

Caractérisation de l'inconel 600 sollicité en flexion 4 points

A . Haouam

Laboratoire Roberval, UMR 6253 CNRS, Centre de Recherches de Royallieu,
Université de Technologie de Compiègne, BP 20529, 60205 Compiègne, France
Université Badji Mokhta Annaba, Département de Génie Mécanique, LR3MI, 23000 Algérie

G. Moulin

Laboratoire Roberval, UMR 6253 CNRS, Centre de Recherches de Royallieu,
Université de Technologie de Compiègne, BP 20529, 60205 Compiègne, France

J. Favergeon

Laboratoire Roberval, UMR 6253 CNRS, Centre de Recherches de Royallieu,
Université de Technologie de Compiègne, BP 20529, 60205 Compiègne, France

B. Merzoug

Université Badji Mokhta Annaba, Département de Génie Mécanique,
LR3MI, 23000 Algérie

Résumé

Ce travail porte sur la caractérisation de l'alliage base nickel connu sous le nom commercial d'Inconel 600 utilisé au niveau du circuit primaire et des générateurs de vapeur des réacteurs nucléaires à eau pressurisée. Dans ces conditions d'utilisation, cet alliage est sujet à des fissurations inter-granulaires par corrosion sous contrainte. L'un des objectifs majeurs, visé par cette étude est la connaissance de la synergie entre l'oxydation et le chargement mécanique. La plage de température, choisie pour répondre aux conditions réelles de fonctionnement des installations de réacteurs nucléaires type PWR entre 350 et 550°C (et plus). Concernant la réactivité du matériau oxydé en température sous air synthétique, des analyses ont été effectuées par thermogravimétrie ; le gain de masse enregistré est très faible quelque soit la température, ce qui montre la très faible réactivité du matériau dans de telles conditions. Quant à l'influence du chargement mécanique, les premiers résultats des essais de flexion 4 points, effectués sous vide secondaire et suivis par émission acoustique ; révèlent l'absence d'endommagement de l'échantillon. L'influence de l'oxygène (ou même de la vapeur d'eau) est actuellement à l'étude afin de vérifier son véritable caractère et son incidence sur la fissuration éventuelle de l'alliage 600 en température. A l'aide des cinétiques d'oxydation et des caractéristiques mécaniques obtenues à partir des essais expérimentaux sous atmosphère contrôlée, in situ, un modèle de comportement thermomécanique de l'Inconel 600 en flexion sera ensuite proposé.

Abstract

This work deals with the damage of nickel base alloy known under the commercial name of Inconel 600 used on the level of the primary circuits of the nuclear reactors with pressurized water. One of the most important points is the knowledge of the synergy between oxidation and mechanical loading. The temperature range which is explored is chosen in order to answer the real conditions (and above) of the plant operations between 350 to 550°C. For the reactivity, it must be noted that the mass gain is weak whatever temperature. It shows a very low reactivity of the material in these conditions. For the influence of the mechanical loading, the first results concerning the 4 point bending tests carried out in secondary vacuum and associate with the acoustic emission shows that no damage of the sample occurs in mechanical loading. The influence of oxygen (or even water vapour) is now in study to verify the true influence of oxygen. With the oxidation kinetics and the mechanical properties obtained from the tests under controlled atmosphere, in situ, a model of thermomechanical behaviour of Inconel 600 flexural will then be proposed.

1. INTRODUCTION

L'Inconel 600 est un alliage base nickel ayant une excellente résistance à la corrosion en milieu aqueux à haute température. Il est utilisé au sein du circuit primaire des réacteurs nucléaires à eau pressurisée, particulièrement au niveau des tubes des générateurs de vapeur. Certains cas de fissures observées dans le monde au cours des dernières décennies, sont à l'origine de nombreux travaux de recherche. Parmi les facteurs responsables de ces dégradations, nous citons la température, l'action corrosive de l'atmosphère, l'état de surface et les sollicitations mécaniques en présence. Les mécanismes d'oxydation de cet alliage ont été étudiés par Rousselet et al [1], notamment les conséquences des défauts générés par les déformations préliminaires de celui-ci. Abadie [2] a examiné la fissuration par corrosion sous contrainte. Gourgues [3] a travaillé sur les interactions mécanique - oxydation. Caron [4] s'est intéressé à l'influence de l'hydrogène sur la propagation des fissures par la corrosion sous contrainte. Les essais mécaniques sont généralement ceux de traction, de fluage et de fatigue à haute température. Notre contribution aura la particularité d'étudier le comportement de l'Inconel 600 en flexion 4 points dans la gamme des températures de fonctionnement des générateurs de vapeur de 350 à 550°C (et plus). L'article comprend :

- L'étude microstructurale des éprouvettes utilisées lors des essais de flexion.
- Le diagramme d'équilibre thermodynamique de l'Inconel 600.
- L'étude de la cinétique d'oxydation par thermogravimétrie sous air synthétique.
- L'utilisation de l'émission acoustique pour la détection de l'endommagement de cet alliage.
- Les résultats des essais de flexion 4 points qui donneront un aperçu de l'évolution des caractéristiques mécaniques dans l'intervalle de température considéré.

2. MATERIAU

2.1 Structure

Les échantillons sont découpés à partir de plaques laminées d'Inconel 600 d'épaisseur 2 mm dont la composition chimique est donnée dans le tableau 1 ; les dimensions finies après polissage avec du papier abrasif au carbure de silicium (indices 120 à 4000), sont 25x5x0.5 mm³. Un recuit d'adoucissement est réalisé sur ces échantillons à 600°C durant une heure dans le but d'éliminer les contraintes résiduelles et de stabiliser la microstructure.

Eléments	Ni	Cr	Fe	C	Si	Mg	S	Cu
% massique	balance	15.5	8	0.1	0.5	1.0	0.015	0.5

Tableau.1. Composition massique moyenne de l'alliage 600 [5].

2.2 Observations microscopiques

2.2.1 Microscope optique

L'observation au microscope optique permet de visualiser les joints de grains (Figure 1). Pour cela,

une attaque chimique a été effectuée sur les échantillons à l'aide d'une solution contenant 4 mg de CuSO_4 , 20 ml d'eau distillée et 20 ml d'HCl concentré. L'ensemble est refroidi par un mélange eau + glace. L'échantillon est introduit dans la solution durant 45 secondes puis rincé à l'éthanol.

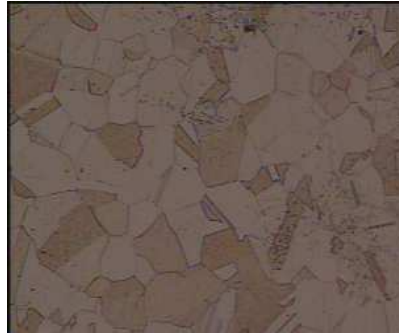


Figure 1. Echantillon d'alliage 600 à l'état brut

2.2.2 Diffraction des rayons X

On déduit la nature de la structure cristalline de la répartition des raies de diffraction. Celle-ci peut se démontrer à l'aide de la condition de Bragg. Les diffractogrammes réalisés sur des échantillons d'alliage 600 polis non-oxydés montrent une structure cubique à faces centrées.

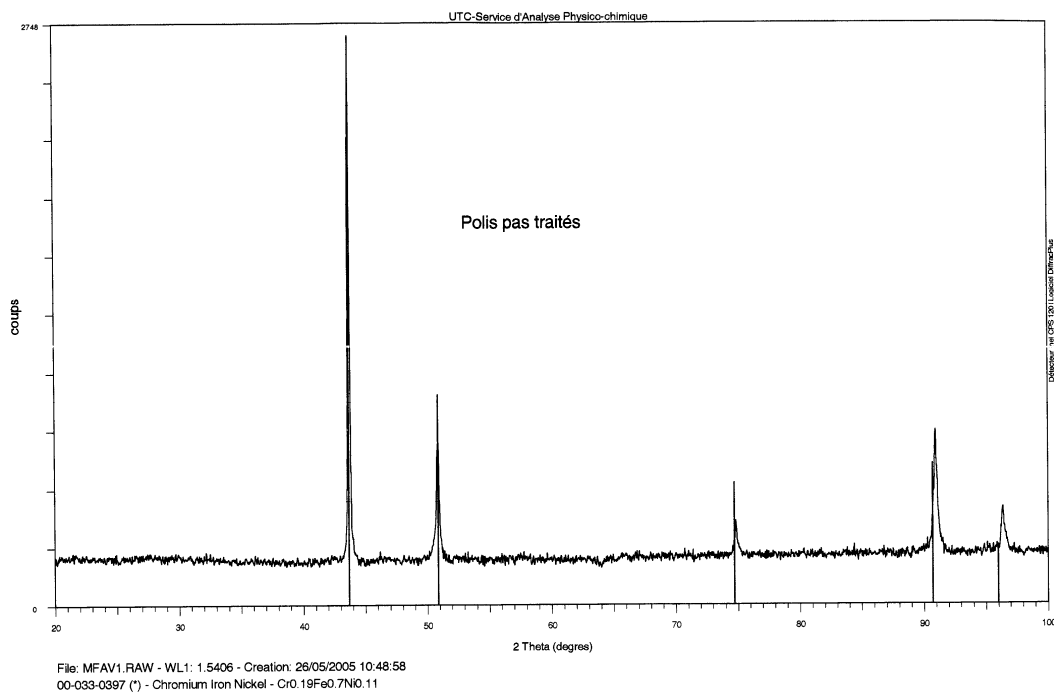


Figure 2 : Diffractogramme de l'Inconel 600

2.2.3 Microscopie Electronique à Balayage

Une analyse réalisée par sonde électronique (EDX) a permis de connaître la composition chimique des échantillons. On trouve une composition de Ni, Cr et Fe en accord avec l'analyse du fournisseur. De plus, l'observation au MEB a révélé la présence de « billes » très riches en Cr et d'éléments de forme pyramidale riches en titane.

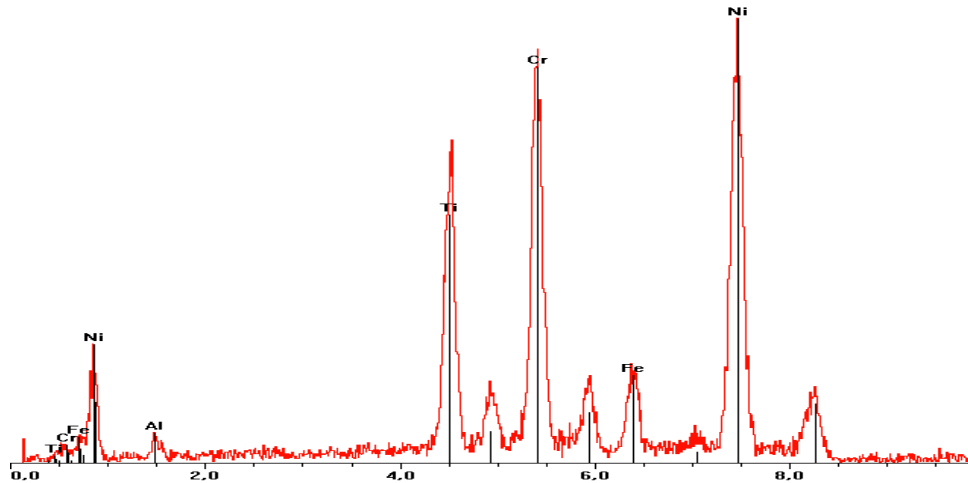


Figure 3. Composition chimique d'un échantillon d'Inconel 600 traité thermiquement

2.2.4 Analyse EBSD

L'analyse EBSD permet la détermination de l'arrangement cristallographique des matériaux, en complément des autres méthodes classiques (diffraction des rayons X).

L'analyse par EBSD nous a révélé la taille moyenne des grains ainsi que leur orientation. Les trois analyses effectuées ont donné les mêmes résultats, avec une taille moyenne de grains de l'ordre de 12 μm , et une orientation de grain privilégiée suivant des plans perpendiculaires à la direction [101].

2.3. Diagramme thermodynamique.

L'examen du diagramme d'équilibre thermodynamique, établi à l'aide du logiciel "Thermo Calc", montre l'existence d'un grand nombre de phases. Ces phases sont respectivement 1 : La phase M_{23}C_6 où $\text{M} = \text{Cr}$. 2 : La phase gamma prime, phase ordonnée CFC constituée de 75% de sites de Ni et de 25% de sites de Fe. 3 : La phase M_7C_3 où $\text{M} = \text{Cr}$. 4 : La phase sigma.

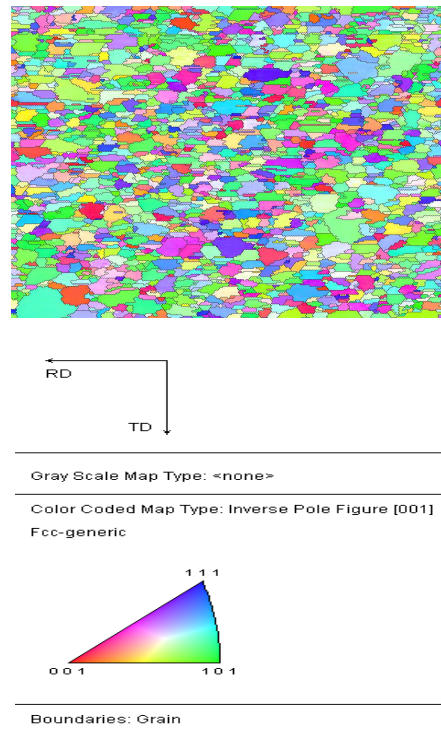


Figure 4. Arrangement cristallographique de l'alliage 600 obtenu par EBSD. Echantillon traité thermiquement durant 1h à 600°C

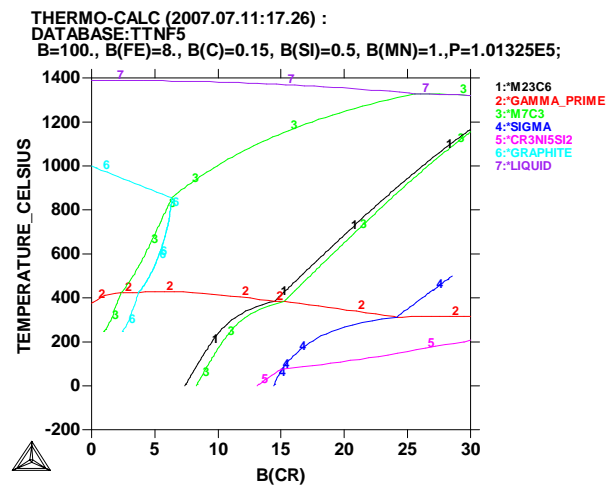


Figure 5. Diagramme de phases (% de chrome en fonction de la température)

3. OXYDATION ISOTHERME

La méthode d'essai conventionnelle de l'oxydation thermique utilisée est celle de l'analyse par thermogravimétrie (ATG), basée sur l'enregistrement continu de l'évolution de la masse d'un échantillon au cours de son oxydation sous atmosphère contrôlée. La variation de masse est suivie en temps réel. Les essais d'oxydation ont été réalisés sur des échantillons de section plane 12x18 mm², d'épaisseur 2 mm aux températures respectives de 350, 550 et 800°C (Fig.6), avec un débit d'air de 0.5 l/min et une montée en température de 26 °C/min ; et ce au moyen d'une thermo balance type Setaram Mtb10-8.

3.1 Protocole des essais

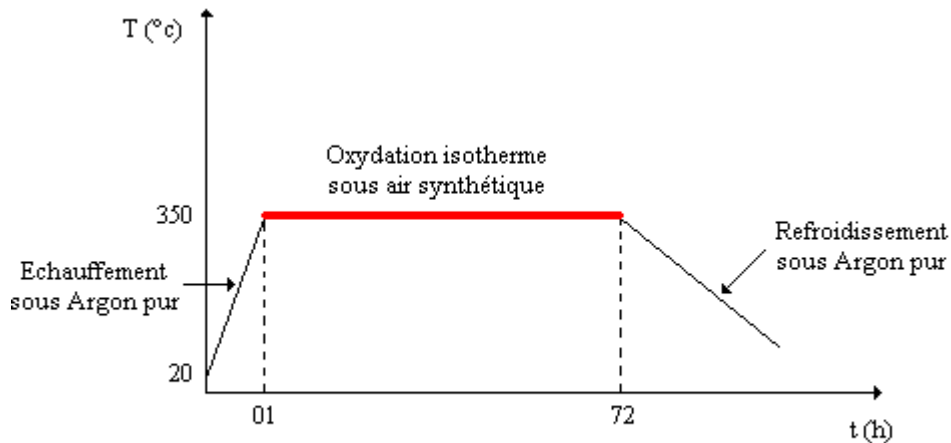


Figure 6. Déroulement des essais de thermogravimétrie

3.2 Résultats de l'ATG

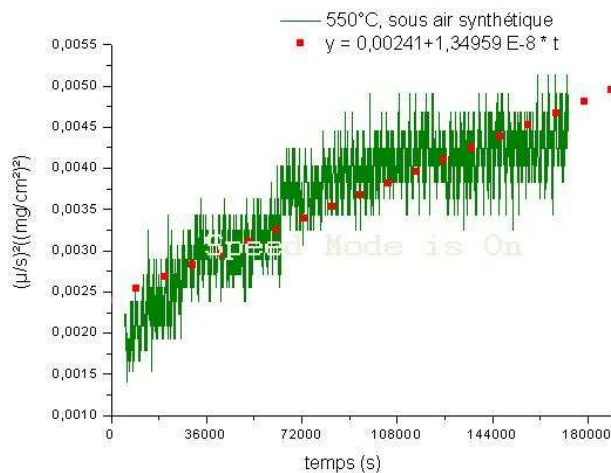


Figure 7. Evolution du carré du gain de masse par unité de surface en fonction du temps de l'alliage 600 à 550°C

Grâce au tracé des courbes représentant la prise de masse des échantillons en atmosphère oxydante et en température en fonction du temps, nous vérifions que l'évolution du carré du gain de masse par unité de surface $(\mu/s)^2$ en fonction du temps se traduit par une droite (Fig.7) ; ceci signifie que la cinétique d'oxydation de l'alliage 600 suit une loi parabolique du type $(\mu/s)^2 = k_p.t$ [7]. μ est le gain de masse en mg, s la surface de l'échantillon en cm^2 , t le temps en s, et k_p la constante de vitesse parabolique dont les valeurs sont représentées dans le tableau 2.

T (°C)	k_p ($mg^2/cm^4.s$)	$\ln k_p$
350	$8.55 \cdot 10^{-9}$	-18.57
550	$1.35 \cdot 10^{-8}$	-18.12
800	$3.66 \cdot 10^{-8}$	-17.12

Tableau 2. Evolution de la constante de vitesse parabolique k_p

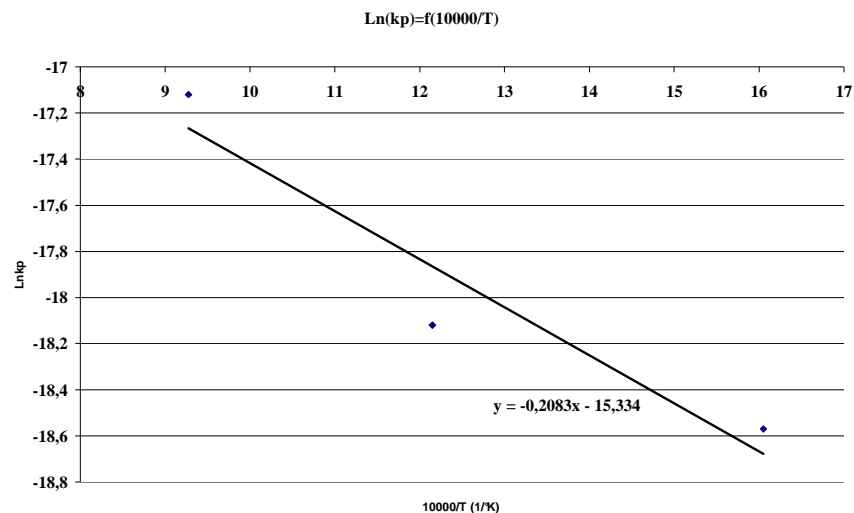


Figure 8. Variation du logarithme de k_p en fonction de l'inverse de la température absolue

De l'équation obtenue sur le graphe (Fig.8), $\ln k_p = -15.443 - 0.2009 \left(\frac{10000}{T} \right)$ par identification

avec la loi d'Arrhenius $k_p = k_{p,0} \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right)$, où $R = 8.314 \text{ J.mol}^{-1}.\text{K}^{-1}$, nous déterminons la constante $k_{p,0} = 1.964 \cdot 10^{-2} \text{ mg}^2.\text{cm}^{-4}.\text{s}^{-1}$ et la valeur de l'énergie d'activation nécessaire à la croissance de l'oxyde de chrome Cr_2O_3 , $Q = 16.7 \text{ kJ.mol}^{-1}.\text{K}^{-1}$.

La constante de vitesse parabolique k_p croît avec l'augmentation de la température. L'épaisseur de la couche d'oxyde de chrome formée est très faible, ce qui confirme la faible réactivité du matériau oxydé à haute température, soit l'excellente résistance de l'alliage 600 à la corrosion à haute température [8].

t (°C)	S (cm ²)	μ (mg)	μ/s (mg/cm ²)	Nombre de moles d'oxygène/cm ²	Nombre de moles de chrome/cm ²	Masse de Cr (mg)	Epaisseur Cr ₂ O ₃ (μm)
350	5.68	0.11	0.019	1.21 10 ⁻⁶	4.03 10 ⁻⁷	6.13 10 ⁻⁵	0.12
550	6.14	0.16	0.026	1.63 10 ⁻⁶	5.42 10 ⁻⁷	8.25 10 ⁻⁵	0.16
800	5.64	0.30	0.053	3.32 10 ⁻⁶	1.11 10 ⁻⁶	1.68 10 ⁻⁴	0.32

Tableau 3. Evolution de l'épaisseur de la couche de l'oxyde de chrome durant les essais d'oxydation isotherme

4. ESSAIS DE FLEXION

4.1 But des essais de flexion

Les essais de flexion sont réalisés au sein du montage expérimental (Fig.9) dans le but de déterminer les caractéristiques mécaniques du matériau sollicité sous diverses conditions afin d'établir des lois de comportement.

4.2 Montage expérimental

L'installation (Fig.9) permet de suivre simultanément l'oxydation d'une éprouvette et l'évolution des principaux paramètres mécaniques (charge et déplacement) par l'intermédiaire de deux capteurs couplés au niveau du mors mobile reliés à un ordinateur (Fig.10) [9].

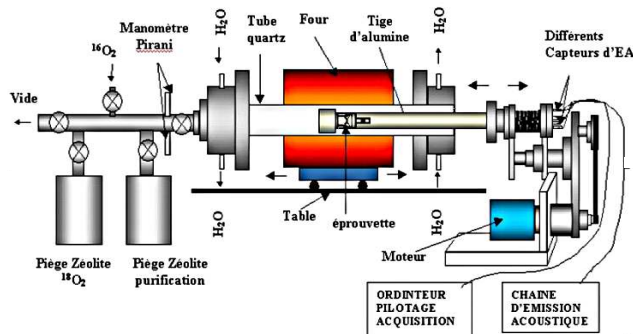


Figure 9. Installation d'oxydation sous contrainte

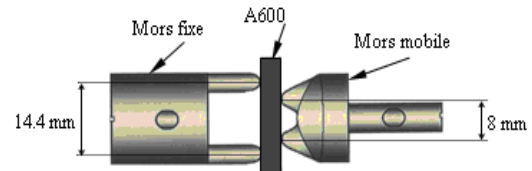


Figure 10. Dispositif de maintien des échantillons

4.3. Protocole des essais

Les essais de flexion sont réalisés sous vide secondaire (10⁻⁶ mbar) selon le protocole décrit ci-dessous (Fig. 11) et ce avec un déplacement imposé au mors mobile d = 0.7 mm et une vitesse de 2 mm/min.

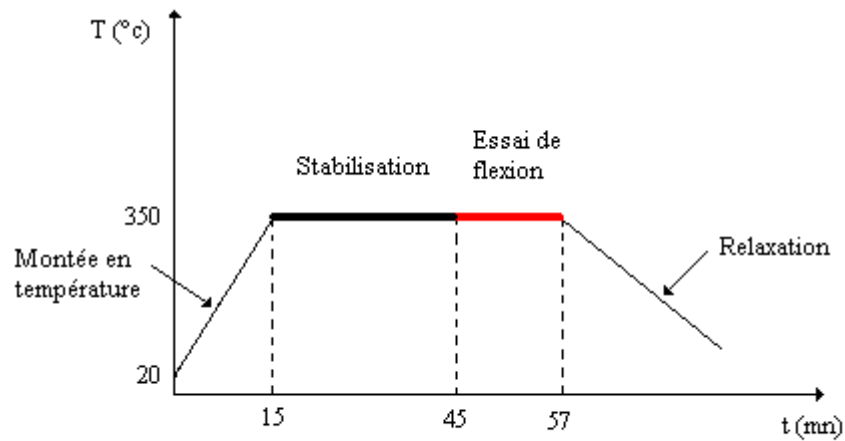


Figure 11. Protocole des essais de flexion 4 points

4.4 Résultats

Les courbes de chargement Force (F) en fonction du déplacement (d) montrent la présence d'un changement de pente.

Ce point peut être assimilé à une pseudo limite d'élasticité du matériau. Sur chaque courbe, nous définissons 2 zones :

- La zone 1, caractérisée par une partie linéaire de la courbe correspondant à un comportement élastique de l'échantillon.
- La zone 2, correspondant au domaine plastique où le matériau se plastifie sans relâchement.

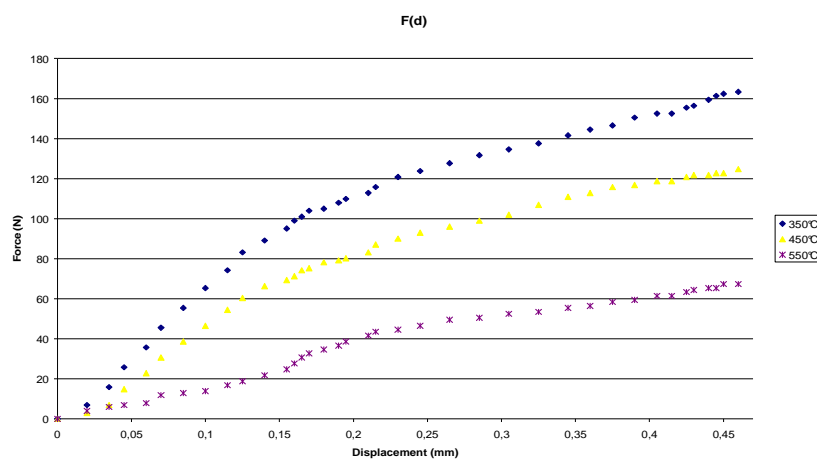


Figure 12. Courbes force - déplacement en température

T (°C)	h (mm)	σ_e MPa	$\sigma_{e0.2\%}$ MPa	F (N)	E_{th} GPa	E_{ex} MPa	ΔE %
350	0.64	389	462	83.16	196	214	09
450	0.62	290	361	60.39	190	173	09
550	0.50	66	232	11.88	183	158	14

Tableau 4. Limites d'élasticité et Module de Young

La limite d'élasticité σ_e , de même que le module de Young du matériau diminuent avec l'augmentation de la température. Les résultats obtenus se situent dans l'intervalle des limites d'élasticité de l'alliage 600 excepté à 550°C, valeur assez faible sans doute en raison de la réponse thermique du montage.

5. EMISSION ACOUSTIQUE

Le traitement par Logiciel Noesis des signaux, émis lors des tests de flexion réalisés sous vide en température, indique une stabilité pour les graphes représentant l'évolution de l'amplitude en fonction du temps. Les graphes représentant l'énergie absolue en fonction de la durée font apparaître deux niveaux d'énergie (Fig. 13b) :

- Zone 1 (Inférieures à 10000 ua) : Aucun évènement acoustique n'est détecté, absence d'endommagement, ce qui confirme le comportement élastique du matériau.
- Zone 2 : Les énergies les plus élevées sont associées à la sollicitation mécanique durant laquelle l'activité acoustique est très importante (supérieures à 10000 ua).

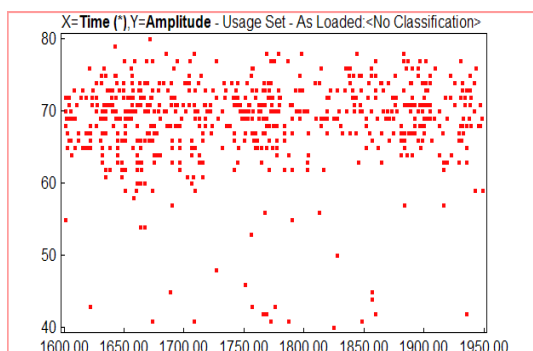
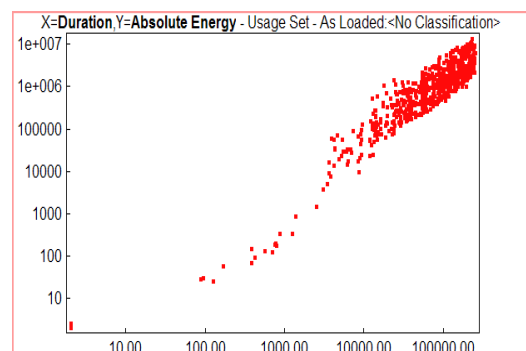


Figure 13. (a) Amplitude en fonction du temps



(b) Energie absolue en fonction du temps à 350°

6. CONCLUSION

L'alliage 600 présente une structure cristalline stable du type CFC. Les tests d'oxydation isotherme effectués sous air synthétique aux températures de 350, 550 et 800 °C indiquent un très faible gain de masse dans le temps. L'alliage 600 présente une faible réactivité durant son oxydation à haute température sous air synthétique.

Les essais de flexion 4 points, réalisés sous vide secondaire en température, montrent que :

- Absence de formation de couche d'oxyde.
- Absence de fissuration pendant le chargement ; ce résultat est confirmé par l'émission acoustique.
- Les caractéristiques mécaniques (limite d'élasticité conventionnelle et module de Young), obtenues durant les essais mécaniques, sont proches de celles données par le fournisseur.

Cette première approche sera utilisée comme base à l'étude des endommagements de l'alliage 600 soumis à l'action d'un milieu corrosif, particulièrement en présence de vapeur d'eau.

7. REFERENCES

- 1 ROUSSELET J.M., MOULIN G., HUNTZ A.M., Rôle des défauts créés par une déformation préalable des impuretés (C.S) sur les mécanismes d'oxydation d'un alliage inconel 600. Traitement mécanique et thermique des surfaces, Technologie, applications industrielles, contrôle et essais, Ed. Traitements de surface Vol.2, p.137-155, (1984).
- 2 ABADIE P., Fissuration par corrosion sous contrainte de l'alliage 600 dans l'eau à haute température. Contribution d'une approche phénoménologique à la compréhension des mécanismes, Thèse de Doctorat, ENSM de Saint Etienne, (1998).
- 3 GOURGUES A.F., ANDRIEU E., Fissuration de l'alliage 600 assistée par l'environnement dans l'air à 550°C. Application au milieu primaire des réacteurs nucléaires à eau sous pression, Annales de Chimie Science des Matériaux, Vol 24, Issue 4-5, p.321-328, (1999).
- 4 CARON D., Influence de l'hydrogène sur la vitesse de propagation des fissures de corrosion sous contrainte dans l'alliage 600 en milieu primaire des réacteurs nucléaires à eau sous pression, Thèse de Doctorat, INSA de Lyon, (2000).
- 5 <http://www.goodfellow.com>, Informations sur matériaux Inconel, 2004
- 7 GREENE G.A. AND FINFROCK C.C., Oxidation of Inconel 718 in air at high temperatures. Oxidation of metals, Vol. 55, N°5/6, (2001).
- 8 HAOUAM A., MOULIN G., FAVERGEON J., MERZOUG B. "Effect of the temperature and oxidant atmosphere on Inconel 600 solicited in 4 point bending" Two Shifting Conference, London 27/28 Sept (2007).
- 9 HAOUAM A., MORILLOT H., FAVERGEON J., MOULIN G., MEZOUZ B., « Comportement thermomécanique de l'alliage 600 en flexion 4 points » Revue Synthèse N°16, p.87-95, Juin (2007). Université Badji Mokhtar Annaba