Transactions of the **14th International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology** (SMiRT 14), Lyon, France, August 17-22, 1997 **D03/3**

Nondestructive testing by thermoelectric power measurements

Leborgne J.M.[(1)], **Miloudi S.**[(2)], **Borrelly R.**[(1)], **Grisot O.**[(3)], **Massoud J.P.**[(3)]
(1) INSA Lyon, France
(2) EDF/DER, France
(3) EDF, France

ABSTRACT

The thermoelectric power (TEP) is very interesting to follow the microstructural evolutions due to ageing in metallic alloys. It can be easily measured on small samples using an apparatus based on Seebeck effect. A new apparatus for local TEP measurement on large samples and for non destructive evaluation has been developped. It was tested to follow the thermal aging process of cast duplex stainless steels used for components of the primary loop of pressurized water reactors. A second application was also examined to detect the precipitation of cooper induced by irradiation in ferritic steels.

I- INTRODUCTION

L'évolution des propriétés mécaniques des alliages métalliques pendant le vieillissement en service est en général liée à des changements microstructuraux tels que précipitation, apparition de défauts de réseau... Ces changements peuvent avoir diverses origines : effet de la température, effet des contraintes mécaniques, effet de l'irradiation... Ils sont souvent la cause de l'endommagement et il est nécessaire de les détecter par un contrôle non destructif. Pour cela on peut utiliser des méthodes indirectes qui consistent à mesurer les variations d'une propriété sensible aux phénomènes mis en jeu. On peut citer par exemple la dureté, la résistivité mesurée par courants de Foucault. Cependant le nombre de méthodes pour un tel contrôle reste très limité.

Le but de nos recherches est d'étudier les possibilités de caractériser le vieillissement par les mesures de pouvoir thermoélectrique (PTE), et de réaliser un dispositif permettant d'effectuer ces mesures avec suffisamment de précision sur des pièces massives dans le cadre d'un contrôle non destructif. (en effet rares sont les tentatives d'utiliser une telle méthode d'investigation [1,2]).

Après quelques généralités concernant le PTE, nous rappelons la méthode de mesure classique sur petits échantillons, pour en venir au principe d'un appareillage de mesure sur pièces massives, original dans sa conception et dans la méthode de calcul du PTE [3]. Enfin nous examinerons deux possibilités d'application de cet appareillage : suivi du vieillissement des aciers austéno-ferritiques de coudes du circuit primaire de réacteurs à eau pressurisée et suivi des effets d'irradiation sur des aciers de cuve.

II- GENERALITES SUR LE POUVOIR THERMOELECTRIQUE

Le pouvoir thermoélectrique est une propriété caractéristique d'un matériau qu'on peut schématiquement décrire comme sa capacité à générer un flux d'électrons sous l'action d'un flux thermique. Ce phénomène est nettement mis en évidence par l'effet Seebeck.

Cet effet apparait dans le circuit composé de deux matériaux conducteurs A et B représenté sur la figure 1. Si on impose un gradient thermique dans les conducteurs tel que les 2 jonctions 1 et 2 soient aux températures T_1 et T_2 et que les extrémités libres de A soient à la température T_0, une différence de potentiel (V_2-V_1) mesurable apparaît entre ces dernières.

Si T_2 est voisin de T_1, et si S_A et S_B sont les PTE absolus des matériaux A et B, le PTE à la température moyenne $T = (T_1 + T_2)/2$, du conducteur B par rapport au conducteur A, est donné par la relation :

$$\Delta S = S_{BA} = S_B - S_A = (V_1 - V_2) / (T_2-T_1) = \Delta V / \Delta T \text{ exprimé en } \mu V/K \qquad (1)$$

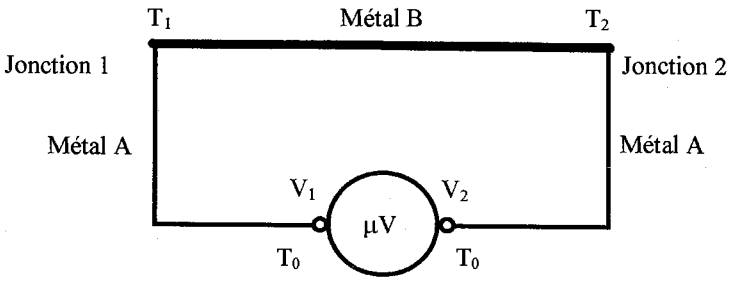

Figure 1 : Effet Seebeck - Principe de mesure du PTE

Le PTE absolu d'un métal pur recuit peut être positif ou négatif et prendre des valeurs de l'ordre du µV/K à quelques dizaines de µV/K. Ses variations en fonction de la température sont généralement complexes. En effet on doit considérer deux composantes du PTE d'origines différentes : aux basses températures une composante dite de «phonon-drag» ou de réseau car liée au réseau cristallin présentant un extrémum et aux plus hautes températures une composante diffusionnelle qui varie souvent linéairement en fonction de la température.

Toutes les modifications du réseau cristallin d'un métal peuvent modifier le pouvoir thermoélectrique : changement de structure cristallographique, introduction d'atomes d'impuretés, création de dislocations...

Dans le cas d'alliages métalliques on peut utiliser le PTE comme méthode de caractérisation pour détecter les transformations même à très petite échelle de la microstructure. L'étude des phénomènes de précipitation [4,5], de mise en solution, de mise en ordre à courte distance ou à longue distance constitue certainement une des applications les plus intéressantes. Le PTE peut permettre aussi d'étudier les effets de l'écrouissage et les phénomènes de restauration au cours des recuits ou encore les transformations de type martensitique.

Ces applications sont possibles en utilisant un appareillage de mesure du PTE à 20°C [6], qui nécessite le prélèvement de petits échantillons et qui est décrit dans le chapitre suivant. Un des avantages présenté alors est la facilité et la rapidité de la mesure. En outre la mesure est indépendante de la forme géométrique précise de l'échantillon.

III- MESURE CONVENTIONNELLE DU PTE A 20°C

Pour mesurer le PTE d'un matériau, on utilise un appareillage reproduisant le schéma de principe de l'effet Seebeck de la figure 1 en prenant pour A un conducteur de PTE connu et pour B l'échantillon. Dans ce dispositif de mesure dit à gradient latéral, l'échantillon en forme de plaquette est fixé entre deux blocs en métal A maintenus aux températures T_1 et T_2 (figure 2). Le pouvoir thermoélectrique relatif ΔV est donné par la formule (1).

La différence de potentiel ΔV est relevée avec deux fils en métal A raccordés à chacun des deux blocs. La différence de température ΔT est mesurée au moyen de deux thermocouples montés en différentiel (et insérés dans chacun des blocs à 1,5 mm à l'aplomb du point de fixation de l'échantillon). En prenant des blocs de dimensions suffisantes en matériau bon conducteur thermique (cuivre, aluminium...) et un échantillon de section réduite, on peut limiter le flux thermique traversant ce dernier. Ainsi, la différence de température mesurée par les thermocouples s'écarte très peu de la différence de température entre les surfaces de contact échantillon-blocs. Le gradient de température est réparti le long de l'échantillon entre les points de contact avec les blocs. C'est de cette partie de l'échantillon soumise au gradient thermique dont on mesure le PTE moyen.

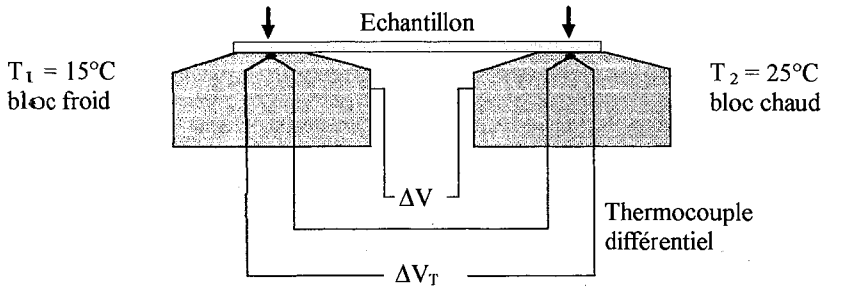

Figure 2 : Méthode du gradient latéral

La différence de potentiel ΔV et celle fournie par les thermocouples ΔV_T sont amplifiées et permettent le calcul de ΔS qui est directement affiché par l'appareil. Une difficulté rencontrée est la mesure de la tension thermoélectrique qui étant de l'ordre de quelques μV nécessite un amplificateur à faible bruit de fond et à faible dérive thermique.

Un tel appareil donne le PTE de l'échantillon à 20°C par rapport au métal des blocs avec une bonne précision : la plus faible variation détectable est de l'ordre de 0,002 $\mu V/K$ tandis que l'incertitude relative est de 0,2%. Il nécessite donc le prélèvement d'un échantillon de faibles dimensions (généralement 60 x 4 x 0,5 mm^3).

IV- METHODE DE MESURE LOCALE DU PTE

IV-1-Principe

Pour développer une méthode de mesure non destructive du PTE, il est nécessaire d'adapter le principe de mesure utilisé précédemment. Pour cela, afin de créer un gradient thermique au sein du matériau on applique sur la surface de la pièce deux touches réalisées avec un métal donné et portées à des températures différentes (fig. 3).

L'une des deux touches en forme de pointe, dite pointe chaude, est chauffée grâce à un élément chauffant et à un système de régulation de température. Elle est pressée contre le conducteur avec une force connue et génère un gradient thermique dans l'échantillon. Cette pointe comporte un méplat de rayon r définissant une surface de contact. La seconde touche, apposée à l'extérieur de la zone chauffée de la pièce, se résume à un simple contact et prend une température très proche de celle de la pièce.

Le passage de la méthode conventionnelle à la méthode de la pointe chaude complique la détermination précise de la différence des températures des contacts entre la pièce et le matériau de référence des deux touches.

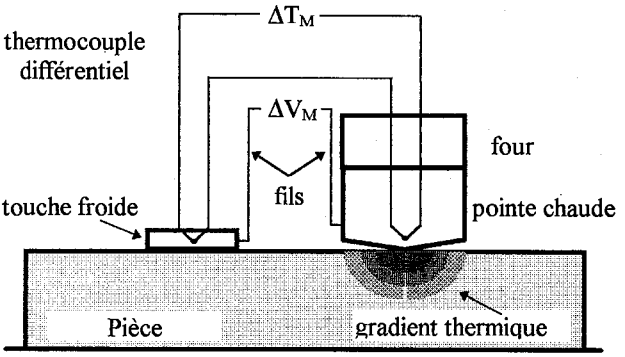

Figure 3 : Méthode de la pointe chaude.

IV-2- Méthode de calcul du PTE

Pour déterminer le PTE de la portion de matériau chauffée, on mesure la différence de température ΔT_M grâce à un thermocouple différentiel, ainsi que la différence de potentiel ΔV_M due à l'effet Seebeck par l'intermédiaire de fils de prise de potentiel. Le PTE réel de la pièce par rapport au métal des touches à la température moyenne T est :

$$PTE(T) = \Delta T_C / \Delta V_C, \qquad (2)$$

où ΔT_C est l'écart de température réel entre les contacts touches-pièce et ΔV_C est la tension thermoélectrique qu'on mesurerait si les fils de liaison avaient rigoureusement le même PTE que les blocs.

Une modélisation thermique du système nous permet d'étudier la répartition des isothermes dans la pièce et dans la pointe chaude, et de déterminer une relation entre ΔT_C et ΔT_M. Celle-ci fait intervenir la géométrie de la pointe et les conductivités des matériaux de la pointe et de la pièce. De même ΔV_C peut être déterminée à partir de ΔV_M connaissant ΔT_M et les PTE précis des matériaux de la pointe et des fils de liaison.

Dans ce modèle la résistance thermique de contact pointe chaude-pièce est considérée comme négligeable. Cette condition ne peut être obtenue que pour un choix convenable de l'état de surface, une bonne axialité du contact et un choix correct de la force. Par exemple pour un rayon r de l'ordre de 0,3 mm, la force d'application correspondante est de 30 N.

Le choix de ΔT_M est réalisé suivant un compromis entre l'obtention d'une tension thermoélectrique suffisante et une puissance de chauffage réduite. De plus, il est souhaitable de rester dans une fourchette de température telle que les variations du PTE en fonction de la

température soient linéaires. Typiquement un écart de température de l'ordre de 25°C est convenable pour une température de la pièce testée de 25°C.

Pour s'affranchir des conditions expérimentales une dernière correction est effectuée pour obtenir la valeur du PTE à 20°C, ce qui nécessite de connaître les variations du PTE en fonction de la température (loi considérée comme linéaire dans le domaine considéré). Les valeurs obtenues sont alors comparables à celles données par l'appareil conventionnel. En outre la valeur du PTE peut être exprimée par rapport à un métal de référence bien défini : par exemple du cuivre recuit très pur.

IV-3- Zone caractérisée par la mesure

L'effet thermoélectrique dans la pièce est obtenu uniquement dans la zone soumise au gradient thermique. En considérant la région où 90% de la chute de température se produit , le volume carctérisé est celui d'une hémisphère de rayon R = 6 r. Le choix de r peut donc être effectué en fonction du volume à caractériser, la force d'application étant choisie en conséquence. De faibles valeurs de r peuvent être choisies pour étudier des hétérogénéités de faibles dimensions et pour réaliser une cartographie. En vue d'effectuer un contrôle non destructif, nous avons opté au contraire pour une valeur de r la plus grande possible : r = 0,3 mm, R est alors égal à environ 2 mm.

IV-4- Description de l'ensemble de l'appareillage

Nous avons réalisé préalablement un banc de mesure afin de tester la méthode pour le contrôle non destructif.

La pointe chaude et son élément chauffant sont fixés sur un chariot vertical motorisé permettant d'amener celle-ci au contact de la pièce et de contrôler la force d'appui. L'échantillon à tester repose sur une plaque de cuivre fixée sur une table X-Y motorisée. La touche froide est appliquée sur le coté de l'échantillon. Un ensemble permet de programmer les conditions de mesure : descente et remontée de la touche chaude, réglage de la force d'appui, positionnement de la pièce, mesure de ΔV_M et ΔT_M, calcul du PTE, séquences de mesures, traitement statistique des résultats, cartographie.

Les éléments de base de ce système (pointe chaude et son système d'application et de contrôle de la force, touche froide, amplificateurs) peuvent être regroupés dans un ensemble portable pour le contrôle non destructif.

IV-5- Conditions d'utilisation et résultats

Une mesure du PTE en un point de la surface s'effectue de la façon suivante. La pointe chaude est préalablement régulée à la température T_R. Elle est amenée au contact de la pièce et pressée contre celle-ci jusqu'à obtention de la force choisie (en environ 20 s). Puis des mesures de ΔV_M et ΔT_M sont effectuées toutes les secondes pendant 15 s. Pour chaque couple de valeurs le PTE est calculé et on détermine ensuite le PTE moyen ramené à 20°C. La pointe chaude est ensuite relevée. La durée totale de l'opération est environ 1 minute.

Dans ces conditions on peut considérer que les mesures sont effectuées en régime thermique quasi-stationnaire comme nous l'avons supposé pour l'étude thermique. C'est-à-dire que le PTE n'évolue pas de façon significative si on prolonge les mesures au-delà de 15 s. Par contre la durée réduite de la mesure évite un échauffement global de la pièce.

Pour réduire les erreurs d'origine aléatoire (nature du contact pointe chaude-pièce) ou liées à des défauts d'homogénéité, on est conduit à effectuer plusieurs mesures en un même point, puis en des points différents.

Des essais ont été effectués sur 3 pièces cylindriques en matériaux de conductivités thermiques différentes :

- un acier inoxydable de type 316L mauvais conducteur thermique,
- un acier au carbone de type A60 conducteur thermique moyen
- un alliage d'aluminium de type 2017 bon conducteur thermique.

La figure 5 représente les histogrammes de répartition des PTE ramenés à 20°C pour 50 points de mesure répartis sur un diamètre de la pièce. La valeur du PTE mesurée avec l'appareil à blocs (PTE_V) qui sert de référence est indiquée ainsi que le PTE moyen (PTE_C).

La dispersion des mesures est due d'une part à l'incertitude sur les mesures estimée à 0,06 µV/K et d'autre part à un manque d'homogénéité des pièces utilisées (en particulier pour l'acier A60). Dans le cas d'alliages bons conducteurs thermiques comme le 2017 la précision est moins bonne.

La précision obtenue avec notre appareillage de mesure locale du PTE permet de fixer les limites d'application au contrôle non destructif compte-tenu de la sensibilité du PTE aux changements de microstructure à détecter.

Pour assurer à la méthode une reproductibilité dans le temps, il est nécessaire de choisir un ou des alliages étalons stables à la température ambiante et présentant une parfaite homogénéité pour des échantillons de grandes dimensions. Nous avons choisi un acier inoxydable pour lequel les mesures de PTE en des points différents sont très peu dispersées : la moyenne de 5 mesures suffit à retrouver la valeur du PTE établie avec l'appareil à blocs avec une très bonne précision. Cet étalon permettrait de remédier à une dérive des mesures données par notre dispositif à très long terme.

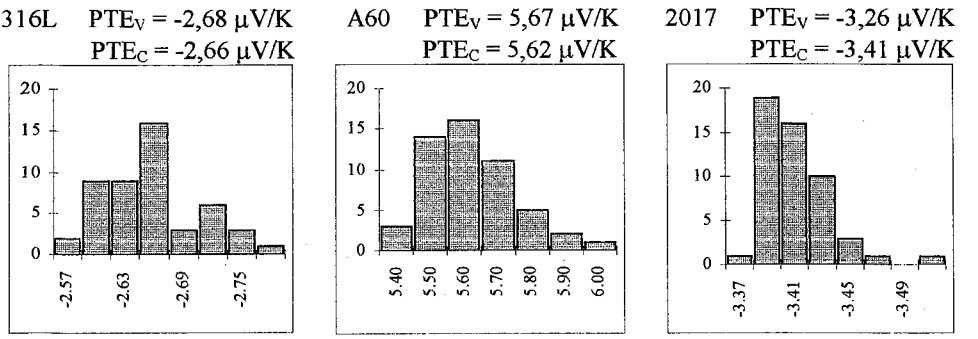

Figure 4 : exemples d'histogrammes de répartition du PTE sur 50 mesures

V- APPLICATIONS

Le PTE étant lié au vieillissement est directement corrélé aux variations de certains paramètres mécaniques caractéristiques de ce vieillissement. Dans la perspective d'un contrôle non destructif, des études ont été effectuées dans ce sens sur des aciers, en utilisant conjointement l'appareil de mesure à blocs et l'appareil de mesure locale.

V-1- Cas des aciers austéno-ferritiques de circuit primaire des REP

Certaines pièces moulées du circuit primaire des réacteurs à eau pressurisée sont réalisées en acier inoxydable austéno-ferritique et sont soumises en service à des températures

comprises entre 285°C et 325°C. La composition de ces aciers est approximativement (toutes nuances confondues) : 17 à 21 % Cr, 8 à 12 % Ni, <2% Si, <1,5 % Mn, <0,008 % C, 2 à 3 % Mo. La teneur en ferrite peut varier d'une nuance à l'autre de 5 à 25 %. Au point de vue métallographique cet alliage est caractérisé par une structure de grains de solidification. A l'intérieur de chaque grain coexistent des colonies de lattes d'austénite entourées de ferrite formant un squelette continu. Le vieillissement dans le domaine de température 300°C-400°C affecte la ferrite, où se produit une décomposition spinodale et uniquement pout T ≥325°C la précipitation de phase G riche en Ni, Si. Ce vieillissement se traduit par une augmentation de la dureté et par une baisse de la résilience.

Une étude sur un ensemble de produits ayant subi des vieillissements entre 300°C et 400°C pour des durées atteignant 30 000 h a permis d'établir une relation linéaire entre le PTE (mesuré avec un appareil à blocs sur petits échantillons) et d'une part un paramètre de vieillissement prenant en compte le temps et la température et d'autre part la teneur en ferrite [7]. La variation du PTE en fonction de la résilience est représentée sur la figure 5.

Cette courbe montre des variations de PTE suffisamment importantes vis-à-vis de la baisse de résilience pour permettre de déterminer par contrôle non destructif l'avancement du vieillissement. Cependant les mesures effectuées avec notre appareillage de mesure locale montre une dispersion des valeurs due aux variations locales du taux de ferrite. Le PTE et la teneur en ferrite ont été mesurés successivement en divers points d'une pièce. La figure 6 montre les résultats obtenus. La pente de la droite moyenne correspond à l'influence de la ferrite sur le PTE qui avait été déterminée précédemment [7]. Cette cause de dispersion supplémentaire doit être prise en compte pour un contrôle non destructif en effectuant les essais sur des zones à teneur en ferrite connue, et en moyennant sur un assez grand nombre de mesures.

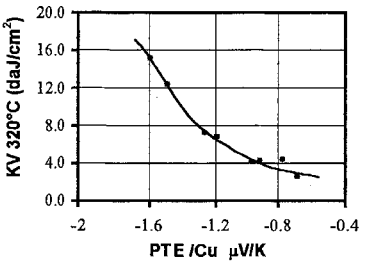

Figure 5 : PTE en fonction de la résilience KV 320°C pour un acier austénoferritique vieilli.

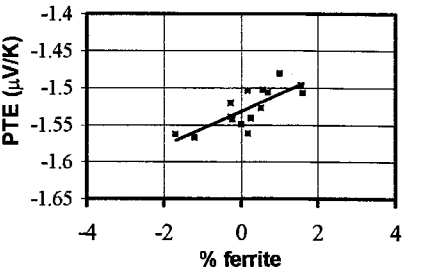

Figure 6 : PTE en fonction de la variation locale de la teneur en ferrite.

V-2- Vieillissement sous irradiation

L'irradiation tend à favoriser la précipitation de certains éléments présents en solution solide qui, aux températures d'usages ne devraient pas précipiter. Une étude a été effectuée sur des alliages binaires Fe-0.2%Cu irradiés aux électrons à une température de 290°C, pour différentes fluences. Le cuivre est initialement mis en solution par un maintien vers 800°C des échantillons, suivi d'une trempe. Pour une telle teneur en cuivre, il est impossible d'engendrer une précipitation lors du vieillissement thermique à la température de 290°C. Par contre, au cours de l'irradiation, il est constaté un durcissement important de l'alliage lié à la précipitation du cuivre. Celle-ci donne lieu à d'importantes variations du PTE. Nous présentons figure 7 la corrélation entre les variations du PTE et la dureté pour cet alliage irradié aux électrons jusqu'à une fluence de 1.10^{20}e.cm^2.

A la suite de cette étude, la mesure du PTE a été appliquée avec succès sur des aciers irradiés aux neutrons. Il a été constaté des variations importantes de PTE, permettant d'envisager l'utilisation de cette technique pour le suivi de l'endommagement des aciers de cuve sous irradiation neutronique.

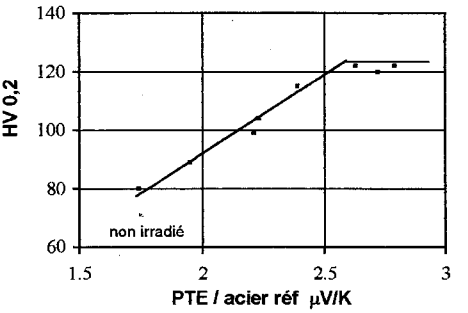

Figure 6 : Dureté en fonction du PTE pour un alliage Fer à 0,2% pds de cuivre irradié aux électrons à 290°C pour des fluences variant de 0 à $1.10^{20}e.cm^2$.

L'appareillage que nous avons mis au point permet d'effectuer une mesure locale du PTE suffisamment précise pour envisager son utilisation dans le cadre d'un contrôle non destructif. Les études effectuées sur deux types d'acier montrent également l'intérêt de cette technique pour la prévision de l'évolution due au vieillissement des propriétés mécaniques de pièces en service.

Références :

1. Morgner W. 1991. Introduction to thermoelectric nondestructive testing.
Materials Evaluation. (Sept) , 1082-1087.

2. Fulton J. P., Wincheski B., Namkung M. 1994. Automated weld characterization using thermoelectric method.
Rev. of Prog. in quantitative NDE. 13, 1611-1618.

3. Leborgne J. M. 1996. Appareil de mesure locale du pouvoir thermoélectrique. Application au contrôle du vieillissement thermique des aciers inoxydables austénoferritiques moulés des réacteurs à eau pressurisée.
Thèse. INSA Lyon.

4. Pelletier J. M., Vigier G., Merlin J., Merle P.,Fouquet F., Borrelly R. 1984. Precipitation effects on thermopower in Al-Cu alloys. Acta Met. 32, 1069-1078.

5. Loucif K., Borrelly R., Merle P. 1992. Study by thermoelectric power and resistivity measurements of the precipitation kinetics in zirconium alloys between 450 and 600°C.
J. of nuclear materials. 189, 34-45.

6. Borrelly R., Bouvier-Volaille J. L. 1988. Appareil de caractérisation des alliages par mesure de leur pouvoir thermoélectrique.
Traitements thermiques. 221, 43-45.

7. Massoud J. P., Grisot O., Borrelly R., Leborgne J. M. 1996. Evaluation of thermal aging of cast duplex stainless steels by thermoelectrical measurement.
Proc. 10ème Conf. Intern. : Evaluation de l'endommagement et de son évolution par techniques d'essais non destructifs. tome XVI, St Etienne, 16-1,16-12.