Effet d'un chargement mécanique sur l'oxydation intergranulaire d'alliages austénitiques

Cécilie Duhamel

Remerciements

- Doctorants et stagiaires:

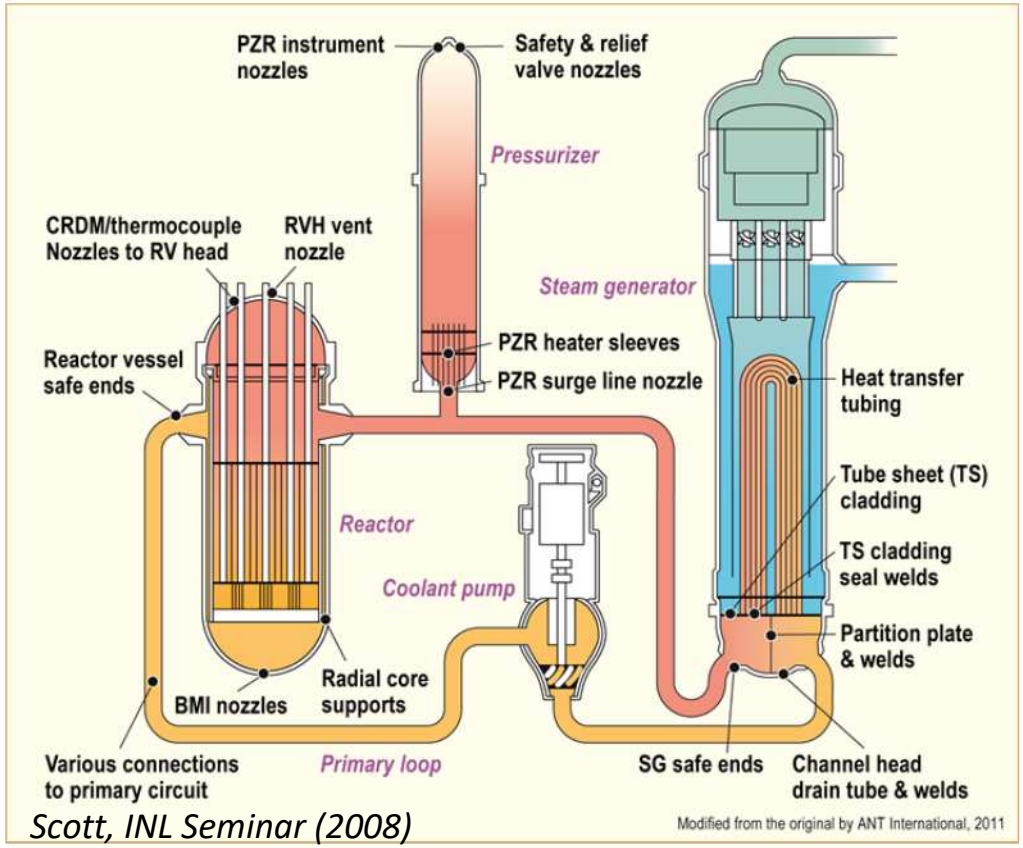
  Mickaël Wehbi, Jacqueline Caballero, Hu Chen, Marc Maisonneuve, Qi Huang, Léna Verchère

- Jérôme Crépin, Fabrice Gaslain, Jean-Christophe Teissèdre (Centre des Matériaux)
- Philippe Marcus, Antoine Seyeux (IRCP Chimie ParisTech)
- Monique Gaspérini, Yann Charles (LSPM Université Paris 13)
- Thierry Couvant (EDF R&D)
- Catherine Guerre (CEA)

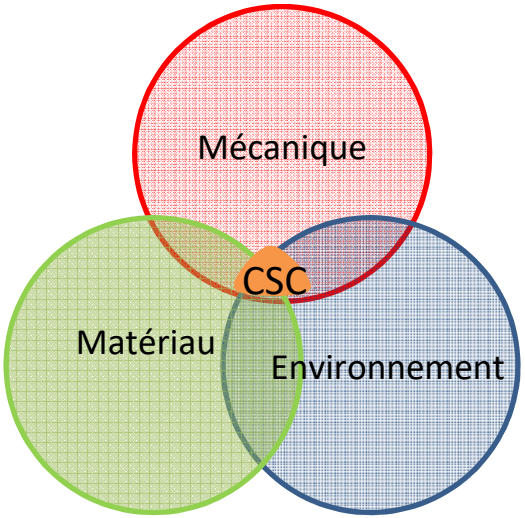
- Une partie de ces travaux a été réalisée dans le cadre du consortium MATMECA financé par l'ANR (numéro de contrat: ANR-10-EQUIPEX-37).

Contexte

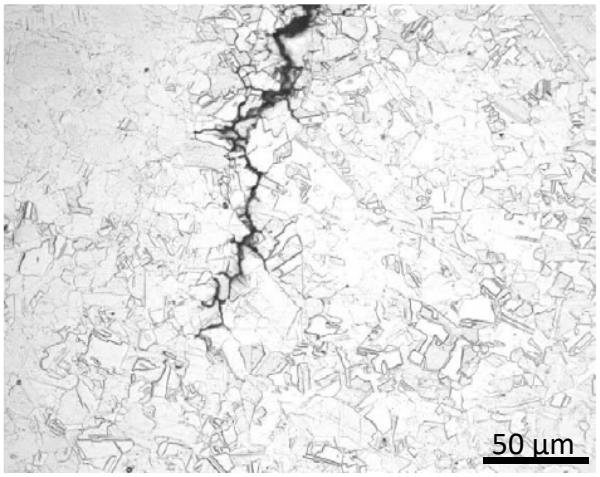
Corrosion sous contrainte en milieu primaire des réacteurs nucléaires



Scott, INL Seminar (2008)



Fissuration intergranulaire



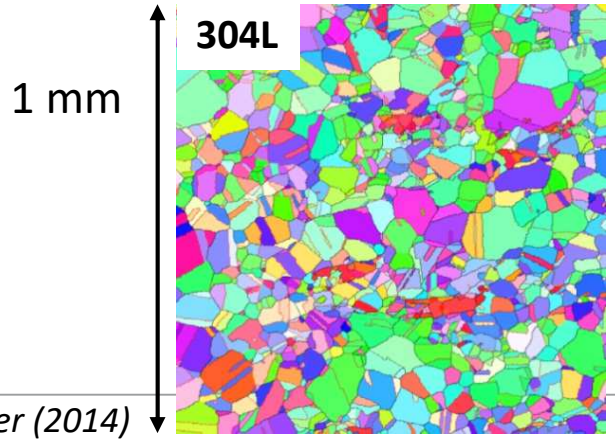
- T = 290-350°C
- P = 155 bar
- $pH_{300°C} \approx 7$
- Bore (H_3BO_3): 10-1200 ppm
- Lithium (LiOH): 0,7 – 2,2 ppm
- H_2 = 25-50 mL / kg H_2O
- O_2 < 5 ppb

Matériaux

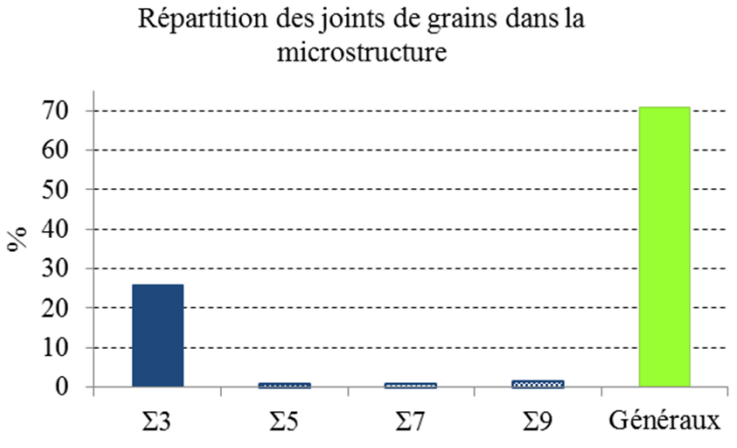
% mass.	Alliage	Ni	Cr	Fe
Alliages base Ni	A182	> 59	13-17	6-10
	A600	> 72	14-17	6-10
	A82	> 67	18-22	≤ 3
Aciers inox	304L	8-12	16-19	bal.
	316L	10-14	17-20	bal.

- **A600 ET ACIERS INOXYDABLES**
  - Microstructure isotrope
  - Pas de texture cristallographique
  - Grains équiaxes (d ≈ 20 -70 µm)
  - Majorité de joints généraux et Σ3

→ VER ≤ mm^3



Thèse M. Le Millier (2014)



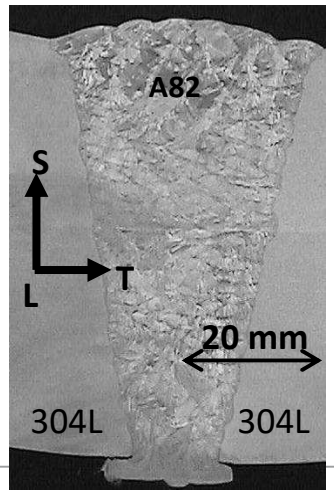
Matériaux

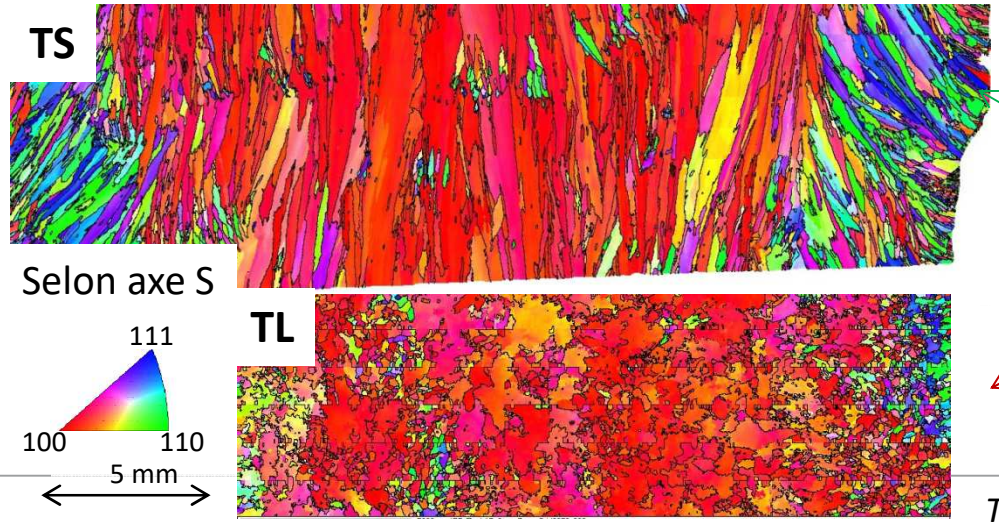
% mass.	Alliage	Ni	Cr	Fe
Alliages base Ni	A182	> 59	13-17	6-10
	A600	> 72	14-17	6-10
	A82	> 67	18-22	≤ 3
Aciers inox	304L	8-12	16-19	bal.
	316L	10-14	17-20	bal.

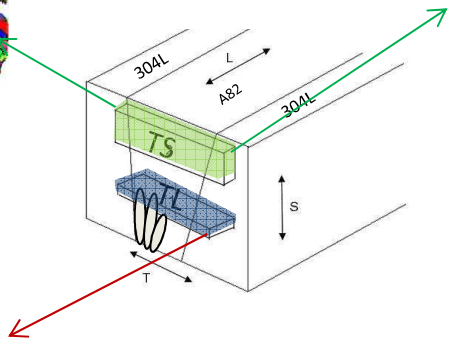
→ soudure

- **ALLIAGES DE SOUDURE**
  - Texture cristallographique et morphologique
  - Hétérogénéités microstructurales et chimiques
  - Très peu de joints CSL

→ VER ≥ cm^3

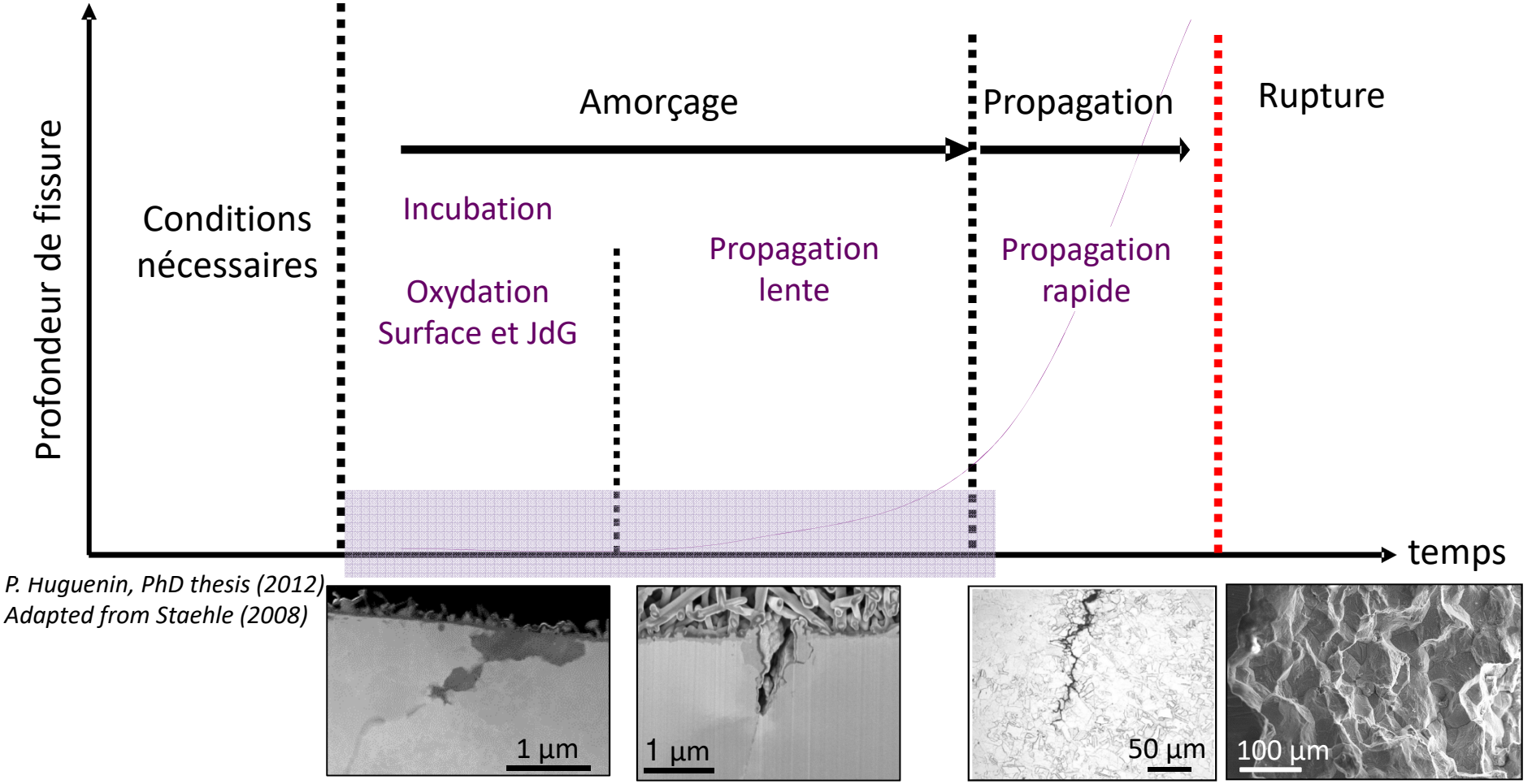






Thèse E. Chaumun (2016)

Les étapes de la CSC



P. Huguenin, PhD thesis (2012)
Adapted from Staehle (2008)

⇨ **Quels sont les joints de grains qui fissurent et pourquoi?**

Cinétique d'oxydation intergranulaire

Objectifs:

- Détermination expérimentale et quantitative de la cinétique d'oxydation intergranulaire définie comme une vitesse de progression de l'oxyde le long du joint de grains.
- Etudier l'effet de divers paramètres influents au premier ordre sur l'amorçage de la CSC
  - métallurgiques
  - environnementaux
  - mécaniques: (pré-)déformation, contrainte
- Identification d'un critère de rupture des joints de grains oxydés

Difficultés:

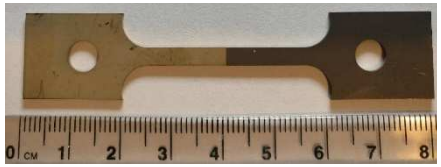
- Profondeurs d'oxydation faibles (< 1.5 µm) pour des durées d'oxydation longues
- Phénomène localisé

➡ Mesures locales mais statistiquement représentatives

Effet d'une pré-déformation

Eprouvettes pré-déformées par traction

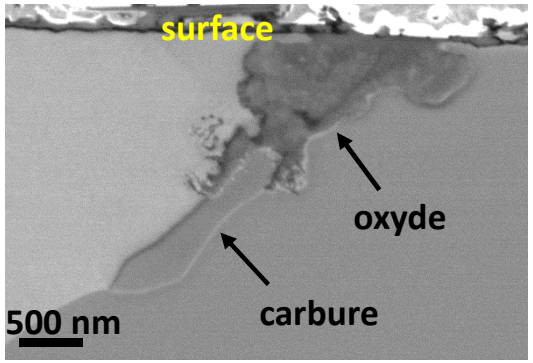
- Alliage 600
- Température ambiante
- 0, 5, 10, 15, 20, 30% de déformation



Oxydation en milieu primaire simulé

- 290°C et 360°C
- 1000h

Coupe transverse - MEB



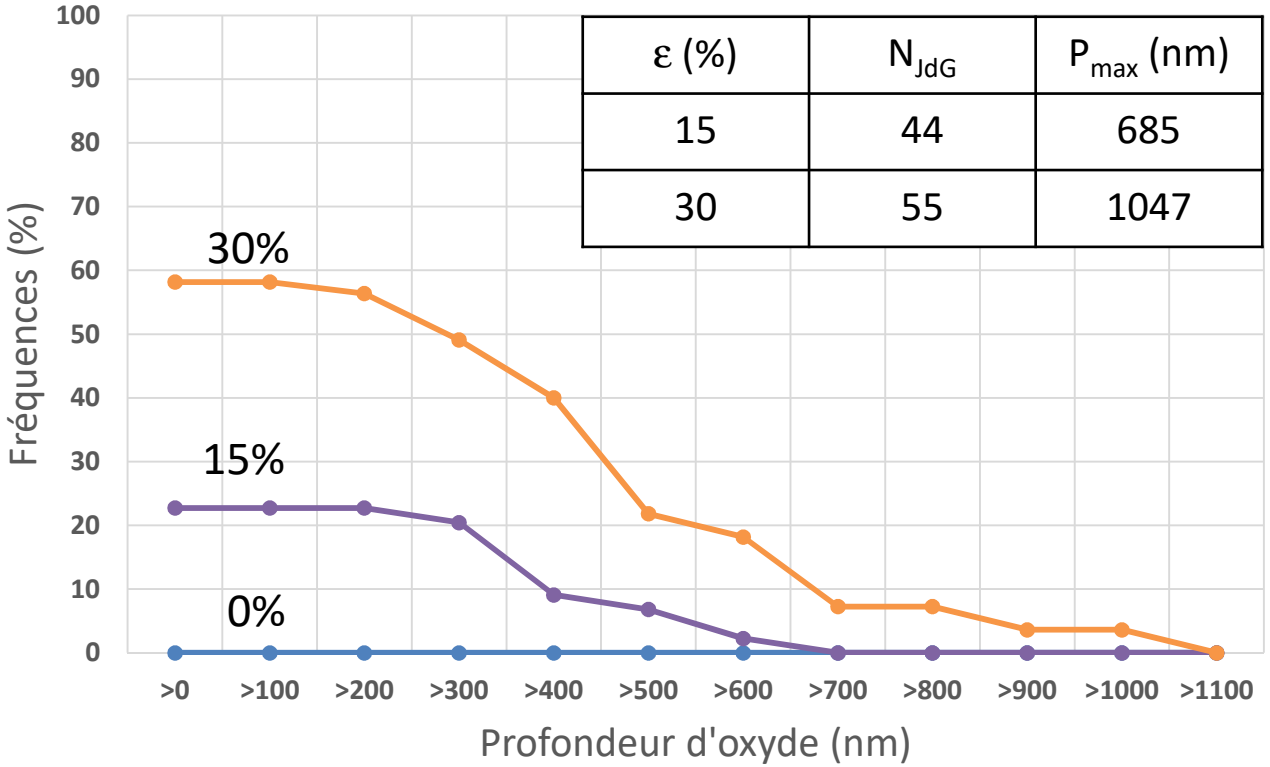
Statistique sur une population de joints de grains

Thèse Hu Chen (2019)
Coll. Chimie ParisTech (P. Marcus, A. Seyeux) et EDF (T. Couvant)

Effet d'une pré-déformation

Oxydation à 290°C – 1000h

ε (%)	N_{JdG}	P_{max} (nm)
15	44	685
30	55	1047

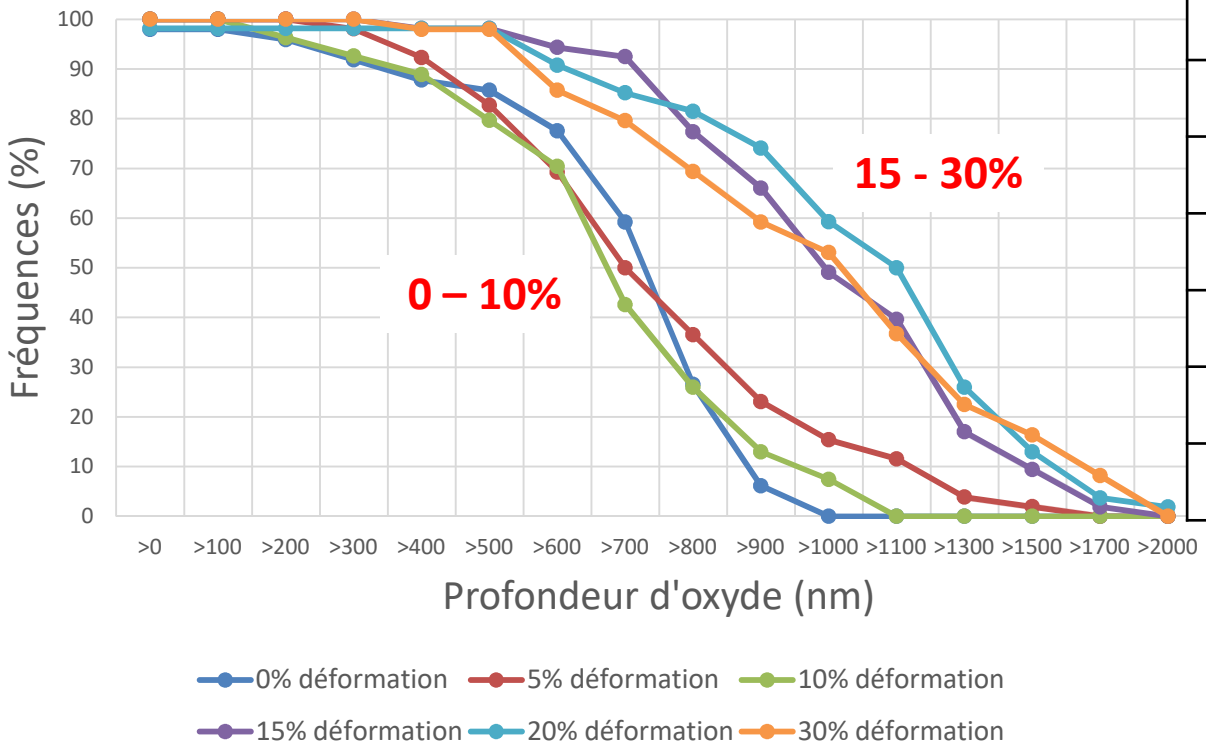


- Pas d'oxydation IG détectée au MEB en l'absence de pré-déformation
- Pré-déformation augmente:
  - Le nombre de JdG oxydés augmente
  - Les profondeurs moyennes et maximales augmentent

Thèse Hu Chen (2019)

Effet d'une pré-déformation

Oxydation à 360°C – 1000h



ε (%)	P_{moy} (nm)	P_{max} (nm)
0	596	992
5	745	1600
10	671	1100
15	1028	1709
20	1093	2148
30	1033	1772

- Tous les JdG observés sont oxydés quel que soit le taux de pré-déformation.
- Saut de comportement entre 10% et 15% de pré-déformation
- Peu d'effet de la pré-déformation pour $\varepsilon \leq 10\%$ et $15\% \leq \varepsilon \leq 30\%$.

Thèse Hu Chen (2019)

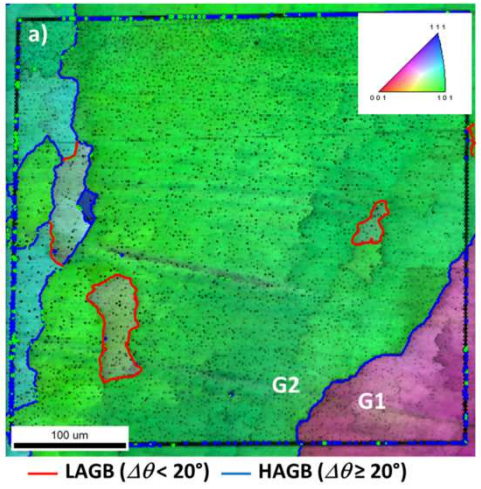
Effet d'une pré-déformation

Approche locale

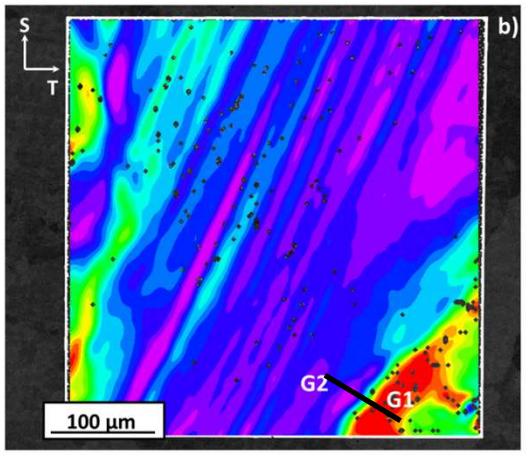
1. **Eprouvettes pré-déformées par traction**
   - Alliage 182 (soudure)
   - à température ambiante
   - 0, 7, 20% de déformation

2. **Oxydation en milieu primaire simulé**
   (360°C – 1000h)

Cartographies d'orientation



Champs mécanique locaux

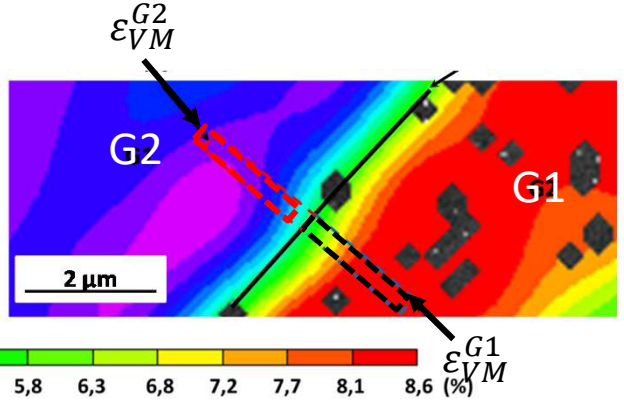


- Déformation locale moyenne

$$\bar{\varepsilon}_{VM}^{GB} = \frac{(\varepsilon_{VM}^{G1} + \varepsilon_{VM}^{G2})}{2}$$

- Hétérogénéité locale

$$\Delta\varepsilon_{VM}^{GB} = \left|\varepsilon_{VM}^{G1} - \varepsilon_{VM}^{G2}\right|$$





Objectif: corréler le niveau de déformation local et la profondeur d'oxydation IG

Thèse Mickaël Wehbi (2014)

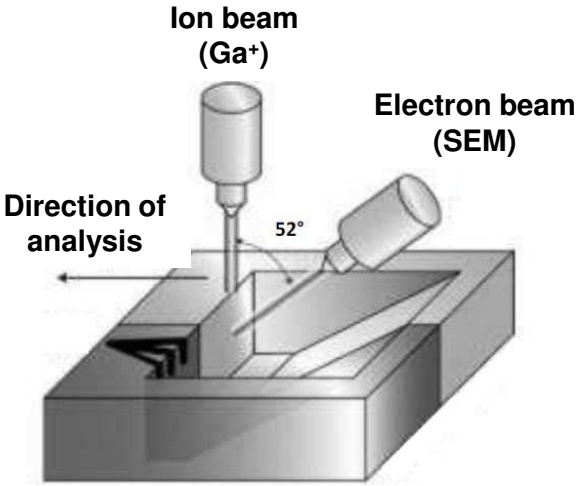
Effet d'une pré-déformation

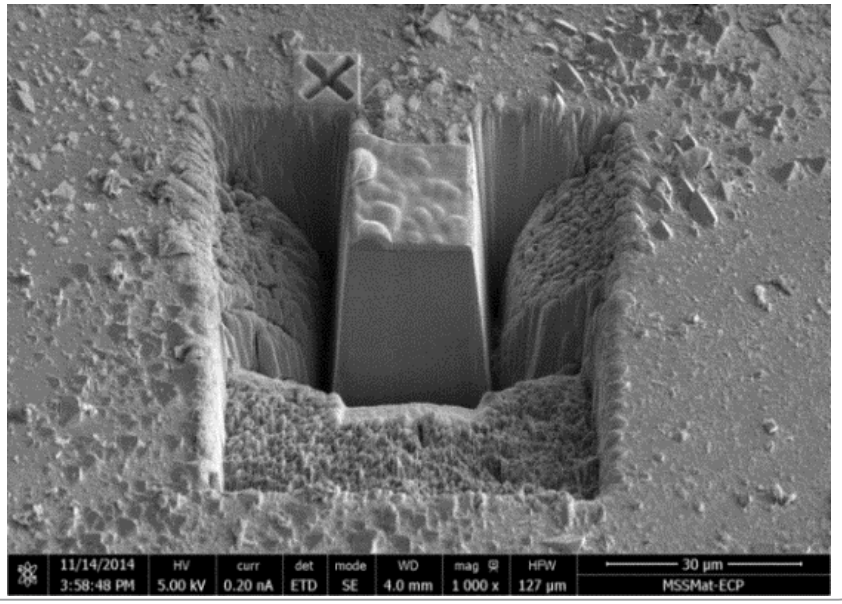
Approche locale

Equipex MATMECA

- Etude de 4 joints de grains par MET et MEB-FIB

JdG	Déformation locale moyenne (%)	Hétérogénéité de déformation (%)	Continuité des bandes de glissement	Caractérisation
A	0	-	-	MET
B	7	0	Oui	MET
C	5.5	6	Non	FIB + MET
D	13	0	Oui	FIB + MET

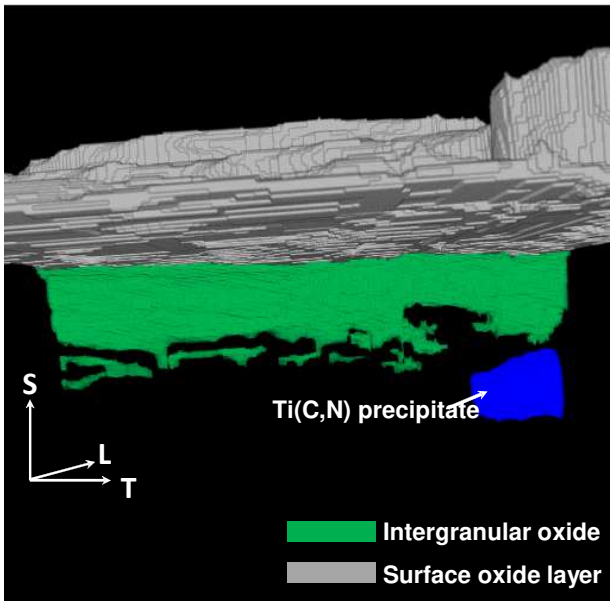




M. Wehbi, T. Couvant, C. Duhamel, J. Crépin, Mat. High Temp. 32 (2015) 1

Reconstruction 3D par MEB/FIB

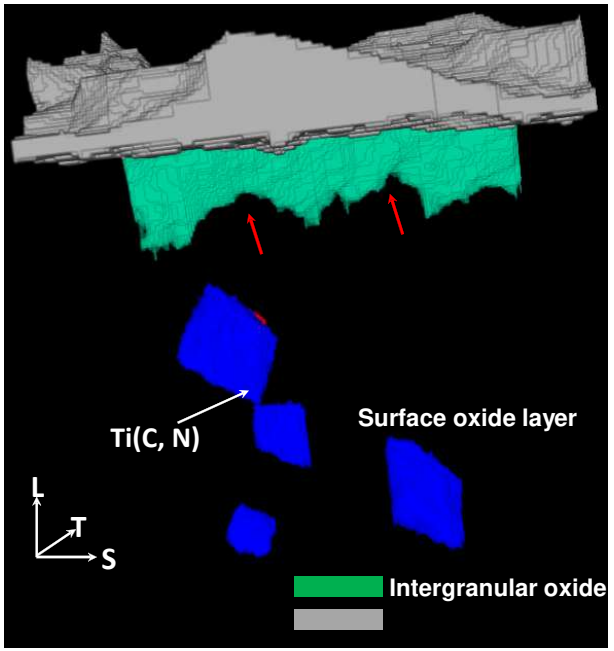
Joint de grains D
Longueur du joint: 6 µm
$\varepsilon_{von\ Mises}$: 13% – hétérogénéité: 0 %



Volume analysé
5 (S) x 5 (L) x 6 (T) µm^3

Profondeur d'oxydation moyenne:
550 +/- 50 nm

Joint de grains C
Longueur du joint: 3 µm
$\varepsilon_{von\ Mises}$: 5.5% – hétérogénéité: 6 %



Volume analysé
5 (S) x 5 (L) x 3 (T) µm^3

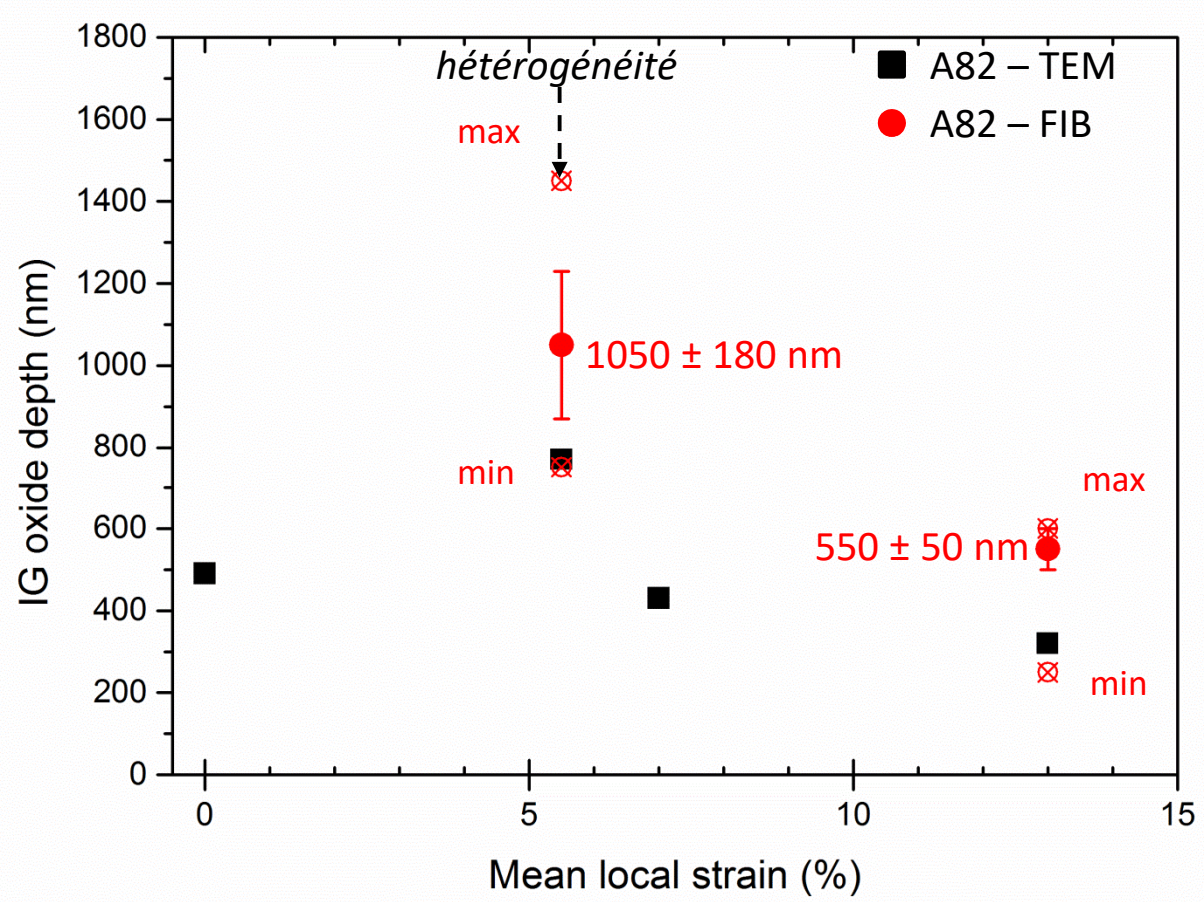
Profondeur d'oxydation moyenne:
1050 +/- 180 nm

Une hétérogénéité de déformation au voisinage du joint de grains semble :

- accélérer la cinétique d'oxydation intergranulaire
- conduire à plus de dispersion le long d'un même joint de grains

M. Wehbi, T. Couvant, C. Duhamel, J. Crépin, Mat. High Temp. 32 (2015) 1

Effet d'une pré-déformation



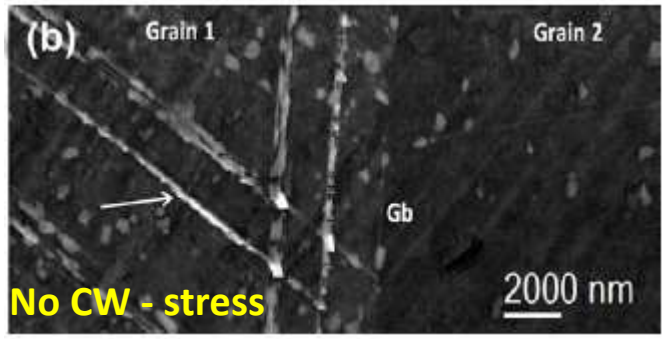
- Pas/peu d'effet de la valeur moyenne de la déformation
- Fort effet d'une hétérogénéité de la déformation au voisinage du joint de grains

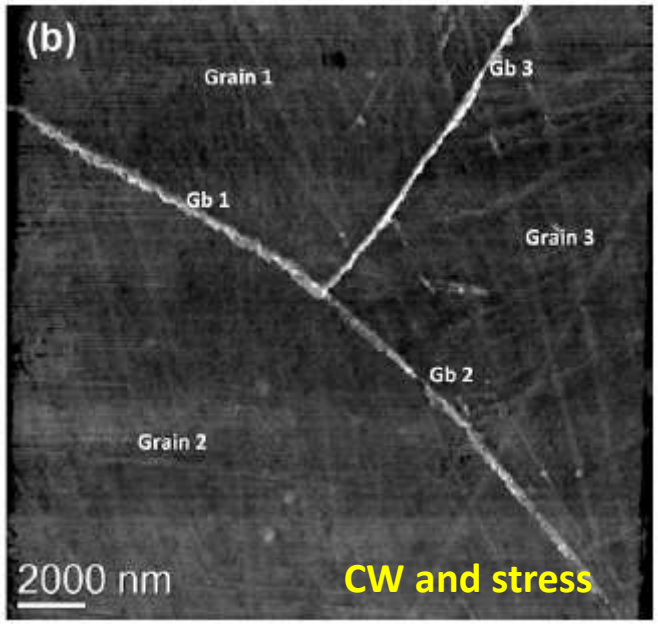
M. Wehbi, T. Couvant, C. Duhamel, J. Crépin, Mat. High Temp. 32 (2015) 1

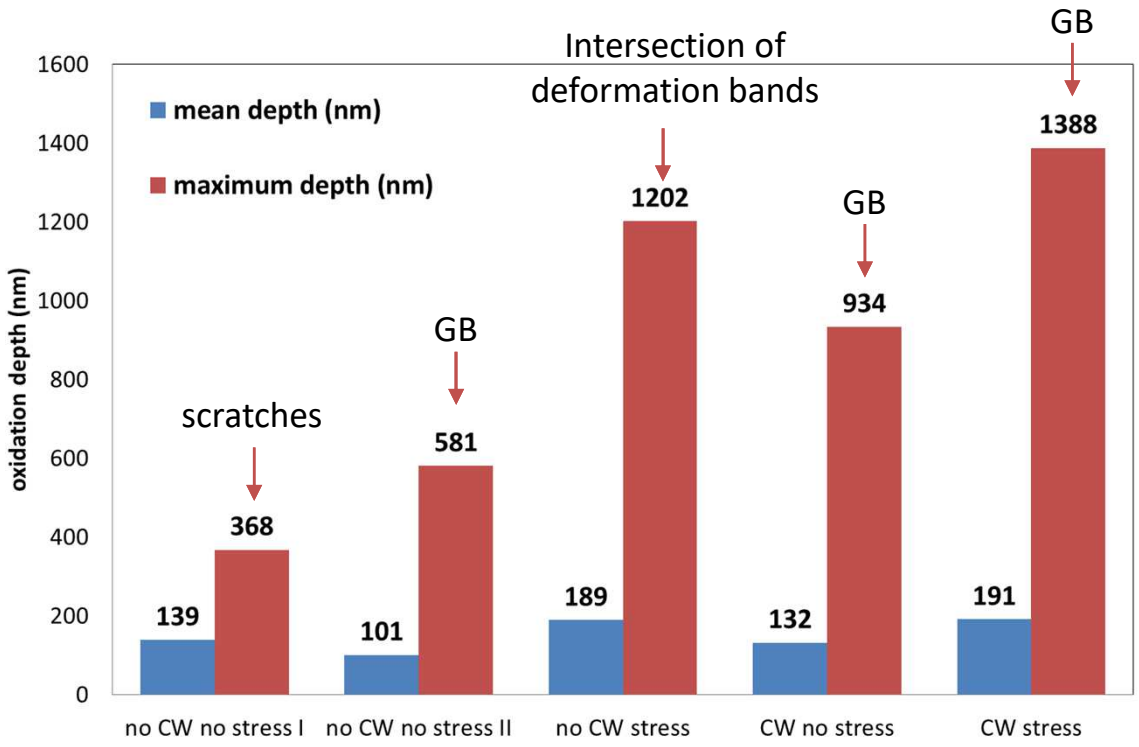
Effet d'un chargement mécanique sur l'oxydation IG

Acier inoxydable 304 après oxydation en milieu primaire

FIB Slice-and-View
Typical volume size: 20×20×5 µm^3







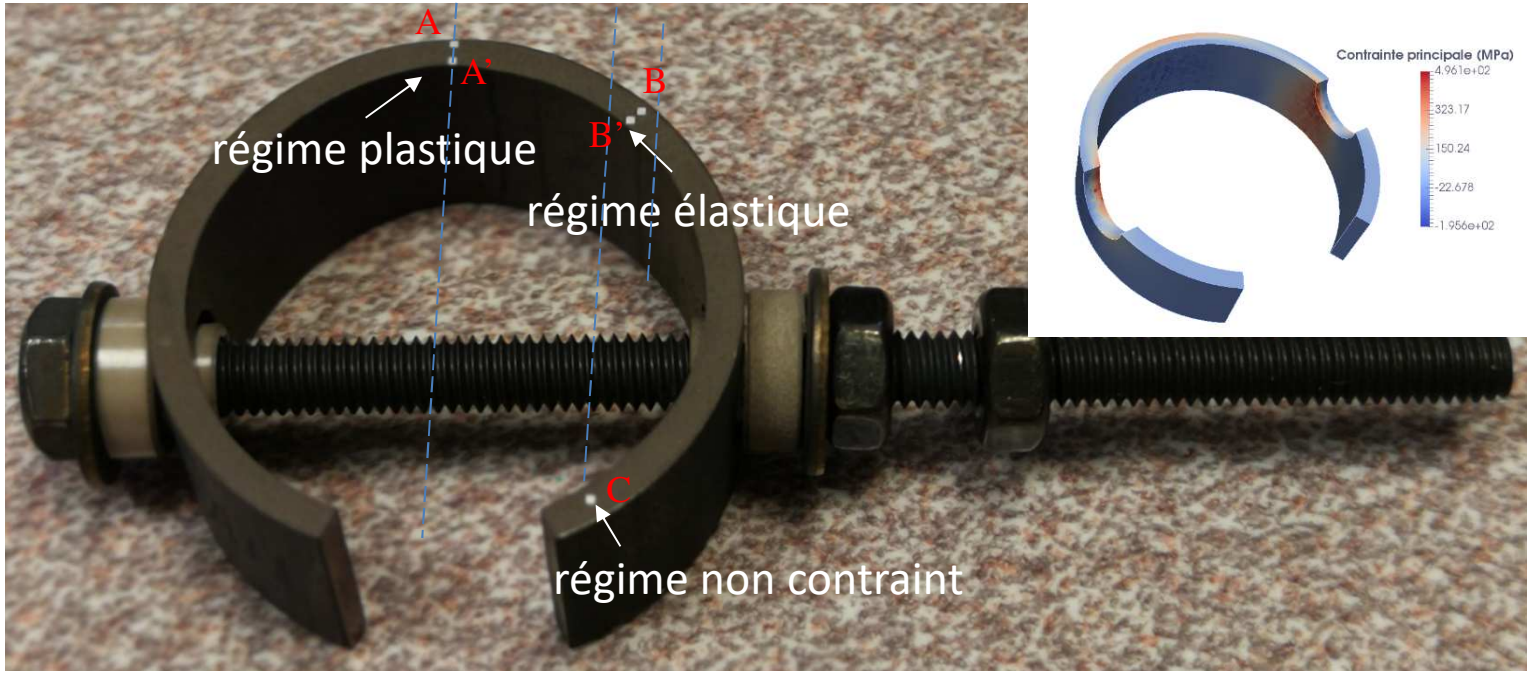
CW = cold-rolled - 20% reduction in thickness
Stress = tensile loading – elastic domain

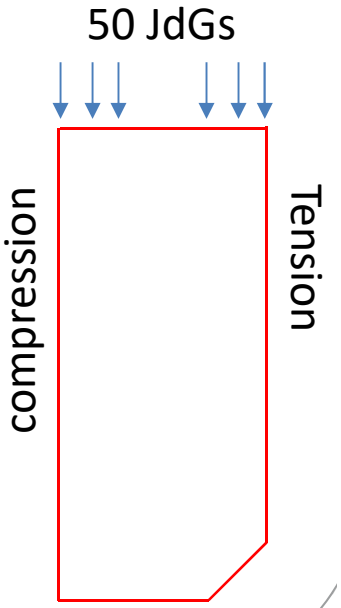
S. Lozano-Perez, Corrosion Science (2012)

Effet d'une contrainte

Eprouvettes C-ring en Alliage 600 $R_{p\ 20°C}$ = 305 MPa

	Tension		Compression		Sans contrainte
	Plastique (A)	Elastique (B)	Plastique (A')	Elastique (B')	(C)
Contrainte à 360°C (MPa)	320 ± 10	100 ± 10	-330 ± 10	-120 ± 10	0
Déformation plastique	2.1%	0	1.3%	0	0

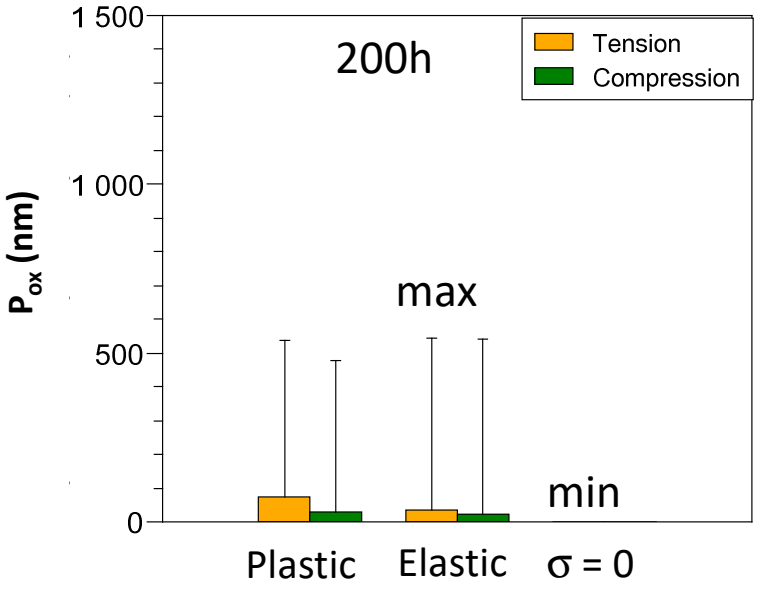


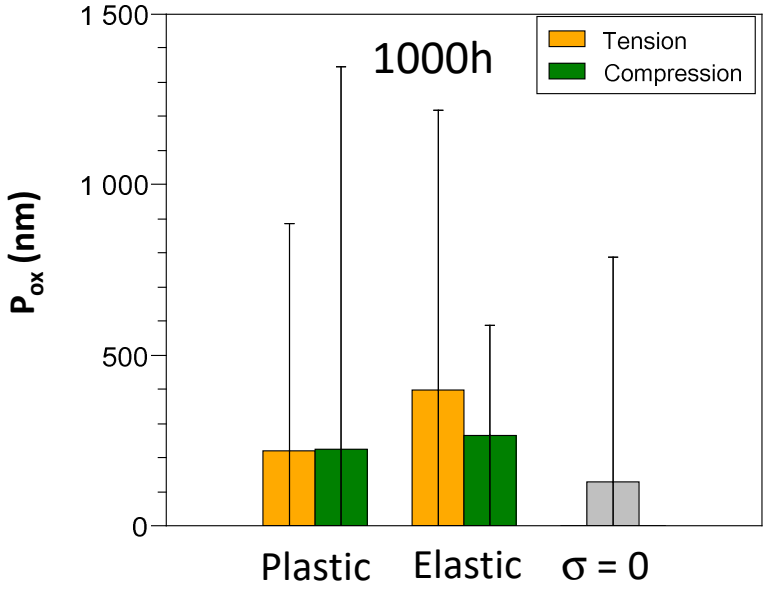


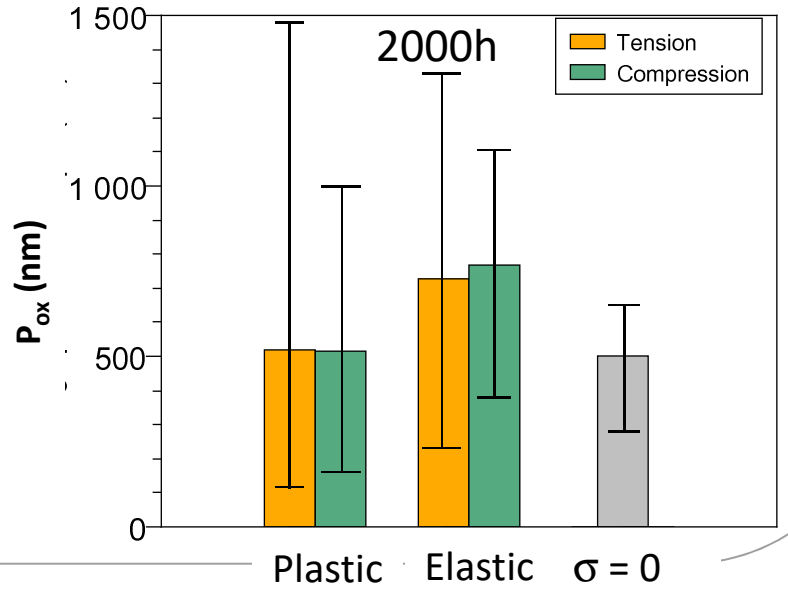
Thèse Hu Chen (2019)

Effet d'une contrainte

Profondeurs d'oxydation moyennes après oxydation en milieu primaire à 360°C







- dispersion des P_{ox} qqs les conditions
- Effet d'une contrainte sur P_{moy} mais surtout P_{max}
- P_{moy} augmente avec la durée d'oxydation.
- P_{moy} plus élevée pour $\varepsilon_{élastique}$ que $\varepsilon_{plastique}$
- P_{moy} peu affectée par le signe de la contrainte.

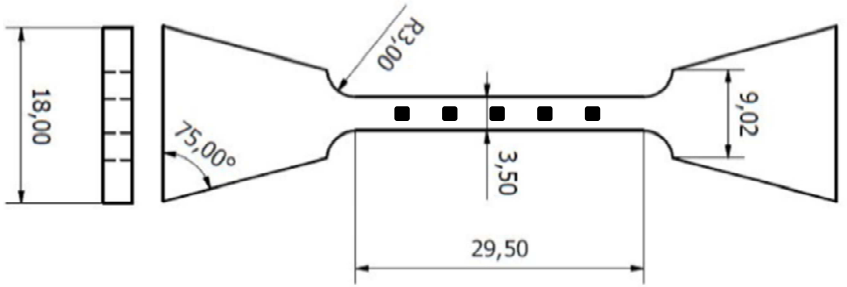
Thèse Hu Chen (2019)

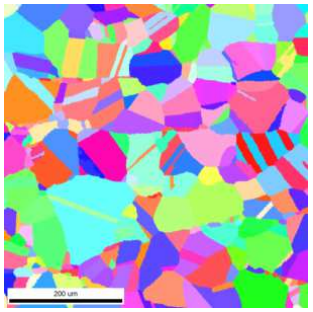
Contrainte locale et oxydation IG

Acier inoxydable 316L

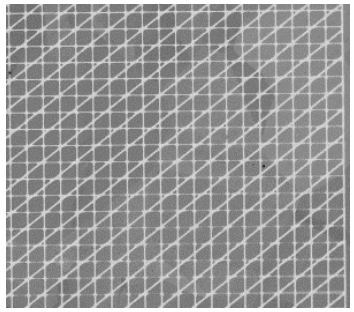
- I. Pré-déformation
  - à l'air
  - à température ambiante
  - $\varepsilon_{\text{pré-déformation}}$ = 11%,
  - $\dot{\varepsilon} = 5 \times 10^{-4}\ s^{-1}$

- II. Essai de CSC
  - milieu primaire nominal à 340°C
  - traction lente, $\dot{\varepsilon} = 1 \times 10^{-8}\ s^{-1}$
  - ε_{CSC} ~ 4%
  - t ≃ 1050h





EBSD



Au-Pd microgrids

Corrélation d'images
Calculs éléments finis

Champs de déformation

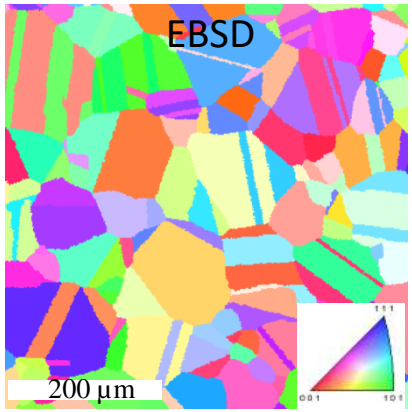
Champs de contrainte

Fissuration par corrosion sous contrainte

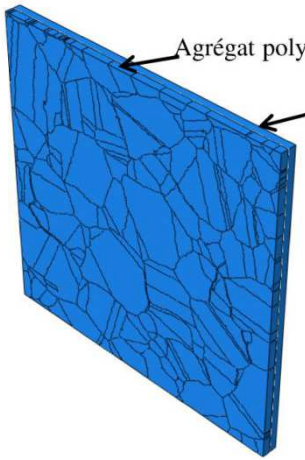
Thèse Qi Huang (2020) - Coll. Univ. Paris 13 (M. Gaspérini, Y. Charles)
Thèse Marc Maisonneuve (2020) – Coll. CEA (C. Guerre)
Stage Léna Verchère (2018) – Coll. CEA (C. Guerre)

Contrainte locale et oxydation IG

- **Géométrie**: de la cartographie EBSD à un agrégat 2D extrudé







Effet du volume de matière sous la surface

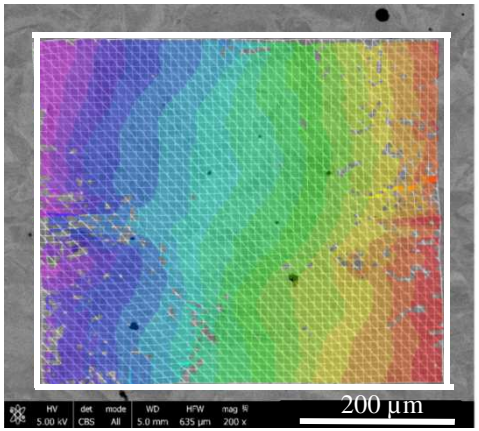
2D extrudé

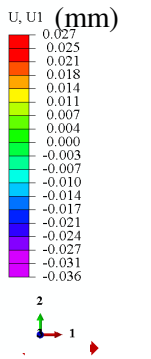
Orientations réelles

Plan de joint perpendiculaire à la surface

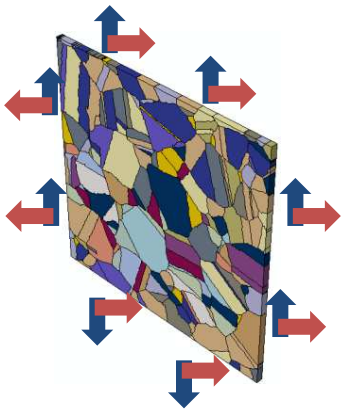
- **Conditions aux limites:** déplacement imposé issu de DIC

$U_{1,\,exp}$





Tensile axis



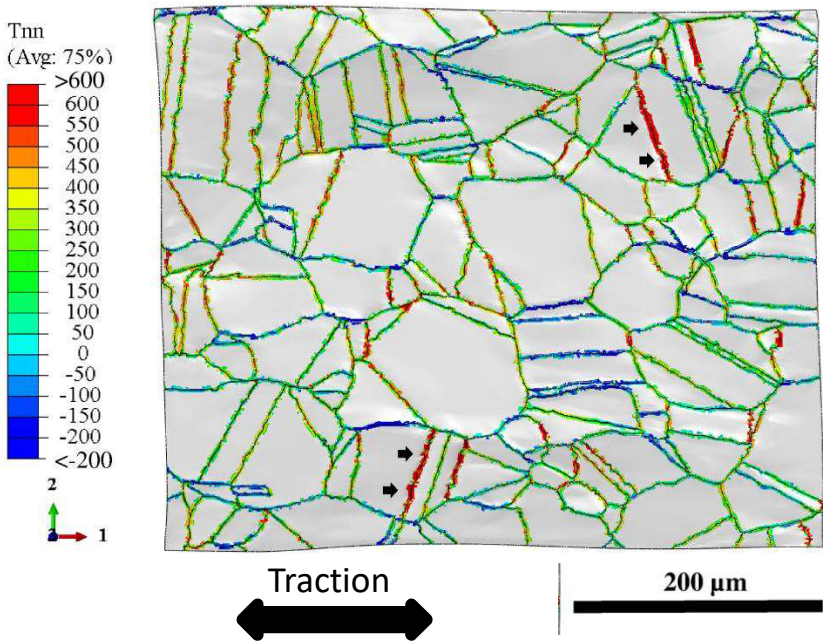
- Loi **élasto(visco)plastique** avec l'**écrouissage isotrope** sur les systèmes de glissement

Thèse Qi Huang (2020)

Contrainte locale et oxydation IG

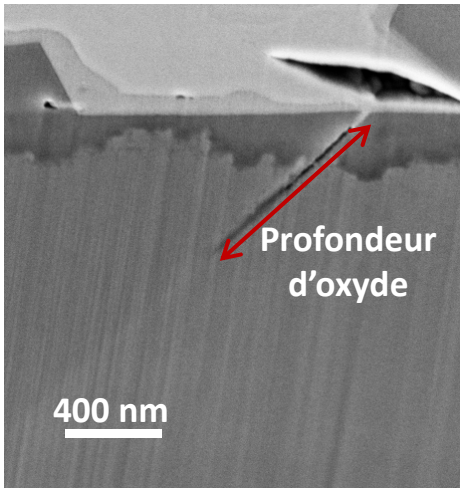
Contrainte normale au voisinage des JdG

Champs de la contrainte normale (T_{nn})

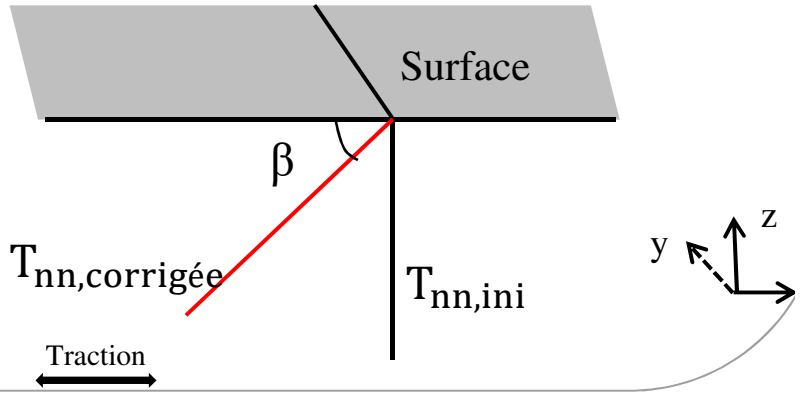


JdG fissurés et non fissurés

Coupes transverses au FIB sur qq JdG non fissurés

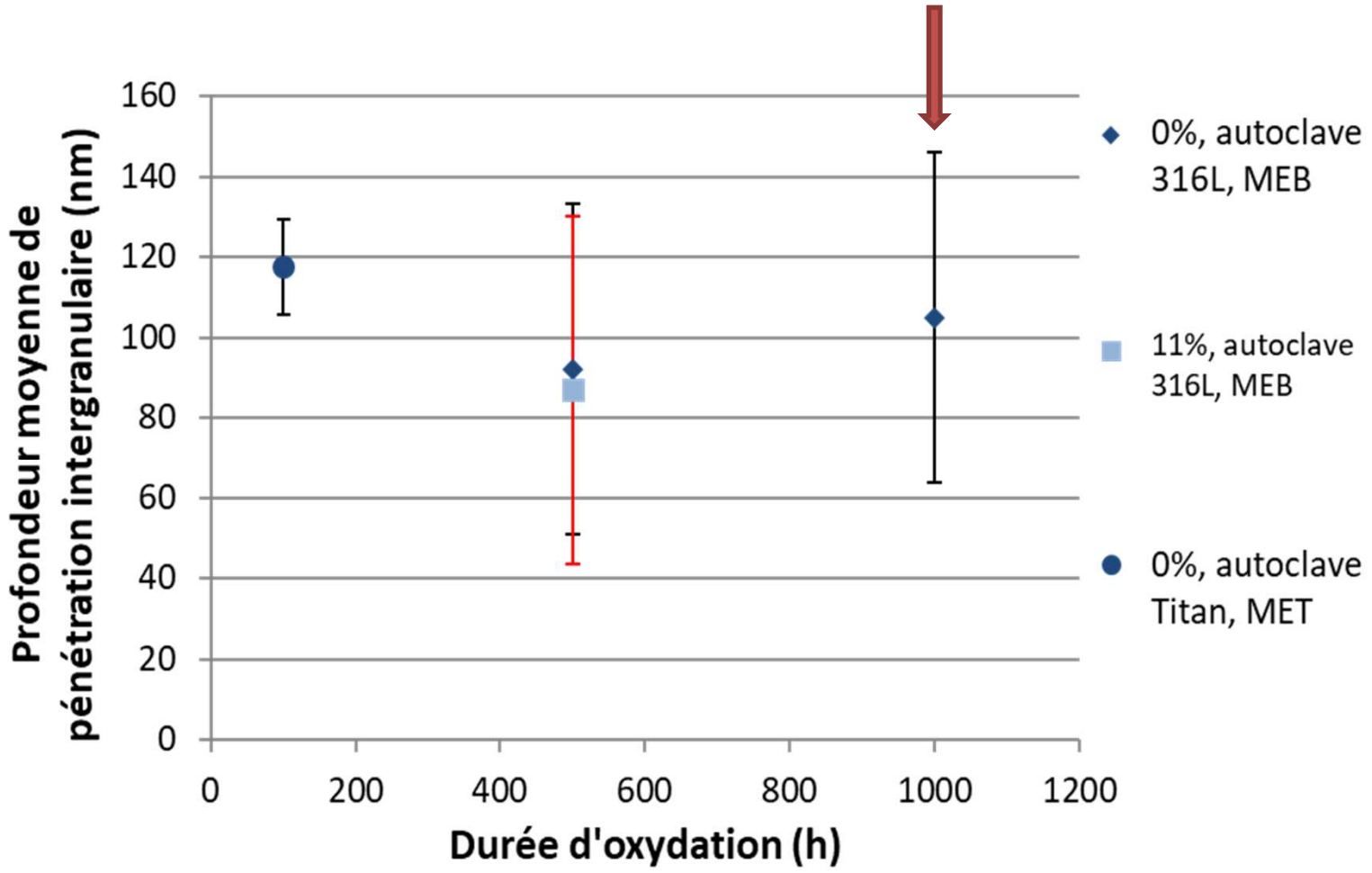


Calcul de $T_{nn,corrigée}$

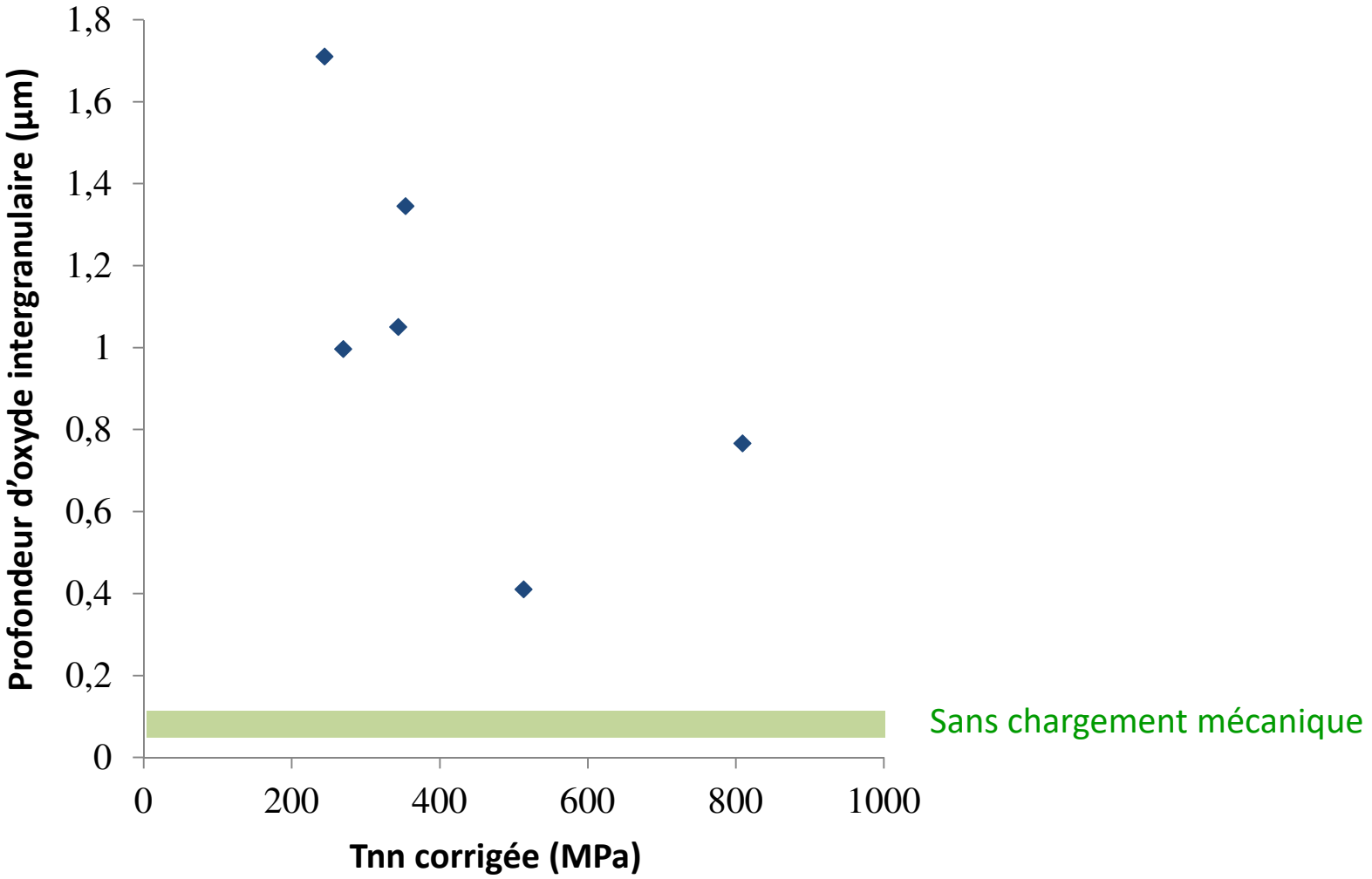


Contrainte locale et oxydation IG

Oxydation intergranulaire sur échantillons non déformés et prédéformés 11%

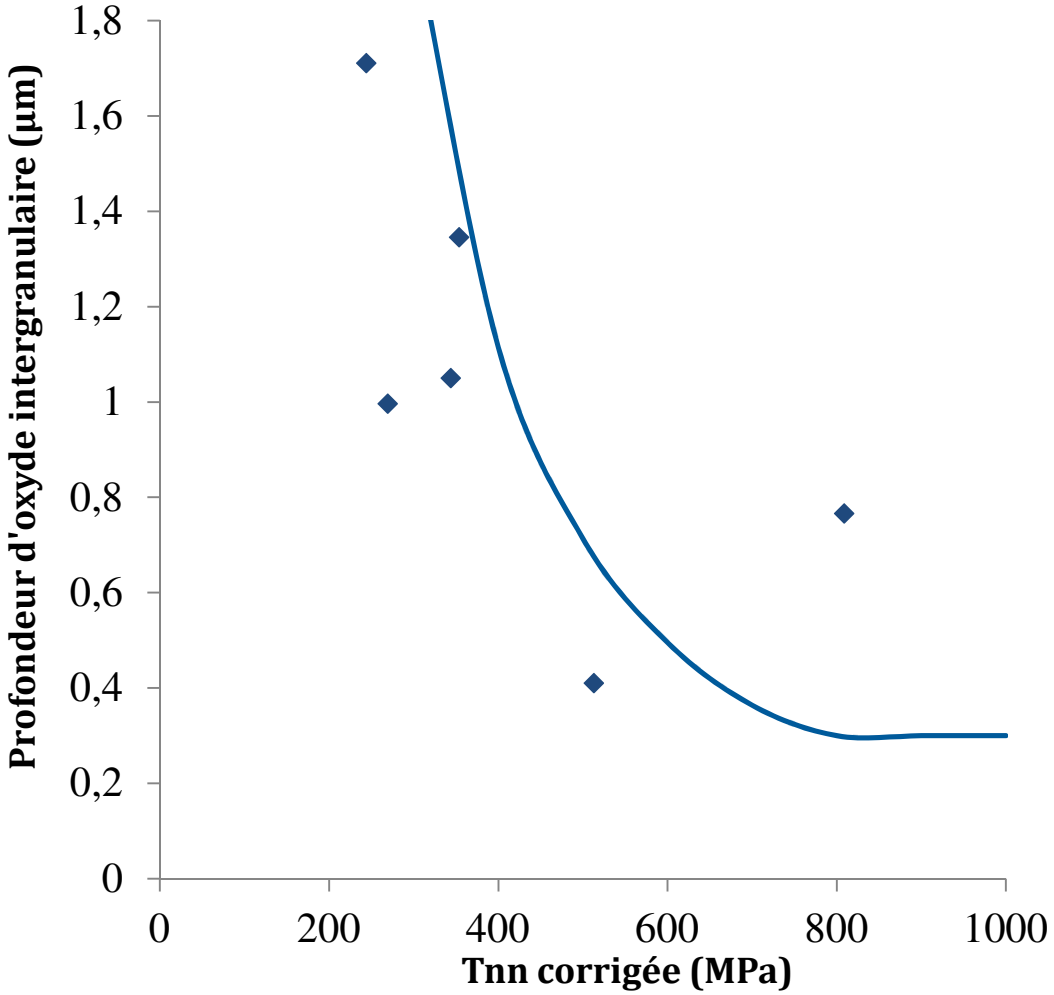


Contrainte locale et oxydation IG



- ρ_{ox} supérieures aux valeurs obtenues en l'absence d'un chargement mécanique
- Tendance décroissante entre profondeur d'oxyde (ρ_{ox}) et contrainte normale (T_{nn})

Contrainte locale et oxydation IG

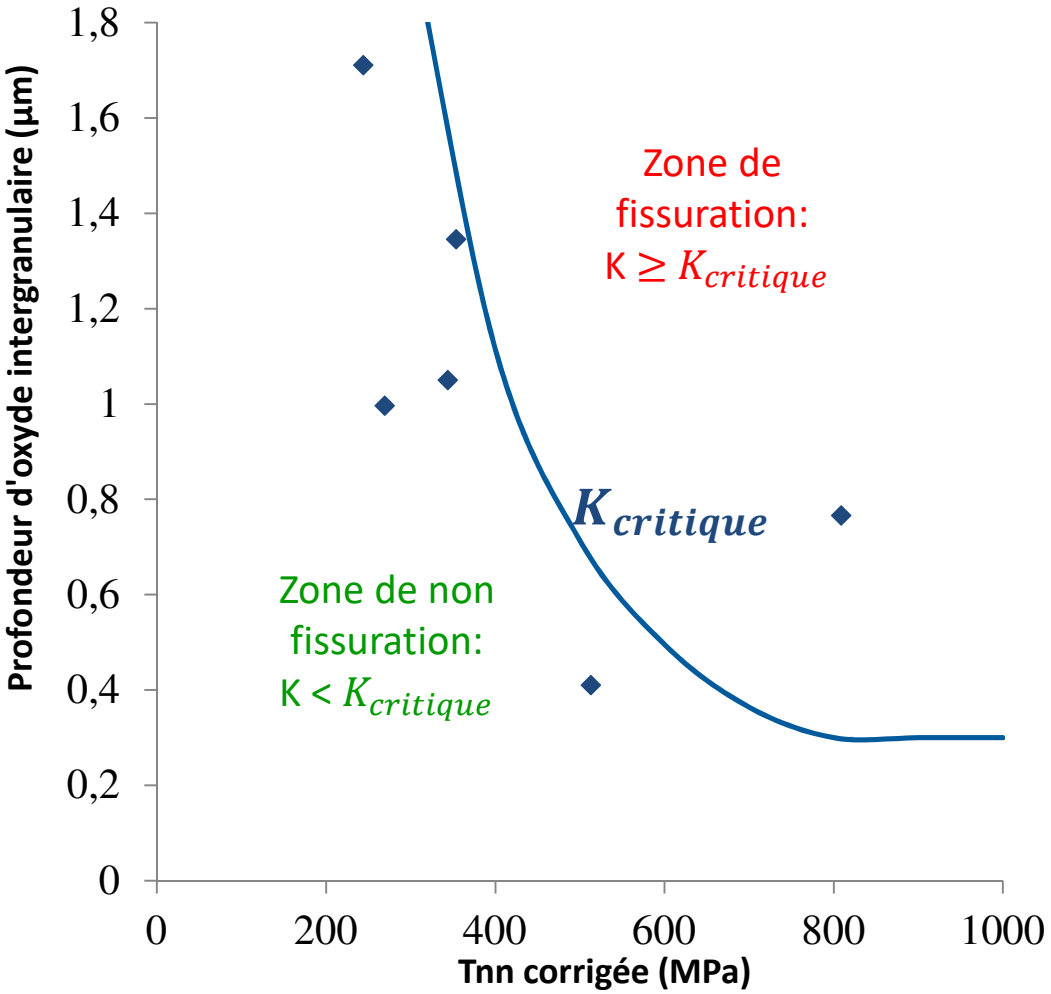


Rupture d'un joint pour des couples ρ_{ox} et T_{nn}

➔ Ténacité $K_{critique} \propto T_{nn}\sqrt{\rho_{ox}}$

Tendance décroissante entre profondeur d'oxyde (ρ_{ox}) et contrainte normale (T_{nn})

Contrainte locale et oxydation IG



Rupture d'un joint pour des couples ρ_{ox} et T_{nn}

➔ Ténacité $K_{critique} \propto T_{nn}\sqrt{\rho_{ox}}$

Tendance décroissante entre profondeur d'oxyde (ρ_{ox}) et contrainte normale (T_{nn})

Conclusions

- **Effet d'une pré-déformation par traction**
  - Peu d'effet pour les faibles déformations
  - Augmentation des profondeurs d'oxydation IG pour $\varepsilon \geq 15\%$
  - Effet accélérateur possible de l'hétérogénéité de déformation au voisinage du JdG

- **Effet du chargement mécanique**
  - Effet accélérateur d'un chargement mécanique
  - Pas/Peu d'effet du signe de la contrainte
  - Effet plus marqué en présence de $\varepsilon_{élastique}$ que $\varepsilon_{plastique}$

- **Fissuration des joints de grains oxydés**
  - Effet couplé de la contrainte normale au voisinage du JdG et de la profondeur d'oxydation

MERCI POUR VOTRE ATTENTION