

DAÑO PROGRESIVO POR PLASTICIDAD Y FRAGILIZACION POR HIDROGENO EN ACERO AUSTENITICO 316L

J. Toribio y E.R. Justo

Departamento de Ciencia de Materiales, Universidad de La Coruña
E.T.S. Ingenieros de Caminos, Campus de Elviña s/n, 15192 La Coruña

Resumen. Este trabajo analiza el proceso de daño progresivo producido por causas mecánicas (plasticidad) y ambientales (fragilización por hidrógeno) en un acero inoxidable austenítico tipo 316L. Los resultados del análisis demuestran que el daño micromecánico producido por el hidrógeno se concentra en un anillo exterior circunferencial, concéntrico con el área circular de la sección neta de las probetas entalladas. La apariencia microscópica de esta *zona fragilizada* o *área dañada* es muy rugosa e irregular en la escala microscópica, con evidencia de *fisuración secundaria*. Esto contrasta con la superficie lisa (a escala microscópica) creada por crecimiento y coalescencia de micro-huecos en el núcleo central que no está fragilizado por hidrógeno y por tanto se fractura por razones de tipo mecánico. La profundidad del daño producido por el hidrógeno se cuantifica fractográficamente y se relaciona con las variables de ensayo.

Abstract. This paper analyzes the process of progressive damage produced by mechanical origins (plasticity) and environmental causes (hydrogen embrittlement) in 316L austenitic stainless steel. Results of the analysis show that the micromechanical damage created by hydrogen is concentrated in a external circumferential ring with the same center as the cross sectional area of the notched samples. The microscopical appearance of this *embrittled zone or damaged area* is very rough and irregular at the micro-scale, with evidence of *secondary cracking*, in contrast with the smooth surface (at the micro-scale) created by micro-void coalescence (*dimpled fracture*) in the inner core which is not embrittled by hydrogen and thus fails by mechanical reasons. The depth of the hydrogen damaged zone is quantified by fractographic methods and related to the test variables.

1. INTRODUCCION

El acero austenítico 316L recocido es uno de los candidatos para ser utilizado como material estructural en la primera pared del próximo reactor internacional de fusión nuclear de tipo experimental: ITER [1], por lo que el estudio de la susceptibilidad de este material al fenómeno de fragilización por hidrógeno es del máximo interés, al producirse hidrógeno *in situ* vía reacciones protón-neutrón dentro del proceso de fusión encaminado a la producción de energía.

En efecto, aunque el acero austenítico 316L tiene gran ductilidad y resistencia a la fractura en aire —lo cual ha sido fundamental en su elección— su resistencia a la fractura y la susceptibilidad a las entallas sufren una importante reducción en ambiente de hidrógeno [2,3], mayor aún en el acero 316L sensibilizado que en el recocido [4,5]. En el caso del recocido el daño producido

por el hidrógeno se concentra en los escalones de carga previos a la rotura final [6]. Las topografías microscópicas de fractura confirman lo anterior, encontrándose fractura de tipo intergranular (IG) en el acero sensibilizado, y fractura por crecimiento y coalescencia de huecos (CCH) en el recocido [5,7].

Este trabajo presenta un estudio fractográfico cuantitativo en el que se analiza la evolución del proceso de daño progresivo producido por causas mecánicas (plasticidad) y ambientales (fragilización por hidrógeno) en el acero inoxidable austenítico tipo 316L, con el fin de establecer relaciones cuantitativas entre la profundidad de la zona dañada por el hidrógeno y el tiempo de fragilización. El estudio continúa la línea establecida en dos trabajos presentados en anteriores Encuentros del Grupo Español de Fractura, en los cuales se describió el programa experimental y la modelización mecánica del fenómeno de fragilización por hidrógeno [8,9].

2. PROGRAMA EXPERIMENTAL

El estudio se basa en los resultados experimentales de ensayos de fractura en aire y en ambiente de hidrógeno [8,9] sobre muestras entalladas de acero austenítico 316L recocido suministrado en placas laminadas. La composición química del acero se da en la Tabla 1.

Tabla 1. Composición química del acero (%)

C	Mn	Si	P	S	Cr	Ni	Mo
0.018	1.75	0.35	0.02	0.001	17.30	12.09	2.31

Se eligieron dos geometrías de entalla A y C de muy diferentes radios, como se aprecia en la Fig. 1.

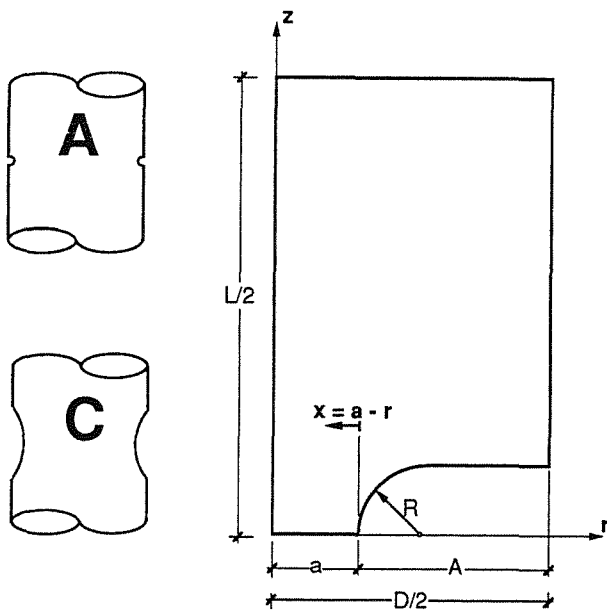


Fig. 1. Geometrías de las probetas entalladas A y C.

Las dimensiones de las probetas entalladas A y C son las siguientes:

Geometría A:	$R/D = 0.03$	$A/D = 0.10$
Geometría C:	$R/D = 0.36$	$A/D = 0.10$

donde R es el radio en el fondo de la entalla, A la profundidad de entalla y D el diámetro de la probeta, igual a 6 mm en todos los casos.

En aire se ensayaron dos probetas por geometría, una mecanizada en la dirección longitudinal (A) y otra en la transversal (B), denominándose las probetas AA, AB, CA y CB, donde la primera letra indica la geometría y la segunda la orientación. El comportamiento mecánico de

las probetas durante el ensayo resultó claramente dúctil, de forma que la curva carga-desplazamiento presentó una rama de descenso considerable, a partir del punto de carga máxima, hasta la rotura final. No se apreciaron grandes diferencias de comportamiento entre los dos tipos de geometría de entalla.

Los ensayos de fragilización por hidrógeno se realizaron a velocidad de desplazamiento constante en solución de H_2SO_4 , a potencial catódico de -1200 mV vs ECS [8]. Las velocidades de desplazamiento aplicadas quedaron comprendidas en el intervalo de $0.01 \mu\text{m/s}$ a $2.5 \mu\text{m/s}$. El comportamiento mecánico fue predominantemente dúctil (al igual que en aire), con claro descenso en la curva carga-desplazamiento, y sin grandes diferencias de comportamiento de una a otra geometría de entalla.

3. RESULTADOS EXPERIMENTALES

Los resultados experimentales de los ensayos en aire y en hidrógeno se muestran en la Tabla 2, donde los datos en cursiva y con numeración precedida de cero corresponden a los ensayos en aire. En los ensayos de fragilización se midió la carga máxima F_m (carga de fallo correspondiente al instante de inestabilidad) así como el tiempo hasta carga máxima t_m (que se denominará tiempo de fragilización) y el tiempo hasta la rotura final de la muestra t_R o duración de ensayo, así como una profundidad de daño x que se definirá en el análisis fractográfico (sección siguiente). En todos los ensayos se midió el diámetro neto d' al final del ensayo y la pérdida porcentual de área z en la sección neta, que es una medida de la ductilidad.

Con el fin de elucidar la conveniencia de usar o bien el tiempo de fragilización t_m o bien el tiempo hasta rotura t_R como variable independiente en el análisis, en la Fig. 2 se representa la diferencia $\Delta t = t_R - t_m$ en función de t_m en escala bilogarítmica, pudiendo apreciarse que los resultados correspondientes a todas las geometrías y orientaciones se agrupan en torno a una recta, lo que supone una relación $\Delta t = k(t_m)^n$, obteniéndose en este caso $n \approx 1$ y $k \approx 0.2$, es decir, $\Delta t = 0.2 t_m$, por lo que resulta indiferente expresar los resultados en función de t_m o de t_R , utilizándose en adelante la primera (tiempo de fragilización) para el análisis.

La Fig. 3 ofrece la relación entre la carga máxima en hidrógeno F_m y su valor en aire F_0 en función del tiempo de fragilización t_m , para ambas geometrías y orientaciones con respecto a la dirección de laminado. Todos los resultados se agrupan en la misma banda experimental, por lo que ni el radio en el fondo de la entalla ni la orientación influyen desde el punto de vista macroscópico en la fragilización. La similitud de resultados para las dos geometrías de entalla puede ser debido a la alta ductilidad (incluso en presencia de

hidrógeno) del acero 316L, que relaja la concentración tensional cerca de la entalla, disminuyendo así la fuerza para introducir hidrógeno en los puntos interiores. La igualdad de resultados en la dirección del laminado y en la perpendicular, por su parte, indica que el acero tiene un comportamiento isótropo en ambiente de hidrógeno, al igual que lo tenía en el caso de fractura en aire.

Tabla 2. Resultados experimentales

Geom	t_m (h)	t_R (h)	F_m/F_0	d' (mm)	z (%)	x (mm)
AA01	—	—	—	2.12	80.7	—
AA1	0.37	0.44	0.97	2.84	65.0	0.24
AA5	1.1	1.40	0.96	3.54	45.6	0.48
AA3	3.4	4.15	0.93	3.58	44.4	0.54
AA4	30	36.9	0.88	3.78	38.0	0.81
AB02	—	—	—	2.42	74.6	—
AB5	1.2	1.42	0.96	3.72	39.9	0.46
AB0	3.2	4.07	0.95	3.65	42.2	0.56
AB4	8.0	9.83	0.90	3.81	37.0	0.57
AB3	50	58.6	0.87	4.02	29.9	0.75
CA01	—	—	—	2.38	75.4	—
CA2	0.38	0.49	0.97	2.48	73.3	0.20
CA3	3.5	4.70	0.93	2.73	67.7	0.32
CA4	11	14.8	0.91	3.26	53.9	0.68
CA5	65	88.7	0.85	3.52	46.2	0.76
CB02	—	—	—	2.57	71.3	—
CB2	1.3	1.62	0.96	2.63	70.0	0.22
CB0	3.3	4.35	0.93	2.86	64.5	0.37
CB3	85	104.3	0.86	3.14	57.2	0.71

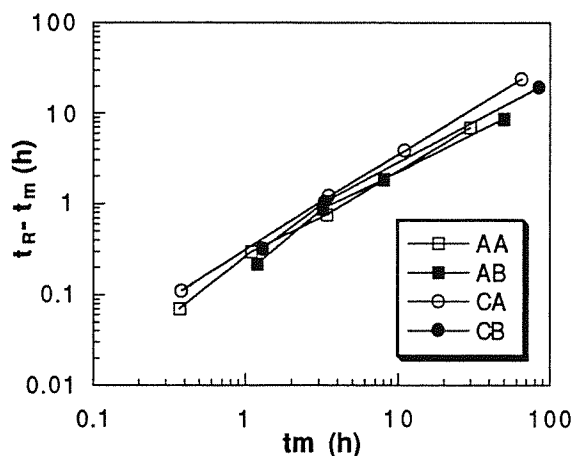


Fig. 2. Comparación entre tiempo de fragilización t_m y tiempo hasta rotura t_R .

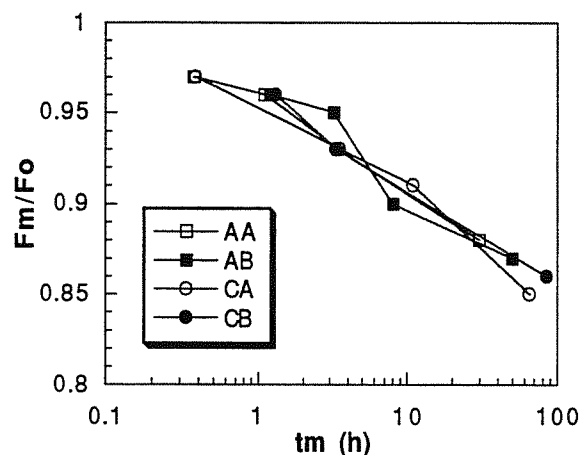


Fig. 3. Carga máxima en ambiente de hidrógeno en función del tiempo de fragilización.

En la Fig. 4 se muestra la pérdida porcentual de área en ambiente de hidrógeno en función del tiempo de fragilización, observándose que la primera es función decreciente del segundo. Se aprecia además que la pérdida de ductilidad asociada con la fragilización es mayor en las probetas de menor radio de entalla, lo que indica que la entrada del hidrógeno puede verse favorecida por la concentración tensional —o deformacional— en las proximidades del fondo de la entalla.

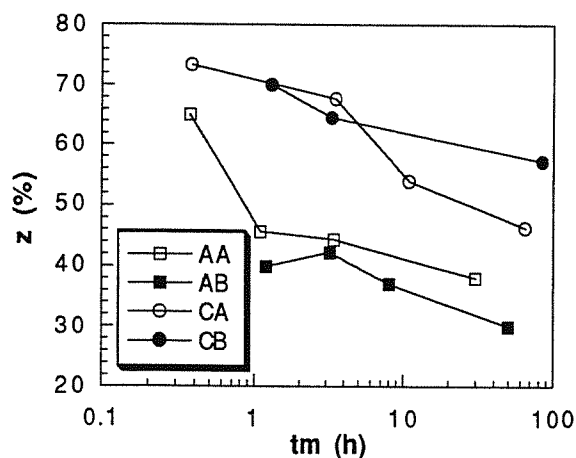


Fig. 4. Pérdida porcentual de área en ambiente de hidrógeno en función del tiempo de fragilización.

4. ANALISIS FRACTOGRAFICO

Se realizó un exhaustivo análisis fractográfico mediante microscopía electrónica de barrido de todas las muestras ensayadas en aire y en ambiente de hidrógeno, para lo cual se elaboraron los micro-mapas de fractura (MMF) de la sección neta de las probetas al final del ensayo, comprobándose en primer lugar que, al igual que en el

caso de los resultados macroscópicos, no cabe encontrar diferencias apreciables en la dirección del laminado y en la perpendicular.

El análisis de los ensayos de fractura en aire reveló un alto grado de plasticidad previa a la rotura, de forma que la superficie exterior de la entalla toma la apariencia característica de "piel de naranja". La fractura final se produce en una sección neta circular con mucha menor área que la sección inicial (a consecuencia de la plasticidad antedicha), y la topografía microscópica de fractura en dicha sección es de tipo crecimiento y coalescencia de huecos (CCH), lo que es consecuente con el tipo de daño mecánico por plasticidad que desemboca en el fallo por inestabilidad plástica.

La influencia de la geometría de entalla en los MMF obtenidos en aire se refleja en el tipo de microhuecos que se observan en la superficie de fractura CCH. Mientras que en la geometría A (entalla aguda; mayor triaxialidad) la densidad de microhuecos es muy alta, la geometría C (entalla roma; menor triaxialidad) presenta menor densidad de microhuecos, si bien el tamaño máximo de éstos es mayor. Este hecho resulta consistente con los modelos clásicos de crecimiento de huecos, que postulan que la triaxialidad potencia la tasa de crecimiento de huecos pero limita el tamaño crítico de microhueco.

En el caso de los ensayos en ambiente de hidrógeno, el desarrollo dúctil —medido en pérdida de sección neta— es menor, y consecuentemente la superficie exterior de la entalla con apariencia de "piel de naranja" también es menor. En la superficie interior de fractura (circular), se pueden distinguir claramente dos topografías de fractura: un anillo exterior circunferencial, de profundidad más o menos uniforme, con apariencia de microfisuración —o fisuración secundaria— y un núcleo interior circular formado por CCH. Así pues, aunque el mecanismo final de fractura es de tipo CCH tanto en aire como en hidrógeno, en este último caso el inicio de la fractura se produce en forma de daño consistente en microfisuración producida por el hidrógeno en todo el anillo exterior próximo a la entalla.

El hidrógeno inhibe el crecimiento de microhuecos en el anillo exterior, creando la antedicha topografía de daño. Como consecuencia de este hecho, la triaxialidad en el núcleo interior crece por la multifisuración secundaria del anillo exterior, aumentando la tasa de producción de microhuecos y disminuyendo su tamaño crítico. Como consecuencia, la apariencia de la superficie CCH en los ensayos en ambiente agresivo es similar en ambos tipos de entalla (al multifisurarse alcanzan un nivel de triaxialidad similar) y parecida a la que se obtiene en aire para la entalla A, con menor radio en el fondo.

Con respecto a la propia *zona fragilizada* en forma de anillo microfisurado, puede decirse que a grandes rasgos

su apariencia es similar en todos los ensayos, aunque su rugosidad aumenta con el tiempo de fragilización, de forma que en los ensayos más largos la evidencia de fisuración múltiple a varios niveles (y por tanto extendida en volumen) aumenta. La profundidad x de esta zona fragilizada se ha medido en los MMF con respecto al fondo de la entalla (cf. Fig. 1), en ocho puntos equidistantes situados en el anillo circunferencial dividido en sectores de 45° . Los resultados se dan en las Figs. 5 a 8, donde pueden apreciarse variaciones en la profundidad que en general no son excesivas para un análisis fractográfico cuantitativo, por lo que la profundidad del anillo puede considerarse uniforme y obtenerse un valor medio para cada ensayo.

La profundidad media del daño se da en la Tabla 2, mientras que la Fig. 9 muestra la representación gráfica de la profundidad de la zona dañada por el hidrógeno en función del tiempo de fragilización (representado en escala logarítmica). Se ve claramente que la profundidad de daño crece al aumentar la duración de ensayo, y que los resultados no dependen en absoluto de la orientación de la probeta con respecto a la dirección del laminado, ni tampoco se aprecia una dependencia definida de la geometría de entalla, lo que resulta coherente con los razonamientos anteriores, pues el daño producido por el hidrógeno consiste en microfisuración del anillo próximo al fondo de la entalla y esto produce una elevación del nivel de triaxialidad e iguala la situación de las dos geometrías entalladas.

De la Fig. 9 se desprende que, aun con una dispersión considerable, los resultados de profundidad de daño para todas las geometrías se agrupan en una misma banda experimental. Para obtener una relación funcional se realizó una representación en escala bilogarítmica, ajustándose una recta, lo que supone una relación $x = k(t_m)^n$, obteniéndose en este caso $n \approx 1/4$ y $k \approx 3.86 \times 10^{-5}$ [S.I.], es decir, la relación entre la profundidad de daño y el tiempo de fragilización es:

$$x = 3.86 \times 10^{-5} (t_m)^{1/4} \quad [\text{S.I.}]$$

que naturalmente sólo resulta válida para el intervalo de tiempos de fragilización utilizado en la experimentación, pues la tendencia asintótica predice que cuando el tiempo de fragilización aumenta indefinidamente (ensayos cuasi-estáticos) la profundidad de fragilización también lo hace, lo que no resulta físicamente plausible.

No obstante la tendencia general anterior para todas las geometrías, los resultados parece que destilan una tendencia a profundidades de daño algo mayores para la entalla de menor radio de curvatura y, por tanto, de mayor triaxialidad (tipo A), lo que puede indicar que la concentración tensional (o deformacional) potencia el transporte de hidrógeno, bien por difusión, bien por movimiento de dislocaciones.

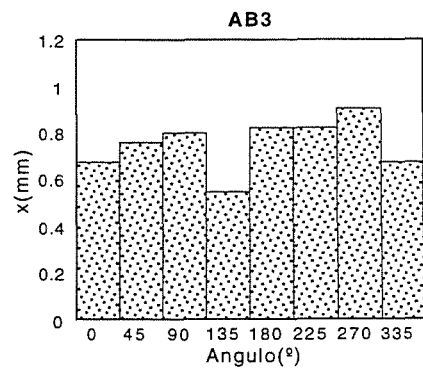
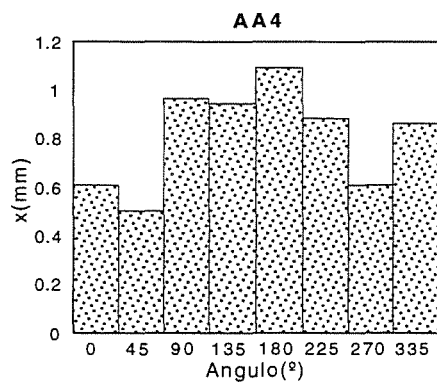
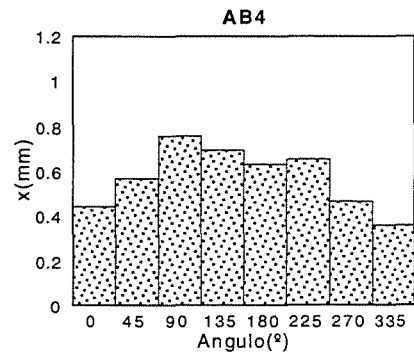
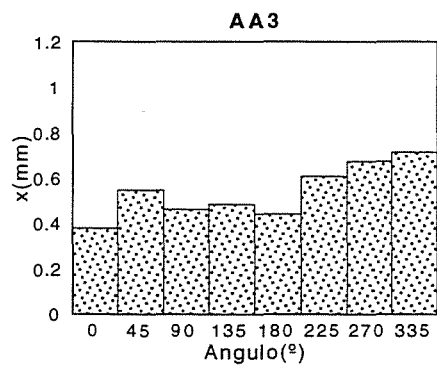
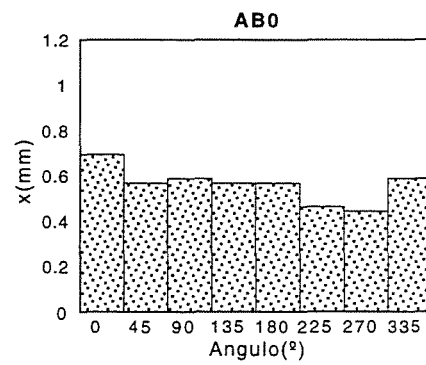
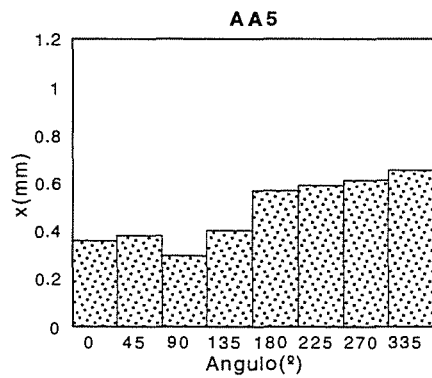
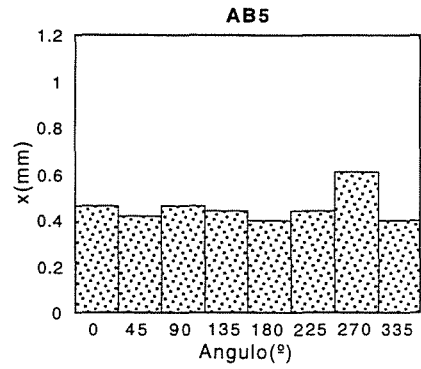
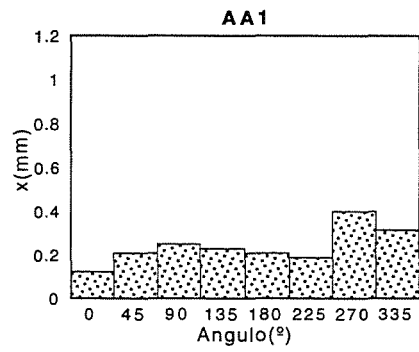


Fig. 5. Profundidad de la zona fragilizada (geom. AA)

Fig. 6. Profundidad de la zona fragilizada (geom. AB)

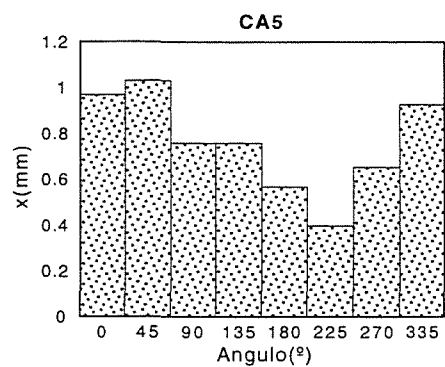
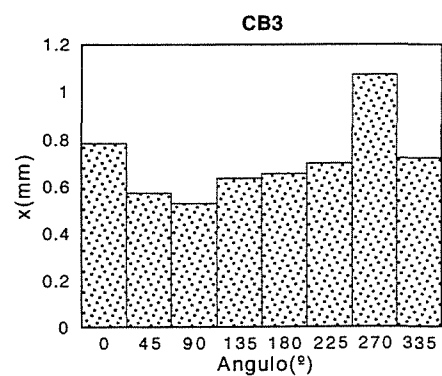
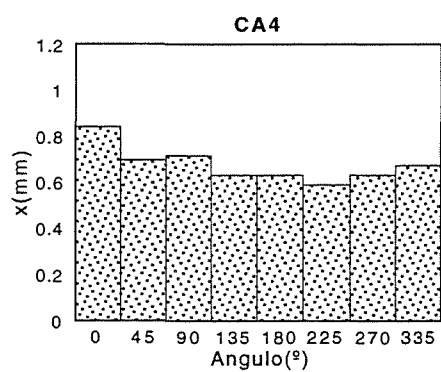
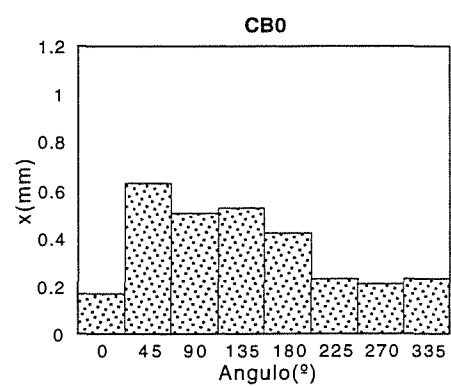
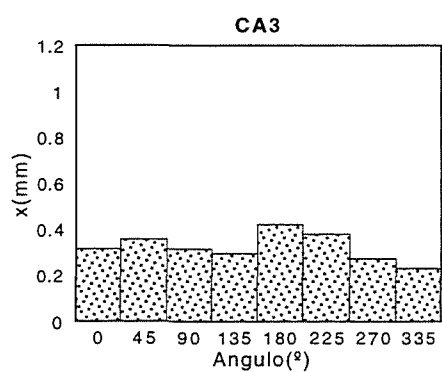
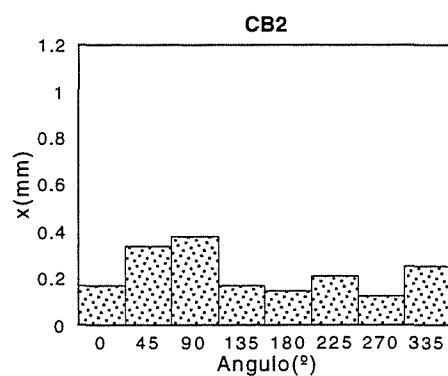
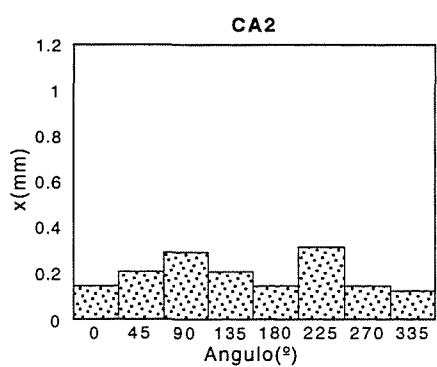


Fig. 7. Profundidad de la zona fragilizada (geom. CA)

Fig. 8. Profundidad de la zona fragilizada (geom. CB)

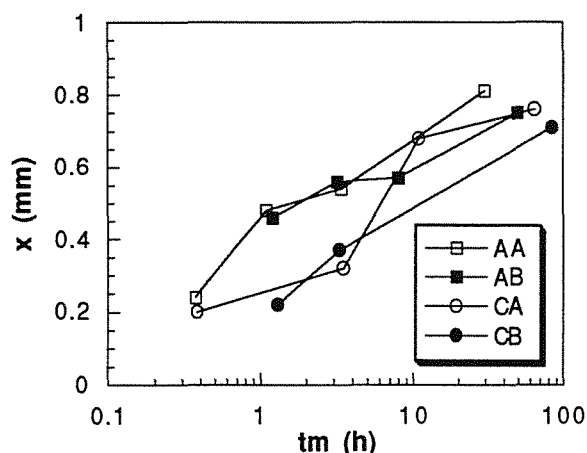


Fig. 9. Profundidad de la zona dañada por el hidrógeno en función del tiempo de fragilización.

5. CONCLUSIONES

La fractura en aire se produce por plasticidad, con apariencia exterior de "piel de naranja" y topografía de fractura interior formada por crecimiento y coalescencia de huecos (CCH). El tipo de microhuecos de fractura resulta afectado por la geometría de la entalla, y por tanto por su triaxialidad.

En ambiente de hidrógeno la ductilidad es menor, y la apariencia exterior de "piel de naranja" disminuye. A cambio aparece una zona fragilizada con daño consistente en microfisuración y forma de anillo circunferencial próximo al fondo de la entalla, rodeando un núcleo circular interior en el cual la fractura es también CCH. El tipo de microhuecos de fractura es en este caso similar en las dos geometrías de entalla, como consecuencia del aumento de triaxialidad asociado con la fisuración secundaria inducida por el hidrógeno.

La apariencia general de la zona fragilizada es similar en todos los casos, aunque su rugosidad aumenta con el tiempo de fragilización, de forma que para los ensayos más lentos puede hablarse de multifisuración a varios niveles, probablemente extendida en volumen. La profundidad de daño es función creciente del tiempo de fragilización, con una dependencia funcional del tipo raíz cuarta del tiempo.

Agradecimientos

Este trabajo ha sido financiado por la Comisión Interministerial de Ciencia y Tecnología (CICYT: Proyecto MAT91-0113-CE) y por EURATOM, a través del *European Fusion Technology Programme (Sub-Task PSM 5-1)*. Los autores agradecen la financiación de

ambas organizaciones, así como el estímulo de los Drs. J.L. Boutard y P. Lorenzetto (THE NET TEAM), Dr. E. Hodgson (CIEMAT), y de los Profs. M. Elices y A. Valiente (Departamento de Ciencia de Materiales, Universidad Politécnica de Madrid).

REFERENCIAS

- [1] NET Status Report, Commission of the European Communities, Directorate General XII-Fusion Programme, Brussels, December 1985.
- [2] G. R. Caskey, Jr. in *Environmental Degradation of Engineering Materials in Hydrogen*, eds. M.R. Louthan Jr., R.P. McNitt and R. D.Sisson Jr. (Virginia Polytechnical Institute, Blacksburg, VA, 1981) pp. 283-302.
- [3] T.P. Perng, J.H.Huang and C.J.Altstetter, in *Proc. 4th Int. Conf. on Hydrogen and Materials* (Beijing, China, 1988) pp.866-867.
- [4] A. Hazarabedian and J. Ovejero-García, in: *Proc. 4th. Int. Conf. on the Effect of Hydrogen on Behaviour of Materials*, eds. I.M. Bernstein and A.W. Thompson (Jackson, Wyoming, USA, 1989).
- [5] D. Eliezer, in *Proc. 3rd. Int. Conf. on the Effect of Hydrogen on Behaviour of Materials*, eds. I.M. Bernstein and A.W. Thompson (AIME, USA, 1981), pp. 565-574.
- [6] C.L. Briant, in: *Environmental Degradation of Engineering Materials in Hydrogen*, eds. M.R. Louthan Jr., R.P. McNitt and R.D. Sisson Jr. (Virginia Polytechnic Institute, Blacksburg, VA, 1981) pp. 335-345.
- [7] P. Rozenak and D. Eliezer, *Mater. Sci. Engng.* **61** (1983) 31-41.
- [8] J. Toribio, *An. Mecánica de la Fractura* **8** (1991) 149-154.
- [9] A. Valiente, J. Toribio, R. Cortés y L. Caballero, *An. Mecánica de la Fractura* **11** (1994) 435-442.