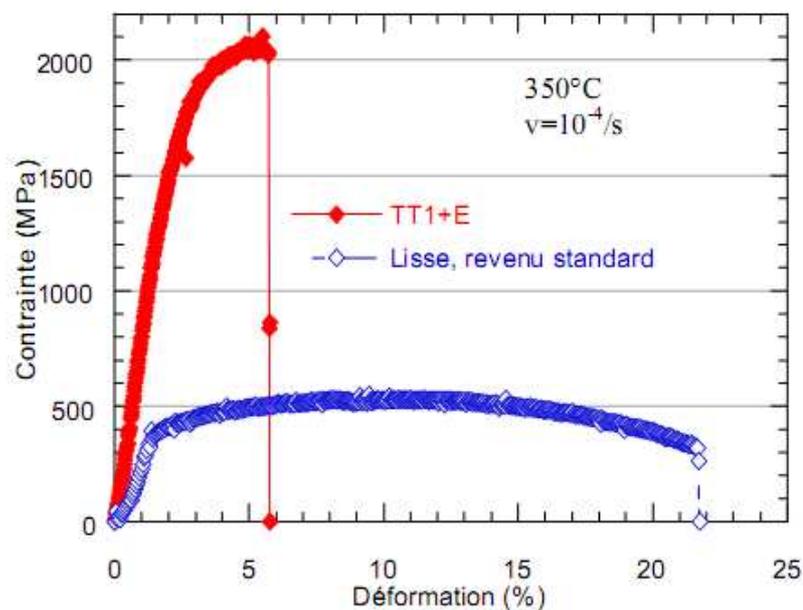


Figure 18 : Influence de la combinaison d'un revenu à 500 °C et d'une entaille sur les caractéristiques mécaniques du T91 testé à l'air, à 350°C [Nicaise 2001-1]

Malgré ces conditions de plasticité fortement confinée, les éprouvettes de type TT1 entaillées testées à l'air à 350°C restent ductiles comme le montre la figure 19. On observe également comme précédemment la fissuration de surface induite par la fragilité de la couche écrouie liée à la réalisation de l'entaille, fissuration qui ne déclenche pas de propagation de rupture dans le cœur du matériau.

### Faciès de rupture

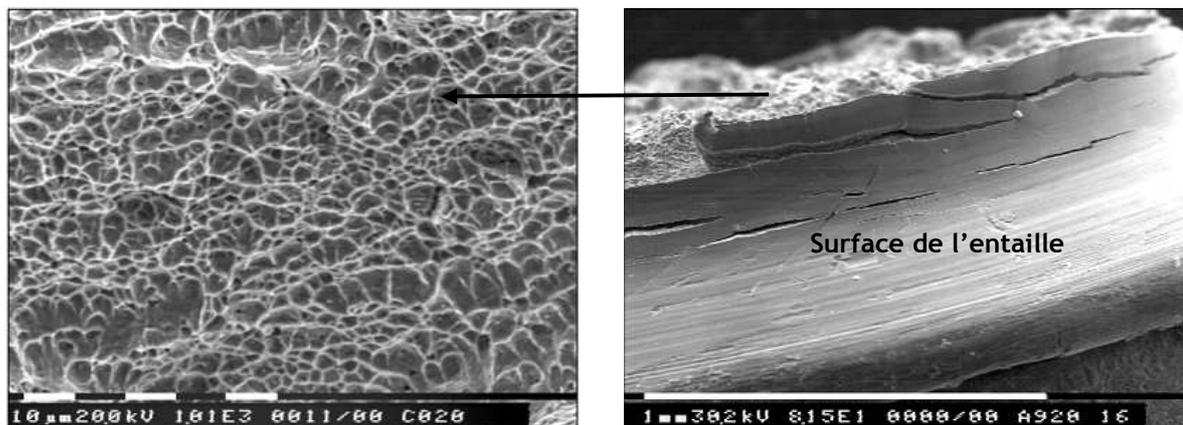


Figure 19 : rupture ductile sur les éprouvettes TT1 entaillées, testées en traction à 350 °C à l'air [Nicaise 2001-1]

En présence de plomb liquide à 350 °C, ces éprouvettes présentent un allongement et une contrainte à rupture réduits de plus de 50 % par rapport à celles testées à l'air (figure 20) et semblent avoir perdu toute plasticité (rupture dans le domaine élastique). C'est ce que confirme le faciès de rupture (figure 21), totalement fragile, sans aucune cupule et révélateur d'une rupture transgranulaire (clivage).

La fragilisation du T91 par le plomb liquide est démontrée, et le mécanisme d'une adsorption permettant d'atteindre une contrainte théorique de clivage abaissée par seule adsorption semble se confirmer. Les éprouvettes ont rompu de façon transgranulaire.

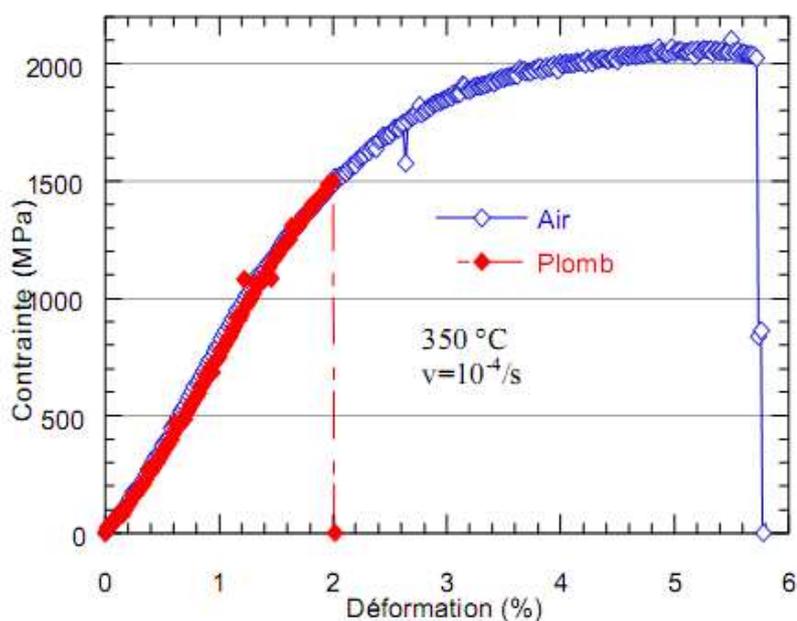


Figure 20: fragilisation des éprouvettes TT1 entaillées par le plomb liquide à 350 °C [Nicaise 2001-1]

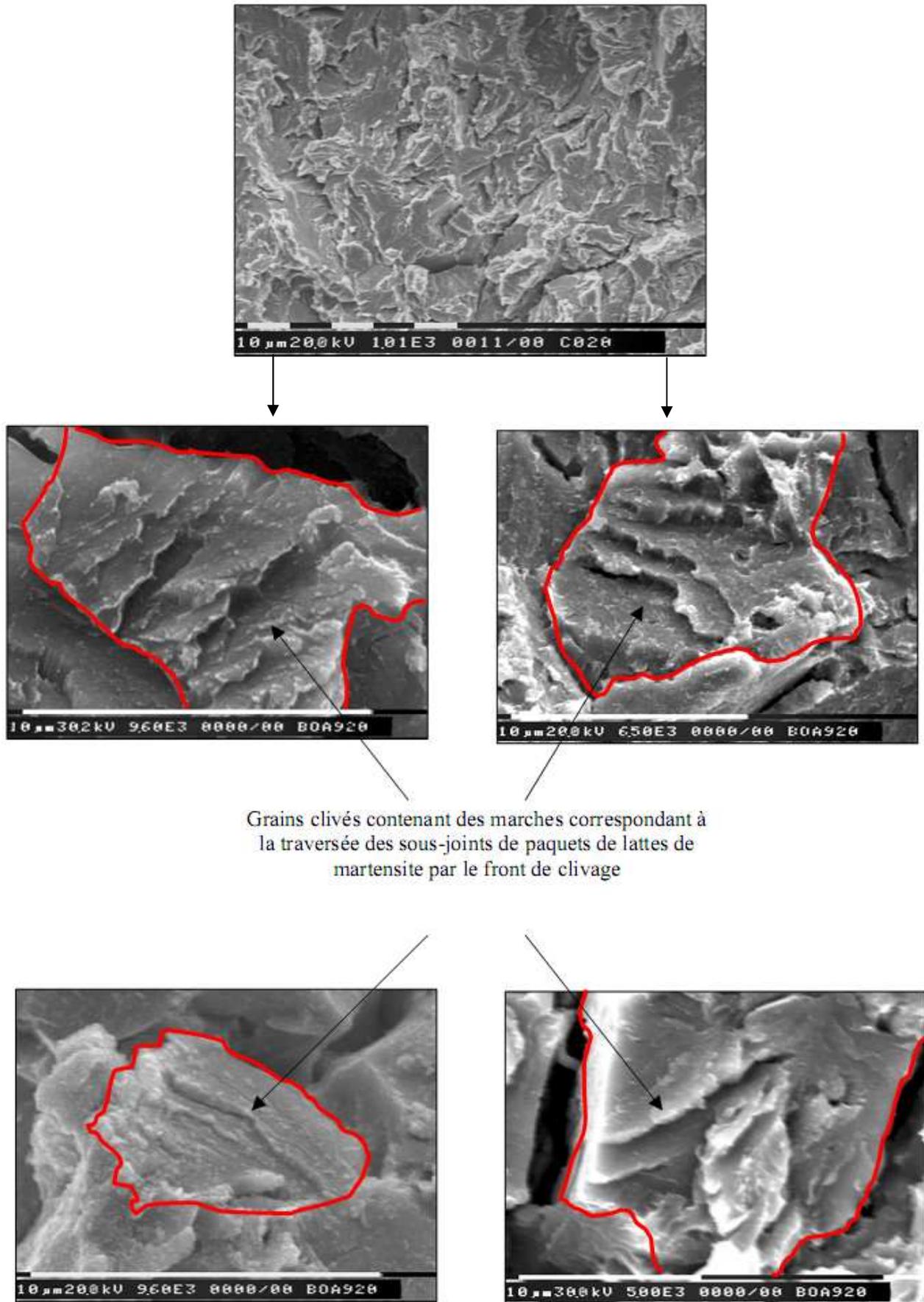


Figure 21: faciès de rupture par clivage obtenus sur l'acier T91 en milieu plomb liquide à 350°C [Nicaise 2001-1]

## 2.3 CARACTERISATIONS DU PHENOMENE

### 2.3.1 VARIATION DE L'ENERGIE DE RUPTURE

L'intégration du produit force-déplacement enregistré en cours d'essai permet de calculer l'énergie extérieure fournie à l'éprouvette jusqu'à rupture complète. Sur les éprouvettes entaillées au traitement thermique TT1, l'éprouvette rompue dans le plomb liquide à 350°C présente une réduction d'énergie de rupture de 83% par rapport à l'essai mené en air (figure 22).

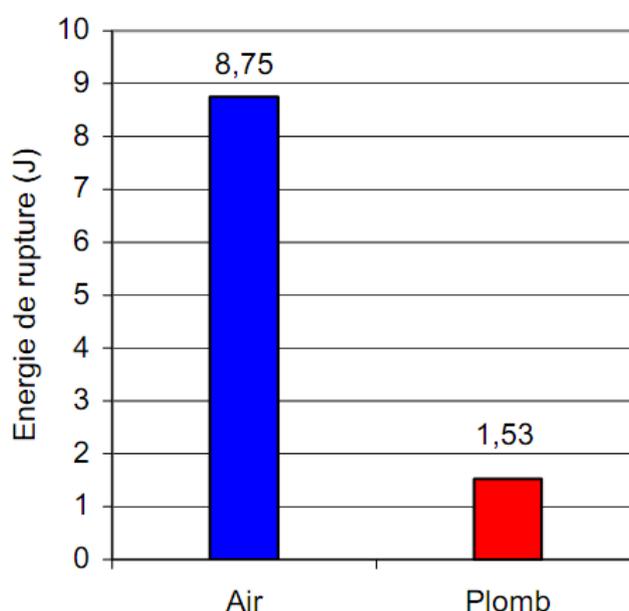


Figure 22 : variation d'énergie de rupture relative à la fragilisation par le plomb liquide sur les éprouvettes entaillées au traitement thermique TT1 ( $T=350^{\circ}\text{C}$ ,  $v=10^{-4}\text{ s}^{-1}$ ) [Nicaise 2001-1]

### 2.3.2 NATURE DU METAL LIQUIDE ET FRAGILISATION PAR L'EUTECTIQUE PLOMB-BISMUTH

Les futurs réacteurs de type ADS sont conçus pour employer le plomb liquide ( $T_f=327^{\circ}\text{C}$ ) comme caloporteur et cible de spallation ou l'eutectique plomb-bismuth ( $\text{Pb}_{0.437}\text{-Bi}_{0.563}$ ,  $T_f=126^{\circ}\text{C}$ ). Les éprouvettes entaillées au traitement thermique TT1 ont donc été testées dans l'eutectique Pb-Bi. La température d'essai choisie a été de  $260^{\circ}\text{C}$  pour s'assurer d'une ductilité appréciable en milieu air et pouvoir correctement mettre en évidence la fragilisation (voir la courbe de transition ductile fragile

des éprouvettes entaillées au traitement thermique TT1 en Annexe). Les résultats sont présentés en figure 23. La fragilisation est comparable à celle obtenue dans le plomb à 350°C.

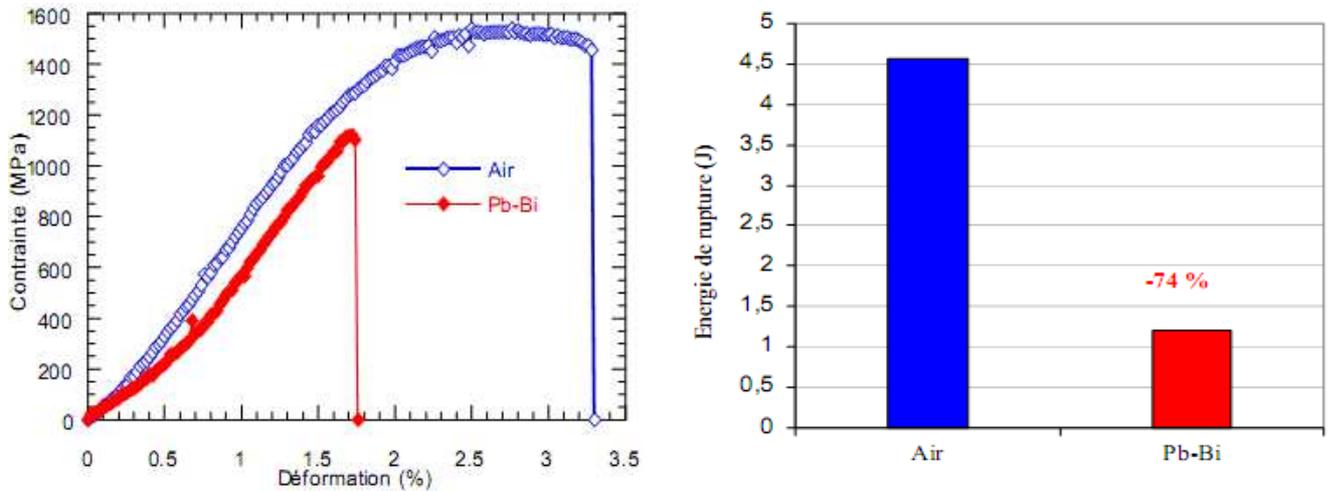


Figure 23 : mise en évidence de la fragilisation par l'eutectique Pb-Bi à 260°C des éprouvettes entaillées au traitement thermique TT1 ( $v=10^{-4}s^{-1}$ ) [Nicaise 2001-1]

### 2.3.3 COMPETITION FRAGILITE/PLASTICITE ET RECOUVREMENT DE DUCTILITE

Les éprouvettes entaillées au traitement thermique TT1, où le phénomène de fragilisation a été isolé à 350°C ont été testées à des températures supérieures pour observer la compétition entre le clivage initié depuis la surface (ici le fond d'une microfissure de la couche écrouie) et le développement de la plasticité à cœur. Une augmentation de température doit favoriser la plasticité, et le retour à une ductilité équivalente entre l'essai en air et l'essai en plomb est observé à partir de 450°C (figure 24).

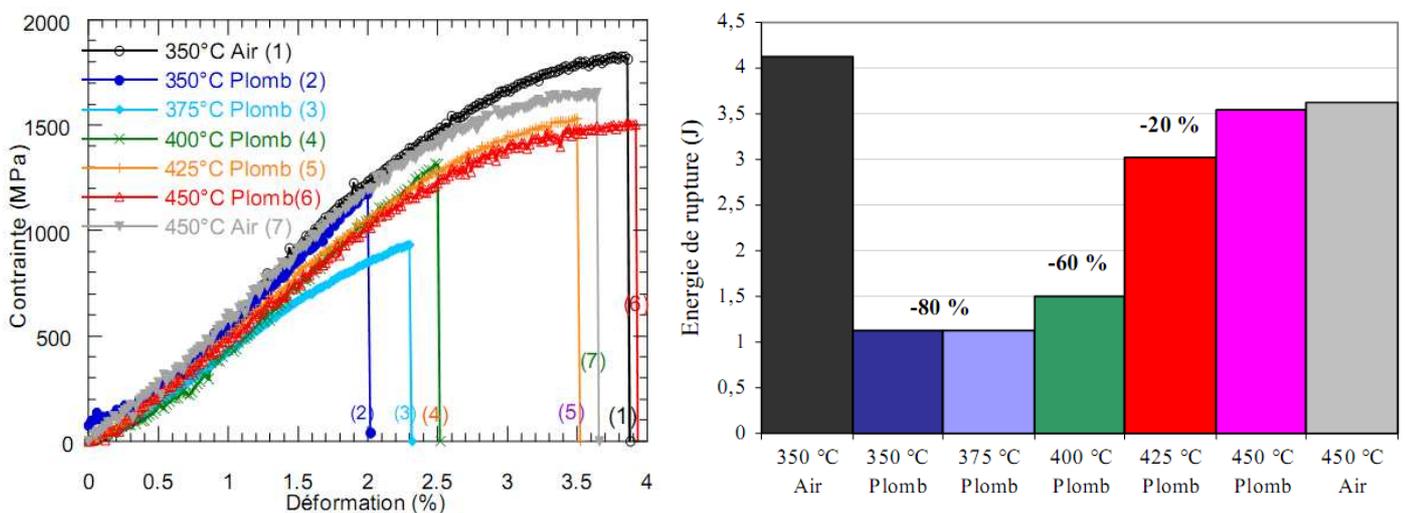


Figure 24 : retour en ductilité des éprouvettes entaillées au traitement thermique TT1 entre 350°C et 450°C [Nicaise 2001-1]

L'observation des faciès de rupture des éprouvettes rompues en plomb liquide entre 350°C et 450°C est d'un grand intérêt concernant l'interprétation mécaniste de la fragilisation par le plomb (figure 24).

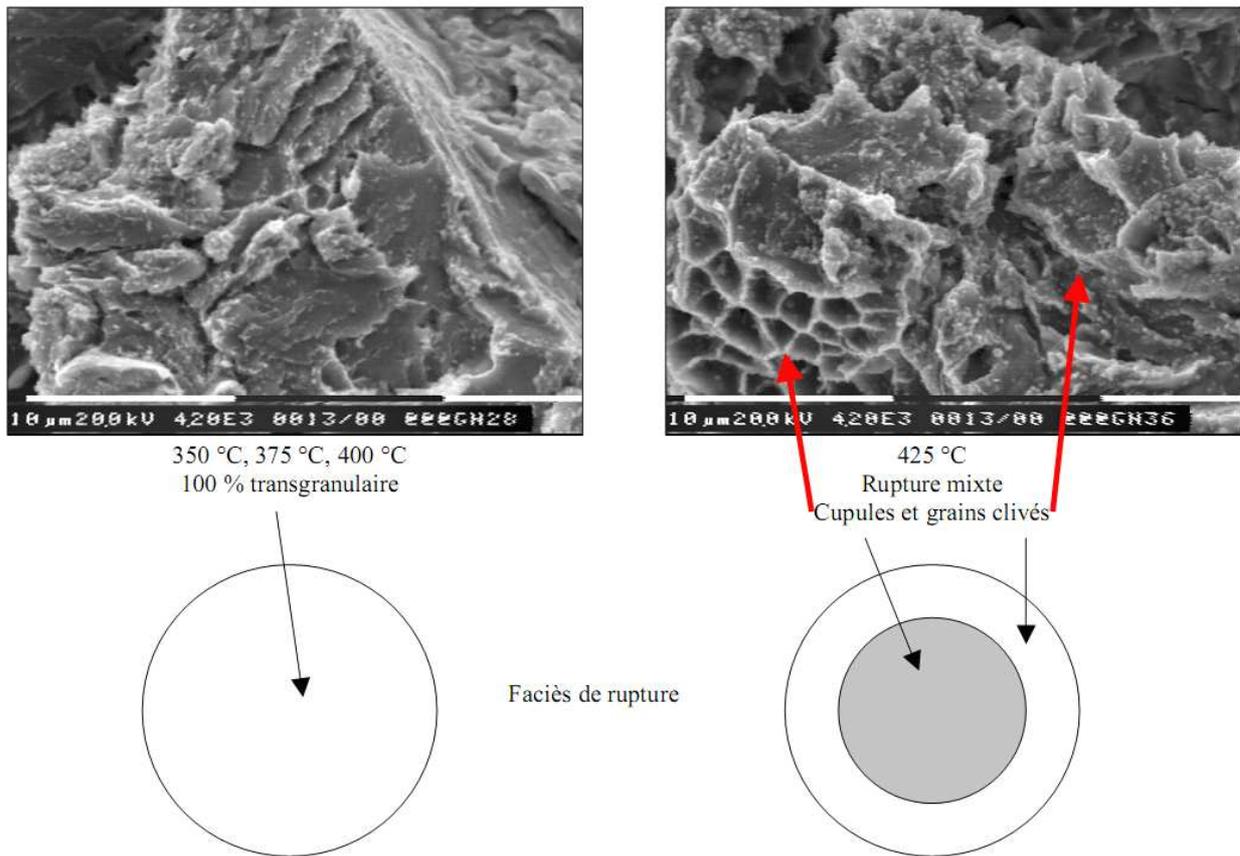


Figure 25 : faciès de rupture des éprouvettes entaillées au traitement thermique TT1 rompues dans le plomb liquide entre 350°C et 450°C. A 425°C, faciès mixte, ductile à cœur et fragile en périphérie (à 450°C, rupture parfaitement ductile en plomb liquide) [Nicaise 2001-1]

Ce recouvrement de ductilité avec la température d'essai, conforme à l'idée d'une compétition entre plasticité à cœur et propension à la fragilité initiée depuis la surface, se confirme également en faisant varier non plus la température d'essai mais la température de revenu de l'acier en parcourant la gamme 500°C-750°C, c'est-à-dire en faisant évoluer la dureté de l'acier vers des valeurs plus faibles (se reporter à la figure 9). L'augmentation de la température de revenu favorise le développement de la plasticité du T91, ce qui devrait influencer sur la fragilisation par le plomb. Cet effet est manifeste (figure 26, 27) lors de tests menés en fragilisant par l'eutectique Pb-Bi, à 260°C.

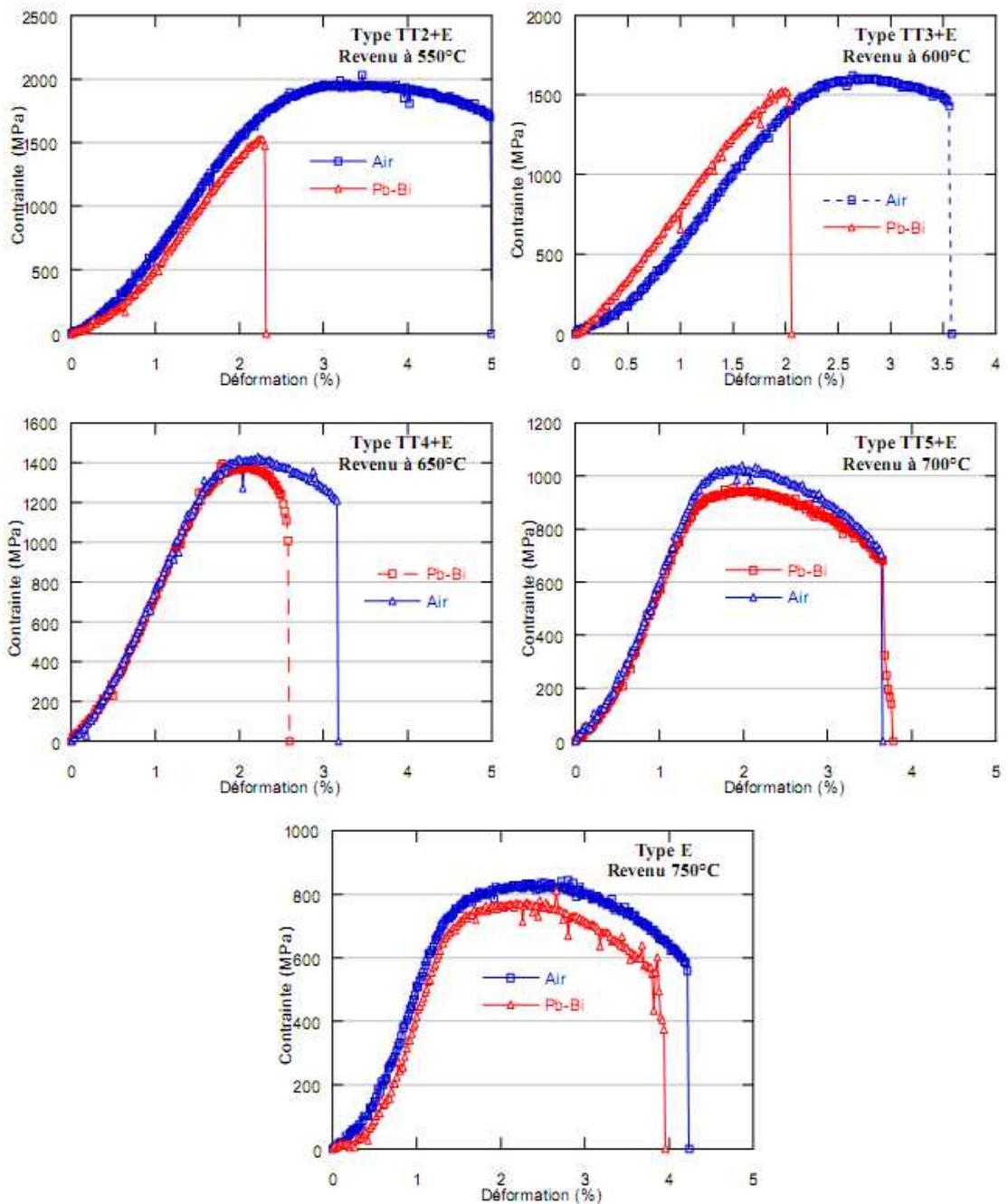


Figure 26 : courbes de tractions obtenues sur des éprouvettes entaillées à diverses températures de revenu. Mise en évidence du recouvrement de ductilité en fonction de la température de revenu du T91 [Nicaise 2001-1].

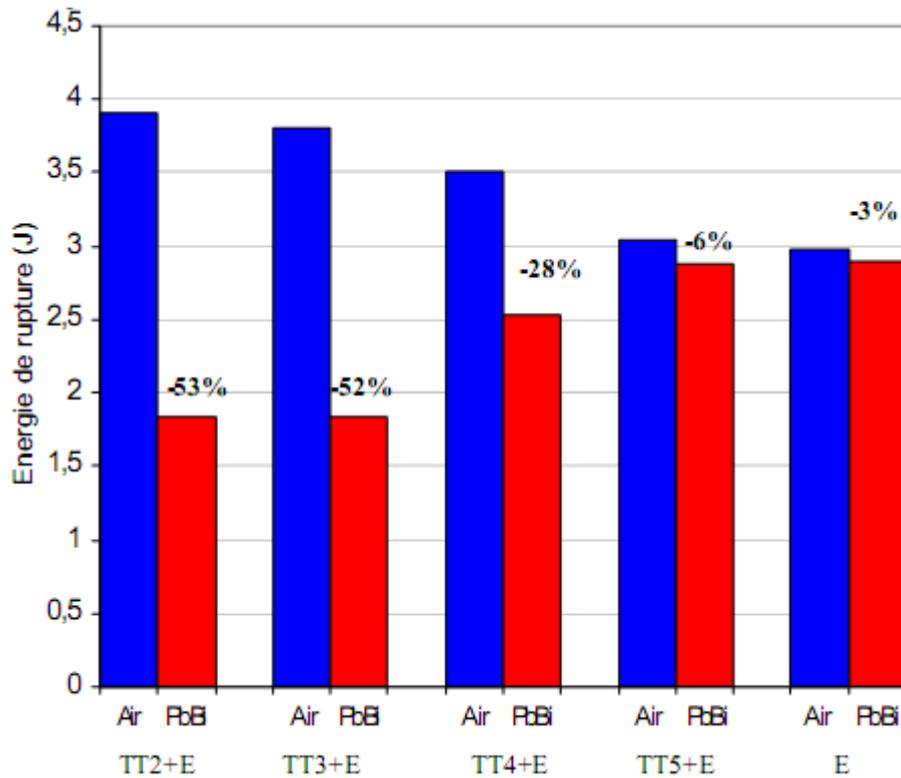


Figure 27 : énergies de rupture relatives aux courbes de la figure 25 [Nicaise 2001-1]

Comme pour le recouvrement de ductilité occasionné par l'augmentation de la température d'essai, les faciès de rupture présentent ici un caractère mixte avec un cœur ductile entouré d'une couronne fragile (figure 28).

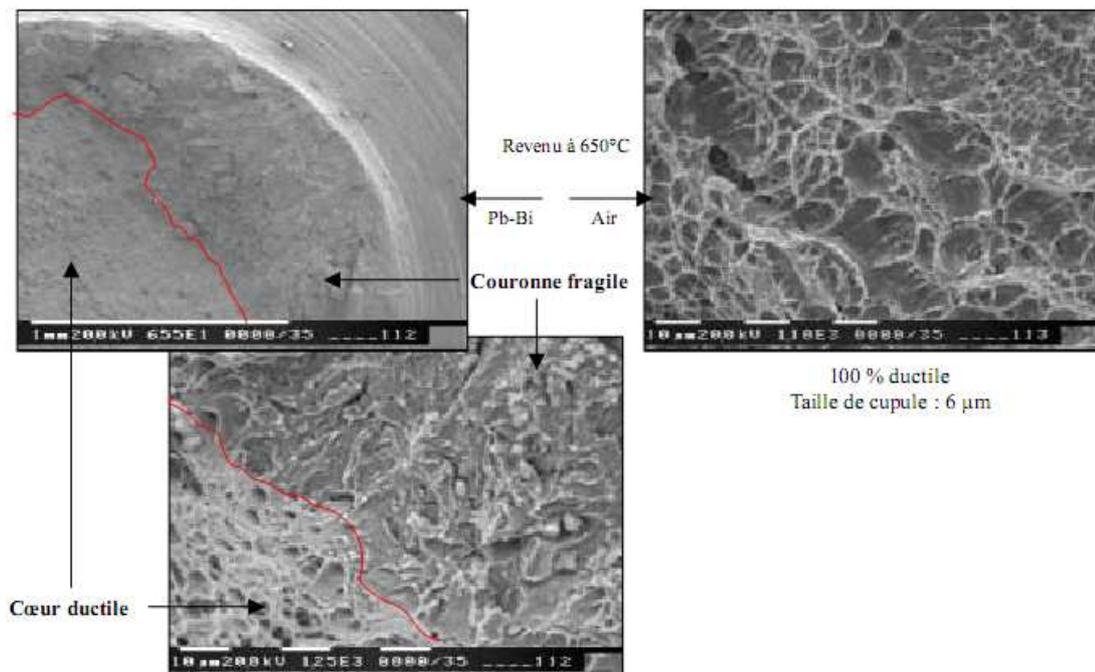


Figure 28 : faciès mixte obtenu sur une éprouvette entaillée revenue à 650°C testée en Pb-Bi à 260°C ( $v=10^{-4}s^{-1}$ )

### 2.3.4 CARACTERE NON-DIFFUSIONNEL DU MECANISME PHYSIQUE DE FRAGILISATION : LA PREUVE PAR L'EXPERIENCE

L'essai présenté ici est d'une importance théorique fondamentale quant au mécanisme physique de la fragilisation par les métaux liquides.

Jusqu'à présent, toujours dans l'idée d'une notion de spécificité de la fragilisation par les ML, où seuls certains couples MS/ML seraient sensibles à la fragilisation suivant leurs interactions chimiques (l'idée étant que seuls les couples présentant une solubilité mutuelle peuvent provoquer la fragilisation-ce que l'ensemble des résultats présentés ici infirme), le caractère non-diffusionnel du mécanisme physique de fragilisation par effet Rehbinder n'avait pas clairement été mis en évidence.

Les résultats précédents, obtenus sur un système ne présentant aucune solubilité mutuelle, laissent à penser que le mécanisme physique ne tient qu'en une adsorption de ML en surface, sans aucune diffusion volumique du ML dans le MS, ne serait-ce que sur quelques rangées atomiques.

Ayant obtenu le conditionnement métallurgique et mécanique du T91 nécessaire à l'apparition de la fragilisation par le plomb et l'eutectique plomb-bismuth, l'idée a alors été de tester ces éprouvettes (entaillées au traitement thermique TT1) à 260°C en milieu étain liquide ( $T_f = 232^\circ\text{C}$ ).

Comme le montre le diagramme Fe-Sn en figure 29, à 260°C il y a formation des intermétalliques solides FeSn et FeSn<sub>2</sub>. Ces intermétalliques résultent d'un mécanisme classique d'interdiffusion.

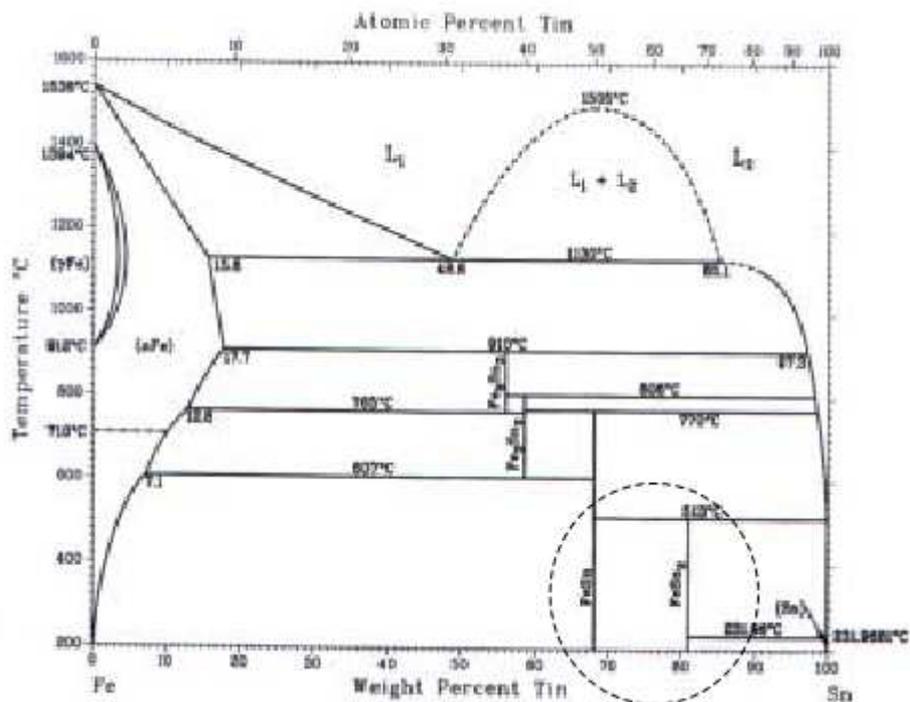


Figure 29 : diagramme de phases Fe-Sn [BAPD 1990-2]

Se pose alors la question suivante : la fragilisation spontanée par l'étain est-elle possible alors que la formation d'intermétalliques est prévisible ?

Les résultats de la figure 30 confirment que la fragilisation a lieu, et est tout à fait comparable à celle obtenue par le plomb ou l'eutectique plomb-bismuth.

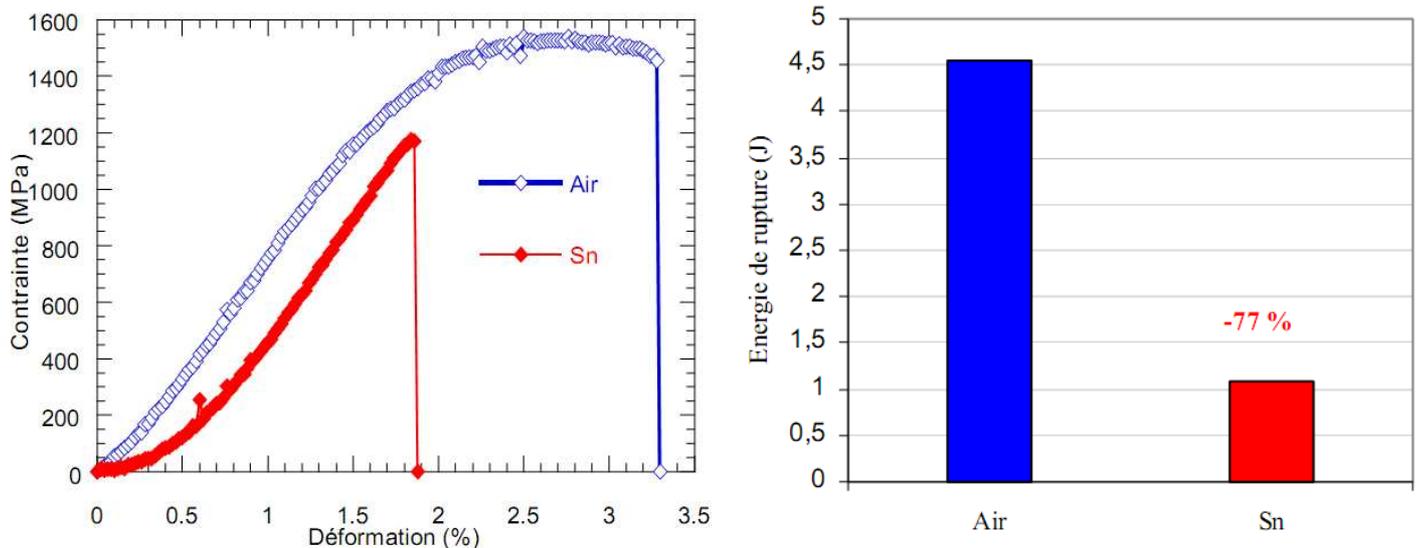


Figure 30 : mise en évidence de la fragilisation du T91 par l'étain liquide, à 260°C (éprouvettes entaillées au traitement thermique TT1,  $v=10^{-4}s^{-1}$ )

La figure 31 montre clairement que la formation d'intermétalliques est spontanée, puisqu'ils sont observés à proximité du faciès de rupture ou en fond de microfissures de la couche écrouie, n'ayant pas été le point de départ de la rupture principale.

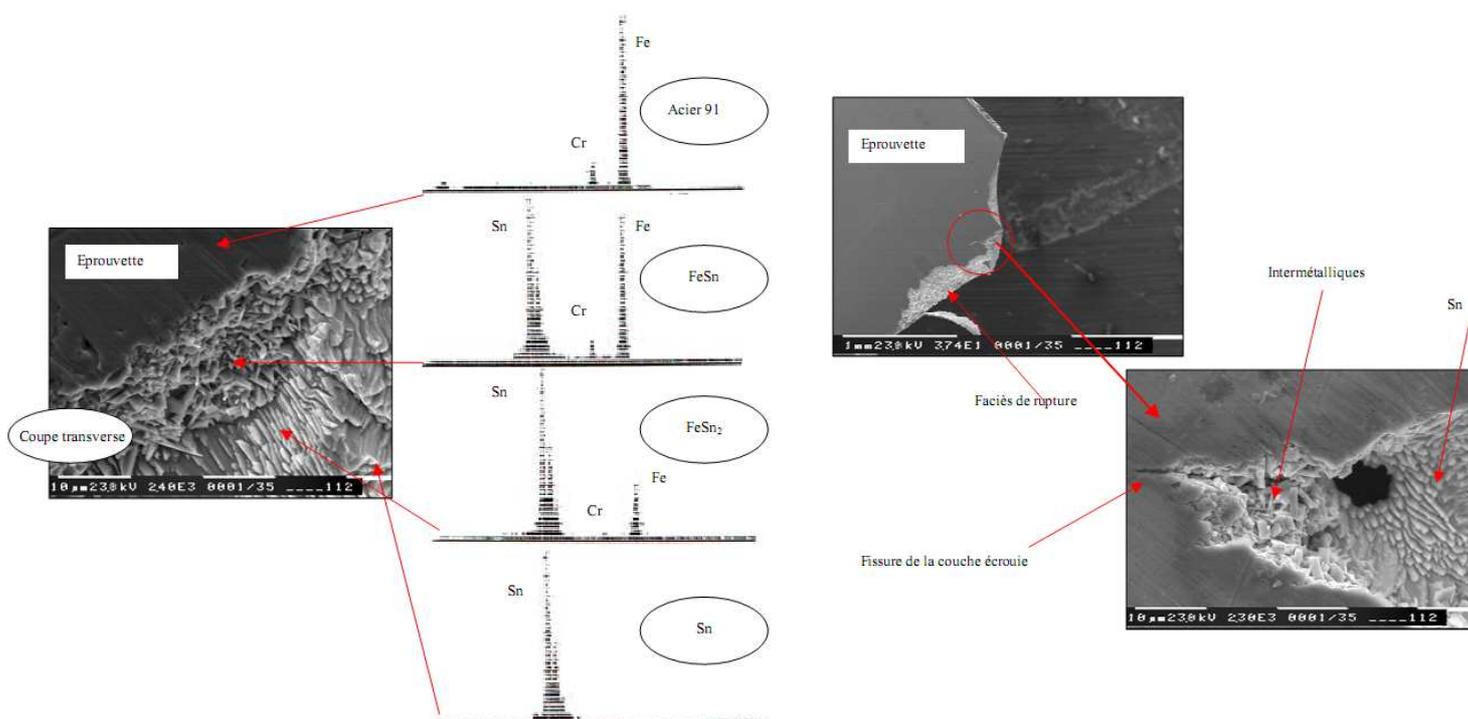


Figure 31 : mise en évidence des intermétalliques formés lors des essais de fragilisation en milieu étain liquide

Le fait d'obtenir dans ce cas une fragilisation, alors que la réaction de formation des intermétalliques est spontanée, et que ces intermétalliques sont à même de bloquer le contact entre l'acier et l'étain liquide prouve que dès que la couche écrouie en fond d'entaille a été fissurée in situ, le contact local entre l'étain liquide et l'acier a provoqué le départ d'une rupture fragile. Si ce mécanisme avait nécessité un processus diffusionnel de pénétration de l'étain dans l'acier, la fragilisation aurait été impossible, puisque toute diffusion dans ce système amène la formation directe d'intermétalliques qui privent le contact entre l'acier et l'étain liquide.

Rappelons enfin que la formation des intermétalliques n'est ici possible qu'en fond de fissure, pour un contact entre l'acier « frais » et l'étain. On n'observe en effet aucune formation d'intermétalliques à la surface restante de l'éprouvette. Ceci est dû à la présence de la couche d'oxyde de chrome formée spontanément en surface de l'acier au contact de l'air. En étain, quand la couche écrouie se fissure, le potentiel d'oxygène de l'étain liquide, même sous air à 1atm, ne permet pas la reformation d'une telle couche d'oxyde.

La fragilisation par les métaux liquides, telle qu'elle a été démontrée expérimentalement est uniquement due à un processus de réduction d'énergie de surface induite par adsorption et n'implique aucun processus de diffusion du métal liquide fragilisant dans le cœur du matériau fragilisé.

### 2.3.5 ESTIMATIONS DE LA REDUCTION D'ENERGIE DE SURFACE INDUITE PAR ADSORPTION: CALCULS AB-INITIO

La réduction d'énergie de surface  $\gamma_s$  peut-être évaluée à l'aide d'une simulation numérique simple en calculant la variation d'énergie totale induite par l'adsorption d'un métal liquide sur une surface de fer. Un calcul a ainsi été effectué en utilisant le code VASP (Vienna Ab initio Simulation Package) [Kresse, 1993, 1994]. Ce code de calcul de structure électronique se base sur la fonctionnelle  $E$  (énergie totale du système) de la densité électronique  $n(r)$  ( $r$  est la variable spatiale) [Kohn 1965] et cherche la densité  $n(r)$  qui minimise  $E$ , pour des positions atomiques fixées. Une fois la première valeur minimisée de  $E$  obtenue, un calcul des forces exercées sur les ions (noyau + électrons de cœur) est effectué (théorème de Hellman-Feynman). Les ions sont alors déplacés pour annuler ces forces. L'énergie est alors recalculée et ce processus se réitère jusqu'à la convergence vers une conformation spatiale qui minimise l'énergie du système. Le calcul est ici effectué sur un volume contenant plusieurs plans d'atomes de fer, correspondant à un empilement cubique centré, entourés par du vide de façon à obtenir des surfaces. Le but étant de simuler les interactions entre les atomes de métal adsorbés et les surfaces de fer, trois orientations différentes pour les surfaces de fer ont été considérées : (001), (011) et (111).

Le calcul se décompose en plusieurs étapes. En premier lieu, une cellule de fer cubique centrée est construite et l'énergie par atome est calculée. Elle coïncide avec le potentiel chimique  $\mu_{Fe}$  du fer à 0K. Ensuite, les supercellules de fer avec des surfaces libres sont construites. A 0K, la quantité minimisée  $E_m$  calculée est assimilable à l'énergie libre totale de référence  $G_r$  du système considéré [Legris 2002]:

$$E_m = G_r = n_{Fe}\mu_{Fe} + 2S\gamma_i$$

où  $n_{Fe}$  est le nombre d'atomes de fer dans la supercellule,  $\mu_{Fe}$  leur potentiel chimique à 0K,  $S$  la surface libre et  $\gamma_i$  l'énergie par unité de surface. L'indice  $i=(1,2,3)$  correspond à une surface d'indices de Miller (001), (011), ou (111). En connaissant  $\mu_{Fe}$  et  $G_r$ , on peut ainsi déterminer  $\gamma_i$ .

Ce calcul amène les valeurs suivantes :

Surface	(001)	(011)	(111)	Valeur expérimentale moyenne
Energie de surface (J/m <sup>2</sup> )	2.315	2.279	2.576	2.45

Un deuxième calcul est alors fait en considérant le même réseau de fer avec des atomes de Pb, ou Sn adsorbés sur une de ses deux surfaces. Dans ce cas, on a :

$$E_m = G = G_r + G_{ad} \quad \text{avec} \quad G_{ad} = n_{ad}\mu_{ad} + S\gamma_{iad} - S\gamma_i$$

où,  $n_{ad}$  est le nombre d'atomes adsorbés sur la surface d'indice  $i$  et  $\mu_{ad}$  leur potentiel chimique,  $\gamma_{iad}$  est l'énergie de surface modifiée par l'adsorption des atomes de métal liquide. Pour le potentiel  $\mu_{ad}$ , nous avons pris en première approximation la valeur à 0K correspondant à la phase condensée la plus stable. C'est une bonne approximation dans la mesure où le potentiel chimique ne varie pas beaucoup (environ 10%) entre 0K et la température de fusion.

Les résultats en termes de réduction d'énergie de surface, moyennés sur les 3 plans d'adsorption principaux, sont les suivants [Nicaise 2001-1, Legris 2002]:

- adsorption de plomb : 18% de réduction d'énergie de surface
- adsorption d'étain: 22% de réduction d'énergie de surface

On ne constate que très peu d'écart entre les divers métaux liquides considérés, avec une valeur moyenne de réduction de l'ordre de 20%.

La réduction de l'énergie de surface calculée ici est probablement sous-estimée. En effet, la simulation a été menée avec un faible taux de couverture en atomes de métal liquide (afin d'accélérer le calcul qui, en 2001, prenait environ 1 mois) et il est vraisemblable qu'une interface réelle entre métal liquide et surface de fer solide présente un taux de couverture bien plus élevé et des énergies d'interface plus faibles.

D'un point de vue purement théorique, il est possible de supposer que, en dehors de toute considération de réaction chimique, qui viendrait dans des temps caractéristiques nécessairement plus longs que celui de l'adsorption, la réduction d'énergie de surface peut dépendre (à quel degré ?) de l'électronégativité de l'espèce adsorbée. Plus un élément est électronégatif, moins il est électro-donneur et moins il va contribuer à stabiliser le défaut électronique de surface par la délocalisation de ses électrons de valence. On retrouve cette tendance dans les résultats obtenus ici en comparant la réduction d'énergie de surface par le plomb (électronégativité de Pauling = 2.33eV) et l'étain (électronégativité de Pauling = 1.96eV), avec une valeur de réduction d'énergie de surface un peu plus marquée pour l'étain.

Bien que les estimations faites ici restent rudimentaires (la puissance des 16 microprocesseurs couplés en 2001 n'autorisait pas un calcul fin), ces réflexions pourront être considérées dans la phase 2 du projet, pour l'évaluation du risque de fragilisation par le corium, dont la spéciation chimique sera à décrire (phases métalliques pures ? phases oxydes ?).

# 3-INTERPRETATION PHYSIQUE

## 3.1 ELEMENTS DE THEORIE SUR LA RUPTURE FRAGILE EN ELASTO-PLASTICITE

### 3.1.1 RUPTURE FRAGILE EN ELASTICITE PURE

Griffith fut le pionnier de la théorie de la rupture fragile dans les années 1920 en proposant un critère de fissuration pour un matériau parfaitement élastique (ses études se basent notamment sur le verre). Considérant un matériau de ce type, l'énergie apportée par une sollicitation mécanique  $y$  est stockée uniquement sous forme d'énergie élastique, et n'est par conséquent pas dissipée par une plastification liée aux mouvements de dislocations comme dans les matériaux ductiles, par exemple, dès que la contrainte appliquée dépasse la limite d'élasticité. Pour déterminer le critère de fissuration d'un matériau de ce type, il faut s'intéresser à la propagation  $da$  d'une fissure déjà existante dans ce matériau soumis à un champ de contraintes. L'énergie totale  $E$  du système comprend alors l'énergie potentielle des forces appliquées  $U$ , l'énergie élastique emmagasinée  $R$ , et l'énergie de surface  $T$ . Le réservoir d'énergie mécanique  $P$  est ainsi :

$$P=U+R$$

Pour un solide à l'équilibre,  $dP+dT=0$ . En écrivant  $T=(S+2A)y_s$ , où  $S$  est la surface externe du solide,  $A$  la surface formée par une lèvres de la fissure et  $y_s$  l'énergie de surface du solide, il vient :

$$dT=y_s(dS+2dA)=2y_s dA$$

La déformation (purement élastique) laissant la surface externe invariante,  $dS=0$ .

Il y a donc fissuration quand la libération d'énergie mécanique induite par une éventuelle propagation de fissure compense l'énergie nécessaire pour créer les nouvelles surfaces libres issues de la rupture. Le taux de libération d'énergie élastique  $G$  par unité de surface peut ainsi être défini par :

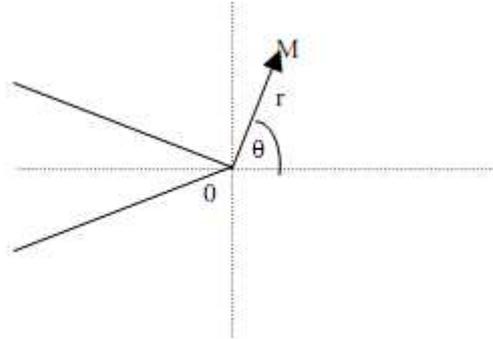
$$G = -\frac{\partial P}{\partial A}$$

Le critère de propagation de la fissure fragile s'exprime alors par :  $G_c=2\gamma_s$

Dans le but d'estimer le taux de libération d'énergie  $G$ , il est nécessaire de connaître la distribution spatiale des contraintes agissant autour de la fissure considérée et des déplacements associés. Considérant la propagation d'une fissure par ouverture de celle-ci (mode I), les champs de contraintes  $\sigma_{ij}$  et de déplacement  $u_{ij}$  en un point  $M$ , à une distance  $r$  du fond de fissure, prennent la forme:

$$\sigma_{ij} = \frac{K_I}{\sqrt{2\pi r}} f_{ij}(\theta)$$

$$u_{ij} = K_I \sqrt{\frac{r}{2\pi}} f_{ij}(\theta)$$



Le facteur  $K_I$  est appelé facteur d'intensité de contraintes en mode I (ouverture). Un bilan énergétique fait sur une ouverture de fissure montre alors que (pour un état de contraintes planes):

$$K_I = \sqrt{GE}$$

où  $E$  est le module de Young du solide considéré.

Il apparaît ainsi un autre critère énergétique de rupture fragile pour  $G_c=2\gamma_s$  :  $K_{Ic}^{el} = \sqrt{2E\gamma_s}$

Cette valeur critique du facteur d'intensité de contraintes est appelée ténacité du matériau. L'indice « *el* » signifie que l'on considère ici la valeur de la ténacité pour un matériau parfaitement élastique.

Pour une contrainte de traction appliquée  $\sigma_a$ , Irwin [Irwin 1949] montre que pour une fissure de longueur  $a$  :

$$K_I = \sigma_a \sqrt{\frac{\pi a}{2}}$$

On retrouve ainsi l'expression classique de la contrainte théorique de clivage, évoquée au §2.2.2, pour  $K_I=K_I^{el}$  :

$$\sigma_c = 2\sqrt{\frac{E\gamma_s}{\pi a}}$$

### 3.1.2 RUPTURE FRAGILE EN ELASTICITO-PLASTICITE

Les critères précédemment évoqués supposent que le matériau considéré est parfaitement élastique. Dans la réalité, pour les alliages métalliques, une zone plastifiée est toujours présente en fond de fissure. En effet, ce fond de fissure agit localement comme un site de concentration de contraintes qui se traduit généralement par un facteur de concentration  $K_t$  (à ne pas confondre avec le facteur d'intensité de contraintes  $K_I$ ):

$$K_t = 1 + 2\sqrt{\frac{a}{\rho}}$$

où  $a$  est la profondeur de la fissure et  $\rho$  son rayon de courbure. Cette concentration de contraintes opère dans le matériau depuis le fond de fissure jusqu'à une profondeur couramment estimée à la valeur du rayon de courbure  $\rho$ . Ainsi, même si la contrainte appliquée est inférieure à la limite d'élasticité, il est possible que cette limite soit dépassée au niveau du fond de fissure. Dans les matériaux ductiles, des sources de dislocations s'activent alors en avant de la fissure et une zone plastique se développe. Cette zone plastique modifie les critères précédemment évoqués de propagation de fissure fragile.

En admettant qu'il soit encore possible de définir le taux de relaxation d'énergie élastique  $G$  (valable dans le cas d'une plasticité confinée au fond de fissure et non généralisée à l'ensemble du solide considéré), le critère de rupture s'écrit alors :

$$G_c^p = 2\gamma_s + 2\gamma_p$$

où  $G_c^p$  est le taux de libération d'énergie élastique à partir duquel la fissure, accompagnée de sa zone plastique, se propage.  $\gamma_p$  s'assimile alors à une énergie dissipée par unité de surface par la plasticité en fond de fissure qui doit être fournie en plus de  $\gamma_s$  pour faire avancer la fissure.

En posant  $\gamma_f = \gamma_s + \gamma_p$ , la contrainte théorique de propagation devient alors :

$$\sigma_c^p = 2\sqrt{\frac{E\gamma_f}{\pi a}}$$

Cette expression montre que la contrainte à appliquer pour la propagation d'une fissure dans un matériau au comportement élasto-plastique est supérieure à celle nécessaire dans le cas où le matériau serait parfaitement élastique, comme si la zone plastique jouait un effet d'écran, ne permettant pas à la contrainte appliquée d'être intégralement retransmise au fond de fissure.

Pour les matériaux ductiles,  $\gamma_p$  est en général très grand devant  $\gamma_s$ . Pour l'aluminium, par exemple,  $\gamma_p = 4200\gamma_s$ .

L'effet d'écran joué par la zone plastique mis ici en évidence est décrit en détail par Thomson [Thomson 1978]. La figure 32 décrit l'allure de la contrainte  $\sigma$  qui s'exerce sur le plan médian d'une fissure dans un matériau élasto-plastique, dans la direction de sa normale (i.e la contrainte de traction), à une distance  $r$  du fond de fissure.

Si le matériau était parfaitement élastique, cette contrainte serait de la forme :

$$\sigma = \frac{K_I}{\sqrt{2\pi r}}$$

En réalité, même pour un matériau supposé parfaitement élastique, la contrainte en pointe de fissure ne peut être infinie et est limitée par les forces de Barenblatt-Orowan  $\sigma_{BO}$  qui sont les forces de cohésion entre les atomes. Ces forces traduisent le fait qu'en fond de fissure, à cause des fortes déformations, l'élasticité n'est plus linéaire.

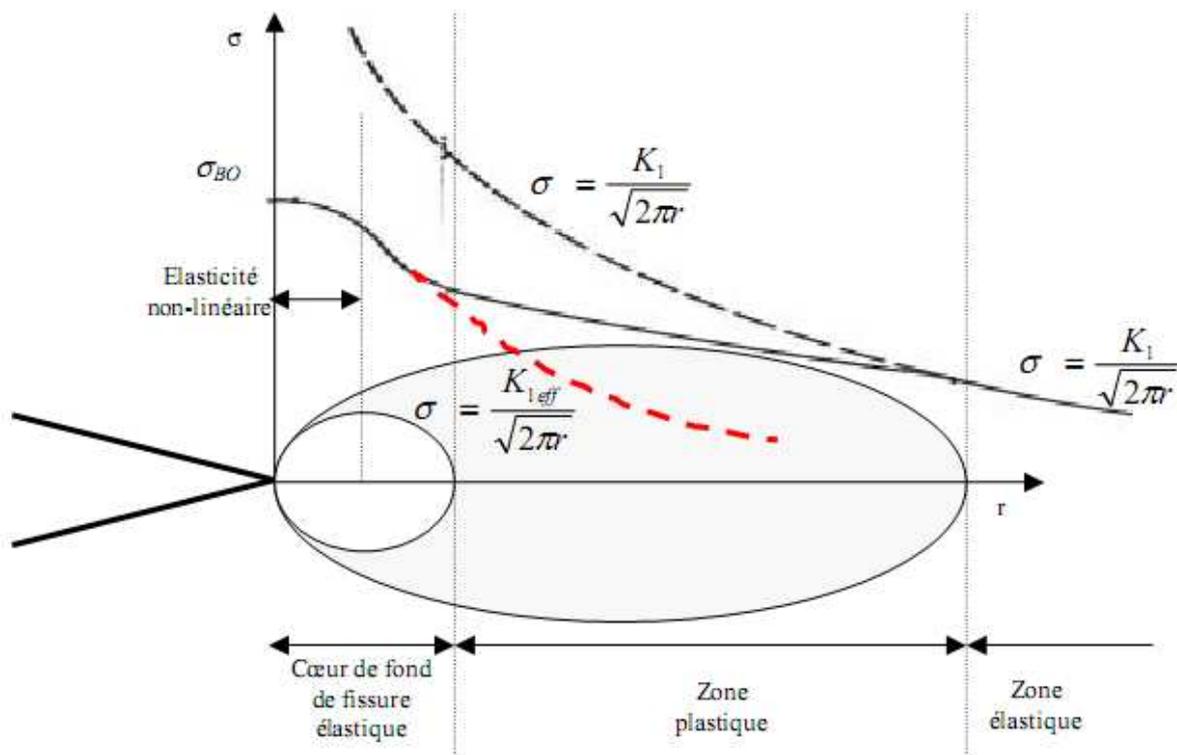


Figure 32 : Schématisation de la zone plastifiée et de l'allure de la contrainte locale en fond de fissure

D'autre part, malgré le développement de plasticité en fond de fissure, Thomson se base sur l'hypothèse qu'il est possible de trouver une petite zone à l'échelle atomique (quelques nanomètres) où la densité de dislocations est nulle à condition que les sources de dislocations situées exactement sur le fond de fissure soient inopérantes. L'hypothèse de Thomson est appuyée par le fait que les sources de dislocations sont dans la réalité réparties de façon discrète et qu'il est donc possible qu'aucune de ces sources ne se trouve au voisinage immédiat du fond de fissure.

Cette zone de cœur de fond de fissure peut alors être considérée comme ayant un comportement parfaitement élastique. La contrainte  $\sigma$  dans la zone plastique est plus faible que ce qu'elle devrait être en l'absence de cette zone plastique. Etant donné la continuité de la contrainte à la traversée entre la zone plastique et le cœur élastique du fond de fissure, la contrainte élastique linéaire dans le cœur, suffisamment loin du fond de fissure, suit encore alors la loi :

$$\sigma = \frac{K_{1eff}}{\sqrt{2\pi r}}$$

où  $K_{1eff}$  est inférieur au  $K_I$  appliqué.

Dans ce cas la présence de la zone plastique entraîne la nécessité d'appliquer un facteur critique  $K_{Ic}$  supérieur à  $K_{Ic}^{el}$ , pour que le critère de rupture  $K_{1eff}=K_{Ic}^{el}$  soit atteint en fond de fissure. Ainsi la ténacité mesurée  $K_{Ic}$  sera supérieure à celle obtenue si le matériau était parfaitement élastique.

En introduisant les deux paramètres indépendants que sont le coefficient d'écroûissage  $n$  et la densité maximale de dislocations par unité de paramètre de maille  $\eta$ , Thomson établit une relation reliant  $K_I$  et  $K_{1eff}$ :

$$\frac{K_I^2}{K_{1eff}^2} = \left( \frac{\eta \gamma_s}{\varepsilon_0^3 \lambda \mu b} \right)^{\frac{1-n}{3n}}$$

où  $\lambda$  est un paramètre sans dimension,  $\mu$  le module d'élasticité en cisaillement,  $b$  le vecteur de Burgers des dislocations et  $\varepsilon_0$  la déformation élastique avant le début de la plastification.

Les considérations exposées ici sur le développement de la plasticité en fond de fissure montrent que, sous certaines hypothèses, même pour un matériau élasto-plastique, le critère fondamental de rupture obtenu pour un matériau parfaitement élastique :

$$K_{Ic}^{el} = \sqrt{2E\gamma_s}$$

peut toujours être utilisé. Le facteur d'intensité de contrainte critique dont il est ici question opère dans la zone de matière parfaitement élastique autour du fond de fissure. Du fait du développement de la zone plastique au voisinage du fond de fissure, il faudra appliquer un facteur d'intensité de contraintes plus grand que cette valeur critique pour que la propagation de la fissure fragile ait lieu.

C'est sur ce critère, ainsi que sur le phénomène d'écrantage du facteur d'intensité de contraintes par la zone plastique, que se basent les interprétations qui suivent à propos des ruptures fragiles observées en métal liquide ainsi que du retour à la ductilité induit par l'augmentation de la température d'essai ou de revenu.

## 3.2 INTERPRETATION DE LA FRAGILISATION DU T91 DEMONTREE EXPERIMENTALEMENT

### 3.2.1 INITIATEUR PHYSIQUE DE LA RUPTURE FRAGILE

Sans la présence d'une couche écrouie (induite par la formation d'une entaille au tour, après le traitement thermique TT1<sup>\*</sup>) très dure et au comportement fragile, la fragilisation n'aurait très probablement pas pu être démontrée pour deux raisons essentielles :

- la rupture de cette couche écrouie crée une fissure très fine (ne se propageant pas en absence de plomb liquide) de 10 $\mu$ m de profondeur et génère une concentration de contrainte  $K_t$  permettant d'atteindre localement la contrainte théorique de clivage  $\sigma_c$  diminuée par effet de réduction d'énergie de surface en fond de fissure (adsorption),
- la fissuration de la couche écrouie se produit in situ en milieu métal liquide permettant d'offrir un contact entre l'acier « de cœur » et le métal liquide avant toute reformation d'une couche d'oxyde (formée spontanément en surface pour un acier type inox).

La couche écrouie en fond d'entaille est parfaitement adhérente. Elle se fissure donc pour un niveau de déformation globale de l'éprouvette. Les estimations sur le comportement à fissuration de cette couche (annexe 2) montrent que la fissuration intervient pour une déformation relative à un niveau de contrainte appliquée à l'éprouvette de l'ordre de 1000MPa. En observant en parallèle le niveau de contrainte appliqué pour lequel la rupture globale de l'éprouvette est déclenchée en métal liquide, il semble très probable qu'il n'y ait aucun temps de latence entre la fissuration de la couche écrouie dans toute sa profondeur et la rupture globale de l'éprouvette. Ceci est parfaitement confirmé par les essais en étain liquide : s'il y avait un temps de latence, les intermétalliques auraient été formés, et la fragilisation n'aurait donc pas pu avoir lieu (blocage du contact entre l'acier et le métal liquide).

### 3.2.2 DECLENCHEMENT DE LA RUPTURE FRAGILE ET PROPAGATION

L'adsorption de métal liquide ayant pour conséquence de réduire  $\gamma_s$ , réduit aussi la valeur du facteur d'intensité de contrainte critique  $K_{Ic}^{el}$  des éprouvettes au niveau du fond d'une fissure de la couche écrouie. Les cas de ruptures fragiles totalement transgranulaires montrent également que la valeur

---

\* L'entaille est réalisée après le traitement thermique pour que la couche écrouie conserve un comportement fragile et ne soit pas restaurée par le traitement thermique.

abaissée par adsorption  $K_{1c}^{el'}$  est atteinte pour une valeur de contrainte appliquée inférieure à la contrainte qui déclenche la germination et la croissance des microcavités de la rupture ductile. Cette réflexion permet de comprendre pourquoi seules les éprouvettes entaillées au traitement thermique TT1 ont été fragilisées. En effet les traitements effectués sur ces éprouvettes ont contribué à rendre l'acier beaucoup moins plastique, i.e. à réduire l'écrantage du  $K_I$  appliqué par la zone plastique en fond de fissure.

La contrainte appliquée reliée au facteur d'intensité de contrainte a ainsi été telle que le  $K_{1c}^{el'}$  ait pu être atteint en fond de fissure avant la germination et la croissance des microcavités pour ce type d'éprouvettes.

La figure 33 schématise le déroulement des ruptures observées en l'air et en le plomb. Avant la fissuration de la couche écrouie, le comportement mécanique des éprouvettes est le même à l'air et en métal liquide. Au moment de la fissuration, la concentration de contrainte apportée par une fissure de la couche écrouie induit le développement d'une zone plastique. Pour un essai à l'air, puisque la rupture est ductile, le  $K_{Ieff}$  en fond de fissure n'atteint jamais le facteur d'intensité de contraintes critique  $K_{1c}^{el}$ .

Pour un essai dans le plomb liquide, le  $K_{Ieff}$  peut atteindre la valeur abaissée par adsorption  $K_{1c}^{el'}$ . Il y a alors rupture fragile.

Sur la figure 33, la valeur du  $K_{1c}^{el'}$  a été placée en dessous de celle du  $K_{Ieff}$  au moment de la fissuration de la couche écrouie. Ceci signifie que nous supposons que la couche écrouie se fissure pour une déformation correspondant à une contrainte appliquée déjà suffisamment haute pour que le  $K_{Ieff}$  soit déjà supérieur au  $K_{1c}^{el'}$  au moment du contact entre le métal liquide et l'acier en fond de fissure.

Cette hypothèse est suggérée d'une part par le comportement mécanique de la couche écrouie, qui semble se fissurer pour une déformation égale à la déformation à rupture dans le métal liquide et d'autre part, par les résultats obtenus dans l'étain où il est clair que le  $K_{1c}^{el'}$  est atteint au moment même où la fissure de la couche écrouie est créée (s'il y avait un temps de latence entre la fissuration de la couche écrouie et l'atteinte locale du critère  $K_{1c}^{el'}$ , les intermétalliques auraient été formés et auraient restitué, par blocage du contact entre le fond de fissure et le métal liquide, la valeur initiale, non abaissé par adsorption, du facteur d'intensité de contraintes critique  $K_{1c}^{el}$ ).

La propagation de la rupture en tant que telle implique deux mécanismes :

- la propagation initiale permettant de libérer l'intégralité du réservoir d'énergie élastique et conduisant ainsi à une nouvelle longueur de fissure pour laquelle le facteur d'intensité de contraintes en fond de fissure devient inférieure à la valeur  $K_{1c}^{el}$ ,
- si pour cette nouvelle longueur de fissure le métal liquide n'est pas présent en fond de fissure, la rupture peut être stoppée (sous réserve d'effets dynamiques) ; si par contre le métal liquide peut suivre le fond de fissure en cours de rupture, la propagation s'étendra alors à l'ensemble de l'éprouvette.

Il n'a été pas possible de mettre clairement et rigoureusement en évidence ces deux phases sur l'ensemble des essais présentés ici. Néanmoins, pour les cas de ruptures 100% transgranulaires obtenues, le faciès est entièrement recouvert d'une couche de métal liquide adhérente en fin d'essai, suggérant que le métal liquide a suivi le fond de fissure, tout au long de la propagation, dont la vitesse a été de l'ordre de  $10m.s^{-1}$ .

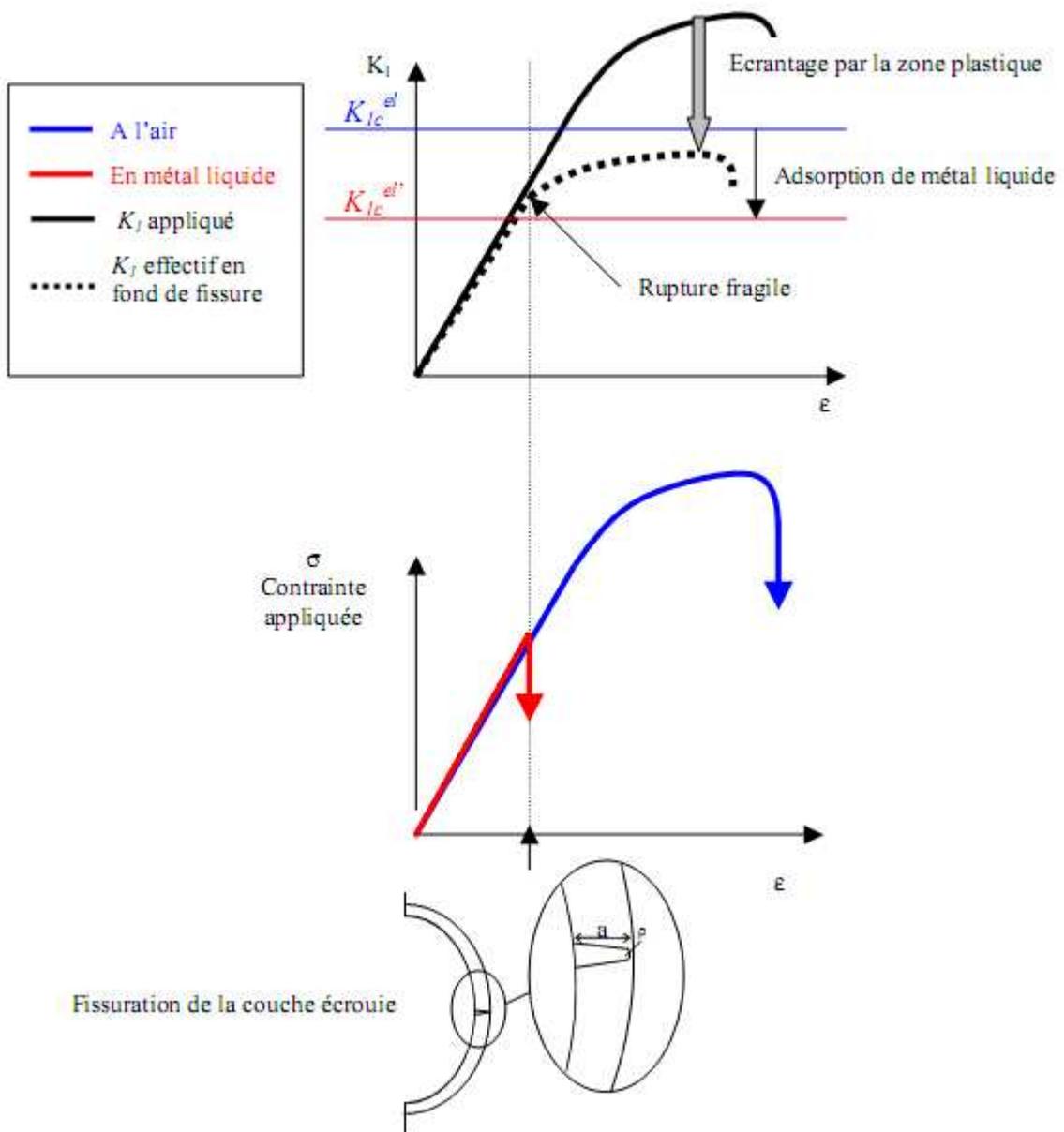


Figure 33 Déroulement des ruptures dans l'air et dans le métal liquide pour les éprouvettes sensibles à la FML.

### 3.2.3 RUPTURES MIXTES, COMPETITION PLASTICITE-FRAGILITE, RECOUVREMENT DE DUCTILITE

L'augmentation de la température d'essai ou de revenu a en théorie pour principale conséquence de diminuer la limite d'élasticité en traction  $R_e$  (ou  $\sigma_y$ ) des éprouvettes entaillées considérées. Cette diminution de limite d'élasticité en traction signifie également que l'écrantage du facteur d'intensité de contraintes appliqué dû à la zone plastifiée en fond de fissure est d'autant plus efficace. D'autre part, le comportement mécanique de la couche écrouie peut être aussi modifié. Elle devrait ainsi se fissurer pour une déformation appliquée plus grande.

Pour observer la fragilité induite par le métal liquide il faut ainsi que le  $K_{1c}^{el'}$  soit atteint avant l'envahissement de l'ensemble de l'éprouvette par les microcavités qui donnent lieu à la rupture ductile.

Le processus de croissance des cupules est particulier pour des éprouvettes entaillées. Il dépend en effet fortement du taux de triaxialité de contraintes. Les formules de Bridgman pour la résolution des contraintes sur la section entaillée montrent que la triaxialité est maximale au centre de l'éprouvette. La figure 34 montre la répartition de la contrainte locale en traction  $\sigma_{zz}$  par rapport à la contrainte moyenne de traction appliquée.

Pour une entaille de 200 $\mu$ m de rayon de courbure et de 500 $\mu$ m de profondeur :

$$\text{pour } r \text{ compris entre 0 et 1.5 mm, } \sigma_{zz} = \frac{\bar{\sigma}_{zz}}{1.97} \left[ 1 + \ln \left( 1 + \frac{2.25 - r^2}{0.6} \right) \right]$$

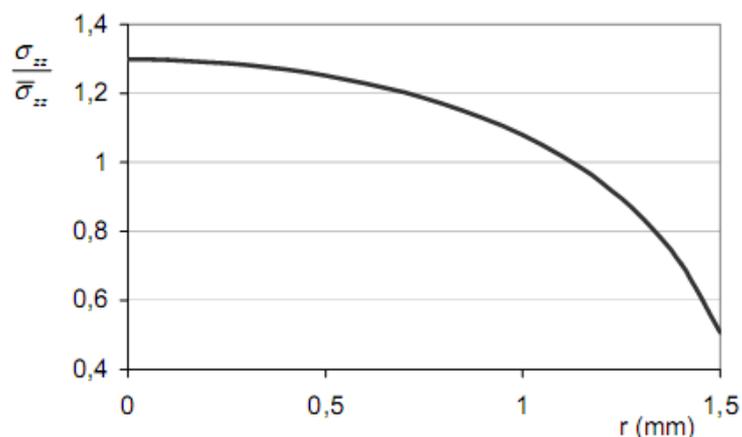


Figure 34 : Distribution de la contrainte locale en traction par rapport à la contrainte moyenne appliquée pour les éprouvettes entaillées selon les formules de Bridgman.

Pour un niveau de contrainte moyenne appliquée, la contrainte axiale, et plus généralement la triaxialité des contraintes, sont les plus importantes au centre de l'éprouvette. C'est donc à cet endroit que les microcavités peuvent croître en premier. Cette répartition des contraintes explique pourquoi les faciès des ruptures mixtes présentent un cœur ductile entouré d'une couronne fragile. En effet, un retard dans la fissuration de la couche écrouie peut permettre un développement de microcavités au centre avant que la rupture fragile ne démarre en surface.

D'autre part, au niveau du fond de fissure de la couche écrouie, l'écrantage de plus en plus prononcé (avec une augmentation de la température d'essai ou de revenu) lié à la zone plastique entraîne une augmentation de la contrainte appliquée nécessaire pour que le  $K_{1c}^{el}$  soit éventuellement atteint. Ainsi, plus la ductilité de l'échantillon est augmentée, plus la probabilité d'apparition des cupules avant le départ de la rupture fragile croît.

La rupture globale de la pièce se produit donc par la jonction d'une rupture ductile partant du cœur et d'une rupture fragile partant de la surface de l'éprouvette (figure 35). Si la température d'essai ou de revenu est davantage augmentée, la propagation de la rupture ductile se fait avant que la fissuration de la couche écrouie produise les conditions nécessaires à l'amorçage de la rupture fragile ou avant que le  $K_{1c}^{el}$  ait pu être atteint du fait d'un écrantage par la zone plastique trop important. La rupture redevient alors complètement ductile.

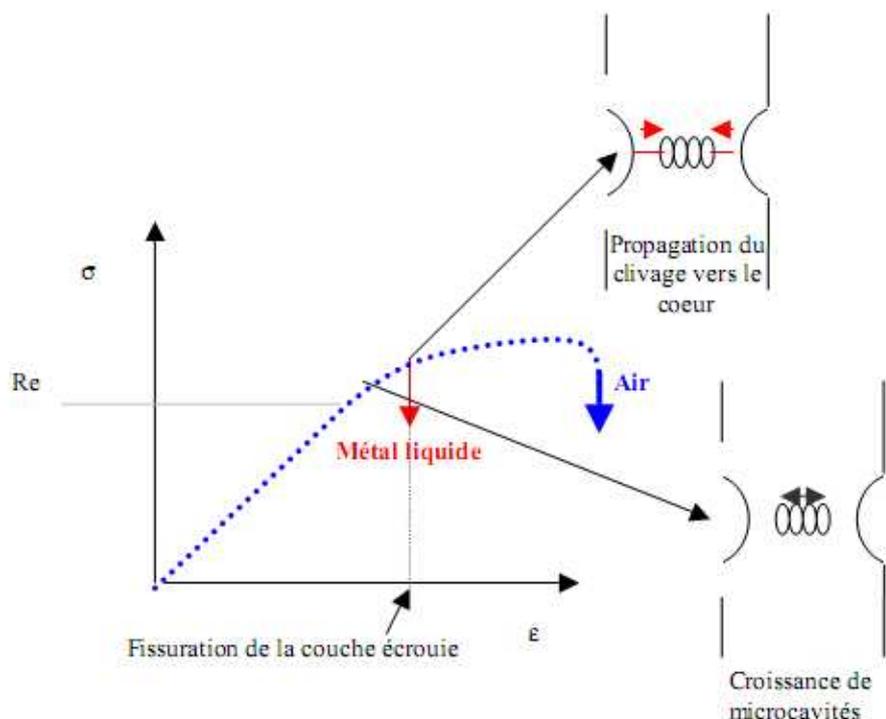


Figure 35 : Mécanisme menant à une rupture mixte à cœur ductile et couronne fragile en présence de métal liquide, dans des conditions de compétition entre rupture fragile et ductile

# 4-CADRAGE DE LA MODELISATION EN ELEMENTS FINIS

La phase 1 du projet de recherche exploratoire sur le sujet de la fragilisation par les métaux consistera essentiellement à modéliser la compétition fragilité-plasticité dans les gammes de conditions où elle se manifeste, ainsi que dans celles où elle ne se manifeste pas, à savoir les cas de ruptures totalement fragiles ou totalement ductiles. Une modélisation maîtrisée de cette compétition permettra d'évaluer les conditions métallurgiques et mécaniques (en termes de lois de comportement) pouvant présenter un risque d'occurrence de la FML.

Le travail de modélisation sera mené avec la version 6.9 du code ABAQUS (version de 2009) avec lequel on s'attachera à ajuster les modèles d'endommagement ductiles et de propagation de rupture fragiles permettant de retrouver les résultats obtenus sur la fragilisation présentée ici. On procédera selon la stratégie suivante :

- |        |  |
|--------|--|
| 1 mois | <ul style="list-style-type: none"><li>- modélisation de l'essai de traction sur éprouvette lisse au traitement thermique initial : ajustement de la loi de comportement et d'endommagement ductile,</li><li>- modélisation de l'essai de traction sur éprouvette lisse au traitement thermique TT1 : ajustement de la loi de comportement et d'endommagement ductile,</li></ul>  |
| 2 mois | <ul style="list-style-type: none"><li>- application des deux modélisations précédentes aux éprouvettes entaillées (traitement thermique initial et TT1) : ajustement des lois d'endommagement sous fort taux de triaxialité, et modélisation de la fissuration de la couche écrouie (recherche du critère de fissuration, estimé sur les essais),</li></ul>  |
| 4 mois | <ul style="list-style-type: none"><li>- application de la modélisation précédente au cas des éprouvettes fragilisées en métal liquide : <b>on ne cherchera pas ici à modéliser la phase de propagation</b> de la rupture mais à caractériser l'apparition du critère local de rupture fragile en fond de fissure. On modélisera l'effet du métal liquide simplement en abaissant localement le critère de rupture fragile,</li></ul>   |
| 3 mois | <ul style="list-style-type: none"><li>- se basant sur les résultats précédents, on caractérisera le retour en ductilité observé par variation externe de la loi de comportement (augmentation de la température d'essai ou de revenu),</li></ul>   |
| 2 mois | <ul style="list-style-type: none"><li>- on finalisera le travail en recherchant une modélisation de la propagation de la rupture en milieu métal liquide (utilisation et développement des méthodes XFEM nouvellement implantées dans ABAQUS). Ce dernier point n'est pas essentiel pour l'application à l'échelle réacteur dans le cadre d'une stricte évaluation du risque encouru, mais si le risque encouru est jugé élevé, il sera nécessaire pour évaluer le mode et la vitesse de propagation de la rupture à l'échelle de la cuve du réacteur.</li></ul> |

En termes d'attentes de résultats à l'issue de la phase 1 du projet, on cherchera avant tout à déterminer un critère de loi de comportement (un critère de limite d'élasticité sera probablement suffisant) donnant, en fonction de la température, une loi de comportement critique à partir de laquelle il y a fragilisation. On y associera également un défaut critique (étude paramétrique sur la forme et les dimensions de la fissure de la couche écrouie). Ces critères serviront pour la transposition de l'étude à l'échelle réacteur (phase 2 du projet).

En cours d'année, les résultats seront présentés et discutés avec M. Alain Combescure et M. Michel Coret de l'INSA Lyon qui jugeront de la pertinence de la modélisation en éléments finis et pourront orienter le travail vers des méthodes plus poussées, notamment si le travail portant sur la modélisation de la propagation de fissure a pu être engagé.

L'ensemble de ce travail sera formalisé sous forme d'un rapport de synthèse remis à la Direction Scientifique en fin de première année afin qu'elle juge de l'intérêt de la poursuite ou non du projet.

Il donnera également lieu à une publication, commune avec l'INSA-Lyon, sur la caractérisation de la compétition fragilité-plasticité, ainsi que, si le temps le permet, à une autre publication spécifiquement dédiée à la modélisation de la propagation de la rupture fragile en présence de métaux liquides.

En parallèle, on réfléchira en partenariat avec la DPAM (M. Marc Barrachin) sur les données existantes et nécessaires à transposer correctement l'étude menée sur le système acier/plomb à celui acier/corium, en particulier la possibilité d'avoir des phases purement métalliques ou purement oxydes. Une analyse des interactions chimiques acier/corium sera à réaliser.

# 5-CONCLUSION ET RETOUR SUR LES ENJEUX

La portée du projet vise à la fois les situations d'accidents graves sur les REP et les problèmes de vieillissement pouvant être rencontrés dans les réacteurs de 4<sup>ème</sup> génération fonctionnant aux métaux liquides.

La fragilisation par les métaux liquides telle qu'elle a été démontrée sur le T91 montre un point essentiel : on ne peut définir de spécificité a priori entre métal solide et métal liquide pour l'émergence de la fragilisation (on peut par contre en définir une pour les problèmes à long terme de corrosion par les métaux liquides, où la diffusion et les interactions chimiques jouent un rôle majeur, mais il s'agit ici d'un phénomène physique radicalement différent).

Ce document montre notamment que l'occurrence de la fragilisation par les métaux liquides tient en une combinaison de facteurs mécaniques et métallurgiques. En particulier, la probabilité d'occurrence de fragilisation augmente quand le matériau solide est dans un état métallurgique contraint, où la restriction des systèmes de glissement est significative (effet du traitement thermique durcissant TT1). Il y a également nécessité d'un défaut critique d'amorçage (ici la fissuration de la couche écrouie en fond d'entaille).

Ces conditions sont prévisibles pour les éventuels réacteurs de 4<sup>ème</sup> génération fonctionnant aux métaux liquides : la fatigue thermique et mécanique, ainsi que l'irradiation sont à même de durcir les aciers de structure en contact avec les métaux liquides, et peuvent par ailleurs générer de la microfissuration de surface. Une analyse sur les conditions de chargement mécanique sur ces structures métalliques en conditions de fonctionnement pour ces réacteurs serait alors à mener pour évaluer le risque de fragilisation.

Concernant les REP, en situation d'accident grave, et dans le cas particulier d'une situation de contact entre les métaux liquides du corium et le fond de cuve, pouvant provoquer une rupture précoce, les niveaux de température de l'acier atteints dans ces conditions (900-1100°C) pourraient au premier abord laisser penser que la ductilité de l'acier sera suffisante pour l'emporter sur toute propension à la fragilité. Ce peut être le cas des nuances les plus ductiles d'aciers de cuve, notamment la nuance type « RUPATHER ». Néanmoins, il existe des nuances d'aciers de cuve, en service sur le parc actuel des REP en France, présentant un creux de ductilité dans la gamme de température envisagée pour l'accident grave. **Cette réduction de ductilité peut être comparée à celle provoquée sur l'acier T91, comme explicitée dans ce document, pour la mise en évidence de la fragilisation par les métaux liquides,** qui procède d'une restriction des systèmes de glissement au sein du matériau. Dès lors, il devient important d'évaluer le risque encouru sur les réacteurs du parc où cette nuance est celle de l'acier de cuve en service, ce qui pourra constituer la phase 2 du projet de recherche exploratoire.

# REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

## **ADAMOV 1997**

E. Adamov, V. Orlov, A. Filin, V. Leonov, A. Sila-Novitski, V. Smirnov, V. Tsikunov, *Nuclear Engineering and Design* 173 (1997) p. 143

## **BAPD 1990-1**

Binary Alloy Phase Diagrams (2nd edition) ed. T. B. Massalski ASM International vol. 2 (1990) p.1479

## **BAPD 1990-1**

Binary Alloy Phase Diagrams (2nd edition) ed. T. B. Massalski ASM International vol. 2 (1990) p.1775

## **BRIDGMAN 1944**

P. W. Bridgman *Trans. ASM* 32 (1944) p.553

## **FAZIO 2008**

C. Fazio, F. Gröschel, W. Wagner, K. Thomsen, B.L. Smith, R. Stieglitz, L. Zanini, A. Guertin, A. Cadiou, J. Henry, P. Agostini, Y. Dai, H. Heyck, S. Dementjev, S. Panebianco, A. Almazouzi, J. Eikenberg, A. Letourneau, J.C. Toussaint, A. Janett, Ch. Perret, S. Joray, J. Patorski, W. Leung, P. Meloni, P. Turrioni, A. Zucchini, G. Benamati, J. Konys, T. Auger, A. Gessi, D. Gorse, I. Serre, A. Terlain, J.-B. Vogt<sup>h</sup>, A. Batta, A. Class, X. Cheng, F. Fellmoser, M. Daubner, S. Grieser, G. Grötzbach, R. Milenkovic, C. Latgé and J.U. Knebel, *Nuclear Engineering and Design*, Volume 238, Issue 6, (2008) p. 1471

## **FERNANDES 1997**

P. J. L. Fernandes, D. R. H. Jones, *Inter. Mat. Review* 42 (1997) p.251

## **GLICKMAN 1978**

E.E. Glickman *Sov. Mat. Science* (1978) p.355

## **IRWIN 1949**

G. R. Irwin, *Fracturing of metals*, ASM, Cleveland, OH, (1949), p.147

## **JOHNSON 1874**

W. H. Johnson *Proc. Roy. Soc. Lond.* 23 (1874-1875) p.168

Republié dans *Hydrogen damage*, ed C.D. Beachem, ASM (1977) p.12

## **KOHN 1965**

W. Kohn, L. Sham, *Phys. Rev.*, 140 (1965) p.1133

**KRESSE 1993**

G. Kresse, J. Hafner, *Phys. Rev.*, B 47 (1993) p.558

**KRESSE 1994**

G. Kresse, J. Hafner, *Phys. Rev.*, B49 (1994) p.14251

**LEGRIS 2000**

A. Legris, G. Nicaise, J.B. Vogt, J. Foct *Scripta Materialia*, 43, (2000), p. 997

**LEGRIS 2002**

A. Legris, G. Nicaise, J.B. Vogt, J. Foct, *Journal of Nuclear Materials*, 301 (2002), p. 70

**NICAISE 2001-1**

G. Nicaise, *SENSIBILITE DE L'ACIER MARTENSITIQUE Z10CDNbV9-1 A LA FRAGILISATION PAR LES METAUX LIQUIDES*, Thèse de doctorat, Université des Sciences et Technologies de Lille, 28 novembre 2001

**NICAISE 2001-2**

G. Nicaise, A. Legris, J.B. Vogt, J. Foct, *Journal of Nuclear Materials*, 296 (2001) p.256

**REHBINDER 1947**

P.A. Rehbinder, *Nature* 159 (1947) p.866

**SPEICH 1969**

G.R. Speich *Trans AIME* 245 (1969) p.2553

**STOLOFF 1963**

N.S. Stoloff, T.L. Johnston, *Acta Met.* 11 (1963) p.251

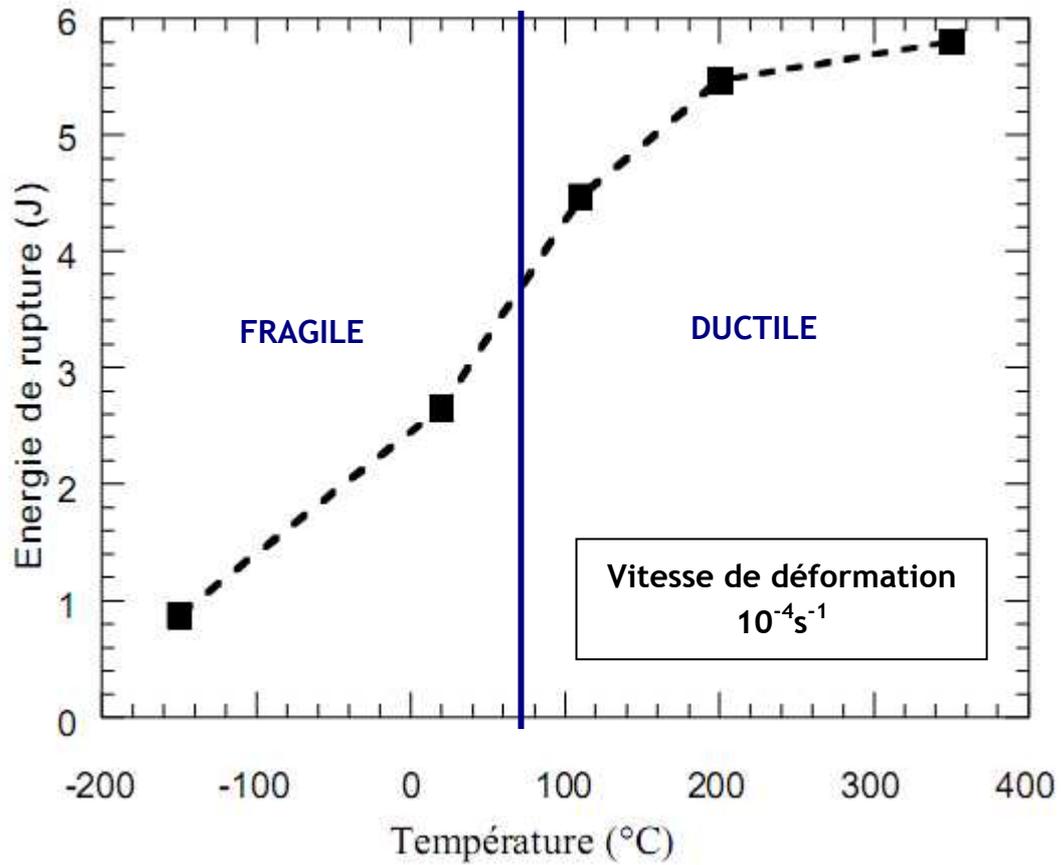
**STOLOFF 1982**

N.S. Stoloff, *Embrittlement by liquid and solid metals*, ed. M.H. Kamdar, AIME, (1982) p.3

**THOMSON 1978**

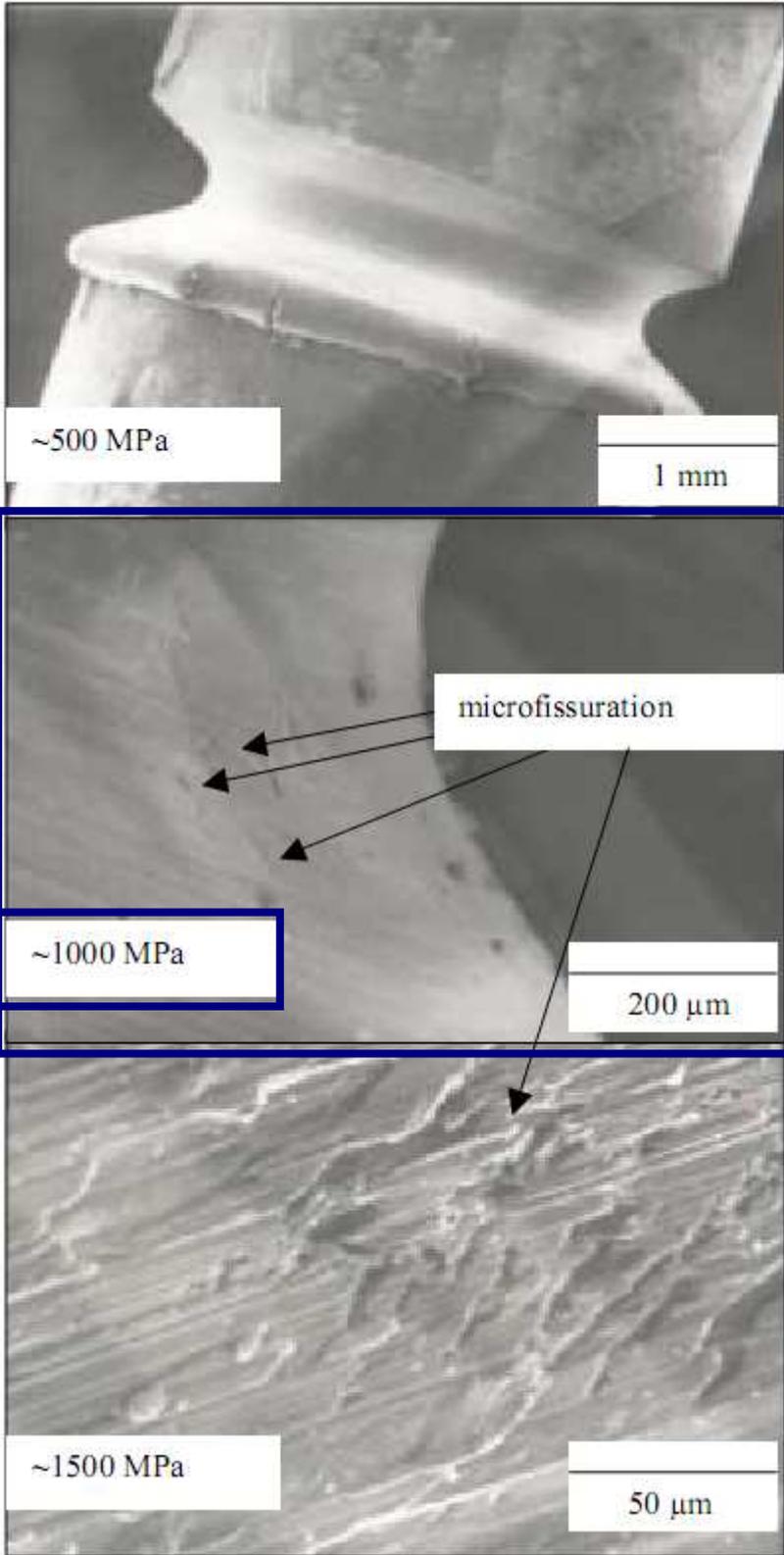
R. Thomson, *J. Mater. Science*, 13 (1978) p.128

## ANNEXE 1 : COURBE DE TRANSITION DUCTILE-FRAGILE DU T91



[Nicaise 2001-1]

# ANNEXE 2 : FISSURATION DE LA COUCHE ECROUIE



[Nicaise 2001-1]

# ANNEXE 3 : DOSSIER INITIAL DE PRESENTATION DU PROJET

**IRSN**

INSTITUT  
DE RADIOPROTECTION  
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

## PROJET DE RECHERCHE EXPLORATOIRE

**Projet :**  
Fragilisation par les Métaux Liquides : modélisation du phénomène et évaluation en accident grave.

**Pilote du projet:** Grégory NICAISE

**Intervenants IRSN:**

Nom des participants au projet (pilote en ligne 1)	Date et visas	Direction/service/labo	Site
Grégory NICAISE	15 février 2009	DSR/SAGR/BPhAG	FAR
Marc BARRACHIN	20 février 2009	DPAM/SEMIC/LETR	CAD

**Collaborations externes (parties prenantes du projet):**

Nom du principal Interlocuteur	Date et visas	Organisme/laboratoire	Site
Alain COMBESCURE	15/3/09	LamCo Laboratoire de Mécanique des Contacts et des Structures UMR CNRS 5259	INSA Lyon

**Visas de la hiérarchie**

Nom/prénom	Unité	date	visa
Renaud MEIGNEN	DSR/SAGR/BPhAG dir	17/03/09	R. Meignen
Frédérique PICHÉREAU	DSR/SAGR dir	18/03/09	F. Pichereau
Martial JOREL	DSR dir	18/03/09	M. Jorel

D6/Projet\_recherche\_exploratoire

## PARTIE 1 : DESCRIPTION DU PROJET DE RECHERCHE EXPLORATOIRE

### Position du problème

La problématique de la **fragilisation par les Métaux Liquides (ML)** se pose concrètement dans le domaine des accidents graves sur réacteur nucléaire avec fusion de cœur. Leur modélisation, leur probabilisation ainsi que l'évaluation de leurs conséquences radiologiques dépendent de nombreux paramètres dont notamment le temps et le mode de rupture de la cuve du réacteur contenant en son fond un bain métallique fondu constitué du cœur combustible, des gaines de zirconium et des aciers de structure.

La fragilisation par les ML est un phénomène « exotique » de la mécanique des matériaux métalliques en interaction avec un environnement chimique.

Il se traduit par une **modification radicale du comportement mécanique** de substrats métalliques sous contraintes en présence de ML. Un acier qui présenterait un comportement ductile à chaud peut se rompre de façon fragile en contact avec un métal fondu, toutes conditions identiques par ailleurs. La rupture en milieu ML présente alors des paramètres (énergie, contrainte-déformation à rupture) équivalents à ceux obtenus, en l'absence de ML, à très basse température (90K pour les exemples connus).

Il s'agit ainsi d'une **transition ductile-fragile induite par effet d'environnement**. La rupture intervient bien en dessous des limites d'élasticité du matériau et se propage très brutalement. Ce phénomène entre dans la catégorie des effets d'environnement susceptibles d'impacter le comportement mécanique des matériaux qui y sont soumis, les plus fréquemment rencontrés étant la corrosion sous contraintes (en environnement marin par exemple), ou encore la fragilisation par l'hydrogène. Néanmoins, en milieu ML, le phénomène se démarque de ces derniers par un **mécanisme n'impliquant aucune diffusion atomique** de l'environnement dans le substrat. Une simple adsorption du ML en surface est suffisante pour induire la fragilisation et mener à des ruptures catastrophiques n'ayant donné aucun signe avant-coureur. On percevra au travers ce mécanisme physique tout le mystère apparent du phénomène : comment un effet de perturbation électronique local en surface (adsorption de ML et réduction de l'énergie de surface) peut-il induire la variation drastique d'une propriété volumique macroscopique d'un matériau (énergie de rupture par exemple).

La fragilisation par ML n'a pas jusqu'à présent été prise en compte dans les études et recherches menées par la DSR, du fait de la méconnaissance de sa possibilité d'existence. Il apparaît aujourd'hui, en observant par ailleurs les modélisations faites sur la nature et la structure du corium stagnant en fond de cuve avant sa rupture (stratification avec certaines couches constituées d'un mélange de métaux liquides non oxydés), que l'émergence d'une fragilisation de la cuve par le corium peut être jugée comme possible, voire significativement probable. Un tel phénomène aurait une incidence directe sur l'évaluation du terme source, provoquant une rupture plus précoce et plus étendue de la cuve avec par ailleurs des vitesses d'éjection du corium

différentes de celles actuellement considérées dans la modélisation de l'explosion de vapeur ou de l'échauffement direct de l'enceinte.

## Synthèse de l'état de l'art

Le premier article faisant référence la fragilisation par les ML date de 1874, par W.H. Johnson (Grande-Bretagne). La fragilisation du zinc amalgamé (i.e. plongé dans le mercure liquide) est observée et interprétée par l'auteur de la façon suivante: « *le zinc amalgamé est fragilisé du fait que les pores ou interstices entre les molécules du métal sont remplis de mercure ce qui rend le mouvement d'une molécule sur l'autre impossible* »<sup>\*</sup>.

Le phénomène de **fragilisation par les ML** conduisant à une rupture brutale par clivage (séparation nette au travers des plans atomiques lors de la propagation de la rupture) est à distinguer des fragilisations obtenues dans le cas de la « **corrosion ou dégradation par les ML** ». La plupart du temps ces derniers se manifestent lors d'un contact prolongé (plusieurs mois ou années) entre le substrat métallique et le ML. Il y a alors, suivant le couple métal/métal liquide et ses interactions (solubilité mutuelle ou non, formation éventuelle d'intermétalliques...), possibilité de pénétration du ML aux joints de grains du substrat. La présence, en volume, du ML dans le substrat vient alors naturellement modifier son comportement mécanique sous contraintes. Les ruptures observées sont quasiment toujours intergranulaires.

Ces phénomènes, impliquant une certaine décohéision du matériau induite par le ML aux joints de grains ont été largement décrits et analysés dans la littérature, notamment par les travaux de E.E Glickman<sup>†</sup> dans les années 1975-1995.

Il existe néanmoins la possibilité d'une autre interaction plus directe et plus brutale entre le ML et le substrat impliquant une simple adsorption en surface et ne nécessitant donc pas de contact prolongé. C'est le cas de la **fragilisation par les ML** proprement dite, dont le mécanisme théorique est suggéré indirectement au travers des travaux de P.A Reh binder<sup>‡</sup>, publiés dans les années 1930-1950, au sujet de **l'abaissement de l'énergie de surface induit par adsorption de ML**. Il se trouve en effet que la contrainte théorique de clivage  $\sigma_c$  d'un matériau métallique dépend explicitement de l'énergie de surface  $\gamma_s$  (dépendance en  $\gamma_s^{1/2}$ ). Habituellement, cette contrainte théorique n'est jamais atteinte car la plastification (accommodation de la contrainte mécanique par mouvement étendu des dislocations) se produit au-delà de la limite élastique du matériau. En présence de ML, et si, par adsorption, la contrainte théorique de clivage est localement réduite en dessous de la limite d'élasticité, la rupture fragile dans le domaine élastique est possible. Ce phénomène a été particulièrement redouté dans les sous-marins russes à propulsion nucléaire de type « Alfa » des années 1955-1995 où l'eutectique plomb-bismuth est utilisé à l'état liquide comme caloporteur.

Néanmoins il a fallu attendre 1999<sup>§</sup> pour que le phénomène de fragilisation induite par adsorption de ML soit clairement mis en évidence expérimentalement et que son interprétation prenne une

---

<sup>\*</sup> W. H. Johnson *Proc. Roy. Soc. Lond.* 23 (1874-1875) 168 Republié dans *Hydrogen damage*, ed C.D. Beachem, ASM (1977) 12

<sup>†</sup> E.E. Glickman *Sov. Mat. Science* (1978) 355

<sup>‡</sup> P.A. Reh binder, *Nature* 159 (1947) 866

<sup>§</sup> G. Nicaise *J. Nucl. Mat.* 296 (2001) 256

orientation indiscutable. La thèse de doctorat de G. Nicaise explicite en effet comment isoler et caractériser le phénomène, et établit une théorie solide sur la fragilisation induite par adsorption de ML\*. Le système étudié dans ce cadre était celui d'un acier de cuve potentiellement destiné aux réacteurs nucléaires de type ADS (Accelerated Driven System), utilisant le plomb liquide comme caloporteur et cible de spallation (le réacteur est couplé à un accélérateur de protons dont les collisions sur les noyaux de plomb engendrent des neutrons rapides). Notons que cet acier (Z10CDNbV9-1 dit « T91 steel») possède des caractéristiques mécaniques et microstructurales similaires à celles de l'acier de cuve actuellement en service dans les REP français (16MnD5).

### Objectifs / méthodologie/ résultats attendus

L'objectif du travail de recherche proposé ici est de modéliser le phénomène de fragilisation par les ML sur un acier dont la loi de comportement mécanique est connue en environnement neutre et dans les conditions représentatives d'un accident grave.

Une première étape de « calibration » visera à modéliser les essais réalisés dans la thèse de G. Nicaise (traction simple) hors et en plomb liquide, par éléments finis. L'implantation d'un modèle analytique dédié à la présence de ML en fond de fissure permettra d'étudier la propagation de la rupture. La validation de ce modèle s'effectuera sur les résultats obtenus par G. Nicaise.

Dans l'optique d'une application aux accidents grave sur les REP, il sera également nécessaire d'analyser les configurations possibles de contact entre le corium et la cuve du réacteur afin de limiter le champ d'étude aux conditions attendues du phénomène. Il sera ainsi important d'envisager à la fois la nature chimique du corium qui est soumis à un équilibre thermodynamique entre métaux oxydés et non oxydés, et le chargement mécanique imposé à la cuve. Ce travail nécessite certaines considérations théoriques et probabilistes, couplées aux connaissances actuelles sur la structure d'un corium formé en accident grave.

Une seconde étape consistera à considérer la loi de comportement de l'acier 16MnD5 en l'absence de ML (thèse IRSN/INSA-Lyon actuellement menée sur le sujet) et à appliquer le modèle dédié à la présence de ML sur cet acier, dans les conditions de fusion de cœur. Ceci permettra alors de déterminer l'ampleur du risque potentiel encouru en cas d'accident grave sur les REP français actuellement en service.

### Principales étapes proposées

**1<sup>ère</sup> année** : modélisation par éléments finis des essais de traction réalisés dans la thèse de G. Nicaise. Construction et validation d'un modèle de comportement élasto-plastique prenant en compte la restriction de plasticité caractéristique des microstructures martensitiques ou bainitiques et pouvant reproduire les ruptures fragiles transgranulaires observées en présence de ML. Réflexions d'ordre théorique sur la nature du ML et sensibilité sur le phénomène.

**2<sup>ème</sup> année** : application réaliste aux accidents graves avec fusion de cœur par calculs en éléments finis utilisant le modèle précédemment développé et la loi de comportement de l'acier de cuve 16MnD5. Investigations sur la potentialité métallique locale du corium et la distribution de son potentiel d'oxygène.

---

\* G. Nicaise « Sensibilité de l'acier martensitique Z10CDNbV9-1 à la fragilisation par les métaux liquides » thèse de doctorat Université des Sciences et Technologies de Lille UFR Physique, Laboratoire de métallurgie physique et génie des matériaux (2001)

## PARTIE 2 : POSITIONNEMENT PAR RAPPORT AUX CRITERES D'ELIGIBILITE

### L'enjeu

L'enjeu du projet est double :

- **enjeu scientifique** : le phénomène de fragilisation par les ML est encore très peu modélisé, car difficilement caractérisable. Son émergence provient d'une compétition tout à fait particulière entre le développement de la plasticité en volume du matériau et sa propension à la rupture fragile depuis la surface où le ML est adsorbé. Il est possible d'apporter par ce projet certaines avancées majeures sur la maîtrise théorique du phénomène et sur sa modélisation.

- **enjeu de sûreté nucléaire**: la modélisation du phénomène et l'évaluation de son risque peuvent conduire à revoir en profondeur les hypothèses actuellement faites par l'IRSN sur la tenue de la cuve d'un REP ou d'un EPR en situation de fusion de cœur (délai et mode de rupture). Par ailleurs, les connaissances capitalisées sur le phénomène au travers de ce projet pourront être d'une grande utilité à l'application sur des réacteurs de 4<sup>ème</sup> génération, en particulier pour ceux où les fonctions caloportrices des ML sont exploitées, comme par exemple les réacteurs ADS (projet européen), ou BREST (projet russe). Notons ici qu'un des avantages majeurs de ce type de réacteurs tient en la non-nécessité de pressurisation du circuit de refroidissement, ce qui limite la dispersion radioactive en cas de fuite.

### La créativité

Le risque de fragilisation de la cuve par les ML en situation d'accident grave avec fusion de cœur n'a jamais été considéré, ni par l'IRSN, ni par aucune autre organisation étrangère compétente en sûreté nucléaire.

### Le risque

Le projet ne comporte pas de risque intrinsèque de non-aboutissement à proprement dit : il s'agit de simuler en éléments finis un phénomène existant et suffisamment caractérisé dans la thèse de G. Nicaise pour que la validité du travail de modélisation théorique puisse être appréciée. Néanmoins, les connaissances actuelles sur le phénomène de fragilisation par les ML présentent encore de nombreuses zones d'ombre, en particulier le rôle joué par la microstructure (extrêmement complexe) des aciers trempés (martensitiques ou bainitiques). La théorie développée par G. Nicaise met en lumière un rôle important de ces microstructures en termes de restriction des systèmes de glissement et de confinements locaux de plasticité. Si la compétition entre endommagement plastique et rupture fragile a été clairement identifiée, certains paramètres énergétiques relatifs aux hétérogénéités intragranulaires de ces microstructures restent à déterminer.

Par ailleurs, outre le cœur du problème, une des principales difficultés pouvant être rencontrée sera de parvenir à une description théorique fine de la nature chimique du corium formé en accident grave et de ses états locaux d'oxydation ou de non-oxydation (possibilité d'influence indirecte sur l'émergence de la fragilisation).

### **Métallurgie Physique et phénoménologie de la fragilisation par les ML**

M. Grégory Nicaise (DSR/SAGR/BPhAG) possède un niveau d'expertise expérimental et théorique sur le phénomène. Ses réalisations marquantes tiennent en la conception inédite et l'utilisation aboutie de plusieurs dispositifs complexes d'essais mécaniques à chaud (600-1200K) en milieu métal liquide, ainsi qu'en la démonstration expérimentale de l'absence de phénomènes diffusionnels dans le mécanisme de la fragilisation induite par adsorption de ML.

M. Grégory Nicaise a également conduit une interprétation aboutie sur les conditions d'émergence du phénomène en identifiant les paramètres influents du couplage [élasto-plasticité en volume/perturbation électronique de surface induite par adsorption] et a mené des calculs ab-initio permettant d'estimer la réduction d'énergie de surface au contact de différents ML. Cette expérience est reconnue à l'international aux travers des références suivantes :

#### **Principales publications**

- *Embrittlement of a martensitic steel by liquid lead, Scripta Materialia*, 43, pp. 997-1001 (2000)
- *Embrittlement of the martensitic steel 91 tested in liquid lead, Journal of Nuclear Materials*, 296 pp.256-264 (2001)
- *Liquid metal embrittlement of the martensitic steel 91: influence of the chemical composition of the liquid metal. Experiments and electronic structure calculations, Journal of Nuclear Materials*, 301 pp. 70-76 (2002)
- *Embrittlement of a Ductile Fe9Cr1Mo Steel by Liquid Metals, Fracture Mechanics Beyond 2000*, vol III/III, pp. 511-518 (2002)
- *The risk of liquid metals, Journal de Physique IV France* 12, Pr8, pp. 217-225 (2002)

#### **Thèse de doctorat**

G. Nicaise : « *Sensibilité de l'acier martensitique Z10CDNbV9-1 à la fragilisation par les métaux liquides* » thèse de doctorat Université des Sciences et Technologies de Lille UFR Physique, Laboratoire de métallurgie physique et génie des matériaux (2001)

### **Potentialité métallique locale du corium**

M. Marc Barrachin (DPAM/SEMIC/LETR) possède un niveau d'expertise reconnu à l'international en modélisation thermo-chimique du corium et en interprétation des essais dans le domaine. L'apport de son expérience sera capital dans la seconde phase du projet, où nous chercherons à définir, de façon précise, la potentialité métallique locale de diverses configurations de corium envisageables en accident grave.

Les travaux les plus récents de M. Marc Barrachin sont axés sur la thermo-chimie complexe des systèmes {U, Zr, Fe,...}O. On en donne ci-dessous une liste non exhaustive:

- *Eutectic crystallization in the FeO<sub>1.5</sub>-UO<sub>2+x</sub>-ZrO<sub>2</sub> system, Journal of Nuclear Materials*, (2009 sous presse)
- *Corium phase equilibria based on MASCA, METCOR and CORPHAD results, Nuclear Engineering and Design*, 238, Iss. 10, pp 2761-2771 (2008)
- *New modelling of the U-O-Zr phase diagram in the hyper-stoichiometric region and consequences for the fuel rod liquefaction in oxidising conditions, Journal of Nuclear Materials*, 375, Iss. 3, pp 397-409 (2008)
- *Phase diagram of the UO<sub>2</sub>-FeO<sub>1+x</sub> system, Journal of Nuclear Materials*, 362, Iss. 1, pp 46-52 (2007)
- *Phase diagram of the ZrO<sub>2</sub>-FeO system, Journal of Nuclear Materials*, 348, Iss. 1-2, pp. 114-121 (2006)

### Les collaborations (externe IRSN)

#### ***Modèle adapté pour le calcul en éléments finis en collaboration avec le LAMCOS (UMR CNRS 5259)***

Une collaboration académique avec le Laboratoire de Mécanique des Contacts et des Structures (UMR CNRS 5259) de l'INSA de Lyon sera mise en œuvre pour les deux phases du projet.

Les interlocuteurs pour cette collaboration seront M. Alain Combescure, directeur du LAMCOS et actuel président de l'association Computational Structural Mechanics Association (CSMA) et M. Michel Coret, enseignant-chercheur au LAMCOS. Ils possèdent une expérience remarquablement conséquente et reconnue en mécanique de l'endommagement et de la rupture, ainsi qu'en développements avancés de modélisation en éléments finis.

Leur regard sur les avancées du projet, ainsi que les orientations qu'ils pourront y donner, nous paraissent indispensables, notamment quant aux méthodes et modèles physiques qui seront déployés pour rendre compte, en éléments finis, des ruptures fragiles et mixtes observées en milieu métal liquide.

Cette collaboration étant de nature académique, sans financement propre, la propriété des résultats sera partagée entre l'IRSN et le LAMCOS, et leur publication sera commune. Un contrat précisant ces termes sera établi.

### La visibilité et l'exemplarité

*Scientifique* : publications et communications

*Sociétale* : prévention du risque lié aux métaux liquides en accident sur les REP et en fonctionnement sur certains réacteurs de 4<sup>ème</sup> génération. Position d'avant-garde de l'IRSN et démonstration de rigueur scientifique des travaux de l'Institut.

Durée : 2 ans

## PARTIE 3 : DUREE ET RESSOURCES NECESSAIRES

### MOYENS HUMAINS IRSN

	Année N (% h.an)	Année N+1 (% h.an)	Total (% h.an)
NICAISE Grégory	20%	20%	40%
Post-Doc*	100%	100%	200%
<b>TOTAL</b>	<b>120%</b>	<b>120%</b>	<b>240%</b>

\* Un post-doctorat par projet; les post-doctorats sont financés à 100 % dans le cadre du dispositif de recherche exploratoire mais leur nombre par campagne est limité à 3 ou 4

### INVESTISSEMENTS ET FONCTIONNEMENT

	Année N	Année N+1	Total
<b>Investissements (k€)</b>			
<i>Les codes de calculs sont déjà présents à DSR, mais il y aura probablement nécessité d'obtenir plusieurs jetons de licence supplémentaires.</i>	10		10
<b>Fonctionnement (k€)</b>			
<i>Formations aux techniques avancées de calcul en élément finis</i>	10		10
<i>Autres frais de fonctionnement</i>	10	10	20
<i>Missions du post-doctorant et du pilote,</i>			
<b>TOTAL</b>	<b>30</b>	<b>10</b>	<b>40</b>
<b>CO-FINANCEMENT (optionnel)</b>			

\* Nécessairement un contrat de collaboration ou une prestation réalisée dans un cadre collaboratif

### UNITE(S) A LAQUELLE (auxquelles) LE BUDGET DOIT ETRE AFFECTE\* :

#### DSR/SAGR-DPAM/SEMIC

\* Le budget sera affecté sur le centre financier de l'unité concernée sur la ligne budgétaire recherche exploratoire (actuellement 08D/TOB-001/02).