



**HAL**  
open science

## Corrosion sous contrainte assistée par l'irradiation en milieu primaire d'aciers inoxydables austénitiques

Morgane Le Millier, Alain Barbu, Olivier Calonne, Jérôme Crépin, Brigitte Décamps, Cecilie Duhamel, André Pineau, Mohamed Sennour

### ► To cite this version:

Morgane Le Millier, Alain Barbu, Olivier Calonne, Jérôme Crépin, Brigitte Décamps, et al.. Corrosion sous contrainte assistée par l'irradiation en milieu primaire d'aciers inoxydables austénitiques. Matériaux 2010, Oct 2010, Nantes, France. 6 p. hal-00570589

**HAL Id: hal-00570589**

<https://minesparis-psl.hal.science/hal-00570589v1>

Submitted on 1 Mar 2011

**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.

## CORROSION SOUS CONTRAINTE ASSISTEE PAR L'IRRADIATION EN MILIEU PRIMAIRE D'ACIERS INOXYDABLES AUSTENITIQUES

Morgane LE MILLIER<sup>a</sup>, Alain BARBU<sup>b</sup>, Olivier CALONNE<sup>c</sup>, Jérôme CREPIN<sup>a</sup>, Brigitte DECAMPS<sup>d</sup>, Cécilie DUHAMEL<sup>a</sup>, André PINEAU<sup>a</sup>, Mohamed SENNOUR<sup>a</sup>

<sup>a</sup>MINES ParisTech, MAT- Centre des matériaux, CNRS UMR 7633, BP 87 91003 Evry, FRANCE  
morgane.le\_millier@mines-paristech.fr; jerome.crepin@mines-paristech.fr; cecilie.duhamel@mines-paristech.fr;  
andre.pineau@mines-paristech.fr; mohamed.sennour@mines-paristech.fr

<sup>b</sup>CEA-DEN/Département des matériaux pour le nucléaire, service de recherches de métallurgie physique,  
CEA/Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette, FRANCE  
alain.barbu@cea.fr

<sup>c</sup>AREVA NP, Centre Technique, 30 boulevard De l' Industrie 71200 Le Creusot, FRANCE  
olivier.calonne@areva.com

<sup>d</sup>Centre de Spectrométrie Nucléaire et de Spectrométrie de Masse (CSNSM), CNRS-IN2P3-Univ.Paris-Sud 11,  
UMR 8609, Bât. 108, 91405 Orsay, FRANCE  
decamps@csnsm.in2p3.fr

---

### **RESUME:**

Les internes de cuves des REP sont soumis à divers modes de sollicitation, notamment de corrosion sous contrainte assistée par l'irradiation (IASCC). L'objectif de ce travail est d'étudier le couplage de plusieurs phénomènes physiques et chimiques interagissant en IASCC. En particulier, nous nous intéresserons au couplage microstructure (hétérogénéités chimique, cristallographique, nature des joints de grains...) / mécanismes de déformation / mécanismes d'irradiation / effet de l'environnement / champs mécaniques.

Nous présenterons notamment la méthodologie et les premiers résultats concernant l'irradiation aux protons sur matériau massif et les essais de corrosion sous contrainte associés ; ainsi que la méthodologie concernant l'irradiation de lames minces qui sera effectuée sur la plate-forme JANNUS du CSNSM, où le matériau sera exposé simultanément à un faisceau d'irradiation et un faisceau d'implantation d'hélium.

**MOTS-CLES :** Irradiation, aciers inoxydables, corrosion sous contrainte

---

### **Introduction**

Cette thèse s'inscrit dans le cadre de la chaire sur les matériaux du nucléaire soutenue par AREVA et portée par Mines-Paristech et porte sur l'étude de la corrosion sous contrainte assistée par l'irradiation (IASCC) des internes de cuve des Réacteurs à Eau Pressurisée (REP). Il s'agit d'améliorer la compréhension des effets d'irradiation sur le comportement mécanique de ces structures en milieu primaire. Cette étude concerne les aciers inoxydables austénitiques du type 304L.

L'irradiation des internes de cuve des REP (jusqu'à 100 dpa après 40 ans de fonctionnement) entraîne un durcissement et une fragilisation des matériaux, aboutissant dans certains cas à leur fissuration [1]. Ainsi des retours d'expériences depuis les années 1960 font état de fissurations intergranulaires sur différents composants internes pour des doses d'irradiation supérieures à 2 dpa. Il s'agit notamment des gaines de barres de contrôle (acier type 304L) et des pièces de visserie (acier type 316L). [2]

L'irradiation engendre des modifications microstructurales, en particulier de la ségrégation induite par l'irradiation (RIS en anglais) des éléments chimiques, et la formation de défauts (boucles de dislocations, cavités, précipités). La taille et la densité des boucles de dislocations augmentent rapidement puisaturent pour une dose de 3 dpa environ. La formation de ces défauts aboutit d'un point de vue comportement mécanique à une augmentation de la limite d'élasticité d'un facteur 3 à 10 suivant la dose d'irradiation reçue [3].

De plus, des réactions de transmutation du bore et du nickel, éléments présent dans les matériaux étudiés, peuvent également entraîner la formation de bulles d'hélium [4].

L'IASCC des aciers austénitiques inoxydables en milieu primaire résulte donc d'un couplage de plusieurs processus physico-chimiques. De récentes études se sont intéressées à la ségrégation des éléments majoritaires et minoritaires de ces alliages ou encore à la localisation de la déformation ou à l'effet de la nanostructuration. Si l'ensemble de ces travaux contribuent à une meilleure compréhension de ce phénomène, aucun facteur prépondérant provoquant cet état de fissuration n'a été identifié.

Le matériau d'étude choisi ici est un acier austénitique inoxydable 304L fourni par Le Creusot-AREVA NP. Suite à une première campagne d'irradiation et d'essais de traction lente effectuée par AREVA NP, nous avons pu observer la présence de fissures en partie intergranulaires sur des échantillons irradiés à 5 et 10 dpa. Ces essais ont permis de s'assurer que le matériau choisi présentait bien une sensibilité à la corrosion sous contrainte assistée par l'irradiation dans les conditions d'irradiation et d'études déterminées, et qu'une irradiation à 5 dpa s'avérait suffisante en vue d'étudier le phénomène.

De plus, une proposition d'expérience sur la plateforme JANNUS a été déposée et acceptée. Des lames minces seront exposées simultanément à un faisceau d'irradiation (Aramis) et un faisceau d'implantation d'hélium (Irma).

Le couplage double faisceaux / microscope électronique en transmission permettra de suivre in situ les conséquences de ce type de sollicitation sur la microstructure du matériau.

**Caractérisation du matériau:**

Le matériau se présente sous la forme d'une plaque laminée de taille 230x145x18 mm<sup>3</sup>. La composition chimique de ce matériau est présentée dans le tableau ci-dessous :

	Fe	C	Cr	Ni	Mn	Mo	Si	Cu	S	P	Co	B	N	Al
% (mass.)	68,33	0,029	19,38	9,18	1,72	0,356	0,539	0,187	0,002	0,031	0,164	0,002	0,066	0,016

Tableau I : Composition chimique déterminée par analyse ICP de l'acier 304L étudié

Les différents outils qui ont été utilisés pour la caractérisation de la microstructure sont le microscope optique, le microscope électronique à balayage et la microsonde de Castaing. Après découpe dans la plaque, des échantillons ont été polis miroir (papier SiC puis finition diamant jusqu'au micron) et attaqués électrolytiquement à l'acide oxalique entre 10 et 70s.

La présence de bandes de ferrite, alignées dans le sens du laminage, est observée (figure 1(a) et figure 2 (a)), avec un taux théorique, d'après la formule proposée par Massoud et al. approchant les 5% [5]. La présence de carbures aux joints de grains a été soulignée. La répartition des précipités est hétérogène et la microstructure fortement maclée (figure 2(b)). Une analyse par microsonde de Castaing des précipités révèle la présence de sulfures de manganèse et de carbures de chrome (figure 1(b)).

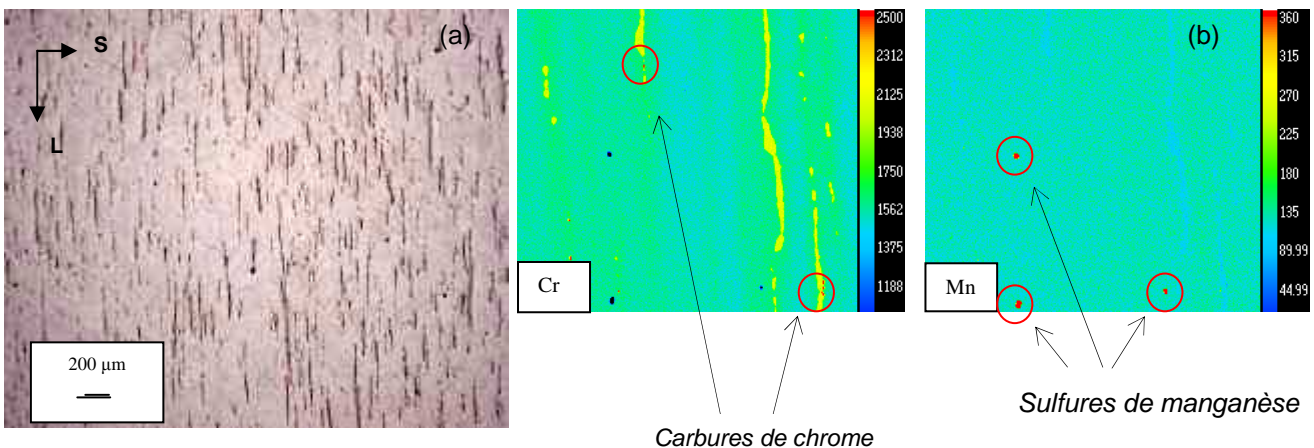


Figure 1 : (a) 304L attaqué 10s observé au microscope optique. Présence de nombreuses bandes de ferrite allongées dans le sens du laminage, (b) microsonde de Castaing. Présence de carbures de chrome et de sulfures de manganèse.

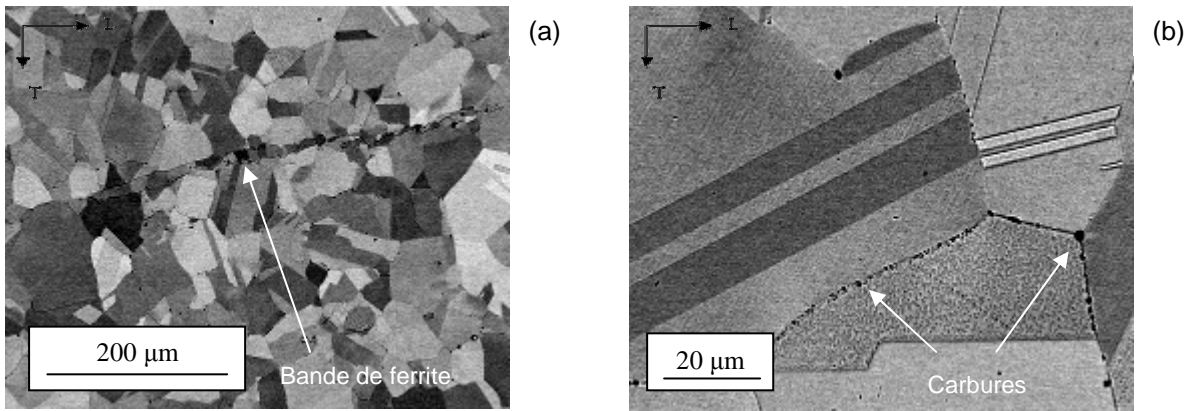


Figure 2 : Micrographie MEB, électrons rétrodiffusés. (a) Lamelle de ferrite dans la matrice austénitique, (b) macles et carbures aux joints de grains.

Afin d'étudier l'influence de la précipitation des carbures, différents traitements thermiques de réhomogénéisation ont été testés. Des traitements thermiques à 1040°C sous vide, avec des durées comprises entre 5 minutes et 2 heures ont été effectués. Ces recuits sont suivis d'une trempe à l'air puis à l'eau.

D'après les observations au microscope optique, nous avons constaté après les traitements de 5 min, 20 min et 40 min que les carbures étaient toujours présents (figure 3(a)). La ferrite a tendance à s'arrondir et la taille de grains augmente légèrement. La taille initiale est de 50 μm et la taille obtenue après traitement est d'environ 70 μm.

Un traitement de 1h ou plus s'avère suffisant pour éliminer les carbures (figure 3(b)). La globulisation de la ferrite est confirmée. Afin d'éviter un grossissement trop important des grains, nous limiterons par la suite le traitement appliqué à 1h.

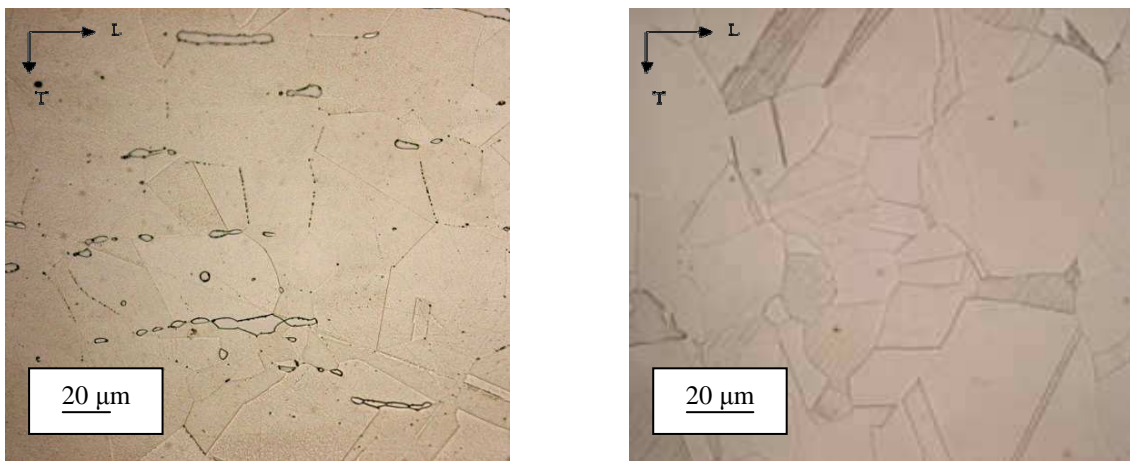


Figure 3 : Microscopie optique après hypertrempe : (a) 20 min sous vide à 1040°C et trempe, présence de carbures et globulisation de la ferrite, (b) 1h sous vide à 1040°C et trempe, absence de carbures

### Irradiations et essais de corrosion sous contrainte

Une première campagne d'irradiations aux protons à 5 et 10 dpa (déplacement par atome) a été effectuée au Michigan Ion Beam Laboratory (Université du Michigan, Ann Arbor, USA) par AREVA NP. Les plaques ont une dimension de 40\*20\*1 mm<sup>3</sup>, la taille de la zone irradiée est de 18\*10 mm<sup>2</sup> et la profondeur d'irradiation d'environ 10 μm. Les irradiations ont été effectuées à 360°C.



Suite à ces irradiations, des essais de traction lente (vitesse de déformation de  $2 \cdot 10^{-7} \text{ s}^{-1}$  jusqu'à 10% de déformation) en autoclave ont été réalisés au Centre Technique du Creusot (AREVA NP). Ces essais ont tous été conduits en milieu primaire simulé, c'est-à-dire dans de l'eau à 325°C ou 350°C avec une pression en hydrogène de 0,3 bars et une concentration en lithium et en bore de respectivement 2 et 1200 mg/L. La figure 4 présente la géométrie des éprouvettes irradiées et testées.

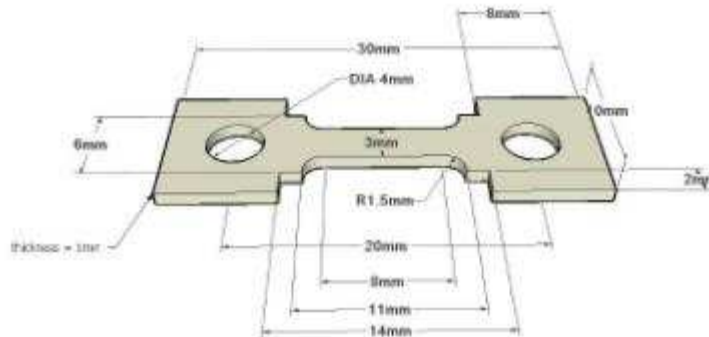


Figure 4: géométrie des éprouvettes irradiées à 5 et 10 dpa [O. Calonne, Centre technique du Creusot, AREVA NP]

Les caractérisations de surface post-expérimentations de ces éprouvettes, au microscope électronique à balayage et au microscope optique, montrent la présence de fissures en partie intergranulaires (figure 5). Les échantillons irradiés à 10 dpa présentent une fissuration plus importante (en termes de densité et de longueur de fissures) que les échantillons irradiés à 5 dpa.

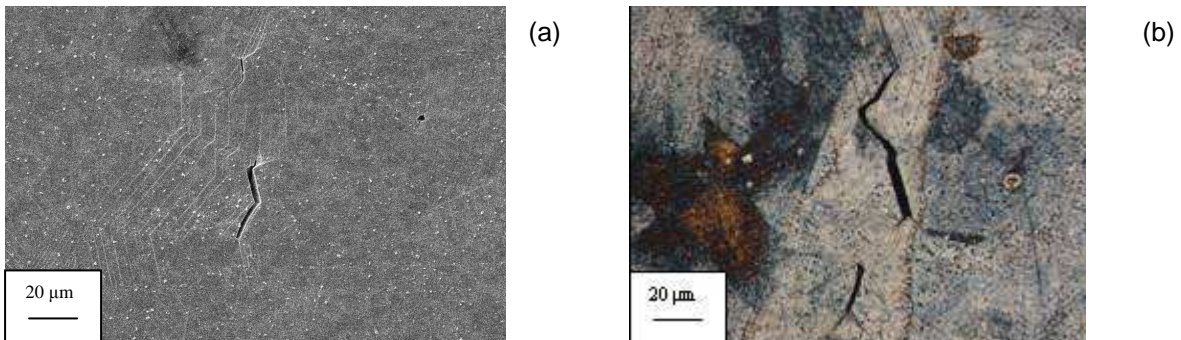


Figure 5: Micrographies au (a) microscope électronique à balayage, (b) microscope optique. Lignes de glissement et fissures observées sur une éprouvette irradiée à 5 dpa.

Une analyse approfondie de la densité et de la longueur de fissures ainsi que de leur localisation est actuellement en cours. Une cartographie de l'ensemble de la zone utile de l'éprouvette irradiée à 5 dpa a été réalisée afin de déterminer les dimensions de la surface élémentaire représentative à analyser.

Fort de ces résultats, une nouvelle campagne d'irradiation au Michigan Ion Beam Laboratory a été planifiée fin juin 2010. Les coupons sont irradiés aux protons avec une dose de 5 dpa, à 360°C. La taille de la zone irradiée est toujours de  $18 \cdot 10 \text{ mm}^2$  et la profondeur d'irradiation de  $10 \text{ }\mu\text{m}$ . En revanche, de sorte à optimiser le nombre d'éprouvettes, nous avons choisi d'augmenter la taille des coupons. Ainsi les nouvelles plaques irradiées ont une dimension de  $40 \cdot 50 \cdot 1 \text{ mm}^3$ . Le traitement thermique optimal déterminé précédemment a été appliqué sur l'une d'elles en vue d'étudier l'influence de la précipitation des carbures (comparaison du comportement d'un matériau « brut de réception » puis irradié avec un matériau « hyperefforté » puis irradié). Un des objectifs est également d'étudier le couplage microstructure / déformation / fissuration par IASCC.

Ainsi des analyses EBSD pré-irradiation ont été effectuées sur des zones prédéfinies et repérées au moyen d'empreintes de microdureté. Une fois l'irradiation effectuée, nous procédons à une étape de dépôt de microgrilles d'or de pas de  $5 \text{ }\mu\text{m}$  environ afin d'obtenir un état de référence mécanique avant traction lente permettant de mesurer les champs cinématiques après essais de CSC. La connaissance des champs microstructuraux (à travers la connaissance des orientations cristallines des grains) associée à celle des

champs mécaniques obtenus à la même échelle permet de corrélérer ces deux informations et de relier ainsi l'hétérogénéité microstructurale à l'hétérogénéité de déformation.

Une dizaine d'éprouvettes irradiées à 5 dpa sont issues de la deuxième campagne d'irradiation. Une étude réalisée par EDF il y a quelques années établissait une relation entre le nombre d'arrêt/redémarrage des réacteurs et le nombre de vis rompues. Il semble donc important pour la problématique de l'amorçage de se focaliser sur l'influence d'un chargement de type cyclique. De ce fait, des sollicitations dites dynamiques (cycles trapézoïdaux) sont également envisagées.

Des essais de traction lente après traitements thermiques de revenu contrôlé post-irradiation devraient permettre de découpler l'effet des défauts microstructuraux de type boucles de dislocations des ségrégations chimiques induites par l'irradiation. Enfin des essais de traction interrompus à différents taux de déformation seront réalisés. Tous ces essais seront conduits en milieu primaire simulé.

### Irradiations sur lames minces

De façon complémentaire aux irradiations protoniques à 5 dpa prévues au MIBL, une proposition d'expérience sur la plateforme JANNUS (Jumelage d'Accélérateurs pour les Nano-sciences, le NUcléaire et la Simulation) du CSNSM à Orsay a été acceptée. Cette plate-forme permet d'irradier et d'implanter simultanément dans un microscope électronique à transmission une lame mince afin de suivre in-situ les évolutions microstructurales du matériau sous irradiation (figure 6). Ce système d'implantation et d'irradiation simultanées dans un MET permettra de suivre des évolutions microstructurales représentatives du comportement sous irradiation. Les dispositifs d'implantation et d'irradiation sur échantillons massifs ne permettent toutefois pas pour l'instant de reproduire un tel phénomène et les expérimentations réalisées à ce jour impliquent une implantation d'hélium dans la microstructure préalablement à l'irradiation. L'équivalence entre implantation et irradiation successive d'un côté et implantation/irradiation simultanée de l'autre reste donc à démontrer.

En plus de valider cette équivalence, nous nous intéresserons également à la cinétique d'apparition et de croissance des défauts engendrés par l'irradiation ainsi qu'à l'influence de la nature des joints de grains (désorientation et plan de joint) sur la répartition de l'hélium au sein de la microstructure. Le travail préalable à cette étude, consistant en l'établissement de cartographies d'orientation cristallographique à l'échelle de la lame mince, est en cours.

L'étude sur la plate-forme JANNUS portera donc sur l'observation in-situ dans le MET des évolutions des défauts microstructuraux associés aux effets d'irradiation et d'implantation d'He en relation avec la nature des joints de grains, pour une dose comprise entre 0 et 3,5 dpa.

Plusieurs lames minces seront préparées et étudiées (épaisseur, nature des joints de grains, cartographies d'orientation) avant le lancement des expériences sur la plate-forme.

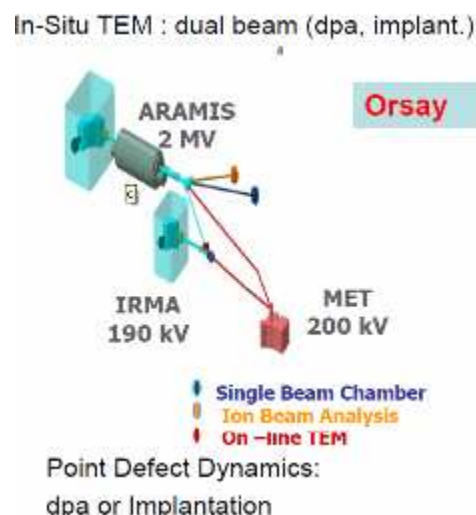


Figure 6 : Schéma du système double faisceaux d'Orsay  
[Présentation : Gédépéon-Nomade, 20 nov. 2005]

## Conclusion

Le matériau d'étude est un acier inoxydable austénitique de type 304L. Après analyses au microscope optique, au MEB, et à la microsonde de Castaing, nous avons constaté que cet acier présente une seconde phase ferritique avec une proportion de l'ordre de 5%. Cette seconde phase se présente sous forme de bandes alignées dans le sens du laminage. De plus la microstructure est fortement maclée et la présence de carbures de chrome et sulfure de manganèse est également notée. Un traitement d'hypertrempe a été mis au point dans l'idée d'éliminer les carbures de chrome des joints de grains.

Suite à une première campagne d'irradiation aux protons lancée par AREVA NP et suivie d'essais de corrosion sous contrainte en milieu primaire simulé, il a été établi que les éprouvettes irradiées à 5 et 10 dpa présentaient des fissures, en partie intergranulaire. Une nouvelle campagne d'irradiation aux protons dans des conditions identiques (360°C, 5 dpa) a donc été lancée dans l'objectif d'irradier un coupon « brut de réception » et un coupon à l'état hypertrempe. Au préalable, des analyses EBSD ont été réalisées ce qui nous permettra de relier les hétérogénéités microstructurales à celles de déformation obtenues lors des essais de traction lente.

De façon complémentaire à ces irradiations et essais sur matériau massif, des irradiations sur lames minces avec implantation simultanée d'hélium seront conduites sur la plateforme JANNUS du CSNSM. Ces expérimentations nous permettront notamment d'observer in-situ dans le MET les évolutions des défauts microstructuraux associés aux effets d'irradiation et d'implantation d'He en relation avec la nature des joints de grains.

Remerciements :

Cette étude est financée par la Chaire AREVA NP – Mines Paristech portant sur les matériaux du nucléaire.

## References

- [1] Berge P., « Endommagement des matériaux dans les centrales nucléaires à eau pressurisées », éditions Eyrolles, 1997
- [2] Was G., Andresen P., Irradiation-assisted stress-corrosion cracking in austenitic alloys, Journal of the Minerals, Metals and Materials Society, p. 8-13, avril 1992
- [3] Savoie M., « Influence de la localisation de la déformation sur la CSC de l'acier inoxydable austénitique A-286 en milieu primaire REP », thèse de l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de St Etienne, janvier 2007
- [4] Shoji T., Suzuki S., "Current status and future of IASCC research", Journal of Nuclear Materials, vol. 258-263, p 241-251, 1998
- [5] Massoud JP., « Long term aging of cast duplex stainless steels between 300 and 400°C – relationship between toughness properties and metallurgical parameters », Duplex stainless steels 1-93, Beaune, octobre 1991