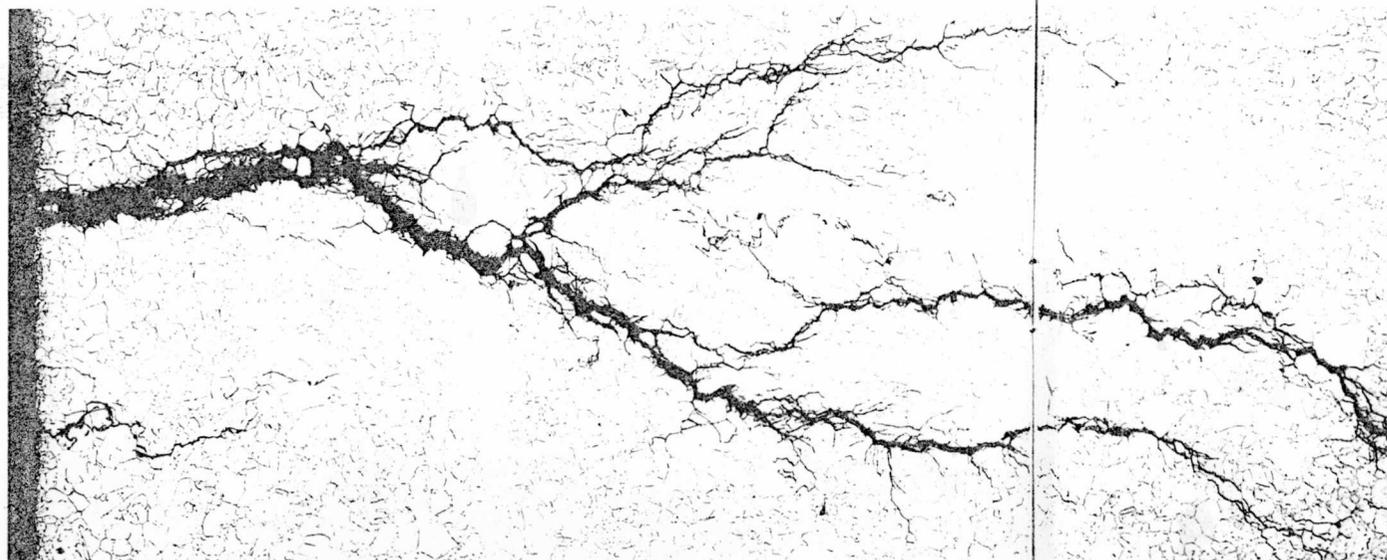


# LA CORROSION SOUS CONTRAINTE DES ALLIAGES DE NICKEL

Parmi les diverses manifestations de la corrosion, la corrosion sous contrainte (CSC) est certainement l'une des formes les plus redoutées dans la mesure où elle se traduit par une fissuration dont la phase de propagation peut être relativement rapide et intervenir après une longue phase d'incubation exempte de tout signe précurseur. Depuis longtemps, le Centre d'études et de recherches sur les matériaux du Commissariat à l'énergie atomique (CEA/Cerem) travaille sur l'étude de cette forme de dégradation des matériaux, notamment sur les aciers inoxydables ainsi que sur les alliages de nickel utilisés dans les réacteurs nucléaires à eau sous pression (REP) pour la réalisation des tubes de générateurs de vapeur (GV). Le sujet étant d'importance pour l'ensemble de l'industrie nucléaire, il a mobilisé beaucoup de chercheurs, d'ingénieurs et de techniciens, un peu partout dans le monde. Dès le début, le CEA s'est situé au cœur de l'action internationale qui s'est déployée, avec de nombreux partenaires comme Électricité de France (EDF) et Framatome en France, Westinghouse et l'Electric Power Research Institute (EPRI) aux États-Unis... Depuis les premières fissurations en service, parades et remèdes ont été mis au point. Néanmoins, le phénomène physique qui se trouve à la racine du problème industriel continue à faire l'objet d'un vaste effort de recherche dont l'enjeu est la prévision quantitative de la CSC.



CEA/Cerem

## Les alliages de nickel

Comme toujours en corrosion, deux acteurs sont en jeu : le matériau et le milieu. Dans le cas des GV, tels ceux mis en service en France entre 1975 et le début des années quatre-vingt-dix, il s'agit de l'Alliage 600 (ou Inconel 600 lorsqu'il est fabriqué par l'Inco) qui est un alliage de nickel (Ni) contenant environ 15 % de chrome (Cr) et 8 % de fer (Fe). Quant au milieu, il est constitué de l'eau du circuit primaire des REP, une eau très pure additionnée d'une faible quantité d'acide borique (quelques grammes par kilogramme

d'eau) neutralisé par de l'hydroxyde de lithium (lithine). C'est à l'intérieur (côté primaire) des tubes en Alliage 600 des GV de REP, dans les zones soumises à de fortes contraintes mécaniques de tension, comme les transitions de dudgeonnage ou les petits cintres (encadré 1), que peuvent se développer des fissures.

Dans les années cinquante, les tubes des premiers GV de REP étaient en acier inoxydable. Toutefois, étant donné que ce type d'alliage est fortement sensible à la CSC en présence de chlorures, polluants possibles du circuit secondaire en cas de fuites au condenseur, certains

constructeurs décidèrent d'utiliser l'Inconel 600. En effet, dans des solutions aqueuses même très concentrées en chlorures et à l'ébullition sous la pression atmosphérique, cet alliage résiste très bien à la CSC.

## L'effet Coriou

Dès le choix de l'Inconel 600 connu, le Service de corrosion du CEA, dirigé à cette époque par Henri Coriou, lança plusieurs essais en autoclave pour vérifier la tenue de cet alliage à la CSC dans l'eau à haute température. Les premières observations, réalisées après

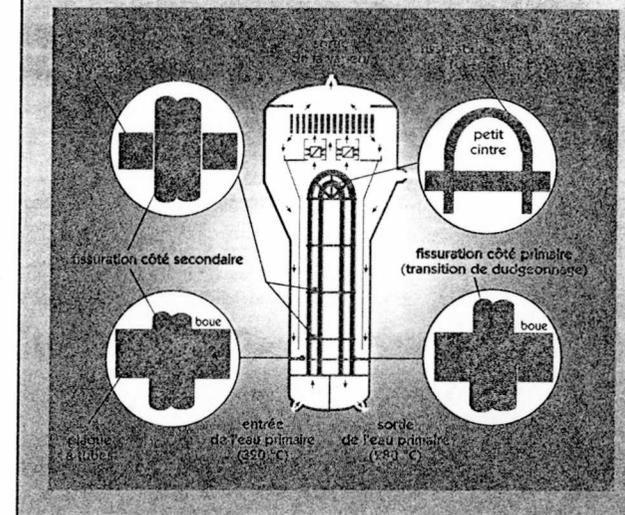


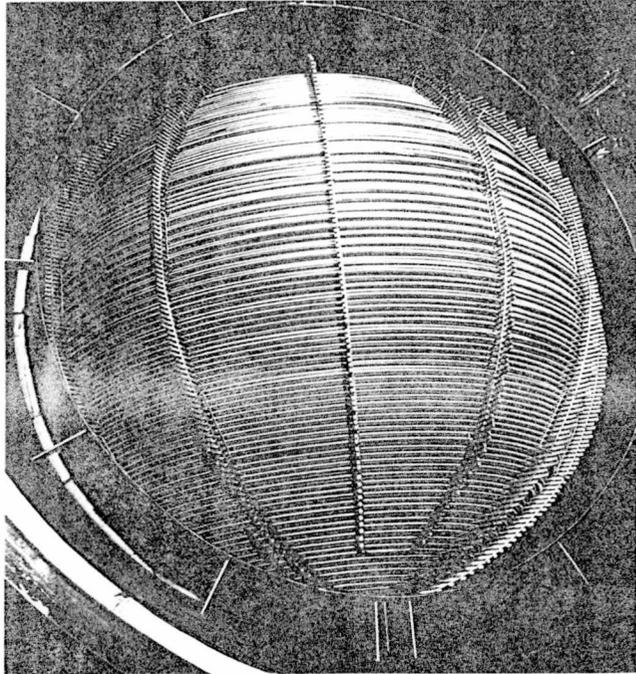
La corrosion sous contrainte (CSC), qui se traduit par la fissuration de certains matériaux, fait l'objet de nombreuses études au CEA. Cette illustration est une micrographie sur coupe d'une éprouvette en Alliage 600 fissurée par CSC dans de l'eau polluée par du plomb (oxyde de plomb) à 360 °C. La profondeur réelle approximative de la fissure est de 1 mm.

## Le générateur de vapeur

Dans une centrale nucléaire à eau sous pression, la chaleur engendrée par les réactions de fission dans le cœur du réacteur est utilisée pour produire de la vapeur d'eau. Par l'intermédiaire de turbines, ce fluide actionne des alternateurs qui produisent l'électricité. La vapeur se forme dans des composants de la centrale appelés générateurs de vapeur (GV), à partir d'une eau qui ne passe pas dans le cœur. Les GV du parc français sont constitués d'un faisceau de tubes en U à l'intérieur desquels circule l'eau chauffée par le cœur (cir-

cuit primaire). C'est à l'extérieur de ces tubes que de l'eau provenant d'un autre circuit (circuit secondaire) est vaporisée. Les tubes des GV sont fixés par dudgeonnage sur une plaque à tubes et ils sont maintenus en place par des plaques entretoises. Les zones de fissuration par corrosion sous contrainte peuvent se situer, du côté primaire, dans les transitions de dudgeonnage et les petits cintres, et, du côté secondaire, au niveau des plaques entretoises et de la boue déposée au-dessus de la plaque à tubes.





Le matériau retenu pour la fabrication des tubes en U des GV du parc français est à présent l'Alliage 690, qui résiste bien à la CSC.



quelques mois d'exposition d'éprouvettes contraintes en flexion, mirent en évidence sur certains échantillons une fissuration de parcours intergranulaire, aussi bien dans l'eau pure que dans le milieu lithié-boriqué simulant l'eau "primaire" des REP, à des températures comprises entre 300 °C et 350 °C (la température de l'eau du circuit primaire des REP varie de 280 °C à 320 °C dans le GV). Ce résultat, publié en 1959 à l'occasion du 3<sup>e</sup> Colloque de Métallurgie de Saclay, fut le point de départ de nombreuses études. En raison des difficultés à reproduire le phénomène au laboratoire, ce n'est qu'avec les premières fissurations constatées en service, au début des années soixante-dix, que l'ensemble de la communauté scientifique reconnut la réalité de ce qui est aujourd'hui appelé l'effet Coriou.

Cet effet n'est pas limité aux tubes de GV. Il concerne toutes les zones où le fluide primaire est en contact avec l'Alliage 600 (piquages des pressuriseurs et adaptateurs des couvercles de cuves). Il s'étend également à des ma-

tériaux voisins de l'Alliage 600, comme l'Alliage X750 des broches de centrage des tubes guides des barres de contrôle.

### Du primaire au secondaire

L'expérience industrielle mondiale a montré que la CSC pouvait, du côté primaire, affecter tous les GV mettant en œuvre l'Alliage 600. Plus récemment, cette fois du côté secondaire des tubes (à l'extérieur), des processus de CSC ont également été observés. Ces derniers apparaissent dans des zones singulières du circuit secondaire où le renouvellement du fluide réfrigérant se fait mal, par exemple les interstices entre tubes et plaques entretoises ou les zones de boues au-dessus de la plaque à tubes. Dans ces régions, l'ébullition du milieu secondaire conduit à concentrer certaines impuretés – il s'agit du phénomène de séquestration – et à créer un milieu favorable au développement d'une corrosion localisée. Là encore, des fissures à parcours intergranulaire sont observées mais il n'est pas certain que le mécanisme en jeu soit rigoureusement identique à celui constaté du côté primaire.

### La corrosion sous contrainte

Il ne paraît pas inutile, à ce stade, de fournir quelques éléments sur la nature des phénomènes de corrosion. La norme internationale ISO 8044 définit la corrosion comme "une interaction physico-chimique entre un métal et son milieu environnant entraînant des modifications dans les propriétés du métal et souvent une dégradation fonctionnelle du métal lui-même, de son environnement ou du système technique constitué par les deux facteurs". Derrière la grande généralité de cette définition se cachent une multitude de causes physico-chimiques possibles pour un résultat global lui-même multiforme.

### Deux types de corrosion

Il est classique de séparer les phénomènes de corrosion en deux groupes

caractérisés par les termes de *corrosion généralisée* et de *corrosion localisée*. La corrosion généralisée est celle qui progresse approximativement à la même vitesse sur l'ensemble de la surface d'un métal ou d'un alliage donné en contact avec un milieu environnant donné. Il s'agit de l'image de la corrosion la plus répandue dans le grand public, celle par exemple d'un matériau qui se dissout ou s'oxyde (se "rouille") à peu près régulièrement sur l'ensemble de sa surface. Il est par contre question de corrosion localisée pour un phénomène d'attaque qui se produit sur des sites discrets de la surface du métal. La corrosion localisée peut apparaître sous forme de piquures, de fissures, de sillons intergranulaires...

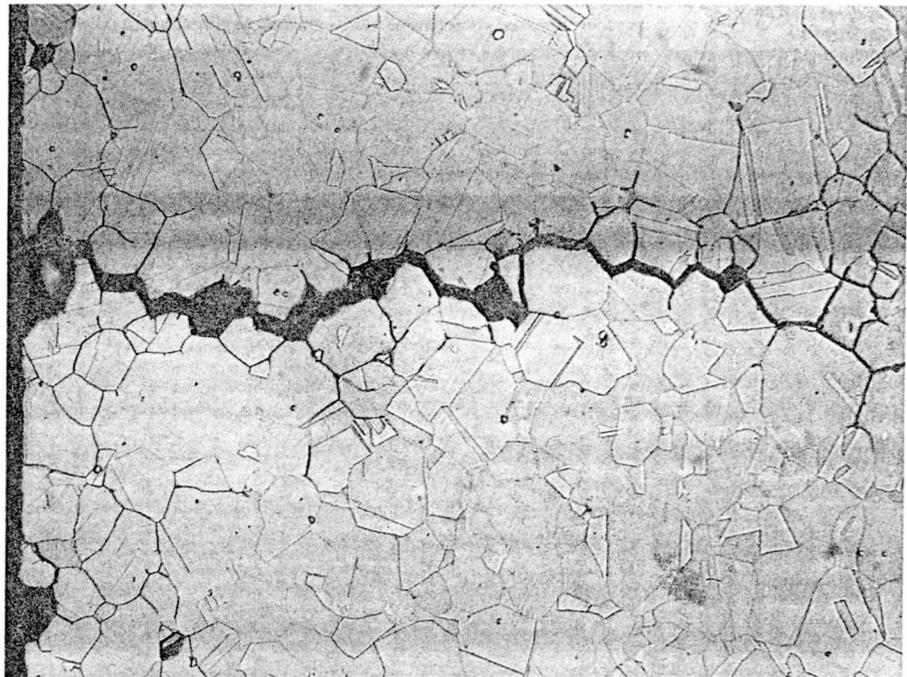
### Une maladie de l'état passif

Contrairement à une idée répandue, c'est souvent la corrosion localisée et non la corrosion généralisée qui, dans les installations industrielles, pose les problèmes les plus préoccupants et les plus difficiles à appréhender. La plu-

part du temps, quand il s'agit de limiter la perte de matière des structures et la pollution des circuits par des produits de corrosion – souci général dans l'industrie nucléaire – il est fait appel à des matériaux, tels les aciers dits "inoxydables" ou les alliages de nickel, qui résistent bien à la corrosion généralisée. Toutefois, cette résistance n'est pas due à une "noblesse" intrinsèque, thermodynamique, du matériau, comme ce serait le cas pour de l'or ou du platine. Au contraire, les matériaux employés contiennent des éléments, du chrome par exemple, qui leur confèrent une forte tendance thermodynamique à l'oxydation. S'ils résistent bien à la corrosion généralisée, c'est parce que ces mêmes éléments conduisent à la formation d'un film protecteur très fin qui bloque presque complètement, pour des raisons cinétiques, le processus d'oxydation : l'alliage est dans un état passif. L'inconvénient de ce type de protection est que toute cause chimique ou mécanique menant à une rupture locale du film passif est susceptible de se traduire par une localisation



Micrographie sur coupe d'une éprouvette en Alliage 600 fissurée par CSC après 9 mois dans le milieu "primaire" à 350 °C. La profondeur réelle approximative de la fissure est de 0,7 mm.



SA-Correm

de la corrosion. Il apparaît que les différentes formes de corrosion localisée sont en quelque sorte des "maladies" génériques de l'état passif. C'est le cas de la CSC pour laquelle, en présence de contraintes mécaniques de tension appliquées ou résiduelles, la déformation entraîne des ruptures du film passif.

Des regroupements et des ramifications

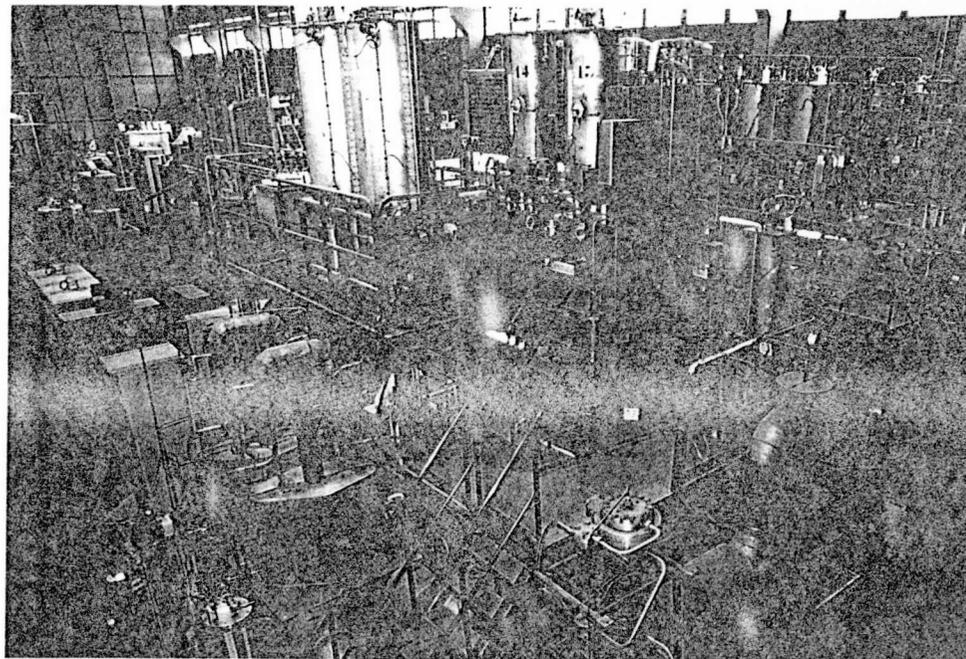
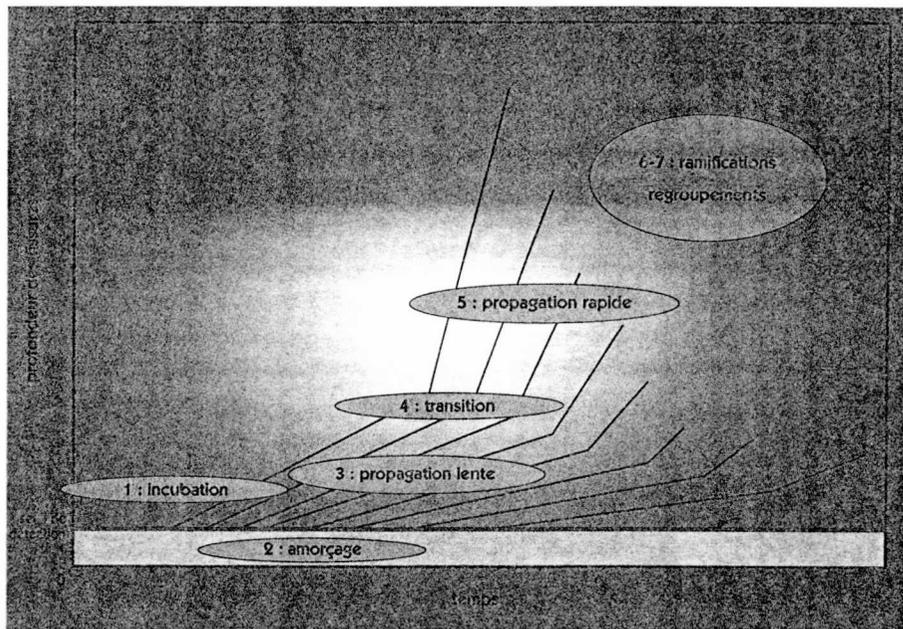
En pratique, la phénoménologie de l'ensemble du processus de CSC est très complexe. Une fois que les conditions chimiques et mécaniques requises par le phénomène sont établies dans l'installation, par exemple après que la séquestration a conduit à une concentration donnée en une certaine impureté, la CSC se développe en plusieurs phases, plus ou moins bien séparées dans le temps (figure 1). La première phase, l'incubation, correspond à une dégradation progressive du film passif, sans attaque apparente du matériau sous-jacent. Elle est suivie par l'amorçage et la propagation des fissures. Ces deux processus sont caractérisés par leurs vitesses, respectivement le

nombre de fissures amorcées par unité de surface et par unité de temps et l'augmentation de profondeur des fissures par unité de temps, qui dépendent de l'ensemble des paramètres physico-chimiques et géométriques du système. La propagation de chaque fissure comprend habituellement deux stades. À un premier stade de croissance à vitesse modérée succède un stade de croissance rapide. Enfin, au-delà d'une certaine taille, des fissures peuvent se ramifier et d'autres se regrouper. Toutes ces phases se terminent parfois par une rupture purement mécanique.

Chimie et mécanique

La plupart des phénomènes évoqués étant interdépendants et les nombreuses étapes que chacun d'entre eux fait intervenir pouvant être chimiques, électrochimiques ou mécaniques, il est concevable que la CSC soit très difficile à analyser et à modéliser. La multiplicité des paramètres, leurs interactions et la nécessité d'une approche pluridisciplinaire sont autant de facteurs qui compliquent la science de la corrosion, comparée par exemple à la mécanique.

Figure 1. Représentation schématique des différentes phases de la CSC.



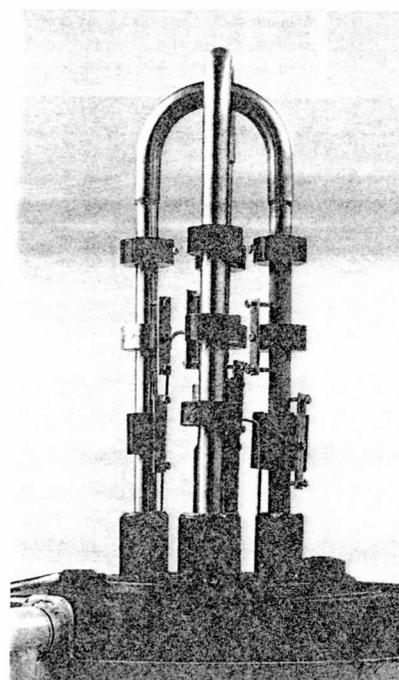
Néanmoins, ces dernières années ont vu apparaître de nets progrès dans l'élaboration des théories et la mise au point de méthodes pour les valider.

Caractériser la corrosion sous contrainte

La complexité du phénomène n'est pas la seule difficulté. Jusqu'à récemment, la confrontation des modèles théoriques aux résultats d'expériences s'est heurtée à l'absence de méthodes pour caractériser quantitativement et séparément les phases d'amorçage et de propagation des fissures. Les nombreux essais de laboratoire et leurs exploitations faisaient appel, pour la plupart, à des méthodes globales. Les résultats ainsi obtenus ont permis de mettre en évidence et de comparer les influences de plusieurs paramètres sans toujours rendre possible l'extrapolation de leurs effets.

Accélérer le phénomène

Habituellement, dans les installations industrielles exposées au risque



Vue générale d'une boucle d'essais de corrosion (boucle AJAX, Laboratoire d'essais technologiques de corrosion, Département d'études du comportement des matériaux/Service de la corrosion, d'électrochimie et de chimie des fluides, la Hague). Les mini GV sont visibles au premier plan, à gauche.

Mini GV. Les bagues autour des tubes simulent des plaques entretoises. Certaines bagues sont munies de lignes de prélèvement du milieu chimique qui remplit l'interstice entre tube et bague.

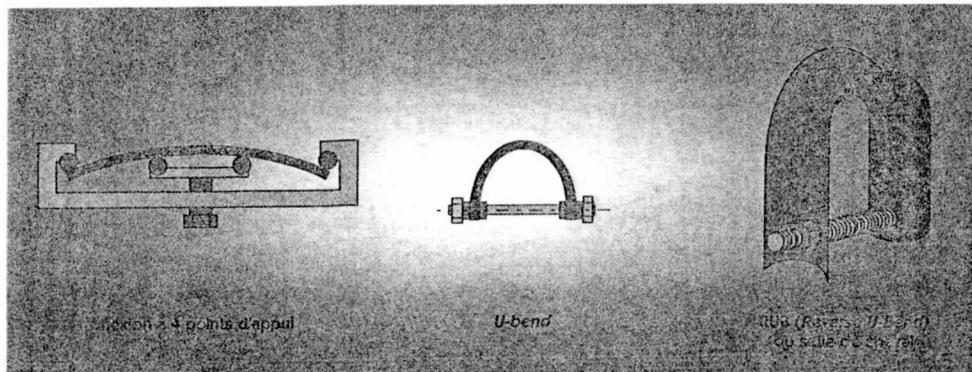
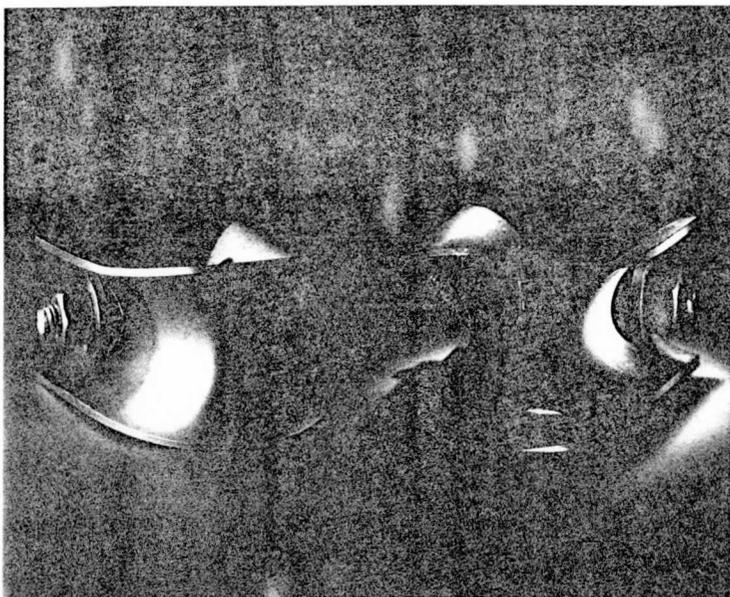


Figure 2. Dispositifs permettant d'imposer une déformation à une éprouvette pour des essais de CSC.



de CSC, les fissures ne s'amorcent et ne se propagent que très lentement et les premières fissurations ne se manifestent généralement qu'après quelques années de fonctionnement. Les études de laboratoire nécessitent donc de recourir à certaines formes "d'accélération". Les méthodes les plus courantes consistent à exagérer la contrainte mécanique ou la température ou les deux à la fois. Pour le cas de l'Alliage 600 dans l'eau, les essais en boucles sur maquettes (mini GV) sont ceux qui reproduisent le plus fidèlement les configurations géométriques et mécaniques

ainsi que les conditions thermohydrauliques. Toutefois, ils ne rendent que très difficilement possible l'étude des effets des nombreux paramètres métallurgiques, chimiques et mécaniques. Pour cette exploration, des autoclaves, récipients instrumentés supportant des températures et des pressions élevées, sont plus couramment utilisés. Des éprouvettes soumises à une déformation imposée (figure 2) y sont placées, en présence du milieu d'essai. Les éprouvettes peuvent également être soumises à des forces de traction ou à des vitesses d'allongement imposées



Éprouvettes "selle de cheval" réalisées chacune à partir d'un demi-tube d'un diamètre d'environ 2 cm. L'éprouvette de droite, qui a été placée dans un milieu d'essai, présente des fissures de CSC.

A. Gonnin/CEA

(figure 3). La plupart de ces méthodes n'ont longtemps fourni que des résultats globaux, exprimés par exemple en termes de durées à rupture ou de caractéristiques mécaniques apparentes. Des méthodes plus fines d'exploitation de ces essais ont été développées (encadré 3). Elles permettent de calculer des vitesses d'amorçage et de propagation des fissures. Pour la détermination expérimentale de cette dernière vitesse, dans le cas de fissures isolées, des méthodes de suivi électrique sont mises en œuvre. Elles consistent en des mesures de résistance électrique d'éprouvettes, cette caractéristique étant affectée par la propagation des fissures.

### Les principaux résultats

Sans attendre ces méthodes récentes, les essais globaux réalisés sur l'Alliage 600 depuis le début ont permis de caractériser l'effet Corioui dans ses grandes lignes. Il ne saurait être question ici d'une liste exhaustive des résul-

tats. Seules seront évoquées les influences de trois types de facteurs : la microstructure, la sollicitation mécanique et enfin la pression partielle en hydrogène.

Il a été découvert que la sensibilité de l'Alliage 600 à la CSC en milieu primaire était très largement influencée par sa microstructure. Cette constatation explique partiellement la difficulté, pour les premiers expérimentateurs, à maîtriser la reproductibilité des résultats d'essais, difficulté qui se trouve sans doute à l'origine de la polémique soulevée par les premiers résultats du CEA. En effet, la microstructure est liée à toute l'histoire de l'échantillon utilisé. Pour un tube de GV, elle n'est pas homogène dans toute son épaisseur et dépend de l'ensemble des traitements thermomécaniques subis au cours de la fabrication ainsi que de la teneur en carbone. On peut résumer les résultats en mentionnant que les microstructures les plus résistantes sont habituellement celles pour lesquelles les précipités de

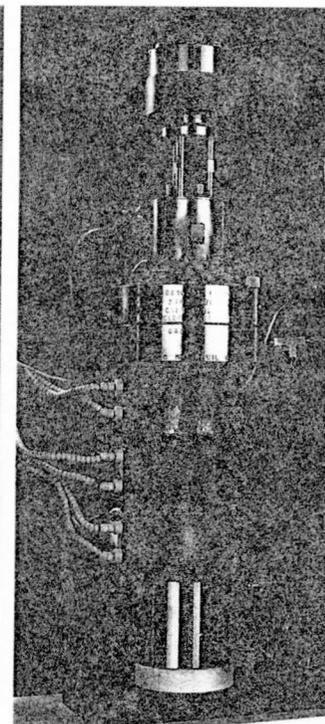
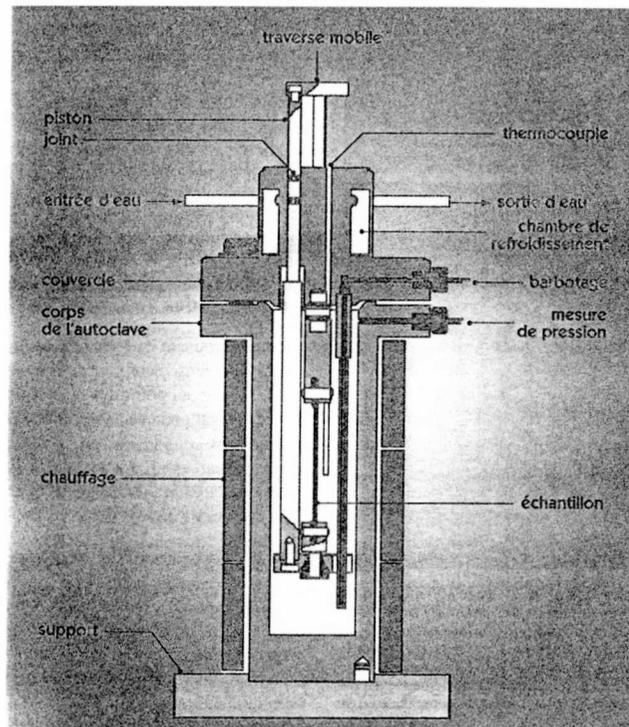
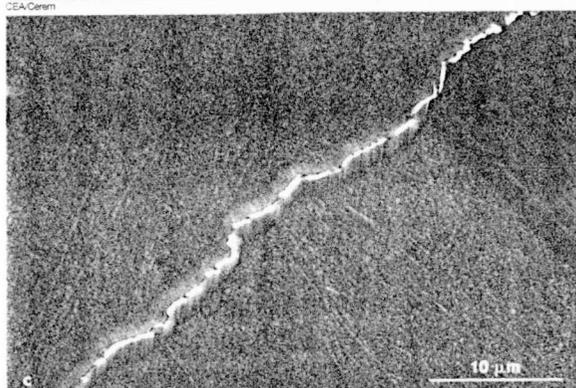
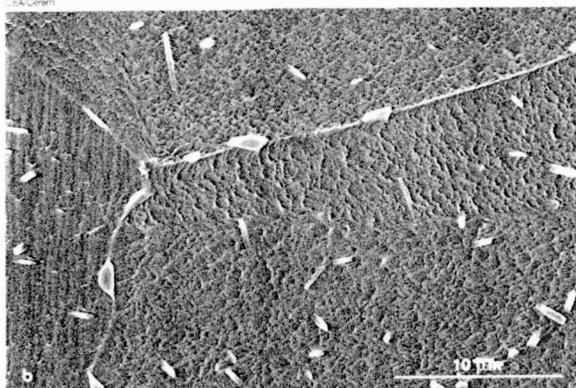
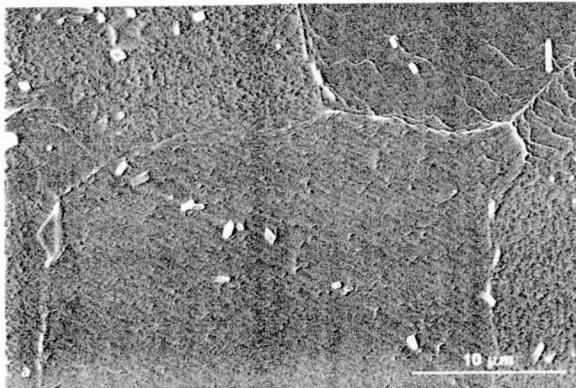


Figure 3. Autoclave instrumenté pour des essais de CSC à vitesse d'allongement imposée.

A. Gonnin/CEA



Micrographies sur coupes d'Alliage 600 montrant la répartition des carbures après différents traitements thermiques. La précipitation des carbures (en clair) est uniquement intragranulaire en a, mixte en b et uniquement intergranulaire en c. Les microstructures ont été révélées par attaque au réactif brome-méthanol. La dimension approximative des grains est de 30  $\mu\text{m}$ .

carbures sont en majorité intergranulaires. Un traitement thermique de 16 h à 700 °C, conduisant à une précipitation intergranulaire des carbures, a généralement un effet bénéfique.

L'effet de la sollicitation mécanique est plutôt complexe. Pour une éprouvette de traction soumise à une force imposée, la durée à rupture est assez bien décrite par une fonction puissance de la contrainte globale, d'exposant compris entre -4 et -6. Toutefois, cette modélisation ne sépare pas les parts respectives de l'incubation, de l'amorçage et de la propagation. Par ailleurs, des résultats d'essais de traction à vitesse d'allongement imposée conduisent à proposer, pour la vitesse de propagation des fissures, une fonction puissance de la vitesse de déformation globale, avec un exposant voisin de 0,5.

De l'hydrogène étant volontairement injecté dans le circuit primaire des REP pour limiter la teneur en espèces oxydantes provenant de la radiolyse, l'influence de la pression partielle en hydrogène sur la CSC de l'Alliage 600 a fait l'objet de plusieurs études. À 360 °C, la vitesse de propagation des fissures passe par un maximum pour une pression partielle d'hydrogène proche de 15 kPa. Ce comportement pourrait traduire la compétition entre deux effets antagonistes de l'hydrogène, l'un électrochimique et l'autre mécanique.

### Les remèdes

Comme souvent en recherche appliquée, et heureusement pour les industriels, la mise au point des remèdes a précédé la compréhension détaillée des phénomènes.

#### Supprimer les contraintes de tension

Le développement de la CSC nécessitant la présence de contraintes mécaniques de tension, souvent résiduelles, une bonne façon d'éviter la fissuration est de les réduire. Pour y parvenir, on a recours à des traitements thermiques ainsi qu'à des traitements mécaniques. Dans les gv, la première solution est

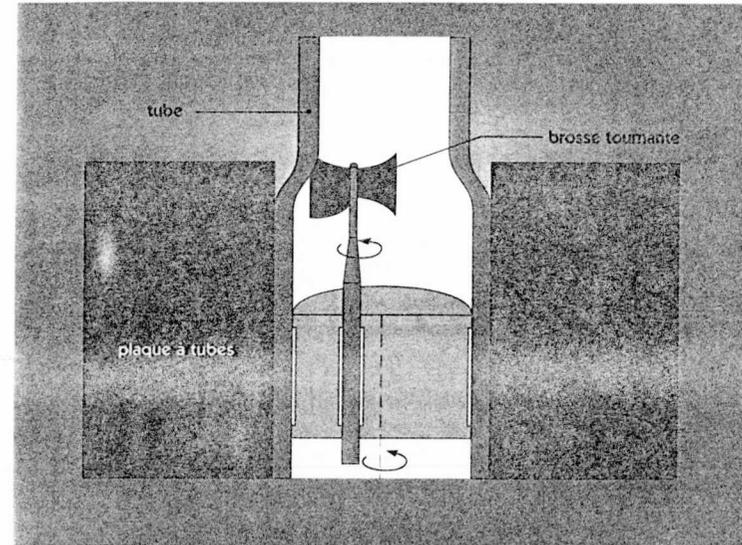


Figure 4. Schéma de principe du micromartelage des tubes de GV à l'aide d'une brosse tournante.

utilisée pour les cintres, parties coudees supérieures des tubes qui, du fait de leur géométrie, peuvent présenter des contraintes résiduelles de tension assez élevées. Un traitement thermique à 700 °C conduit à leur "détensionnement" ainsi qu'à une précipitation de carbures favorable à leur résistance à la CSC.

Au niveau de la plaque à tubes, dans les zones dudgeonnées et dans les zones de transition de dudgeonnage, les techniques de microbillage et de micromartelage (figure 4) permettent d'éliminer les contraintes résiduelles de tension par mise en compression de la paroi interne des tubes.

#### Manchonage et revêtement

Une autre méthode consiste à éviter le contact direct entre le tube et le milieu. Dans les zones dudgeonnées, ce résultat peut être obtenu par la réalisation d'un dépôt électrolytique de nickel. Il est également possible de protéger la zone par un manchon en Alliage 690 soudé à ses deux extrémités.

#### L'Alliage 690

L'Alliage 690 (60 % Ni, 30 % Cr, Fe) est pratiquement insensible à l'effet Coriou et les études de laboratoire

montrent qu'il est aussi beaucoup plus résistant que l'Alliage 600 à la corrosion intergranulaire côté secondaire. C'est cet alliage, traité thermiquement (5 h à 700 °C), qui a finalement été retenu par Framatome pour le tubage des gv, qu'il s'agisse de ceux équipant désormais les nouvelles centrales ou de ceux qu'EDF a commencé à installer en remplacement des gv plus anciens.

#### Agir sur la chimie

Pour lutter contre la CSC dans les gv, les exploitants disposent également d'outils chimiques. Une première méthode, passive, consiste à éviter le plus possible les espèces chimiques nocives. Des spécifications très rigoureuses limitent, par exemple, les teneurs admissibles en ions sodium. Les différentes sources potentielles de pollutions néfastes (soufre, plomb) sont aussi soigneusement évitées. Une deuxième technique, active, repose sur l'utilisation d'inhibiteurs de la CSC. Ainsi, des additions de sels de zinc dans le circuit primaire permettent de ralentir la CSC et des ajouts d'acide borique dans le circuit secondaire sont efficaces contre la corrosion intergranulaire provoquée par des pollutions caustiques.

## Un exemple de modèle mécaniste

2

La CSC résulte de l'action conjuguée du milieu environnant et d'une déformation du matériau métallique sous l'effet de contraintes mécaniques appliquées ou résiduelles. Elle se traduit par l'amorçage et la propagation de fissures dans le matériau, qui se comporte alors comme s'il était fragile tandis qu'en l'absence d'environnement corrosif il serait ductile.

L'un des premiers mécanismes proposés pour rendre compte de ce phénomène consiste à considérer qu'au cours de la propagation des fissures deux étapes clés successives se répètent périodiquement à leurs pointes : la rupture d'un film passif et la "repassivation" de la surface ainsi mise à nu. Dans ce modèle, l'avancée de la fissure est uniquement due à la perte de matériau métallique par oxydation et dissolution découlant des étapes de repassivation.

Avec ces hypothèses, la vitesse moyenne de propagation des fis-

tures peut être explicitée à partir de la loi de Faraday de la façon suivante :

$$v = \frac{M Q \dot{\epsilon}}{\rho z F \epsilon_r}$$

$M$  représentant la masse atomique du métal,  $\rho$  sa masse volumique,  $F$  la constante de Faraday,  $z$  le nombre d'électrons mis en jeu lors de la réaction globale d'oxydation des atomes du métal,  $Q$  la densité de charges échangées entre deux événements de rupture du film,  $\epsilon_r$  la déformation nécessaire à la rupture du film et  $\dot{\epsilon}$  la vitesse de déformation en fond de fissure.

La cinétique de repassivation est souvent caractérisée par une densité de courant fonction puissance du temps :

$$j = k_r t^{-n}$$

Il est alors possible, par intégration de cette expression, de calculer la densité de charges échangées

entre deux événements de rupture du film :

$$Q = \frac{k_r}{1-n} t^{1-n} = \frac{k_r}{1-n} \left( \frac{\epsilon_r}{\dot{\epsilon}} \right)^{1-n}$$

ce qui conduit à exprimer la vitesse de propagation des fissures sous la forme :

$$v = \frac{M k_r \epsilon_r^{-n} \dot{\epsilon}^n}{\rho z F (1-n)}$$

où  $k_r$  et  $n$  sont des constantes cinétiques caractéristiques du processus de repassivation.

Ce modèle est l'un des rares qui parviennent à proposer une expression analytique pour la vitesse de propagation des fissures. Cependant, ses prévisions ne sont pas toujours vérifiées et il ne tient pas compte de certains aspects importants des fissurations observées attribuables à des modifications de caractéristiques mécaniques du matériau au voisinage de la pointe des fissures.

elles permettent de converger vers la compréhension du phénomène de CSC et sa prévision quantitative.

### Les modèles mécanistes

L'approche mécaniste (*mechanistic* en anglais) consiste à rechercher, parmi les multiples étapes physico-chimiques intervenant dans le processus global de CSC, celle ou celles qui contrôlent effectivement les vitesses d'amorçage et de propagation des fissures. Suivant les importances relatives qu'ils accordent à ces différentes étapes, les chercheurs élaborent des modèles variés à tendance plutôt chimique ou plutôt mécanique (encadré 2). Ainsi, pour certains, la propagation des fissures est due essentiellement à la perte de métal par dissolution électrochimique alors que pour d'autres, elle résulte d'une interaction entre dissolution et déformation ou encore de la fragilisation du métal par formation d'une phase solide ou gazeuse. Plus d'une dizaine de ces mo-

dèles sont recensés de sorte que, même si ouvrir de nouvelles voies théoriques reste réalisable, il convient aussi, aujourd'hui, de trier parmi les diverses possibilités déjà identifiées. Ce tri ne peut être opéré que par comparaison avec des résultats d'expériences. Il faut donc que les modèles proposés deviennent vraiment quantitatifs, ce qui n'est pas encore le cas pour la plupart d'entre eux. Cet effort de quantification est l'un des premiers objectifs de la recherche actuelle dans ce domaine.

### La modélisation phénoménologique

Toutefois, il ne suffit pas de disposer de modèles mécanistes quantitatifs. Encore faut-il que soient connues les lois de comportement issues de l'expérience et susceptibles d'être comparées aux prévisions de l'approche mécaniste. Il est en particulier indispensable de connaître les vitesses d'amorçage et de propagation exprimées en fonction des paramètres mécaniques pertinents.

## Caractérisation quantitative de l'amorçage et de la propagation des fissures

3

La mise au point de méthodes fiables pour la prévision quantitative de la CSC dans les installations industrielles passe par la possibilité de confronter les résultats issus des nombreuses tentatives de modélisation mécaniste à ceux des essais de laboratoire. Pour ouvrir la voie à cette confrontation, le Service de corrosion du CEA a développé un outil méthodologique appelé *modèle morphologique* permettant, sans aucune hypothèse concernant les mécanismes, de caractériser quantitativement les cinétiques des phénomènes d'amorçage et de propagation des fissures de CSC. Plus précisément, ce modèle utilise comme données expérimentales de base les distributions des profondeurs des fissures pour le calcul des fonctions cinétiques que sont la vitesse d'amorçage et la vitesse de propagation.

L'application du modèle morphologique a permis d'obtenir de nombreuses informations sur le déroulement des processus complexes de fissuration multiple par CSC. Ainsi, dans le cas d'un acier inoxydable (Z2 CN 18.10) en présence d'une solution aqueuse concentrée (44 % massique) de chlorure de magnésium à l'ébullition (153 °C), la vitesse de propagation

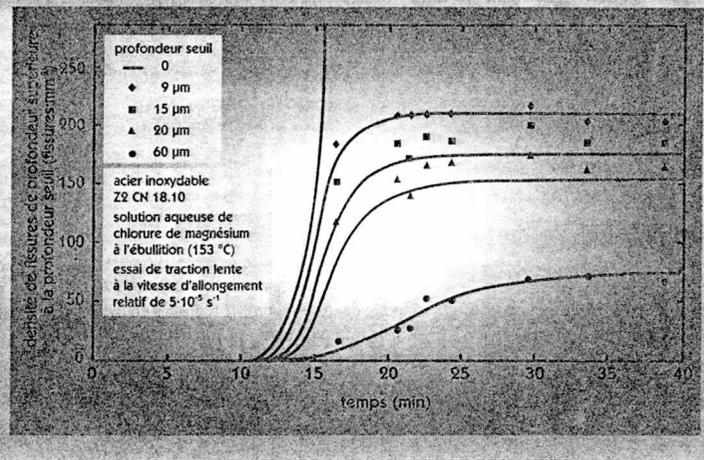
d'une fissure a été exprimée analytiquement en fonction de sa profondeur et de la densité de fissures plus profondes. Ce dernier paramètre traduit un "effet d'écran" d'origine mécanique exercé par les fissures de grande taille. À partir de cette expression, une vitesse d'amorçage "vrai" a été calculée par extrapolation.

Cette représentation analytique de l'amorçage et de la propagation des fissures a permis de rendre compte de la saturation observée lors de la détermination expérimentale de l'amorçage apparent. Au cours du temps, le nombre de fissures de profondeur supérieure à une profondeur seuil tend vers une valeur limite qui dépend très fortement du seuil choisi

(schéma ci-dessous). Cet effet de saturation est interprété comme provenant exclusivement du comportement en propagation des petites fissures, la vitesse d'amorçage vrai pouvant être exprimée sous la forme simple d'une fonction puissance du temps.

Dans le cas d'essais de traction lente, il a été montré que les paramètres cinétiques caractéristiques de l'amorçage et de la propagation dépendent de la vitesse d'allongement imposée. En particulier, la vitesse de propagation initiale des fissures croît avec la vitesse d'allongement.

Toutes ces informations quantitatives constituent un guide très précieux pour la recherche des mécanismes.



## Propagation lente et propagation rapide des fissures

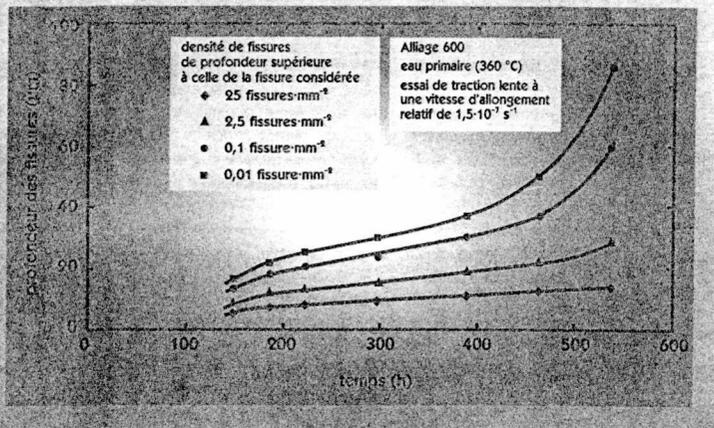
Connaître le détail du processus de propagation des fissures de CSC est d'une importance capitale pour la mise au point des modèles de prévision. En effet, l'accélération de la propagation des fissures les plus profondes est habituellement à l'origine de l'amorçage apparent de la fissuration, autrement dit de l'apparition d'une fissure macroscopique à croissance rapide susceptible de conduire à la rupture d'un composant d'une installation. Les différents régimes de propagation des fissures ont fait l'objet de plusieurs études au Service de corrosion du CEA et une attention particulière a été portée à l'Alliage 600 des tubes de GV de REP en présence d'eau à température élevée. Ces travaux ont largement fait appel au modèle morphologique.

Il a été montré que, dans une population de fissures, les plus petites, c'est-à-dire celles qui se sont amorcées les dernières ou celles qui ont le nombre le plus élevé de fissures plus profondes

qu'elles, ont une vitesse de propagation constamment décroissante au cours du temps et finissent pratiquement par s'arrêter (schéma ci-dessous). Par contre, les grandes fissures commencent par ralentir puis accélèrent brusquement. La transition entre ces deux stades de propagation a longtemps été attribuée au passage de la frontière entre la zone écaillée superficielle des tubes de GV et le cœur du matériau. Cependant, des études récentes ont mis en évidence que l'accélération de la propagation se pro-

duit même en l'absence de couche écaillée.

La modélisation a permis de définir des paramètres caractéristiques de la propagation. L'influence de divers facteurs mécaniques et chimiques sur ces paramètres a été étudiée. Il est apparu, par exemple, que la vitesse moyenne de propagation des petites fissures passait par un maximum pour une certaine teneur en hydrogène du milieu aqueux (voisine de  $25 \text{ mL.kg}^{-1}$  et correspondant à une pression partielle d'environ 15 kPa).



Conscient de cette nécessité, le CEA a développé, depuis quelques années, des méthodes théoriques originales pour la modélisation phénoménologique quantitative (encadrés 3 et 4) et ainsi passer au crible les modèles mécanistes.

### Des progrès notables

Des avancées significatives dans les concepts théoriques et dans la mise au point de remèdes ont été réalisées et une voie originale pour une meilleure compréhension et une modélisation de la CSC a été ouverte. Le CEA participe tout particulièrement à cet effort : il est bien placé pour bénéficier de la "pédagogie de l'effet Coriou" ! En collaboration

étroite avec des laboratoires d'EDF et de Framatome, le Service de corrosion du CEA s'efforce de développer les liens amont-aval entre les chercheurs, les concepteurs et les exploitants et d'affiner les méthodes de prévision. Comme la médecine, la corrosion est longtemps restée un art mais elle commence à devenir une science prédictive : une aventure qui devrait susciter des vocations... ●

**Gérard Santarini**

Département d'études du  
comportement des matériaux  
Centre d'études et de recherches  
sur les matériaux  
Direction des technologies avancées  
CEA/Fontenay-aux-Roses