Interactions mécanique-oxydation à haute température dans l'alliage 600 : application à la fissuration dans le milieu primaire des réacteurs nucléaires à eau sous pression

Anne-Françoise Gourgues-Lorenzon

▶ **To cite this version:**

Anne-Françoise Gourgues-Lorenzon. Interactions mécanique-oxydation à haute température dans l'alliage 600 : application à la fissuration dans le milieu primaire des réacteurs nucléaires à eau sous pression. Matériaux. École Nationale Supérieure des Mines de Paris, 1997. Français. NNT : 1997ENMP0788 . pastel-00737015

HAL Id: pastel-00737015
https://pastel.hal.science/pastel-00737015

Submitted on 1 Oct 2012

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.

THESE

présentée à

L'ECOLE NATIONALE SUPERIEURE DES MINES DE PARIS

par

ANNE-FRANCOISE GOURGUES

pour obtenir le titre de

DOCTEUR EN SCIENCES ET GENIE DES MATERIAUX

INTERACTIONS MECANIQUE-OXYDATION A HAUTE TEMPERATURE DANS L'ALLIAGE 600 : APPLICATION A LA FISSURATION DANS LE MILIEU PRIMAIRE DES REACTEURS NUCLEAIRES A EAU SOUS PRESSION

Textes

soutenue le 5 septembre 1997 devant le jury composé de :

Président	T. Magnin	E.N.S.M.S.E.
Rapporteur	C. Prioul	E.C.P.
Rapporteur	P. Combrade	FRAMATOME
Examinateur	P. Scott	FRAMATOME
Examinateur	P. Chartier	B.C.C.N.
Examinateur	A. Pineau	E.N.S.M.P.
Examinateur	P. Pilvin	E.C.P.
Directeur de Thèse	E. Andrieu	E.N.S.C.T.

L'étude qui fait l'objet de ce mémoire a été réalisée pour sa plus grande part au Centre des Matériaux de l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris. Je remercie Monsieur J.-P. Trottier, Directeur, de m'avoir accueillie au sein de son laboratoire. Je remercie également FRAMATOME et le Bureau de Contrôle des Chaudières Nucléaires pour le soutien et l'intérêt qu'ils ont portés à cette étude, ainsi que pour la liberté qu'ils m'ont accordée d'explorer des pistes nouvelles.

Je remercie Monsieur T. Magnin pour l'intérêt qu'il a manifesté à ce travail en acceptant de présider le jury. Je remercie également Monsieur C. Prioul d'avoir accepté de rapporter sur ce mémoire.

Une partie des essais a été effectuée au Centre Technique FRAMATOME du Creusot, au Département Chimie-Corrosion. Je remercie Monsieur P. Combrade de m'avoir accueillie dans son laboratoire et d'avoir accepté de rédiger un rapport sur ce travail.

Je remercie Monsieur P. Chartier d'avoir assuré avec intérêt le suivi de cette étude pour le compte du B.C.C.N. et d'avoir accepté de participer au jury. Je remercie Monsieur P. Scott pour ses conseils d'expert, notamment en électrochimie et pour l'intérêt qu'il a manifesté tout au long de cette collaboration avec FRAMATOME ; je le remercie également d'avoir participé au jury.

Je remercie Monsieur A. Pineau qui a su, dès ma scolarité à l'Ecole des Mines, me faire découvrir les richesses des Sciences des matériaux et s'est intéressé à cette étude tout au long de ces années ; je le remercie également d'avoir participé au jury.

Je remercie particulièrement Monsieur Eric Andrieu, qui a dirigé cette thèse avec attention et dynamisme et m'a ainsi initiée aux joies et aux difficultés de la recherche (et du bricolage, de la cuisine du sud-ouest, etc...).

"Expérimentation, observation et modélisation sont les trois mamelles de la thèse au Centre des Matériaux" dit le proverbe. Parmi tous ceux qui m'ont aidée, à un moment ou à un autre, je voudrais remercier en particulier :

Pour l'expérimentation : Philippe Bastid, grand MTS-man devant l'Eternel, Jean-Christophe Chassaigne, spécialiste de la propagation de fissure dans tout alliage bas nickel au-dessus de 500°C et, pour les essais dans le milieu primaire, Marc Foucault, Kader, Hubert, Alain le Grand, Jean-Marc, Daniel et les autres pour leurs conseils amicaux et leur aide dévouée ; merci à Jean-Guy, expert ès-autoclaves, de m'avoir aidée dans les moments délicats ; merci aussi à l'atelier qui donne corps à tout bidule virtuel et néanmoins usinable. Merci en particulier à Michel Rousselot pour son soutien musclé et efficace en serrage d'éprouvettes, conception d'usines à gaz (sans gaz) et manips en tous genres.

Pour l'observation : Régine Molins, qui m'a formée et guidée au MET, Maria et Liliane pour leur aide au MEB à haute résolution et au tirage photo.

Pour la modélisation : Maître Philippe Pilvin qui m'a initiée au maniement des baguettes magiques SiDoLo et ZéBuLon, ou comment résumer vos résultats expérimentaux en quelques chiffres et les utiliser en calcul de structure ; il m'a fait découvrir l'art de la modélisation, qui demande presque autant de patience et de persévérance que les deux précédents ; il m'a également fait l'amitié de participer au jury.

Merci à Marie-Thé, Jean-Guy, Jean-Marc C., Yannick, Gaëlle, Marjolaine, Lydia, François, Didier, Fifi, Angelos, Jean-Marc S., Evelyne, Gérard, Renato et tant d'autres pour leur amitié, leurs conseils et leur aide.

Merci à l'Alliage 600, facétieux métal dont les frasques en matière de fissuration et de comportement mécanique ont occupé bien des chercheurs —et des thésards— depuis quelques décennies. Merci à Hydrogène, Oxygène, Lacune et Dislocation pour leur intense activité dans ce lieu reculé et mouvementé qu'on appelle la Pointe de Fissure. Merci aux nombreux spécialistes dont la prose, diligemment procurée grâce à Odile, a alimenté moult soirées d'hiver au coin du feu.

Merci enfin à tous ceux, parents et amis, qui m'ont soutenue au cours de ces quatre années. Merci en particulier à Erwan, fidèlement présent en toute circonstance.

SOMMAIRE

INTRODUCTION

A - Présentation des matériaux A-1

B - Comportement mécanique de l'Alliage 600

B-1. Contexte de l'étude B-1
B-2. Etude expérimentale B-25
B-3. Modélisation B-43
B-4. Calcul de structure B-57
B-5. Application à la fissuration assistée par l'environnement B-81

Annexes :
1 - Données bibliographiques sur les phénomènes de vieillissement
2 - Données expérimentales sur le vieillissement
3 - Résultats complémentaires des essais de comportement mécanique entre 300 et 400°C
4 - Conditions d'utilisation du modèle « une phase »
5 - Résultats complémentaires sur la modélisation « une phase »

C - Propagation de fissure assistée par l'oxydation à 550°C

C-1. Contexte de l'étude C-1
C-2. Essais de propagation de fissure C-29
C-3. Effets d'environnement C-37

D -Propagation de fissure assistée par l'environnement entre 320 et 400°C

D-1. Contexte de l'étude D-1
D-2. Essais de propagation de fissure D-31
D-3. Effets d'environnement D-45

Annexes :
1 - Exposition d'échantillons d'Alliage 600 dans le milieu primaire
2 - Calculs de structure sur éprouvettes CT non homogènes

CONCLUSIONS

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

TABLE DES MATIERES

L'Alliage 600 (NC15Fe) est le plus simple des alliages nickel-fer-chrome industriels. Il est utilisé pour sa bonne résistance à la corrosion, en particulier à haute température ou dans des milieux agressifs, notamment caustiques ou chlorurés. Parmi ses principales applications industrielles on peut citer, en dehors de l'industrie nucléaire :

- les éléments de four, soumis à la corrosion par les gaz de combustion à haute température ;
- les électrodes d'électroérosion ;
- les réacteurs dans l'industrie chimique et agro-alimentaire.

L'Alliage 600 est également utilisé dans l'industrie nucléaire civile et militaire ; il est le matériau constitutif de nombreux tubes de générateurs de vapeur, qui permettent l'échange de chaleur entre les circuits primaire et secondaire des réacteurs nucléaires à eau sous pression. Sa bonne résistance à la corrosion sous contrainte en milieu chloruré en a fait, en particulier en France et aux Etats-Unis, le matériau de remplacement des aciers inoxydables austénitiques, qui sont affectés par ce type de fissuration du côté secondaire. Le milieu primaire, qui véhicule la chaleur libérée par la fission des atomes d'uranium, ne pose pas a priori de problème de corrosion particulier pour l'Alliage 600. C'est une solution diluée d'acide borique H_3BO_3 et de lithine LiOH dans de l'eau très pure, désaérée et hydrogénée. Le bore permet de contrôler la réaction nucléaire en absorbant des neutrons ; la lithine permet d'ajuster le pH aux alentours de 7 à la température de service (environ 320°C) et l'ajout d'hydrogène prévient la libération d'oxygène au cours de la radiolyse de l'eau.

Fissuration de l'Alliage 600 par corrosion sous contrainte dans le milieu primaire

Les avertissements de Coriou et coll. [1959], qui avaient observé des fissures intergranulaires dans des échantillons d'Alliage 600 industriel exposés dans l'eau pure à 350°C, ont été justifiés par l'apparition, au début des années 1970, de fissures dans les tubes de générateur de vapeur en service aux Etats-Unis ; ces fissures s'amorcent du côté primaire et peuvent traverser la paroi du tube en une dizaine d'années. Elles naissent dans les branches « chaudes », dans lesquelles le milieu primaire passe à 320°C. Les zones affectées sont généralement le siège de contraintes résiduelles de traction, dues au procédé de fabrication (dressage à froid), de mise en forme (cintrage des tubes à petit rayon de courbure) ou de fixation sur les plaques (dudgeonnage).

Le phénomène s'est étendu plus récemment à des pièces plus épaisses. En 1991, un contrôle a révélé la présence de fissures de corrosion sous contrainte dans une manchette d'adaptateur pour couvercle de cuve [Pichon 1995]. Cette pièce permet le passage des systèmes de guidage des barres de contrôle, qui pilotent la réaction nucléaire en coulissant à travers le couvercle de la cuve. La fissuration affecte là encore une zone écrouie, cette fois au cours de l'opération de soudage sur le couvercle. L'opération de soudage entraîne en effet une légère déformation dans le volume (ovalisation) tandis que le meulage ultérieur introduit un écrouissage de la surface, susceptible de favoriser l'amorçage de fissures au contact du milieu primaire.

Si les manchettes d'adaptateur peuvent être individuellement réparées, ce n'est pas le cas des tubes de générateur de vapeur. Il faut donc pouvoir faire fonctionner un générateur de vapeur

dont certains des trois à cinq mille tubes sont endommagés. Le dimensionnement de l'installation tient compte des risques d'éclatement des tubes [Berge 1988] mais il faut éviter le plus possible les fuites, de particulier de produits réactifs, du milieu primaire vers le milieu secondaire.

Un vaste programme de surveillance par contrôle non destructif a été mis en place pour garantir la sûreté des installations et prévenir les risques de rupture en bouchant les tubes endommagés, sachant qu'en France, les deux tiers des bouchages opérés jusqu'en 1989 sont dus à l'apparition de fissures amorcées en peau interne, au contact du milieu primaire [Boursier 1993a]. Le coût de ce programme est considérable : il s'agit d'interventions de haute technologie, au cours desquelles le personnel doit être exposé le moins possible à l'irradiation et qui nécessitent l'arrêt de la tranche.

Lorsque la proportion de tubes bouchés devient trop importante pour permettre un fonctionnement correct du générateur de vapeur, celui-ci est remplacé. Cette proportion est d'environ 15% pour les centrales EDF [Berge 1988]. Malgré les performances remarquables des équipes de maintenance, cette opération est très coûteuse, en nécessitant l'arrêt de la tranche pendant environ quarante jours. Le premier remplacement de générateur de vapeur en France a eu lieu à Dampierre en 1990.

Parallèlement au programme de maintenance, des remèdes à l'apparition des fissures ont été mis en œuvre, à titre palliatif sur les tubes déjà en service et surtout à titre préventif [Gelpi 1988] :

- le grenaillage (microbillage) des tubes de générateur de vapeur en service, afin d'obtenir des contraintes résiduelles de compression en peau interne, dans le matériau au contact du milieu primaire ;

- à partir de 1982 les tubes ont subi avant leur assemblage un traitement thermique de détensionnement des contraintes résiduelles, de 12 heures à 715°C sous vide ; la microstructure résultante est d'ailleurs souvent plus résistante à la fissuration ; les manchettes d'adaptateur sont également soumises à un traitement thermique semblable ;

- à partir de 1984 (palier 1450 mégawatts) l'Alliage 600 a été remplacé, pour la conception des pièces neuves, par l'Alliage 690 plus riche en chrome.

L'enjeu industriel est double : les coûts industriels liés à la fissuration de l'Alliage 600 dans le milieu primaire sont considérables ; de plus il est nécessaire de statuer sur le cas des autres pièces en Alliage 600 du circuit primaire telles que les pénétrations de fond de cuve. De nombreuses études ont ainsi été conduites pour déterminer le ou les mécanismes responsables de l'amorçage et de la propagation de ces fissures. Deux objectifs sont visés :

- prévoir le temps à l'amorçage et la vitesse de propagation des fissures, pour connaître la durée de vie des pièces en Alliage 600 encore en service et optimiser les campagnes de contrôle non destructif ;

- déterminer si l'immunité apparente de l'Alliage 690 dans le milieu primaire est due à une moindre sensibilité (amorçage retardé ou propagation ralentie par rapport au cas de l'Alliage 600) ou à une insensibilité totale du matériau à ce type de fissuration.

Les études expérimentales ont permis de reproduire au laboratoire les fissures de corrosion sous contrainte observées par Coriou et de déterminer les variables mécaniques, électrochimiques et métallurgiques qui jouent un rôle prépondérant. La complexité des essais, le nombre important de paramètres pouvant interagir les uns avec les autres et la dispersion parfois importante des résultats rendent très difficile la validation expérimentale des différents modèles proposés, dont certains parmi les plus récents font appel à un couplage entre la corrosion et le comportement mécanique du matériau en pointe de fissure.

La présente étude a été menée en collaboration avec FRAMATOME (Etablissement de la Défense et Centre Technique du Creusot) et avec les Autorités de Sûreté (Bureau de Contrôle des Chaudières Nucléaires). Son objectif est la caractérisation du ou des mécanismes de couplage environnement-comportement mécanique, en insistant sur les variables mécaniques et électrochimiques en jeu :

- les sollicitations mécaniques locales sont déterminées en pointe de fissure par des calculs aux éléments finis, qui s'appuient sur une connaissance approfondie du comportement mécanique du matériau dont on étudie la résistance à la fissuration ;

- les modes d'oxydation et leur influence sur le comportement mécanique local du matériau proche de la surface sont étudiés pour différentes conditions d'environnement, en lien avec des essais de propagation de fissure.

Cette approche, exposée plus en détail dans le paragraphe suivant, a été mise en œuvre dans des conditions d'environnement apparemment très différentes : l'air à différentes températures (400 et 550°C), la vapeur d'eau désaérée sous basse pression à 400°C et le milieu primaire. Les résultats expérimentaux montrent cependant que les mécanismes de fissuration intergranulaire actifs dans ces différents domaines ont de nombreux points en commun.

Interactions mécanique-environnement et propagation de fissure dans l'Alliage 600

La fissuration de l'Alliage 600 par corrosion sous contrainte dans le milieu primaire des réacteurs à eau sous pression dépend étroitement des conditions électrochimiques et des sollicitations mécaniques mais aussi de l'état métallurgique du matériau. La résolution de ce problème nécessite donc une meilleure compréhension de l'influence des caractéristiques métallurgiques des différentes pièces en Alliage 600, notamment des grandes variations de sensibilité à la corrosion sous contrainte d'une coulée à l'autre. On cherche également à expliquer l'efficacité du traitement thermique de détensionnement des contraintes résiduelles, d'une dizaine d'heures à 700°C. On cherche enfin à confirmer l'immunité de l'Alliage 690 vis-à-vis de cette forme de fissuration.

Au cours de cette étude, on se propose de caractériser en détail une coulée d'Alliage 600 réputée sensible à la corrosion sous contrainte dans le milieu primaire, afin de relier sa

résistance à la fissuration à ses propriétés mécaniques et à sa tenue à la corrosion. L'objectif à plus long terme est de trouver les mécanismes physiques qui régissent la sensibilité d'une coulée donnée à la fissuration dans le milieu primaire.

Amorçage ou propagation ?

L'exploitation des essais de corrosion sous contrainte les plus courants est difficile dans la mesure où ceux-ci combinent amorçage et propagation, le temps à l'amorçage étant souvent mal connu et/ou variable d'une éprouvette à l'autre.

L'amorçage des fissures de corrosion sous contrainte est un phénomène de surface, qui affecte un matériau exposé au milieu primaire et oxydé sous contrainte avant l'apparition d'une fissure, souvent pendant plusieurs dizaines d'heures, voire plusieurs dizaines de milliers d'heures en service. La formation de la couche d'oxydes a pu être affectée par des phénomènes transitoires au cours du chauffage et de l'introduction de l'hydrogène. Dans le même temps, le matériau de surface a pu subir des modifications importantes, notamment en termes de propriétés mécaniques, qui n'ont pas été évaluées à ce jour. La dispersion des résultats expérimentaux liés à l'amorçage, en particulier sur éprouvettes « à déplacement imposé », est de fait souvent importante.

Lors des essais de traction lente, on perturbe continuellement l'état mécanique de la surface, en activant des modes de déformation « lents » qui favorisent la fissuration des joints de grains dans le milieu primaire. Ceci permet un amorçage rapide, souvent en moins de cent heures mais favorise également la multifissuration. La propagation de chacune des fissures devient très difficile à analyser du point de vue du chargement mécanique. Par ailleurs, Boursier [1993] et Sui et coll. [1997] ont montré qu'en milieu désaéré, un certain nombre de coulées de tubes de générateur de vapeur, dont certaines en Alliage 690, sont sensibles à l'amorçage alors que peu d'entre elles permettent la propagation des fissures jusqu'à la traversée de la paroi.

Les essais à charge constante, qui correspondent à une sollicitation de fluage, se heurtent au risque de voir la déformation s'arrêter ; la vitesse de déformation pourrait alors passer au-dessous d'un seuil de sensibilité à la fissuration intergranulaire.

L'étude spécifique de la propagation peut se faire à l'aide d'éprouvettes de mécanique de la rupture, comportant une fissure unique. Au cours de l'avancée de la fissure, le matériau nouvellement exposé au milieu est sans doute proche, d'un point de vue métallurgique, du matériau de départ et les conditions d'oxydation sont indépendantes des transitoires de début d'essai. On s'affranchit en cela de l'évolution du matériau en surface, qui peut poser des problèmes pour l'amorçage des fissures. Le chargement mécanique en pointe de fissure reste complexe mais on dispose a priori d'outils puissants pour l'estimer, en particulier le calcul de l'éprouvette par éléments finis, à partir des propriétés mécaniques de la coulée étudiée. L'influence des sollicitations mécaniques locales, en particulier des niveaux de contraintes et de la vitesse de déformation, est donc moins difficile à appréhender que sur les éprouvettes lisses (mais multifissurées) plus souvent utilisées en corrosion sous contrainte.

Pour ces différentes raisons on a choisi, dans le cadre de cette étude, de privilégier la propagation de fissure, une transposition des résultats à l'amorçage étant envisageable à plus long terme.

Méthode d'investigation

L'étude des interactions mécanique-environnement en pointe de fissure passe par une estimation des propriétés mécaniques du matériau. Celles-ci ont été caractérisées à l'échelle microscopique (localisation du glissement) et surtout macroscopique, c'est-à-dire d'un point de vue phénoménologique. Différents types d'essais mécaniques ont donc été réalisés en vue du calcul de structure, appliqué ici aux essais de propagation de fissure. Outre le calcul par éléments finis des éprouvettes de mécanique de la rupture directement utilisées pour l'étude, on dispose d'une base de données expérimentale et d'un modèle de comportement qui permet de calculer d'autres éprouvettes de corrosion sous contrainte, en particulier des éprouvettes testées à déplacement imposé. Cette méthode de caractérisation mécanique pourrait être appliquée à d'autres coulées des Alliages 600 ou 690.

Les résultats des essais de propagation de fissure ont été examinés en lien avec les sollicitations mécaniques locales estimées par le calcul de structure, ainsi qu'avec les mécanismes d'oxydation ou de corrosion ; ceux-ci ont fait l'objet d'études spécifiques, toujours sur la même coulée. Cette approche a permis de dégager les caractéristiques mécaniques et métallurgiques importantes vis-à-vis de la résistance à la propagation de fissure intergranulaire. Le couplage mécanique-environnement a pu être vérifié d'une manière directe par des essais mécaniques sur des éprouvettes de grande surface spécifique, plus sensibles aux effets de réaction d'interface.

L'ensemble de la méthode comprend donc des essais de propagation de fissure et une analyse des sollicitations mécaniques et des effets d'environnement. Il a été validé dans un domaine dans lequel on dispose de nombreuses données sur les couplages mécanique-environnement : la fissuration des alliages base nickel sous air à haute température (« domaine des températures intermédiaires » pour les superalliages utilisés dans l'industrie aéronautique). Dans ces conditions, pour les matériaux les plus sensibles, la vitesse de propagation de fissure fait intervenir des mécanismes d'oxydation rapide et une composante mécanique dépendant du temps, éléments que l'on retrouve en corrosion sous contrainte dans le milieu primaire. L'exploration des sollicitations mécaniques locales et du comportement mécanique en fonction de l'environnement fournit des éléments nouveaux et importants sur le mécanisme de propagation intergranulaire, du moins pour les solutions solides à base de nickel.

Le passage à la corrosion sous contrainte dans le milieu primaire est discuté plus en détail au début de la dernière partie du mémoire. Il fournit des indications précieuses sur le mécanisme de propagation de fissure dans ce domaine de température, y compris dans d'autres environnements que le milieu primaire.

Déroulement de l'étude

La première partie de ce mémoire (A) est consacrée aux différents matériaux utilisés au cours de l'étude, en lien avec les caractéristiques métallurgiques reconnues comme importantes vis-à-vis de la résistance à la corrosion sous contrainte.

La seconde partie (B) est consacrée aux propriétés mécaniques macroscopiques de l'Alliage 600. Après un aperçu des données expérimentales disponibles à ce jour, le comportement mécanique d'une coulée sensible à la corrosion sous contrainte est caractérisé, à différentes températures, par des essais variés. Il est ensuite modélisé et utilisé pour estimer les sollicitations mécaniques en pointe de fissure dans les conditions d'essai de propagation de fissure utilisées par la suite. L'application de ces résultats à la conception et à l'exploitation des essais de corrosion sous contrainte est discutée dans le dernier chapitre.

Les deux dernières parties (C et D) sont consacrées à la propagation de fissure, respectivement sous différentes pressions partielles d'oxygène à haute température (550°C) et dans différents milieux, y compris le milieu primaire, entre 320 et 400°C. Après un rappel des données expérimentales et des modèles disponibles, on présente les essais de propagation de fissure. L'étude des sollicitations mécaniques, mise en place précédemment, permet de distinguer le paramètre mécanique le plus important vis-à-vis du couplage mécanique-environnement, en lien avec les modes d'oxydation et/ou de corrosion. Le couplage lui-même est enfin mis en évidence à l'aide d'essais spécifiques, ce qui permet de proposer un modèle de propagation de fissure qui tient compte des propriétés métallurgiques de la coulée étudiée.

L'apport de la méthode d'investigation est enfin discuté en termes de qualification d'une microstructure ou d'un matériau vis-à-vis de la fissuration intergranulaire dans le milieu primaire. Une extension est également envisagée à d'autres couples matériau-environnement.

PRESENTATION DES MATERIAUX

La fissuration de l'Alliage 600 par corrosion sous contrainte dans le milieu primaire s'est manifestée en service sur des pièces aussi différentes que les tubes de générateur de vapeur (structures « minces ») et les manchettes d'adaptateur, qui sont nettement plus épaisses. Par ailleurs les écarts de sensibilité d'une coulée à l'autre vis-à-vis de la corrosion sous contrainte incitent à étudier directement le matériau « industriel ». Le choix des essais de comportement mécanique et de corrosion sous contrainte est donc en partie lié, à travers les éprouvettes testées, aux caractéristiques géométriques des pièces industrielles. A l'inverse, il est possible de choisir le matériau d'étude en fonction des essais que l'on désire effectuer.

L'influence des caractéristiques métallurgiques sur la résistance à la corrosion sous contrainte a été abondamment étudiée. L'ensemble des données disponibles à ce sujet s'oriente autour de deux axes de recherche :

- l'étude de l'influence des paramètres d'élaboration sur la résistance de l'Alliage 600 à la corrosion sous contrainte ; en comparant, toutes choses égales par ailleurs, les propriétés d'un grand nombre de coulées, entre elles (voir par exemple [Boursier 1993a, Garriga-Majo 1993]) ou à des microstructures de synthèse [Kergaravat 1996, Garriga-Majo 1993] ou encore à des coulées d'Alliage 690 [Boursier 1993a] ; les principaux résultats obtenus dans ce domaine sont rappelés dans la suite de ce chapitre ;

- la caractérisation la plus exhaustive possible des propriétés métallurgiques et mécaniques d'une coulée donnée, en lien avec sa résistance à la fissuration dans des conditions mécaniques et chimiques variées ; dans ce cas on « fixe » les paramètres métallurgiques par le choix du matériau.

La présente étude suit la seconde approche. Il a été décidé de caractériser une coulée donnée (en l'occurrence la coulée A) ; d'autres produits ont néanmoins été testés pour des raisons de géométrie ou de disponibilité de la matière. On s'est affranchi dans ce cas des variations de propriétés mécaniques en comparant les effets respectifs de divers environnements pour une sollicitation mécanique donnée.

I. PROPRIETES METALLURGIQUES REMARQUABLES DE L'ALLIAGE 600

L'Alliage 600 a été caractérisé par la composition chimique des grains et des joints de grains, ainsi que par les propriétés cristallographiques des joints ; ces dernières jouent en effet un rôle important en corrosion sous contrainte dans le milieu primaire.

I.1. Caractéristiques métallurgiques et chimiques de l'Alliage 600

L'Alliage 600 (NC15Fe) est une solution solide à base de nickel, de structure cubique à faces centrées (a = 0,35 nm). On peut y trouver des précipités de carbonitrure de titane et surtout des carbures de chrome. Les spécifications de composition chimique et de propriétés mécaniques sont suffisamment larges pour conduire à une grande variété de microstructures. L'essentiel

des études dans ce domaine a porté sur les caractéristiques des joints de grains, notamment leur composition chimique, leur taux de couverture par les carbures de chrome et leurs propriétés cristallographiques. Ces paramètres jouent un rôle important en corrosion sous contrainte intergranulaire.

I.1.a. Données de diffusion

Autodiffusion dans le nickel pur

Neuhaus et Herzig [1988] ont utilisé le radiotraceur ^{63}Ni pour étudier l'autodiffusion du nickel dans les grains et les joints de grains. Le matériau est un polycristal très pur (99,998%), à grains moyens (70 µm), testé entre 368 et 1051°C, c'est-à-dire entre 0,37 et 0,77 T_F, T_F étant la température de fusion du nickel (1455°C). Les essais ont été réalisés en capsule dans de l'argon purifié.

Afin de déconvoluer la diffusion respectivement dans les grains et dans les joints de grains, ils ont recensé les données d'autodiffusion du nickel disponibles dans la littérature et ont abouti à l'équation suivante, qui donne le coefficient de diffusion D_g dans le réseau :

$$D_g = 0{,}9 .10^{-4} \exp\left(-\frac{278\ kJ/mol}{RT}\right)\ m^2/s \text{ entre } 540 \text{ et } 920°C.$$

En considérant que le nickel radioactif était évacué des joints de grains vers les grains, ils ont abouti aux données de diffusion dans les joints de grains :

$$\delta D_{jg} = 4{,}4\ 10^{-11} \exp\left(-\frac{187\ kJ/mol}{RT}\right)\ m^3/s \text{ entre } 368 \text{ et } 1051°C$$

où δ est l'épaisseur du joint de grains. Sur toute la plage de températures explorée, δD_{jg} est linéaire en (1/T) et la diffusion dans les grains joue un rôle non négligeable sur le coefficient de diffusion « global ».

A titre indicatif, on trouve :

- à 360°C : $D_g = 1{,}0.10^{-27}\ m^2/s$ et $\delta D_{jg} = 1{,}6.10^{-26}\ m^3/s$;
- à 700°C : $D_g = 1{,}1.10^{-19}\ m^2/s$ et $\delta D_{jg} = 4{,}0.10^{-21}\ m^3/s$.

Autodiffusion dans deux alliages ternaires Fe-Cr-Ni

Čermak [1990] a étudié la diffusion de ^{51}Cr dans les alliages Fe-18Cr-12Ni et Fe-21Cr-31Ni à petits grains (entre 15 et 25 µm) entre 700 et 950°C. Il pose $P = \alpha\delta D_{jg}$ où D_{jg} est le coefficient de diffusion dans les joints de grains, δ l'épaisseur des joints et α le facteur de ségrégation du chrome :

$$\alpha = \frac{[Cr]_{joints\ de\ grains}}{[Cr]_{grains}}$$

Les données de diffusion dans les grains relevées par Čermak dans la littérature sont les suivantes :

- $D_g = 2{,}58 .10^{-5} \exp\left(-\frac{269\ kJ/mol}{RT}\right)$ m^2/s pour Fe-18Cr-12Ni ;
- $D_g = 6{,}07 .10^{-4} \exp\left(-\frac{298\ kJ/mol}{RT}\right)$ m^2/s pour Fe-21Cr-31Ni.

Comme pour ^{63}Ni, il faut déconvoluer diffusion dans les grains et diffusion dans les joints. Čermak obtient finalement la formule suivante, valable pour les deux alliages :

$P(Cr) = P_0 \exp(-Q/RT)$ où $P_0 = (0{,}4 \text{ à } 3{,}3) .10^{-10}$ m^3/s et $Q = (234 \pm 19)$ kJ/mol.

L'auteur remarque que les enthalpies d'activation données dans la littérature sont plus faibles (environ 150 kJ/mol) mais les alliages utilisés ici contiennent des impuretés dans les joints de grains, qui bloquent les sites de diffusion les plus favorables.

Les résultats existants sur le nickel et le fer sont proches des données concernant le chrome, l'écart restant inférieur à la dispersion des valeurs expérimentales. L'auteur regroupe ces résultats dans la formule suivante :

$P(Fe \text{ ou } Ni \text{ ou } Cr) = P_0 \exp(-Q/RT)$ où $P_0 = (2{,}7 \text{ à } 16{,}6) .10^{-12}$ m^3/s et $Q = (207 \pm 17)$ kJ/mol.

I.1.b. Précipitation de carbures de chrome induite par un traitement thermique

Les tubes de générateur de vapeur industriels qui ont subi un traitement thermique de détensionnement des contraintes résiduelles aux alentours de 700°C se sont révélés plus résistants à la corrosion sous contrainte dans le milieu primaire que les tubes qui n'avaient pas subi ce traitement. Des études métallurgiques relatives aux effets de ce traitement thermique sur la microstructure de l'Alliage 600 ont donc été entreprises. Elles ont porté en particulier sur la répartition des carbures de chrome, qui influence la résistance de l'Alliage 600 à la corrosion sous contrainte. D'autres traitements thermiques de vieillissement ont également été effectués afin de connaître les évolutions microstructurales susceptibles d'intervenir en service.

Réponse de l'Alliage 600 au traitement thermique de détensionnement des contraintes résiduelles

Hall et Briant [1985] indiquent qu'un traitement thermique est appliqué entre 620 et 650°C à la cuve du réacteur après le raccordement des pièces en Alliage 600 telles que les manchettes d'adaptateur. En France, les tubes subissent un séjour de 12 heures à 715°C avant d'être

installés dans les générateurs de vapeur. Westinghouse pour sa part traite ses tubes 15 heures à 704°C [Was 1981]. Les conséquences de ces traitements thermiques sur la répartition des carbures de chrome ont été examinées en détail en fonction de l'état métallurgique du matériau de départ (mill-annealed).

Hall et Briant [1985] ont appliqué un traitement de 0,5 à 100 heures à 650°C à différentes coulées d'Alliage 600. Ils ont observé la précipitation de carbures le long des joints de grains. Ces carbures sont de type M_7C_3 ou $M_{23}C_6$ où M est principalement le chrome. La cinétique de précipitation dépend du taux de carbone disponible dans la solution solide et de la microstructure du matériau mill-annealed ou remis en solution.

Stiller et coll. [1996] ont remarqué que l'on trouve dans l'Alliage 600 des carbures de type M_7C_3 (dans les joints ou les grains) ou $M_{23}C_6$ ($M \approx Cr$) ; ces derniers sont très rares dans les coulées qui contiennent peu de bore.

Bruemmer et Was [1994] ont recensé les résultats existant sur la précipitation des carbures de chrome en fonction de l'état métallurgique du matériau de départ. Ils classent les coulées en trois types, suivant la température du dernier traitement thermique de recuit (mill-anneal) :

- dans les coulées recuites à basse température (« LMA ») les carbures ne sont pas remis en solution ; il reste alors peu de carbone dans la solution solide et le traitement thermique complémentaire à 700°C ne permet pas de faire précipiter une quantité significative de carbures dans les joints de grains ;

- dans les coulées recuites à haute température (>1000°C, « HMA »), les carbures ont été remis en solution, libérant une grande quantité de carbone dans la solution solide ; le traitement à 700°C aboutit alors à la précipitation de nombreux carbures répartis de manière discrète dans les joints de grains ;

- dans les coulées entièrement remises en solution, le traitement thermique à 700°C conduit en quelques heures à la formation d'un film semi-continu de carbures intergranulaires.

Vieillissement de l'Alliage 600 à 400°C

Hall et Briant [1985] ont testé à 400°C différentes coulées d'Alliage 600 recuit (mill-annealed), pour des temps de séjour allant jusqu'à 2000 heures. Leurs conclusions sont les suivantes :

- si l'alliage ne comportait pas de carbure au départ le traitement thermique n'a aucun effet sur la microstructure ;

- si l'alliage comportait initialement des carbures, les joints de grains migrent lentement vers ces carbures au cours du traitement thermique.

L'Alliage 600 est donc globalement insensible à un maintien à 400°C ; les pièces en service, exposées à une température maximale de 325°C, ne subissent donc pas de modification importante de microstructure, du moins d'origine thermique.

I.1.c. Evolution de la teneur en chrome dans les joints de grains au cours du traitement thermique de détensionnement

La formation des carbures de chrome intergranulaires au cours du traitement thermique s'accompagne d'un appauvrissement en chrome des joints de grains, susceptible de sensibiliser le matériau à la corrosion intergranulaire, notamment en milieu aéré. Parallèlement à l'apparition des carbures, la concentration en chrome a donc été étudiée avec soin de manière à optimiser les conditions de traitement thermique.

La méthode généralement adoptée consiste à mesurer, au microscope électronique en transmission (MET) analytique, l'évolution de la concentration en chrome à la traversée des joints de grains. L'analyse chimique par spectrométrie de dispersion d'énergie des rayons X (EDS) est utilisée en mode balayage (STEM), ce qui permet de réduire la taille de sonde à quelques nanomètres. Elle ne permet pas en revanche de détecter des variations de composition à l'échelle du joint de grains lui-même.

Travaux effectués sur l'Alliage 600

Was, Tischner et Latanision [1981] ont travaillé sur une coulée d'Alliage 600 remis en solution. Les échantillons ont été traités à 700°C pendant une durée variant entre 10 minutes et 100 heures. Les profils EDS montrent que la concentration en chrome dans les joints de grains est minimale (3 à 4% en masse) au bout de 10 heures de traitement. Au bout de 100 heures, elle est revenue entre 12 et 13% (contre 15% au cœur des grains) alors que la zone perturbée s'élargit et atteint 5 µm, soit un trentième de la taille de grains. L'appauvrissement en chrome est donc « aigu » au début du traitement alors qu'au bout de 100 heures il n'y a plus de pic au voisinage immédiat du joint de grains. Hall et Briant [1985] sont parvenus aux mêmes résultats avec des traitements thermiques à 650°C.

L'influence de la durée du traitement thermique de détensionnement sur la teneur en chrome au voisinage des joints de grains est donc considérable. Afin de permettre une modélisation simple et prédictive, les études ont été focalisées sur des alliages modèles Ni-Cr-Fe-C ultra-purs, ce qui permet d'éviter les phénomènes de coségrégation et de limiter le nombre de paramètres métallurgiques à prendre en compte.

Travaux effectués sur des alliages Ni-16Cr-9Fe-C

Was et Martin [1985] ont étudié des alliages Ni-Cr-9Fe-C ultra-purs, remis en solution puis traités à 700°C. Les carbures intergranulaires sont du type M_7C_3 où M = 96% Cr. Comme pour l'Alliage 600, le pic d'appauvrissement en chrome au niveau des joints de grains s'atténue au cours du traitement thermique.

Was et Kruger [1985] ont mis au point une méthode de calcul des teneurs en chrome et en carbone au voisinage des précipités, qui intègre à la fois des éléments thermodynamiques (équilibre local entre la matrice et les carbures de chrome) et cinétiques (diffusion du chrome depuis le cœur des grains). Le matériau de référence est ici l'alliage Ni-16Cr-9Fe-C avec [C] = 0,01 à 0,1% en masse. Les hypothèses du modèle sont les suivantes :

- les carbures sont des Cr_7C_3 répartis selon un film continu et uniforme dans les joints de grains ;
- la matrice est en équilibre local avec Cr_7C_3 ;
- les interactions considérées sont les interactions binaires et l'interaction ternaire Cr-(Ni, Fe)-C ;
- la diffusion du carbone est suffisamment rapide pour que l'activité de celui-ci puisse être considérée comme constante ;

Un couplage entre les équations thermodynamiques et cinétiques aboutit aux résultats moyennant l'ajustement d'un seul paramètre : le coefficient de diffusion D du chrome dans le réseau. La valeur du terme préexponentiel a été ajustée alors que la dépendance en température (énergie d'activation) a été reprise d'après les données disponibles dans la littérature.

Was et Kruger montrent que le modèle rend compte des données expérimentales :

- effet du temps sur le profil de concentration en chrome à la traversée du joint de grains ;
- effet de la température : l'appauvrissement est maximal à 600°C et disparaît vers 800°C ;
- effet de taille de grains : l'équilibre est obtenu plus rapidement avec de petits grains.

I.1.d. Effet de la teneur en carbone sur les propriétés des joints de grains

Une fois le taux de chrome « intergranulaire » connu, le traitement thermique à 700°C a été utilisé comme outil de prédiction et de maîtrise des caractéristiques métallurgiques : en élaborant des microstructures connues, il est devenu possible d'étudier l'influence de paramètres tels que la teneur locale en carbone libre sur les propriétés des joints de grains.

Ségrégation du carbone dans les joints de grains de l'Alliage 600

Stiller et coll. [1996] ont étudié à l'aide d'une sonde atomique la ségrégation de bore et de carbone dans les joints de grains de l'Alliage 600 à l'état mill-annealed. Ils ont constaté que le carbone et le bore sont présents à raison de 0,25 à 0,50 couche atomique (au total) dans les joints de grains.

L'analyse d'une éprouvette « selle de cheval » exposée 13.500 heures en eau pure hydrogénée à 365°C a montré un appauvrissement des joints de grains en chrome, qui est attribué à la croissance des carbures et à une diffusion accélérée par l'écrouissage (« pipe diffusion »). Les joints de macle s'enrichissent par ailleurs en carbone aux dépens de la matrice. A titre de référence, on rappelle la faible solubilité du carbone dans l'Alliage 600 : 0,002% en masse à 700°C [Was et Martin 1985].

Effet du carbone sur le coefficient d'autodiffusion dans les joints de grains

Moulin et coll. [1979] ont étudié l'effet du carbone sur la diffusion de ^{51}Cr et ^{63}Ni dans le réseau et les joints de grains d'un alliage Ni-20Cr entre 800 et 1300°C. Le carbone n'a aucun effet sur les coefficients de diffusion en volume ; au-dessous de 1050°C il ralentit la diffusion du chrome (mais pas celle du nickel) dans les joints de grains. Cet effet est attribué à l'affinité des atomes de chrome vis-à-vis des atomes de carbone.

Hertzberg et Was [1995 a et b] ont utilisé le modèle développé précédemment (voir I.1.c) pour élaborer des alliages Ni-Cr-9Fe-C à teneur en carbone contrôlée dans les joints de grains (respectivement 4, 65, 103 et 303 ppm) ainsi qu'un alliage contenant 65 ppm de carbone en solution solide et des carbures intergranulaires. Les essais de fluage et de traction lente dans l'argon à 360°C indiquent que le carbone en solution solide limite la cavitation intergranulaire.

Des études fines ont alors été entreprises au MET sur certains de ces alliages [Hertzberg et Was 1995b]. L'élargissement, par décomposition en partielles qui s'éloignent les unes des autres, du cœur des dislocations intergranulaires extrinsèques, c'est-à-dire issues de dislocations migrant des grains vers les joints de grains, a été observé au cours du chauffage de lames minces in situ dans le microscope. Les auteurs remontent alors à une estimation du coefficient d'autodiffusion « intergranulaire ». Ils ont montré qu'à 300°C ce coefficient est de 2.10^{-15} m^2/s dans un alliage ultra-pur tandis qu'il est inférieur à 5.10^{-20} m^2/s dans un alliage à 65 ppm de carbone. La présence du carbone en solution solide dans les joints de grains y fait donc chuter le coefficient de diffusion, ce qui bloque la déformation par glissement intergranulaire et réduit la propension à la cavitation.

Conclusions

Le carbone a une influence considérable sur les propriétés mécaniques des joints de grains. Il est donc important de savoir estimer sa concentration pour étudier la résistance de l'Alliage 600 à la fissuration intergranulaire en fonction des caractéristiques microstructurales des joints de grains.

Dans le cadre de l'amorçage des fissures de corrosion sous contrainte, il serait également intéressant de connaître la portée d'éventuels effets d'environnement (en particulier de la dissolution sélective) sur le taux de carbone pour étudier la possibilité d'un couplage avec le comportement mécanique local. Ces considérations sont également valables au voisinage de la pointe d'une fissure en cours de propagation.

I.1.e. Autres ségrégations

Stiller et coll. [1996] ont étudié la ségrégation intergranulaire du bore dans des coulées d'Alliage 600 plus ou moins enrichies en cet élément. Il ressort que le bore est présent à concurrence de 0,15 couche monoatomique dans les joints de grains. L'exposition d'une éprouvette « selle de cheval » pendant 13.500 heures en eau pure à 365°C fait disparaître le

bore des joints de grains, quelle que soit la teneur initiale de l'alliage. Le bore est alors incorporé dans les carbures.

Was et coll. [1981, 1985a] ont analysé les joints de grains d'alliages Ni-17Cr-9Fe « dopés » en carbone et/ou en phosphore, chargés en hydrogène et rompus dans l'enceinte d'un spectromètre Auger. Le phosphore ségrège dans les joints de grains en contournant les carbures de chrome ; il ségrège alors à l'interface entre les carbures et la matrice. La concentration à l'équilibre ne dépend pas de la répartition des carbures. Par ailleurs il n'y a pas de coségrégation entre le chrome et le phosphore. Le bore est également susceptible de ségréger tandis que ni le soufre, ni le silicium ne sont détectés.

I.1.f. Conclusions

Le traitement thermique de détensionnement des contraintes résiduelles, appliqué aux pièces d'Alliage 600 utilisées au contact du milieu primaire, modifie la microstructure du matériau. Une précipitation de carbures intergranulaires, variant en fonction de l'état métallurgique du matériau de départ, conduit dans un premier temps à un appauvrissement des joints de grains en chrome. Une teneur de 9%, qui garantit une résistance satisfaisante à la corrosion intercristalline en milieu aéré [Was 1981, Latanision 1988], peut être atteinte à la fin du traitement thermique. Seuls le carbone, le bore et le phosphore sont détectés en quantité significative dans les joints de grains.

La bonne reproductibilité des résultats obtenus sur les alliages ultra-purs est sans doute due au contrôle de la composition chimique et des conditions de traitement thermique. On ne la retrouve pas toujours avec les coulées industrielles des Alliages 600 et 690 [Sui 1997], en particulier pour les manchettes d'adaptateur qui présentent des hétérogénéités de microstructure importantes. Ces essais montrent néanmoins l'importance du choix et de la maîtrise du traitement thermique sur la microstructure du matériau, donc à sa résistance la corrosion sous contrainte dans le milieu primaire.

Les joints de grains sont également caractérisés, à une échelle plus fine, par leur configuration cristallographique, qui varie d'un joint à l'autre et constitue une seconde source d'hétérogénéité, en particulier vis-à-vis de la précipitation des carbures de chrome [Liu 1995] et de la résistance à la propagation de fissure intergranulaire.

I.2. Propriétés cristallographiques des joints de grains

Un des axes de recherche les plus récents sur les propriétés des joints de grains consiste à examiner leurs caractéristiques cristallographiques en lien avec leurs propriétés mécaniques. Deux objectifs sont visés dans le cas particulier de l'Alliage 600 :

- une meilleure compréhension du ou des mécanismes de fissuration intergranulaire de l'Alliage 600 dans le milieu primaire ;
- une amélioration de la résistance du matériau par optimisation de ce paramètre de la microstructure.

Dans la suite de ce chapitre nous entendrons par orientation des joints de grains l'ensemble de leurs caractéristiques cristallographiques. Trois points ont retenu l'attention des auteurs :

- l'intérêt de cette étude dans le cas de l'Alliage 600 ;
- les différents modèles proposés ;
- l'application de ces concepts au cas de l'Alliage 600 dans différents milieux.

I.2.a. Intérêt de l'étude

L'objectif est ici d'améliorer la résistance d'un matériau à la corrosion et/ou à la fissuration intergranulaire, en optimisant la microstructure pour une composition chimique donnée. Le point de départ est le concept de « grain boundary design and control » développé par Watanabe à partir de 1984 : est-il possible d'améliorer la résistance des joints de grains par la modification de leurs caractéristiques cristallographiques ?

Cadre théorique

L'ensemble des études citées dans ce chapitre fait appel à la modélisation rappelée par Brandon [1966]. Les joints de grains sont caractérisés par deux paramètres : Σ est l'inverse de la densité de sites de coïncidence (entre les réseaux des deux grains) par rapport aux sites réels dans le plan du joint ; $\Delta\theta$ est l'écart angulaire à la coïncidence exacte. La plus grande désorientation admissible $\Delta\theta_{max}$ correspond au réseau de dislocations le plus dense admissible pour décrire l'écart à la coïncidence. Le critère de coïncidence s'exprime alors de la manière suivante :

$$\Delta\theta_{max} = \theta_0 (\Sigma)^{-1/2} \qquad \text{où } \theta_0 \approx 15°.$$

Une autre expression du critère de Brandon est utilisée par Aust et coll. [1994] :

$$\Delta\theta_{max} = \theta_0 (\Sigma)^{-5/6} \qquad \text{où } \theta_0 = 15°.$$

Les joints de grains sont généralement classés de la manière suivante :

- les joints à petit angle (ou sous-joints), pour lesquels $\Sigma = 1$ et $\Delta\theta \leq \theta_0$ (LAB : low-angle boundaries) ;
- les joints de coïncidence, pour lesquels $1 < \Sigma \leq \Sigma_{max}$ et $\Delta\theta \leq \Delta\theta_{max}$ avec le plus souvent $\Sigma_{max} = 49$ (CSLB : coincidence site lattice boundaries) ;
- les joints quelconques, ou joints à grand angle, pour lesquels $\Sigma > \Sigma_{max}$ (GHAB : general high-angle boundaries) ; ce sont des joints à haute énergie.

Application à la résistance des joints de grains du nickel à l'endommagement de fatigue

Lim et Raj [1984] ont étudié la cavitation du nickel en fatigue oligocyclique à 300°C, pour une amplitude de déformation plastique égale à 1,35% et un rapport de charge de -1. Le matériau était fourni sous la forme d'un polycristal à gros grains (1 mm). L'examen de la surface et de coupes polies a montré que les premiers à caviter sont les joints à haut Σ (Σ>99), suivis par les joints à Σ plus faible. En fin d'essai tous les joints présentaient des cavités sauf les joints de macle (Σ = 3 coïncidents), du moins ceux qui ne présentaient pas d'irrégularité géométrique.

La résistance des joints de grains à la fissuration en fatigue oligocyclique à 300°C dépend également, mais dans une moindre mesure, de leur orientation [Lim 1987] : les joints à $\Sigma < 5$ ne fissurent jamais tandis que les joints à $\Sigma > 5$ fissurent en fonction des orientations angulaires respectives de la surface, du joint de grains, des systèmes de glissement des grains adjacents et de la contrainte appliquée. Cet effet est plus net sous air que sous vide, où le glissement est plus homogène.

Les auteurs attribuent la cavitation aux contraintes locales exercées à l'intersection entre les bandes de glissement intense et les joints de grains. Ils interprètent la mauvaise résistance des joints à haut Σ en faisant intervenir des interactions entre les dislocations venant des grains et les dislocations intergranulaires. Ces dernières transmettent moins bien le glissement d'un grain à l'autre lorsque Σ est élevé, ce qui entraîne des concentrations de contrainte favorables à la germination de cavités.

Intérêt de l'étude dans le cas de l'Alliage 600

Dans le cas particulier de l'Alliage 600, l'étude des caractéristiques cristallographiques des joints de grains a montré leur influence sur la résistance à la corrosion sous contrainte. Des traitements thermomécaniques ont été mis au point afin d'obtenir une fraction de joints de grains « résistants » la plus élevée possible pour limiter le risque de propagation de fissures traversantes.

Rajan et coll. [1988] ont testé des échantillons d'un alliage Ni-17Cr-9Fe, contenant quelques ppm de carbone, dans l'eau pure et en milieu caustique. L'observation de la fissuration intergranulaire de ces échantillons montre que certains joints de grains sont sensibles à la corrosion sous contrainte. Les auteurs attribuent ce phénomène aux joints à haute énergie, qui sont moins résistants que les joints de coïncidence.

L'applicabilité d'une telle étude, d'un point de vue strictement métallurgique, au contrôle des interfaces a été montrée par Crawford et Was [1992] sur un alliage Ni-17Cr-9Fe contenant 20 à 30 ppm en masse de carbone. Ils ont mis au point un traitement thermomécanique destiné à favoriser la présence de joints de grains en coïncidence. Deux séquences ont finalement été retenues, elles conduisent à une augmentation d'environ dix points du pourcentage de joints de coïncidence au cœur du matériau.

Aust, Erb et Palumbo [1994] ont également élaboré des échantillons d'Alliage 600 comportant des proportions variables de joints de coïncidence en favorisant le maclage par une succession de recuits et de déformations mécaniques.

Deux directions d'étude sont alors ouvertes :

- l'exploration fine du rôle de l'orientation des joints de grains sur leur résistance à la corrosion sous contrainte ;
- la prédiction de durée de vie, à partir de simulations de propagation de fissure dans un réseau aléatoire de joints de grains.

I.2.b. Application aux propriétés métallurgiques de l'Alliage 600

Deux équipes ont travaillé sur des alliages ternaires Ni-Cr-Fe proches de l'Alliage 600. Le cas de l'Alliage 600 a été abordé uniquement en termes de corrosion.

Précipitation des carbures intergranulaires

Liu et coll. [1995] ont caractérisé, par microscopie à imagerie orientée, les joints de grains d'un alliage Ni-18Cr-16Fe-0,02C remis en solution et traité 96 heures à 730°C. Les grains sont équiaxes, très maclés et les joints contiennent de nombreux carbures. Les joints de macle sont cependant dépourvus de précipités ; les joints Σ1 (sous-joints), Σ9 et Σ27 contiennent des carbures deux fois plus petits et deux fois moins espacés que les autres joints de grains.

En termes d'énergies d'interface, les auteurs relèvent dans la littérature les données suivantes :

- $\gamma_s = 19$ mJ/m^2 pour un joint de macle (Σ3 cohérent) ;
- $\gamma_s = 209$ mJ/m^2 pour un joint Σ3 incohérent ;
- $\gamma_s = 835$ mJ/m^2 pour un joint quelconque.

D'une manière générale, les carbures précipitent dans les joints à haute énergie, qui sont justement les plus sensibles à la fissuration ; c'est peut-être là une part importante de leur rôle bénéfique en corrosion sous contrainte dans le milieu primaire.

Résistance à la corrosion

Lin et coll. [1995] ont étudié la corrosion de l'Alliage 600 par le test ASTM G-28 (immersion de 24 heures dans une solution bouillante de sulfate de fer dans l'acide sulfurique à 50%). Deux microstructures ont été considérées. La microstructure dite conventionnelle a été sensibilisée à la corrosion en milieu aéré par un traitement thermique d'une heure à 600°C. Une microstructure modifiée est obtenue par un traitement thermomécanique, destiné à favoriser la présence de joints à bas Σ. Ils obtiennent ainsi plus de 60% de joints à bas Σ ($\Sigma < 29$), contre 37% dans la microstructure conventionnelle.

La perte de masse enregistrée lors du test ASTM G-28 est plus faible sur les microstructures issues du traitement thermomécanique (suivi éventuellement du traitement de sensibilisation) que sur la microstructure conventionnelle sensibilisée. Les auteurs attribuent ce renforcement des joints de grains soit à une amélioration de leur résistance à la corrosion, soit à une meilleure défense vis-à-vis des ségrégations et des précipitations.

I.2.c. Modélisation de la propagation de fissure dans un réseau aléatoire de joints de grains

Trois approches sont ici proposées. Le premier modèle a été validé sur l'acier inoxydable 304 et les deux autres sur des alliages base nickel et en particulier sur l'Alliage 600. Le caractère plus ou moins « résistant » des joints de grains est un paramètre global qui ne distingue pas les effets respectifs des caractéristiques cristallographiques ou chimiques, des sollicitations mécaniques et des effets d'environnement. Dans ces modèles, il n'y a donc pas de couplage explicite entre les champs de contraintes locaux et la propagation des fissures. Celle-ci est abordée d'un point de vue géométrique et statistique.

Travaux de Gaudett et Scully

Wells et coll. [1989] et Gaudett et Scully [1994] ont étudié la rupture de l'acier inoxydable austénitique 304 à l'état sensibilisé, testé en traction lente ($2{,}7.10^{-6}$ s^{-1}) dans une solution 0,5M H_2SO_4 + 0,01 M KSCN. Ils ont modélisé la propagation de la fissure dans un réseau tridimensionnel de grains équiaxes, tous identiques, à quatorze faces. Une série de simulations de type Monte-Carlo a permis d'estimer le nombre minimum de joints actifs (c'est-à-dire sensibles) qui permet à une fissure de traverser le réseau de part en part. Si l'on considère un chemin continu unidimensionnel (lignes triples), il suffit que 23% des joints soient actifs. Si l'on considère un chemin continu bidimensionnel (plans de joints), il faut 89% de joints actifs pour avoir une rupture totalement intergranulaire.

Le critère d'activité des joints est le taux de chrome mesuré par réactivation électrochimique potentiocinétique. La validation expérimentale du modèle a consisté à mesurer la fraction minimale de joints actifs permettant la propagation d'une fissure intergranulaire. Le seuil est de 20 à 25%, ce qui est cohérent avec la valeur prédite par le modèle.

Travaux d'Aust, Erb et Palumbo

Aust, Erb et Palumbo [1994] ont considéré le cas d'une fissure intergranulaire se propageant dans un polycristal plan (Figure A-1). Ils ont calculé la probabilité P' de trouver un chemin continu de joints sensibles et favorablement orientés par rapport à la contrainte macroscopique, sur une longueur de défaut critique. En raisonnant à chaque point triple du réseau (Figure A-2), ils ont abouti à la relation suivante :

$$P(\text{arrêt de la fissure}) = (f_{sp})^2 + 0{,}5 \,.\, f_0 \,.\, f_{sp} \,.\, (1-f_{sp})$$

où f_{sp} est la probabilité qu'un joint soit insensible et f_0 la probabilité qu'il soit orienté de manière défavorable par rapport à la contrainte macroscopique.

La probabilité P'(L) de ne pas avoir de fissure d'une longueur L inférieure ou égale à la longueur critique L_{crit} est alors telle que :

$1-P'(L) = (1-P)^{2L/d}$ où d est la taille de grains du matériau.

Les simulations montrent que P' dépend davantage de la fraction de joints sensibles que de la fraction de joints bien orientés par rapport à la contrainte macroscopique.

Le modèle a ensuite été appliqué au cas de l'Alliage 600 testé en milieu caustique. L'analyse par EBSP d'échantillons fissurés montre que ce sont les joints de Σ supérieur ou égal à 27 qui sont les plus sensibles. Certains types de joints sont résistants (Σ = 1, 3, 5, 9, 11, 19a) mais plusieurs joints à $\Sigma < 25$ fissurent tout de même, peut-être à cause d'une désorientation $\Delta\theta$ élevée. La modélisation permet également de représenter quantitativement les données expérimentales de Liu et coll. [1995] reportées au I.2.b.

Travaux de Pan, Olson et Adams

Pan, Olson et Adams [1995] ont modélisé la propagation d'une fissure dans un réseau bidimensionnel de grains hexagonaux. Ils ont supposé que le processus se déroulait selon une chaîne de Markov, c'est-à-dire que l'incrément de propagation ne dépendait pas du trajet antérieur de la fissure. Ils ont alors écrit la matrice des probabilités de propagation à chacun des points triples, les joints étant un à un repérés par un indice. Les éléments de cette matrice, qui est inversible, sont évalués à l'aide d'un critère d'énergie. Les simulations font apparaître trois cas de figure :

- si la distribution des énergies de joints de grains est totalement aléatoire la fissure est traversante ;
- si 20% des joints perpendiculaires à la contrainte sont résistants la fissure s'arrête ;
- si 60% des joints à 120° de la contrainte sont résistants la fissure s'arrête également.

Les résultats expérimentaux cités dans cet article ont été obtenus pour les Alliages 600 et X-750. Dans le cas de l'Alliage X-750 l'arbre de décision aux points triples est simple à modéliser, la fissure se propageant dans les joints dont l'énergie est la plus élevée. Ce n'est pas toujours le cas pour l'Alliage 600 en milieu caustique. Le maclage à l'intérieur des grains est dans les deux cas générateur de changements d'orientations à l'intérieur d'un même joint et n'a pas encore été pris en compte dans le modèle.

Un des intérêts de cette modélisation réside dans la comparaison entre plusieurs matériaux, par exemple en évaluant la probabilité qu'a une fissure d'atteindre une longueur donnée en un nombre d'incréments N fixé.

Conclusions

Les modèles mis en place pour évaluer les conditions de propagation d'une fissure dans un réseau de joints de grains d'orientations aléatoires semblent en bon accord avec les données expérimentales. Il s'agit moins d'obtenir une fraction maximale de joints de grains « résistants » que d'éviter l'existence de chemins continus de joints de grains « faibles », d'une longueur donnée, par lesquels une fissure pourrait passer. Cet aspect a été peu étudié par les expérimentateurs : les traitements thermomécaniques aboutissent à l'augmentation du nombre de joints de macles et les auteurs n'ont pas toujours cherché s'il restait des chemins continus de joints « sensibles ». Les essais de corrosion sous contrainte ont cependant montré l'utilité de cette approche, en particulier lorsque l'on n'étudie que les joints de grains $\Sigma > 3$, c'est-à-dire que l'on retire les joints de macle des évaluations statistiques.

I.3. Influence des propriétés métallurgiques de l'Alliage 600 sur sa résistance à la corrosion sous contrainte dans le milieu primaire

La sensibilité à la corrosion sous contrainte est souvent favorisée par une microstructure à petits grains [Garriga-Majo 1993]. Elle est surtout liée à la répartition des éléments d'alliage au sein de la microstructure.

I.3.a. Répartition des carbures de chrome

De nombreuses études paramétriques ont montré que la présence de carbures intergranulaires améliore la résistance de l'Alliage 600 à la corrosion sous contrainte dans le milieu primaire (voir par exemple [Garriga-Majo 1993] et [Liu 1995]). L'un des effets bénéfiques de la présence de ces carbures intergranulaires est l'homogénéisation de la déformation, du moins en traction simple (voir le premier chapitre sur le comportement mécanique de l'Alliage 600). Les carbures intergranulaires agissent dans ce cas comme des sources de dislocations s'ils sont répartis en film semi-continu, tandis qu'à l'intérieur des grains ils font obstacle au glissement et entraînent en retour des contraintes locales importantes au voisinage des joints de grains. On a également vu que les carbures protègent en priorité les joints de grains les plus sensibles à la fissuration.

I.3.b. Ségrégation d'éléments dans les joints de grains

Cas du chrome

Was et coll. [1992b] ont montré que l'appauvrissement des joints de grains en chrome n'a aucun effet sur la résistance de l'Alliage 600 à la corrosion sous contrainte dans l'eau pure hydrogénée. Une concentration locale inférieure à 9% empêche en revanche la cicatrisation en cas d'attaque localisée ; l'alliage est alors sensible à la corrosion intercristalline en milieu aéré (solution bouillante de sulfate de fer dans l'acide sulfurique) [Was 1981, Latanision 1988].

Cas du carbone

Les résultats relatifs au carbone sont encore contestés. Rajan et coll. [1988] ont montré que l'Alliage Ni-17Cr-9Fe ultra-pur (8 ppm de carbone) est sensible à la cavitation en fluage dans l'eau pure à 347°C. Ils estiment que le carbone dissous dans les joints de grains a un effet néfaste sur la résistance à la corrosion intergranulaire et attribuent ce phénomène soit à une modification des propriétés mécaniques du matériau (« dynamic strain aging »), soit à une modification des conditions électrochimiques (activité du chrome) conduisant à une dissolution plus rapide du métal.

Was et coll. [1992b] estiment de leur côté que le carbone en solution solide a un effet bénéfique en traction lente, en réduisant la composante de fluage qui est endommageante pour le matériau. Ils ont montré [1992a] que la fraction de la surface de rupture qui correspond à une rupture intergranulaire est contrôlée par la quantité de carbone présent dans les grains et dans les joints de grains. Bruemmer [1996] remarque pour sa part que peu de données sont disponibles, la ségrégation du carbone dans les joints de grains n'étant pas mesurable par spectrométrie Auger.

Le carbone joue sans doute un rôle important en corrosion sous contrainte mais peu de données expérimentales permettent de le quantifier. La teneur en carbone libre des grains et des joints de grains, qui peut largement varier avec la composition chimique globale et le traitement thermique, n'est que très rarement mentionnée dans les publications. Ceci rend difficile la comparaison des résultats d'un matériau à l'autre.

Ségrégation d'autres éléments

L'effet du bore, ségrégé aux joints de grains, sur la résistance de l'Alliage 600 à la corrosion sous contrainte n'est pas connu. Bruemmer [1996] souligne toutefois que le bore accélère la précipitation de carbures intergranulaires dans les aciers inoxydables.

Was et coll. [1992b] ont constaté qu'une ségrégation de 11% de phosphore à la surface des joints de grains, suite à un traitement thermique d'une heure à 700°C, est bénéfique en termes de résistance à la corrosion sous contrainte. Ils expliquent cela par le fait que le phosphore tend à améliorer la cohésion des joints de grains et à réduire la vitesse de fluage. Bruemmer remarque que le phosphore est néfaste en présence d'hydrogène dans l'Alliage X-750 tandis que dans l'Alliage 600 la ségrégation de phosphore est souvent accompagnée de la précipitation de carbures intergranulaires et n'a donc pas été étudiée d'une manière indépendante [1996].

Conclusions

La microstructure de l'Alliage 600 a fait l'objet d'études métallurgiques nombreuses et fines, qui expliquent au moins partiellement l'effet bénéfique du traitement thermique de détensionnement des contraintes résiduelles sur la résistance du matériau à la corrosion sous contrainte dans le milieu primaire.

Si la teneur en chrome au voisinage des joints de grains ne joue pas de rôle particulier, le comportement mécanique est localement affecté par deux conséquences du traitement thermique :

- la modification du taux de carbone en solution, qui agit sur la diffusion dans les joints de grains ;
- la précipitation de carbures de chrome intergranulaires, essentiellement de type M_7C_3, qui tendent à homogénéiser la déformation et à accentuer le caractère tortueux des chemins de diffusion dans les joints de grains.

I.3.c. Effet des caractéristiques cristallographiques des joints de grains sur leur résistance à la corrosion sous contrainte

Crawford et Was [1992] ont utilisé une coulée d'alliage Ni-17Cr-9Fe à gros grains (270 à 475 µm, soit 4 à 5 grains dans l'épaisseur des éprouvettes) qu'ils ont testée en traction lente à 360°C dans l'argon et dans l'eau pure hydrogénée. Les essais ont été interrompus après le passage à la charge maximale et les fractions de joints de grains ouverts ont été mesurés en fonction de Σ. Aucun joint de faible désorientation n'est ouvert. Les joints de coïncidence ne sont pas insensibles à la fissuration intergranulaire (1,5% fissurent dans l'argon et 6,7% dans le milieu primaire). Les moins résistants sont les joints de haute énergie : 6,6% d'entre eux fissurent dans l'argon et 9,9% dans le milieu primaire.

A la suite de Lim et Raj [1984], Crawford et Was remarquent que l'aptitude des joints de faible désorientation et des joints de coïncidence à transmettre le glissement d'un grain à l'autre contribue à abaisser la contrainte au niveau de ces joints de grains. L'augmentation de Σ réduit la norme des vecteurs de Bürgers du réseau intergranulaire et les champs de contraintes élastiques autour des dislocations intergranulaires ne sont plus suffisants pour transmettre correctement le glissement d'un grain à l'autre. Dans ce cas, les incompatibilités de déformation au niveau des joints de grains ne peuvent être résolues que par la formation de cavités ou de fissures.

Conclusions

Les caractéristiques cristallographiques des joints de grains jouent un rôle important dans la résistance de ceux-ci à la corrosion et à la corrosion sous contrainte. Le mécanisme de fragilisation des joints de haute énergie reste inconnu à ce jour ; il peut faire intervenir des ségrégations, une localisation de la contrainte ou une compétition entre la formation de précipités (carbures de chrome) et la ségrégation du carbone dans les joints de grains.

I.4. Conclusions

L'effet des caractéristiques microstructurales sur la résistance de l'Alliage 600 à la corrosion sous contrainte est à présent relativement bien établi. Une coulée sera d'autant plus résistante que la taille de grains est élevée et que les joints de grains contiennent des carbures de chrome

et/ou sont de basse énergie. Quelques points restent cependant dans l'ombre : certaines coulées résistent bien à la fissuration sans contenir de carbure intergranulaire, la teneur en chrome dans les joints de grains ne joue aucun rôle si elle est supérieure à 9%, seuil d'insensibilité à la corrosion intercristalline en milieu aéré. Le rôle du carbone en solution est encore controversé.

L'ensemble de ces connaissances ne permet pas de cerner le ou les mécanismes d'amorçage et de propagation des fissures de corrosion sous contrainte. Il permet cependant d'interpréter les variations de sensibilité d'une coulée à l'autre. Relativement peu de coulées sont sensibles en service et il est important de les identifier pour maîtriser le coût des opérations de contrôle et de remplacement sur site. L'étude des coulées sensibles permet en outre d'obtenir rapidement des fissures de corrosion sous contrainte ; la présente étude montre que les coulées sensibles à la corrosion sous contrainte dans le milieu primaire le sont également, d'une manière générale, à la fissuration assistée par l'oxydation.

II. CHOIX DES MATERIAUX DE L'ETUDE

Dans le cadre de cette étude, les essais ont généralement été effectués sur des éprouvettes épaisses (au moins 4 mm de diamètre dans la partie utile). Il n'a donc pas été possible de caractériser le comportement des tubes de générateur de vapeur. Le choix s'est porté sur une manchette d'adaptateur, considérée ici comme le matériau « de référence ». Après épuisement du lot de matière, les essais de propagation de fissure ont été continués en prélevant les éprouvettes dans une seconde manchette.

Deux autres lots ont été dédiés à l'étude des effets d'environnement. Le premier est un tube de générateur de vapeur qui a été testé dans le milieu primaire. Le second, constitué de deux feuillards, a été utilisé pour les essais sur produit mince.

L'ensemble des essais réalisés sur chacune de ces coulées est rappelé à la fin de ce chapitre.

III. PROPRIETES DES MATERIAUX DE L'ETUDE

III.1. Origine des matériaux

Les coulées A et B ont été fournies sous la forme de manchettes d'adaptateur. Ce sont des tubes épais, forgés, dont les dimensions sont données sur la Figure A-3.

La coulée C a été fournie sous la forme d'un tube de générateur de vapeur de type « 900 mégawatts », de diamètre extérieur 22,2 mm et d'épaisseur 1,27 mm.

La coulée D a été fournie sous la forme de deux feuillards de 150 mm de largeur et d'épaisseurs respectives 100 et 200 µm.

III.2. Compositions chimiques

Les compositions chimiques globales des différents produits, communiquées par les fournisseurs, sont données par coulée dans le Tableau A-1 en regard des spécifications propres à l'Alliage 600.

élément	C	Mn	Si	S	P	Ni
spécification	≤ 0,10	≤ 1,0	≤ 0,5	≤ 0,015	≤ 0,025	≥ 72,0
manchette A	0,06	0,80	0,25	0,0008	0,009	73,15
manchette B	0,016	0,78	0,37	0,004	0,011	73,80
tube C	0,034	0,83	0,26	0,001	0,0010	73,70
feuillard D	0,020	0,855	NC	0,00058	0,0084	72,7

élément	Cr	Cu	Co	Al	Ti	Fe
spécification	14,0 à 17,0	≤ 0,5	≤ 0,2	≤ 0,5*	≤ 0,5*	6,0 à 10,0
manchette A	15,65	< 0,005	0,012	0,18	0,28	9,20
manchette B	15,87	< 0,01	< 0,01	0,19	0,21	8,64
tube C	16,03	0,02	0,016	0,22	0,37	8,43
feuillard D	15,91	NC	NC	0,173	0,215	9,50

NC : donnée non communiquée ; * : Al + Ti ≤ 0,6%.

Tableau A-1 : Composition chimique des coulées de l'étude (pourcentages pondéraux)

III.3. Traitements thermiques et microstructures résultantes

Les deux manchettes et le tube de générateur de vapeur ont été fournis à l'état « mill-annealed », c'est-à-dire après un recuit à relativement basse température (Tableau A-2). Le feuillard a été recristallisé après laminage. Tous ces matériaux ont été étudiés à l'état de réception.

produit	état	dernier traitement thermique
manchette A	mill-annealed	820°C 2 h, refroidissement air calme
manchette B	mill-annealed	800°C 2 h, refroidissement air calme
tube C	mill-annealed	950°C 2 min. sous NH_3, refroidissement lent
feuillard D	recristallisé	recuit au défilé, T ≥ 1100 °C

Tableau A-2 : Dernier traitement thermique appliqué aux matériaux de l'étude

Les directions principales des pièces sont repérées de la manière suivante :

- pour les pièces axisymétriques, *r* est la direction radiale, θ la direction orthoradiale et *z* la direction longitudinale ;

- pour les produits minces, *L* est la direction de laminage, *T* le sens travers long et *S* le sens travers court.

III.3.a. Matériau de référence : manchette de la coulée A

La manchette de la coulée A présente des grains légèrement allongés dans la direction *z* (Figure A-4). On trouve çà et là des alignements de carbonitrures de titane transgranulaires, parallèles à *z* ; ces précipités n'ont pas d'influence sur les propriétés mécaniques du matériau ni sur sa résistance à la corrosion sous contrainte dans le milieu primaire.

La température du dernier recuit de recristallisation est trop basse pour avoir permis la remise en solution des carbures de chrome initialement intergranulaires. Ceux-ci sont répartis selon un ancien réseau de joints de grains allongés dans la direction *z*. Ils sont pour la plupart transgranulaires. Cette coulée est considérée par FRAMATOME comme particulièrement sensible à la corrosion sous contrainte dans le milieu primaire.

Les manchettes d'adaptateur permettent certes d'usiner des éprouvettes « épaisses » mais en contrepartie leur microstructure est hétérogène. La Figure A-4b montre une section longitudinale d'une éprouvette de traction testée à 550°C. La microstructure n'a pas eu le temps d'évoluer au cours des quelques minutes que dure l'essai et correspond donc, mise à part la déformation des grains, à l'état de réception. On constate qu'à côté de zones à petits grains il existe des zones à très gros grains, d'une taille supérieure à 200 µm, qui constituent des points faibles dans le matériau en termes de propriétés mécaniques (limite d'élasticité). Cette hétérogénéité de la microstructure induit une dispersion des propriétés mécaniques mesurées sur les « petites » éprouvettes, notamment en traction (voir le chapitre sur les essais de comportement mécanique).

III.3.b. Manchette de la coulée B

La microstructure de la coulée B est présentée sur la Figure A-5a. Elle est semblable à celle de la coulée A, malgré une teneur nominale en carbone plus faible. On constate également la présence de très gros grains (Figure A-5b). Ce matériau est réputé sensible à la corrosion sous contrainte dans le milieu primaire.

III.3.c. Tube de générateur de vapeur de la coulée C

La coulée C est réputée très sensible à la corrosion sous contrainte dans le milieu primaire. Elle comporte de petits grains très maclés, des alignements de carbonitrures de titane et des carbures de chrome répartis selon un ancien réseau de joints de grains (Figure A-6). On n'y rencontre pas de gros grains comme sur les manchettes d'adaptateur. Seule la microstructure de cœur a été étudiée, la zone écrouie en peau étant retirée lors de la réalisation des éprouvettes.

III.3.d. Feuillards de la coulée D

La coulée D a été recristallisée après laminage, à une température suffisamment élevée pour remettre en solution la quasi totalité du carbone. On y rencontre donc très peu de carbures de

chrome. Les grains sont équiaxes, de taille homogène et très maclés (Figure A-7). On trouve également des alignements de carbonitrures de titane dans la direction *L*.

III.3.e. Analyses quantitatives

Le Tableau A-3 présente les résultats obtenus par analyse d'image sur les différents produits utilisés. La taille de grains est calculée à partir des fractions surfaciques. Le facteur d'allongement selon la direction d'élaboration (*z* pour les produits axisymétriques et *L* pour les produits plats) est calculé à partir des projections de chaque grain sur les directions principales du produit : *(r* ou θ *)* et *z* pour les produits axisymétriques et *(S* ou *T)* et *L* pour les produits plats. L'indice de convexité est l'inverse du rapport du périmètre réel des grains au périmètre de leur enveloppe convexe dans le plan de l'image. Le nombre moyen de grains dans l'épaisseur des feuillards a été estimé à l'aide d'un masque étroit (512 pixels par 6 pixels) qui balaye l'image pas à pas et compte les intersections avec les joints de grains.

Produits axisymétriques

coulée	taille de grains (µm)	indice ASTM	facteur d'allongement	indice de convexité
A*	20 à 43	5 à 8	1,20	0,95
B*	27 à 42	5 à 7	1,22	0,93
C	12 à 22	7 à 9	1,31	0,94

*hors zones à gros grains

Produits plats

		plan (L, T)			plan (L, S)			
coulée	épaisseur (µm)	taille de grains (µm)	indice ASTM	facteur d'allongement	taille de grains (µm)	indice ASTM	facteur d'allongement	indice de convexité
D	100	8,8 à 9,4	10	1,04	15,0	8	1,05	0,95
D	200	20,6	7	1,05	17,0	8	1,07	0,95

Tableau A-3 : Analyse quantitative des microstructures des différents produits

On vérifie qu'en moyenne les grains des produits axisymétriques sont allongés dans la direction *z* tandis que ceux des produits plats sont sensiblement équiaxes. L'indice de convexité paraît peu sensible au caractère sinueux des joints de grains : il est proche de 1 dans tous les cas alors que les grains des produits axisymétriques sont étroitement imbriqués les uns dans les autres.

Le feuillard d'épaisseur 200 µm compte en moyenne onze à treize grains dans l'épaisseur alors que le feuillard d'épaisseur 100 µm n'en compte que cinq à sept. Les deux matériaux ont de ce fait des modes de rupture sensiblement différents (voir le chapitre sur les effets d'environnement à haute température).

III.4. Stabilité de la microstructure au cours des essais mécaniques

La stabilité de la microstructure, soumise à des contraintes élevées sur de longues durées, a été vérifiée a posteriori sur les éprouvettes testées en température. La Figure A-8 montre que dans

le cas des éprouvettes CT testées à 550°C sous air, sur une durée de plusieurs semaines, la microstructure n'a été modifiée ni dans les zones hors contrainte (talon de l'éprouvette, Figure A-8a), ni dans la zone viscoplastique située près de la fissure (Figure A-8b). Les joints de grains n'ont pas migré vers les carbures et ne semblent pas s'être décorés de nouveaux précipités (y compris à l'échelle du MEB haute résolution, voir Chapitre C-3). On considérera dans la suite de l'étude que les conditions de température et de sollicitations mécaniques n'affectent pas la microstructure du matériau.

III.5. Propriétés mécaniques élémentaires des produits étudiés

III.5.a. Propriétés mécaniques macroscopiques

Les produits axisymétriques ont été caractérisés en traction par les essais de recette du fournisseur. Les données obtenues pour les manchettes et le tube de générateur de vapeur sont conformes aux spécifications (Tableau A-4), sauf pour l'éprouvette de la coulée A testée dans la direction θ, dont la limite d'élasticité est légèrement au-dessus des spécifications.

produit	direction	diamètre éprouvette (mm)	T (°C)	$Rp_{0,2\%}$ (MPa)	Rm (MPa)	allongement réparti (%)	réduction d'aire (%)
spécifications Alliage 600	-	-	20	240 à 450	≥ 550	≥ 30	-
manchette A	*z*	10	20	410	708	34,7	60,9
	θ	6	20	472	721	30,8	-
manchette B	*z*	12,7	20	412	683	39,6	-
tube C	*z*	le tube lui-même	20	320	713	46,4	-

Tableau A-4 : Propriétés mécaniques des produits axisymétriques

III.5.b. Propriétés mécaniques à l'échelle microscopique

Etat de réception

L'état d'écrouissage des différents produits a été caractérisé de manière qualitative par des examens au microscope électronique en transmission. Les lames minces ont été réalisées par polissage mécanique puis électrolytique au jet dans une solution contenant 45% d'acide acétique, 45% de butoxyéthanol et 10% d'acide perchlorique, sous 30 V et à 0°C. Les manchettes d'adaptateur et le tube de générateur de vapeur se sont révélés écrouis, avec une densité de dislocations non négligeable à l'état de réception (Figure A-9a), en accord avec le caractère allongé des grains. Ceci est cohérent avec les valeurs de la limite d'élasticité qui sont très élevées pour un alliage durci par effet de solution solide. Les feuillards, recristallisés à plus haute température, sont très peu écrouis : quelques dislocations seulement subsistent autour des rares carbures de chrome résiduels (Figure A-9b).

Modes de déformation

Le caractère planaire du glissement se manifeste, pour l'Alliage 600, sous des sollicitations mécaniques variées (Figure A-10) :

- autour d'une empreinte de dureté (Figure A-10a) ;
- sur les faces d'une éprouvette mince sollicitée en traction (Figure A-10b) ;
- au col d'une éprouvette « selle de cheval » fissurée à 360°C dans le milieu primaire (Figure A-11a) ;
- en fatigue oligocyclique (traction-compression) à 25°C (Figure A-11b) et à 340°C (Figure A-11c).

L'espacement entre bandes de glissement est de l'ordre de quelques centaines de nanomètres quelle que soit la sollicitation mécanique. Le glissement est particulièrement hétérogène après un cycle de fatigue (Figure A-11b) et n'est toujours pas homogène en fin d'essai, après plusieurs centaines de pour-cent de déformation viscoplastique cumulée (Figure A-11c). Le caractère localisé du glissement, peut-être lié à l'absence d'une précipitation intergranulaire, tend à créer des concentrations de contrainte au niveau des joints de grains, ce qui nuit à la résistance du matériau à la fissuration.

IV. UTILISATION DES MATERIAUX FOURNIS POUR L'ETUDE

La manchette A a été caractérisée en détail, de manière à relier la sensibilité à la fissuration assistée par l'environnement aux propriétés mécaniques (Tableau A-5).

La manchette B a été réservée aux essais de fissuration entre 300 et 400°C ; on y a fixé les conditions mécaniques pour comparer les vitesses de propagation de fissure obtenues dans différents environnements ; un essai a également été réalisé dans le milieu primaire pour monter que l'on peut obtenir, en fatigue ou en fatigue-fluage, une fissure intergranulaire à basse température (320°C) dans un délai relativement court (quelques centaines d'heures).

Le tube de générateur de vapeur a été réservé à l'étude de l'endommagement dans le milieu primaire pollué ou non.

Les feuillards ont été utilisés comme structure « modèle » pour déterminer l'influence des effets d'environnement sur le comportement et l'endommagement d'éprouvettes de surface spécifique élevée.

produit	étude	essais	environnement
man-chette A	comportement mécanique sans effet d'environnement (« à cœur »)	traction, fatigue, fatigue-relaxation sur éprouvettes « épaisses »	air 25-300-340-360-400-550-600°C
	modes d'oxydation	oxydation de lames minces et de plaquettes polies	air / vide 650°C milieu primaire 360°C
	fissuration assistée par l'environnement	propagation de fissure sur CT	air / vide 550°C
man-chette B	fissuration assistée par l'environnement	propagation de fissure sur CT	air / vide / H_2 à 400°C vapeur d'eau désaérée 400°C milieu primaire 320°C
tube C	fragilisation	expositions en autoclave	milieu primaire 360°C pollué ou non
feuil-lard D	effets d'environnement sur le comportement mécanique	traction, fluage sur produit mince	traction air 400-550-600-700°C fluage air 400 et 550°C fluage vide 550°C
	modes d'oxydation	thermogravimétrie	air / vide 550°C

Tableau A-5 : Utilisation des coulées fournies pour l'étude

COMPORTEMENT MECANIQUE DE L'ALLIAGE 600

Partie B : Comportement mécanique de l'Alliage 600

La partie B de ce mémoire est consacrée à la caractérisation des propriétés mécaniques d'une coulée d'Alliage 600, en vue de constituer une base expérimentale et un outil de calcul de structure utilisable pour la simulation d'éprouvettes de corrosion sous contrainte. L'ensemble de la méthode est applicable à d'autres coulées d'Alliage 600, notamment aux matériaux riches en carbures de chrome intergranulaires. Elle est également applicable à l'Alliage 690.

Dans le cas particulier de cette étude, on utilise cet outil pour estimer les sollicitations mécaniques locales à la pointe d'une fissure, pour les géométries d'éprouvettes et les conditions d'essai qui seront détaillées dans les Parties C et D.

Après un rappel sur les données dont on dispose pour l'Alliage 600 (Chapitre B-1), le Chapitre B-2 présente la constitution de la base de données expérimentale. Les principales propriétés mécaniques sont ensuite modélisées (Chapitre B-3) et utilisées pour calculer par éléments finis les éprouvettes fissurées des Parties C et D (Chapitre B-4). Le Chapitre B-5 est enfin consacré, d'une manière plus générale, à l'exploitation de l'ensemble des résultats en vue des essais de corrosion sous contrainte.

CHAPITRE B-1 :
COMPORTEMENT MECANIQUE DE L'ALLIAGE 600
CONTEXTE BIBLIOGRAPHIQUE

L'influence des caractéristiques métallurgiques de l'Alliage 600 sur sa résistance à la corrosion sous contrainte dans le milieu primaire montre que ce type de fissuration fait intervenir des propriétés locales du matériau, en particulier au voisinage des joints de grains. Celles-ci ne sont pas seules responsables de la fissuration mais interagissent entre autres avec les sollicitations mécaniques appliquées. Il est donc essentiel de connaître les champs de contrainte et de déformation locaux qui règnent près de la surface des échantillons (pour l'amorçage des fissures) et à la pointe des fissures de corrosion sous contrainte en cours de propagation. Ces grandeurs sont en pratique impossibles à mesurer, du fait du caractère hétérogène de la déformation (glissement localisé) et des variations de propriétés mécaniques d'une coulée à l'autre, voire d'un joint de grains à l'autre. On dispose néanmoins d'un outil d'estimation efficace avec la mécanique des milieux continus, à l'échelle des « éléments de volume » dans lequel la fissure va s'amorcer et/ou se propager.

Dans le cadre de la corrosion sous contrainte, cette approche est essentiellement phénoménologique, les modèles de comportement étant conçus comme des outils de calcul de champs mécaniques locaux. Outre le choix de la taille des éléments de volume, la détermination des champs de contrainte et de déformation se heurte à deux types d'obstacles :

- le grand nombre de fissures qui s'amorcent simultanément sur les éprouvettes lisses ;
- le fait que les sollicitations mécaniques locales à la pointe d'une fissure, sur une éprouvette de mécanique de la rupture, ne sont pas accessibles directement mais demandent en général le calcul de l'ensemble de l'éprouvette.

La présente étude s'affranchit du premier obstacle par l'utilisation d'éprouvettes de mécanique de la rupture. Il faut cependant pouvoir calculer ces éprouvettes et pour cela disposer d'informations sur le comportement mécanique du matériau, au moins dans les conditions mécaniques auxquelles celui-ci sera soumis en pointe de fissure. Cette approche s'est révélée fructueuse avec un couple acier perlitique/$Ca(OH)_2$+NaCl [Toribio 1994]. Son application à la fissuration de l'Alliage 600 assistée par l'environnement est un des objectifs de la présente étude. La détermination des sollicitations mécaniques locales en pointe de fissure a été effectuée en trois étapes :

- caractérisation expérimentale du comportement mécanique ;
- modélisation de ces données et intégration du modèle dans un code de calcul par éléments finis ;
- calcul des champs de contrainte et de déformation locaux à la pointe de la fissure d'éprouvettes CT, dans les conditions expérimentales des essais de propagation de fissure.

Ce chapitre définit le contexte dans lequel se sont déroulées ces trois étapes en rappelant les connaissances disponibles sur le comportement de l'Alliage 600, ainsi que des données complémentaires relatives à des alliages base nickel plus « simples » et applicables en partie au cas de l'Alliage 600. Les auteurs se sont particulièrement attachés à obtenir les données expérimentales les plus proches possible des mécanismes physiques qui gouvernent la déformation du matériau, en lien avec la fissuration par corrosion sous contrainte. Ces propriétés mécaniques, liées à des phénomènes très locaux, ont le plus souvent été étudiées en l'absence d'effets d'environnement. Le comportement du matériau très proche de la surface a fait l'objet de peu d'études en fonction de l'environnement, qui peut pourtant perturber les conditions mécaniques et chimiques locales, en particulier au voisinage des joints de grains. Ce point a été abordé au cours de l'étude par des essais sur produit mince d'Alliage 600 et sera présenté avec les résultats des essais de fissuration. On se limitera donc dans ce chapitre au comportement mécanique de l'Alliage 600 à l'exclusion des effets d'environnement.

L'étude des effets de « vieillissement » est un exemple d'interprétation quantitative des données macroscopiques par des mécanismes de déformation à l'échelle microscopique ; ceux-ci ont été étudiés en détail en fonction de la microstructure. L'Alliage 600 est dans ce cas considéré comme un alliage modèle à base de nickel. Un autre mécanisme de déformation considéré comme endommageant a également fait l'objet d'études approfondies : il s'agit du fluage.

La dernière partie de ce chapitre développe la démarche, plus phénoménologique, qui a été suivie au cours de l'étude.

I. PHENOMENES DE VIEILLISSEMENT

Nous entendons par vieillissement l'ensemble des aspects du comportement mécanique qui dépendent du temps ou de la vitesse de déformation, à l'exclusion du fluage et de la relaxation. Trois manifestations du vieillissement, présentes dans le cas de l'Alliage 600, ont fait l'objet d'études approfondies :

- l'effet Portevin-Le Chatelier (PLC) ;
- la sensibilité globalement négative à la vitesse de déformation ;
- le vieillissement statique (« static aging » ou « strain aging »), c'est-à-dire l'évolution de la contrainte d'écoulement au cours de maintiens à déformation totale constante.

Les mécanismes microscopiques qui régissent ces phénomènes sont liés à la nature des obstacles, le plus souvent ponctuels ou linéaires, rencontrés par les dislocations au cours de leur glissement. Ils sont donc particulièrement difficiles à mettre en évidence expérimentalement, du moins par des méthodes directes. Le plus souvent, on a eu recours à des mesures de grandeurs telles que les énergies et aires d'activation apparentes de la déformation, qui décrivent les phénomènes sans pour autant prouver de manière irréfutable l'intervention de tel ou tel mécanisme physique.

I.1. Cadre général des études sur le vieillissement

La plupart des auteurs ont utilisé des éprouvettes conventionnelles de traction ou de compression. Quelques essais ont également été réalisés, à l'intérieur d'un microscope électronique en transmission, sur des lames minces d'alliages nickel-chrome [Clément 1984]. Les conditions de chargement sont toujours monotones et uniaxiales (traction ou compression) ; aucun résultat de comportement cyclique n'a été publié à ce jour. La base de données comporte les essais suivants :

- des sauts de vitesse, pour étudier la sensibilité à la vitesse de déformation ;
- des sollicitations continues en traction ou en compression, pour étudier l'effet PLC ;
- des sollicitations de traction (ou compression)-relaxation, pour caractériser le vieillissement statique.

I.1.a. Sensibilité à la vitesse de déformation

La sensibilité à la vitesse de déformation est caractérisée par le paramètre suivant :

$$m = \left(\frac{\partial \ln \dot{\varepsilon}}{\partial \ln \sigma}\right)_{T,\,microstructure}$$

qui est déterminé par des essais de sauts de vitesse, puis introduit dans le calcul d'aire d'activation. Mulford [1979] suppose ainsi que la vitesse de déformation est thermiquement activée et que l'enthalpie libre d'activation ΔG dépend de la contrainte ; il en déduit l'expression d'une aire d'activation Δa de la manière suivante, b étant la norme du vecteur de Burgers des dislocations :

$$\dot{\varepsilon} = \dot{\varepsilon}_0 \exp\left(-\frac{\Delta G}{kT}\right) \quad \text{et} \quad \frac{\partial \Delta G}{\partial \sigma} = -\, b\, \Delta a \quad \text{d'où} \quad \Delta a = \frac{mkT}{b\sigma}\,.$$

L'intersection de la courbe $\frac{b^2}{\Delta a} = f(\sigma)$ avec les axes permet de déterminer si les obstacles au glissement sont globalement plus ou moins sensibles à la température que les dislocations [Mulford 1979] (Figure B-1).

Une autre approche consiste à étudier la courbe $\frac{\partial \sigma}{\partial \ln \dot{\varepsilon}} = f(\sigma)$ à une température donnée [Mulford et Kocks 1979]. Mulford suppose ici que la contrainte de friction ne dépend pas de la déformation, il ne s'intéresse qu'à l'effet de la forêt. La courbe est dans ce cas une droite et son dépouillement donne accès à la composante de la contrainte qui dépend des interactions entre dislocations.

I.1.b. Effet Portevin-Le Chatelier

Le domaine d'apparition de l'effet Portevin-Le Chatelier a été étudié dans un diagramme $\ln\dot{\varepsilon} = f(\frac{1}{T})$, en lien avec la sensibilité à la vitesse de déformation [Mulford et Kocks 1979, Clément 1984, Kocks 1985]. Les conditions d'apparition en fonction de la déformation ont également été étudiées d'une manière plus théorique [McCormick 1988, Mesarovic 1995], à l'aide de modèles mathématiques qui prédisent les instabilités d'écoulement.

Une seconde approche de l'effet Portevin-Le Chatelier consiste à mesurer la hauteur $\Delta\sigma_J$ des saccades (« jerks ») relevées sur les courbes de traction ou de compression à vitesse de déformation imposée [Kocks 1985]. Dans ce cas également la comparaison peut être faite avec la sensibilité à la vitesse de déformation.

I.1.c. Vieillissement statique

Le vieillissement statique est caractérisé par des essais sous sollicitations monotones interrompus par des séquences de relaxation. L'augmentation $\Delta\sigma_a$ de la limite d'écoulement est alors mesurée au rechargement, en fonction des paramètres mécaniques de l'essai : la déformation courante ε, la contrainte d'écoulement avant relaxation σ_0 et la durée de la relaxation t_R.

La dépendance de $\Delta\sigma_a$ envers le temps de relaxation t_R donne une indication sur le mécanisme de vieillissement statique [Weinstein 1971]. Ainsi une dépendance en $t_R^{2/3}$ est compatible avec une interaction entre les défauts ponctuels et les dislocations, décrite par la loi de Cottrell-Bilby.

L'évolution de $\Delta\sigma_a$ au cours du chargement a été étudiée en traçant les courbes $\Delta\sigma_a = f(\varepsilon)$, qui ne font pas intervenir explicitement le trajet de chargement. Si l'évolution de $\Delta\sigma_a$ est interprétable en termes de contrainte, le vieillissement statique n'est fonction que de la structure d'écrouissage « actuelle » du matériau.

I.2. Modélisation des phénomènes de vieillissement

Les trois phénomènes évoqués ici sont généralement considérés comme des manifestations d'un unique mécanisme de vieillissement, attribué à deux types d'interactions entre les dislocations mobiles et les obstacles au glissement :

- l'interaction entre les dislocations mobiles et les défauts ponctuels ;
- l'effet de forêt.

Les recherches menées en parallèle par une équipe américaine (Mulford, Kocks et coll.) et une équipe néerlandaise (Van den Beukel et coll.), tenantes chacune de l'une de ces interactions, ont abouti à un modèle unifié.

I.2.a. Interactions entre dislocations mobiles et défauts ponctuels

La théorie généralement invoquée, mise en place par Cottrell et Bilby, est rappelée dans ses grandes lignes par Weinstein et coll. [1971]. Elle a été développée par Van den Beukel [1980] en termes d'instabilité de l'écoulement (effet PLC) et de sensibilité à la vitesse de déformation.

Van den Beukel suppose l'existence d'un seuil de déformation ε_c, dépendant de la vitesse de déformation, à partir duquel se manifeste l'effet PLC. Son modèle privilégie les interactions de friction ; il fait intervenir la densité de dislocations mobiles $\rho_m(\varepsilon_c)$, la concentration $C_v(\varepsilon_c)$ en lacunes (éventuellement produites par la déformation) et l'énergie E_m de migration des lacunes. Celles-ci facilitent la diffusion des atomes de soluté vers les dislocations qui sont en attente devant les obstacles.

Le modèle de Van den Beukel est également appliqué à la sensibilité à la vitesse de déformation et fait intervenir le volume d'activation V et la déformation critique ε_0 à partir de laquelle la sensibilité à la vitesse de déformation devient négative ou nulle.

Dans les deux cas, Van den Beukel décrit les évolutions respectives de ρ_m et C_v par des fonctions puissance dont il cherche à évaluer les exposants, notés respectivement β et m, à partir des données expérimentales. Il parvient à ajuster ces paramètres sur un grand nombre de résultats expérimentaux et en déduit que les interactions entre les solutés et les dislocations en attente devant les obstacles jouent un rôle important dans les phénomènes de vieillissement.

I.2.b. Effet de forêt

Mulford et Kocks [1979] considèrent que la contrainte d'écoulement σ est la somme d'un terme de friction σ_f et d'un terme σ_d dû aux effets de forêt. A l'inverse de Van den Beukel, ils supposent que σ_f est indépendant de la déformation tandis que σ_d dépend de la contrainte d'écoulement σ. Dans ce cas, la sensibilité à la vitesse de déformation est une fonction affine de la contrainte d'écoulement.

Ces mêmes auteurs estiment, au vu de leurs résultats expérimentaux et de références prises dans la littérature, que l'apparition de l'effet PLC est conditionnée par une sensibilité négative à la vitesse de déformation (Figure B-2). Ils en déduisent que l'effet PLC est lié à un mode d'écrouissage (« strain hardening ») particulier, qui fait sans doute intervenir les atomes de soluté présents dans la solution solide.

L'interprétation physique donnée par Mulford et Kocks repose sur un modèle d'arrêt des dislocations développé par Sleeswyk : les atmosphères de soluté, présentes autour des arbres de la forêt, migrent rapidement vers les dislocations mobiles en attente devant ces mêmes arbres. L'énergie nécessaire aux dislocations mobiles pour franchir les arbres de la forêt augmente alors au cours du temps, au fur et à mesure que les atomes de soluté diffusent à la jonction entre les dislocations mobiles et les arbres. Un développement du terme σ_d a été donné dans ce sens par Wycliffe et coll. [1980]. Le paramètre physique sous-jacent est peut-

être l'énergie de faute d'empilement γ_s, notamment dans le cas des alliages nickel-cobalt pour lesquels la pente de la courbe $\frac{b^2}{\Delta a} = f(\sigma)$ dépend de γ_s [Mulford 1979].

Le modèle de Mulford et Kocks se distingue de celui de Van den Beukel par le fait que la diffusion des atomes de soluté n'est pas accélérée par la sursaturation en lacunes produites par la déformation, mais par la présence de courts-circuits de diffusion à la jonction entre les dislocations mobiles et les arbres, c'est-à-dire directement à l'effet de forêt. L'effet PLC devient sensible lorsque cet écrouissage dynamique (« dynamic strain aging ») prend le pas sur les autres termes d'écrouissage et que de ce fait la sensibilité à la vitesse de déformation devient négative.

I.2.c. Unification des deux modèles

Un article commun a finalement été publié par Van den Beukel et Kocks [1982] pour unifier les deux approches. Le modèle ainsi établi combine les effets du vieillissement sur la contrainte de friction et sur l'effet de forêt :

- le terme de friction σ_f tient compte de la concentration en atomes de soluté au voisinage des dislocations mobiles, qui dépend du temps d'attente de ces dislocations mobiles devant les obstacles (modèle de Van den Beukel);
- le terme de durcissement par effet de forêt, σ_d, est gouverné par les courts-circuits de diffusion qui existent au niveau des obstacles [Wycliffe 1980] (modèle de Mulford, Kocks et coll.).

La comparaison entre les deux contributions au vieillissement donne alors :

$$\frac{\Delta\sigma_d}{\Delta\sigma_f} = \frac{\kappa}{f}\frac{\sigma_d}{\mu}\left(\frac{D_d}{D}\right)^{\frac{2}{3}}$$

- $\kappa = \frac{d \ln \hat{K}_d}{d C}$ où $\hat{K}_d$ est l'énergie d'interaction entre les dislocations à zéro Kelvin et C est la concentration linéaire en atomes de soluté le long de la dislocation mobile ;
- f caractérise l'énergie d'interaction de friction entre les solutés et les dislocations mobiles dans le réseau, rapportée à la tension de ligne des dislocations mobiles ;
- D est le coefficient de diffusion des atomes de soluté dans le réseau ;
- D_d est le coefficient de diffusion des atomes de soluté dans les courts-circuits de diffusion, à la jonction entre les dislocations mobiles et les arbres de la forêt.

La sensibilité à la vitesse de déformation comporte alors deux termes en σ_d dont l'un peut être non linéaire (suivant la valeur de m + β). Ainsi, dans le cadre de ce modèle unifié, une

déviation à la linéarité est incompatible avec l'effet de forêt mais peut être expliquée par l'effet de friction. D'un autre côté l'effet de friction ne rend pas compte de la dépendance de la sensibilité à la vitesse envers le taux de déformation, car il suppose une concentration de lacunes qui ne peut pas être atteinte en début d'essai.

Le modèle a été appliqué à des alliages de structures cubique centrée (aciers doux) et cubique à faces centrées (base nickel, Al-Mg, Au-Cu) et en particulier à l'Alliage 600, pour lequel l'effet de forêt semble jouer un rôle important. Des résultats sont également disponibles sur l'effet d'un soluté en insertion (carbone) ou en substitution (chrome) dans le nickel, ainsi que sur l'acier inoxydable austénitique 316L. Ils sont repris ici dans leurs grandes lignes et exposés plus en détail dans l'Annexe B-a_1.

I.3. Nickel et alliages nickel-carbone

Les effets de vieillissement ne sont pas tous détectables dans le nickel pur, contenant moins de 50 ppm de carbone. Les alliages Ni-C y sont en revanche sensibles entre 20 et 280°C, dans des conditions mécaniques telles que leur sensibilité à la vitesse est négative. La modélisation fait intervenir l'interaction entre le carbone en solution solide d'insertion et le durcissement par effet de forêt. Elle reproduit d'une manière satisfaisante les résultats expérimentaux.

I.4. Alliages nickel-chrome

Les mouvements des dislocations sont freinés dans les alliages nickel-chrome par les atomes de chrome en solution solide mais aussi, au moins dans Ni-30Cr, par les zones d'ordre à courte distance. Celles-ci sont détruites par le passage des premières dislocations des empilements, ce qui provoque un adoucissement local. Leur cinétique de formation joue sans doute un rôle important dans les phénomènes de vieillissement de ces alliages, en particulier pour le vieillissement statique qui a également été observé à l'échelle des dislocations.

I.5. Alliage 316L

L'acier inoxydable austénitique 316L (Z3CND17-12) contient des éléments en solution solide d'insertion (C, N) et de substitution (Cr, Ni). Ses propriétés mécaniques sont, à bien des égards, proches de celles de l'Alliage 600, notamment en termes de vieillissement.

Le domaine de manifestation de l'effet PLC a été étudié en traction par Blanc [1986]. Il correspond à l'alternance de deux mécanismes : le traînage des solutés par les dislocations et le mouvement rapide des dislocations en régime de friction.

Delobelle [1993] a étudié les propriétés d'une coulée d'acier 316L (0,03C, 0,075 N). Il a observé un vieillissement statique notable au-dessous de 550°C, qu'il a attribué à une interaction entre dislocations et défauts ponctuels. La sensibilité à la vitesse est négative entre 200 et 550°C et positive en-dehors de ce domaine, sous sollicitations monotones et cycliques. Le matériau semble fluer à la température ambiante, bien que le mécanisme de déformation lente ne soit sans doute pas le même qu'à plus haute température ($T \geq 550°C$).

I.6. Résultats obtenus avec l'Alliage 600

En sollicitations monotones, les résultats disponibles sur l'Alliage 600 sont proches de ceux obtenus avec l'acier 316L. La modélisation des phénomènes de vieillissement dans l'Alliage 600 est tout aussi complexe.

Comme pour les autres alliages base nickel, l'analyse de l'effet des atomes en solution solide d'insertion porte uniquement sur le carbone, à l'exclusion notamment de l'azote. Dans l'Alliage 600, celui-ci est toutefois piégé par le titane sous forme de carbonitrures et ne joue peut-être pas un rôle aussi important que le carbone.

I.6.a. Effet Portevin-Le Chatelier

Le domaine d'apparition de l'effet Portevin-Le Chatelier a été caractérisé par Mulford et Kocks [1979]. La Figure B-3 donne quelques exemples d'écoulement saccadé et la Figure B-4 résume les résultats obtenus en compression dans un diagramme température-vitesse de déformation. L'Alliage 600 étudié contenait 0,4% atomiques de carbone, essentiellement sous la forme de carbures de chrome.

Des résultats analogues, obtenus cette fois en traction, ont récemment été publiés par Hong et coll. [1996]. La coulée étudiée comportait ici 0,02% de carbone en masse, essentiellement sous la forme de carbures de chrome dans les joints de grains. Par rapport à celui établi par Mulford [1979b] en compression, le domaine de manifestation de l'effet PLC est élargi vers les hautes températures et les basses vitesses de déformation. mais l'écart n'est pas significatif car les machines utilisées et le type d'éprouvette ne sont pas les mêmes.

I.6.b. Vieillissement statique

Kocks et coll. [1985] ont caractérisé le vieillissement statique d'une coulée d'Alliage 600, contenant 0,05% de carbone et moins de 0,03% d'oxygène et d'azote, pour une température de 227°C (Figure B-5) ; l'incrément de contrainte au rechargement $\Delta\sigma_a$ est proportionnel à la contrainte d'écoulement ainsi qu'au temps de relaxation t_R élevé à la puissance 2/3.

I.6.c. Sensibilité à la vitesse de déformation

Les deux types d'analyses décrits au I.1. ont été menées sur l'Alliage 600 :

- une analyse en fonction de la contrainte d'écoulement pour comparaison avec les autres phénomènes de vieillissement ;
- une analyse en termes d'aire d'activation pour comparaison avec d'autres alliages base nickel.

Analyse en fonction de la contrainte d'écoulement

Mulford et Kocks [1979] ont déterminé l'évolution de la sensibilité à la vitesse en fonction de la température et de la vitesse de déformation. Ils ont constaté que la sensibilité négative à la vitesse apparaît en même temps que l'effet Portevin-Le Chatelier. A partir de 227°C la sensibilité à la vitesse de déformation peut devenir nulle, puis négative, pour une vitesse de déformation initiale de 10^{-4} s^{-1}. A plus haute température, la sensibilité à la vitesse décroît en début d'écoulement, devient nettement négative, passe par un minimum et peut redevenir positive en fin d'essai. La sensibilité à la vitesse dépend par ailleurs de la vitesse de déformation initiale.

Analyse en termes d'aire d'activation

Mulford [1979] a appliqué au nickel pur et à l'Alliage 600 la méthode d'analyse décrite au I.1., notamment à partir d'essais de sauts de vitesse de déformation. Il a utilisé des résultats expérimentaux acquis dans un vaste domaine de températures : de -173 à +677°C.

Pour les températures inférieures à 227°C les obstacles sont plus sensibles à l'activation thermique que les dislocations. Lorsque la température dépasse 527°C, les obstacles deviennent moins sensibles à la température que les dislocations. Le domaine intermédiaire est difficile à appréhender du fait du fort effet Portevin-Le Chatelier qui perturbe les mesures.

La présence des solutés, qui représentent des barrières au mouvement thermiquement activé des dislocations, déplace les courbes vers le haut par rapport à celle qui est obtenue sur le nickel pur. L'aire d'activation varie en revanche peu avec la contrainte d'écoulement.

I.6.d. Modélisation

Le cas de l'Alliage 600 est un sujet de débats entre les tenants d'un modèle de type Cottrell et les partisans de l'écrouissage par effet de forêt. Les résultats obtenus en vieillissement statique comme en sauts de vitesse sont en effet compatibles avec les deux modèles.

Van Beukel et Kocks [1982] ont admis qu'il n'était pas possible de trancher ; ainsi les forces de friction, théoriquement surtout sensibles dans les alliages cubiques centrés, peuvent jouer un rôle important dans les structures cubiques à faces centrées si l'on considère les éléments en substitution. Une expérience « critique » menée par Kocks et coll. [1985] sur une coulée d'Alliage 600 ne contenant que 50 ppm atomiques de carbone a montré que l'appauvrissement en solutés interstitiels n'affectait pas les propriétés de vieillissement de l'Alliage 600. Celles-ci se manifestent par ailleurs pour des températures plus élevées que dans le cas des alliages nickel-carbone [Mulford et Kocks 1979].

Enfin Hong et coll. [1996] suggèrent que les interactions entre les dislocations et d'éventuels complexes, composés d'atomes de carbone et de solutés en substitution, pourrait également jouer un rôle important mais aucune preuve expérimentale de ce mécanisme ne semble avoir été donnée à ce jour.

En conclusion, un consensus s'est établi autour de deux mécanismes possibles :

- un effet de friction du réseau lié aux éléments en substitution ;
- une modification, par les solutés, de l'interaction entre les dislocations mobiles et les arbres de la forêt.

I.7. Conclusions

Les phénomènes de vieillissement dans les alliages à base nickel ont été étudiés en détail d'un point de vue macroscopique. Il semble que les mécanismes qui en sont responsables ne sont pas les mêmes pour tous ces matériaux :

- le carbone modifie les interactions entre dislocations dans les alliages binaires Ni-C ;
- le chrome modifie l'énergie de faute d'empilement (40 mJ/m^2 pour l'Alliage 690, contre environ 120 mJ/m^2 dans l'Alliage 600 et 200 mJ/m^2 dans le nickel pur [Mulford 1979]) et l'interaction entre les dislocations ; à partir de 30% de chrome apparaissent des zones d'ordre à courte distance qui modifient encore les modes d'écoulement ;
- le cas de l'Alliage 600 est particulièrement complexe ; les différents types de solutés (interstitiels et substitutionnels) sont en effet susceptibles d'intervenir soit sur la friction du réseau, soit sur les interactions entre dislocations. Les résultats expérimentaux ne permettent pas de choisir l'une de ces interactions aux dépens des autres.

Le comportement mécanique de l'Alliage 600 est affecté de plusieurs manières par ces mécanismes et sa caractérisation expérimentale devra prendre en compte l'effet PLC, la sensibilité globalement négative à la vitesse de déformation et le vieillissement statique. Selon la température, ces phénomènes entrent plus ou moins en compétition avec les effets de viscosité (sensibilité positive à la vitesse, relaxation importante des contraintes) qu'ils peuvent même masquer dans certaines conditions. Ils sont généralement associés, à l'échelle microscopique, à un glissement très localisé qui peut entraîner des concentrations de contrainte importantes au voisinage des joints de grains. Une étude des modes de déformation a donc été entreprise, en lien avec la fissuration intergranulaire par corrosion sous contrainte.

II. MODES DE DEFORMATION DE L'ALLIAGE 600

II.1. Déformation dans les grains

Deux types d'études ont abordé les modes de déformation de l'Alliage 600 : l'examen de lames minces tirées d'échantillons déformés et les essais mécaniques in situ dans le MET.

II.1.a. Analyse de lames prélevées dans un matériau déformé

Travaux de l'équipe de Bruemmer

Bruemmer et coll. [1988] ont observé des lames minces prélevées dans des éprouvettes de traction déformées entre 0 et 5% à 300°C. Ils ont comparé deux états métallurgiques de l'Alliage 600, fournis sous la forme de tubes de générateur de vapeur : recuit à 927°C (LMA), caractérisé par une précipitation de carbures de chrome transgranulaires et recuit à 1024°C (HMA), avec un film semi-continu de carbures de chrome dans les joints de grains.

Les deux alliages présentent à l'état de réception une densité de dislocations de l'ordre de 10^{13} m^{-2}. L'analyse des lames minces prélevées sur les éprouvettes de traction conduit aux résultats suivants :

- à 0,3% de déformation les carbures intergranulaires éventuellement présents commencent à émettre des dislocations au voisinage des joints de grains ;

- à 1% de déformation le glissement est encore planaire, il est plus localisé dans le LMA que dans le HMA ; une zone de glissement plus intense, située au voisinage des joints de grains, est observée dans le cas du LMA ;

- à 5% de déformation la déformation est très homogène dans le HMA tandis que l'on voit encore des traces de glissement planaire dans le LMA.

Plus il y a de carbures intergranulaires, plus la déformation devient rapidement homogène.

Travaux de Garriga-Majo

Au cours de sa thèse, Garriga-Majo [1993] a analysé des lames minces provenant d'éprouvettes déformées en traction entre 0 et 20%, à la température ambiante. Il a obtenu les résultats suivants :

- à l'état de réception la déformation n'est pas homogène ; il existe une zone « intergranulaire », d'une épaisseur de 400 nm, dans laquelle l'espacement entre les bandes de glissement est divisé par 5 et le nombre de systèmes activés est plus important qu'au cœur des grains ;

- après 4% de déformation la zone intergranulaire subsiste toujours et le glissement est essentiellement planaire ;

- après 20% de déformation les dislocations sont réparties de manière homogène dans tout le grain mais le glissement reste planaire ; les plans espacés d'environ 20 nm définissent vaguement des cellules.

Le matériau utilisé, prélevé dans un tube de générateur de vapeur recuit à 980°C, présente le même taux de carbone (0,038% en masse) et la même répartition de carbures que le tube LMA de Bruemmer et coll. [1988] évoqué plus haut.

Travaux de Kergaravat

Au cours de sa thèse, Kergaravat [1996] a analysé des lames minces tirées d'éprouvettes de traction, sollicitées à 360°C, à 1% de déformation totale, pour une vitesse de 5,5 10^{-8} s^{-1}. Les échantillons dépourvus de carbures intergranulaires présentent un glissement nettement planaire tandis que la présence de carbures intergranulaires favorise une répartition homogène du glissement ainsi qu'un autre mode de déformation : le « micromaclage ».

Conclusions

Le mode de déformation de l'Alliage 600 en traction dépend de l'état métallurgique du matériau : les carbures intergranulaires sont des sources de dislocations qui contribuent à l'homogénéisation de la déformation. Un matériau dont les carbures sont transgranulaires se déforme par glissement planaire localisé, au moins jusqu'à 20% en traction.

II.1.b. Essais mécaniques réalisés dans le microscope électronique en transmission

Travaux de l'équipe de Bruemmer

Bruemmer et Henager [1986] ont réalisé des essais de traction in situ sur des échantillons d'Alliage 600 contenant 0,03% en masse de carbone. Un traitement thermique de 15 heures à 704°C avait précipité une partie de ce carbone sous forme de carbures de chrome intergranulaires. Les essais ont été réalisés à la température ambiante et à 300°C dans un MET à très haute tension (1000 kV).

Les carbures intergranulaires sont les principales sources de dislocations ; le glissement reste très planaire entre les sites de germination et les joints de grains opposés. Une autre source de dislocations est activée lorsque les carbures intergranulaires et les marches présentes sur les joints de grains bloquent le glissement des dislocations intergranulaires et activent ainsi l'émission dans les grains. Le glissement est souvent transmis d'un grain à l'autre. Les sources de dislocations sont généralement actives de manière intermittente.

Travaux de Garriga-Majo

Garriga-Majo [1993] a réalisé des essais de traction à la température ambiante. Il a également constaté que les carbures intergranulaires sont des sources de dislocations. Les carbures présents à l'intérieur des grains s'opposent au glissement et peuvent imposer en retour des contraintes importantes au niveau des joints de grains.

Lors du passage d'un empilement de dislocations au voisinage d'un joint de grains, le glissement peut être transmis, absorbé ou réfléchi. Dans tous les cas il reste très planaire.

Conclusions

Les essais in situ dans le MET ont confirmé les résultats obtenus sur les lames minces prélevées dans des échantillons déformés en traction :

- les premières sources de dislocations activées au cours de la déformation sont les carbures intergranulaires ou les marches aux joints de grains ; plus ces sources sont nombreuses, plus le glissement peut devenir rapidement homogène ;
- la densité de dislocations est rapidement importante au voisinage des joints de grains ;
- le glissement reste très planaire et s'homogénéise lentement, après plusieurs pour-cent voire plusieurs dizaines de pour-cent de déformation.

Le caractère planaire et fortement localisé de la déformation, en particulier pour les microstructures les plus sensibles à la fissuration intergranulaire, indique que le matériau peut subir des concentrations de contrainte importantes au voisinage des joints de grains. Une attention particulière a donc été portée aux modes de déformation dans ces régions de la microstructure.

II.2. Déformation au voisinage des joints de grains

II.2.a. Etude à l'échelle de la microscopie électronique en transmission

Travaux de Bruemmer

Bruemmer et coll. [1986, 1996] ont montré que les premières sources de dislocations sont situées au voisinage des joints de grains. Les dislocations intergranulaires extrinsèques, issues de l'arrivée de dislocations du réseau sur les joints de grains, glissent dans les joints et sont bloquées par les carbures ou les marches intergranulaires. Les concentrations de contraintes créées par un tel empilement aboutissent à l'émission de dislocations dans les grains voisins. La zone proche des joints de grains s'écrouit ainsi plus tôt et plus vite que le reste du matériau.

A partir d'une température homologue de l'ordre de 0,4 (soit T = 400°C), le glissement intergranulaire commence à opérer, via les dislocations extrinsèques, au-dessus d'une contrainte seuil. Les empilements de dislocations de la matrice peuvent à leur tour créer des marches qui gênent le glissement intergranulaire. Les dislocations d'interface peuvent également faire migrer les joints de grains. L'énergie d'activation estimée est intermédiaire entre les valeurs liées à la diffusion respectivement dans les grains et dans les joints de grains.

Travaux de Kergaravat

Le glissement intergranulaire a été observé directement par Kergaravat [1996] sur des échantillons sollicités à 360°C dans le MET. Des dislocations parfaites, provenant d'un même empilement dans un grain, arrivent à un joint de grains auquel elles sont incorporées les unes après les autres, c'est-à-dire décomposées en produits (dislocations intergranulaires

extrinsèques) qui ne sont pas toujours visibles au MET. La succession de tels événements suppose que les produits de la décomposition s'éloignent les uns des autres à l'intérieur du joint de grains, laissant la place à une nouvelle dislocation venant du grain. Le glissement intergranulaire est alors attribué à ces mouvements de dislocations intergranulaires extrinsèques (DIE).

Kergaravat a également observé des déplacements collectifs de DIE ainsi que des émissions de micromacles à l'aplomb de carbures intergranulaires, par émissions successives de partielles vers l'intérieur des grains. Il a alors proposé un mécanisme de glissement intergranulaire pour l'Alliage 600, qui suit les étapes suivantes :

- la déformation dans les grains est localisée, peut-être à cause de l'énergie de faute d'empilement faible (75 mJ/m^2 d'après ses propres mesures), peut-être à cause de la présence de zones d'ordre à courte distance ;
- les dislocations mobiles parfaites arrivent aux joints de grains dans lesquels elles sont absorbées et décomposées en DIE ;
- les DIE se déplacent dans les joints de grains ;
- la recombinaison de DIE donne éventuellement naissance à des partielles de Shockley, émises dans le grain adjacent, ce qui conduit à la formation de micromacles.

II.2.b. Etude du glissement intergranulaire à l'échelle du microscope électronique à balayage

Le glissement intergranulaire a été étudié au MEB par l'observation de la surface d'éprouvettes équipées de microgrilles et sollicitées en traction ou en fluage. Afin de faciliter l'interprétation des résultats, les échantillons ont généralement été attaqués avant le dépôt des microgrilles. Les joints de grains sont donc légèrement creusés mais aucun auteur n'en tient compte explicitement dans ses analyses.

Garriga-Majo [1993] a effectué des essais de fluage à 360°C dans l'argon sur des éprouvettes tirées de tubes de générateur de vapeur, prédéformées de 20% avant fluage. Quel que soit l'état métallurgique du tube, le glissement intergranulaire se manifeste de manière hétérogène et affecte environ 5% des joints de grains. La plupart des joints concernés font un angle de 30 à 40° avec la contrainte macroscopique de traction.

Kergaravat [1996] a analysé des éprouvettes également tirées de tubes de générateur de vapeur et déformées en fluage. Il a observé des cisaillements, au niveau des joints de grains, sur les échantillons testés à 500°C, 430°C et 360°C. Il remarque cependant qu'à 360°C la vitesse de fluage macroscopique des éprouvettes est inférieure aux incertitudes de mesure de la machine.

Lee et Vermilyea [1971] ont testé en traction lente à 370°C sous hélium purifié des éprouvettes d'Alliage 600 à $1{,}65.10^{-6}$ s^{-1}. Les cisaillements de microgrilles au niveau des joints de grains ont été analysés au MEB. Ils ont été attribués à la présence, près des joints de grains, de zones de glissement intense, d'une épaisseur d'environ 5 µm. Les auteurs ont conclu à l'absence de glissement intergranulaire dans les conditions expérimentales adoptées. Ils ont en

revanche observé une fissuration intergranulaire par cavitation, accélérée par la présence de carbures dans les joints de grains.

Le rôle des carbures intergranulaires est donc controversé lorsque les observations sont faites à l'échelle du MEB. Ils rendent la déformation plus homogène lorsque le glissement intergranulaire n'est pas activé mais peuvent également constituer des sites potentiels de germination de cavités en fluage lorsque le glissement intergranulaire devient significatif. La présence du glissement intergranulaire ne fait d'ailleurs pas l'unanimité pour les températures d'essai inférieures à 400°C. Seul Kergaravat [1996] le relie explicitement à la fissuration par corrosion sous contrainte.

II.3. Conclusions

L'analyse des modes de déformation de l'Alliage 600 a conduit aux conclusions suivantes :

- le glissement dans les grains est activé par les carbures intergranulaires qui contribuent à une déformation homogène ; ceci est cohérent avec le rôle bénéfique généralement reconnu à ces carbures vis-à-vis de la résistance de l'Alliage 600 à la corrosion sous contrainte dans le milieu primaire ;

- le glissement est planaire au moins pour les premiers pour-cent de déformation imposée en traction ;

- la densité de dislocations est plus importante au voisinage des joints de grains qu'au cœur des grains, quelles que soient les sources qui sont activées les premières ;

- le glissement intergranulaire est observé au MET à partir de $T = 0,4\ T_F$ où T_F est la température de fusion de l'alliage ; il est assuré par les mouvements de dislocations extrinsèques ; il est observé au MEB après traction sur des échantillons testés dans l'argon et dans le milieu primaire ; il n'est en revanche pas observé en traction lente dans l'hélium à 370°C.

Les modes de déformation de l'Alliage 600 sont donc étroitement liés à la microstructure du matériau. Ils peuvent notamment, en l'absence de carbures de chrome intergranulaires, induire de sévères concentrations de contrainte au niveau des joints de grains. La présence d'une « zone affectée par la présence du joint », plus écrouie que le cœur des grains, montre qu'à l'échelle du grain le matériau n'est pas homogène en termes de comportement mécanique.

III. PROPRIETES EN FLUAGE DE L'ALLIAGE 600 ET DES ALLIAGES NI-CR-FE-C ULTRA-PURS

Nous commencerons par rappeler les données fondamentales disponibles sur des alliages base nickel chimiquement proches de l'Alliage 600, avant d'aborder le cas d'alliages modèles Ni-Cr-Fe-C et de coulées industrielles des Alliages 600 et 690.

III.1. Données fondamentales sur le fluage d'alliages proches de l'Alliage 600

III.1.a. Cartes de modes de déformation

Le fluage de l'Alliage 600 a été peu étudié d'un point de vue fondamental. Les résultats les plus proches de notre étude ont été réunis par Frost et Ashby [1982] sur deux alliages nickel-chrome à 10 et 20% de chrome (Figures B-6 et B-7). Les deux cartes de modes de déformation sont proches l'une de l'autre et les teneurs en chrome de ces deux alliages encadrent celle de l'Alliage 600.

Dans les conditions d'utilisation en service comme pour les essais accélérés au laboratoire, les températures sont généralement comprises entre 300 et 400°C, c'est-à-dire entre 0,34 fois et 0,40 fois la température de fusion de l'Alliage 600 (1400°C). Les vitesses de déformation imposées sont comprises entre 10^{-9} et 10^{-5} s^{-1}. Le matériau est donc sollicité dans le domaine du fluage à basse température, repéré « power-law creep » sur les cartes d'Ashby.

III.1.b. Cartes de mode de rupture

Ashby et coll. [1979] ont construit des cartes de modes de rupture pour un certain nombre d'alliages base nickel, dont le Nichrome Ni-20Cr.

La Figure B-8 montre une carte obtenue pour le Nichrome Ni-20Cr. On constate que pour une contrainte de quelques centaines de MPa à 300°C on est à la frontière entre la rupture transgranulaire et la rupture intergranulaire. Le mécanisme de rupture et le temps à rupture dépendent a priori étroitement de la température et de la contrainte imposée. La Figure B-9 est établie à partir des mêmes données que la Figure B-8 ; on ne dispose pas de résultats expérimentaux dans le domaine de température compris entre 0,3 et 0,4 fois la température de fusion.

III.1.c. Conclusions

Peu d'études ont été menées sur les alliages nickel-chrome proches de l'Alliage 600 pour des températures comprises entre 300 et 400°C. On ne dispose d'aucune donnée en ce qui concerne les mécanismes de rupture. Il est en revanche probable que la vitesse de déformation stationnaire en fluage est une fonction puissance de la contrainte (power-law creep).

Les études entreprises sur l'Alliage 600 à la suite des premières fissurations en centrale ont porté sur les lois et les mécanismes de fluage. Comme il est impossible à l'heure actuelle d'introduire une extensométrie précise dans le milieu primaire, les premiers essais ont été effectués dans un milieu chimiquement peu agressif (air ou argon).

III.2. Fluage des alliages Ni-Cr-Fe-C ultra-purs en milieu inerte

La plupart des travaux de l'équipe de Was cités ici ont porté sur des alliages Ni-17Cr-9Fe-C, dont la composition chimique est proche de celle de l'Alliage 600 ; ces matériaux ultra-purs ont été sollicités en fluage dans l'argon entre 350 et 430°C. La taille de grains est généralement élevée (de l'ordre de 100 µm) et les éprouvettes ont été écrouies par compression latérale avant les essais. L'accent a été mis sur les effets de composition chimique, de microstructure et de taille de grains.

III.2.a. Effet de la composition chimique globale

Deux éléments ont été considérés en particulier, le carbone et le chrome. Des essais ont donc été effectués sur des échantillons Ni-Cr-Fe ultra-purs contenant plus ou moins de carbone (jusqu'à 300 ppm en masse) et sur des échantillons contenant 5, 17 ou 30% de chrome.

Fluage de l'alliage Ni-17Cr-9Fe ultra-pur

Sung et coll. [1992] ont obtenu des courbes de fluage sur l'alliage Ni-17Cr-9Fe ultra-pur (20 ppm de carbone) dans l'argon purifié, entre 360 et 430°C. L'influence de la contrainte a été mesurée par des essais de saut de charge. Angeliu et Was [1994] ont par ailleurs montré que la mesure de la vitesse de fluage stationnaire était reproductible.

La modélisation fait intervenir soit une loi puissance, soit une loi exponentielle [Sung 1992] : dans les conditions d'essai les rapports $\dot{\varepsilon}/D$ (D coefficient de diffusion dans le nickel) et σ/μ sont dans le domaine de transition entre les deux lois.

- le lissage par la loi exponentielle donne à 400°C :

$$\dot{\varepsilon}\left(s^{-1}\right) = 4{,}68.10^{-13} \exp(2{,}17\ .10^{-2}\ \sigma)$$ où σ est en MPa [Sung 1992] ;

- le lissage par une loi puissance donne un exposant en contrainte voisin de 9 [Was 1992b et Sung 1992].

La déformation est produite par fluage dislocation ; dans les deux cas elle dépend étroitement du niveau de la contrainte appliquée. L'énergie d'activation déterminée à 510 MPa entre 360 et 430°C est de 220 kJ/mol, elle est voisine de l'énergie d'activation de la diffusion du nickel et du chrome dans l'alliage Ni-20Cr [Sung 1992].

Effet de la teneur en carbone

La Figure B-10 montre que l'ajout de quelques dizaines de ppm de carbone abaisse considérablement la vitesse de fluage stationnaire des alliages Ni-Cr-Fe ultra-purs [Sung 1992]. Celle-ci chute d'un facteur 2000 lorsque l'on passe de 20 à 320 ppm de carbone, entièrement remis en solution dans les deux cas. L'alliage contenant 320 ppm de carbone

présente de plus un effet Portevin-Le Chatelier très marqué en compression lente, à vitesse de déformation imposée.

L'effet du carbone sur le mode de rupture est le même en traction lente et en fluage : l'alliage ultra-pur rompt par cavitation intergranulaire mais le carbone fait disparaître la rupture intergranulaire au profit d'un faciès entièrement ductile.

Hertzberg et Was [1995b] ont montré par ailleurs (voir Présentation des matériaux) que le carbone en solution fait chuter le coefficient d'autodiffusion intergranulaire de plusieurs ordres de grandeur, limitant ainsi le glissement et la cavitation dans les joints de grains.

Effet de la teneur en chrome

Le passage de 5 à 17% de chrome en masse entraîne une diminution importante de la vitesse de fluage stationnaire sur les alliages ultra-purs, contenant moins de 20 ppm de carbone (Figure B-11) [Sung 1992]. Cet effet est moins accentué lorsque l'on passe de 17 à 30% de chrome, c'est-à-dire d'une composition proche de celle de l'Alliage 600 à une composition proche de celle de l'Alliage 690.

Mécanismes de fluage

L'étude des mécanismes de déformation en fluage [Was 1996] a montré que plus de 80% de la déformation mesurée était due au fluage dislocation à l'intérieur des grains. Angeliu et Was [1994] attribuent l'action bénéfique du chrome à la réduction de l'énergie de faute d'empilement. Les dislocations sont alors davantage dissociées et les mécanismes de déformation par montée ou par glissement dévié, propres au fluage, sont plus difficiles à activer. Selon les mêmes auteurs, il est possible que le carbone agisse également sur les dislocations mobiles et freine le fluage à l'intérieur des grains.

La présence de cavités intergranulaires de plus d'un micromètre de rayon dans les alliages à faible teneur en carbone sollicités en fluage a conduit à l'élaboration d'un modèle de cumul d'endommagement propre à ces matériaux [Angeliu 1994], qui ne s'applique certainement pas directement au cas de l'Alliage 600 plus riche en carbone.

III.2.b. Effet de la microstructure

L'alliage Ni-17Cr-9Fe-320ppmC a été testé en fluage après différents traitements thermiques visant à précipiter une partie du carbone en solution sous forme de carbures de chrome intergranulaires [Sung 1992]. La présence des carbures et l'appauvrissement en chrome qui en résulte dans les joints de grains influence peu la vitesse de fluage stationnaire.

La répartition des carbures de chrome joue un rôle important dans la sensibilité de l'Alliage 600 à la corrosion sous contrainte dans le milieu primaire. Son rôle en fluage semble nettement plus limité, du moins dans un milieu chimiquement inerte comme l'argon qui est utilisé ici.

III.2.c. Effet de la taille de grains

Les études précédemment citées ont toutes porté sur des alliages à gros grains (au moins 100 µm), correspondant aux cartes d'Ashby (Figures B-6 et B-7). Pour se rapprocher de l'Alliage 600 utilisé dans l'industrie nucléaire, Hertzberg et Was [1995a] ont utilisé un alliage à petits grains (35 µm) non écroui.

Pour l'alliage à petits grains l'effet du carbone dépend de la répartition de celui-ci entre la solution solide et les carbures de chrome. Ainsi les essais de fluage dans l'argon à 360°C, sous 475 à 520 MPa durant 100 heures ont donné les résultats suivants :

- un alliage à 65 ppm de carbone sans carbure ne flue pas ;
- le même alliage comportant de plus des carbures intergranulaires commence par fluer lentement (3.10^{-9} s^{-1} pendant 200 h) puis la déformation cesse et l'alliage ne se remet pas à fluer si l'on augmente ensuite la contrainte imposée ;
- un alliage dépourvu de carbone présente une courbe de fluage « classique » avec un stade primaire et un fluage stationnaire à 4.10^{-8} s^{-1}.

Aucune courbe expérimentale de fluage n'a cependant été présentée dans la publication.

III.2.d. Conclusions

L'étude du comportement en fluage des alliages quaternaires Ni-Cr-Fe-C ultra-purs, dont la composition chimique est proche de celle de l'Alliage 600, a montré que la présence de quelques centaines de ppm de carbone suffit pour inhiber la cavitation intergranulaire et faire chuter la vitesse de fluage stationnaire de plusieurs ordres de grandeur à 360°C. Le chrome a le même effet, dans une moindre mesure.

La déformation viscoplastique de ces alliages entre 300 et 400°C est essentiellement assurée par les mouvements thermiquement activés des dislocations dans les grains. Le glissement intergranulaire et la cavitation ne rendent compte que de quelques pour-cent de la déformation totale.

III.3. Fluage de l'Alliage 600

L'Alliage 600 a été caractérisé en fluage pour deux domaines d'application : les récipients sous pression à haute température et les pièces au contact du milieu primaire des réacteurs à eau sous pression.

III.3.a. Fluage de l'Alliage 600 à haute température sous sollicitations multiaxiales

Kennedy et coll. [1959] ont sollicité des tubes minces d'Alliage 600 en traction-compression-pression interne, en appliquant des chargements proportionnels pour diverses valeurs du

rapport entre les contraintes axiale et orthoradiale. Les essais ont eu lieu dans l'argon à 816°C, avec une coulée contenant 0,03% de carbone en masse, entièrement en solution solide. Les contraintes principales maximales, de 21 à 34 MPa, correspondent sur les cartes d'Ashby au domaine du fluage dislocation (Figures B-6 et B-7).

Le fluage en traction uniaxiale suit une loi de Norton avec un exposant de 6, qui correspond bien à un mécanisme de fluage dislocation. En sollicitations multiaxiales et au bout de 2% de déformation viscoplastique cumulée, la vitesse de déformation et le temps à rupture sont gouvernés par la contrainte équivalente, au sens de Tresca ou de Von Misès. Huddleston [1993] a repris l'ensemble de ces données. Il a mis au point une expression de la contrainte équivalente qui rend compte du rôle de la contrainte hydrostatique lorsqu'il existe une contrainte principale de compression ; cette influence peut s'expliquer par le fait que la rupture se produit par cavitation. Huddleston admet cependant que lorsque la contrainte hydrostatique est positive les critères de Tresca et de Von Misès rendent compte des résultats expérimentaux.

III.3.b. Fluage de l'Alliage 600 au-dessous de 400°C

Les propriétés de l'Alliage 600 en fluage, dans ce domaine de température, ont été notamment caractérisées dans le cadre des thèses de Garriga-Majo [1993] et de Boursier [1993a]. Les essais ont été effectués sur des éprouvettes prélevées dans des tubes de générateur de vapeur ; elles ont été testées en l'état ou après polissage électrolytique.

Les vitesses de fluage ont été représentées soit en fonction du temps, soit en fonction de la contrainte appliquée. Une seule courbe de Boursier [1993a] montre cependant l'ensemble des points expérimentaux ; les autres représentent les tendances moyennes obtenues par lissage et ne rendent pas compte d'une éventuelle dispersion des résultats.

Pour la plupart des essais la rupture a lieu avant que l'éprouvette ait atteint le fluage stationnaire [Boursier 1993a]. Boursier a alors représenté la vitesse de fluage sous la forme d'une loi puissance en contrainte mais aussi en temps. Il rappelle une loi valable pour les deux tubes utilisés : $\dot{\varepsilon} = K.\sigma^n.t^m$ où $n = 2,76$ et $m = -0,47$ à 350°C.

Kergaravat [1996] a fait fluer des éprouvettes, également prélevées dans des tubes de générateur de vapeur, entre 360 et 500°C. Il a constaté que la vitesse de fluage à 360°C était inférieure aux incertitudes de mesure de la machine.

III.4. Conclusions

Les essais effectués sur des alliages quaternaires Ni-Cr-9Fe-C et sur l'Alliage 600 ont montré, en accord avec les cartes d'Ashby sur les alliages nickel-chrome, que ces matériaux sont susceptibles de fluer entre 300 et 400°C en milieu « inerte », mais avec des vitesses de déformation très faibles, de l'ordre de 10^{-8} s^{-1}, qui peuvent être inférieures aux capacités de mesure des appareils.

La vitesse de fluage est contrôlée par les mouvements thermiquement activés des dislocations dans le cœur des grains, avec un fort exposant en contrainte lorsque l'on arrive à produire du

fluage stationnaire. Dans le cas de l'Alliage 600 la vitesse de fluage entre 300 et 400°C est très faible ; elle n'est pas constante et dépend du temps selon une loi quasiment parabolique. On verra par la suite que cette déformation très lente pourrait cependant, en contribuant à la déformation totale, se montrer endommageante pour les joints de grains si elle est activée par les effets d'environnement.

IV. DEMARCHE ADOPTEE

Au cours de ce travail, le comportement mécanique de l'Alliage 600 a été abordé d'un point de vue strictement phénoménologique, à l'aide d'outils et de modèles qui considèrent le matériau comme un ensemble de petits « éléments de volume » qui possèdent tous les mêmes propriétés mécaniques. Dans ce paragraphe sont présentés la démarche adoptée ainsi que les domaines de température et de vitesse de déformation qui ont été choisis.

IV.1. Démarche « élément de volume »

La première étape de l'étude du comportement mécanique de l'Alliage 600 a consisté à choisir une méthode d'investigation expérimentale dont les résultats soient aussi simples que possible à analyser, de manière à découpler la détermination du comportement et le calcul de structure.

Pour caractériser le comportement mécanique de l'Alliage 600, nous avons cherché à nous affranchir au maximum de l'effet de la géométrie des éprouvettes, afin de caractériser le matériau indépendamment de telle ou telle structure. Les éprouvettes utilisées sont axisymétriques et lisses, d'une taille nettement plus élevée que les grandeurs caractéristiques moyennes de la microstructure. Ainsi une éprouvette de traction de diamètre 4 mm contient en moyenne 2.10^4 grains et une éprouvette de fatigue oligocyclique, de diamètre 8 mm, contient en moyenne 8.10^4 grains dans la section utile.

Au cours de l'analyse des résultats expérimentaux, les contraintes et les déformations sont considérées comme homogènes dans la partie utile de l'éprouvette ; celle-ci peut dès lors être considérée comme un élément de volume, au sens de la mécanique des milieux continus. A l'intérieur de cet élément de volume les champs de contraintes et de déformations sont constants. C'est le comportement de cet élément de volume qui est ensuite implanté dans le code pour les calculs de structure.

L'aspect triaxial du comportement n'a pas été abordé du point de vue expérimental. Tous les essais de comportement et la modélisation ont été réalisés pour des sollicitations de traction-compression uniaxiales. On s'est ensuite appuyé sur les résultats obtenus en fluage à haute température pour décrire les surfaces de charge, dans l'espace des contraintes, par le critère de Von Misès.

IV.2. Domaine de température exploré

Trois domaines de température ont été étudiés afin de correspondre aux trois domaines de sollicitation de l'Alliage 600 rencontrés en service et au laboratoire :

- la température ambiante correspond à la mise en forme des éprouvettes de corrosion sous contrainte de type « déplacement imposé » telles que les selles de cheval, les U-Bends et les C-Rings, ainsi qu'aux traitements de préécrouissage parfois imposés aux éprouvettes de traction lente pour augmenter leur sensibilité à la fissuration dans le milieu primaire ;

- le domaine 300-400°C ; la valeur de 300°C est proche du seuil bas rencontré en service et habituellement fixé pour les essais de corrosion sous contrainte au laboratoire (290°C) ; 340 et 360°C sont des valeurs courantes pour les essais de laboratoire dans le milieu primaire ; 400°C correspondent aux essais en vapeur surchauffée ;

- le domaine 550-600°C correspond au traitement thermique de détensionnement des soudures sur les manchettes d'adaptateur et au début d'une perte de ductilité sous air, caractéristique des alliages base nickel, qui sera examinée plus en détail avec la fissuration à haute température.

La base expérimentale a été constituée pour des valeurs de la température égales à 20, 360, 400, 550 et 600°C. La modélisation « une phase » a été mise en œuvre pour la plupart de ces valeurs. Les calculs de structure ont été menés à 360 et 550°C, valeurs représentatives de l'ensemble des essais de propagation de fissure (Tableau B-1).

T (°C)	25	300	340	360	400	550	600
données expérimentales sur le comportement mécanique	+	+	+	+	+	+	+
modélisation « une phase »	+	+	-	+	+	+	+
essais de propagation de fissure sur CT (pour mémoire)	-	(320°C)		-	+	+	-
calcul de structure sur CT	-	-	-	+	-	+	-

Tableau B-1 : Etude du comportement de l'Alliage 600 en fonction de la température

IV.3. Domaine de vitesse de déformation exploré

La plupart des essais de corrosion sous contrainte sont effectués pour des vitesses de déformation faibles, de l'ordre de 10^{-9} à 10^{-6} s^{-1}, en traction ou en fluage. Les vitesses de déformation locale en pointe de fissure de corrosion sous contrainte sont sans doute plus élevées. La présente étude a porté sur un intervalle de valeurs de la vitesse de déformation comprises entre 10^{-5} et 10^{-3} s^{-1}, afin de pouvoir réaliser en fatigue, dans des délais raisonnables, un nombre suffisant de cycles pour accéder au comportement cyclique stabilisé du matériau. Le facteur 100 entre les valeurs extrêmes est en principe suffisant pour évaluer la sensibilité du matériau à la vitesse. 10^{-5} s^{-1} est une valeur proche de celles utilisées en traction lente tandis que 10^{-3} s^{-1} est caractéristique de l'étape de prédéformation des éprouvettes de corrosion sous contrainte « à déplacement imposé ».

IV.4. Conclusions

La démarche phénoménologique adoptée au cours de cette étude est complémentaire des approches plus physiques utilisées par la plupart des auteurs. Elle permet l'acquisition systématique et la modélisation des données de comportement relatives à l'Alliage 600, en vue du calcul de structure. Celui-ci fournit en retour le chargement mécanique local en pointe de fissure, qui peut ensuite être intégré à des modèles de rupture qui s'appuient sur des mécanismes physiques connus. Il constitue également un outil capable de simuler, à travers le modèle de comportement ou des critères d'endommagement, l'influence de l'environnement et des caractéristiques métallurgiques sur les sollicitations locales et donc sur la propagation de fissure par corrosion sous contrainte.

CHAPITRE B-2 :
COMPORTEMENT MECANIQUE DE L'ALLIAGE 600
ETUDE EXPERIMENTALE

Ce chapitre est consacré à l'étude expérimentale du comportement mécanique de l'Alliage 600 (coulée A) pour des sollicitations a priori proches de celles qu'il subit lors des essais de propagation de fissure :

- la traction, imposée lors de la mise en charge, le matériau subissant des déformations importantes en pointe de fissure ;

- la fatigue avec ou sans temps de maintien à la charge maximale, rencontrée lors des cycles imposés durant le reste de l'essai.

Le confinement de la plasticité à la pointe de la fissure implique que l'éprouvette CT reste globalement élastique et impose de fait la déformation à la frontière de la zone (visco)plastique, même lorsque le chargement macroscopique est réalisé à force imposée. Le matériau en pointe de fissure subit donc des cycles de fatigue et de fatigue-relaxation pilotés par la déformation de l'ensemble de la structure. Cette considération a été vérifiée a posteriori au cours des calculs de structure.

Le matériau a donc été caractérisé en traction, en fatigue oligocyclique et en fatigue-relaxation. Quelques essais de fatigue-fluage ont également été effectués à 300 et à 360°C pour évaluer le comportement de l'Alliage 600 en fluage après une déformation de fatigue.

I. PRESENTATION DES ESSAIS

I.1. Essais de traction

Les essais de traction ont été effectués à l'aide d'une machine à vérin électromécanique de type ZWICK 1474, sur des éprouvettes axisymétriques lisses. Celles-ci ont été prélevées parallèlement à l'axe de symétrie de la manchette A (Figure B-12). La vitesse imposée pour le déplacement de la traverse, égale à 1,5 mm/min., correspond à une vitesse de déformation initiale de $1.04\ 10^{-3}\ s^{-1}$ pour une longueur utile initiale de 24 mm.

Le chauffage a été assuré par un four à radiation à deux lobes, piloté par un thermocouple chromel-alumel ligaturé sur le fût de l'éprouvette. Un second thermocouple également ligaturé a servi de contrôle pour chaque essai.

Deux grandeurs ont été enregistrées au cours des essais :

- la charge, mesurée par une cellule de capacité 100 kN ;
- le déplacement de deux points de la partie utile de l'éprouvette, repérés par les pointes de cannes d'alumine plaquées sur le fût et solidaires d'un capteur à lames ; la base de mesure de cet extensomètre, déterminée au début de chaque essai, était de l'ordre de 10 mm.

Les courbes de traction représentées sur les figures ne font apparaître que l'évolution des contraintes relatives à la déformation uniformément répartie, c'est-à-dire avant le début de la striction.

La détermination des propriétés en traction a été complétée par l'expertise des éprouvettes afin de déterminer le mode de rupture, notamment aux plus hautes températures pour lesquelles une baisse de la ductilité a été observée.

Le Tableau B-2 montre le plan d'expérience. Les essais ont été doublés à 550 et à 600°C afin de vérifier la reproductibilité des caractéristiques mécaniques et des modes de rupture observés à haute température.

T (°C)	25	300	340	360	400	550	600
repères éprouvettes	T1	T4	T7	T2, T9, T10	T8	T3, T5	T6, T11

Tableau B-2 : Plan d'expérience adopté pour les essais de traction

I.2. Essais cycliques

I.2.a. Géométrie et prélèvement des éprouvettes

Le comportement cyclique de l'Alliage 600 a été étudié sur des éprouvettes axisymétriques lisses, prélevées selon le schéma de la Figure B-13. La partie utile a une longueur de 12,5 mm et un diamètre d'environ 8 mm qui est mesuré au projecteur de profil pour chaque éprouvette, afin de calculer les contraintes le plus précisément possible à partir de la section initiale, en tenant compte le cas échéant de la dilatation thermique.

Il convient de respecter parfaitement le parallélisme des deux faces extrêmes de l'éprouvette si on veut éviter le flambage en compression, il a donc fallu les rectifier pour assurer une transmission correcte des efforts. Pour la même raison, l'alignement des axes de symétrie respectifs des têtes et de la partie utile a été vérifié au projecteur de profil, sachant qu'un décalage de quelques centièmes de millimètre rend tout essai mécanique impossible, même dans le domaine d'élasticité. La surface de la partie utile a également été rectifiée afin d'éliminer les défauts de surface et de prévenir tout risque de rupture prématurée des éprouvettes.

I.2.b. Machine d'essai et système d'amarrage

Les essais ont été effectués sur une machine servohydraulique MTS 810 d'une capacité de 100 kN, sur laquelle on peut piloter la charge, le déplacement du vérin ou l'écartement des lames d'un extensomètre.

Nous avons choisi d'imposer au moyen de l'extensomètre une vitesse de déformation constante, ce qui évite les imprécisions liées à la liaison vérin-lignes-éprouvette dans la détermination des domaines d'élasticité. Le calcul de la vitesse de déformation de la partie utile est en outre plus fiable et plus aisé.

La liaison entre l'éprouvette et les lignes d'amarrage doit permettre de transmettre sans à-coup une succession d'efforts de traction et de compression. Elle doit donc être sans jeu. La Figure B-14 illustre le système utilisé. L'effort de compression est directement exercé par le fond de la ligne sur la face extrême de l'éprouvette. L'effort de traction est transmis par un écrou aux deux demi-coquilles dans lesquelles est montée la tête d'éprouvette. Le serrage de l'écrou doit donc être suffisant pour supprimer tout jeu dans la liaison.

Le choix d'un tel système permet d'éviter l'emploi d'un filetage et donc le risque d'introduire des composantes de flexion lors de l'essai. L'ensemble est aisé à démonter, même après un séjour de plusieurs heures en température. Par ailleurs la mobilité du vérin en rotation évite toute application d'un effort de torsion au serrage ou en cours d'essai.

L'alignement du système d'amarrage a été réalisé en fixant une éprouvette factice de forte section aux lignes d'amarrage ; on utilise le même système de fixation qu'auparavant en évitant toujours d'introduire, par des filetages, des composantes de flexion. On fait alors fondre par effet Joule le métal de Wood dans lequel est plongée la ligne inférieure et l'ensemble lignes + éprouvette s'aligne parfaitement sous son propre poids. Le métal est ensuite de nouveau solidifié.

Les essais en température ont fait appel à un four à radiation, à trois zones et quatre lobes, piloté par trois thermocouples soudés par point sur l'éprouvette. Le gradient de température le long de celle-ci est resté inférieur au degré tout au long des essais.

I.2.c. Extensométrie

Le pilotage de la machine par un extensomètre exige que le système soit fiable, reste bien fixé à l'éprouvette tout au long de l'essai et ne présente pas de dérive liée par exemple à des effets thermiques.

Nous avons utilisé un capteur à lames MTS, prolongé par deux cannes d'alumine qui peuvent pénétrer dans le four et faire des mesures en température. Un système de levier et de ressorts permet la liaison entre le capteur et les cannes qui sont plaquées sur la partie utile de l'éprouvette. La base de mesure, c'est-à-dire ici l'écartement entre les cannes, est de l'ordre de 12,5 mm. Le système de levier inverse le signe du signal : lorsque les cannes d'alumine s'écartent, les lames du capteur se resserrent. La position de l'articulation est telle que :

$$\Delta l_{capteur} \approx -2\ \Delta l_{cannes}$$

La Figure B-15 montre une photographie du dispositif (avec le four ouvert) et un schéma de principe de l'ensemble. La sensibilité de l'extensomètre, de l'ordre de 40 µm par volt, assure une précision relative supérieure à 0,1%. Elle a été étalonnée, ainsi que le zéro électrique, pour chaque campagne d'essais.

I.2.d. Déroulement des essais

Sur l'ensemble de l'étude, le cycle adopté est triangulaire et symétrique, c'est-à-dire que la vitesse de déformation est constante en valeur absolue et $\varepsilon_{min} = -\varepsilon_{max}$ (soit $R_\varepsilon = -1$).

La courbe d'écrouissage cyclique a été construite à 10^{-3} s^{-1} avec une éprouvette par température, en procédant par séquences. On impose une série continue de cycles à ±0,2% de déformation totale imposée, on attend la stabilisation de la réponse du matériau en contrainte et on arrête la machine à la fin d'un cycle stabilisé, c'est-à-dire lorsque la déformation revient à zéro après un passage en compression. On maintient la déformation égale à zéro durant quelques minutes, le temps de programmer la machine pour la séquence suivante. On impose ainsi une séquence à ±0,2% et trois autres respectivement à ±0,3%, ±0,5% et ±0,7% ; on a ajouté une séquence à ±0,9% à 25°C.

Après la construction de la courbe d'écrouissage cyclique, qui réunit les pointes supérieures des cycles stabilisés, d'autres conditions de chargement ont été testées sur la même éprouvette. En revenant de temps à autre à des conditions déjà explorées, on a montré que les cycles stabilisés sont insensibles à l'histoire du chargement, ce qui justifie a posteriori le choix d'une seule éprouvette par température.

Des conditions expérimentales un peu différentes ont été appliquées pour des essais complémentaires, notamment des cycles interrompus en contrôlant la déformation (fatigue-relaxation) ou la charge (fatigue-fluage), ainsi qu'une exploration du couplage entre l'écrouissage monotone obtenu en traction et l'écrouissage cyclique.

I.3. Plan d'expérience

Le Tableau B-3 montre la matrice des essais effectués. Il ne mentionne que les éprouvettes qui ont servi à construire les courbes d'écrouissage cyclique.

T (°C)	éprouvette	essais : $\Delta\varepsilon/2$ (%)	étude
25	F1	0,2 0,3 0,5 0,7 0,9 à 10^{-3} s^{-1}	écrouissage cyclique
300	F2	0,2 0,3 0,5 0,7 à 10^{-3} s^{-1} relaxation 300°C - 650°C - 300°C 0,7 0,5 0,3 0,2 0,3 0,2 à 10^{-3} s^{-1}	écrouissage cyclique relaxation trajet de chargement
340	FC1*	0,2 0,3 0,5 0,7 à 10^{-3} s^{-1}	écrouissage cyclique
340	FC2*	0,2 0,3 0,5 0,7 à 10^{-5} s^{-1}	écrouissage cyclique et vitesse de déformation
360	F7	0,2 0,3 0,5 0,7 à 10^{-3} s^{-1} 0,5 0,3 0,2 à 10^{-3} s^{-1} 0,2 0,3 0,5 0,7 à 10^{-5} s^{-1} 0,7 à 10^{-3} s^{-1}	écrouissage cyclique trajet de chargement vitesse de déformation vitesse de déformation et effet d'histoire
400	F5	0,2 0,3 0,5 0,7 à 10^{-3} s^{-1} 0,5 0,3 0,2 à 10^{-3} s^{-1} 0,2 0,3 0,5 0,7 à 10^{-3} s^{-1} relaxation 1 h à 400°C 0,7 à 10^{-5} s^{-1} 0,7 à 10^{-3} s^{-1}	écrouissage cyclique trajet de chargement trajet de chargement relaxation vitesse de déformation vitesse de déformation et effet d'histoire
550	F11'	0,2 0,3 0,5 0,7 à 10^{-3} s^{-1} 0,5 à 10^{-3}, 10^{-4} et 2.10^{-5} s^{-1}	écrouissage cyclique vitesse de déformation et effet d'histoire
600	F9'	0,2 0,3 0,5 0,7 à 10^{-3} s^{-1} 0,5 à 10^{-3} s^{-1} , relax. 20 à 1200 s 0,5 à 10^{-5}, 10^{-4}, 3.10^{-4}, 6.10^{-4} s^{-1} 0,7 à 10^{-5}, 10^{-4}, 3.10^{-4}, 6.10^{-4} s^{-1} 0,7 à 10^{-3} s^{-1} , relax. 20 à 1200 s	écrouissage cyclique relaxation vitesse de déformation vitesse de déformation relaxation

* éprouvettes usinées dans une autre découpe de la même manchette d'adaptateur

Tableau B-3 : Plan d'expérience adopté pour les essais cycliques

Une seule vitesse de sollicitation, égale à 10^{-3} s^{-1}, a été utilisée à la température ambiante et à 300°C. L'écrouissage cyclique est comparé à l'écrouissage monotone, mesuré en traction, dans les mêmes conditions expérimentales, sur une éprouvette de la même géométrie.

Entre 340 et 400°C, les effets de vitesse ont été étudiés par des essais à 10^{-5} et 10^{-3} s^{-1}. La vitesse la plus faible se rapproche des essais de traction lente tandis que la plus élevée correspond à notre référence, en traction comme en fatigue. La viscosité du matériau a été évaluée par des essais de fatigue-relaxation (avec exploration du domaine d'élasticité au déchargement et au rechargement) et de fatigue-fluage.

A partir de 550°C l'Alliage 600 devient plus visqueux et seuls les effets de vitesse et les propriétés en relaxation ont été étudiés.

Le Tableau B-4 résume les domaines de température pour lesquels les différents aspects du comportement mécanique de l'Alliage 600 ont été abordés.

phénomène	écrouissage monotone	écrouissage cyclique	effets de vitesse	vieillissement statique et dynamique	relaxation	fluage
domaine d'étude (°C)	25 à 600	25 à 600	340 à 600	25 à 600	300, 360 à 600	300 et 360

Tableau B-4 : Domaines d'étude expérimentale du comportement de l'Alliage 600

II. PROPRIETES MECANIQUES DE L'ALLIAGE 600 A LA TEMPERATURE AMBIANTE

Nous présentons ici les résultats obtenus en traction et en fatigue, en introduisant au fur et à mesure les concepts sur lesquels repose le dépouillement, qui seront repris ensuite pour la modélisation.

II.1. Comportement en traction

La Figure B-16 et le Tableau B-5 résument les propriétés de l'Alliage 600 en traction à la température ambiante. On note une capacité d'écrouissage importante. La rupture est ductile, en cône et cratère, avec des carbonitrures de titane au fond des gros cupules et des carbures de chrome au fond des petits.

La limite d'élasticité est élevée pour un matériau durci par effet de solution solide mais la manchette d'adaptateur est écrouie et comporte, dès avant les essais, de nombreuses dislocations (voir A-III-5).

propriété	Re (MPa)	$Rp_{0,2\%}$ (MPa)	Rm (MPa)	Allongement max. réparti	Allongement à rupture	Striction	$Rm/Rp_{0,2\%}$	N
éprouvette T1	428	438	679	27%	36%	69%	1,59	0,06
essais de recette	---	410	708	---	35%	61%	1,73	---

Tableau B-5 : Caractéristiques de l'Alliage 600 en traction à 25°C

Le coefficient d'écrouissage N est obtenu en assimilant la relation entre la contrainte et la déformation inélastique à une loi puissance (loi de Hollomon). Il est notamment utilisé pour déterminer l'émoussement à donner à la pointe de la fissure lors du maillage des éprouvettes CT.

La Figure B-17 montre que la courbe de traction obtenue sur la MTS, avec une éprouvette de fatigue oligocyclique, est proche de celle obtenue sur la ZWICK, ce qui garantit la cohérence des données de comportement malgré la diversité des conditions expérimentales. On s'abstiendra toutefois de comparer les écrouissages monotone et cyclique pour les valeurs de la déformation totale inférieures à 0,3%.

II.2. Comportement en fatigue oligocyclique

La Figure B-18 montre les cycles stabilisés obtenus pour des amplitudes de déformation totale variant entre 0,4 et 1,8%. La superposition d'une courbe de traction obtenue dans les mêmes conditions expérimentales montre que l'Alliage 600 présente un léger écrouissage cyclique pour ces amplitudes de déformation (Tableau B-6).

ε ou $\Delta\varepsilon / 2$	0,2%	0,3%	0,5%	0,7%	0,9%
σ traction (T1)	208	418	460	467	473
σ traction (F3')	371	422	450	462	472
$\Delta\sigma/2$ (F1)	411	461	494	515	534
2R (F1)	615	525	288	358	380
X (F1)	103	198	350	336	344

Tableau B-6 : Ecrouissage monotone et cyclique de l'Alliage 600 à 25°C

Afin de comparer entre elles les formes des cycles stabilisés pour une même amplitude de déformation totale et dans différentes conditions de température et de vitesse de déformation, nous avons introduit deux paramètres R et X, destinés à caractériser quantitativement la position et l'étendue du domaine d'élasticité lorsque le point expérimental (σ, ε) atteint le sommet d'un cycle stabilisé (Figure B-19a) :

- 2R est l'amplitude du domaine linéaire, exprimée en MPa ;
- X est la position, en contrainte, du centre de ce domaine, exprimée également en MPa ; elle représente la contrainte interne instantanée au sommet du cycle.

R et X peuvent être reliés au mode d'écrouissage du matériau de la manière suivante (Figure B-19b) : au cours de la déformation plastique (ou viscoplastique), la surface de charge du matériau, c'est-à-dire son domaine d'élasticité dans l'espace des contraintes, peut subir trois types de modifications :

- une dilatation, qui se traduit par une augmentation de l'amplitude du domaine linéaire (2R dans le cas uniaxial de la traction-compression) : c'est l'écrouissage *isotrope*, positif ou négatif ;

- une translation, qui se traduit par un déplacement du centre du domaine d'élasticité (X dans le cas uniaxial de la traction-compression) : c'est l'écrouissage *cinématique* ;

- un changement de forme, plus ou moins complexe, lié au trajet de chargement.

Dans l'ensemble de notre étude, la forme de la surface de charge est supposée constante et définie par le critère de Von Misès. Le troisième type de modification est donc écarté par hypothèse.

Les valeurs de R et X ont été mesurées sur les cycles stabilisés, en repérant le point du cycle à partir duquel la courbe s'écarte de la linéarité, la pente de la droite de référence étant égale au module d'Young mesuré sur l'éprouvette à la température d'essai, soit 207 GPa à 25°C. Malgré une incertitude importante (de l'ordre de ±25 MPa) liée à la méthode de mesure, la Figure B-20 confirme quantitativement ce que l'on remarque qualitativement sur la Figure B-18 : plus l'amplitude totale imposée est élevée, plus le domaine d'élasticité au sommet du cycle est réduit. Ce phénomène apparaît d'ailleurs dès le premier cycle de chaque séquence.

La capacité d'écrouissage ($Rm/Rp_{0,2\%}$) de l'Alliage 600 en traction est importante mais cela ne signifie pas que le matériau durcit de manière intrinsèque, puisqu'au déchargement il plastifie rapidement en compression, avant même que la contrainte ne s'annule. La diminution de R lorsque l'on augmente l'amplitude de la déformation imposée montre que l'Alliage 600 a une faible capacité d'écrouissage isotrope, c'est-à-dire de durcissement dans toutes les directions ultérieures de sollicitation possibles. L'augmentation de la contrainte d'écoulement est donc essentiellement liée aux variations de X : le matériau « traîne » après lui son domaine d'élasticité sans pour autant en augmenter l'amplitude ; celle-ci a même tendance à diminuer lorsque la contrainte d'écoulement augmente.

II.3. Couplage entre le comportement en traction et le comportement cyclique

La Figure B-21 montre le résultat d'un essai de traction interrompu par un cycle de fatigue, toujours sous le contrôle de l'extensomètre. On constate qu'au cours du cycle le matériau subit une déformation inélastique non négligeable, bien que la charge reste constamment positive.

Le couplage possible entre la plasticité introduite en traction et le comportement cyclique stabilisé a fait l'objet d'essais plus approfondis. Les mêmes essais de fatigue oligocyclique que

précédemment ont été effectués sur une éprouvette (F3') préalablement étirée de 4,6%, sans relâchement des contraintes entre la traction et les séquences de fatigue. Celles-ci ont comporté des cycles à ±0,65%, ±0,46%, ±0,28% et ±0,19%, la déformation étant déterminée à partir de la longueur de jauge de l'éprouvette étirée. La vitesse de déformation était de $9{,}25.10^{-4}\ s^{-1}$, proche de la valeur de référence ($10^{-3}\ s^{-1}$).

L'ensemble de l'essai a été réalisé sous le contrôle de l'extensomètre, dont les cannes d'alumine étaient suffisamment rapprochées au départ pour ne pas glisser après la traction. Nous avons dû employer un gain adapté à la mesure de plus grandes déformations qu'en fatigue oligocyclique et par conséquent moins sensible (115 µm par volt au lieu de 40). L'incertitude expérimentale sur les déformations est de ce fait plus importante que précédemment, en particulier pour les essais à faible amplitude de déformation imposée. S'y ajoutent les hétérogénéités de taille de grains, qui entraînent une dispersion importante des valeurs de la limite d'élasticité et influencent le niveau des contraintes à faible déformation.

La Figure B-22 et le Tableau B-7 montrent que l'écrouissage cyclique après traction est semblable à celui mesuré sans traction préalable, sauf pour les cycles de faible amplitude. L'effet d'une prédéformation en traction sur les cycles stabilisés est donc faible, ce qui confirme le caractère mécaniquement réversible du durcissement observé en traction. L'écrouissage cyclique se manifeste ici par un abaissement de la contrainte moyenne, c'est-à-dire que les cycles tendent à se symétriser en contrainte autour de zéro.

ε ou Δε/2 (%)	0,19	0,20	0,28	0,30	0,46	0,50	0,65	0,70	0,90
σ traction (T1, ZWICK)	243	268	394	418	458	460	465	467	473
σ traction (F3', MTS)	362	371	416	422	448	450	458	462	472
Δσ/2 fatigue (F1)	---	411	---	461	---	490	---	512	530
Δσ/2 fatigue après traction (F3')	336	---	419	---	501	---	543	---	---

Tableau B-7 : Effet d'une prédéformation en traction sur l'écrouissage cyclique de l'Alliage 600 à 25°C

II.4. Conclusions : propriétés mécaniques de l'Alliage 600 à 25°C

Les essais à la température ambiante ont permis d'explorer les principales propriétés mécaniques de l'Alliage 600 à étudier à plus haute température :

- une grande capacité d'écrouissage en traction, qui n'est cependant pas représentative d'une augmentation de l'amplitude du domaine d'élasticité 2R ;
- un écrouissage cinématique marqué (augmentation de X) et isotrope « négatif » (diminution de R) lorsque la contrainte augmente ;
- un léger écrouissage cyclique par rapport à l'écrouissage monotone obtenu en traction ;
- une très faible sensibilité des cycles stabilisés aux effets d'histoire du chargement.

Les essais à plus haute température ont donc été ciblés sur ces phénomènes et ont fait appel aux outils de dépouillement mis en place pour les essais à la température ambiante. Les résultats expérimentaux sont présentés en distinguant les températures pour lesquelles l'alliage est globalement peu visqueux (jusqu'à 400°C) de celles pour lesquelles la viscosité joue un rôle important dans l'évolution des contraintes (à partir de 550°C).

A partir de 300°C l'Alliage 600 est sujet à l'effet Portevin-Le Chatelier, en traction comme en fatigue oligocyclique, qui provoque un écoulement saccadé décrit plus en détail dans l'Annexe B-a_2 ; cet effet est très difficile à modéliser. Pour ne pas compliquer inutilement les figures, les résultats exposés dans la suite de ce chapitre en font abstraction ; les courbes présentées ont été « lissées », c'est-à-dire que l'on a gardé l'enveloppe des courbes en retirant les décharges brutales (ou les incréments de déformation brutaux en contrôle de charge) dus à l'effet Portevin-Le Chatelier.

Il n'est pas exclu que, comme les aciers inoxydables austénitiques, l'Alliage 600 présente un fluage apparent à la température ambiante. Il serait intéressant de vérifier ce point si l'on désire, à terme, calculer des éprouvettes soumises à une déformation imposée, telles que les selles de cheval.

III. PROPRIETES MECANIQUES DE L'ALLIAGE 600 ENTRE 300 ET 400°C

Le comportement monotone et cyclique de l'Alliage 600 varie peu à l'intérieur de ce domaine de température somme toute assez étroit ; pour alléger la présentation, les résultats concernant le comportement cyclique seront principalement illustrés par les données obtenues à 360°C, les autres étant reportées dans l'Annexe B-a_3.

III.1. Comportement en traction

La Figure B-23 et le Tableau B-8 résument les propriétés de l'Alliage 600 en traction entre 300 et 400°C. Comme à la température ambiante, la rupture est ductile et intervient après un allongement réparti important. La striction, également importante, n'a pas été reportée sur les courbes pour alléger les figures.

T (°C)	éprouvette	Re (MPa)	$Rp_{0,2\%}$ (MPa)	Rm (MPa)	allongement max. réparti	allongement à rupture	striction	$Rm/Rp_{0,2\%}$
300	T4	369	440	647	23%	28%	61%	1,47
340	T7	378	434	635	24%	30%	67%	1,46
360	T2	361	394	622	32%	36%	63%	1,58
	T9	297	392	622	24%	32%	65%	1,59
	T10	261	385	621	29%	32%	65%	1,61
400	T8	365	458	677	24%	28%	64%	1,48

Tableau B-8 : Caractéristiques de l'Alliage 600 en traction entre 300 et 400°C

Les éprouvettes T9 et T10 se distinguent par une limite d'élasticité basse et un écrouissage plus important au début de la déformation plastique. Ceci est dû au fait que ces petites éprouvettes sont sensibles aux hétérogénéités locales de microstructure de la manchette d'origine, en particulier à la présence de gros grains qui peuvent occuper une part non négligeable de la section utile de l'éprouvette.

III.2. Comportement en fatigue oligocyclique

Comme à la température ambiante, l'écrouissage cyclique à 360°C est supérieur à l'écrouissage monotone (Figure B-24 et Tableau B-9). La composante cinématique X reste importante tandis que la composante isotrope 2R diminue au fur et à mesure que l'on augmente l'amplitude de déformation imposée.

Le Tableau B-10 montre les résultats acquis à 10^{-5} s^{-1} sur la même éprouvette. L'écrouissage est plus isotrope, ce qui fait que la valeur de 2R est plus élevée qu'à 10^{-3} s^{-1} pour une même amplitude de déformation imposée (Figure B-25). La Figure B-26 montre dans le cas des cycles stabilisés à ±0,7% que la sensibilité de l'Alliage 600 à la vitesse de déformation imposée est légèrement négative dans ce domaine de température, ce qui se manifeste essentiellement par une augmentation de la contribution isotrope à l'écrouissage cyclique. Ce phénomène va ici de pair avec un fort effet Portevin-Le Chatelier et un vieillissement statique marqué, étudiés plus en détail dans l'Annexe B-a_2.

Afin de vérifier que les effets d'histoire du chargement sur les cycles stabilisés sont négligeables, une série de cycles à 10^{-3} s^{-1} a été appliquée pour les mêmes amplitudes de déformation que précédemment, après la série de cycles à 10^{-5} s^{-1}. Les cycles stabilisés obtenus dans ces conditions sont rigoureusement superposables à ceux qui ont été obtenus en début d'essai.

ε ou Δε/2	0,2%	0,3%	0,5%	0,7%
σ traction (T2) (MPa)	384	393	404	415
Δσ/2 fatigue (F7) (MPa)	349	410	471	515
2R fatigue (F7) (MPa)	425	374	318	215
X fatigue (F7) (MPa)	136	223	312	408

Tableau B-9 : Ecrouissage cyclique de l'Alliage 600 à 360°C et 10^{-3} s^{-1}

Δε/2	0,2%	0,3%	0,5%	0,7%
Δσ/2 fatigue (F7) (MPa)	350	468	500	515
2R fatigue (F7) (MPa)	700	461	370	358
X fatigue (F7) (MPa)	0	238	315	336

Tableau B-10 : Ecrouissage cyclique de l'Alliage 600 à 360°C et 10^{-5} s^{-1}

III.3. Effets de viscosité : fluage et relaxation

La température de fusion T_F de l'Alliage 600 étant de 1400°C, 300°C et 400°C représentent respectivement 0,34 et 0,40 T_F. Le domaine de température et de contrainte étudié dans ce paragraphe correspond, d'après les cartes d'Ashby construites pour l'alliage Ni-20Cr, au début du fluage dislocation (voir le chapitre précédent). Il est donc important de connaître la composante visqueuse du comportement de l'Alliage 600. Celle-ci est d'autant plus « endommageante » qu'elle implique des déformations lentes susceptibles d'interagir avec les effets d'environnement.

III.3.a. Présentation des essais

L'Alliage 600 a été testé en fatigue-relaxation et en fatigue-fluage, l'étude la plus approfondie ayant été menée à 360°C. Deux orientations ont été choisies pour ces essais, l'étude du comportement sous sollicitations cycliques interrompues et l'étude de l'influence du paramètre mécanique de chargement.

Les éprouvettes F4, F8 et F1' ont été testées en fatigue-relaxation, avec des cycles triangulaires à vitesse de déformation imposée, variant entre zéro et une valeur maximale ε_{max} ; les cycles ont été interrompus à une déformation totale ε_0 et repris après un temps de relaxation Δt_R (Figure B-27 et Tableau B-11). La reprise des cycles au bout de Δt_R a permis d'explorer l'évolution du domaine d'élasticité au cours de la relaxation (vieillissement statique). Celui-ci augmente avec Δt_R mais diminue lorsque la déformation imposée ε_0 augmente. La faible relaxation macroscopique dissimule donc une évolution du matériau à l'échelle microscopique, qui dépend du temps et de l'état de déformation (Annexe B-a_2).

L'éprouvette F8' a été testée en fatigue-relaxation et en fatigue-fluage. Le niveau de contrainte et la vitesse de sollicitation imposés en fatigue-fluage ont été déterminés de manière à correspondre aux sollicitations que l'éprouvette avait subies en fatigue-relaxation. Ces essais ont également permis d'aborder la délicate question de l'effet du paramètre de chargement (charge ou déformation) sur la réponse mécanique du matériau.

éprouvette	ε_{max} (%)	ε_0 (%)	vitesse de déformation (s^{-1})	Δt_R (s)
F4	0,5	0,5	1.10^{-3}	1800
	1,0	1,0	1.10^{-3}	900
F8	0,8	0,4	8.10^{-4}	20 à 1200
F1'	0,8	0,5	8.10^{-4}	20 à 1200
		0,6	8.10^{-4}	20 à 1200
		0,5	1.10^{-5}	60 et 100

Tableau B-11 : Matrice des essais de fatigue-relaxation effectués à 360°C sur l'Alliage 600

III.3.b. Résultats

Essais de fatigue-relaxation

L'évolution de la contrainte en fonction du temps au cours des paliers de relaxation montre que l'Alliage 600 relaxe à la fois peu et rapidement la contrainte macroscopique. La Figure B-28 illustre ce comportement sur un cycle courant imposé à l'éprouvette F4. La diminution de la contrainte reste très limitée et ne dépasse pas une trentaine de MPa, soit moins de 10% de la contrainte initiale, sur l'ensemble des essais. Par ailleurs la contrainte évolue de telle sorte que les valeurs deviennent rapidement symétriques par rapport à zéro, bien que la déformation moyenne soit non nulle.

Essais de fatigue-fluage

L'évolution de la déformation totale en fonction du temps a montré que l'Alliage 600 flue peu dans ce domaine de température ; la vitesse mesurée, de l'ordre de 10^{-8} s^{-1}, est proche du seuil de détection de la machine dans nos conditions d'essai.

Les deux cycles superposés sur la Figure B-29 montrent que la réponse du matériau varie peu selon que l'on travaille à charge ou à déformation imposée. Ce résultat est cohérent avec la faible sensibilité du matériau à la vitesse dans ce domaine de température.

III.4. Conclusions : propriétés mécaniques de l'Alliage 600 entre 300 et 400°C

Les résultats des essais mécaniques effectués sur l'Alliage 600 entre 300 et 400°C, présentés ci-dessus et dans les Annexes B-a_2 et B-a_3, ont conduit aux conclusions suivantes :

- le matériau présente une capacité d'écrouissage élevée et une grande ductilité en traction ;
- l'écrouissage cinématique X est d'autant plus marqué, et l'écrouissage isotrope 2R d'autant plus réduit, que l'amplitude de déformation imposée en fatigue est élevée ;
- la viscosité apparente est faible, tant en fluage qu'en relaxation ;
- des phénomènes de vieillissement dynamique (effet Portevin-Le Chatelier) et statique apparaissent (voir Annexe B-a_2) ; ils masquent probablement une partie des effets de viscosité et conduisent à une sensibilité globale faiblement négative à la vitesse de déformation imposée.

IV. PROPRIETES MECANIQUES DE L'ALLIAGE 600 A 550 ET 600°C

La base expérimentale acquise à 550 et 600°C se compose d'essais de traction, de fatigue et de fatigue-relaxation.

IV.1. Comportement en traction

La Figure B-30 et le Tableau B-12 résument les propriétés de l'Alliage 600 en traction à 550 et 600°C. On constate que l'allongement maximal réparti commence à baisser à 550°C (éprouvette T3) et chute à 600°C (éprouvettes T6 et T11). La contrainte maximale est également plus basse que pour les températures inférieures à 400°C.

T (°C)	éprouvette	Re (MPa)	$Rp_{0,2\%}$ (MPa)	Rm (MPa)	allongement max. réparti	allongement à rupture	striction	$Rm/Rp_{0,2}$ %
550	T3	355	390	542	16%	21%	50%	1,39
	T5	301	381	574	20%	28%	64%	1,51
600	T6	302	380	491	10%	17%	27%	1,29
	T11	261	378	498	12%	17%	26%	1,32

Tableau B-12 : Caractéristiques de l'Alliage 600 en traction à 550 et 600°C

La Figure B-31 montre que la chute de ductilité observée à 600°C est liée à l'apparition, dans toute la section de l'éprouvette, de microfissures intergranulaires qui partent en général des points triples et conduisent à un endommagement prématuré, responsable de la baisse de Rm, et d'une rupture intergranulaire avec des ligaments ductiles. L'Alliage 600 est donc sensible à la fissuration intergranulaire à 600°C, pour une vitesse de sollicitation (10^{-3} s^{-1}) a priori élevée par rapport à une éventuelle déformation de fluage mais classique pour les alliages base nickel.

IV.2. Comportement en fatigue oligocyclique

Les Tableaux B-13 et B-14 et la Figure B-32 présentent les données d'écrouissage cyclique obtenues dans ce domaine de température. Comme précédemment, la demi-amplitude de contrainte mesurée en fatigue est supérieure à la contrainte mesurée en traction. La composante isotrope R, en revanche, augmente avec l'amplitude de déformation imposée, ce qui n'est pas le cas lorsque la température est inférieure à 400°C.

ε ou Δε/2	0,2%	0,3%	0,5%	0,7%
σ traction (T3) (MPa)	349	380	400	407
Δσ/2 fatigue (F11') (MPa)	329	377	433	462
2R fatigue (F11') (MPa)	332	351	373	397
X fatigue (F11') (MPa)	163	202	246	264

Tableau B-13 : Ecrouissage cyclique de l'Alliage 600 à 550°C et 10^{-3} s^{-1}

ε ou Δε/2	0,2%	0,3%	0,5%	0,7%
σ traction (T11) (MPa)	281	324	373	392
Δσ/2 fatigue (F9') (MPa)	317	382	425	448
2R fatigue (F9') (MPa)	306	310	322	325
X fatigue (F9') (MPa)	164	227	264	286

Tableau B-14 : Ecrouissage cyclique de l'Alliage 600 à 600°C et 10^{-3} s^{-1}

L'effet Portevin-Le Chatelier (voir Annexe B-a_2) se fait moins sentir à partir de 550°C. A 600°C et ±0,7% les saccades n'apparaissent plus que pour des vitesses de déformation supérieures ou égales à 3.10^{-4} s^{-1}. La viscosité prend alors le pas sur le vieillissement et la sensibilité à la vitesse de déformation devient quasiment nulle à 550°C et positive à 600°C, comme le montrent les Tableaux B-15 et B-16 et la Figure B-33.

Δε/2	0,5%		
vitesse de déformation (s^{-1})	2.10^{-5}	10^{-4}	10^{-3}
Δσ/2 fatigue (MPa)	439	441	433
2R fatigue (MPa)	377	379	373
X fatigue (MPa)	250	251	246

Tableau B-15 : Effet de la vitesse de déformation sur l'écrouissage cyclique de l'Alliage 600 à 550°C

Δε/2	0,5%					0,7%				
vitesse de déformation (s^{-1})	10^{-5}	10^{-4}	3.10^{-4}	6.10^{-4}	10^{-3}	10^{-5}	10^{-4}	3.10^{-4}	6.10^{-4}	10^{-3}
Δσ/2 fatigue (MPa)	347	375	392	402	425	354	401	417	428	444
2R fatigue (MPa)	188	222	241	278	322	196	223	247	306	325
X fatigue (MPa)	253	264	271	263	264	256	289	293	275	281

Tableau B-16 : Effet de la vitesse de déformation sur l'écrouissage cyclique de l'Alliage 600 à 600°C

IV.3. Effets de viscosité : comportement en relaxation

La relaxation de l'Alliage 600 a été étudiée à 550°C par des maintiens à déformation totale nulle entre les différentes séquences de cyclage. A 600°C des essais complémentaires, comportant des paliers à la déformation maximale (0,5 ou 0,7%), ont été effectués dans les mêmes conditions que précédemment. La température homologue est ici plus élevée (0,49 à 0,52 T_F) et la diminution de contrainte mesurée au cours du temps devient importante (Tableau B-17 et Figure B-34). La diminution immédiate de la contrainte est faible mais la relaxation se poursuit ensuite sur plusieurs dizaines de secondes, ce qui n'est pas le cas à plus basse température.

T (°C)	550				600			
Δε/2 séquence précédente (%)	0,2	0,3	0,5	0,7	0,2	0,3	0,5	0,7
$\sigma_0 = \sigma$ (t=0) (MPa)	59	142	301	386	23	153	291	373
$\Delta\sigma/\sigma_0$ (t = 1 s) (%)	-10,2	-7,0	-1,7	-3,9	-16,0	-4,6	-3,8	-5,6
$\Delta\sigma/\sigma_0$ (t = 10 s) (%)	-52,5	-25,4	-2,7	-10,6	NE	-20,3	-13,1	-14,2
$\Delta\sigma/\sigma_0$ (t = 100 s) (%)	NE	NE	-11,6	-18,4	NE	-35,3	-31,3	-33,2

NE : non étudié

Tableau B-17 : Relaxation de l'Alliage 600 après les cycles stabilisés à 550 et 600°C

IV.4. Conclusions : propriétés mécaniques de l'Alliage 600 à 550 et 600°C

Lorsqu'il est sollicité à haute température (550 et 600°C), l'Alliage 600 présente les propriétés mécaniques suivantes :

- la ductilité en traction diminue lorsque la température augmente, la rupture devenant intergranulaire à 600°C ;
- l'écrouissage cinématique reste important mais la composante isotrope augmente avec l'amplitude de déformation en fatigue, ce qui n'est pas le cas à plus basse température ;
- la composante visqueuse devient notable, elle commence à masquer les effets de vieillissement et la sensibilité à la vitesse de déformation imposée devient positive à 600°C.

V. CONCLUSIONS : PRINCIPALES PROPRIETES MECANIQUES DE L'ALLIAGE 600 EN FONCTION DE LA TEMPERATURE

Les données qui figurent dans ce paragraphe ont été regroupées à partir des résultats présentés ci-dessus et dans les Annexes B-a_2 et B-a_3.

V.1. Comportement de l'Alliage 600 en traction

Les propriétés de l'Alliage 600 en traction sont sensiblement constantes entre 25 et 400°C. Une baisse s'amorce à 550°C sur l'une des deux éprouvettes et se manifeste nettement à 600°C avec l'apparition d'un endommagement intergranulaire qui conduit à une rupture prématurée (Figure B-35).

Ces résultats sont conformes à ceux obtenus par Huntz et coll. [1988] et Rousselet et coll. [1989] avec des éprouvettes plates (section 2 x 1 mm^2) d'Alliage 600 recuit à gros grains (300 à 400 µm). La limite d'élasticité est sensiblement constante entre 25 et 600°C tandis que la ductilité et la contrainte maximale amorcent une baisse à partir de 500°C. Les caractéristiques mécaniques inférieures des éprouvettes utilisées par Rousselet ($Rp_{0,2\%} \approx 200$ MPa et $Rm \approx 500$ MPa) peuvent être attribuées à un taux d'écrouissage inférieur à celui de notre manchette, à une taille de grains élevée et à un faible nombre de grains dans l'éprouvette, qui favorise une rupture prématurée par instabilité géométrique.

V.2. Comportement cyclique de l'Alliage 600. Effets de viscosité

Le Tableau B-18 résume, pour toutes les températures étudiées, les données relatives aux cycles à ±0,5% de déformation imposée, pour une vitesse de déformation de 10^{-3} s^{-1}.

température (°C)	25	300	340	360	400	550	600
$(\Delta\sigma)/2$ fatigue (MPa)	494	492	480	471	464	433	425
$(\Delta\sigma/2)_{fatigue} / \sigma_{traction}$	1,07	1,10	1,10	1,18	0,99	1,10	1,13
$2R/\Delta\sigma$ fatigue (%)	29	26	NE	34	37	43	38
$\lvert\Delta\sigma\rvert/\sigma_0$ après maintien de 100 s à $\varepsilon = 0$ en fin de séquence (%)	5,2	8,1	NE	4,1	3,7	14,8	30,3
sensibilité à la vitesse de déformation	NE	NE	< 0	< 0	< 0	≈ 0	>0

NE : non étudié

Tableau B-18 : Evolution des propriétés en fatigue avec la température : cycles à ±0,5% et 10^{-3} s^{-1}

Sur l'ensemble des essais, l'écrouissage cyclique est supérieur à l'écrouissage monotone, sauf à 400°C où le début de la courbe de traction fait intervenir des contraintes particulièrement élevées par rapport aux résultats obtenus entre 300 et 360°C. L'amplitude des cycles stabilisés décroît régulièrement avec la température (Figure B-36).

Le paramètre $2R/\Delta\sigma$ représente la part de l'amplitude des contraintes qui correspond à une réponse linéaire du matériau. Quelle que soit la température d'essai, la composante cinématique joue un rôle important dans l'écrouissage cyclique. La composante isotrope devient relativement importante à partir de 550°C, ce qui signifie que l'écrouissage met en jeu moins de forces de rappel, susceptibles de devenir motrices pour le glissement des dislocations lorsque l'on inverse le sens de sollicitation macroscopique. R augmente alors avec l'amplitude de déformation totale imposée, alors que l'inverse se produit à plus basse température.

La viscosité de l'Alliage 600, mesurée en relaxation, est faible jusque vers 400°C : la diminution de la contrainte est limitée à moins de 10% de la charge initiale, elle se produit en quelques secondes et n'évolue plus par la suite. A partir de 550°C, la diminution de la contrainte est plus importante et se poursuit pendant plusieurs dizaines de minutes au moins, indiquant une composante visqueuse plus importante.

La sensibilité à la vitesse de déformation est négative entre 340 et 400°C. Ceci est dû à une compétition entre les effets de viscosité et les effets de vieillissement, c'est-à-dire d'augmentation de la limite d'élasticité au cours du temps. Les deux effets se compensent à 550°C et à 600°C la sensibilité à la vitesse devient nettement positive.

Dans tout le domaine de température étudié l'Alliage 600 est sensible au vieillissement statique, c'est-à-dire que sa limite d'élasticité évolue avec le temps lors de maintiens à déformation totale constante. Entre 300 et 600°C, il est également soumis à l'effet Portevin-Le Chatelier.

Les principaux aspects du comportement mécanique de l'Alliage 600 sont reportés sur le Tableau B-19 en fonction de la température.

température (°C)	25	300	340	360	400	550	600
ductilité en traction	++	++	++	++	++	+	-
durcissement cyclique	+	+	+	+	+	+	+
composante cinématique du durcissement cyclique	++	++	++	++	++	+	+
composante isotrope du durcissement cyclique	--	--	--	--	--	o	+
viscosité apparente en relaxation	o	o	o	o	o	++	++
vieillissement statique	+	++	++	++	++	++	++
effet Portevin-Le Chatelier	-	+	++	++	++	++	+
sensibilité à la vitesse de déformation imposée	NE	NE	-	-	-	o	+

NE : non étudié

Tableau B-19 : Principaux aspects du comportement mécanique de l'Alliage 600 en fonction de la température

On retrouve des propriétés déjà connues dans le cas des aciers inoxydables austénitiques [Delobelle 1993] et en particulier le domaine de température dans lequel les effets de vieillissement sont les plus sensibles. Ceci est prévisible dans la mesure où ces alliages sont essentiellement composés d'une solution solide cubique à faces centrées.

On retiendra enfin que les mécanismes de fluage, qui sont théoriquement actifs à partir de 300°C d'après les cartes d'Ashby, sont en pratique concurrencés par les effets de vieillissement. Ils pourrait cependant peut-être se manifester si un effet d'environnement, par exemple une pénétration d'hydrogène ou une injection de lacunes, venait à affecter les interactions entre les dislocations mobiles et les atomes en solution solide d'insertion, comme le proposent Sirois et coll. [1992 a et b] dans le cas de l'hydrogène.

CHAPITRE B-3 :
COMPORTEMENT MECANIQUE DE L'ALLIAGE 600
MODELISATION

Ce chapitre est consacré à l'identification de modèles de comportement mécanique à partir de la base de données expérimentale. Cette étape est nécessaire pour faire intervenir le comportement du matériau dans les calculs de structure.

Le comportement de l'Alliage 600 est complexe, du fait de la compétition entre les effets respectifs de la viscosité et du vieillissement. Il a donc fallu choisir les phénomènes que l'on désirait représenter en priorité, en fonction de l'utilisation que l'on souhaitait faire du modèle. Le cadre général de la modélisation est défini dans la première partie de ce chapitre.

Le premier objectif de la modélisation est lié au calcul d'éprouvettes fissurées. L'obtention du champ de contraintes, en amont de la pointe de la fissure, conforme à l'approche utilisée pour le calcul de structure nécessite l'introduction d'un émoussement géométrique à la pointe de la fissure de la structure maillée. La valeur de cet émoussement est liée à celle du coefficient d'écrouissage du matériau en traction. Celle-ci a donc été déterminée à partir d'un modèle simple (loi puissance) qui est présenté dans la seconde partie de ce chapitre.

Le second objectif consiste à approfondir le dépouillement des résultats expérimentaux. On souhaite pour cela quantifier l'écrouissage du matériau, en fonction de la température, à l'aide de données plus précises que le couple (R, X) utilisé dans le chapitre précédent, qui ne rend pas compte de la forme des cycles. Le modèle phénoménologique utilisé est appelé modèle « une phase » parce que l'on considère le matériau comme homogène ; il est décrit dans la troisième partie de ce chapitre.

Le troisième objectif de la modélisation consiste à traduire les données expérimentales sur le comportement du matériau d'une manière utilisable par le calcul de structure. Le modèle « une phase » permet de résumer l'information expérimentale en un jeu de coefficients. Les équations ont été implantées dans le code de calcul par éléments finis ; celui-ci utilise alors les coefficients pour évaluer les champs de contrainte et de déformation dans des structures variées. L'identification des jeux de coefficients en fonction de la température fait l'objet de la dernière partie de ce chapitre.

I. CADRE DE LA MODELISATION

Un modèle capable de reproduire l'ensemble des faits expérimentaux décrits dans le chapitre précédent et les Annexes B-a_2 et B-a_3 devrait rendre compte des phénomènes suivants :

- les effets de viscosité, par une loi d'écoulement viscoplastique qui rend compte des essais de relaxation, avec pour conséquence immédiate une sensibilité positive à la vitesse de déformation ;
- le vieillissement, qui entraîne en lui-même une sensibilité négative à la vitesse et une évolution de la limite d'écoulement au cours des essais de relaxation ;
- la grande capacité d'écrouissage du matériau en traction ;
- l'écrouissage cyclique ;
- les effets dynamiques tels que l'écoulement saccadé (effet Portevin-Le Chatelier).

Un tel modèle serait sans doute extrêmement complexe et difficile à intégrer dans un calcul de structure à des coûts raisonnables en termes de temps calcul. Il faut donc faire un choix et définir les phénomènes que l'on souhaite reproduire en priorité.

I.1. Choix du cadre de la modélisation

L'effet PLC fait intervenir un écoulement erratique difficile à modéliser. S'il est souvent associé à un mécanisme de glissement planaire, il n'est pas en lui-même endommageant pour le matériau tant que l'on travaille à déformation imposée ; l'écoulement saccadé se traduit en effet dans ce cas par des cycles de décharge-recharge élastiques, qui suivent de petits incréments brutaux de déformation, ces derniers ne dépassant pas quelques 10^{-4} en amplitude. Il a donc été décidé de ne pas s'attacher à modéliser l'effet PLC et de travailler sur des cycles « lissés » par élimination des saccades de décharge-recharge (voir chapitre précédent).

Les effets de vieillissement sont liés à une évolution intime du matériau au cours du temps. Celle-ci se traduit à l'échelle macroscopique par une évolution de la limite d'élasticité lors de maintiens à déformation totale imposée. Il paraît donc judicieux d'introduire dans le modèle des termes de restauration portant sur les niveaux de contrainte interne (la variable X du chapitre précédent). La troisième partie de ce chapitre montre qu'en pratique ces termes rendent délicate l'intégration des équations différentielles si on cherche à les rendre compatibles avec le comportement en relaxation, du moins pour les niveaux de température inférieurs à 400°C.

Dans ce domaine de température, sachant que la sensibilité à la vitesse reste très faible même si elle est négative, les termes de restauration n'ont pas été utilisés et seules les identifications menées à 550 et 600°C y ont fait appel. Il n'a donc pas été possible de reproduire, avec le modèle retenu, la sensibilité négative à la vitesse de déformation et les effets de vieillissement statique pour $T \leq 400$°C. Il faudrait peut-être pour cela recourir à un modèle à deux déformations, l'une décrivant l'écoulement viscoplastique (sensibilité positive à la vitesse) et

l'autre la déformation plus rapide ; la sensibilité à la vitesse serait décrite par un couplage entre ces deux déformations, comme dans le modèle de Contesti et Cailletaud [1989], développé pour l'Alliage 316L.

I.2. Choix des phénomènes modélisés

Le calcul de structure étant destiné, dans notre cas, à étudier les champs de contraintes et de déformations locaux sur des éprouvettes soumises à des sollicitations cycliques, la priorité a été donnée à la représentation du comportement en traction et des cycles stabilisés en fatigue oligocyclique avec ou sans temps de maintien (relaxation). Les effets de vieillissement n'ont pas été explicitement modélisés mais les paramètres qui décrivent la viscosité ont tenu compte de la sensibilité globale à la vitesse de déformation imposée.

I.3. Démarche de modélisation

Deux domaines de température ont été distingués à partir des données expérimentales :

- entre 25 et 400°C le matériau est écrouissable, peu visqueux et présente une sensibilité à la vitesse très faible et négative ;
- à 550 et 600°C le matériau s'écrouit toujours mais les effets de viscosité deviennent importants, ce qui modifie la sensibilité globale à la vitesse.

L'étude des effets de la température demande que l'on utilise un modèle unique, qui puisse être appliqué aux essais effectués dans toute la gamme de température. On choisit donc une loi d'écoulement viscoplastique, afin de tenir compte des effets de viscosité. Comme indiqué précédemment, des termes de restauration ont été ajoutés pour les températures les plus élevées (550 et 600°C). On cherche alors, pour chaque température, un jeu de coefficients qui décrive le plus fidèlement possible les résultats expérimentaux.

Le Tableau B-20 résume le cahier des charges imposé au modèle utilisé.

propriétés mécaniques	entre 25 et 400°C	à 550 et 600°C
loi d'écoulement	viscoplastique	
écrouissage	monotone et cyclique	
viscosité mesurée en relaxation	très faible	importante
sensibilité à la vitesse	négative ou nulle	nulle à 550°C, positive à 600°C
restauration des contraintes internes	aucune	termes de restauration
effet PLC	non modélisé	

Tableau B-20 : Cahier des charges imposé au modèle utilisé

La détermination des jeux de coefficients, pour les différents modèles décrits dans la suite de ce chapitre, a été réalisée à l'aide d'un logiciel d'identification appelé SiDoLo, développé par Pilvin [1990] et utilisé au Centre des Matériaux de l'Ecole des Mines.

II. IDENTIFICATION DES COEFFICIENTS D'UNE LOI PUISSANCE EN TRACTION SIMPLE

Ce modèle est uniquement destiné à déterminer le coefficient d'écrouissage du matériau en fonction de la température.

II.1. Description du modèle et résultats de l'identification

On utilise la relation suivante, dite loi de Hollomon :

$\sigma = k\,(\varepsilon_p)^N$

où ε_p désigne la déformation inélastique. Il s'agit d'un modèle simple, dont les coefficients k et N sont identifiés à partir des courbes rationnelles de traction. La Figure B-37 montre que l'Alliage 600 se prête peu à ce type de modélisation ; on a néanmoins montré que dans toute la gamme de température étudiée et sur les six premiers pour-cent de déformation totale imposée, le coefficient N est compris entre 0,06 et 0,15 , les valeurs de k variant entre 600 et 800 MPa.

II.2. Utilisation du modèle

De ce modèle très simplifié on retiendra l'ordre de grandeur du coefficient d'écrouissage N, qui sera utilisé en calcul de structure pour évaluer l'émoussement initial à donner à la fissure des éprouvettes CT.

III. MODELE PHENOMENOLOGIQUE « UNE PHASE »

III.1. Présentation du modèle

On considère ici que le matériau est homogène (d'où l'appellation « une phase » pour le modèle) et isotrope. L'ensemble de la démarche suit le cadre thermodynamique développé par Lemaitre et Chaboche [1988].

III.1.a. Principe du modèle

On considère que la déformation totale est la somme d'une déformation élastique ε_e et d'une déformation viscoplastique ε_p. Dans toute la suite on notera en caractères gras les grandeurs tensorielles du second ordre : contraintes, déformations, variables d'écrouissage cinématique $\mathbf{X}_i$ et variables internes α_i qui leur sont associées. Les équations sont écrites pour des évolutions isothermes ; les jeux de coefficients ont donc été identifiés indépendamment pour chaque valeur de la température.

Le premier élément du modèle est le critère d'élasticité que l'on écrit $f(\sigma,\mathbf{X}_i,R) = 0$. Il définit à tout instant la frontière du domaine d'élasticité, appelée surface de charge.

La loi d'état est donnée par l'expression du potentiel thermodynamique, ici l'énergie libre Ψ par unité de masse. Elle fournit les relations entre les variables d'état ε_e, ε_p, α_i et r (variable interne caractérisant l'écrouissage isotrope) et les variables σ, $(-\sigma)$, $\mathbf{X}_i$ et R qui leur sont respectivement associées :

$$\sigma = \rho\frac{\partial\Psi}{\partial\varepsilon_e} \quad \mathbf{X}_i = \rho\frac{\partial\Psi}{\partial\alpha_i} \quad R = \rho\frac{\partial\Psi}{\partial r} \quad \text{à densité volumique } \rho \text{ constante.}$$

On suppose que les contributions élastique Ψ_e et inélastique Ψ_p de l'énergie libre Ψ sont découplées et on écrit :

$$\Psi = \Psi_e(\varepsilon_e) + \Psi_p(\varepsilon_p, \alpha_i, r) \text{ en sollicitation isotherme.}$$

Le premier et le second principes conduisent à l'inégalité de Clausius-Duhem, qui impose à la dissipation purement mécanique Φ d'être positive :

$$\Phi = \sigma : \dot{\varepsilon}_p - \sum_i \mathbf{X}_i : \dot{\alpha}_i - R\dot{r} \geq 0$$

Cette inégalité permet de vérifier qu'une loi d'écoulement (processus dissipatif) donnée est thermodynamiquement admissible.

Le modèle est complété par l'écriture des lois d'évolution des variables internes. Un moyen commode de vérifier l'inégalité de Clausius-Duhem consiste à utiliser un potentiel de dissipation $\varphi(\dot{\varepsilon}_p, \dot{\alpha}_i, \dot{r})$, ou plutôt sa transformée de Legendre-Fenchel $\varphi^*(\sigma, \mathbf{X}_i, R)$, appelée pseudo-potentiel de dissipation. On suppose alors que l'évolution des variables internes se produit perpendiculairement aux équipotentielles ; cette règle de normalité est une condition suffisante pour que l'évolution soit thermodynamiquement admissible, pourvu que la fonction φ^* soit positive, convexe et nulle à l'origine. On en déduit les lois d'évolution des variables internes :

$$\dot{\varepsilon}_p = \frac{\partial\varphi^*}{\partial\sigma} \quad , \quad \dot{\alpha}_i = -\frac{\partial\varphi^*}{\partial\mathbf{X}_i} \quad \text{et} \quad \dot{r} = -\frac{\partial\varphi^*}{\partial R}.$$

Le modèle est dit « standard généralisé » car toutes les lois d'évolution des variables internes dérivent du pseudo-potentiel φ^*. En pratique on fera également appel à un écoulement « associé », c'est-à-dire que la contrainte σ n'intervient dans φ^* qu'à travers la fonction f :

$$\varphi^* = \Omega[f(\sigma, \mathbf{X}_i, R)] + \Omega_R[\mathbf{X}_i, R].$$

- Ω décrit la loi d'écoulement, avec $\Omega'(f) = 0$ lorsque $f \leq 0$;
- Ω_R décrit la restauration des contraintes internes.

On a donc $\dot{\varepsilon}_p = \Omega'(f)\frac{\partial f}{\partial \sigma}$ et $\Omega'(f)$ joue un rôle similaire à celui du multiplicateur plastique en plasticité. $\Omega'(f)$ est alors égal à $\dot{p}$, la vitesse de déformation viscoplastique cumulée, qui est donnée par la formule suivante :

$$\dot{p} = \sqrt{\frac{2}{3}\dot{\varepsilon}_p : \dot{\varepsilon}_p}\ .$$

III.1.b. Equations du modèle

Les hypothèses propres au modèle « une phase » portent sur la définition des variables internes et les expressions du critère d'élasticité f, du potentiel de dissipation φ^* et de l'énergie libre Ψ décrits dans le paragraphe précédent.

On choisit d'utiliser trois variables d'écrouissage cinématique non linéaire $\mathbf{X_1}$, $\mathbf{X_2}$ et $\mathbf{X_3}$, qui décrivent l'allure des courbes sur trois échelles de déformation distinctes : $\mathbf{X_1}$ et $\mathbf{X_2}$ décrivent les essais cycliques à petite et grande amplitude de déformation et tendent ensuite, en l'absence de déchargement, vers une valeur limite ; $\mathbf{X_3}$ décrit le comportement asymptotique en traction et tend également vers une valeur limite. Nous avons choisi de ne pas introduire de variable d'écrouissage cinématique linéaire, afin de ne pas conduire à des niveaux de contrainte exagérément élevés lors des calculs ultérieurs en pointe de fissure, où les niveaux de déformation sont très importants. Le comportement du matériau pour les grandes valeurs de la déformation totale est donc décrit uniquement par la variable $\mathbf{X_3}$.

On utilise une variable d'écrouissage isotrope R non linéaire, qui tend également vers une valeur limite, pour représenter l'écrouissage cyclique.

Dans la suite de ce paragraphe, on notera $\mathbf{s}$ le déviateur du tenseur des contraintes σ et $\mathbf{X}$ la somme des variables d'écrouissage cinématique $\mathbf{X_i}$.

Expression du critère d'élasticité :

On pose, à tout instant :

$$f = J_2(\sigma - \mathbf{X}) - R_0 - R + \frac{1}{2}\sum_i \frac{D_i}{C_i}\left(J_2(\mathbf{X}_i)\right)^2 + \frac{1}{2}\frac{R^2}{Q}$$

où $J_2(\mathbf{T})$ est calculée à partir du second invariant du tenseur $\mathbf{T}$:

$J_2(\mathbf{T}) = \sqrt{\frac{3}{2}\mathbf{T}^d : \mathbf{T}^d}$ où $\mathbf{T}^d$ est le déviateur du tenseur $\mathbf{T}$ (critère de Von Misès).

Les termes en $\left(J_2(\mathbf{X}_i)\right)^2$ et R^2 permettent bien de construire un modèle standard généralisé. Outre son intérêt théorique, cette forme du critère d'élasticité conduit à une réduction du rayon du domaine d'élasticité en un rayon effectif R_{eff} qui vaut :

$$R_{eff} = R - \frac{1}{2}\sum_i \frac{D_i}{C_i}\left(J_2(\mathbf{X}_i)\right)^2 - \frac{1}{2}\frac{R^2}{Q}.$$

Expression de l'énergie libre

On choisit pour l'expression de Ψ une forme quadratique définie positive, selon la formule suivante :

$$\rho\Psi(\varepsilon_e, \alpha_i) = \frac{1}{2}\varepsilon_e : \mathbf{C} : \varepsilon_e + \frac{1}{3}\sum_i C_i\, \alpha_i : \alpha_i + \frac{1}{2} r^2 bQ$$

où $\mathbf{C}$ est l'opérateur de Hooke en élasticité.

On en déduit les lois d'état :

$$\sigma = \rho\frac{\partial\Psi}{\partial\varepsilon_e} = \mathbf{C} : \varepsilon_e \qquad \mathbf{X}_i = \rho\frac{\partial\Psi}{\partial\alpha_i} = \frac{2}{3}C_i\alpha_i \qquad R = \rho\frac{\partial\Psi}{\partial r} = bQr$$

Expression du pseudo-potentiel de dissipation

On pose $\Omega(f) = \frac{K}{n+1}\left[\frac{\sup(f,0)}{K}\right]^{n+1}$ ce que l'on note $\Omega(f) = \frac{K}{n+1}\left\langle\frac{f}{K}\right\rangle^{n+1}$ avec $K > 0$ et $n > 0$.

On obtient alors la vitesse de déformation plastique cumulée $\dot{p} = \left\langle\frac{f}{K}\right\rangle^n$.

On pose également $\Omega_R(\mathbf{X}_i, R) = -\sum_i \frac{M_i}{m_i + 1}\left(\frac{\left\langle J_2(\mathbf{X}_i) - \overline{X}_i\right\rangle}{M_i}\right)^{m_i+1}$.

$\overline{X}_i$ est un scalaire qui permet de ne déclencher la restauration de la variable cinématique correspondante $\mathbf{X}_i$ qu'à partir d'une valeur seuil ; on prendra en pratique une valeur nulle pour chacun de ces coefficients. M_i et m_i sont des coefficients strictement positifs.

Les coefficients K et n sont sans lien avec les coefficients *k* et *N* déterminés dans le modèle simplifié du paragraphe précédent. Il diffèrent également des coefficients de la loi de Norton utilisée en fluage, du fait qu'ils intègrent des informations sur les effets de vieillissement, en particulier en termes de sensibilité à la vitesse de déformation. Ils ne sont donc pas représentatifs du seul mécanisme de fluage du matériau.

On en déduit l'évolution des variables internes :

$$\dot{\varepsilon}_p = \dot{p}\frac{\partial f}{\partial \sigma} = \frac{3}{2}\dot{p}\frac{\mathbf{s}-\mathbf{X}}{J_2(\sigma-\mathbf{X})} = \dot{p}.\mathbf{n}$$

$$\dot{r} = \dot{p}(1-b.r)$$

$$\dot{\alpha}_i = -\frac{\partial \varphi^*}{\partial \mathbf{X}_i} = -\dot{p}\left(-\mathbf{n} + \frac{3}{2}\frac{D_i}{C_i}\mathbf{X}_i\right) - \frac{3}{2}\frac{\mathbf{X}_i}{J_2(\mathbf{X}_i)}\left[\frac{\langle J_2(\mathbf{X}i) - \overline{X}_i\rangle}{M_i}\right]^{m_i}$$

et $\dot{\alpha}_i = -\dot{p}\left(-\mathbf{n} + \frac{3}{2}\frac{D_i}{C_i}\mathbf{X}_i\right)$ sans terme de restauration.

Pour simplifier on choisit $m_i = m$ pour $i = 1,2,3$.

Les tenseurs $\dot{\alpha}_i$, α_i et $\mathbf{X}_i$ sont des déviateurs.

Le terme de restauration conduit à une relaxation importante des contraintes lors des maintiens à déformation totale constante. Pour l'utiliser au-dessous de 400°C il faudrait introduire une contrainte seuil non nulle ; l'optimisation conduit alors en pratique à des valeurs de m élevées (de l'ordre de 4) qui rendent délicate l'intégration de cette équation dans le temps. C'est pourquoi le terme de restauration n'est employé que pour décrire les résultats expérimentaux obtenus à haute température.

Le Tableau B-21 résume les rôles des différents coefficients ainsi que les variables auxquelles ces derniers sont liés.

relations impliquées	variables d'état (internes)	variables associées	coefficients impliqués dans les équations
expression de l'énergie libre Ψ	ε_e	σ	E, ν
	r	R	b, Q
(potentiel thermodynamique)	α_i	$\mathbf{X}_i$	D_i, C_i
expression du pseudo-potentiel de dissipation φ^* et lois d'évolution des variables internes	α_i , $(-\varepsilon_p)$	$\mathbf{X}_i$, σ	K, n
	r	**R**	b
	α_i	$\mathbf{X}_i$	D_i, M_i, m

Tableau B-21 : Rôles des différents coefficients du modèle « une phase »

III.1.c. Ecriture des équations du modèle dans le cas unidimensionnel

La base expérimentale ne comportant que des essais de traction-compression, les coefficients ont été identifiés à partir des équations écrites dans la seule direction de sollicitation, notée 3, en posant les notations suivantes :

$\sigma_{33} = \frac{3}{2} s_{33} = \sigma$; $\varepsilon_{33} = \varepsilon$; $\frac{3}{2} X_{i33} = X_i$; $\alpha_{i33} = \alpha_i$.

pour le critère :

$$f = |\sigma - X_1 - X_2 - X_3| - R_0 - R + \frac{1}{2}\frac{D_1}{C_1} X_1^2 + \frac{1}{2}\frac{D_2}{C_2} X_2^2 + \frac{1}{2}\frac{D_3}{C_3} X_3^2 + \frac{1}{2}\frac{R^2}{Q}$$

pour les lois d'état :

$$\rho\Psi(\varepsilon, \alpha_i) = \frac{1}{2} E (\varepsilon_e)^2 + \frac{1}{2}\sum_i C_i (\alpha_i)^2 + \frac{1}{2} b.Q.r^2 \text{ d'où :}$$

$$\sigma = \rho\frac{\partial\Psi}{\partial\varepsilon_e} = E\varepsilon_e \qquad X_i = \rho\frac{\partial\Psi}{\partial\alpha_i} = C_i\alpha_i \qquad R = \rho\frac{\partial\Psi}{\partial r} = b.Q.r$$

pour les lois d'évolution des variables internes :

$\dot{\varepsilon}_p = \dot{p}$ signe $(\sigma - X_1 - X_2 - X_3)$

$\dot{r} = \dot{p}(1 - b.r)$

$\dot{\alpha}_i = \dot{\varepsilon}_p - D_i\alpha_i \dot{p}$ sans terme de restauration ;

$\dot{\alpha}_i = \dot{\varepsilon}_p - D_i\alpha_i \dot{p} - \left(\frac{|X_i|}{M_i}\right)^m$ signe(X_i) avec terme de restauration.

Au cours d'un essai de traction, la contrainte est donc la somme de plusieurs termes :

- le rayon R_0 du domaine d'élasticité initial ;
- la variable d'écrouissage isotrope R ;
- les trois variables d'écrouissage cinématique X_i, additives, qui permettent à la fois de modéliser l'effet Bauschinger et de décrire l'ensemble de la courbe de traction ;
- un terme de rappel en X_i^2 par variable X_i et un terme de rappel en R^2, qui décrivent la réduction de l'amplitude du domaine d'élasticité sur les cycles à amplitude de déformation élevée (±0,7% par exemple), conformément aux observations expérimentales ;
- la valeur σ_v de la distance au critère d'élasticité dans l'espace des contraintes, encore appelée contrainte visqueuse ; elle est toujours positive ou nulle.

On écrit alors :

$$\sigma = R_0 + R + X_1 + X_2 + X_3 - \frac{1}{2}\frac{R^2}{Q} - \sum_{i=1}^{3}\frac{1}{2}\frac{D_i}{C_i}X_i^2 + \sigma_v \quad \text{où } \sigma_v = K(\dot{p})^{1/n}.$$

On trouvera dans l'Annexe B-a_4 quelques exemples qui illustrent le rôle des coefficients utilisés dans le modèle.

III.2. Conditions d'utilisation du modèle

Les équations d'évolution des variables internes α_i peuvent n'être valides que dans un domaine limité de l'espace $(\sigma,\mathbf{X_i})$, qui dépend du jeu de coefficients choisi. Ce domaine est d'autant plus étroit que la part de l'écrouissage cinématique non linéaire dans la contrainte totale est importante, ce qui est le cas de l'Alliage 600. Il faut alors jouer sur les coefficients pour que ce domaine soit le plus large possible (Annexe B-a_4). On parlera de « fermeture du critère » lorsque le point représentatif $(\sigma,\mathbf{X_i})$ atteint le bord du domaine.

IV. RESULTATS DONNES PAR LE MODELE « UNE PHASE »

Les coefficients du modèle « une phase » ont été identifiés, en isotherme, sur les essais de traction, de fatigue oligocyclique et de fatigue-relaxation (avec effet de vitesse le cas échéant) pour toutes les valeurs de température de la base expérimentale sauf 340°C. Pour simplifier l'exposé, seuls les résultats obtenus à 360 et 550°C sont présentés ici, les autres étant regroupés dans l'Annexe B-a_5. L'identification à 360°C fait intervenir une faible contrainte visqueuse tandis que le comportement modélisé à 550°C fait appel à une relaxation des contraintes importante, qui est décrite à la fois par l'évolution de la contrainte visqueuse et par les termes de restauration de la contrainte interne (écrouissage cinématique).

IV.1. Identification des coefficients du modèle « une phase » à 360°C

IV.1.a. Confrontation aux résultats expérimentaux

Le jeu de paramètres a été déterminé à 360°C à partir des essais de traction et des cycles stabilisés à 10^{-5} et 10^{-3} s^{-1}. Il est donné dans le Tableau B-22.

E	R_0	b	Q	K	n	C_1	D_1	C_2	D_2	C_3	D_3
MPa	MPa	-	MPa	MPa.$s^{1/n}$	-	MPa	-	MPa	-	MPa	-
177000	230	2,12	200	24	2,00	176540	1595	79300	320	2548	3,18

Tableau B-22 : Jeu de coefficients déterminé pour les essais à 360°C

Les Figures B-38 et B-39 montrent le bon accord entre les simulations produites par le modèle et les données expérimentales.

Le module d'Young a été légèrement sous-estimé par rapport à sa valeur expérimentale (qui est de l'ordre de 210 GPa). Ceci conduit, lors de l'identification, à augmenter légèrement la part de l'écrouissage isotrope pour étendre le domaine de validité des équations d'évolution des variables internes, tout en représentant correctement les cycles de faible amplitude.

Les cycles stabilisés à 10^{-3} s^{-1} sont correctement représentés par le modèle. Compte tenu de la très faible contrainte visqueuse σ_v et de la très faible sensibilité à la vitesse, les cycles stabilisés à 10^{-5} s^{-1} sont également bien représentés. Les amplitudes de contrainte données par le modèle sont en effet légèrement surestimées à 10^{-3} s^{-1} et légèrement sous-estimées à 10^{-5} s^{-1} mais l'écart entre les valeurs expérimentales et les valeurs données par le modèle ne dépasse pas 20 MPa, mis à part les cycles à ±0,3% à 10^{-3} s^{-1}. On peut donc considérer que l'accord entre modèle et expérience est satisfaisant à 360°C pour la traction comme pour les essais cycliques.

IV.1.b. Etude du jeu de coefficients identifié à 360°C

Le Tableau B-23 donne quelques valeurs intéressantes des contraintes et des déformations que l'on peut calculer à partir du jeu de coefficients identifié à 360°C.

On note X_{iL} la valeur limite de chacune des variables X_i et p_{iL} la valeur de la déformation viscoplastique cumulée (en traction) pour laquelle X_i atteint 99% de X_{iL}. Comme le modèle ne comporte pas de terme de restauration, on a directement :

$X_{iL} = C_i/D_i$ et $p_{iL} = (2 \ln 10)/D_i$.

Les valeurs de σ_v à 10^{-3} et 10^{-5} s^{-1} traduisent la très faible sensibilité à la vitesse de déformation et donnent un ordre de grandeur de la sensibilité à la vitesse et de la diminution de contrainte en relaxation qui sont prédites par le modèle.

La comparaison entre la somme des termes en X_{iL}^2 et la somme $(R_0+\sigma_v)$ montre que l'on n'a pas pu éviter la fermeture du critère. Celle-ci se produit, en traction, pour une valeur de la déformation viscoplastique notée p_c. σ_L est égale à la contrainte atteinte pour une valeur très élevée de la déformation (80%). Elle tient compte de la fermeture du critère.

X_1		X_2		X_3		σ_v pour dp/dt =		σ_L	R_∞ =	p_c
X_{1L}	p_{1L}	X_{2L}	p_{2L}	X_{3L}	p_{3L}	10^{-3} s^{-1}	10^{-5} s^{-1}	10^{-3} s^{-1}	$R_0 + Q/2$	10^{-3} s^{-1}
MPa	%	MPa	%	MPa	%	MPa	MPa	MPa	MPa	%
111	0,26	248	1,44	801	>100	< 1	< 1	872	330	24,4

Tableau B-23 : Contraintes et déformations caractéristiques calculées à partir du jeu de coefficients déterminé à 360°C

La variable X_1 est très rapidement saturée et sa valeur limite est faible. Cette variable est réservée à la description du tout début de la déformation viscoplastique, notamment au cours

des cycles à faible amplitude de déformation. Le relais est ensuite pris par la variable X_2, qui atteint sa valeur limite aux alentours de 1,5%, c'est-à-dire à une déformation suffisante pour décrire avec le maximum de précision les cycles à ±0,5 et ±0,7%. La variable X_3 atteint théoriquement sa valeur limite pour une déformation très élevée et le matériau reste écrouissable même pour des valeurs de la déformation supérieures à la déformation maximale répartie mesurée en traction.

La composante visqueuse σ_v est très faible (inférieure à 1 MPa), ce qui permet de limiter la sensibilité à la vitesse des cycles prédits par le modèle. En contrepartie, le modèle ne prédit aucune relaxation des contraintes lors de maintiens à déformation totale constante. Ce n'est pas tout à fait le cas avec les données expérimentales : la relaxation est quasiment immédiate, elle est terminée après une seconde de maintien à déformation totale constante et entraîne une baisse de la charge inférieure à 30 MPa.

IV.1.c. Conclusions

Le jeu de paramètres identifié à 360°C permet de reproduire d'une manière très satisfaisante la courbe de traction et les cycles stabilisés en fatigue. Il représente le comportement du matériau pour le calcul des éprouvettes CT sollicitées à 320 et 400°C.

Les coefficients K et n sont dominés par les effets de vieillissement. Bien que la loi d'écoulement soit viscoplastique, ils ne produisent ni relaxation des contraintes, ni sensibilité à la vitesse. La relaxation des contraintes expérimentale est toutefois trop rapide pour faire intervenir d'une manière significative les effets d'environnement. L'erreur commise en la négligeant ne devrait donc pas influencer l'interprétation des résultats des calculs de structure.

IV.2. Identification des coefficients du modèle « une phase » à 550°C

IV.2.a. Confrontation aux résultats expérimentaux

Le jeu de paramètres du Tableau B-24 a été identifié à 550°C à partir d'un essai de traction et des cycles stabilisés en fatigue à 10^{-3} et 10^{-5} s^{-1}. Le comportement en relaxation a été pris en compte en intégrant, dans la base expérimentale, le dernier cycle à ±0,7% et 10^{-3} s^{-1} suivi du maintien à déformation nulle.

E	R_0	b	Q	K	n
MPa	MPa	-	MPa	$MPa.s^{1/n}$	-
188500	1,0	8,38	130	321	25,9

C_1	D_1	M_1	C_2	D_2	M_2	C_3	D_3	M_3	m
GPa	-	GPa	GPa	-	GPa	GPa	-	MPa	-
141	820	25,9	21,8	147	3,50	1,22	0,03	3,01	2,86

Tableau B-24 : Jeu de coefficients déterminé à 550°C

La contrainte visqueuse est élevée dans ce domaine de température (246 MPa à 10^{-3} s^{-1}). Pour reproduire les cycles de faible amplitude, il a donc fallu réduire R_0 à une valeur très faible, bien inférieure à la limite d'élasticité expérimentale. Celle-ci correspond en revanche à la somme $R_0 + \sigma_v$, la variable d'écrouissage isotrope étant encore négligeable dans ce domaine de déformation.

Les Figures B-40 et B-41 montrent un accord satisfaisant entre les résultats fournis respectivement par le modèle et l'expérience. Le modèle sous-estime légèrement la perte de charge en relaxation car, comme à 360°C, il a fallu trouver un compromis entre la viscosité mesurée en relaxation et la sensibilité quasiment nulle à la vitesse de déformation.

IV.2.b. Etude du jeu de coefficients identifié à 550°C

Le Tableau B-25 donne les valeurs caractéristiques de contrainte et de déformation liées aux coefficients du Tableau B-24. Les valeurs X_{iL} et p_{iL} ont été déterminées en simulant un essai de traction à 10^{-3} s^{-1} sur de très grandes déformations et en relevant directement l'évolution des variables X_i. Chaque valeur X_{iL} est, comme prévu, le produit de C_i par la solution α_{iL} de l'équation $g(a,w) = 0$ avec $w = 10^{-3}$ s^{-1} (voir Annexe B-a_4). Pour cette valeur de la température, les équations d'évolution des variables internes sont toujours valides.

X_1 10^{-3} s^{-1}		X_2 10^{-3} s^{-1}		X_3 10^{-3} s^{-1}		σ_v		σ_L	R_∞ =	p_c
X_{1L}	p_{1L}	X_{2L}	p_{2L}	X_{3L}	p_{3L}	10^{-3} s^{-1}	10^{-5} s^{-1}	10^{-3} s^{-1}	R_0+Q/2	10^{-3} s^{-1}
MPa	%	MPa	%	MPa	%	MPa	MPa	MPa	MPa	%
172	0,56	135	2,58	268	46,1	246	206	737	66	-

Tableau B-25 : Contraintes et déformations caractéristiques calculées à partir du jeu de coefficients déterminé à 550°C

IV.2.c. Conclusions

Le modèle « une phase » permet de reproduire d'une manière satisfaisante le comportement mécanique de l'Alliage 600 à 550°C en traction et en fatigue oligocyclique, compte tenu du cadre que l'on s'est fixé au début de ce chapitre.

IV.3. Modèle « une phase » : conclusions

Le modèle « une phase » a été utilisé à 25, 300, 360, 400, 550 et 600°C (voir Annexe B-a_5). Dans tous les cas il permet une reproduction satisfaisante du comportement en traction et des cycles stabilisés en fatigue, du moins lorsque l'amplitude est supérieure à ±0,2%. La fermeture du critère intervient cependant à toutes les températures, sauf à 550°C. Elle a été repoussée au-delà de 29% de déformation viscoplastique cumulée, soit en introduisant une contrainte visqueuse importante, soit en permettant une légère sous-estimation du module d'Young, de

manière à augmenter la valeur de R_0, tout en respectant l'amplitude de contrainte mesurée sur les cycles à ±0,2%.

L'amélioration des performances de la modélisation « une phase » implique l'introduction de termes supplémentaires dans les équations, par exemple un terme dépendant du temps (ou de la vitesse de déformation), qui représente les effets du vieillissement, en particulier la sensibilité à la vitesse de déformation et l'évolution de la limite d'écoulement au cours de la relaxation des contraintes. Comme il a été dit au début de ce chapitre, l'ajout de ces termes risque toutefois de ralentir les calculs en rendant délicate l'intégration des équations différentielles.

Les calculs de structure exposés dans le chapitre suivant font intervenir le modèle « une phase » tel qu'il a été présenté ici. On vérifiera a posteriori que les conditions de contrainte et de déformation du matériau en pointe de fissure correspondent à des données expérimentales correctement décrites par le modèle.

CHAPITRE B-4 :
COMPORTEMENT MECANIQUE DE L'ALLIAGE 600
CALCUL DE STRUCTURE

Dans la continuité de l'approche développée dans cette partie, ce chapitre est consacré à l'utilisation des modèles de comportement pour les calculs de structure, afin d'estimer a priori les champs de contrainte et de déformation en pointe de fissure, en fonction de la géométrie de l'éprouvette, de la température et des conditions de sollicitation mécanique.

L'objectif de ces calculs est double :

- aider à la définition des essais de propagation de fissure, qui seront présentés dans la suite de ce mémoire ; seuls les cycles effectivement utilisés lors des essais seront abordés ici, avec de plus une simulation à charge constante, pour évaluer l'effet de la composante de fluage indépendamment de la sollicitation cyclique ;

- confronter les résultats de ces essais aux sollicitations mécaniques déterminées par le calcul, afin de savoir si le comportement mécanique de l'Alliage 600, tel qu'il a été évalué expérimentalement, permet d'interpréter la présence d'effets d'environnement.

Seuls les coefficients déterminés précédemment ont été utilisés dans le cadre de ce chapitre ; le comportement mécanique est donc provisoirement découplé des effets d'environnement. Ceux-ci seront pris en compte, au vu des résultats des essais de propagation de fissure, dans les chapitres correspondants.

L'ensemble de ce chapitre se situe dans le cadre de la viscoplasticité confinée, c'est-à-dire que les éprouvettes restent globalement élastiques. La taille de la zone viscoplastique est suffisamment réduite pour que l'on puisse utiliser la mécanique linéaire de la rupture. Par ailleurs, malgré les faibles dimensions du volume de matière sollicité en pointe de fissure, on se place dans le cadre de la mécanique des milieux continus. Cette hypothèse pose de délicats problèmes d'interprétation des résultats, au regard des mécanismes physiques de déformation ou/ou de décohésion. Ce point sera abordé dans la première partie de ce chapitre, qui rappelle les principaux résultats dont on dispose pour l'analyse des champs mécaniques en pointe de fissure. La seconde partie décrit les conditions de calcul et en particulier les sollicitations mécaniques macroscopiques qui ont été simulées. Les résultats présentés dans les deux parties suivantes donnent des indications utiles à l'interprétation des données expérimentales obtenues dans les mêmes conditions de sollicitations mécaniques.

I. CADRE THEORIQUE DES CALCULS DE STRUCTURE

Les essais de propagation de fissure dans l'Alliage 600 font le plus souvent appel —c'est également le cas pour notre étude— à une sollicitation en mode d'ouverture (mode I), pour lequel il n'existe pas de détermination analytique explicite des champs de contrainte et de

déformation au voisinage immédiat de la pointe de la fissure. Plusieurs méthodes ont été développées pour donner des estimations approchées :

- par analogie avec le mode III (cisaillement parallèle au front de la fissure), pour lequel il existe des solutions analytiques ;
- résolution analytique approchée en imposant des conditions supplémentaires ;
- résolution numérique par calcul aux éléments finis.

Nous rappelons ici brièvement les principaux résultats et méthodes qui ont été utilisés pour définir les conditions de calcul de cette étude. Celle-ci s'appuie essentiellement sur les travaux de Rice [1967] pour l'aspect cyclique des sollicitations, de Riedel et Rice [1980] pour l'écoulement en fluage et de Rice et Johnson [1970] et McMeeking [1977] pour la modélisation de l'émoussement.

I.1. Mécanique linéaire de la rupture en fatigue

Rice [1967] a déterminé les champs de contrainte et de déformation au voisinage de la pointe d'une fissure dans un solide semi-infini. Il a étudié le cas d'un matériau élastoplastique soumis à un chargement cyclique proportionnel (Figure B-42a), en supposant la fissure parfaitement aiguë. La concentration de contrainte est donc infinie en pointe de fissure.

Rice cherche à évaluer la taille de la zone plastique dans le plan de propagation de la fissure. Il s'appuie en particulier sur les hypothèses suivantes :

- le champ des contraintes et de déformation est élastique, sauf dans la zone plastique proche de la pointe de la fissure ;
- l'écoulement est « proportionnel » en chaque point, c'est-à-dire que les différentes composantes du tenseur des déformations sont dans un rapport constant au cours du temps ;
- le matériau est élastique parfaitement plastique et le domaine d'élasticité est constant ; la contrainte d'ouverture est donc limitée à une valeur σ_0 en traction et à $-\sigma_0$ en compression, tout au long du chargement ;
- le déchargement ($-\Delta L$) n'entraîne pas de fermeture de la fissure.

Rice procède alors par addition des solutions obtenues respectivement pour le chargement (L) avec le matériau « vierge » (Figure B-42b) et pour le chargement ($L-\Delta L$) avec le matériau déformé plastiquement, dont la limite d'élasticité en compression a doublé par rapport à l'état initial (domaine d'élasticité constant, Figure B-42c). La taille ω de la zone plastique, c'est-à-dire sa dimension maximale, est estimée par l'équation suivante :

$\omega = \alpha \left(\frac{K_I(L)}{\sigma_0} \right)^2$ où α est une constante qui dépend du mode de sollicitation.

L'addition des deux champs des Figures B-42b et B-42c produit le champ de contraintes « réel » à la fin du déchargement à (L-ΔL) (Figure B-42d). La zone plastique en compression sera ensuite de nouveau chargée en traction lors du cycle suivant. L'évolution des champs de contrainte entre (L-ΔL) et L ne dépend ensuite plus que de ΔL. Rice tient compte par la suite du fait que le déchargement est partiellement élastique. Il estime alors que l'écoulement plastique en compression se produit au bout d'un déchargement d'environ 5%.

I.2. Intervention du fluage

Riedel et Rice [1980] ont analysé l'évolution des champs de contraintes et de déformation au voisinage de la pointe d'une fissure stationnaire, soumise à un chargement constant en mode d'ouverture. En utilisant une loi puissance pour l'écoulement en fluage, ils ont donné une approximation analytique de la taille et de la forme de la zone viscoplastique (Figure B-43) et montré qu'en viscoplasticité confinée, le paramètre de chargement pertinent reste le facteur d'intensité des contraintes K_I. Ils ont également proposé un critère de « réamorçage », qui correspond à une déformation critique ε_c atteinte à une distance critique R_c de la pointe de la fissure. R_c est supposée petite devant la taille de la zone viscoplastique.

La singularité subsiste mais elle est modifiée par rapport au champ « élastique » ; elle dépend de l'exposant de la loi de fluage. Si celle-ci est décrite par $\dot{\varepsilon}_p = B.\sigma^n$ en sollicitations uniaxiales et si le matériau obéit au critère de Von Misès, la singularité est en $r^{-1/(n+1)}$ en contrainte et en $r^{-n/(n+1)}$ en déformation. Par analogie avec les travaux de Hutchinson, Rice et Rosengren (HRR) sur la plasticité (décrite elle aussi avec une loi puissance), les champs sont encore repérés « HRR » par Riedel et Rice.

I.3. Résolution de la singularité des contraintes en pointe de fissure

La singularité du champ de contraintes en pointe de fissure, prédite par la mécanique linéaire de la rupture et, à une échelle plus locale, par Riedel et Rice ne correspond pas à une réalité physique à l'échelle de la microstructure, voire des mécanismes de déformation. Les contraintes élevées sont en fait relaxées par l'écoulement du matériau et en particulier par l'émoussement de la fissure. Rice et Thomson [1974] ont en effet montré, à l'aide d'un critère d'énergie, que dans les métaux de structure cubique à faces centrées, comme c'est le cas de l'Alliage 600, la fissure s'émousse spontanément par émission de dislocations dans la zone plastique.

Pour le mode d'ouverture, pour lequel il n'existe pas de solution analytique, deux méthodes sont été utilisées pour décrire l'émoussement : l'utilisation de lignes de glissement [Rice et Johnson 1970] et le calcul par éléments finis [McMeeking 1977]. Nous nous appuierons par la suite sur l'étude de McMeeking, qu'il a lui-même validée par rapport aux résultats de Rice et Johnson. McMeeking considère une fissure sollicitée en déformations planes. Il a montré

par ailleurs qu'il était possible de représenter la pointe de la fissure par une entaille (émoussement initial) de rayon ρ, les champs de contrainte et de déformation étant indépendants de ρ pourvu que celui-ci soit inférieur à un sixième de l'émoussement final, noté CTOD (crack tip opening displacement). McMeeking a approché la valeur de cet émoussement par la formule suivante :

$$CTOD \approx \frac{0{,}55 K_I^2}{E \sigma_y} \left(\frac{2}{\sqrt{3}} (1+\nu) \frac{1+N}{N} \frac{\sigma_y}{E} \right)^N \quad \text{pour} \quad \frac{\sigma_y}{E} = \frac{1}{300} .$$

ν est le coefficient de Poisson du matériau et N est l'exposant de la loi d'écrouissage en traction modélisée par $\sigma = k (\varepsilon_p)^N$.

Les valeurs du CTOD et de la contrainte d'ouverture sur le ligament, c'est-à-dire dans le plan de propagation de la fissure et en avant de celle-ci, sont comparées aux valeurs prédites par les approches de Rice et Johnson et de McMeeking (Figure B-44). Dans le cas de l'Alliage 600, $\sigma_y = Rp_{0,2\%}$ est de l'ordre de 400 MPa et E de 200 GPa ; σ_y/E est donc de l'ordre de 1/500. La valeur de *N* a été identifiée à partir des essais de traction, elle est de l'ordre de 0,06 à 0,15. On utilisera néanmoins la formule de McMeeking pour calculer le rayon initial à donner au maillage.

I.4. Application à la fissuration assistée par l'environnement

McClintock [1972] a proposé d'appliquer les approches précédentes à la propagation de fissure en fatigue-corrosion mais souligne plusieurs points importants :

- l'élaboration de critères de rupture, nécessaire dans le cadre de l'approche locale, nécessite une bonne connaissance des mécanismes et des paramètres qui les régissent, ce qui est rarement le cas en fatigue-corrosion ;

- la « longueur caractéristique » R_c de Riedel et Rice dépend, à travers le mode de rupture, des conditions mécaniques et électrochimiques ; il faut donc connaître en détail les champs mécaniques locaux ; dans le cas des sollicitations de fatigue-corrosion et de corrosion sous contrainte, le CTOD est de l'ordre de grandeur des longueurs caractéristiques de la microstructure (taille de grains, espacement entre bandes de glissement localisé...) ; en toute rigueur, on ne peut donc pas considérer le matériau comme homogène à cette échelle, alors même que l'on cherche à appliquer la mécanique des milieux continus.

L'approche tant globale que locale est donc difficile à mettre en œuvre lorsque l'on désire établir un critère de rupture à partir des caractéristiques de la microstructure et des conditions mécaniques et électrochimiques. Elle a néanmoins été employée avec les superalliages base nickel sous air à 650°C, en particulier l'Alliage N18 [Chassaigne 1997] ; le matériau est alors considéré comme homogène quelle que soit l'échelle et les approches précédentes ont été couplées à une équation de diffusion. A partir de déchargements partiels en fatigue-fluage, Chassaigne a obtenu avec l'approche de Rice une estimation de la taille de zone critique, telle qu'une fois cette zone passée en compression, le matériau n'est plus sensible aux effets d'environnement. La valeur obtenue, d'environ 6 µm, est probablement supérieure à celle de

la « zone affectée par l'environnement ». L'approche de Riedel et Rice a également été employée pour modéliser la vitesse de propagation des fissures et prédire ainsi la durée de vie des pièces en service [Hochstetter 1994, Chassaigne 1997].

Notre approche se situe dans le cadre proposé par McClintock. Dans un premier temps — c'est l'objet de ce chapitre— le calcul, par éléments finis, des éprouvettes CT soumises à différentes sollicitations mécaniques donne une estimation des champs de contrainte et de déformation en pointe de fissure, pour un matériau viscoplastique dont le comportement est décrit par le modèle « une phase ». Dans un second temps, ces résultats permettent d'interpréter les résultats expérimentaux de propagation de fissure, avec pour objectif final la proposition de mécanismes et/ou de critères de rupture applicables aux pièces en service.

D'une manière plus générale, on dispose alors d'un outil efficace pour déterminer le paramètre mécanique le plus pertinent vis-à-vis du couplage avec les effets d'environnement et « tester » par le calcul des critères de rupture liés à des mécanismes particuliers.

II. MISE EN ŒUVRE DES CALCULS

Tous les calculs de structure ont été effectués sur des géométries d'éprouvettes CT, en imposant une évolution de la charge en fonction du temps. Seuls diffèrent, d'un calcul à l'autre, les caractéristiques géométriques des éprouvettes, les sollicitations mécaniques et, à travers la température, le comportement du matériau.

II.1. Conditions géométriques

II.1.a. Maillages

Les deux géométries d'éprouvettes CT utilisées lors des essais ont été maillées en ne considérant qu'une demi-éprouvette pour des raisons de symétrie (Figure B-45). Le rapport de la longueur de la fissure à la longueur totale du ligament est de a/W = 0,4 ; il correspond au début des essais de propagation de fissure. Cette valeur est suffisamment élevée pour éviter les effets de petite fissure. Dans la continuité des approches précédentes, la fissure est considérée comme stationnaire, ce qui simplifie les calculs mais ne représente pas exactement la réalité.

Tous les calculs ont été effectués en deux dimensions, sous l'hypothèse des déformations planes. Celle-ci correspond à la situation rencontrée par le matériau au cœur de l'éprouvette, là où les sollicitations sont les plus favorables à la fissuration intergranulaire dans le milieu primaire [Rebak 1995a]. Le maillage utilise exclusivement des éléments quadrangulaires, quadratiques, à huit nœuds et intégration réduite (quatre points de Gauss par élément).

Les sollicitations mécaniques locales sont calculées en petites déformations, sur la géométrie réactualisée à chaque incrément, Achon [1994] ayant vérifié que l'erreur commise par rapport aux calculs en grandes déformations [McMeeking 1977] était faible.

II.1.b. Emoussement en pointe de fissure

Le calcul du CTOD à l'aide de la formule de McMeeking [1977] prévoit, pour une limite d'élasticité de 400 MPa et N = 0,06 à 0,15, un CTOD de 3 à 10 µm selon la charge appliquée. On a choisi de mailler un rayon d'entaille initial de 0,5 µm pour les chargements à 550°C et de 2 µm pour les chargements à 360°C, afin de s'assurer que l'on a bien $\rho \leq CTOD/6$ (Figure B-46), au moins pour les plus fortes charges appliquées.

II.2. Comportement du matériau

Le modèle de comportement « une phase » a été implanté dans le code de calcul ZéBuLon 6. Le passage du comportement uniaxial au comportement triaxial a été réalisé en supposant que le matériau obéit au critère de Von Misès. On a vu au début de l'étude [Huddleston 1993] que cette hypothèse est valide à haute température (816°C) et on supposera qu'il en est de même à plus basse température. Le caractère proportionnel des sollicitations mécaniques en pointe de fissure a fait l'objet d'une étude spécifique.

Les essais à 550°C ont été directement simulés avec les coefficients identifiés en traction-compression. Pour les essais à 320°C (milieu primaire) et 400°C (milieu gazeux), un seul jeu de coefficients a été utilisé, du fait que le comportement mécanique de l'Alliage 600 varie peu avec la température entre 300 et 400°C. Il correspond aux essais de traction-compression à 360°C.

II.3. Chargement mécanique

Les éprouvettes ont été chargées, comme lors des essais, par l'intermédiaire des goupilles. Une demi-goupille a donc été maillée et soumise à une pression uniforme sur sa face inférieure, correspondant à la force à appliquer par unité d'épaisseur (Figure B-47). Le contact est supposé parfait entre l'éprouvette et la demi-goupille. Celle-ci est supposée élastique (E = 200 GPa, ν = 0,3). La valeur maximale K_{max} du facteur d'intensité des contraintes a été vérifiée, pour chaque géométrie, par un calcul élastique de la structure et un lissage en déplacement le long des lèvres de la fissure. Cette méthode de calcul de K est valable dans la mesure où le maillage est très fin près de la pointe de la fissure. Les valeurs obtenues pour K correspondent aux valeurs calculées d'après les abaques disponibles pour les éprouvettes CT : l'écart est dans tous les cas inférieur à 1%.

II.3.a. Chargements utilisés à 550°C

Quatre calculs ont été menés, avec les chargements schématisés sur la Figure B-48. Les trois premiers correspondent aux essais cycliques, le dernier à un essai à charge constante (« fluage pur »), qui est utilisé avec les superalliages base nickel mais ne permet pas de faire propager de fissure dans l'Alliage 600 (voir le chapitre C-1 : étude bibliographique sur la fissuration à haute température).

Pour les simulations d'essais cycliques, l'éprouvette a été mise en charge à $K = K_{min}$, maintenue à K_{min} pendant dix minutes, puis quarante cycles ont été imposés pour obtenir une réponse stationnaire de la structure. Les valeurs K_{min} et K_{max} sont maintenues constantes tout au long du calcul, comme c'est le cas pour les essais. A titre indicatif, les calculs de fatigue-fluage durent approximativement 6 heures sur une station HP 735, de puissance équivalente à celle d'une station Sun Sparc 20 (125 Mips, 45 Mflops).

II.3.b. Chargements utilisés à 360°C

La première forme de cycle correspond aux essais en milieu gazeux à 400°C (Figure B-49a), les deux autres à la fin de l'essai dans le milieu primaire à 320°C (Figures B-49b et B-49c). Un calcul a également été mené à charge constante (Figure B-49d).

II.4. Exploitation des résultats

Le dépouillement des calculs s'est déroulé en deux temps : vérification des hypothèses de calcul, puis évaluation de l'influence de la température et des sollicitations mécaniques sur les champs de contrainte et de déformation en pointe de fissure. Le CTOD a été évalué à partir du déplacement des lèvres de la fissure, parallèlement à la direction de sollicitation macroscopique (axe y).

Les résultats occupant un espace disque important, seuls certains cycles ont été retenus pour le dépouillement. Il s'agit des cycles 1, 2, 3, 5, 10, 15, 20, 25, 30, 35 et 40. Les fichiers correspondants occupent, pour chaque calcul, entre trente et quatre-vingts mégaoctets d'espace disque.

A la fin des calculs, on a visualisé l'évolution des isovaleurs des différentes composantes des tenseurs de contrainte et de déformation, tracé les profils de contrainte sur le ligament, en avant de la pointe de la fissure et tracé l'évolution de la déformation, dans la zone viscoplastique, en fonction du temps.

III. RESULTATS OBTENUS A 550°C

Tout au long de ce chapitre, les différents nœuds sont repérés par leur position initiale, c'est-à-dire que l'on s'attache au point matériel lui-même et non à sa position géométrique après la déformation.

III.1. Déformation des éléments en pointe de fissure

La première condition vérifiée est l'allure de la déformée, en particulier en pointe de fissure. La Figure B-50 montre que les éléments en pointe de fissure gardent une géométrie relativement peu allongée à la charge maximale et que la rotation des éléments est limitée. Les variations de géométrie sont donc suffisamment modérées pour ne pas perturber les calculs en petites déformations.

L'émoussement de la fissure est de l'ordre de 3 µm à la charge maximale et de 10 µm pour les cycles stabilisés. Le CTOD atteint au bout de la première mise en charge est donc

supérieur à six fois le rayon d'entaille initial ρ et correspond à la valeur estimée par la formule de McMeeking. En termes d'émoussement, tout se passe donc comme si l'écoulement était plastique : la forme de la pointe de la fissure —estimée par le calcul— est conditionnée par la courbe de traction déterminée expérimentalement à 10^{-3} s^{-1} et modélisée avec la loi d'écoulement de Hollomon. Cela était prévisible dans la mesure où à 550°C le matériau est très peu sensible à la vitesse de déformation.

L'introduction de sollicitations cycliques et/ou d'un maintien à la charge maximale conduit à un émoussement progressif supplémentaire, les nœuds étant alors essentiellement en translation dès la seconde moitié du premier cycle. Le déplacement de la lèvre supérieure étant toujours strictement positif, supérieur à un micromètre, il n'y a pas de fermeture de la fissure lors du déchargement, même si on tient compte de l'oxydation.

III.2. Forme et étendue de la zone viscoplastique

Toutes les zones viscoplastiques obtenues à la charge maximale, avec les cycles stabilisés, ont l'allure indiquée sur la Figure B-50d. Celle-ci correspond à la description de Rice en fatigue et de Riedel et Rice en fluage.

La frontière de la zone viscoplastique a été identifiée à une isovaleur de la déformation viscoplastique cumulée $\varepsilon_{pcum} = \varepsilon_{min}$. Deux valeurs de « coupure » ont été choisies pour ε_{min} : 0,05% qui correspond au tout début de la déformation viscoplastique et 0,2%, qui correspond au fait que dans l'approche analytique la contrainte d'écoulement σ_y a été identifiée à la limite d'élasticité conventionnelle $Rp_{0,2\%}$. Etant donnée la capacité d'écrouissage importante de ce matériau, une seconde estimation a également été utilisée en prenant $\sigma_0 = 0,5.(Rp_{0,2\%} + Rm)$ dans la formule analytique, avec $\alpha = 0,036$ pour ω_x et $\alpha = 0,140$ pour ω_y (déformations planes, [Levy 1971]).

La taille de la zone viscoplastique a été déterminée selon les directions x et y, qui correspondent respectivement aux directions macroscopiques de propagation et de sollicitation. Deux cycles ont été choisis : le cycle 1 (première mise en charge) et le dernier cycle (ou la fin de l'essai de fluage pur) (Tableau B-26).

sollicitation K = 28MPa√m	estimation analytique	mise en charge	20-20 cycle 40	10-90-10 cycle 40	140-60-10 cycle 40	fluage pur 10320 s
ω_x (0,05%)	190 (Rp)	195	320	420	430	315
ω_x (0,2%)	120 (Rp+Rm/2)	35	100	120	150	45
ω_y (0,05%)	720 (Rp)	890	1210	1520	1530	1590
ω_y (0,2%)	480 à 510 (Rp+Rm/2)	440	540	745	760	820

Tableau B-26 : Taille de la zone viscoplastique (en µm) pour les simulations à 550°C

On vérifie que l'étendue de la zone viscoplastique est petite devant la longueur du ligament (W-a = 24 mm) et l'épaisseur de l'éprouvette réelle (10 mm). La condition de viscoplasticité confinée est donc remplie. On vérifie de même qu'aucune autre zone de l'éprouvette ne subit de déformation viscoplastique supérieure à 0,05%. On conçoit cependant aisément que lors de l'essai de fluage pur, la taille de la zone viscoplastique augmente continûment et que l'on finit par perdre le confinement ; l'éprouvette rompt alors en viscoplasticité généralisée. Ceci a effectivement été observé dans le cas de l'Alliage 600 dans ce domaine de température [Sadananda 1983].

La taille de la zone viscoplastique à la première mise en charge, c'est-à-dire après un chargement monotone, ω_y (0,05%), est conforme à l'estimation analytique de Levy et coll., obtenue également par éléments finis mais en plasticité. La poursuite de l'essai, en fatigue ou en fluage, conduit cependant à une augmentation significative de ω_x et ω_y. La comparaison entre les cycles 20-20 et 10-90-10 montre que la composante de fluage joue également un rôle important dans le développement de la zone viscoplastique après la mise en charge initiale.

III.3. Etat de contraintes dans le ligament

La Figure B-51 montre qu'à la charge maximale, la contrainte d'ouverture σ_{yy} et la contrainte hydrostatique σ_m prennent leur valeur maximale dans le plan de propagation de la fissure, c'est-à-dire sur le ligament. La contrainte équivalente est maximale sur les premiers éléments, à 60° environ du ligament. On se limitera dans la suite à l'étude des contraintes et des déformations dans le ligament, c'est-à-dire là où la fissure va ensuite se propager.

III.3.a. Caractère « proportionnel » du chargement

Les rapports entre les différentes composantes du tenseur des contraintes à la contrainte d'ouverture σ_{yy} ont été évalués en fonction du temps, en deux nœuds du ligament : le nœud 14 est situé initialement à 1,5 µm de la pointe de la fissure et représente les nœuds les plus « proches » de la pointe. Le nœud 525 est plus éloigné (5,23 µm), il est situé à une demi-taille de grains (pour les grains plus fins).

Les valeurs de σ_{xy} sont très faibles (quelques MPa) et seront négligées. Le tenseur des contraintes est donc diagonal, ce qui signifie que les axes x, y et z (ce dernier étant parallèle à l'épaisseur de l'éprouvette réelle) restent les axes principaux du chargement.

Les valeurs des rapports $\sigma_{yy} / \sigma_{xx}$ et $\sigma_{yy} / \sigma_{zz}$ sont reportées sur le Tableau B-27, à titre d'exemple, pour les cycles 20-20 et 140-60-20. Elles varient peu pour le nœud 525, sauf $\sigma_{yy} / \sigma_{xx}$ qui augmente continûment. La tendance est la même pour le nœud 14, avec cependant des fluctuations plus importantes à l'intérieur d'un même cycle. Dans tous les cas on retrouve à chaque cycle la relation propre aux déformations planes $\sigma_{zz} = \nu.(\sigma_{xx} + \sigma_{yy})$ avec $\nu \approx 0,5$ dès que le nœud est repassé en viscoplasticité. Les passages des contraintes par zéro provoquent en revanche des perturbations importantes.

	nœud 14 (1,5 µm)		nœud 525 (5,25 µm)	
cycles	20-20	140-60-20	20-20	140-60-20
$\sigma_{yy} / \sigma_{xx}$	2,5 à 4,0	2,6 à 4,5	1,7 à 2,2	1,7 à 2,3
$\sigma_{yy} / \sigma_{zz}$	1,6 à 1,8	1,6 à 1,9	$\approx$ 1,3	$\approx$ 1,4
$\sigma_{zz} / (\sigma_{xx} + \sigma_{yy})$ en plasticité	0,48	0,48 à 0,45	0,49	0,49

Tableau B-27 : Evolution des rapports entre les différentes composantes du tenseur des contraintes au cours des simulations à 550°C

Le chargement en un point donné est donc sensiblement proportionnel dès que l'on s'éloigne de quelques micromètres de la pointe de la fissure.

III.3.b. Evolution du taux de triaxialité des contraintes

Le taux de triaxialité est le rapport de la contrainte hydrostatique σ_m à la contrainte équivalente σ_{eq}, calculée ici avec le critère de Von Misès. A la charge maximale, il atteint lui aussi son maximum sur le ligament ; il dépend peu des conditions de sollicitation mécanique et diminue au fur et à mesure que les cycles se succèdent. Il augmente cependant en fluage et au cours des maintiens à la charge maximale (Tableau B-28). On retrouve la même tendance pour le taux de triaxialité minimal en compression, pour $K = K_{min}$.

sollicitation	20-20	10-90-10	140-60-20	fluage pur
cycle 1 $K = K_{max}$	3,05	3,03	3,12	fin de l'essai
cycle 40 début du plateau	2,60	2,93	2,68	3,53
cycle 40 fin du plateau	-	2,85	2,73	
cycle 40 $K = K_{min}$	-1,98	-2,04	-2,01	

Tableau B-28 : Valeurs extrêmes du taux de triaxialité des contraintes en début et en fin de simulation à 550°C

L'état de déformations planes entraîne comme prévu un taux de triaxialité des contraintes élevé, voisin de 3, en pointe de fissure. La contrainte hydrostatique est donc élevée à la charge maximale. Le tenseur des contraintes peut être décrit par ses trois composantes diagonales, ce qui signifie que les axes x, y et z demeurent les axes principaux des contraintes tout au long de la simulation. Deux seulement des composantes du tenseur des contraintes sont indépendantes. On choisit de les caractériser par la donnée de la contrainte d'ouverture σ_{yy} et de la contrainte hydrostatique $\sigma_m = (\sigma_{xx} + \sigma_{yy} + \sigma_{zz}) / 3$, qui sont toutes deux susceptibles d'intervenir dans les mécanismes de rupture. La contrainte équivalente est prise en compte à travers l'évolution de la déformation viscoplastique cumulée.

III.4. Evolution de la contrainte d'ouverture sur le ligament

III.4.a. Répartition de la contrainte d'ouverture sur le ligament

On s'intéresse ici au niveau de la contrainte d'ouverture, dont la plus grande part est en fait due à la composante hydrostatique. On considère donc en priorité la répartition et l'évolution de cette contrainte dans le temps, en comparant les courbes obtenues pour les différentes formes de cycle. Les niveaux précis de contrainte dépendent peut-être des conditions de calcul, ce qui n'a pas été vérifié ici.

Cycles de fatigue continue 20-20

La Figure B-52a montre le profil obtenu immédiatement après la première montée en charge ($K = K_{max}$). On retrouve l'effet de l'émoussement prévu en plasticité par Rice et Johnson, puis par McMeeking : la contrainte passe par un maximum situé à une distance x_M de la pointe de la fissure : pour $Rp/E = 0{,}0025$ (soit dans le cas présent $Rp = 450$ MPa) et $K_{max} = 28 MPa\sqrt{m}$, Rice et Johnson ont trouvé respectivement :

- pour $N = 0{,}1$: $(\sigma_{yy})_{max} \approx 3{,}5\ Rp$ et $x_M \approx 10{,}8\ \mu m$;
- pour $N = 0{,}2$: $(\sigma_{yy})_{max} \approx 5\ Rp$ et $x_M \approx 5{,}4\ \mu m$.

Dans notre cas, $(\sigma_{yy})_{max}$ est bien compris entre 3,5 et 5 Rp ; x_M est égal à 3,9 µm avec une incertitude de l'ordre de 1 µm ; les résultats sont donc conformes à ceux de Rice et Johnson. Comme pour l'émoussement, tout se passe comme si le matériau était plastique.

La Figure B-52b montre que dès le premier incrément de déchargement, c'est-à-dire à $\Delta K \approx 3{,}5\%.K_{max}$, la pointe de la fissure passe en compression, comme l'a suggéré Rice en plasticité parfaite. Le caractère cinématique de l'écrouissage limite cependant le niveau des contraintes de compression, qui reste inférieur en valeur absolue à celui obtenu en traction à la charge maximale.

La Figure B-52c montre que la valeur de la contrainte maximale d'ouverture varie peu d'un cycle à l'autre (Tableau B-29), tandis que x_M augmente progressivement jusqu'à atteindre environ 10 µm. Le gradient de contrainte près de la surface de la fissure est donc de moins en moins important et la zone la plus sollicitée s'éloigne lentement de la pointe de la fissure. Cet éloignement est lié à l'augmentation de l'émoussement, x_M restant toujours compris entre une et deux fois le CTOD.

	cycle 1			cycle 2			cycle 40		
sollici-tation	$(\sigma_{yy})_{max}$ (MPa)	x_M (µm)	x_M / CTOD	$(\sigma_{yy})_{max}$ (MPa)	x_M (µm)	x_M / CTOD	$(\sigma_{yy})_{max}$ (MPa)	x_M (µm)	x_M / CTOD
20-20	1586	3,9	1,0	1588	6,6	1,4	1595	11,2	1,5
10-90-10 déb. K_{max}*	1603	3,9	1,0	1608	3,9	0,8	1529	11,2	1,3
10-90-10 fin K_{max}*	1282	11,2	2,5	1225	11,2	2,3	1257	11,2	1,2
140-60-20 déb. K_{max}	1531	3,9	0,9	1501	4,6	1,0	1355	15,3	1,6
140-60-20 fin K_{max}	1280	11,2	2,5	1261	11,2	2,3	1269	19,4	2,1
fluage	t = 0 seconde			t = 10 secondes			t = 10320 secondes		
	1586	3,9	1,0	1324	6,6	1,5	968	11,2	2,0

*déb. (fin) K_{max} : début (fin) du temps de maintien à K_{max}

Tableau B-29 : Contrainte d'ouverture sur le ligament : simulations à 550°C

Effet d'un temps de maintien à la charge maximale

La Figure B-53 montre que les trois autres conditions de sollicitation conduisent également à l'existence d'un maximum de la contrainte d'ouverture, à la charge maximale. Les valeurs de x_M au début du temps de maintien dépendent de la mise en charge et non de la forme du cycle. Au cours du maintien à la charge maximale, le pic de contrainte s'élargit et son sommet continue à s'éloigner de la pointe de la fissure, toujours en lien avec l'évolution du CTOD. On retrouve le même résultat en fluage pur (Figure B-53c).

L'état de contraintes au voisinage immédiat de la pointe est perturbé au tout début du temps de maintien par des artefacts numériques. On constate néanmoins que la contrainte d'ouverture diminue nettement au cours du maintien, au-delà des premiers micromètres en avant de la pointe de la fissure.

Les profils et les niveaux de contrainte sont par ailleurs sensiblement les mêmes pour les deux cycles de fatigue-fluage, que l'on ne saurait donc « départager » en termes de contrainte d'ouverture.

III.4.b. Courbes contrainte-déformation dans la direction de sollicitation

Pour étudier le trajet de chargement en termes de déformation, nous avons choisi le nœud 525, situé sur le ligament et initialement à 5,23 µm (soit la moitié de la taille des grains les plus fins) de la pointe de la fissure. Sa position est « typique » en ce que le maximum de la contrainte passe par ce nœud au cours des premiers cycles. Il est par ailleurs suffisamment éloigné pour ne pas être affecté par des artefacts numériques au début des temps de maintien.

L'évolution de la contrainte d'ouverture σ_{yy} en fonction de la déformation totale ε_{yy} est reportée sur les Figures B-54 à B-56 pour les trois formes de cycle. On constate que dans tous les cas la contrainte d'ouverture moyenne par cycle évolue peu et reste positive, entraînant un effet de rochet qui s'atténue cependant d'un cycle à l'autre. Les boucles sont de plus en plus « arrondies », tandis que l'amplitude et le maximum de contrainte diminuent une fois que x_M a dépassé 5,23 µm. Le temps de maintien conduit à une relaxation importante des contraintes, le matériau étant comme prévu sollicité localement en fatigue-relaxation. Les deux cycles macroscopiques de fatigue-fluage donnent ici encore des résultats similaires, avec une diminution des amplitudes de contrainte et de déformation par rapport au cycle de fatigue continue.

Dans tous les cas l'amplitude de déformation totale par cycle n'excède pas quelques pour-cent et correspond aux essais de fatigue oligocyclique de la base expérimentale.

L'essai de fluage pur (Figure B-57) a été affecté par des perturbations d'origine numérique lors des changements de pas de temps. On constate que malgré la relaxation importante de la contrainte d'ouverture, le matériau ne cesse de se déformer en pointe de fissure.

III.5. Evolution de la contrainte hydrostatique sur le ligament

Comme la contrainte d'ouverture, la contrainte hydrostatique passe par un maximum qui s'éloigne, d'un cycle à l'autre, de la pointe de la fissure. La distance x_H de ce maximum à la pointe est égale ou légèrement supérieure à x_M (Figures B-58 et B-59). Le temps de maintien à K_{max} réduit la contrainte hydrostatique sur les premiers microns, le matériau passant en compression au bout de 30 secondes en 140-60-20 et de 50 secondes en 10-90-10. Cet effet apparaît à chaque cycle. En fluage pur, la contrainte hydrostatique reste supérieure à 250 MPa au cours des 10320 secondes de fluage que dure l'essai simulé. Les valeurs respectives de $(\sigma_m)_{max}$ et de x_H sont reportées sur le Tableau B-30. La diminution de la contrainte d'ouverture lors des temps de maintien est due en grande partie à la baisse de la contrainte hydrostatique.

	cycle 1			cycle 2			cycle 40		
sollici-tation	$(\sigma_m)_{max}$ (MPa)	x_H (µm)	x_H / CTOD	$(\sigma_m)_{max}$ (MPa)	x_H (µm)	x_H / CTOD	$(\sigma_m)_{max}$ (MPa)	x_H (µm)	x_H / CTOD
20-20	1312	3,9	1,0	1318	6,6	1,4	1222	11,2	1,5
10-90-10 déb. K_{max}*	1325	3,9	1,0	1299	6,6	1,4	1147	11,2	1,3
10-90-10 fin K_{max}*	1057	11,2	2,5	948	11,2	2,3	968	19,4	2,1
140-60-20 déb. K_{max}	1262	3,9	0,9	1227	6,6	1,4	1094	11,2	1,2
140-60-20 fin K_{max}	1053	11,2	2,5	1026	11,2	2,3	971	19,4	2,1
fluage	t = 0 seconde			t = 10 secondes			t = 10320 secondes		
	1312	3,9	1,0	1075	8,9	2,1	814	11,2	2,0

*déb. (fin) K_{max} : début (fin) du temps de maintien à K_{max}

Tableau B-30 : Contrainte hydrostatique sur le ligament : simulations à 550°C

III.6. Evolution de la déformation viscoplastique cumulée

La vitesse de déformation viscoplastique cumulée a été évaluée par différences finies entre les incréments de déformation correspondant aux différents pas du calcul. Elle évolue au cours d'un même cycle et dépend de la sollicitation imposée (Tableau B-31). En fluage pur, elle passe au-dessous de 10^{-5} s^{-1} au bout d'environ 2000 secondes. La composante de fatigue amène plus rapidement le matériau à une déformation « lente » en relaxation, sans doute par l'introduction d'une contrainte seuil avec l'écrouissage cinématique.

sollicitation	20-20	10-90-10	140-60-20	fluage pur
montée en charge	1 à 5. 10^{-3}	1 à 9. 10^{-3}	1 à 7. 10^{-4}	-
maintien à K_{max}	-	10^{-4} à 10^{-5}	10^{-4} à quelques 10^{-6}	quelques 10^{-6}
déchargement	1 à 4. 10^{-3}	1 à 8. 10^{-3}	1 à 5. 10^{-3}	-

Tableau B-31 : Evolution de la vitesse de déformation viscoplastique cumulée (s^{-1}) en fonction de la sollicitation macroscopique simulée à 550°C

III.7. Discussion : application aux essais de propagation de fissure

Les sollicitations mécaniques déterminées en pointe de fissure en fatigue continue, en fatigue-fluage et en fluage pur à 550°C sont proches de celles pour lesquelles a été identifié le modèle de comportement « une phase » :

- le chargement est proportionnel, au moins dans le plan de propagation de la fissure ;
- le matériau est sollicité en traction, en fatigue oligocyclique et en fatigue-relaxation ;
- les amplitudes de déformation ne dépassent pas quelques pour-cent par cycle ;
- les valeurs de la vitesse de déformation viscoplastique cumulée s'étendent entre quelques 10^{-6} et quelques 10^{-3} s^{-1}.

La base expérimentale sur laquelle a été identifié le modèle est donc suffisante.

La limite d'élasticité $Rp_{0,2\%}$ du matériau étant peu élevée, la fissure s'émousse dans les conditions prévues par McMeeking pour les matériaux élastoplastiques écrouissables ; les sollicitations cycliques et le fluage induisent un émoussement supplémentaire qui peut faire tripler la valeur du CTOD par rapport à la première mise en charge. On conçoit donc qu'il est impératif de faire « amorcer » la propagation, en particulier sous charge constante, avant que l'émoussement fasse chuter le niveau des contraintes locales.

La contrainte d'ouverture σ_{yy} et la contrainte hydrostatique σ_m sont maximales sur le ligament lorsque $K = K_{max}$. Le maximum n'est pas atteint en surface mais à une distance notée x_M pour σ_{yy} et x_H pour σ_m. x_M vaut environ 4 µm au premier cycle et 10 µm sur les derniers cycles ; le temps de maintien à K_{max} éloigne encore le pic et x_M atteint environ 20 µm. D'une manière générale, x_H est à peine plus élevé que x_M. Ce déplacement des pics de contrainte entraîne également une atténuation du gradient de contraintes au voisinage immédiat de la surface de la fissure.

Il semble difficile de départager les différents cycles en termes de niveaux de contrainte et d'amplitude de déformation, bien que le maintien à la charge maximale abaisse les valeurs de σ_{yy} et σ_m. La forme du cycle devrait donc très peu influencer la vitesse de propagation de la fissure si celle-ci est gouvernée par un critère en contrainte.

L'effet de la forme de cycle sur la vitesse de déformation viscoplastique cumulée est en revanche très important : les composantes de fatigue des cycles 20-20 et 10-90-10 produisent une déformation « rapide » (quelques 10^{-3} s^{-1}) tandis que le maintien à la charge maximale aboutit à des vitesses de déformation inférieures à 10^{-5} s^{-1} au bout de quelques dizaines de secondes. Le cycle 140-60-20 produit un résultat intermédiaire : la déformation « rapide » est inférieure à 7.10^{-4} s^{-1} et la déformation « lente » se produit plus tôt au cours du maintien à K_{max}. Il faut en revanche 2000 secondes pour parvenir au même résultat en fluage pur. L'effet de la forme du cycle devrait donc être important si la vitesse de propagation de la fissure est gouvernée par la vitesse de déformation viscoplastique locale. On distingue ici un avantage important des cycles de fatigue-fluage qui permettent de produire « rapidement » une

déformation « lente », mais aussi de parcourir à chaque cycle une gamme étendue de vitesses de déformation, qui peut donner lieu à des effets d'environnement.

Le matériau se déforme continûment quelle que soit la sollicitation mécanique imposée. Le déplacement cyclique des maxima des pics de contraintes et les variations de la vitesse de déformation au cours du temps suggèrent de classer les cycles en fonction d'un « temps utile », dépendant du mécanisme de rupture considéré, au cours duquel la vitesse de déformation à une distance donnée de la pointe de la fissure se situe dans une gamme de vitesses « lentes », telles que les effets d'environnement puissent intervenir. Ce « temps utile » peut se retrouver dans les différentes composantes de la sollicitation appliquée :

- lors des maintiens à la charge maximale, lorsque la déformation devient « lente » ;
- lors de la mise en charge, en particulier pour le cycle 140-60-20, au cours de laquelle une part importante de la déformation pourrait être due à un mécanisme de fluage.

L'utilisation des trois formes de cycles pour déterminer les effets relatifs de ces deux composantes est reportée sur le Tableau B-32.

cycle	20-20	10-90-10	140-60-20
déformation composante de fatigue	« rapide » ($> 10^{-3}\ s^{-1}$)	« rapide » ($> 10^{-3}\ s^{-1}$)	déchargement « rapide » ($> 10^{-3}\ s^{-1}$)
déformation « lente » composante de fluage	-	maintien à K_{max} ($< 10^{-5}\ s^{-1}$)	montée en charge « lente » ($< 7.10^{-4}\ s^{-1}$) maintien à K_{max} ($< 10^{-5}\ s^{-1}$)

Tableau B-32 : Utilisation des formes de cycle pour les essais de propagation de fissure à 550°C

IV. RESULTATS OBTENUS A 360°C

IV.1. Déformation des éléments en pointe de fissure

Comme à 550°C, on s'est assuré que les éléments en pointe de fissure gardaient un rapport d'élancement modéré et que les rotations étaient suffisamment limitées pour justifier un calcul en petites déformations avec géométrie réactualisée.

Le CTOD lors de la mise en charge est de l'ordre de 4 à 5 µm pour $K_{max} = 28$ MPa$\sqrt{m}$ et de 9 à 11 µm pour $K_{max} = 44{,}5$ MPa$\sqrt{m}$. Malgré la valeur élevée de l'émoussement initial, ces valeurs sont seulement un peu plus élevées que les prédictions données par la formule de McMeeking : 3 à 3,7 µm à 28 MPa$\sqrt{m}$ et 7,5 à 9,4 µm à 45 MPa$\sqrt{m}$, avec respectivement $N = 0{,}15$ et $N = 0{,}1$. Après la mise en charge, l'ensemble des nœuds situés sur la lèvre de la fissure, à plus d'un micromètre de la pointe, subit simplement un mouvement de corps rigide.

Pour les cycles 20-20, le CTOD est sensiblement le même à 550°C et à 360°C, ce qui traduit le fait que les comportements en traction à ces deux températures sont proches l'un de l'autre et gouvernent l'émoussement lors de la mise en charge. Comme à 550°C, l'accumulation des cycles induit un émoussement supplémentaire, d'autant plus élevé que le rapport de charge est faible : le CTOD est multiplié par 1,9 au bout de 40 cycles 20-20 (R = 0,3) et seulement par 1,1 après 40 cycles 250-10 ou 250-300-10 (R = 0,8).

IV.2. Forme et étendue de la zone viscoplastique

Pour toutes les conditions de chargement simulées, la zone viscoplastique a la forme générale décrite sur la Figure B-60, identique à celle de la Figure B-50d (550°C). Son étendue correspond aux valeurs prédites par les formules analytiques (Tableau B-33). Les sollicitations ultérieures de fatigue et/ou de fluage modifient peu les dimensions de la zone viscoplastique lorsque R = 0,8. Ceci est sans doute dû au fait que le modèle de comportement à 360°C n'autorise ni le fluage, ni la restauration des contraintes internes au cours du temps. Par ailleurs la viscoplasticité reste confinée à la pointe de la fissure, même pour le chargement le plus élevé.

sollicitation	estimation analytique	mise en charge	20-20 cycle 40	mise en charge	250-10 cycle 40	250-300-10 cycle 40	fluage 10000 s
K_{max} (MPa$\sqrt{m}$)	28 / 45	28	28	44,5	44,5	44,5	44,5
ω_x (0,05%)	185 / 465 (Rp)	190	310	475	490	495	310
ω_x (0,2%)	110 / 275 (Rp+Rm/2)	45	100	110	155	160	110
ω_y (0,05%)	720 / 1815 (Rp)	780	805	1825	1830	1835	1825
ω_y (0,2%)	430 / 1080 (Rp+Rm/2)	400	470	1000	1020	1020	1005

Tableau B-33 : Taille de la zone viscoplastique (en µm) en fonction des sollicitations mécaniques à 360°C

IV.3. Etat de contraintes dans le ligament

La répartition des contraintes, notamment des maxima, dans le plan (x,z) est comparable à celle obtenue à 550°C. On se limitera donc ici encore à l'étude du ligament.

IV.3.a. Caractère « proportionnel » du chargement

Comme à 550°C, le chargement est sensiblement proportionnel le long du ligament et on a toujours $\sigma_{zz} = \nu (\sigma_{xx} + \sigma_{yy})$ avec $\nu = 0,5$ en viscoplasticité. Les rapports entre les différentes

composantes sont proches des valeurs obtenues à 550°C avec une augmentation progressive du rapport $\sigma_{yy} / \sigma_{xx}$. Le Tableau B-34 donne à titre d'exemple les valeurs relevées à 5,8 µm de la pointe de la fissure. La contrainte de cisaillement σ_{xy} est ici aussi de quelques MPa sur toute l'éprouvette et sera négligée. Les axes x, y et z restent donc les axes principaux du chargement sur l'ensemble du ligament.

	nœud 24 (5,8 µm)	
cycles	20-20 (28 MPa√m)	250-300-10 (44,5 MPa√m)
$\sigma_{yy} / \sigma_{xx}$	1,6 à 2,7	1,5 à 1,8
$\sigma_{yy} / \sigma_{zz}$	1,4 à 2,6	1,6 à 1,8
$\sigma_{zz} / (\sigma_{xx} + \sigma_{yy})$ en plasticité	≈ 0,5	≈ 0,5

Tableau B-34 : Evolution des rapports entre les différentes composantes du tenseur des contraintes au cours des simulations à 360°C

IV.3.b. Evolution du taux de triaxialité des contraintes

Le taux de triaxialité des contraintes prend également son maximum (à K_{max}) et son minimum (à K_{min}) sur le ligament. La valeur maximale dépend peu de la sollicitation et tend, sauf en fluage, à diminuer au cours du temps. La valeur minimale ne dépend que du rapport de charge (Tableau B-35).

sollicitation	20-20	250-10	250-300-10	fluage pur
$R = K_{min} / K_{max}$	0,3	0,8	0,8	fin de l'essai
cycle 1 $K = K_{max}$	2,73	2,89	2,89	2,98
cycle 40 début du plateau	2,62	2,66	2,69	
cycle 40 fin du plateau	-	-	2,69	
cycle 40 $K = K_{min}$	-2,05	-1,00	-1,00	

Tableau B-35 : Valeurs extrêmes du taux de triaxialité des contraintes en début et en fin de simulation à 360°C

IV.4. Evolution de la contrainte d'ouverture sur le ligament

IV.4.a. Répartition de la contrainte d'ouverture sur le ligament

Le modèle de comportement ne permettant pas au matériau de se déformer sous contrainte équivalente constante à 360°C, l'effet du temps de maintien est très faible (Tableau B-36). La Figure B-61 en montre un exemple pour les derniers cycles à R = 0,8 en fatigue continue et

en fatigue-fluage. L'essai de fluage ne conduit ni à une redistribution significative des contraintes ni à une augmentation de la déformation viscoplastique cumulée.

	cycle 1			cycle 2			cycle 40		
sollici-tation	$(\sigma_{yy})_{max}$ (MPa)	x_M (µm)	x_M / CTOD	$(\sigma_{yy})_{max}$ (MPa)	x_M (µm)	x_M / CTOD	$(\sigma_{yy})_{max}$ (MPa)	x_M (µm)	x_M / CTOD
20-20	1454	11,7	2,7	1494	11,7	2,5	1585	11,7	1,4
250-10 $K = K_{max}$	1503	18,8	1,9	1470	15,2	1,6	1297	11,7	1,1
250-300-10 déb. K_{max}*	1503	18,8	1,9	1468	7,0	0,7	1262	11,7	1,1
250-300-10 fin K_{max}*	1481	29,4	3,0	1447	29,4	3,0	1267	11,7	1,1

*déb. (fin) K_{max} : début (fin) du temps de maintien à K_{max}

Tableau B-36 : Contrainte d'ouverture sur le ligament : simulations à 360°C

Cycles « rapides » 20-20

Comme à 550°C, la courbe $\sigma_{yy} = f(x)$ à la charge maximale passe par un maximum (Figure B-62). Celui-ci est situé à x_M = 1,4 à 2,7. CTOD. Sa position varie peu au cours de la simulation (Figure B-62c) et correspond au caractère « stationnaire » de la zone viscoplastique à 360°C. Il suffit ici encore de décharger l'éprouvette de quelques pour-cent pour faire chuter la contrainte d'ouverture au voisinage immédiat de la pointe de la fissure.

cycles « lents » 250-10 et 250-300-10

La tendance est la même que pour les cycles 20-20, avec cependant un pic moins prononcé et plus étendu. L'incertitude sur la position x_M du maximum est donc très importante. Malgré la valeur élevée du rapport de charge, la pointe de la fissure est en compression à la charge minimale (Figure B-63) mais une contrainte élevée subsiste au-delà de quelques dizaines de micromètres, c'est-à-dire dans la majeure partie de la zone viscoplastique.

IV.4.b. Courbes contrainte-déformation dans la direction de sollicitation

Deux nœuds ont été choisis parmi ceux qui composent le ligament : le nœud 15 est initialement situé à 4,7 µm de la pointe et permet la comparaison avec les calculs à 550°C. Le nœud 51 est situé plus loin (11,7 µm), dans la zone où la contrainte d'ouverture est maximale. Ceci était également le cas du nœud étudié à 550°C, du moins lors des premiers cycles.

Cycles « rapides » 20-20

Le nœud 15 est situé dans la zone très déformée, où le taux de triaxialité est suffisamment modéré pour que l'amplitude des déformations dans la direction d'ouverture soit de l'ordre de 3 à 4% par cycle (Figure B-64a). La déformation viscoplastique cumulée dans cette zone est donc importante. Le nœud 51 subit des boucles plus aiguës, qui correspondent à une amplitude de déformation nettement plus faible (0,3 à 1% par cycle, Figure B-64b).

Cycles « lents » 250-10 et 250-300-10

Comme pour les cycles 20-20, l'amplitude de la contrainte d'ouverture a tendance à croître, même lorsque le nœud n'est plus dans la zone la plus sollicitée dans cette direction (Figure B-65a) et que l'amplitude de déformation diminue. Le rapport de charge élevé n'empêche pas la contrainte minimale d'être négative lors des derniers cycles mais les premiers cycles se déroulent entièrement en traction dans cette direction. Les parties « horizontales » des boucles de la Figure B-65 ne correspondent pas à une déformation de fluage mais à une redistribution des contraintes qui intervient à la fin de la mise en charge. On les retrouve également avec les cycles 250-10.

IV.5. Evolution de la contrainte hydrostatique sur le ligament

Avec les cycles 20-20 on trouve comme à 550°C que la courbe $\sigma_m = f(x)$ passe par un maximum à une distance x_H de la pointe de la fissure mais à 360°C on a $x_H = x_M$ (au pas du maillage près). Les valeurs de x_H sont constantes au cours de la simulation. Les valeurs de la contrainte hydrostatique maximale sont plus basses qu'à 550°C (1160 à 1230 MPa au lieu de 1222 à 1312 MPa, voir Tableau B-37).

Au cours des cycles « lents » les profils de contrainte hydrostatique sur le ligament sont très « plats », comme ceux de la contrainte d'ouverture et il est difficile de déterminer x_M et x_H avec précision et surtout de les comparer ; x_H est cependant généralement plus élevée que x_M. La contrainte hydrostatique est relaxée au fur et à mesure que les cycles s'accumulent, passant de 1232 MPa au premier cycle, aux environs de 930 MPa à la charge maximale lors du dernier cycle. Le temps de maintien à la charge maximale influence peu les valeurs de $(\sigma_m)_{max}$ et x_H.

	cycle 1			cycle 2			cycle 40		
sollici-tation	$(\sigma_m)_{max}$ (MPa)	x_H (µm)	x_H / CTOD	$(\sigma_m)_{max}$ (MPa)	x_H (µm)	x_H / CTOD	$(\sigma_m)_{max}$ (MPa)	x_H (µm)	x_H / CTOD
20-20	1189	11.7	2.7	1214	11.7	2.5	1162	11.7	1.4
250-10 $K = K_{max}$	1232	18.8	1.9	1191	18.8	1.9	935	29.4	2.7
250-300-10 déb. K_{max}*	1232	18.8	1.9	1173	29.4	3.0	921	29.4	2.7
250-300-10 fin K_{max}	1219	29.4	3.0	1181	29.4	3.0	931	29.4	2.6

*déb. (fin) K_{max} : début (fin) du temps de maintien à K_{max}

Tableau B-37 : Contrainte hydrostatique sur le ligament : simulations à 360°C

IV.6. Evolution de la déformation viscoplastique cumulée

Les données reportées dans le Tableau B-38 montrent qu'au cours des cycles 20-20 le matériau au nœud 15 est déformé rapidement. La déformation est plus lente au cours des la montée en charge des cycles « lents ». Comme prévu aucune vitesse de déformation viscoplastique n'a pu être mise en évidence au cours des maintiens à la charge maximale. Il en est de même en fluage pur.

sollicitation	20-20	250-10	250-300-10
montée en charge	10^{-3} à 10^{-2}	10^{-5} à 10^{-4}	10^{-5} à 10^{-4}
maintien à K_{max}	-	-	$< 10^{-7}$
déchargement	10^{-3} à 10^{-2}	10^{-4} à quelques 10^{-3}	10^{-4} à quelques 10^{-3}

Tableau B-38 : Evolution de la vitesse de déformation viscoplastique cumulée (s^{-1}) en fonction de la sollicitation simulée à 360°C

IV.7. Discussion : application aux essais de propagation de fissure

Les conditions de sollicitation subies par les éléments de volume en pointe de fissure sont, comme à 550°C, proches de celles qui ont été testées sur éprouvettes lisses et représentées par le modèle de comportement. Celui-ci est en fait plus proche de la plasticité que de la viscoplasticité et fait peu intervenir le temps. La redistribution des contraintes au cours des cycles modifie les niveaux de contrainte mais n'affecte quasiment pas la position de la zone la plus sollicitée. On constate en particulier qu'une éprouvette CT sollicitée à charge

constante présente avec ce modèle une vitesse de déformation viscoplastique nulle en pointe de fissure une fois la montée en charge terminée.

La déformation « lente » qui ne peut être produite par maintien à charge constante (comme c'est en revanche le cas à 550°C) est ici imposée par les montées en charge « lentes » des cycles 250-10 et 250-300-10. La partie « utile » de ces cycles est donc la montée en charge (traction lente) et non le maintien à charge constante (relaxation), du moins dans le cadre de nos hypothèses de calcul. La sollicitation cyclique servirait alors à accumuler une déformation viscoplastique importante sans risquer la rupture par instabilité géométrique.

Il est possible par ailleurs que l'environnement modifie localement les propriétés viscoplastiques du matériau ; nous reviendrons sur ce point dans les Parties C et D, consacrées à la propagation de fissure.

Le Tableau B-39 résume les objectifs poursuivis avec l'application des formes de cycle étudiées à 360°C.

cycle	20-20	250-10	250-300-10
déformation composante « rapide »	« rapide » ($> 10^{-3}$ s^{-1}) cf. 550°C	déchargement « rapide » ($> 10^{-3}$ s^{-1}) R = 0,8 : composante de fatigue limitée	
déformation composante « lente »	-	montée en charge « lente » ($< 10^{-4}$ s^{-1}) : traction lente répétée	montée en charge « lente » ($< 10^{-4}$ s^{-1}) + éventuellement : fluage (relaxation) assisté par l'environnement

Tableau B-39 : Utilisation des formes de cycle pour les essais de propagation de fissure à 400 et 320°C

V. CONCLUSIONS : APPORTS DU CALCUL DE STRUCTURE

Le calcul des éprouvettes CT soumises à diverses conditions de sollicitations mécaniques isothermes permet, en partant de la connaissance du comportement mécanique du matériau sur élément de volume, de simuler diverses formes de cycle et de choisir les plus adaptées aux phénomènes que l'on désire étudier. Les composantes des différents cycles utilisés à 550°C et 360°C ont ainsi été caractérisées en termes de vitesse de déformation viscoplastique cumulée et de contrainte locale d'ouverture en pointe de fissure :

- un cycle « rapide » (20-20) qui fait entrer une (petite) composante de fluage à 550°C (à travers la restauration de l'écrouissage cinématique) et conduit à des vitesses de déformation de l'ordre de 10^{-3} s^{-1} ;

- un temps de maintien à la charge maximale, qui conduit, à 550°C, à une déformation lente par relaxation des contraintes mais n'a aucun effet à 360°C ;

- une montée en charge « lente » qui permet d'introduire, même à 360°C, une vitesse de déformation faible à quelques micromètres de la pointe de la fissure.

Ces résultats reposent sur le comportement mécanique de l'Alliage 600 tel qu'il a été déterminé expérimentalement au début de l'étude. Etant données les dimensions des éprouvettes, celui-ci est indépendant des effets d'environnement. Il n'en est sans doute pas de même en pointe de fissure, en particulier à la surface du matériau, c'est-à-dire précisément là où la fissure va se propager. Les résultats obtenus avec les cycles 20-20 à 360°C laissent par exemple penser que la déformation est trop rapide pour faire intervenir des mécanismes activés thermiquement, susceptibles d'interagir avec l'environnement, comme c'est le cas à 550°C. Les vitesses de propagation de fissure ne devraient donc pas être les mêmes sous air à 550 et à 400°C. Les résultats expérimentaux montreront cependant le contraire...

La suite de l'étude montre que l'étude des sollicitations mécaniques locales par le calcul de structure élargit les possibilités d'interprétation des résultats expérimentaux en matière de fissuration. Elle permet également de déterminer le paramètre mécanique le plus pertinent à utiliser dans les modèles de propagation. Elle montre surtout, d'une manière indirecte, que le comportement du matériau en pointe de fissure est affecté par les effets d'environnement.

CHAPITRE B-5 :
COMPORTEMENT MECANIQUE DE L'ALLIAGE 600
APPLICATION AUX INTERACTIONS MECANIQUE-ENVIRONNEMENT EN PROPAGATION DE FISSURE

Après avoir mis en évidence les principales caractéristiques du comportement mécanique de l'Alliage 600 sous sollicitation uniaxiale, les avoir modélisées et intégrées dans le calcul de structure, il est temps de venir aux essais de corrosion sous contrainte et d'évaluer en quoi la connaissance du comportement mécanique est un outil puissant pour l'obtention et l'exploitation des résultats expérimentaux dans ce domaine. Nous envisagerons successivement, à travers des exemples variés, trois applications possibles :

- l'interprétation des faits expérimentaux déjà acquis ;
- la conception de nouveaux essais, en particulier pour explorer le couplage entre le comportement et les effets d'environnement ;
- la réflexion sur les modèles existants en corrosion sous contrainte.

Les résultats concernant l'effet des paramètres mécaniques sur la sensibilité de l'Alliage 600 à la corrosion sous contrainte dans le milieu primaire sont brièvement évoqués ici pour la clarté de l'exposé. Ils seront détaillés et replacés dans leur contexte au début de la partie sur la fissuration entre 300 et 400°C.

I. INTERPRETATION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX ACQUIS EN CORROSION SOUS CONTRAINTE

Les principales caractéristiques du comportement mécanique de l'Alliage 600, mises en évidence au cours de cette étude, sont de précieuses indications qui permettent d'enrichir l'exploitation de la base de données expérimentales, déjà considérable, qui a été acquise en corrosion sous contrainte dans le milieu primaire.

I.1. Calcul des champs de contrainte et de déformation dans des structures complexes

Une application directe des résultats acquis au cours de cette étude consiste à utiliser le calcul de structure comme outil d'estimation des champs de contrainte et de déformation dans une pièce ou un ensemble de pièces testées en corrosion sous contrainte, par exemple une éprouvette de traction lente écrouie à froid, déchargée puis rechargée dans le milieu primaire, une éprouvette poinçonnée ou même certaines maquettes. On peut également penser à des montages tels que les tubes ovalisés, pour lesquels les phénomènes de frottement et de chargement multiaxial imposent de passer par le calcul de structure pour déterminer la forme finale de l'éprouvette et les champs mécaniques locaux.

I.2. Ecrouissage cinématique et rôle d'un chargement cyclique

I.2.a. Mise en évidence expérimentale en corrosion sous contrainte

Il est reconnu que certaines éprouvettes comme les selles de cheval (Figure B-66a) et les éprouvettes de traction écrouies par poinçonnage (Figure B-66b) permettent un amorçage rapide des fissures de corrosion sous contrainte, en déplacement imposé pour les premières et en traction lente pour les secondes. Il se trouve que dans les deux cas les fissures naissent dans des zones où le matériau a été déformé en compression, puis en traction. Garriga-Majo [1993] l'a montré dans le cas des selles de cheval et Rebak et coll. [1987] l'ont suggéré pour leurs éprouvettes poinçonnées. Ces derniers mentionnent l'effet Bauschinger, lié précisément au caractère cinématique de l'écrouissage de l'Alliage 600.

Nous avons en effet montré que l'amplitude du domaine d'élasticité de l'Alliage 600 est très faible dès que l'on inverse le sens du chargement. Ceci s'applique directement au cas des éprouvettes poinçonnées, qui plastifient très tôt en traction lente. Le raisonnement est plus délicat dans le cas des selles de cheval car le chargement est non proportionnel et ne saurait être ramené d'une manière simple à une sollicitation uniaxiale. La forme de la surface de charge évolue sans doute au cours de la mise en forme de l'éprouvette et les essais de traction-compression que nous avons menés ne permettent pas d'émettre d'hypothèse à ce sujet.

On peut néanmoins affirmer, avec Garriga-Majo [1993], que sur les ailes de ces éprouvettes et dans la direction tangentielle ($\varepsilon_{\theta\theta}$) le matériau est localement plastifié en compression lors du premier pliage à 45° (Figure B-67a), puis en traction lorsque les ailes « s'ouvrent » au cours du serrage final (Figure B-67b). Cet effet est purement géométrique, quelque soin que l'on prenne à ne pas relâcher le chargement au cours de la mise en forme. Par la suite, les premières fissures de corrosion sous contrainte apparaissent sur les ailes, perpendiculairement à la direction tangentielle.

La prédéformation cyclique est dans tous les cas très préjudiciable à la résistance de l'Alliage 600 à la corrosion sous contrainte dans le milieu primaire. Ceci est sans doute dû au fait que le matériau plastifie très tôt en traction lorsqu'il a été préalablement chargé en compression. Le glissement est en outre très localisé sous sollicitations cycliques, dès le premier cycle à la température ambiante (voir Présentation des Matériaux) et peut provoquer des concentrations de contrainte importantes au niveau des joints de grains.

I.2.b. Prise en compte dans les calculs par éléments finis des éprouvettes

Lorsque l'on calcule par éléments finis une éprouvette de corrosion sous contrainte, il est indispensable de prendre en compte le caractère cinématique de l'écrouissage. A déformation imposée, il conduit en effet à une limitation des niveaux de contrainte lorsque l'on inverse le sens de sollicitation. Supposer que l'écrouissage est isotrope reviendrait à considérer que les cycles ultérieurs sont entièrement effectués dans le domaine d'élasticité, avec des amplitudes de contrainte nettement plus élevées que les valeurs réelles.

I.3. Rôle de la déformation « lente »

I.3.a. Déformation lente et endommagement

La fissuration de l'Alliage 600 par corrosion sous contrainte dans le milieu primaire apparaît pour des vitesses de déformation très basses, généralement inférieures à 10^{-6} s^{-1}. Ces valeurs n'ont pas été explorées au cours de notre étude du comportement mécanique mais le matériau est macroscopiquement peu sensible à la vitesse de déformation. Les essais à 10^{-5} s^{-1} ont en outre montré que la viscosité du matériau, sans doute non négligeable puisque $T \approx 0,3\ T_F$ (température de fusion), est occultée par les effets de vieillissement dynamique. La déformation est d'autant plus difficile que la vitesse de déformation imposée est faible et on peut imaginer que cet effet demeure aux plus basses vitesses de déformation. Les courbes de traction lente publiées dans la littérature font effectivement apparaître un effet Portevin-Le Chatelier important, témoin de l'interaction entre les dislocations et (sans doute) des éléments en solution interstitielle tels que le carbone ou l'oxygène [Hertzberg 1995a]. Ce phénomène va souvent de pair avec un glissement planaire, susceptible encore une fois de créer des concentrations de contrainte importantes au niveau des joints de grains.

I.3.b. Evaluation de la déformation « lente » au cours des essais de corrosion sous contrainte

La déformation lente a généralement été associée à un mécanisme de fluage, en particulier sur les nuances pauvres en carbone (quelques ppm), qui fluent particulièrement vite (voir Présentation des matériaux). Pour l'alliage du commerce, la vitesse de fluage, de l'ordre de 10^{-8} s^{-1}, peut apporter une contribution non négligeable à la vitesse de déformation totale imposée en traction lente [Angeliu 1995]. La connaissance de la réponse en contrainte à un chargement donné, grâce à la loi de comportement, permet de déterminer par le calcul la part de la déformation de fluage dans la déformation totale. On dispose ainsi d'une information quantitative sur la part de la déformation « de traction lente » qui correspond en fait à un mécanisme de fluage.

I.3.c. Déformation lente lors des essais sur éprouvettes fissurées

Nous considérons ici les essais de corrosion sous contrainte sur éprouvettes de mécanique de la rupture, soumises à un chargement monotone. Un essai à déplacement imposé conduit à une propagation à K décroissant alors qu'un essai à charge imposée conduit à une propagation à K croissant. Celle-ci est suffisamment lente (de l'ordre de 0,1 µm/heure) pour que le facteur d'intensité des contraintes évolue lui aussi lentement au cours de l'essai. Pour un intervalle de temps donné, K est donc quasiment constant et le calcul de structure a montré que le matériau en pointe de fissure est en situation de relaxation des contraintes, quel que soit le mode de chargement, du moins lorsque la fissure est stationnaire. Il est donc amené à « balayer » une gamme de vitesses de déformation au cours de chaque « incrément » (même très petit) de propagation. Cette gamme est à mettre en relation avec le domaine de sensibilité (en termes de vitesse de déformation) observé en traction lente. Elle est déterminée par le calcul de structure, dans les conditions données dans le chapitre précédent.

Une étape ultérieure du calcul consisterait à faire propager la fissure, par exemple en relâchant des nœuds à partir d'un critère déterminé à l'avance, et à déterminer de nouveau la vitesse de déformation imposée au matériau en pointe de fissure. Cette étape ne sera pas abordée dans le cadre de l'étude.

A l'inverse, il est possible de concevoir des essais en fonction du chargement mécanique que l'on souhaite imposer en pointe de fissure, par exemple en calculant a priori la vitesse de déformation locale, comme on l'a fait au cours de cette étude.

II. CONCEPTION D'ESSAIS DE CORROSION SOUS CONTRAINTE

La connaissance du comportement mécanique est un outil puissant pour la conception d'essais de corrosion sous contrainte dans la mesure où elle permet d'estimer le chargement mécanique local pour en évaluer l'effet. Cette estimation est une première étape dans la mesure où elle suppose que le comportement du matériau n'est pas perturbé par les effets d'environnement ; ces perturbations, qui existent de fait, sont cependant très locales et les conditions aux limites de la déformation des zones perturbées sont fixées par le comportement du reste de l'éprouvette.

II.1. Choix d'un paramètre de chargement mécanique

Deux paramètres sont généralement proposés pour rendre compte de l'effet du chargement mécanique sur la résistance à la corrosion sous contrainte : la contrainte et la vitesse de déformation. Il est cependant difficile d'imposer la contrainte locale en pointe de fissure, du fait de la relaxation. La forte dépendance de la fissuration vis-à-vis de la contrainte (exposant de l'ordre de 4 pour les essais à charge imposée sur éprouvettes lisses) fait penser aux mécanismes de fluage et nous avons choisi d'étudier l'effet de la vitesse de déformation, qui joue un rôle important sinon essentiel [Boursier 1993a]. Il faut donc trouver un moyen de tester l'effet d'une déformation « lente » en pointe de fissure.

II.2. Effet de la vitesse de déformation au voisinage de la pointe d'une fissure de corrosion sous contrainte

L'enjeu des essais que l'on cherche à définir est le maintien du matériau en pointe de fissure, pendant un laps de temps donné, dans une gamme de vitesses de déformation pour laquelle il est sensible à la corrosion sous contrainte. Le calcul des champs de déformation locaux a montré que la sollicitation mécanique à appliquer n'est a priori pas la même à haute température (550°C) et à plus basse température (entre 300 et 400°C).

II.2.a. Effet à 550°C

L'Alliage 600 flue et relaxe suffisamment vite à 550°C pour que même lors d'un cycle de fatigue continue relativement rapide (cycles triangulaires 20s-20s), une part importante de la déformation puisse être attribuée à des mécanismes « lents », thermiquement activés, qui

caractérisent le comportement en fluage. Cette part devient très importante lorsque l'on superpose un temps de maintien à la charge maximale (fatigue-fluage). L'effet de la composante de fluage sur la fissuration de l'Alliage 600 à 550°C sera étudiée expérimentalement au moyen de ces deux formes de cycle.

II.2.b. Effet entre 300 et 400°C

Les essais de fluage et de relaxation ont montré que l'Alliage 600 flue peu et relaxe très vite les contraintes dans ce domaine de température, du fait notamment des effets de vieillissement. Ce comportement macroscopique dissimule sans doute une réelle propension au fluage, ce qui expliquerait pourquoi l'Alliage 600 se fissure lorsqu'il est soumis à une sollicitation lente. Il est donc important, quoique difficile, d'imposer au matériau de rester, pendant une durée Δt, dans la gamme « sensible » de vitesses de déformation qui est a priori inconnue. Il faut pour cela trouver un moyen de lui imposer une vitesse de déformation faible mais non nulle, malgré la rapidité de la relaxation.

Plusieurs moyens sont à la disposition des expérimentateurs. Ainsi la sollicitation de traction lente, c'est-à-dire une vitesse de déformation constamment non nulle au cours du temps, peut être reproduite sur des éprouvettes de mécanique de la rupture par des essais à K croissant. On évite ainsi l'obstacle de la fissuration multiple rencontrée sur les éprouvettes lisses.

Un moyen commode d'imposer une vitesse de déformation plus élevée en pointe de fissure consiste à « recharger » périodiquement la composante de fluage par l'introduction d'une sollicitation cyclique ; cette technique a déjà été utilisée en fatigue-corrosion [Evans et Parkins 1976]. Dans le cas de l'Alliage 600 le caractère fortement cinématique de l'écrouissage montre que l'on peut travailler avec un rapport de charge $R = K_{min}/K_{max}$ élevé. On évite ainsi d'introduire un endommagement de fatigue proprement dit tout en réinitialisant, à chaque cycle, le fluage en pointe de fissure. Celui-ci n'apparaît pas dans le comportement des éprouvettes lisses mais peut être activé par des effets d'environnement. C'est cette option que nous avons choisie pour faire propager rapidement une fissure intergranulaire dans le milieu primaire, comme l'ont récemment fait avec succès Foster et coll. [1995].

III. REFLEXION SUR LES MECANISMES DE FISSURATION DE L'ALLIAGE 600 ASSISTEE PAR L'ENVIRONNEMENT

La modélisation du comportement mécanique de l'Alliage 600 a montré que l'on pouvait tester des concepts à l'aide d'une part de modèles phénoménoloogiques et d'autre part de la base de données expérimentale. Nous envisagerons deux possibilités parmi d'autres, qui concernent le rôle des joints de grains et les interactions entre le comportement mécanique et les effets d'environnement.

III.1. Déformation au voisinage des joints de grains

Au cours de la modélisation mise en œuvre jusqu'ici, on a considéré l'Alliage 600 comme un matériau homogène mais on pourrait également lui appliquer un modèle micromécanique pour distinguer le cœur des grains et les joints de grains, qui n'ont pas le même comportement mécanique à l'échelle microscopique (voir Présentation des matériaux). Cette modélisation permettrait d'évaluer l'impact d'un adoucissement localisé, par effet d'environnement, sur la répartition locale des contraintes. Cet impact est un argument important des modèles les plus récents développés en corrosion sous contrainte. Ce point de vue sort du cadre de cette étude mais il devrait apporter des éléments supplémentaires pour explorer les sollicitations mécaniques locales en tenant compte de la microstructure et du caractère intergranulaire de la propagation.

III.2. Comportement mécanique et effets d'environnement

Les résultats des calculs relatifs aux essais de propagation de fissure à 400°C ont montré que le comportement déterminé sous air avec des éprouvettes « massives » ne permet pas de rendre compte de la fissuration, bien que la loi de comportement soit représentative des sollicitations subies par le matériau en pointe de fissure. Deux explications sont possibles à ce phénomène :

- soit les joints de grains se fragilisent sans que le comportement mécanique soit modifié alentour ; une telle fragilité est cependant peu compatible avec l'absence d'influence du taux de chrome ou de phosphore intergranulaire et le grand nombre des fissures amorcées, mais non propagées, qui sont observées sur les éprouvettes lisses ;

- soit l'environnement modifie très localement le comportement du matériau, tandis que « loin de la surface » les champs de contrainte et de déformation sont régis par les lois déterminées précédemment ; la suite de l'étude en apporte une preuve expérimentale à 550°C sous air ; au-dessous de 400°C la tendance est difficile à observer, sans doute à cause de son caractère extrêmement local.

Le fait de disposer d'une loi de comportement à paramètres ajustables permet de déterminer, avec le modèle « une phase », les paramètres sur lesquels l'environnement pourrait jouer un rôle important et modifier la répartition des contraintes en pointe de fissure. Il faut cependant rappeler que ces modèles sont essentiellement phénoménologiques et que leur utilisation doit aller de pair avec une étude approfondie des mécanismes physiques, en particulier les modes de déformation « rapide » et « lente », monotone et cyclique, en fonction de l'environnement.

Une première étape pourrait consister à étudier l'effet d'une modification de la loi d'écoulement en fluage, qui peut être reliée à celle du coefficient d'autodiffusion ou à une concentration importante de lacunes invoquée par certains en corrosion sous contrainte [Meletis 1993]. Ces études de couplage sont difficiles en raison de leur caractère spéculatif mais elles permettront de tester les modèles de corrosion sous contrainte sur la base du comportement « réel » du matériau, qui avait peu été étudié jusqu'à présent.

IV. ESSAIS DE PROPAGATION DE FISSURE

L'étude de la fissuration de l'Alliage 600 assistée par l'environnement repose sur la démarche qui a été décrite plus haut. Le calcul de structure a permis de distinguer, pour les deux domaines de température étudiés, différentes formes de sollicitations mécaniques pour étudier le couplage entre le comportement, les effets d'environnement et la propagation de fissure.

Les essais à 550°C sous air reposent sur une base expérimentale et des mécanismes bien établis dans le cas des superalliages base nickel mais l'Alliage 600, durci uniquement par effet de solution solide, réserve quelques surprises... On montre notamment que le comportement en fluage est affecté par l'environnement d'une manière importante.

Les essais entre 300 et 400°C montrent qu'à condition de choisir certains types de sollicitations mécaniques, l'Alliage 600 fissure d'une manière intergranulaire dans l'air comme dans l'eau. L'effet d'environnement est aussi important qu'à 550°C malgré la résistance élevée du matériau au fluage, même sur produit mince. Ces résultats amèneront à s'interroger sur la portée du couplage entre le comportement mécanique et les effets d'environnement, qui est sans doute à l'origine de l'endommagement des joints de grains de l'Alliage 600.

COMPORTEMENT MECANIQUE DE L'ALLIAGE 600 :

CONCLUSIONS

Les essais mécaniques sur éprouvettes lisses ont montré que le comportement mécanique de l'Alliage 600 est complexe, en particulier à cause de la compétition entre les effets de viscosité et le vieillissement dynamique. Les principaux faits expérimentaux ont néanmoins pu être modélisés en traction, en fatigue oligocyclique et en fatigue-relaxation, pour être pris en compte dans le calcul d'éprouvettes de structure.

Les calculs par éléments finis ont permis la simulation de sollicitations cycliques imposées à des éprouvettes fissurées de type CT à différentes températures. Ils ont fait apparaître le rôle important des propriétés mécaniques du matériau en relaxation, en particulier au cours des maintiens à la charge maximale. Ces derniers se traduisent, en pointe de fissure, par une relaxation des contraintes et surtout par une déformation viscoplastique lente, susceptible de laisser agir les effets d'environnement.

L'ensemble de la démarche s'applique en particulier à la définition et à l'exploitation des essais de corrosion sous contrainte, qui font très souvent intervenir des éprouvettes de structure. Elle s'avère également utile pour valider, d'un point de vue strictement mécanique, des modèles de propagation de fissure qui font intervenir des interactions entre, d'une part, des effets d'environnement (oxydation, corrosion ou pénétration d'hydrogène en particulier) et d'autre part les propriétés mécaniques du matériau (comportement et endommagement).

COMPORTEMENT MECANIQUE DE L'ALLIAGE 600

ANNEXES

ANNEXE B-a_1 :
PHENOMENES DE VIEILLISSEMENT DANS L'ALLIAGE 600
CONTEXTE BIBLIOGRAPHIQUE

Cette annexe regroupe les résultats disponibles dans la bibliographie à propos des phénomènes de vieillissement dans des solutions solides à base de nickel (voir Chapitre B-1) ; les éléments d'addition sont soit en insertion (nickel-carbone) soit en substitution (nickel-chrome).

I. NICKEL ET ALLIAGES NICKEL-CARBONE

Les alliages nickel-carbone ont été étudiés en tant que solutions solides interstitielles de structure cubique à faces centrées. L'étude du nickel pur permet de s'affranchir au maximum des effets de soluté pour ne considérer que les interactions entre dislocations.

I.1. Travaux de Weinstein et coll.

Weinstein et coll. [1971] ont testé des échantillons de nickel pur (contenant 20 ppm de carbone) et d'un alliage Ni-0,1%C en traction-relaxation à la température ambiante. Ils ont mesuré les incréments de contrainte $\Delta\sigma_a$ au rechargement et les volumes d'activation de la déformation en fonction de la durée t_R de la relaxation. Leurs conclusions sont les suivantes :

- le nickel pur et l'alliage Ni-C sont tous deux sensibles au vieillissement statique ;
- $\Delta\sigma_a$ dépend du taux de déformation et de la vitesse de déformation (Figure B-a_1-1), d'une manière non monotone ; aucune courbe n'est cependant présentée pour le nickel pur ;
- $\Delta\sigma_a$ dépend de t_R à la puissance 2/3.

L'évolution de $\Delta\sigma_a$ est correctement décrite par le modèle de Cottrell pour les valeurs de t_R inférieures ou égales à 100 secondes mais les volumes d'activation renvoient, selon les auteurs, à l'existence d'au moins deux mécanismes dont l'un pourrait faire intervenir les interactions entre dislocations. Aucun modèle n'est cependant évoqué à ce sujet.

I.2. Travaux de Mulford, Cook et Kocks

Mulford et Kocks [1979] ont cité dans un premier temps des résultats obtenus en traction simple sur le nickel, qui montrent que l'effet PLC n'est généralement pas observé dans le nickel pur (moins de 50 ppm de carbone).

Dans une publication ultérieure, Kocks et coll. [1985] ont montré des essais de compression uniaxiale sur trois matériaux : du nickel pur à 99,995% (contenant moins de 50 ppm atomiques de carbone), un alliage Ni-0,2%C et un alliage Ni-0,9%C. Le carbone affecte peu

l'écrouissage au début de la courbe mais a une grande influence sur la suite de la déformation (« strain hardening »).

Kocks et coll. [1985] ont caractérisé le domaine d'apparition de l'effet Portevin-Le Chatelier. Ils ont présenté une synthèse de leurs résultats et des valeurs de la littérature. Ils ont également étudié la sensibilité à la vitesse de déformation ; celle-ci est toujours positive pour le nickel ultra-pur mais peut devenir momentanément négative pour les alliages nickel-carbone.

Les mêmes auteurs se sont intéressés au vieillissement statique des alliages Ni-C en montrant que $\Delta\sigma_a$ croît de manière linéaire avec la contrainte d'écoulement σ jusqu'à atteindre un plateau ; $\Delta\sigma_a$ est également corrélé à la sensibilité à la vitesse de déformation.

Pour Kocks et coll. [1985], le vieillissement statique des alliages Ni-C est subordonné à une sensibilité négative à la vitesse. Les phénomènes de vieillissement ont été peu étudiés dans le nickel pur, dont la sensibilité à la vitesse reste positive quelle que soit la contrainte d'écoulement. Les auteurs montrent qu'en termes d'aire d'activation, les obstacles à l'écoulement du nickel ne sont ni plus ni moins sensibles à l'activation thermique que les interactions entre dislocations.

Les résultats présentés sur Ni-C sont cohérents avec une interprétation par une interaction entre les atomes de soluté et le durcissement par effet de forêt. Le modèle de Van den Beukel est rejeté du fait que la sensibilité négative à la vitesse et les phénomènes de vieillissement peuvent apparaître au tout début de la courbe de compression, alors que la production de lacunes est encore insuffisante pour que les atomes de soluté puissent diffuser rapidement dans le réseau et exercer des forces de friction significatives.

II. ALLIAGES NICKEL-CHROME

Le vieillissement statique et dynamique des alliages nickel-chrome a été étudié par Clément et coll. [1984] en lien avec les modes de déformation à l'échelle microscopique. Deux approches ont donc été menées en parallèle :

- une approche macroscopique à travers des essais de traction et de relaxation sur des polycristaux ;

- une approche par microscopie électronique en transmission (MET) pour observer l'évolution de l'énergie de faute d'empilement et des modes de déformation lors d'essais mécaniques in situ, en fonction de la teneur en chrome.

II.1. Essais mécaniques à l'échelle macroscopique

Le taux de consolidation ($d\sigma/d\varepsilon$) mesuré en traction à la température ambiante est de l'ordre de 2000 MPa lorsque la teneur en chrome est inférieure à 5%. Il est inférieur de moitié pour des teneurs plus importantes ; dans ce cas l'écrouissage est précédé d'une étape d'adoucissement, avant que l'effet de forêt ne prenne le dessus.

Les essais de vieillissement statique ont été menés sur l'alliage Ni-30Cr. Le domaine d'apparition du vieillissement statique est plus étendu que celui de l'effet Portevin-Le Chatelier, qui est compris entre 27 et 527°C pour une vitesse de déformation de $2{,}8.10^{-5}$ s^{-1}. Lorsque l'on augmente la vitesse de déformation ($1{,}1.10^{-4}$ s^{-1}) à la température ambiante, on continue à observer le vieillissement statique alors que l'écoulement n'est plus saccadé.

Après vieillissement et rechargement en traction, la courbe $\sigma = f(\varepsilon)$ montre un incrément de contrainte mais finit par rejoindre la courbe de traction « sans relaxation ». Les auteurs en déduisent que la densité de dislocations mobiles et la nature des obstacles ne sont pas notablement affectés par le vieillissement.

II.2. Essais et mesures à l'échelle microscopique

Des essais de vieillissement statique ont été effectués dans le microscope électronique en transmission sur l'alliage Ni-30Cr, à la température ambiante, c'est-à-dire dans le plateau « athermique » de la limite d'écoulement. La vitesse de déformation imposée était de l'ordre de 10^{-6} s^{-1}. L'observation de l'activation des sources de dislocations a conduit aux résultats suivants :

- pour les temps de relaxation inférieurs à 5 secondes la déformation au rechargement est assurée par les mêmes sources qu'avant la relaxation ;

- à partir de 20 secondes de relaxation les sources anciennement actives sont bloquées et il faut en activer d'autres pour pouvoir déformer de nouveau le matériau.

II.3. Modélisation

Les mouvements des dislocations sont freinés dans les alliages Ni-Cr par la présence du chrome en substitution dans la solution solide, en particulier dans Ni-30Cr où apparaissent des zones d'ordre à courte distance. Ces zones sont détruites par le passage (difficile) des premières dislocations, ce qui entraîne un adoucissement local car les autres dislocations de l'empilement passent plus facilement que les premières. Les dislocations isolées ou immobilisées une vingtaine de secondes sont en revanche bloquées par les atomes de soluté voire, pour les fortes teneurs en chrome, par le rétablissement de l'ordre à courte distance, obstacle supplémentaire au glissement des dislocations.

III. CONCLUSIONS

Les effets de vieillissement sont rencontrés sur d'autres solutions solides à base de nickel que l'Alliage 600. Celui-ci contient à la fois des éléments en insertion et en substitution, ce qui multiplie les phénomènes pouvant entrer en jeu, voire interagir les uns avec les autres.

ANNEXE B-a_2 :

PHENOMENES DE VIEILLISSEMENT DANS L'ALLIAGE 600

ETUDE EXPERIMENTALE

I. INTRODUCTION

Cette annexe regroupe les résultats des essais mécaniques portant sur les phénomènes dépendant du temps, autres que ceux qui sont directement liés à la viscosité du matériau (fluage ou relaxation des contraintes). Le vieillissement microscopique de l'Alliage 600 au cours de la déformation viscoplastique se traduit à l'échelle macroscopique de trois manières :

- l'effet Portevin-Le Chatelier (PLC), c'est-à-dire un écoulement saccadé ;
- une sensibilité négative à la vitesse de déformation ;
- une évolution de la limite d'élasticité au cours du temps lors des essais de relaxation (vieillissement statique).

Ces trois effets ont des domaines d'apparition distincts que nous avons mis en évidence au cours des essais de traction, de fatigue oligocyclique et de fatigue-relaxation. Dans cette annexe nous décrirons successivement l'effet PLC, le vieillissement statique et les domaines de température et de vitesse de déformation dans lesquels apparaissent ces différentes manifestations du vieillissement de l'Alliage 600.

II. EFFET PORTEVIN-LE CHATELIER

L'écoulement saccadé de l'Alliage 600 a été mis en évidence à la fois en traction et en fatigue oligocyclique. Il est intéressant de comparer les résultats obtenus pour ces deux essais, du fait que l'effet PLC dépend du matériau mais aussi de la machine utilisée.

II.1. Manifestation de l'effet Portevin-Le Chatelier

La courbe de la Figure B-a_2-1a montre l'écoulement saccadé de l'Alliage 600 en traction à 360°C, le pilotage étant assuré en imposant la vitesse de déplacement de la traverse. Les hachures apparaissent dès le début de l'écoulement plastique et la machine a du mal à imposer une vitesse de déplacement constante. Des variations lentes de la contrainte (moyenne sur les hachures) apparaissent également. L'écoulement saccadé se poursuit au-delà de l'apparition de la striction.

La courbe de la Figure B-a_2-1b montre les hachures observées en fatigue oligocyclique à 360°C. Celles-ci apparaissent dès le premier quart de cycle et se manifestent tout au long de la séquence, chaque fois que la contrainte dépasse en valeur absolue un seuil, qui augmente légèrement au cours de l'essai. Les décharges-recharges sont globalement élastiques mais il se peut qu'une déformation brutale apparaisse avant la décharge, bien que le gain d'asservissement de la machine soit important. Ceci entraîne notamment une variation parasite de l'amplitude de la déformation imposée et les cycles stabilisés ne sont pas rigoureusement superposables les uns aux autres.

En fatigue-fluage, l'effet PLC se traduit par des incréments de déformation brutaux, qui peuvent atteindre quelques 10^{-3} en moins d'un dixième de seconde et perturbent également les mesures.

II.2. Domaines d'apparition de l'effet Portevin-Le Chatelier

Nous présentons ici les caractéristiques relevées sur les courbes de traction et les cycles de fatigue.

II.2.a. Domaines d'apparition en traction

Le Tableau B-a_2-1 résume les données acquises en traction.

T (°C)	éprou-vette	variations haute fréquence (hachures)		variations basse fréquence		
		hauteur (MPa)	période (déformation)	hauteur (MPa)	période initiale (déformation)	période finale (déformation)
25	1	---	---	---	---	---
300	4	---	---	6	0,15 %	1,89 %
340	7	3	< 0.1 %	8	0,50 %	2,00 %
360	2	3	< 0.1 %	8	0,47 %	3,76 %
	9	3	< 0.1 %	8	0,29 %	2,04 %
	10	3	< 0.1 %	8	0,38 %	1,53 %
400	8	4	< 0.1 %	8	0,47 %	2,34 %
550	3	10 à 6	< 0.1 %	8	0,47 %	0,94 %
	5	10 à 6	< 0.1 %	8	0,41 %	1,63 %
600	6	---	---	2	0,24 %	0,48 %
	11	---	---	2	0,17 %	0,35 %

Tableau B-a_2-1 : Effet Portevin-Le Chatelier en traction

A partir de 300°C, apparaissent des variations périodiques de la contrainte, à deux fréquences distinctes repérées « haute » et « basse » sur le Tableau B-a_2-1. Le domaine d'apparition des variations basse fréquence s'étend de 300 à 600°C ; à l'intérieur se trouve le domaine des variations haute fréquence, qui sont absentes des essais à 300 et à 600°C. Curieusement, les variations haute fréquence sont transitoires à 400°C mais permanentes à 340, 360 et 550°C. L'essai à 400°C donne ici encore des résultats atypiques.

Les variations basse fréquence se traduisent par un arrêt périodique de la déformation, tandis que la contrainte continue à osciller à haute fréquence. La déformation reprend ensuite avec, selon les cas, un incrément de contrainte, un cycle décharge-recharge ou une hausse (ou une baisse) continue de la contrainte moyenne. La vitesse de déformation n'est donc ni constante ni même continue au cours de l'essai.

A 600°C l'écoulement est quasiment continu, la contrainte ondule faiblement autour d'une position moyenne. On atteint la fin du domaine de manifestation de l'effet PLC.

La Figure B-a_2-2 illustre les manifestations typiques de l'effet PLC sur les courbes de traction conventionnelles en fonction de la température. Les essais de traction, effectués sur une machine mécanique pilotée sur la vitesse de traverse, ont donc mis en évidence un effet PLC sur l'Alliage 600 entre 300 et 600°C. A l'intérieur de ce domaine de température, l'écoulement est saccadé et la vitesse de déformation, comme d'ailleurs la vitesse de déplacement de la traverse, n'est pas continue au cours du temps.

II.2.b. Domaines d'apparition en fatigue oligocyclique

Le Tableau B-a_2-2 montre le domaine d'apparition de l'effet PLC en termes de température et de vitesse de déformation. L'écoulement saccadé apparaît, le cas échéant, dès les premiers cycles, au moins de manière transitoire. Au fur et à mesure que l'on pénètre à l'intérieur du domaine de manifestation de l'effet PLC, les saccades persistent au cours de la séquence et finissent par toucher les cycles stabilisés.

Les manifestations de l'effet PLC sont différentes en traction et en fatigue car elles dépendent du couple éprouvette-machine ; les domaines d'apparition sont cependant analogues : comme en traction, l'effet apparaît vers 300°C et commence à disparaître aux alentours de 600°C, en commençant par les vitesses de déformation les plus basses.

Le Tableau B-a_2-3 résume les données recueillies sur les cycles stabilisés à ±0,7%. L'amplitude des décharges peut dépasser 100 MPa, soit un cinquième de la contrainte maximale atteinte.

La Figure B-a_2-3 montre qu'à 360°C les saccades apparaissent pour tous les cycles et que le seuil d'apparition, lors d'un cycle donné, est fixé par une contrainte qui reste sensiblement constante pour des conditions de chargement (amplitude et vitesse de déformation) données. Par ailleurs la machine, malgré un gain d'asservissement élevé, a du mal à empêcher les déformations rapides qui peuvent survenir avant les décharges, ce qui entraîne des variations d'amplitude de la déformation. Une décharge brutale en fin de cycle peut ainsi perturber la relaxation des contraintes lors des maintiens à déformation totale imposée. C'est pour cette raison que les essais de fatigue-relaxation ont été effectués à des niveaux de contrainte modérés.

En fatigue-fluage, l'effet PLC se traduit par des créneaux de déformation brutaux qui affectent le matériau de manière erratique (Figure B-a_2-4). Sur la plupart des cycles les amplitudes cumulées des créneaux sont sensiblement égales en traction et en compression.

T (°C)	vitesse de déformation (s^{-1})	$\Delta\varepsilon/2$ apparition du PLC sur les premiers cycles	$\Delta\varepsilon/2$ apparition du PLC sur les cycles stabilisés
25	10^{-3}	----------	----------
300	10^{-3}	0,5 %	0,7 %
360	10^{-5}	0,5 %	0,7 %
	10^{-3}	0,5 %	0,5 %
400	10^{-5}	< 0,7 %	< 0,7 %
	10^{-3}	0,3 %	0,5 %
550	2.10^{-5}	> 0,5 %	> 0,5 %
	10^{-4}	> 0,5 %	> 0,5 %
	10^{-3}	0,3 %	0,3 %
600	10^{-5}	> 0,7 %	> 0,7 %
	10^{-4}	> 0,7 %	> 0,7 %
	3.10^{-4}	0,5 %	0,7 %
	6.10^{-4}	< 0,5 %	< 0,5 %
	10^{-3}	0,3 %	0,3 %

Tableau B-a_2-2 : Effet Portevin-Le Chatelier en fatigue oligocyclique

T (°C)	éprou-vette	vitesse de déformation (s^{-1})	amplitude maximale des décharges (MPa)	période (ε) minimale des oscillations (10^{-3})	période (ε) maximale des oscillations (10^{-3})	écoulement
20	F1	10^{-3}	---	---	---	pas de PLC
300	F2	10^{-3}	4	0,13	0,13	ondulations
340		10^{-5}	72	0,30	0,60	saccades
360	F7	10^{-5}	64	0,32	0,64	saccades
		10^{-3}	64	0,32	0,64	saccades
400	F5	10^{-5}	112	0,64	---	saccades
		10^{-3}	64	0,32	0,32	saccades
550	F11'	10^{-3}	90	0,25	0,25	saccades
600	F9'	10^{-5}	---	---	---	pas de PLC
		10^{-4}	---	---	---	pas de PLC
		3.10^{-4}	4	0,15	---	ondulations
		6.10^{-4}	20	0,19	---	ondulations et saccades
		10^{-3}	51	0,24	---	saccades

Tableau B-a_2-3 : Effet Portevin-Le Chatelier en fatigue oligocyclique : cycles stabilisés à ±0,7%

II.3. Conclusions

Les résultats obtenus au cours de cette étude sont globalement cohérents avec les observations de Mulford et Kocks [1979] sur l'écoulement saccadé en compression uniaxiale (Figure B-a_2-5). Les taux de carbone pour les deux alliages sont comparables : 0,4% atomiques pour Mulford et 0,3% atomiques pour la manchette A utilisée pour cette étude. Les deux matériaux contiennent en outre une quantité importante de carbures de chrome.

La Région II de Mulford est plus étendue pour la coulée A, c'est-à-dire que l'effet PLC persiste à plus haute température. Les domaines de manifestation de l'effet PLC sont sensiblement les mêmes en traction et en fatigue. A haute température, l'effet disparaît en commençant par les vitesses de déformation les plus faibles, ce qui est également le cas pour Mulford. Notons cependant qu'en traction l'effet PLC persiste en général d'un bout à l'autre de l'essai. La Région III est caractérisée dans notre cas par la disparition des oscillations haute fréquence en traction et par la disparition totale des saccades sur les cycles de fatigue.

III. VIEILLISSEMENT STATIQUE

L'évolution de la limite d'élasticité au cours d'un maintien à déformation totale constante se manifeste par une augmentation du seuil d'écoulement viscoplastique lors du rechargement. Cet effet a été mis en évidence à toutes les températures d'essai ; il a fait l'objet d'une étude quantitative détaillée à 360°C.

III.1. Manifestation du vieillissement statique à toutes les températures d'essai

L'organisation des essais de fatigue oligocyclique en séquences successives d'amplitudes et/ou de vitesses de déformation variables suppose de programmer de nouveau la machine sitôt qu'une séquence est terminée, c'est-à-dire que l'on a arrêté les cycles une fois la réponse mécanique stabilisée. Les quelques minutes nécessaires au changement de séquence suffisent pour faire apparaître une évolution de la limite d'écoulement au rechargement, c'est-à-dire au début de la séquence suivante.

Cet effet est observé à toutes les températures d'essai, y compris à la température ambiante (Figure B-a_2-6). A 25°C l'augmentation de la limite d'élasticité est faible ; elle est plus nette à 360°C où le premier cycle à 0,7% de la Figure B-a_2-6b est situé au-dessus du dernier cycle à 0,5% et ne rejoint ce dernier qu'après une déformation de l'ordre de $2{,}7.10^{-3}$. A 600°C l'augmentation de la limite d'élasticité correspond à peu près à la perte de charge occasionnée par la relaxation entre les deux séquences.

III.2. Etude quantitative du vieillissement statique à 360°C

Le vieillissement statique de l'Alliage 600 a été caractérisé à 360°C par des essais de fatigue avec temps de maintien à déformation totale constante, et déchargement ou rechargement après la relaxation. Le Tableau B-a_2-4 et la Figure B-a_2-7 montrent les séquences choisies pour ces essais.

éprou-vette	ε_{max} (%)	vitesse de déformation (s^{-1})	ε_0 (%)	exploration du domaine d'élasticité	temps de relaxation Δt_R (secondes)
F4	0,5	10^{-3}	0,5	déchargement	5 fois 1800
	1,0	10^{-3}	1,0	déchargement	5 fois 900
			multiples	chargement	< 60
F8	0,8	8.10^{-4}	0,4	déchargement	20 60 90 120 300 1200
				chargement	20 60 90 120 300 1200
F1'	0,8	8.10^{-4}	0,5	déchargement	20 30 60 90 300 1200
				chargement	20 60 90 120 300 1200
			0,6	déchargement	20 60 90 120 300 1200
				chargement	20 60 90 120 300 1200
		10^{-5}	0,5	déchargement	60
				chargement	100
			---	fatigue pure	zéro

Tableau B-a_2-4 : Essais de fatigue-relaxation effectués à 360°C

La déformation a été imposée par des cycles triangulaires entre 0 et 0,8%. Les trois valeurs de déformation ε_0 retenues pour les maintiens sont suffisamment faibles pour que le seuil d'apparition de l'effet PLC ne soit pas atteint. Les pointes de cycle ne sont en revanche pas tout à fait reproductibles, du fait que l'écoulement devient saccadé lorsque la déformation dépasse 0,7%. Il en résulte de petites variations de la contrainte (une dizaine de MPa) d'un cycle à l'autre lorsque $\varepsilon = \varepsilon_0$. Nous n'en tiendrons pas compte dans la présentation des résultats.

La détermination du seuil d'écoulement au déchargement est entachée d'une incertitude importante ; les valeurs de R et X en fonction de la déformation ε_0 et de la durée de la relaxation Δt_R sont donc assez dispersées (Figure B-a_2-8). L'exploitation des seuls résultats obtenus au rechargement conduit aux courbes de la Figure B-a_2-9. L'augmentation de la limite d'écoulement est nettement supérieure à la perte de charge enregistrée au cours de la relaxation (Tableau B-a_2-5). Elle croît rapidement avec Δt_R pour des valeurs de Δt_R inférieures à 300 secondes, puis l'effet commence à se saturer, sauf pour ε_0 = 0,4%.

L'effet de la valeur de ε_0 est quasiment nul entre 0,4 et 0,5% (sauf pour Δt_R = 1200 s) ; il est négatif entre 0,5 et 0,6% c'est-à-dire que plus la déformation est importante, moins l'augmentation du seuil d'écoulement est élevée. Notons cependant qu'à 0,4% les résultats ont été obtenus avec une autre éprouvette.

Δt_R (s)			20	60	90	120	300	1200
ε_0	σ (MPa)	$\Delta\sigma_{relaxation}$ (MPa)						
0,4%	179	< 10	66	80	84	NE	92	121
0,5%	287	< 10	62	80	86	87	92	98
0,6%	348	< 10	52	62	66	68	78	86

NE : non étudié

Tableau B-a_2-5 : Données de vieillissement statique recueillies en fatigue-relaxation à 360°C

III.3. Discussion

Le vieillissement statique de l'Alliage 600 est présent à toutes les températures et pour toutes les vitesses de déformation. Il est d'autant plus prononcé à 360°C que la vitesse de déformation est élevée et que la déformation d'arrêt ε_0 est faible. Ce dernier résultat est en apparente contradiction avec ceux de Kocks et coll. : selon ces derniers, l'augmentation de la limite d'élasticité est d'autant plus importante que la contrainte d'écoulement de départ (au début de la relaxation) est élevée. Notons cependant que les recharges élastiques observées par Kocks et coll. en traction à 227°C sont inférieures à 15 MPa et interviennent dans une plage de contraintes d'écoulement nettement plus étendue que la nôtre (250 à 800 MPa). Les auteurs ne mentionnent pas d'effet parasite dû à d'éventuelles saccades de PLC à cette température.

III.4. Conclusions

L'Alliage 600 est soumis au vieillissement statique entre 20 et 600°C, pour des vitesses de déformation de 10^{-5} à 10^{-3} s^{-1}. Cet effet est particulièrement prononcé entre 300 et 400°C, il est probablement lié à la sensibilité à la vitesse de déformation qui est négative dans ce domaine de température : plus la déformation viscoplastique est lente (relaxation ou fatigue lente), plus les effets de vieillissement se font sentir, prenant nettement le pas sur la composante visqueuse.

IV. CONCLUSIONS : EFFETS DE VIEILLISSEMENT SUR L'ALLIAGE 600

Les effets de vieillissement sur le comportement mécanique de l'Alliage 600 sont variés et apparaissent dans des domaines de température qui sont emboîtés les uns dans les autres. Le Tableau B-a_2-6 résume les résultats obtenus, complétés par la sensibilité à l'amplitude de la contrainte et/ou de R à la vitesse de déformation imposée.

T (°C)	25	300	360	400	550	600
PLC à 10^{-3} s^{-1}	o	+	++	++	++	++
vieillissement statique	+	++	++	++	+	+
sensibilité de R à la vitesse	NE	NE	--	--	o	+
sensibilité de $\Delta\sigma/2$ à la vitesse	NE	NE	-	-	o	+

NE : non étudié o : pas d'effet

Tableau B-a_2-6 : Effets de vieillissement en fonction de la température

Les effets de vieillissement sont difficiles à modéliser et leurs mécanismes ne sont pas identifiés à l'heure actuelle (voir Chapitre B-1). Ils entrent en compétition avec la viscosité de l'alliage au fur et à mesure que la température d'essai augmente ; à 550°C les effets se compensent et à 600°C la sensibilité à la vitesse est dominée par la viscosité. Le vieillissement statique est cependant présent dans toute la gamme de température explorée.

Les modèles de comportement mécanique identifiés sur l'Alliage 600 (Chapitre B-3) ne permettent pas de rendre compte des effets de vieillissement. L'identification des paramètres des différents modèles entre 300 et 400°C a donc fait intervenir une viscosité faible, de manière à limiter à la fois les diminutions de la charge en relaxation et la sensibilité à la vitesse de déformation.

ANNEXE B-a_3 :

ESSAIS DE COMPORTEMENT MECANIQUE ENTRE 300 ET 400°C

RESULTATS COMPLEMENTAIRES

Le lecteur trouvera ici le détail des données expérimentales qui ont été acquises au cours de cette étude sur le comportement mécanique de l'Alliage 600 entre 300 et 400°C. Les principaux résultats ont été repris dans le corps du mémoire.

Les propriétés mécaniques de l'Alliage 600 sous sollicitations cycliques dans ce domaine de température ont été illustrées dans le texte par les résultats obtenus à 360°C. Nous reportons ici les données relatives aux essais à 300, 340 et 400°C.

La seconde partie de cette annexe est consacrée aux résultats acquis en fatigue-relaxation et en fatigue-fluage à 300 et 360°C ; on montre que là encore les propriétés mécaniques varient peu avec la température.

I. ECROUISSAGE CYCLIQUE DE L'ALLIAGE 600 ENTRE 300 ET 400°C

Les Figures B-a_3-1 à B-a_3-5 et les Tableaux B-a_3-1 à B-a_3-3 présentent les données d'écrouissage cyclique obtenues sur l'Alliage 600 pour deux valeurs de la vitesse de déformation : 10^{-3} s^{-1} et 10^{-5} s^{-1}.

L'amplitude de la contrainte est d'autant moins sensible à la température que l'amplitude de déformation est élevée : l'écart relatif entre les valeurs obtenues à 300 et 400°C est de l'ordre de 16% à ±0,2% et de 1,5% à ±0,7% de déformation totale imposée. La sensibilité à la vitesse de déformation est légèrement négative à 340°C et à 400°C.

ε ou Δε/2	0,2%	0,3%	0,5%	0,7%
σ traction (T4)	283	398	446	469
Δσ/2 fatigue (F2)	414	444	492	519
2R fatigue (F2)	513	454	256	251
X fatigue (F2)	157	217	364	394

Tableau B-a_3-1 : Ecrouissage cyclique de l'Alliage 600 à 300°C et 10^{-3} s^{-1}

ε ou Δε/2	0,2%	0,3%	0,5%	0,7%
σ traction (T7)	340	406	436	452
Δσ/2 fatigue (FC1) à 10^{-3} s^{-1}	360	430	480	520
Δσ/2 fatigue (FC2) à 10^{-5} s^{-1}	365	430	490	535

Tableau B-a_3-2 : Ecrouissage cyclique de l'Alliage 600 à 340°C

ε ou Δε/2	0,2%	0,3%	0,5%	0,7%	0,7% 10^{-5} s^{-1}
σ traction (T8)	383	444	468	481	---
Δσ/2 fatigue (F5)	354	398	464	518	527
2R fatigue (F5)	417	309	337	224	349
X fatigue (F5)	146	244	296	406	352

Tableau B-a_3-3 : Ecrouissage cyclique de l'Alliage 600 à 400°C

II. COMPORTEMENT DE L'ALLIAGE 600 EN FATIGUE-FLUAGE ET FATIGUE-RELAXATION A 300 ET 360°C

Le Tableau B-a_3-4 présente la matrice des essais de fatigue-relaxation et de fatigue-fluage qui ont été effectués à 300°C (éprouvette F6') et à 360°C (éprouvette F8'). La forme des cycles imposés est représentée schématiquement sur la Figure B-a_3-6. Le second palier en fluage (Δt_2) est de l'ordre d'une heure pour laisser le temps au matériau de se déformer et de montrer, le cas échéant, un stade de fluage primaire. L'amplitude de contrainte de ±375 MPa imposée à 360°C correspond à l'amplitude du cycle stabilisé en fatigue continue (en contrôle de déformation), le cycle de fatigue-relaxation ayant été perturbé par une décharge due à l'effet PLC.

La vitesse de chargement en fatigue-fluage, de 10 $MPa.s^{-1}$, a été choisie de manière à correspondre, a priori, aux extrémités des cycles de fatigue-fluage, à la vitesse de déformation de 10^{-3} s^{-1} imposée en fatigue-relaxation. Un essai a également été effectué à 100 $MPa.s^{-1}$ pour évaluer l'effet de la vitesse de chargement imposée sur le comportement en fatigue.

300°C	ε fatigue-relaxation	Δσ/2 fatigue-relaxation	σ fatigue-fluage
	0 à 0,5%	394	±394
	0 à 0,8%	448	±448
	0 à 1,1%	488	±488

360°C	ε fatigue-relaxation	Δσ/2 fatigue-relaxation	σ fatigue-fluage
	0 à 0,5%	351 (PLC)	±375
	0 à 0,8%	425	±425
	0 à 1,1%	466	±466

Tableau B-a_3-4 : Essais de fatigue-relaxation et de fatigue-fluage à 300 et 360°C

La Figure B-a_3-7 illustre les résultats obtenus pour chacune des deux températures. Les cycles ont été corrigés de l'effet PLC par élimination des saccades de décharge-recharge en fatigue-relaxation et des incréments brutaux de déformation en fatigue-fluage (dont la somme algébrique au cours d'un cycle est nulle, à une exception près). La Figure B-a_3-7 a été obtenue en superposant arbitrairement les centres des cycles de manière à faciliter la comparaison en termes de forme des cycles. On constate une fois encore que la diminution de la contrainte au cours de la relaxation est très faible et que l'Alliage 600 flue très peu pour les niveaux de contrainte utilisés, qui sont pourtant élevés. La forme des cycles dépend peu du paramètre de chargement imposé, le matériau étant peu sensible à la vitesse de déformation dans ce domaine de température.

III. CONCLUSIONS

Les données expérimentales complémentaires reportées dans cette annexe confirment les résultats énoncés dans le Chapitre B-2 :

- le comportement mécanique de l'Alliage 600 varie peu entre 300 et 400°C ;

- dans ce domaine de température, l'Alliage 600 présente un écrouissage cinématique marqué, une sensibilité négative à la vitesse de déformation et une composante visqueuse très faible.

On retrouve des résultats analogues à ceux déjà connus sur l'acier 316L [Delobelle 1993]. Celui-ci présente cependant un écrouissage cyclique plus marqué que la coulée d'Alliage 600 écrouie qui a été utilisée dans le cadre de notre étude.

ANNEXE B-a_4 :
CONDITIONS D'UTILISATION DU MODELE « UNE PHASE »

On trouvera dans cette annexe quelques exemples qui illustrent le rôle des coefficients utilisés dans le modèle ainsi que les limites de validité des équations.

I. EXEMPLES D'ILLUSTRATION

I.1. Comportement asymptotique des variables d'écrouissage en traction simple, sans terme de restauration

On considère dans un premier temps un modèle à une seule variable d'écrouissage cinématique X avec $X = C.\alpha$ et sans variable d'écrouissage isotrope. On se place en sollicitation uniaxiale.

Lors d'un essai de traction simple on a, à tout instant, $\dot{\varepsilon}_p = \dot{p}$, ce qui donne :

$\dot{\alpha} = \dot{p} - D\alpha\dot{p} = \dot{p}(1 - D\alpha)$ avec $\alpha = 0$ à l'instant initial, ce qui s'intègre en :

$$\alpha = \frac{1}{D}(1\text{-}\exp(\text{-}Dp)).$$

On a alors $X = C\alpha = \dfrac{C}{D}$ [1-exp(-Dp)].

X est donc strictement croissante et converge de manière exponentielle vers $X_L = C/D$ à une « vitesse » gouvernée par le paramètre D : X a atteint 99% de X_L lorsque la déformation viscoplastique cumulée p a atteint $p_L = (2\ln 10)/D$.

On écrit finalement : $\sigma = R_0 + \dfrac{C}{D}\left(1 - \exp(-Dp)\right) - \dfrac{1}{2}\dfrac{C}{D}\left(1 - \exp(-Dp)\right)^2 + K(\dot{p})^{1/n}$.

D gouverne donc, au cours d'un essai de traction, le domaine de déformation dans lequel X varie de manière significative, tandis que l'amplitude de X est régie par le paramètre C.

De même, en présence de plusieurs variables d'écrouissage cinématique X_i, on écrit :

$$\sigma = R_0 + \sum_i \frac{C_i}{D_i}\left(1 - \exp(-D_i p)\right) - \frac{1}{2}\sum_i \frac{C_i}{D_i}\left(1 - \exp(-D_i p)\right)^2 + K(\dot{p})^{1/n}.$$

Les mêmes développements s'appliquent à la variable d'écrouissage isotrope R. Dans ce cas, la convergence vers la valeur limite est gouvernée par la valeur de b.

La Figure B-a_4-1 illustre le cas d'un essai de traction simple, simulé avec le jeu de coefficients donné dans le Tableau B-a_4-1.

coefficient	E	R_0	C_1	D_1	C_2	D_2	K	n
unité	GPa	MPa	GPa	-	GPa	-	MPa $s^{1/n}$	-
valeur	200	300	100	500	10	100	300	10

Tableau B-a_4-1 : Jeu de coefficients utilisé pour simuler un essai de traction

I.2. Evolution du domaine d'élasticité avec la déformation

L'effet du terme en X^2 est représenté sur la Figure B-a_4-2 par la superposition de deux cycles de fatigue stabilisés, respectivement à ±0,2 et ±1% de déformation totale. Les coefficients sont pris dans le Tableau B-a_4-1. L'introduction du terme en X^2 dans le critère revient à « contracter » le rayon initial du domaine R_0 en un rayon « effectif » qui vaut dans ce cas :

$$R_{eff} = R_0 - \frac{1}{2}\frac{D}{C}X^2 .$$

On remarque que lorsque X augmente en valeur absolue, le rayon effectif R_{eff} du domaine linéaire diminue, ce qui permet de décrire la faible amplitude du domaine d'élasticité relevée sur les « grands » cycles expérimentaux (±0,7%).

I.3. Comportement asymptotique des variables d'écrouissage cinématique en présence de termes de restauration

On procède comme dans le premier exemple, en considérant un essai de traction simple. On considère en outre, pour simplifier, que la vitesse de déformation viscoplastique est constante. On écrit alors :

$$\dot{\alpha} = \dot{\varepsilon}_p - D\alpha\dot{p} - \left(\frac{X}{M}\right)^m = \dot{p} - D\alpha\dot{p} - \left(\frac{C\alpha}{M}\right)^m \text{ puisque dans ce cas X et } \alpha \text{ sont positifs.}$$

On cherche la valeur limite α_L de α lorsque la déformation devient élevée. On suppose que cette valeur limite existe et on écrit :

$$0 = \dot{p} - D\alpha_L\dot{p} - \left(\frac{C\alpha_L}{M}\right)^m = \dot{p} - D\alpha_L\dot{p} - \left(\frac{C}{M}\right)^m (\alpha_L)^m$$

Ceci revient à chercher les zéros de la fonction g(a,w) donnée par :

$$g(a,w) = -\left(\frac{C}{M}\right)^m .a^m - D.w.a + w \text{ avec } w = \dot{p}.$$

Une étude très simple de la fonction g pour $m \neq 1$ montre que quelle que soit la valeur $w > 0$ de $\dot{p}$, g s'annule en une unique valeur $\alpha_L > 0$, qui dépend de w et des coefficients C, D, M et m.

On calcule en pratique cette limite en étudiant l'évolution des variables X_i lors d'un essai de traction simple, simulé à vitesse de déformation constante, pour des niveaux de déformation élevés, ce qui permet de négliger la déformation élastique devant la déformation viscoplastique et de considérer que $\dot{p}$ est sensiblement constante.

II. CONDITIONS D'UTILISATION DU MODELE

L'équation d'évolution des variables α_i n'est plus valable lorsque la somme des variables X atteint la contrainte totale σ, ce qui revient à annuler R_{eff}. On peut en effet atteindre, dans l'espace $(\sigma,\mathbf{X_i})$ un lieu où f n'est plus dérivable par rapport aux variables X_i. Tous les jeux de coefficients ne permettent donc pas à celles-ci d'atteindre leur valeur limite. La Figure B-a_4-3 montre, dans le cas d'une seule variable X, sans écrouissage isotrope, que suivant les valeurs respectives de (C/D) et de R_0 (Tableau B-a_4-2) le point représentatif (σ,X) à l'instant *t* peut éventuellement atteindre le lieu où $R_{eff} = 0$, c'est-à-dire $\left(-R_0\right) + \frac{1}{2}\frac{D}{C}X^2 = 0$ ou encore $X = \sqrt{2\,R_0\frac{C}{D}}$.

coefficient	R_0	C	D	K	n
unité	MPa	GPa	-	MPa $s^{1/n}$	-
valeur Figure B-a_4-3a	200	100	50	30	2
valeur Figure B-a_4-3b	200	300	50	30	2

Tableau B-a_4-2 : Jeux de coefficients montrant la fermeture possible du domaine d'élasticité

On a simplement fait varier le rapport C/D en augmentant la valeur de C. On constate que le domaine d'élasticité « effectif » d'amplitude $2.R_{eff}$ finit par se réduire en un point, situé sur la droite $\sigma = X$. On parlera dans ce cas de « fermeture » du critère d'élasticité.

A partir de ce point, les valeurs de $\dot{\varepsilon}_p$ sont encore correctes mais celles de $\dot{p}$ sont surestimées (Figure B-a_4-4, mêmes coefficients que pour la Figure B-a_4-3b). X reste alors à sa valeur maximale admise, qui est donc $\sqrt{2\left(R_0 + \sigma_v\right)\frac{C}{D}}$ et on a à tout instant $\sigma = X$. L'intégration des équations différentielles devient plus délicate.

La Figure B-a_4-5 illustre le cas de deux variables X_1 et X_2, les coefficients étant pris dans le Tableau B-a_4-3. Une fois le bord du domaine atteint, le point représentatif (X_1, X_2) se déplace sur la courbe d'équation $\frac{C_1}{D_1}X_1^2 + \frac{C_2}{D_2}X_2^2 = 2\left(R_0 + \sigma_v\right) \approx 2R_0$ qui est ici une ellipse de demi-axes $\sqrt{2R_0\frac{C_1}{D_1}}$ et $\sqrt{2R_0\frac{C_2}{D_2}}$ (Figure B-a_4-5a). On a alors $\sigma = X_1 + X_2 + X_3$ et la valeur des variables X_i évolue de manière non monotone, bien que l'on considère ici un essai de traction (Figure B-a_4-5c).

coefficient	R_0	C_1	D_1	C_2	D_2	K	n
unité	MPa	GPa	-	GPa	-	MPa $s^{1/n}$	-
valeur	100	100	500	15	100	30	2

Tableau B-a_4-3 : Jeu de coefficients d'un modèle à deux variables X avec fermeture du critère

Dans cet exemple nous avons choisi une très faible viscosité ($\sigma_v = 0{,}3$ MPa à 10^{-4} s^{-1} et $\sigma_v = 3$ MPa à 10^{-2} s^{-1}) pour pouvoir négliger les effets de vitesse et la contrainte visqueuse devant R_0. Ce cas est proche de celui de l'Alliage 600, qui est peu sensible à la vitesse de déformation et présente peu de relaxation des contraintes, du moins entre 300 et 400°C.

Une condition suffisante pour éviter de rencontrer le lieu de fermeture du critère, quelle que soit la vitesse de déformation, est que la somme des termes en X^2 soit toujours inférieure, en valeur absolue, à R_0, ce qui revient à écrire :

$$\sum_i \frac{D_i}{C_i} X_{iL}^2 < 2R_0$$

Dans le cas de l'Alliage 600 on a affaire à une très forte capacité d'écrouissage cinématique et à une limite d'élasticité initiale faible, donc à des valeurs de X élevées par rapport à R_0. On ne pourra donc pas introduire cette condition comme contrainte dans le processus d'identification, pour éviter la fermeture du critère, du fait que l'on cherche à représenter à la fois les propriétés en traction et en fatigue. Une solution à ce délicat problème serait d'utiliser une variable d'écrouissage cinématique linéaire (loi de Prager) mais les niveaux de déformations élevés attendus en pointe de fissure sur les éprouvettes CT risqueraient de conduire en calcul de structure à des niveaux de contrainte équivalente peu réalistes.

ANNEXE B-a_5 :

RESULTATS COMPLEMENTAIRES DE LA MODELISATION « UNE PHASE »

Le lecteur trouvera dans cette annexe les résultats de l'identification des coefficients du modèle « une phase » entre 25 et 600°C, à l'exclusion des résultats à 360 et 550°C, qui ont été présentés dans le corps de ce mémoire. Pour chaque valeur de la température, la base de données expérimentale a regroupé le maximum d'essais représentatifs des sollicitations auxquelles le matériau est soumis en pointe de fissure : sollicitation monotone de grande amplitude (essai de traction) et sollicitations cycliques à des amplitudes et des vitesses de déformation variées (Tableau B-a_5-1). Les essais pris en compte à 360 et 550°C sont rappelés ici pour mémoire.

T (°C)	traction 10^{-3} s^{-1}	fatigue 10^{-3} s^{-1}	fatigue 10^{-5} s^{-1}	fatigue-relaxation	autres essais
25	0 à 24,2%	±0,2 à ±0,9%	---	---	---
300	0 à 23,6%	±0,2 à ±0,7%	---	---	---
360	0 à 28,2%	±0,2 à ±0,7%	±0,2 à ±0,7%	fin ±0,7% 10^{-3} s^{-1}	---
400	0 à 21,2%	±0,2 à ±0,7%	±0,7%	fin ±0,5% 10^{-3} s^{-1}	---
550	0 à 15,9%	±0,2 à ±0,7%	±0,5%	fin ±0,7% 10^{-3} s^{-1}	---
600	0 à 13,9%	±0,2 à ±0,7%	±0,5%	cycle ±0,5% 10^{-3} s^{-1}	±0,5% 10^{-4} s^{-1}

Tableau B-a_5-1 : Base expérimentale retenue pour la modélisation « une phase »

Les résultats de la modélisation sont regroupés en deux parties, selon que le modèle fait ou non appel à des termes de restauration de l'écrouissage cinématique.

I. RESULTATS OBTENUS SANS RESTAURATION (T ≤ 400°C)

Lorsque la température est inférieure ou égale à 400°C, l'Alliage 600 est globalement très peu visqueux et le modèle ne doit pas permettre de relaxation importante des contraintes. On a donc omis les termes de restauration de l'écrouissage cinématique ; la contrainte visqueuse est faible et peu dépendante de la vitesse de déformation. On a ainsi abouti à des valeurs très faibles du coefficient K.

I.1. Résultats de l'identification

Le Tableau B-a_5-2 présente les jeux de coefficients obtenus entre 25 et 400°C, le jeu identifié à 360°C étant rappelé pour mémoire.

T	E	R_0	b	Q	C_1	D_1	C_2	D_2	C_3	D_3	K	n
°C	MPa	MPa	-	MPa	GPa	-	GPa	-	GPa	-	MPa $s^{1/n}$	-
25	184700	325	1,00	90	123	2068	38,4	180	2,86	2,50	15,9	2,00
300	196800	280	6,39	100	152	1613	75,4	272	2,51	3,50	24,0	2,00
360	177000	230	2,12	200	177	1595	79,3	320	2,55	3,18	23,8	2,00
400	183700	330	-*	-*	105	1752	80,9	305	2,55	3,18	17,3	2,00

*pas d'écrouissage cyclique apparent à 400°C : hétérogénéité de microstructure entre les éprouvettes de traction et de fatigue

Tableau B-a_5-2 : Jeux de coefficients déterminés entre 25 et 400°C

Les Figures B-a_5-1 à B-a_5-3 montrent, en fonction de la température, l'accord entre les données expérimentales et les résultats fournis par le modèle.

I.1.a. Résultats obtenus à 25°C

On remarque sur la Figure B-a_5-1 que la forme des cycles est difficile à représenter, en particulier lorsque l'amplitude de la déformation est faible. Les amplitudes de contrainte et le comportement en traction sont en revanche bien représentés par le modèle.

I.1.b. Résultats obtenus à 300°C

Les cycles stabilisés sont mieux représentés qu'à 25°C (Figure B-a_5-2). Il semble que la courbe d'écrouissage soit plus facile à approcher par les équations du modèle, X_3 jouant d'ailleurs un rôle mineur pour ces niveaux de déformation.

Le cycle expérimental stabilisé à ±0,2% est plus « ouvert » qu'aux autres températures. Ceci est sans doute dû à l'hétérogénéité de la microstructure dans la manchette d'adaptateur. Nous ne nous sommes pas attachés à modéliser ces variations de caractéristiques.

I.1.c. Résultats obtenus à 400°C

Les cycles stabilisés sont là encore décrits d'une manière satisfaisante par le modèle (Figure B-a_5-3). Le modèle prédit une sensibilité quasiment nulle à la vitesse de déformation : le cycle à ±0,7% est bien représenté à 10^{-3} s^{-1} et le modèle sous-estime légèrement les contraintes à 10^{-5} s^{-1}. La courbe de traction est très bien représentée sans écrouissage cyclique, du fait qu'elle a été obtenue avec une éprouvette apparemment plus « dure » que les autres.

I.2. Etude des jeux de coefficients

Le Tableau B-a_5-3 montre les valeurs de saturation des variables X et l'évaluation de la contrainte visqueuse pour les essais à 10^{-3} s^{-1}. On se reportera aux notations utilisées dans le corps du mémoire, au Chapitre B-3.

T	X_1 10^{-3} s^{-1}		X_2 10^{-3} s^{-1}		X_3 10^{-3} s^{-1}		σ_v		σ_L	R_∞ =	p_c
	X_{1L}	p_{1L}	X_{2L}	p_{2L}	X_{3L}	p_{3L}	10^{-3} s^{-1}	10^{-5} s^{-1}	10^{-3} s^{-1}	$R_0 + Q/2$	10^{-3} s^{-1}
°C	MPa	%	MPa	%	MPa	%	MPa	MPa	MPa	MPa	%
25	59	0,23	213	2,55	822	70	0,5	0,05	1015	370	38,3
300	94	0,29	277	1,69	559	59	0,8	0,08	849	330	28,8
360	111	0,26	248	1,44	801	145	0,8	0,08	872	330	24,4
400	60	0,26	265	1,51	801	145	0,6	0,05	862	330	32,7

Tableau B-a_5-3 : Contraintes et déformations caractéristiques calculées à partir des jeux de coefficients identifiés entre 25 et 400°C

Dans tous les cas la variable d'écrouissage cinématique X_1 sature rapidement ($p_{1L} < 0,3\%$) et vers des valeurs basses. La variable X_2 caractérise elle aussi l'écrouissage à de faibles déformations (inférieures à 2,6% en traction), qui correspondent aux amplitudes des plus grands cycles stabilisés et au début de la traction. La variable X_3 se rapporte aux valeurs les plus élevées de la déformation, elle sature suffisamment « tard » pour que le matériau reste écrouissable en traction dans une large gamme de déformation.

I.3. Conclusions

Le modèle « une phase » sans terme de restauration est capable de décrire de manière satisfaisante les cycles stabilisés et les courbes de traction de la base expérimentale. Le modèle fonctionne correctement en traction pour les valeurs de la déformation viscoplastique cumulée inférieures à 30%. Au-delà de cette valeur, on considérera avec précaution la déformation viscoplastique cumulée prédite par le modèle.

La sensibilité à la vitesse de déformation se traduit par une contrainte visqueuse quasiment nulle. Une conséquence en est que le modèle ne permet aucune relaxation des contraintes lors de maintiens à déformation totale constante alors qu'expérimentalement on constate une diminution immédiate et faible (≤ 30 MPa), la contrainte restant ensuite stable sur de longues durées.

II. RESULTATS OBTENUS AVEC RESTAURATION (T ≥ 550°C)

A partir de 550°C l'Alliage 600 est notablement visqueux mais son comportement mécanique présente des caractéristiques différentes à 550 et 600°C :

- à 550°C la composante visqueuse est déjà importante en relaxation mais la sensibilité globale à la vitesse de déformation est nulle du fait de l'importance des effets de vieillissement ;

- à 600°C la composante visqueuse l'emporte sur les effets de vieillissement et la sensibilité à la vitesse devient nettement positive ; par ailleurs l'écrouissage cyclique diminue et il n'est plus nécessaire de le prendre en compte par une variable spécifique.

Dans les deux cas les coefficients K et n ne permettent pas de décrire à la fois la diminution de la contrainte en relaxation (effet purement visqueux) et la sensibilité à la vitesse (qui comporte des termes de vieillissement). Des termes de restauration ont donc été introduits dans l'écrouissage cinématique pour décrire à la fois la forme des cycles et le comportement en relaxation.

II.1. Résultats de l'identification

Le Tableau B-a_5-4 donne les jeux de coefficients identifiés à 550°C (pour mémoire) et à 600°C.

T	E	R_0	b	Q	K	n
°C	MPa	MPa	-	MPa	MPa $s^{1/n}$	-
550	188500	1,0	8,38	130	321	25,9
600	190000	1,0	-	-	433	12,2

T	C_1	D_1	M_1	C_2	D_2	M_2	C_3	D_3	M_3	m
°C	GPa	-	GPa	GPa	-	GPa	GPa	-	GPa	-
550	141	820	25,9	21,8	147	3,50	1,22	0,03	3,01	2,86
600	359	2108	17,4	61,0	394	29,0	2,30	5,02	7,15	2,49

Tableau B-a_5-4 : Jeux de coefficients identifiés à 550 et 660°C

Les résultats obtenus à 550°C ont été exposés dans le corps du mémoire. La Figure B-a_5-4 montre l'accord entre les résultats expérimentaux et les prédictions du modèle à 600°C. Les cycles sont correctement décrits, bien que l'effet de vitesse soit légèrement surestimé. La relaxation est bien représentée sur les 100 à 150 premières secondes mais le modèle sous-estime la diminution de la contrainte à plus long terme. Comme à plus basse température, il a fallu trouver un compromis entre les effets de vitesse, dus à la viscosité et au vieillissement et les effets purement liés à la viscosité. L'écrouissage cyclique est suffisamment faible à 600°C pour que la courbe de traction soit correctement décrite par le modèle sans écrouissage isotrope.

II.2. Validité de l'identification

Le Tableau B-a_5-5 donne les valeurs de contrainte et de déformation qui sont caractéristiques des jeux de paramètres identifiés à 550 et 600°C. Les valeurs de X_{iL} et de p_{iL} tiennent compte des termes de restauration. Le domaine de validité des équations est plus étendu à 600°C

qu'entre 25 et 400°C car la part des termes d'écrouissage cinématique dans la contrainte totale est moins importante.

T	X_1 10^{-3} s^{-1}		X_2 10^{-3} s^{-1}		X_3 10^{-3} s^{-1}		σ_v		σ_L	R_∞ =	p_c
	X_{1L}	p_{1L}	X_{2L}	p_{2L}	X_{3L}	p_{3L}	10^{-3} s^{-1}	10^{-5} s^{-1}	10^{-3} s^{-1}	$R_0 + Q/2$	10^{-3} s^{-1}
°C	MPa	%	MPa	%	MPa	%	MPa	MPa	MPa	MPa	%
550	176	0,56	135	2,58	268	46	246	206	737	66	-
600	169	0,22	154	1,16	293	39	246	168	609	1,0	63,1

Tableau B-a_5-5 : Contraintes et déformations caractéristiques calculées à partir des jeux de coefficients identifiés à 550 et 600°C

Le jeu de paramètres identifié à 600°C convient pour les sollicitations de traction et de fatigue oligocyclique. Il permet de reproduire les effets de vitesse et le comportement en relaxation pour des temps de maintien inférieurs à 150 secondes. Notons que l'utilisation de la seule contrainte visqueuse ne permet pas de décrire à la fois la relaxation des contraintes, qui est ici importante, et la sensibilité à la vitesse qui reste faible, du fait des effets de vieillissement. L'introduction des termes de restauration est à la fois nécessaire et efficace, bien qu'elle complique l'intégration de la loi de comportement, notamment des équations d'évolution des variables d'écrouissage cinématique.

III. CONCLUSIONS

Les résultats présentés dans le corps du mémoire pour les valeurs de la température égales à 360 et 550°C sont représentatifs du comportement du matériau et des principales caractéristiques du modèle « une phase ».

Entre 25 et 400°C la courbe de traction et les cycles de fatigue sont correctement reproduits —avec une légère réserve à 25°C— et la modélisation a fait intervenir deux compromis :

- on a minimisé la sensibilité à la vitesse de déformation, en « sacrifiant » pour cela la diminution de contrainte instantanée observée expérimentalement en relaxation ; en référence aux propriétés des aciers inoxydables austénitiques [Delobelle 1993], ce point demande à être vérifié expérimentalement à la température ambiante ;

- on a cherché à repousser le plus loin possible le point de fermeture du critère.

A partir de 550°C, il a fallu trouver un compromis entre une composante visqueuse importante et une sensibilité à la vitesse qui reste faible, voire nulle à 550°C. La relaxation a donc été partiellement décrite par des termes de restauration sur les variables d'écrouissage cinématique. Le modèle est utilisable tel quel pour décrire des sollicitations de traction, de fatigue oligocyclique et de relaxation, pour des temps de maintien inférieurs à 150 secondes si l'on cherche une reproduction « parfaite » et à 1200 secondes si l'on autorise une légère sous-estimation de la diminution de la contrainte au cours du temps.

PROPAGATION DE FISSURE ASSISTEE PAR L'OXYDATION A 550°C

Partie C : Propagation de fissure assistée par l'oxydation à 550°C

La partie C de ce mémoire est consacrée à la propagation de fissure dans l'Alliage 600 à haute température, en fonction de la pression partielle d'oxygène.

Le Chapitre C-1 reprend les principaux résultats disponibles dans ce domaine. Il insiste sur la démarche scientifique mise en œuvre au cours des dernières décennies et montre comment on est passé de l'observation d'un « trou de ductilité » vers 700°C dans les alliages base nickel à l'étude du couplage mécanique-environnement en pointe de fissure. Une base de données expérimentale a été constituée à l'aide d'essais de propagation de fissure et les résultats ont été interprétés en lien avec le mode d'oxydation et le comportement mécanique du matériau. Cette démarche a porté ses fruits en aboutissant à l'optimisation de la microstructure de certains superalliages base nickel pour disques de turboréacteurs. Elle a été reprise dans le cadre de cette étude.

Le Chapitre C-2 présente les essais de propagation de fissure. L'effet du mode de chargement mécanique, c'est-à-dire de la forme des cycles, est discuté à la lumière des résultats des calculs de structure, qui ont fait l'objet du Chapitre B-4. On montre ainsi le rôle essentiel de la vitesse de déformation en fluage du matériau en pointe de fissure.

Le couplage mécanique-environnement est abordé dans le Chapitre C-3, à travers le comportement et l'endommagement en fluage. Des essais spécifiques ont été réalisés sur produit mince, de manière à amplifier l'effet des réactions de surface. Les résultats ont été analysés en lien avec l'étude du mode d'oxydation du matériau. Ils ont montré que la formation d'oxydes riches en nickel et/ou en fer est associée d'une part à une vitesse de fluage stationnaire élevée, d'autre part à une propagation de fissure intergranulaire en fatigue continue. Celle-ci a été attribuée à un endommagement de fluage, assisté par l'oxydation, peut-être à travers l'injection de lacunes dans le métal lors de la croissance des premières couches d'oxyde. Une représentation qualitative des interactions mécanique-environnement a enfin été proposée, à la fois pour l'Alliage 600 et pour les superalliages base nickel.

CHAPITRE C-1 :
PROPAGATION DE FISSURE SOUS AIR A HAUTE TEMPERATURE
CONTEXTE BIBLIOGRAPHIQUE

L'étude de la propagation de fissure dans l'Alliage 600 à 550°C en fonction de l'environnement est une des dernières-nées d'une grande famille, qui a inclus un grand nombre de couples matériaux/environnement depuis plusieurs décennies. Nous ne chercherons pas à recenser de manière exhaustive les études et les découvertes qui ont été faites à ce sujet mais nous dégagerons la démarche qui a été suivie et qui a conduit de l'observation d'un « trou de ductilité » à l'analyse fine du couplage entre l'environnement et la propagation de fissure.

La plupart des résultats qui seront exposés dans la suite de ce chapitre concernent les matériaux métalliques à base de nickel, en particulier le nickel pur, les alliages binaires nickel-chrome et les Alliages 718 et N18. Pour une vision plus complète des phénomènes, le lecteur est invité à se reporter aux synthèses bibliographiques qui ont déjà été publiées à ce sujet :

sur les superalliages base nickel :

- [Cook 1974] : propriétés en fatigue et en fluage ;
- [Ericsson 1979] : durée de vie et propagation de fissure en fatigue ;
- [Pineau 1985] : effets des caractéristiques métallurgiques, mécanismes et modélisation de la propagation de fissure en fatigue et en fluage ;
- [Floreen 1985] : modélisation de la fissuration intergranulaire assistée par l'oxygène ;
- [Rémy 1993] : interactions entre sollicitations mécaniques et oxydation ;
- [Ghonem 1993] : facteurs mécaniques, métallurgiques et effet de l'environnement sur la propagation de fissure ; modélisation en régime dépendant du temps ;

sur d'autres couples matériau/environnement : [Cook 1974, Ericsson 1979, Petit 1994].

Au cours de ce chapitre, nous suivrons « pas à pas » les principales découvertes qui ont été faites avec les superalliages base nickel dans le domaine dit « des températures intermédiaires », c'est-à-dire entre 500 et 700°C (ce seront des « hautes températures » pour l'Alliage 600), qui correspond à l'utilisation de ces matériaux dans les disques de turboréacteurs :

- la tenue mécanique en fatigue et en fluage dépend de l'environnement ;
- la sensibilité à la propagation de fissure assistée par l'environnement, qui peut être très élevée, est le fruit d'un couplage entre la déformation viscoplastique et le mode d'oxydation ;
- on peut agir sur le matériau pour réduire l'intensité du couplage et la vitesse de propagation des fissures.

La démarche se révèle fructueuse et sera reprise dans le cadre de notre étude. Celle-ci nécessite cependant des données complémentaires, qui sont regroupées avant la présentation de l'étude elle-même.

I. EFFET DE L'ENVIRONNEMENT SUR LA TENUE MECANIQUE DES MATERIAUX METALLIQUES

Les effets d'environnement n'ont pas été dès l'abord mis en évidence sur les alliages base nickel. Le point de départ est plutôt lié à l'existence d'un domaine de température dans lequel certains matériaux, notamment les alliages base nickel, voient leurs propriétés mécaniques se détériorer d'une manière significative. Nous reprenons les principaux résultats des études tels qu'ils sont apparus, c'est-à-dire :

- l'existence d'un « trou de ductilité » pour les alliages base nickel entre 500 et 800°C ;
- l'attribution de ce « trou de ductilité » à un effet d'environnement, que l'on retrouve sur d'autres couples matériau/environnement.

I.1. Le « trou de ductilité » des alliages base nickel

La baisse significative des propriétés des alliages base nickel sollicités dans le domaine des températures intermédiaires a été constatée en traction. Nous donnons ici l'exemple de résultats obtenus sur deux superalliages durcis par précipitation.

Pandey et coll. [1984] ont étudié une coulée d'Alliage X-750, ayant subi le traitement thermique standard de durcissement structural. Ils ont testé sous air des éprouvettes en traction lente entre 10^{-7} et $1{,}2.10^{-6}\ s^{-1}$, entre 550 et 800°C. L'allongement maximum réparti n'est que de 3% à 625°C contre 3,5% à 550°C et 8% à 700°C. Par des essais interrompus, ils ont montré que cette réduction de la ductilité est liée à l'apparition de fissures intergranulaires à partir de la surface, qui favorise une rupture précoce.

Andrieu [1987a] a testé en traction à 650°C des éprouvettes d'Alliage 718, axisymétriques et préfissurées. Les essais ont été effectués sous différentes pressions d'oxygène pur, entre 10^{-8} et 10^{-3} mbar. La rupture est partiellement intergranulaire sous les plus hautes valeurs de la pression. Cette sensibilité des joints de grains à la fissuration intervient précisément dans le

domaine d'utilisation de l'Alliage 718 comme matériau constitutif des disques de turboréacteurs. Il est donc important de connaître les causes de ce phénomène pour tenter d'y remédier.

I.2. Mise en évidence de l'effet de l'environnement

I.2.a. Propriétés en traction

Constatant que le trou de ductilité affecte les propriétés des alliages base nickel lorsque celles-ci sont évaluées sous air, Pandey et coll. [1984] ont réalisé les mêmes essais sous vide secondaire (10^{-6} mbar) et sous air. Ils ont ainsi montré que le trou de ductilité disparaissait sous vide, l'allongement maximum réparti restant compris entre 8 et 10% entre 550 et 700°C. La résistance à la traction Rm est également plus élevée sous vide que sous air. La faible ductilité de l'Alliage X-750 sous air est donc le fait d'une rupture prématurée liée à un effet d'environnement. L'influence de la pression partielle d'oxygène sur les propriétés de l'Alliage 718 a été étudiée par Andrieu et coll. [1987a, 1987b] sur des éprouvettes axisymétriques, entaillées puis préfissurées. Ils ont montré que pour des valeurs de la pression partielle d'oxygène (Po_2) supérieures à 10^{-3} mbar la fraction de la surface de rupture liée à une rupture intergranulaire augmente régulièrement et atteint 60% pour Po_2 = 0,2 bar.

Ces deux exemples illustrent le fait que la sensibilité des alliages base nickel à la fissuration intergranulaire dépend étroitement des conditions d'environnement. D'autres études ont montré qu'il en est de même pour la résistance au fluage et la durée de vie en fatigue oligocyclique, qui sont des propriétés importantes de ces matériaux vis-à-vis de leurs applications.

I.2.b. Durée de vie en fluage

Nickel pur

Shahinian et Achter ont montré [1959a] que le comportement du nickel pur (contenant 0,008% de carbone en masse) en fluage à 649 et 816°C dépend de la pression partielle d'oxygène à laquelle il est exposé. Ils observent sur éprouvettes lisses que l'effet de l'environnement sur la vitesse de fluage dépend des conditions d'essai :

- à basse contrainte et/ou à haute température, c'est-à-dire lors des essais « longs », le nickel flue moins vite sous air que sous vide secondaire ;

- lors des essais plus courts, c'est l'inverse qui se produit.

Ils attribuent le premier effet à un renforcement par l'oxyde, soit par formation d'oxydes à l'intérieur du métal (oxydation interne), soit par effet des couches d'oxyde, qui « reprendraient » une partie du chargement. Le second effet est attribué à une diminution de l'énergie de surface du métal en présence d'oxygène. Les deux mécanismes sont en fait en compétition lors des essais de fluage. Notons au passage que la taille de grains du matériau utilisé est élevée (jusqu'à 600 µm) et que les éprouvettes comportent entre 10 et 30 grains dans leur diamètre.

Stegman et coll. [1969b] ont testé des éprouvettes de nickel pur à 510°C sous 58,6 MPa et à 600°C sous 117 MPa, sous oxygène de haute pureté et ils ont montré que la vitesse de fluage dépend de la valeur de Po_2. L'effet d'environnement est donc, du moins dans une mesure importante, lié à l'oxygène de l'air et non à la seule vapeur d'eau. Le passage, en cours d'essai, de 10^{-6} à 10^{-4} ou 10 torr conduit à une accélération de la vitesse de fluage qui se rapproche, en une dizaine d'heures, de la vitesse caractéristique de la pression partielle considérée. De nombreuses fissures de surface sont détectées, leur profondeur augmente avec la température et avec Po_2. Le mode de rupture est principalement intergranulaire, y compris à 510°C. Stegman et coll. montrent surtout l'existence d'une pression d'oxygène « de transition » P_T, qui vaut 10^{-4} torr à 600°C et quelques 10^{-4} torr à 510°C, qui marque une réduction de la durée de vie, celle-ci ne dépendant plus de Po_2 au-delà de P_T (Figure C-1). L'écart entre les valeurs mesurées sous air et sous vide secondaire est plus important à 600°C (facteur 2) qu'à 510°C (facteur 1,3).

Dans la suite de l'étude P_T désignera cependant la limite supérieure du plateau « bas », c'est-à-dire la valeur de Po_2 au-delà de laquelle les effets d'environnement se font sentir ; en effet la valeur définie par Stegman et coll. dépend des conditions de sollicitation mécanique tandis que la valeur « basse » n'en dépend pas.

Solutions solides à base de nickel

Shahinian et Achter [1959b] ont également testé un alliage a priori plus résistant à l'oxydation que le nickel pur, l'alliage Ni-19Cr (contenant 0,04% de carbone). Ils ont utilisé des éprouvettes d'une épaisseur de 1,27 mm, comportant en moyenne 14 grains dans l'épaisseur, et les ont soumises à des essais de fluage sous air et sous vide secondaire ($6{,}5.10^{-6}$ mbar), entre 593 et 1038°C. Ils retrouvent les deux effets possibles de la présence d'oxygène sur la vitesse de fluage stationnaire mais le renforcement par l'oxydation apparaît plus tard que sur le nickel pur. Le matériau flue plus vite sous air que sous vide à 593°C mais l'effet est ténu. Quel que soit l'environnement, le coefficient de la loi de Norton est de 4,6 pour les essais « longs » et 5,8 pour les essais « courts ». Le mode de rupture au-dessous de 816°C est globalement transgranulaire mais l'amorçage est intergranulaire.

La sensibilité des joints de grains à la fissuration sous air en fluage est un phénomène intrinsèque au nickel et l'addition de 20% de chrome ne permet pas de l'enrayer, ce qui donne a priori de sérieuses inquiétudes quant à la résistance des joints de grains des superalliages et de l'Alliage 600…

I.2.c. Durée de vie en fatigue oligocyclique

Achter et coll. [1963] ont sollicité en flexion des échantillons de nickel pur, à une fréquence d'environ 5 Hz, à amplitude de déformation plastique constante sur la fibre en traction. Ils ont montré que le nombre N_R de cycles à rupture diminue lorsque la température ou la pression partielle d'oxygène augmente. Ils ont mis en évidence une pression de transition P_T qui vaut 10^{-3} torr à 300°C. Ainsi un essai sous un gaz dit « inerte » mais comportant quelques ppm d'oxygène donne les mêmes résultats qu'un essai sous air. La rupture, transgranulaire à 20°C, devient intergranulaire lorsque l'on augmente la température jusqu'à 816°C.

Stegman et Shahinian [1969a] ont étudié l'effet de Po_2, également sur le nickel pur, dans une gamme allant de 10^{-7} à 10 torr. Ils ont montré que la transition est terminée à 10^{-3} torr à 20 et 300°C, 8.10^{-2} torr à 425°C et 7.10^{-1} torr à 550°C. Le rapport du nombre de cycles à rupture sous vide à celui obtenu sous air est de 17 à 20°C, 95 à 300°C et 70 à 550°C. Au-delà de la transition, le mode de rupture devient intergranulaire dès 300°C. Par ailleurs la pression de transition ne dépend pas de l'amplitude de déformation imposée.

Lim a par ailleurs montré [1980] qu'il est possible de faire amorcer des fissures intergranulaires sur des éprouvettes de nickel 270 à gros grains, sollicitées à 300°C en fatigue lente ($\Delta\varepsilon_p$ = 1,35%, un cycle par minute). Après 2% de la durée de vie la moitié des joints de grains présentent des microfissures à l'émergence des traces de glissement. La germination s'arrête alors mais certaines fissures se propagent dans la suite de l'essai. La fissuration apparaît plus tard sous vide, en compétition avec une migration intergranulaire importante.

I.2.d. Conclusions

Le couple nickel/oxygène n'est pas le seul exemple de résistance mécanique affectée par les effets d'environnement. Ericsson [1979] cite les cas de l'acier inoxydable 316 à chaud, du cuivre, de l'aluminium et du plomb, pour lesquels l'effet d'environnement affecte les propriétés mécaniques du matériau.

Les superalliages base nickel sont également utilisés pour leur ténacité élevée (de l'ordre de 120 MPa$\sqrt{m}$ pour l'Alliage N18 [Hochstetter 1994]). Il est important de savoir si l'effet d'environnement affecte également la tolérance de ces matériaux à l'endommagement et en particulier leur résistance à la propagation de fissure stable, qui est une propriété cruciale pour les applications en aéronautique. Cette question fait l'objet de la partie suivante de ce chapitre.

II. EFFETS D'ENVIRONNEMENT ET PROPAGATION DE FISSURE

II.1. Mise en évidence de l'effet d'environnement sur la propagation de fissure

Nous nous intéresserons essentiellement au cas des alliages base nickel, d'autres exemples étant donnés dans la revue bibliographique de Petit et coll. [1994].

L'Alliage 718, renforcé par une double précipitation γ' $Ni_3(Ti,Al)$ et γ'' $Ni_3(Nb,Ti)$, a fait l'objet d'études particulièrement approfondies ; nous commencerons néanmoins par nous intéresser au cas des alliages nickel-chrome, qui montre que l'effet d'environnement touche également les alliages durcis par effet de solution solide.

II.1.a. Alliages binaires nickel-chrome

Les essais effectués dans le cadre de la thèse de R. Molins [1995], repris dans [Molins 1997], ont porté sur des éprouvettes entaillées (SEN) d'alliages binaires nickel-chrome contenant respectivement 5, 20 et 30% de chrome en masse. Les vitesses de propagation de fissure ont été évaluées avec des cycles de fatigue continue à 0,05 Hz à 650°C (K_{max} = 5 MPa$\sqrt{m}$) et des

cycles de fatigue-fluage à 500 et 650°C (0,05 Hz avec un maintien à $K_{max} = 6$ MPa$\sqrt{m}$ pendant 60 secondes). Ces essais ont montré une accélération de la propagation, d'un facteur 3 à 4, au passage par une pression partielle d'oxygène de transition qui dépend du taux de chrome dans le matériau (Figure C-2 et Tableau C-1). Seul l'alliage Ni-30Cr est totalement insensible à l'environnement.

matériau	Ni	Ni-5Cr	Ni-20Cr	Ni-30Cr	Alliage 718 (22%Cr dans γ)
P_T (mbar)	10^{-5}	2.10^{-5}	2.10^{-4}	non détectée	10^{-3}

Tableau C-1 : évolution de la pression partielle d'oxygène de transition P_T à 650°C avec la teneur en chrome [Molins 1995]

II.1.b. Alliage à durcissement structural : l'Alliage 718

La détermination des environnements les plus nocifs vis-à-vis de la résistance de l'Alliage 718 à la propagation de fissure à 650°C a été effectuée par Floreen et Kane [1979] avec des cycles de fatigue continue à $\Delta K \geq 30$ MPa$\sqrt{m}$, pour une fréquence de 0,1 Hz sur des éprouvettes CT. Le matériau avait auparavant subi un traitement thermique conduisant à la précipitation de grosses aiguilles de phase δ (la forme thermodynamiquement stable de γ'') ; cette microstructure résiste mieux à la propagation de fissure que la microstructure obtenue par le traitement thermique « standard ». Ils ont en particulier montré que l'air sec et l'air à 5% d'humidité conduisent aux mêmes résultats, la propagation étant dans les deux cas à la fois transgranulaire et intergranulaire. Des gaz de haute pureté tels que N_2, He ou même CH_4 et H_2 n'ont pas d'effet fragilisant et la vitesse de propagation est 5 à 10 fois plus faible que sous air. La propagation reste alors transgranulaire, avec des stries que l'on peut relier à la vitesse de propagation macroscopique. Un mélange H_2-5%H_2O est moins fragilisant que l'air tandis qu'un mélange He-5%H_2O ou He-100ppmO_2 est un peu plus agressif que l'hélium pur mais nettement moins que l'air. La présence de soufre se révèle en revanche redoutable. Ces résultats nous incitent une fois de plus à ne prendre en compte, d'un point de vue macroscopique, que l'oxygène de l'air, en laissant de côté l'effet de la vapeur d'eau, pour étudier les effets d'environnement.

Sadananda et Shahinian [1982] ont montré que la vitesse de propagation de fissure dans l'Alliage 718 est nettement plus importante sous air que sous vide (Figure C-3). Andrieu et coll. [1993] et Molins et coll. [1997] ont montré à 650°C, sur des éprouvettes CT d'Alliage 718 traité « standard », présentant un peu de phase δ dans les joints de grains, que le passage de Po_2 d'une valeur inférieure à 10^{-3} mbar à une valeur supérieure à 10^{-2} mbar provoque un changement de mode de rupture, qui passe de transgranulaire à intergranulaire, ainsi qu'une accélération de la propagation de fissure en fatigue continue et en fluage. Celle-ci peut, selon la forme du cycle imposé, atteindre jusqu'à trois ordres de grandeur. La valeur de la pression de transition est indépendante du mode et du niveau de chargement.

L'effet d'environnement est donc plus spectaculaire sur l'Alliage 718 que sur les alliages binaires nickel-chrome. L'effet dépend donc de la composition chimique et/ou des propriétés mécaniques du matériau.

II.1.c. Autres superalliages base nickel à durcissement structural

Sadananda et Shahinian [1982] ont comparé les résistances respectives de deux superalliages base nickel à la propagation de fissure sous air et sous vide secondaire. Le Nimonic PE16 présente les mêmes propriétés que l'Alliage 718 en fatigue à haute fréquence et en fatigue « lente » sous vide mais l'effet d'environnement est moindre sur le PE16 par rapport à l'Alliage 718, en particulier lorsque l'on introduit un temps de maintien à la charge maximale.

Les mêmes auteurs ont également comparé les résistances respectives d'un certain nombre d'alliages base nickel vis-à-vis de la propagation de fissure en fluage à 540, 650, 760 et 870°C [Sadananda 1983]. Hormis les cas de l'Alliage 600 et de l'Hastelloy X, durcis par effet de solution solide, pour lesquels la fissure s'émousse avant de pouvoir commencer à se propager, il mesurent la vitesse de propagation en fonction du facteur d'intensité de contrainte appliqué. Ils confirment le faible effet d'environnement pour le Nimonic PE16. Cet effet est en revanche considérable pour l'Alliage X-750 et accompagné d'un effet de la température : la vitesse de propagation croît d'un facteur 1000 entre 540 et 650°C à 60 MPa$\sqrt{m}$. L'Alliage 625 subit une propagation modérée à 60 MPa$\sqrt{m}$ (< 0,1 mm/h) quel que soit l'environnement. Ces résultats montrent que l'effet de l'environnement sur la propagation de fissure en fluage est intimement lié au matériau lui-même. Il en est de même pour les niveaux de vitesse de propagation sous air, qui peuvent varier de trois ordres de grandeur (à 60 MPa$\sqrt{m}$) d'un superalliage base nickel à un autre.

Le cas de l'Alliage N18, renforcé par une forte fraction volumique de précipités γ' (55%), a été particulièrement étudié dans le cadre des thèses de G. Hochstetter [Andrieu 1993, Hochstetter 1994] et de J.-C. Chassaigne [1997], qui ont trouvé une transition de mode de rupture et de vitesse de propagation de fissure aux alentours de 10^{-3} à 10^{-2} mbar à 650 et à 700°C. Une transition est également détectée à 575°C mais l'accélération de la propagation est plus modeste et le mode de rupture reste transgranulaire.

II.1.d. Conclusions

Au vu des résultats expérimentaux, il est clair que l'environnement affecte non seulement la tenue mécanique des alliages base nickel mais aussi leur résistance à la propagation de fissure. Ce phénomène est particulièrement préoccupant pour des pièces qui subissent des sollicitations de fatigue (telles que les disques de turboréacteur) et pour les matériaux élaborés par métallurgie des poudres, tels que l'Alliage N18, qui contiennent inévitablement des défauts (porosités ou inclusions) sur lesquels peuvent s'amorcer des fissures. Il est donc indispensable de connaître les « paramètres matériau » qui gouvernent la sensibilité à cet effet d'environnement afin de résoudre ce problème qui dépend étroitement de la métallurgie. Pour ce faire, il faut tout d'abord identifier les paramètres qui régissent la sensibilité des alliages base nickel à la propagation « rapide » de fissure, le plus souvent assistée par l'environnement et associée à une rupture intergranulaire. Deux directions ont été prises pour étudier l'interaction entre la sollicitation mécanique et les effets d'environnement, en réponse à deux questions complémentaires :

- l'effet de l'environnement dépend-il des conditions de sollicitation mécanique ?
- l'effet du mode de sollicitation mécanique est-il accentué par la présence d'un environnement fragilisant vis-à-vis du matériau ?

II.2. Influence du mode de sollicitation mécanique sur l'effet de l'environnement

L'effet d'environnement dépend étroitement du mode de sollicitation mécanique. En faisant varier la fréquence et la forme des cycles imposés, les auteurs ont identifié deux régimes principaux de propagation de fissure.

Le premier régime est dit « dépendant du cycle » ; il est lié à la sollicitation de fatigue et ne dépend que de l'amplitude du chargement ΔK, corrigé des effets d'ouverture. Il apparaît en général pour une fréquence relativement élevée, une composante de fluage modeste et n'induit pas de fort effet d'environnement ; c'est par exemple le cas du Nimonic PE16, en fatigue, en fluage et en fatigue-fluage [Sadananda 1982].

Le second régime est dit « dépendant du temps ». Il est lié en particulier à un temps important passé à la charge maximale. Il est favorisé par une basse fréquence de sollicitation ou une composante de fluage importante. Il conduit en général à un mode de rupture intergranulaire et une accélération de la propagation qui dépend étroitement de la forme du cycle, de la composition chimique, de la microstructure et de la température. Il fait donc appel à des mécanismes thermiquement activés. C'est par exemple le cas des alliages 718 et N18, en particulier en fatigue-fluage [Hochstetter 1994, Molins 1997]

Les domaines de prédominance respectifs de ces deux régimes ont été particulièrement étudiés sur l'Alliage 718, en termes de fréquence [Weerasooriya 1988, Andrieu 1994] et de forme de cycle [Pédron 1982, Chang 1991]. Weerasooriya et Venkataraman [1988] ont montré l'existence d'une fréquence de transition que nous noterons ν_T, qui délimite les deux régimes en fatigue et qui dépend du mode de chargement mais aussi de l'environnement : elle est en effet supérieure de trois ordres de grandeur sous air par rapport à la valeur mesurée sous vide, ce qui montre que l'oxygène a tendance à étendre le régime dépendant du temps vers les fréquences de sollicitation élevées. Pédron et Pineau [1982] ainsi que Chang [1991] ont montré que l'effet de la forme du cycle disparaît sous vide (Figure C-4) et que l'accélération de la propagation sous air est d'autant plus importante que la microstructure considérée est sensible à l'application d'un temps de maintien à la charge maximale.

Le même type d'étude a été mené sur la microstructure dite « de peau » de l'Alliage N18 [Hochstetter 1994]. La valeur de ν_T est située aux alentours de 10^{-2} Hz à 650°C sous air. En régime dépendant du cycle, l'accélération de la propagation lorsque la fréquence passe au-dessous de ν_T est de 2,4 à 575°C et de 4,6 à 650°C. La rupture est globalement transgranulaire. Les grandes vitesses de propagation sont liées au régime dépendant du temps et sont contrôlées par la microstructure, la température et la charge moyenne ; elles sont indépendantes de l'amplitude du chargement appliqué. La vitesse de propagation en fatigue à $R = 0,1$, ramenée à la période du cycle, est identique à celle qui est mesurée en fluage. Le mode de rupture est alors totalement intergranulaire.

Le mode de sollicitation imposé joue donc un rôle important dans le couplage avec l'environnement et cet effet dépend étroitement du matériau. Il est possible que le matériau intervienne également dans l'effet d'environnement « pur », principalement en termes de modes d'oxydation, ce qui a incité certains auteurs à s'intéresser à la réponse des superalliages base nickel à une exposition à l'oxydation sans sollicitation mécanique appliquée.

II.3. Effet de l'environnement en dehors de toute sollicitation mécanique

L'existence d'une pression partielle de transition qui gouverne, de manière souvent brutale, la résistance des alliages base nickel à la propagation de fissure et qui ne semble dépendre que de la composition chimique du matériau et pas du tout du chargement mécanique (notamment en régime dépendant du temps) est une énigme qui a motivé des études fines sur l'action de l'oxygène sur les alliages base nickel. Les recherches ont porté sur une action « découplée » de celle du chargement mécanique. Aux observations sur la fragilisation induite par l'oxydation à haute température ont succédé des investigations dans le domaine des températures intermédiaires, qui correspond aux essais mécaniques décrits jusqu'ici.

II.3.a. Fragilisation « statique » du nickel et de ses alliages par l'oxydation à haute température

Les premières études ont consisté à faire séjourner des échantillons à haute température (généralement supérieure à 1000°C) avant de les tester, en traction ou en fluage, à différentes températures.

Cas du nickel pur

Douglass [1968] a montré qu'un séjour à 1200°C conduit par la suite à une chute de la ductilité en traction et en fluage à 600°C. Hancock [1976] a étendu ces résultats à la vitesse de fluage stationnaire à 725°C sous 23,2 MPa en montrant que l'effet est dû à la présence d'air pendant le traitement à haute température (ici 24 heures à 1000°C). Un traitement de plus de 11 heures à 1000°C sous air rend même le matériau sensible à la rupture intergranulaire en traction à la température ambiante, que l'on ait ou non retiré la couche d'oxydes formée à haute température.

L'étude la plus approfondie de ces phénomènes est due à Bricknell et Woodford [1981, 1982] qui se sont attachés à déterminer le ou les mécanismes de fragilisation. Ils ont montré que celle-ci est souvent liée à une cavitation intergranulaire importante, attribuée à l'injection, dans les joints de grains, d'atomes d'oxygène qui peuvent bloquer le glissement intergranulaire ou réagir avec le carbone présent dans le matériau. Le nickel très pur (20 ppm de carbone) est également sensible à la fragilisation intergranulaire mais cette fois la rupture se produit sans cavitation, celle-ci restant confinée à l'interface métal/oxyde.

D'une manière générale, la fragilisation des joints de grains a également lieu par pénétration de l'oxygène dans les joints de grains en amont de la zone de cavitation [Woodford 1981b]. Dans tous les cas il s'agit d'un mécanisme d'oxydation interne. Un séjour sous vide permet une thermodésorption de l'oxygène et la ductilité est restaurée si aucune espèce susceptible de

piéger l'oxygène (telle que le carbone) n'est présente dans le matériau [Bricknell 1984]. Ces résultats ont été reproduits par Andrieu, qui a obtenu la rupture totalement ductile d'une éprouvette de nickel pur à 99,999% après oxydation à 1000°C et dégazage à 900°C [Andrieu 1987a]. Ils démontrent d'une manière élégante que la fragilisation est réversible tant que le matériau ne contient pas d'espèce susceptible de réagir chimiquement avec l'oxygène. Ce n'est malheureusement pas le cas des superalliages, qui contiennent des éléments tels que le chrome ou le carbone, pouvant réagir avec l'oxygène dans les joints de grains [Bricknell 1984].

Cas des alliages base nickel

La fragilisation par l'oxydation à haute température a été mise en évidence par Hancock sur l'alliage Ni-20Cr testé en traction à 1000°C [Hancock 1976]. La baisse de la résistance et de la ductilité est accentuée par un maintien prolongé à 1000°C avant l'essai. L'effet est cependant moins spectaculaire que sur le nickel pur. Hancock l'attribue à l'injection de lacunes qui a lieu au cours de la réaction d'oxydation.

Les alliages durcis par précipitation ne sont pas insensibles à cette fragilisation : l'Alliage coulé 738, renforcé par des précipités γ', voit sa résistance au fluage diminuer après une exposition de 200 heures à l'air à 1000°C [Woodford 1981a]. L'effet de ce séjour à haute température dépend de la température d'essai et de la composition chimique du matériau. Le mécanisme mis en avant est ici la diminution de la mobilité des joints de grains du fait de la ségrégation d'oxygène.

Pandey et coll. ont montré qu'il en est de même pour l'Alliage X-750 traité à 1150°C sous une pression de 3.10^{-4} mbar et ont associé cet effet à la présence d'une zone riche en précipités γ' près des joints de grains de la surface au cours du traitement thermique [Pandey 1986].

Conclusions

La fragilisation des alliages base nickel par un séjour à haute température sous air ou sous un vide insuffisamment poussé est commune au nickel pur et aux alliages base nickel renforcés par effet de solution solide ou par précipitation. Elle se produit néanmoins à des températures plus élevées que celles qui sont considérées en service. On se demande alors si une telle fragilisation, sans sollicitation mécanique, peut intervenir au-dessous de 700°C.

II.3.b. Effet de la pression partielle d'oxygène sur le mode d'oxydation des alliages base nickel

L'oxydation à 700°C du nickel pur contenant plus ou moins de carbone ne permet de former que quelques rares cavités à l'interface métal/oxyde ou sur quelques microns dans les joints de grains [Caplan 1980].

L'oxydation des alliages nickel-chrome plus ou moins concentrés en chrome montre qu'entre 500 et 700°C il faut un taux initial de chrome égal à 30% en masse pour ne former que Cr_2O_3 [Molins 1993], tandis que les alliages Ni-18Cr et Ni-20Cr forment en premier une couche de NiO, sous laquelle se développe ensuite une sous-couche de Cr_2O_3 [McIntyre 1990, Molins

1993, Molins 1995]. Les joints de grains ne forment pour leur part que de l'oxyde de chrome. Les résultats obtenus sous air et sous oxygène sont similaires [Le Calvar 1990]. L'oxydation de l'alliage Ni-20Cr à $Po_2 < P_T$ conduit en revanche à la formation lente d'une couche de Cr_2O_3 y compris dans les grains [Schmitt 1995, Molins 1995]. La passivation est alors nettement plus rapide (5 fois à 650°C) que sous air [Molins 1993].

La pression de transition a été reliée aux modes d'oxydation de l'Alliage 718 par Andrieu [1987a] qui a analysé par spectrométrie Auger des échantillons oxydés sous différentes valeurs de Po_2, pendant 8 minutes à 650°C. Il a détecté la présence de Cr_2O_3 pour $Po_2 < P_T$ et d'une couche externe de NiO et d'une couche interne de Cr_2O_3 pour $Po_2 > P_T$. L'analyse par microscopie électronique en transmission de sections transverses [Andrieu 1993, Molins 1993] a confirmé ces résultats et les a étendus aux cas de l'alliage binaire Ni-20Cr, de l'Alliage N18 et du superalliage monocristallin AM1. Elle a également montré que le mode d'oxydation des joints de grains sur les faciès de rupture intergranulaire est identique à celui des grains sur échantillon poli [Andrieu 1993] et en particulier que la valeur de la pression de transition est la même malgré le confinement géométrique et chimique auquel on peut s'attendre à la pointe d'une fissure. La formation de ces couches d'oxydes entraîne également une perturbation importante du métal sous-jacent : une recristallisation et un adoucissement mécanique sur une profondeur de 100 nm au-dessous de l'interface métal/oxyde [Molins 1993].

II.3.c. Conclusions

L'effet de l'environnement sur les propriétés mécaniques des alliages base nickel a pu être relié au mode d'oxydation de ces alliages : l'accélération de la propagation de fissure est liée à la formation d'oxydes de type NiO tandis que les propriétés mécaniques restent inchangées par rapport à celles mesurées sous vide poussé si le matériau forme préférentiellement Cr_2O_3. On dira que le matériau est « nickel-formeur » dans le premier cas et qu'il est « chrome-formeur » dans le second.

Le lien entre la pression partielle d'oxygène de transition et le changement de mode d'oxydation amène à s'interroger sur la valeur intrinsèque de P_T par rapport aux conditions expérimentales utilisées. Les valeurs trouvées sont en effet supérieures d'une vingtaine d'ordres de grandeur aux valeurs de la pression partielle d'oxygène de dissociation des oxydes de nickel et de chrome. Quelle est alors leur représentativité vis-à-vis des mécanismes de fragilisation locaux ?

Il est clair que les valeurs de P_T de l'ordre de 10^{-3} mbar sont éloignées des pressions d'équilibre des différents oxydes ; elles marquent cependant la frontière du domaine de formation de NiO sur les alliages à 20% de chrome. Cela signifie que les valeurs mesurées expérimentalement sont des indicateurs macroscopiques des conditions locales d'oxydation. Browning et coll. [1997] ont remarqué que la plupart des travaux ont été réalisés sous vide d'air, dans des conditions telles que le potentiel d'oxydoréduction (redox) n'était pas « tamponné ». En utilisant des mélanges H_2/H_2O et O_2/H_2O en boucle, avec un réservoir permettant de fixer en permanence le potentiel redox à l'intérieur de l'enceinte, ils ont mesuré sur l'Alliage 718 à 593°C une pression partielle d'oxygène de transition qui correspond effectivement à la pression de dissociation de NiO. Ils en ont déduit que la valeur de P_T couramment mesurée sous vide d'air est une indication de la pression partielle d'oxygène en

pointe de fissure (ou à la surface d'échantillons polis), tandis que les essais à potentiel redox fixé permettent de maintenir en pointe de fissure des conditions thermodynamiques proches de celles qui règnent dans l'enceinte tout entière. Ils retrouvent par ailleurs les mêmes résultats que les autres auteurs en termes de modes d'oxydation et de vitesse de propagation de fissure, les niveaux des « plateaux » des courbes $da/dN = f(Po_2)$ étant identiques à ceux mesurés sous vide d'air.

L'effet d'environnement est donc lié aux conditions électrochimiques locales, quelle que soit l'espèce chimique oxydante prédominante (H_2O ou O_2). Il est en outre possible que la pression locale d'oxygène « disponible », c'est-à-dire susceptible de se dissocier pour donner lieu à une oxydation, ne soit ni celle qui règne dans l'enceinte, ni celle qui est régie par l'équilibre thermodynamique : nous sommes en présence de phénomènes très rapides qui se produisent sans doute hors d'équilibre. L'étude de Browning et coll. montre en particulier qu'il revient au même de travailler dans l'eau ou sous vide d'air, pourvu que l'on se trouve au voisinage du domaine dans lequel la formation de NiO devient possible en termes thermodynamiques et cinétiques. Cette remarque nous sera très utile pour l'interprétation de nos essais à plus basse température, en autoclave comme sous vide d'air.

En termes de mécanismes on remarque que l'oxyde de chrome est toujours présent à la surface des éprouvettes, à tous les stades de l'oxydation. Sa croissance est cependant moins rapide que celle de l'oxyde de nickel, lorsque la pression partielle d'oxygène locale permet à celui-ci de se former. La transition correspond donc davantage à la possibilité de passiver rapidement le matériau dès la création d'une nouvelle surface fraîche. La pression partielle d'oxygène semble ainsi régler la compétition entre la formation des deux types d'oxydes dans les temps courts, pendant lesquels on est susceptible de fragiliser le matériau en pointe de fissure. Ce processus est essentiellement dynamique. Remarquons également que les joints de grains sont toujours chrome-formeurs lorsqu'ils émergent à la surface d'échantillons polis tandis qu'ils se comportent comme les grains du matériau lorsqu'ils constituent des surfaces de rupture, même déformées et écrouies. De plus, la réponse du matériau à la présence d'oxygène est sans doute couplée aux conditions de sollicitation mécanique.

A cette étape des recherches on sait que l'effet d'environnement est lié au mode d'oxydation et qu'il intervient de manière couplée avec les sollicitations mécaniques. Ce couplage est en lien étroit avec les propriétés mécaniques de ces alliages, dont il fait apparaître le rôle essentiel. Il est donc présenté en termes « d'effet matériau » dans la partie suivante de ce chapitre.

III. INTERVENTION DES PROPRIETES DU MATERIAU DANS LE COUPLAGE ENTRE FISSURATION ET ENVIRONNEMENT

L'intervention des propriétés du matériau, en particulier de son comportement mécanique, dans le couplage entre la propagation de fissure et les effets d'environnement a été abordée en termes de microstructure et de modes de déformation. Des études fines sur le couplage ont montré, dans le cas des Alliages 718 et N18, que celui-ci est gouverné par les propriétés de déformation viscoplastique. On s'interrogera enfin sur le rôle de l'état de contraintes dans le matériau. Ces études ont abouti à la proposition de traitements thermomécaniques et de

modifications de composition chimique qui améliorent la résistance de certains superalliages base nickel à la propagation de fissure sous air.

III.1. Détermination des sollicitations mécaniques les plus « endommageantes »

On a vu précédemment que l'effet de l'environnement est d'autant plus marqué que le matériau est sensible à une sollicitation de fluage sous air. Certains auteurs ont alors utilisé la pression partielle d'oxygène de transition comme une sonde pour explorer les parties des cycles mécaniques qui donnent lieu au couplage le plus intense avec les effets d'environnement et que nous appellerons « sensibles » dans la suite de ce chapitre.

Les essais concernent deux superalliages base nickel, les Alliages 718 et N18, dans le cadre des thèses de R. Molins [1995] et de J.-C. Chassaigne [1997]. Ces essais à 650°C ont consisté à superposer au cycle de fatigue ou de fatigue-fluage un cycle de pression totale, l'installation étant conçue pour permettre un passage très rapide (de l'ordre de quelques secondes) de part et d'autre de la pression partielle d'oxygène de transition. Molins et coll. [1997] et Chassaigne [1995, 1997] ont ainsi appliqué un « créneau » de 20 secondes à une pression de 2.10^{-2} mbar, supérieure à P_T, le reste du cycle mécanique étant effectué à 2.10^{-5} mbar, valeur inférieure à P_T. En faisant varier la position de ce créneau ils ont montré que la partie sensible d'un cycle de fatigue triangulaire 180s-180s effectué à R = 0 se situe entre R = 0,3 (en montée), c'est-à-dire à l'ouverture de la fissure et R = 0,9 (en descente). La vitesse de propagation à l'intérieur de ce domaine sensible est presque indépendante de la position du créneau de pression, ce qui suggère que l'effet fragilisant est piloté par la vitesse de déformation locale en pointe de fissure.

L'introduction d'un créneau de pression ($Po_2 > P_T$) à l'intérieur d'un cycle de fatigue-fluage avec maintien de 300 secondes à la charge maximale, a montré que dans le cas de l'Alliage 718 le couplage est susceptible de se produire au cours des 200 premières secondes de maintien à la charge maximale. La position du créneau dans la partie sensible du cycle influence peu la vitesse de propagation. L'endommagement se produit donc sur des temps très courts, bien avant que l'alliage ait eu le temps de former des couches continues d'oxyde. Le couplage avec la déformation en pointe de fissure est donc à considérer d'un point de vue dynamique. Clavel et coll. [1980] avaient par ailleurs déjà montré qu'en fatigue-fluage, en régime dépendant du temps, la vitesse de propagation de la fissure est une fonction croissante du temps de maintien en fluage, ce qui plaide également en faveur d'un mécanisme continu.

Chassaigne [1995, 1997] a effectué les mêmes essais avec l'Alliage N18. Il a montré de plus que la part sensible du temps de maintien est une fonction de la microstructure : pour celle dite « de peau », la plus sensible, elle s'étend sur les 200 premières secondes tandis que pour la microstructure dite « de cœur » elle ne s'étend que sur les 60 premières secondes (Figure C-5). Pour la microstructure de peau, l'accélération de la fissure croît continûment avec la largeur du créneau de pression qui est comprise dans la partie sensible du cycle, ce qui montre que l'endommagement est de type continu et que la fissure se propage à chaque cycle, d'un incrément qui dépend du temps passé à $K = K_{max}$ et $Po_2 > P_T$. Chassaigne émet alors l'hypothèse que le couplage a lieu tant que le matériau se déforme de manière viscoplastique en pointe de fissure, c'est-à-dire tant que la contrainte locale n'est pas relaxée. Il suppose donc

que le couplage avec les effets d'environnement dépend directement de la loi de comportement du matériau.

III.2. Intervention du comportement mécanique du matériau dans le couplage entre la propagation de fissure et les effets d'environnement

Nous présentons ici les résultats obtenus par Chassaigne [1997] avec l'Alliage N18, qui mettent en évidence les caractéristiques du matériau responsables de l'effet de microstructure observé en fatigue-fluage sous air à 650°C.

La démarche a consisté à évaluer l'effet de la relaxation en pointe de fissure. Des essais de fatigue-fluage ont été réalisés sous air en forçant la relaxation en pointe de fissure par un déchargement partiel au début du temps de maintien. La contrainte se trouve de ce fait partiellement relaxée dès le début du maintien à la charge maximale, ce qui réduit l'intervalle de temps laissé au matériau pour se déformer en pointe de fissure [Chassaigne 1995]. Un déchargement de 7% pour le « cœur » et de 15% pour la « peau » suffit à supprimer l'effet d'environnement et la fissuration intergranulaire alors que la pression partielle d'oxygène est constamment supérieure à la valeur de transition. L'effet du temps de maintien à la charge maximale disparaît également.

Afin de vérifier que l'effet de l'environnement se produit exactement dans l'intervalle de temps au cours duquel le matériau se déforme par relaxation en pointe de fissure, Chassaigne [1997] a également réalisé des essais de fatigue-relaxation sur éprouvettes lisses, à 650°C et pour les deux microstructures. Il a constaté que le « cœur » relaxe davantage et plus rapidement les contraintes que la « peau ». Malgré le passage, toujours délicat, d'une sollicitation uniaxiale à une sollicitation triaxiale, il en est sans doute de même à la pointe d'une fissure, ce qui explique que le « cœur » devient plus rapidement insensible aux effets d'environnement au cours d'un maintien à la charge maximale.

L'effet de microstructure dans le cas de l'Alliage N18 est donc lié à la capacité qu'a le matériau à relaxer rapidement les contraintes. Il en est probablement de même pour l'Alliage 718 [Molins 1995]. La fragilisation est donc liée à une interaction dynamique entre la déformation viscoplastique locale et la germination des oxydes en pointe de fissure. Ce sont donc ces deux composantes qu'il convient d'étudier pour tenter de remédier à la propagation rapide des fissures dans ces deux superalliages.

III.3. Amélioration de la résistance des superalliages base nickel à la propagation de fissure

La connaissance des caractéristiques du matériau qui sont susceptibles de favoriser la propagation de fissure à grande vitesse, à savoir la formation d'oxydes de type NiO et une faible capacité à relaxer rapidement les contraintes, ouvre la voie aux métallurgistes pour trouver des solutions à cet épineux problème. Plusieurs actions ont été menées dans ce domaine, portant sur les modes de déformation et d'oxydation des différents alliages.

III.3.a. Favoriser l'oxydation sélective du chrome

La croissance rapide d'une couche suffisante de chrome à l'air à 650°C peut être obtenue de deux manières, selon que l'on modifie la composition chimique de l'alliage ou que l'on met en place une microstructure qui favorise l'oxydation sélective du chrome. Etant donné le pouvoir de « guetteur d'oxygène » des germes de Cr_2O_3, il n'est sans doute pas indispensable de former une couche continue de Cr_2O_3 pour inhiber la germination de NiO. On peut donc raisonner en termes de densité de germes de Cr_2O_3, chacun de ces germes étant entouré d'une « zone d'influence » dans laquelle NiO ne peut pas se former.

Agir sur la composition chimique globale

Nous avons vu qu'il suffit d'avoir 30% de chrome dans un alliage binaire Ni-Cr pour inhiber la formation de NiO sous air [Molins 1993]. Le chrome est malheureusement un élément fragilisant lorsqu'il se trouve en telle quantité dans le nickel. Il est donc difficile de préconiser un ajout important de chrome pour inhiber la propagation rapide de fissure. Certains auteurs mentionnent des éléments tels que l'yttrium ou le cérium, dont l'oxydation créerait des sites favorables à la germination de Cr_2O_3 [Molins 1995] mais on se heurte à un problème de rentabilité. Il est donc difficile de jouer sur la composition chimique globale pour améliorer la résistance des superalliages base nickel à la propagation de fissure à grande vitesse. Il reste encore une possibilité, celle de jouer sur la microstructure pour favoriser l'oxydation sélective du chrome.

Modifier la microstructure

On cherche à introduire des sites favorables à la germination de Cr_2O_3 or il a été montré qu'une surface déformée a plus de chances de former Cr_2O_3 qu'une surface parfaitement lisse : les émergences de plans de glissement jouent à la fois le rôle de fournisseurs de chrome (apporté avec les dislocations qui arrivent à la surface) et d'irrégularités géométriques. Elles ont donc de ce point de vue un rôle proche de celui des joints de grains.

Le sablage à froid permet par exemple à des échantillons d'Alliage 718 de devenir chrome-formeurs sous air à 650°C [Andrieu 1987a]. L'effet de l'état d'écrouissage sur le mode d'oxydation a également été mis en évidence par Molins [1995] qui a montré que l'oxyde de chrome germe également aux joints de macle et aux émergences des lignes de glissement d'échantillons d'Alliage 718, déformés de plusieurs dizaines de pour-cent en fatigue oligocyclique. Un étirage de 10% sous oxygène à la température ambiante a le même effet sur l'alliage binaire Ni-20Cr oxydé ensuite entre 550 et 750°C [Schmitt 1992, 1995]. Lorsque le matériau est chrome-formeur, la croissance de l'oxyde est nettement accélérée par la présence d'une déformation plastique. Il semble donc possible d'améliorer le comportement à l'oxydation des superalliages base nickel par un traitement thermomécanique approprié.

Examinons à présent les possibilités d'action sur l'autre composante du couplage : la déformation viscoplastique, toujours à l'aide de l'outil métallurgique.

III.3.b. Connaître et modifier les propriétés mécaniques locales

L'effet particulièrement « nocif » de la déformation viscoplastique qui se développe lors de la relaxation des contraintes en pointe de fissure est sans doute dû au fait qu'elle s'opère lentement, ce qui favorise dans ces matériaux une localisation importante du glissement [Clavel 1980, Zheng 1993].

Les modes de déformation de l'Alliage 718 ont été étudiés en détail en fonction de la microstructure. Smith et Michel [1978] ont montré qu'une modification du traitement thermique conduisant à une croissance des précipités γ' entraîne une plus grande homogénéité du glissement en flexion trois points, sous air comme sous vide. Cette modification fait néanmoins apparaître des phases de Laves intergranulaires qui induisent une fragilisation supplémentaire. La présence de la phase orthorhombique δ aux joints de grains conduit à la dissolution locale des précipités γ'' et à un adoucissement dans cette zone [Molins 1991]. La résistance des éprouvettes à petits grains à la propagation de fissure s'en trouve améliorée [Andrieu 1989]. Chen et Chaturvedi [1993] ont montré que la présence de δ dans les joints de grains entraîne une accélération de la déformation en fluage stationnaire, avec pour conséquence une relaxation plus rapide des contraintes en pointe de fissure. De fait elle retarde l'amorçage et ralentit la propagation de fissure en fatigue-fluage et en fluage sur les éprouvettes à petits grains [Li 1994]. Selon Molins [1995], un traitement thermique de quelques dizaines d'heures à 750°C avant le durcissement conduit à une population de γ'' d'une taille de 100 nm, des précipités de phase δ dans tous les joints de grains et une zone dénudée en γ'' sur 100 à 400 nm autour de δ. Cette microstructure est peu sensible aux effets d'environnement tout en gardant en traction et en fluage les propriétés requises pour les applications aéronautiques. La présence de la phase δ réduit en revanche la résistance à la propagation de fissure sous chargement élevé.

Hochstetter [1994] et Chassaigne [1997] ont montré que la mauvaise résistance de la microstructure de peau de l'Alliage N18 est liée à la présence de tout petits précipités γ' aux alentours des joints de grains. En présence d'une contrainte, ceux-ci ont tendance à se cisailler, entraînant une localisation intense de la déformation et une concentration de contraintes importante près des joints de grains. Une vitesse de refroidissement plus basse (100°C/minute au lieu de 300) aboutit à la microstructure de cœur, dans laquelle la population de γ' est homogène et qui résiste mieux à la propagation de fissure assistée par l'environnement. La déformation se produit en effet de manière homogène dans les couloirs de matrice, qui sont absents près des joints de grains de la microstructure de peau. La microstructure de cœur semble être un bon compromis entre la tenue mécanique et la tolérance au dommage assisté par l'environnement.

Même après l'optimisation de la microstructure, le matériau peut subir une altération de sa résistance à la fissuration. C'est notamment le cas, pour l'Alliage N18, des « zones blanches » qui sont produites lors de l'assemblage du disque de turbine à l'arbre par soudage-friction. De nouveaux traitements thermiques, dits « post-soudage », doivent être mis au point pour restaurer les propriétés du matériau. Clad [1996] y est parvenu en faisant croître les précipités γ', tout en évitant la précipitation massive des phases intergranulaires fragiles.

III.3.c. Améliorer simultanément les deux termes du couplage

Les études précédentes montrent que la modification de l'état d'écrouissage, par un traitement thermomécanique approprié, peut à la fois rendre le glissement plus homogène et favoriser la formation de Cr_2O_3, les deux phénomènes étant favorables à la résistance à la propagation de fissure. Chang [1991] a montré qu'un laminage à chaud, laissant un écrouissage résiduel, maintient ses échantillons d'Alliage 718 en régime dépendant du cycle en fatigue continue et en fatigue-fluage à 593°C, bien que l'écrouissage en pointe de fissure soit sans doute non négligeable en regard de celui qui est induit par le laminage. Zheng et coll. [1993] ont montré qu'une prédéformation en traction de 2% améliore la résistance à la propagation de fissure en fatigue lente et réduit l'épaisseur des couches d'oxydes formées sur les lèvres de la fissure. La formation plus rapide de Cr_2O_3, associée à la faible épaisseur des oxydes, est attribuée à une plus grande homogénéité du glissement.

L'étude des interactions entre la propagation de fissure et les effets d'environnement a permis de mettre au point des microstructures qui résistent à la propagation de fissure par une moindre localisation de la déformation, en particulier près des joints de grains. D'autres solutions ont également été trouvées, en particulier la microstructure « en collier » de l'Alliage 718 [Pédron 1982] et les joints de grains « dentelés » de l'Astroloy [Loyer Danflou 1992], qui contraignent les fissures à bifurquer souvent, voire à se ramifier. Il reste à vérifier que ces microstructures « modifiées » gardent de bonnes propriétés face au vieillissement en service aux alentours de 650 à 700°C.

III.3.d. Effet du vieillissement sur la résistance à la fissuration assistée par l'environnement

Nous proposons ici encore les exemples des Alliages 718 et N18. Le vieillissement en service de l'Alliage 718 conduit à la formation de la phase δ à partir de la phase métastable γ'', en particulier aux joints de grains, et à un grossissement des précipités γ'' résiduels. La déformation est alors plus homogène dans le matériau [Pineau 1985, Ghonem 1993] qui relaxe également plus vite les contraintes [Molins 1997]. La présence de la phase δ est cependant fragilisante pour les chargements élevés. Le vieillissement de la microstructure améliore donc sa résistance à la fissuration, sous chargement modéré, par de meilleures capacités de relaxation et un caractère plus homogène du glissement.

Chassaigne [1997] a montré qu'il en est de même pour l'Alliage N18. Le vieillissement fait croître les précipités γ' près des joints de grains de la microstructure de peau, dont les propriétés en relaxation et en fissuration sous air rejoignent celles de la microstructure de cœur. L'effet d'un temps de maintien à la charge maximale disparaît et le régime devient dépendant du cycle. Un problème subsiste toutefois : le vieillissement provoque également la précipitation intergranulaire de phases fragilisantes (σ, μ) qui abaissent la ténacité du matériau : K_{IC} passe ainsi de 120 à 60 MPa$\sqrt{m}$ sur le matériau vieilli.

Pour ces deux alliages le vieillissement en service se traduit donc par une amélioration de la résistance à la fissuration assistée par l'environnement tant que le chargement reste modéré et par une fragilisation aux charges élevées.

III.3.e. Conclusions

L'étude fine du couplage entre la fissuration et les effets d'environnement a abouti à une amélioration de la résistance de certains superalliages par une modification adéquate de la microstructure. Cette amélioration concerne les pièces « à venir » mais on souhaite également pouvoir prédire la tolérance au dommage des pièces actuellement en service. Il a fallu pour cela modéliser de manière quantitative la vitesse de propagation de fissure, en particulier pour les valeurs les plus élevées, pour mettre au point des critères de durée de vie.

III.4. Prédiction de la tenue des pièces en service

Au fur et à mesure de l'acquisition des données expérimentales, un certain nombre de modèles ont été mis au point pour prédire la durée de vie des pièces mais aussi pour permettre de « classer » les superalliages en termes de résistance à la propagation de fissure. Nous donnons ici les grandes lignes de certains d'entre eux, en insistant sur les mécanismes invoqués et la prise en compte du couplage entre les effets d'environnement et l'endommagement en pointe de fissure.

III.4.a. Modèle d'adsorption

Un des premiers modèles proposés est dû à Achter et coll. [Achter 1959, Smith 1969, Stegman 1969b]. Il repose sur une réduction de l'énergie de surface par l'adsorption d'oxygène en pointe de fissure. Il s'appuie sur la théorie cinétique des gaz pour prédire les valeurs de la pression de transition P_T, en fonction du chargement et de la température. Il aboutit à une valeur de P_T qui est proportionnelle à la racine carrée de la température absolue et à la vitesse de propagation de la fissure. Ces deux formes de dépendance ne sont cependant pas observées avec les résultats expérimentaux [Smith 1969, Molins 1997].

III.4.b. Modèle de fragilisation par pénétration de l'oxygène dans les joints de grains

La modélisation proposée par Bricknell et Woodford [1981] pour la fragilisation des alliages base nickel à très haute température repose sur l'injection, au cours de la formation de NiO, d'atomes d'oxygène qui épinglent les joints de grains du métal. Elle a également été considérée dans le domaine des températures intermédiaires. Molins et coll. [1997] font cependant remarquer que l'on n'observe pas de cavitation en amont des fissures, même à l'échelle de la microscopie électronique en transmission. Dyson [1982], ainsi que Lu et coll. [1996] ont montré que la présence de chrome empêche l'établissement d'une pression de gaz (CO ou CO_2) élevée dans les éventuelles « bulles ». Ajoutons que toute fragilisation statique, c'est-à-dire sans contrainte appliquée, semble exclue au-dessous de 700°C [Andrieu 1987a]. Le modèle de Bricknell et Woodford ne s'applique donc pas tel quel dans ce domaine de température.

III.4.c. Autres mécanismes de fragilisation possibles

Pour être compatibles avec les données expérimentales, les mécanismes proposés en régime dépendant du temps doivent rendre compte d'un endommagement continu, qui intervient au cours de la germination des oxydes. La fragilisation doit donc être de courte portée et ne

saurait être imputée à la diffusion de l'oxygène sur de longues distances. Plusieurs mécanismes ont alors été proposés [Cook 1974, Pineau 1985, Floreen 1985], qui insistent en particulier sur le rôle du mode d'oxydation. Les éléments principaux de ces mécanismes sont les suivants :

- l'injection d'oxygène et/ou de lacunes au cours de l'oxydation cationique de Ni en NiO ;
- l'effet « guetteur d'oxygène » des germes de Cr_2O_3 à la surface du matériau ;
- l'évolution de la diffusivité et de la solubilité de l'oxygène dans le nickel en fonction de la contrainte plus ou moins rapidement relaxée dans les joints de grains ;
- une modification de la composition chimique du métal à proximité de la surface ;
- un endommagement de fluage en avant de la pointe de la fissure.

Ces éléments peuvent par ailleurs interagir. Il est difficile de les discriminer, puisque l'on ne peut pas accéder aux conditions chimiques et micromécaniques, qui règnent à la pointe d'une fissure en train de se propager. Il fournissent cependant des bases physiques aux calculs de durée de vie des pièces.

III.4.d. Prévision de la durée de vie des pièces en service

Nous citerons ici le cas de l'Alliage N18, pour lequel la prévision de durée de vie s'appuie sur les mécanismes décrits ci-dessus. Le début de la propagation en régime dépendant du cycle, qui fait notamment intervenir les effets de fermeture, a été abordé d'un point de vue strictement mécanique par Pommier [1995]. Nous nous intéresserons ici à la modélisation quantitative de la vitesse de propagation de fissure longue. Le régime principalement considéré est le régime dépendant du temps, pour lequel l'effet d'environnement est très important et conduit à des vitesses de propagation élevées.

Hochstetter [1994] et Chassaigne [1997] ont tenu compte à la fois de l'effet de l'environnement et de la vitesse de déformation viscoplastique en pointe de fissure. Celle-ci a été estimée à l'aide de l'approche globale développée par Riedel et Rice en fatigue et en fluage [Rice 1967, Riedel 1980]. Faute de données expérimentales plus quantitatives sur le couplage entre les mécanismes de déformation et de fragilisation, ils ont considéré que les deux composantes étaient additives en termes de vitesse de propagation. La principale difficulté a consisté à déterminer les paramètres du modèle :

- la longueur caractéristique X_C, nécessairement très petite, sur laquelle le matériau doit être endommagé pour donner lieu à un incrément de propagation au bout d'un temps t_c ;
- le paramètre mécanique à prendre en compte dans le calcul d'endommagement viscoplastique (contrainte ou déformation critique) ;
- la cinétique de l'endommagement dû aux effets d'environnement ; ils ont choisi une cinétique parabolique, liée à un mécanisme de diffusion (d'oxygène ou de lacunes) dans le métal.

Le coefficient de diffusion de l'oxygène, même modifié en présence d'une contrainte, est cependant trop faible pour rendre compte, dans ce cadre, des grandes vitesses de propagation observées expérimentalement.

Hochstetter [1994] a choisi de définir l'endommagement mécanique critique en termes de contrainte. Le choix de la déformation, qui ne permet pas d'atteindre les vitesses les plus élevées, est réservé au régime dépendant du cycle. Il parvient ainsi à représenter les courbes de vitesse de propagation, en régime dépendant du cycle (sans effet d'environnement) et en régime dépendant du temps (avec effet d'environnement).

Chassaigne [1997] a réussi, par une intégration sur la partie sensible du chargement imposé, à prédire les vitesses de propagation obtenues en fatigue lente, pour des rapports de charge variables (0,1 à 0,78) à partir des prédictions de vitesse de propagation en fluage (Figure C-6). Il choisit de définir l'endommagement critique en termes de déformation. En identifiant la longueur critique X_C à la taille de la zone qui est en compression après un déchargement de 20% (qui supprime tout juste les effets d'environnement en fatigue-fluage), il obtient une valeur de 6,3 µm, de l'ordre de la taille de grains du matériau et nettement supérieure à celle de l'indentation des joints de grains par la formation des oxydes (0,1 µm).

III.5. Conclusions

L'influence de l'environnement sur les propriétés mécaniques des superalliages base nickel a été étudiée d'une manière considérable au cours des dernières décennies. On est ainsi passé de l'observation d'un « trou de ductilité » à la définition de deux régimes de propagation de fissure :

- un régime dépendant du cycle, sous lequel les effets de la microstructure, de l'environnement, de la température, de la fréquence et du niveau moyen de chargement interviennent peu et qui conduit à des vitesses de propagation modérées ;

- un régime dépendant du temps, qui conduit à une accélération parfois très importante de la propagation de la fissure et fait intervenir notamment le matériau, la température et les effets d'environnement.

Une étude fine du couplage a montré que les grandes vitesses de propagation sont dues à un endommagement continu. De plus, la résistance d'un matériau à la propagation rapide de fissure est liée à sa capacité à relaxer rapidement les contraintes en pointe de fissure et à former préférentiellement l'oxyde de chrome. Elle est donc conditionnée par sa résistance à la propagation de fissure en régime dépendant du temps et particulièrement en fluage.

Ces études ont débouché sur des modifications de microstructure et sur la mise au point d'outils de prévision quantitative de la durée de vie des pièces en service. Dans le cadre de notre étude, nous avons tenté d'appliquer, dans ses grandes lignes, la même fructueuse démarche au cas de l'Alliage 600, durci par effet de solution solide.

Avant de détailler les étapes suivies, il est utile de disposer de données complémentaires, qui n'ont pas été intégrées dans les études précédentes et s'articulent autour de deux sujets :

- les propriétés de l'Alliage 600 dans ce domaine de température ;
- l'interaction entre l'environnement (et plus précisément les réactions de surface) et le comportement mécanique, qui n'a pas été envisagée en tant que telle dans les études sur les superalliages et qui sera un point clé de notre étude.

IV. DONNEES COMPLEMENTAIRES UTILES A L'ETUDE

IV.1. Données disponibles sur l'Alliage 600

L'Alliage 600 a été étudié dans ce domaine de température comme un matériau modèle des solutions solides à base de nickel, monophasé, dont la composition chimique est proche de celle des superalliages comme les Alliages 718 et surtout X-750. Nous suivons ici la démarche qui a été développée avec les autres alliages base nickel.

IV.1.a. Le « trou de ductilité »

La première partie de notre étude, consacrée au comportement mécanique de l'Alliage 600, a montré que la ductilité en traction sous air est une fonction décroissante de la température et qu'à 600°C apparaît une fissuration intergranulaire importante, que l'on ne retrouve pas à 550°C. L'Alliage 600 est donc affecté par le « trou de ductilité » commun aux alliages base nickel. La ductilité semble minimale aux alentours de 700°C [Rousselet 1989].

IV.1.b. Fragilisation au cours d'une oxydation à très haute température

Pandey et Rama Rao [1989] ont exposé 150 heures à haute température (entre 900 et 1100°C) des éprouvettes lisses d'Alliage 600 contenant 0,06% de carbone en masse. Un traitement thermique de vieillissement de 24 heures à 850°C a ensuite été appliqué pour faire précipiter des carbures M_7C_3 dans les joints de grains. Les éprouvettes ont enfin été testées en fluage à 727°C sous 75 MPa.

La déformation à rupture, qui peut atteindre 60% après les mêmes traitements thermiques sous vide (ou sous air à 900 et 1100°C), chute à 21% pour les échantillons préexposés à 1000 ou 1050°C. D'une manière générale la ductilité en fluage chute lorsque le traitement complémentaire à 850°C a peu fait précipiter de carbures dans les joints de grains.

Les échantillons préexposés sous air présentent des cavités en avant de la pointe des fissures, qui sont plus rondes, plus isolées et s'étendent sur un moindre volume pour les échantillons les plus ductiles. Les éprouvettes traitées sous vide rompent par instabilité géométrique après une migration importante des joints de grains.

Pandey et Rama Rao [1988] ont également analysé des échantillons traités 150 heures à 1050°C sous air puis 24 heures à 850°C ; ils ont observé une zone dénudée en carbures intergranulaires qui s'étend sur 400 µm sous la surface, qu'ils attribuent à une oxydation interne du carbone, bien que Cr_2O_3 soit, d'un point de vue thermodynamique, plus stable que CO ou CO_2. Ils attribuent donc la fragilisation à haute température à la cavitation

intergranulaire par oxydation interne, ce qui correspond au modèle de Bricknell et Woodford [1981]. Le chrome ne protège donc pas les joints de grains de l'Alliage 600 vis-à-vis de la fragilisation à très haute température.

IV.1.c. Résistance à la propagation de fissure

James [1973] a étudié la sensibilité de l'Alliage 600 à la propagation de fissure en soumettant des éprouvettes CT à des cycles triangulaires (ν = 0,67 Hz, R = 0,05). Il a obtenu une vitesse de propagation intermédiaire entre celles de l'Alliage 718 respectivement traité et non traité. L'augmentation de la température entre 24 et 650°C conduit à une augmentation de la vitesse de propagation d'un facteur 2,2 à 316°C, 6,2 à 538°C et 13 à 650°C, sans changement notable de la pente. Le mode de rupture n'est pas précisé et l'exposant de la loi de Paris mesuré sur ces courbes est de 3,7 à 538°C (Figure C-7). Sadananda et Shahinian [1983] n'ont en revanche pas réussi à faire propager de fissure sur une éprouvette CT d'Alliage 600, préfissurée à l'ambiante, sollicitée en fluage à K = 30 MPa$\sqrt{m}$ entre 540 et 870°C : la fissure s'émousse très rapidement et n'a pas le temps de se propager avant la relaxation des contraintes locales. Une composante de fatigue est donc indispensable pour recharger périodiquement la pointe de la fissure, pour ce matériau qui flue plus vite que les superalliages.

IV.1.d. Effets d'environnement en fluage

Quelques études se sont intéressées au comportement mécanique de l'Alliage 600 en fluage à haute température. Douglas [1959] a observé sur produit mince (épaisseur 500 µm) un renforcement par l'oxyde à 816 et 871°C lors d'essais sous air, par rapport aux mêmes essais sous argon purifié. A 649°C, des éprouvettes plus épaisses (diamètre 12,8 mm) fluent plus vite sous air que sous vide pourvu que la charge soit suffisamment élevée (de l'ordre de 55 MPa). Le même effet est rencontré avec des éprouvettes plus petites (diamètre 4 mm) d'un matériau à gros grains (300 à 400 µm), avec des vitesses de fluage, à 650°C sous 120 MPa, de $2{,}3.10^{-7}$ s^{-1} sous air et $8{,}3.10^{-8}$ s^{-1} sous vide, soit un facteur 2,8 entre les deux environnements [Rousselet 1989]. Douglas relie la sensibilité aux effets d'environnement à la part de la déformation intergranulaire dans la déformation totale. La sensibilité est alors plus élevée pour les valeurs élevées de la température et les valeurs basses de la contrainte appliquée. Il attribue le renforcement par l'oxyde à une modification de l'énergie de surface qui empêche l'interface métal/oxyde d'accommoder les déformations.

IV.1.e. Conclusions

La sensibilité de l'Alliage 600 aux effets d'environnement a été caractérisée à très haute température. Dans le domaine des hautes températures (températures « intermédiaires » pour les superalliages base nickel), on manque de données sur l'effet de l'environnement sur la résistance à la propagation de fissure. Un des objectifs de notre étude est précisément l'acquisition et l'interprétation de ces données.

IV.2. Effets possibles des réactions en surface sur le comportement de matériaux métalliques

Nous donnons ici quelques exemples expérimentaux qui montrent que les conditions chimiques, physiques ou mécaniques qui règnent à la surface peuvent jouer un rôle important dans le comportement des matériaux métalliques. Le cas de la plasticité affectée par l'hydrogène sera traité dans la partie consacrée aux effets d'environnement à plus basse température.

IV.2.a. Fluage d'échantillons de zinc pur ; effet d'un placage de cuivre en surface

Pickus et Parker [1951] ont fait fluer des monocristaux et des polycristaux de zinc pur entre 100 et 375°C. Ils ont étudié l'effet d'un dépôt et d'un retrait électrolytiques d'une couche de cuivre de 250 nm à la surface de leurs échantillons. Ils ont constaté que la présence de cette couche fait substantiellement baisser la vitesse de fluage stationnaire des monocristaux mais n'a aucun effet sur les échantillons polycristallins, dont la section comporte un grand nombre de grains. L'effet de la couche de cuivre est attribué au blocage soit de la génération, soit de l'échappement des dislocations à la surface des monocristaux. Le rôle analogue des joints de grains comme sources et/ou puits de dislocations expliquerait alors que l'on ne retrouve pas cet effet avec les polycristaux.

IV.2.b. Effet des réactions de surface sur le comportement en fluage

Olive et Sarrazin [1993] ont fait une revue des travaux concernant cet effet, depuis sa découverte par Rehbinder en 1928. Celui-ci a en effet montré que la présence d'un agent actif en surface peut faire décroître la limite d'élasticité et augmenter la vitesse de déformation en fluage stationnaire, par simple effet de la baisse de l'énergie de surface [Rehbinder 1947].

Revie et Uhlig [1974] ont montré que la vitesse de fluage de fils de cuivre pur à 25°C, dans une solution d'acétate désaérée et tamponnée à pH = 3,7, sans formation possible d'un film de surface, est accélérée par l'application d'un potentiel anodique, voire par celle d'un potentiel cathodique pour les fils à gros grains. L'application de ce potentiel sans chargement mécanique n'a aucun effet. Les auteurs concluent qu'il y a couplage entre la réaction de surface et le comportement en fluage. Ils attribuent l'effet du potentiel cathodique à une diminution de l'énergie de surface et celui du potentiel anodique à une activation de la diffusion de lacunes dans le métal. Le même effet a été observé sur le fer et sur un acier en milieu salin ; il a été attribué au même mécanisme [Uhlig 1976].

IV.2.c. Etude à l'échelle microscopique : croissance de boucles lacunaires induite par l'oxydation

Hales et coll. [1968] ont étudié la croissance de boucles lacunaires sur des monocristaux de zinc et de magnésium, recuits sous air et sous vide (à 23°C pour Zn et 180°C pour Mg), après remise en solution et trempe à l'eau glacée. Ils ont remarqué que la vitesse de croissance des boucles lacunaires évolue dans le même sens que la cinétique de croissance de l'oxyde en fonction de la pression partielle d'oxygène, alors que la couche d'oxydes est encore trop fine pour être détectée au microscope électronique en transmission. Cela signifie en particulier que le matériau est « perturbé » dès le début de l'oxydation.

Fraser et coll. [1973] ont montré que des lames minces de NiAl monocristallin, élaboré par fusion de zone sous argon contenaient suffisamment de lacunes pour qu'un recuit de quelques dizaines de minutes à 10^{-7} torr à 920 et même entre 600 et 650°C fasse croître des cavités déjà présentes dans le matériau. Ils considèrent que ces lacunes ont été injectées lors de l'oxydation de NiAl en un complexe ($NiO.Al_2O_3$) de structure spinelle, lors de la fusion de zone, voire du recuit sous vide.

La formation d'un oxyde riche en nickel sur un substrat métallique également riche en nickel peut donc donner lieu à un phénomène d'injection de lacunes. La sensibilité des alliages base nickel à la propagation rapide de fissure entre 500 et 700°C étant accrue lors de la formation de NiO, il convient d'étudier plus précisément le mode de formation de cet oxyde et ses conséquences sur le comportement du métal sous-jacent.

IV.3. Oxydation du nickel et croissance de NiO

Le fait de considérer l'étape de croissance de la couche d'oxydes ne vient pas d'un manque de données sur la germination, mais du fait que la croissance d'une couche peut donner des indications utiles sur la croissance des germes d'oxydes eux-mêmes au cours des premiers stades de l'oxydation. Nous détaillons en deux temps les principaux résultats publiés, selon qu'ils concernent le mode de croissance de NiO ou les conséquences de la croissance cationique sur les propriétés du substrat métallique.

IV.3.a. Modes de croissance de NiO

La cinétique de croissance de NiO sur le nickel a fait l'objet de nombreuses études. Atkinson [1988] a montré que la théorie de Wagner, qui suppose que la croissance est contrôlée par la diffusion dans le réseau de NiO, ne s'applique plus lorsque la température est inférieure à 1000°C. Il est cependant parvenu à modéliser les résultats expérimentaux, à un facteur 2 près, en considérant qu'au-dessus de 300°C la théorie de Wagner reste applicable, si l'on admet que les joints de grains de NiO sont des courts-circuits de diffusion pour les ions de nickel.

Evans [1995] considère également que l'oxygène diffuse dans les joints de grains de NiO. Il a également remarqué que la taille de grains de NiO augmente au cours de la croissance de la couche, il y a donc de moins en moins de joints de grains disponibles pour faire diffuser les ions et la croissance ralentit pour devenir « subparabolique ».

Gesmundo et coll. [1995] ont insisté sur le rôle des réactions d'interface dans la cinétique globale de croissance isotherme. Utilisant NiO comme oxyde « de référence » de type p, ils ont montré que la cinétique de croissance est contrôlée par la réaction à l'interface oxyde/métal dès lors que celle-ci est plus lente que la réaction à l'interface oxyde/gaz. Le rôle de la réaction à l'interface « interne » oxyde/métal est d'ailleurs croissant au cours du temps. Les auteurs retrouvent alors la combinaison d'une cinétique linéaire et d'une cinétique parabolique.

La plupart des auteurs s'accordent pour considérer qu'entre 500 et 700°C la croissance de NiO est de type cationique et s'effectue principalement par diffusion des ions de nickel dans les joints de grains de l'oxyde, vers l'interface oxyde/gaz.

IV.3.b. Contraintes de croissance

L'apparition de contraintes lors de la croissance d'une couche d'oxydes relève en général de deux phénomènes [Evans 1995] :

- l'existence d'un écart entre les volumes des mailles élémentaires respectives du cristal métallique et du cristal d'oxyde ; le rapport de Pilling-Bedworth $V_{oxyde}/V_{métal}$ est de 1,65 pour le couple NiO/Ni ;

- les défauts de planéité de l'interface métal/oxyde ; lors d'une croissance cationique, le métal a plutôt tendance à se rétracter du fait de l'absorption de lacunes ; si l'interface est immobilisée par des conditions aux limites d'origine géométrique (par exemple à la surface d'un échantillon cylindrique), des contraintes importantes peuvent se développer.

Le premier phénomène a été étudié par diffraction des rayons X, à chaud, au cours de la croissance de la couche sur des échantillons plans. Huntz, Liu et Lebrun [1995] ont ainsi mesuré des contraintes de traction, inférieures à 30 MPa, dépendant peu de la pression partielle d'oxygène ou du temps, entre 700 et 1130°C. Désirant opérer en contraintes planes, Goedjen, Shores et Stout [1997] ont utilisé des feuillards de nickel et formé des films d'oxydes minces sous le diffractomètre. Ils se sont cependant heurtés à un problème de représentativité des résultats, souvent obtenus sur un seul grain de métal avec des grains colonnaires de NiO fortement texturés. Ils ne parviennent pas à retrouver l'équilibre mécanique entre le métal et l'oxyde. Si l'emploi de produits minces est très utile, nous le verrons plus tard, pour déterminer les interactions entre oxydation et comportement mécanique, il s'avère ici très délicat pour la détermination des contraintes de croissance de la couche de NiO car les contraintes de croissance sont relaxées par le fluage du métal, inaccessible à la mesure par diffraction des rayons X. Noden et coll. [1968] ont ainsi montré que des feuillards minces d'acier inoxydable austénitique contenant environ 20% de chrome s'allongent sous l'effet de l'oxydation sous air. La vitesse de déformation correspondante est cependant faible, de l'ordre de 10^{-9} s^{-1} entre 800 et 900°C, alors que le matériau est manifestement nickel (ou fer)-formeur.

Dans sa revue bibliographique, Evans [1995] a considéré que les contraintes de croissance de NiO sont très légèrement positives (de l'ordre de 10 MPa) et constantes au cours de la croissance de la couche d'oxydes mais peuvent être amplifiées si la surface n'est pas plane. La présence d'une concavité importante —en particulier en pointe de fissure ?— sollicite l'interface métal/oxyde en traction. Cet effet est probablement atténué lorsque la couche d'oxydes n'est pas encore continue, comme c'est sans doute le cas lors de la propagation rapide de fissure dans les superalliages base nickel.

Les contraintes de croissance étant faibles, la principale conséquence de la croissance de NiO à la surface des alliages base nickel est probablement liée à sa nature cationique et aux réactions physico-chimiques qui se produisent à l'interface oxyde/métal, en particulier au

devenir des lacunes produites dès la formation des premiers germes d'oxyde. La description et la modélisation de ces réactions fait l'objet du paragraphe suivant.

IV.4. Modélisation des réactions à l'interface métal/oxyde

La modélisation des réactions d'interface a eu le plus souvent comme objectif la prédiction de la « qualité » de l'adhésion de la couche d'oxydes à son substrat métallique, garantie d'une protection convenable contre la corrosion généralisée, ou bien la définition de conditions aux limites pour la cavitation. Elle s'est donc peu intéressée au comportement du matériau en dehors des effets d'endommagement.

Nous ne nous intéresserons ici qu'aux réactions liées à la croissance cationique, sachant que les auteurs ont également développé des modèles relatifs à la croissance anionique. Les couches d'oxydes sont supposées adhérer au substrat métallique avec lequel elles ont des relations cristallographiques étroites, en général d'épitaxie.

IV.4.a. Injection de défauts dans le réseau du métal

Gibbs et Hales [1976] ont considéré les lacunes injectées dans le métal lors de la croissance de l'oxyde. Ils séparent les pièges de ces lacunes en deux familles, selon qu'ils contribuent ou non à la perte d'adhérence entre le métal et l'oxyde :

- l'interface métal/oxyde (qui est alors mobile) et les cavités du métal permettent de piéger des lacunes sans modifier le volume du métal ;

- les joints de grains, les dislocations et les boucles lacunaires du métal sont des pièges qui conduisent à une perte de volume du métal, surtout si celui-ci a de petits grains et finalement à une perte d'adhérence entre le métal et l'oxyde.

Les auteurs considèrent que dans la plupart des cas l'interface métal/oxyde est immobile et que l'effet principal des lacunes injectées dans le métal est de faire se rétracter celui-ci, ce qui finit par provoquer la rupture de l'interface.

Harris [1988] a considéré pour sa part que l'interface métal/oxyde se comporte comme un joint de grains, capable notamment de migrer en piégeant des lacunes. Il s'interroge néanmoins sur la possibilité qu'a l'interface de piéger des lacunes en condition « dynamique », c'est-à-dire hors d'équilibre.

Evans [1988] estime que l'injection de lacunes dans le métal est une opération difficile, qui nécessite que l'interface comporte peu de pièges et que l'énergie de liaison entre cette interface et les lacunes soit faible. Il préfère donc modéliser la cavitation en considérant que l'interface est immobile.

Les modalités de l'injection de lacunes varient selon les auteurs. Parmi les défauts d'interface qu'ils répertorient, Pieraggi et coll. [1995] optent pour les dislocations « de misfit », géométriquement nécessaires, qui accommodent l'écart de paramètre de maille entre le métal et l'oxyde. Après la montée de l'une d'elles dans le métal —ce qui consomme une rangée de

lacunes—, les distorsions élastiques sont telles qu'une nouvelle dislocation finit par être générée à la place de celle qui est montée dans le métal. L'interface métal/oxyde constituerait ainsi une source efficace de dislocations. Evans [1995] opte pour sa part pour les dislocations extrinsèques et les « marches », qui accommodent l'écart d'orientation entre les plans cristallins du métal et de l'oxyde, ces derniers étant en épitaxie dans le cas du couple Ni/NiO. Ces défauts sont moins nombreux que les dislocations de « misfit » mais leur montée demanderait moins d'énergie, du moins en croissance cationique.

IV.4.b. Conséquences possibles sur le comportement

Outre des effets parfois redoutables sur l'endommagement du métal, l'injection de défauts — lacunes ou dislocations— peut influencer le comportement, en particulier en fluage secondaire, en modifiant l'équilibre entre l'écrouissage et la restauration. Les lacunes facilitent la montée des dislocations bloquées dans les grains, ce qui permet de réactiver les mécanismes de déformation, en particulier dans des matériaux à glissement fortement planaire, comme c'est souvent le cas des alliages base nickel en condition de propagation rapide de fissure. Il est également possible que ces défauts modifient les conditions de glissement intergranulaire, sans pour autant déclencher de cavitation, comme c'est le cas dans le nickel très pur oxydé à haute température [Caplan 1980]. Ces mécanismes sont au centre de l'étude des effets d'environnement que nous avons menée sur l'Alliage 600.

V. DEMARCHE ADOPTEE AU COURS DE L'ETUDE

L'étude de la propagation de fissure assistée par l'environnement s'est inspirée de la démarche que nous avons dégagée à propos des alliages base nickel. Trois objectifs en ont guidé l'application au cas de l'Alliage 600 :

- étendre à l'Alliage 600 des résultats acquis en propagation de fissure sur les superalliages base nickel et montrer en quoi le comportement d'un alliage durci par effet de solution solide diffère de celui d'un alliage à durcissement structural ;

- explorer le couplage entre l'environnement et non seulement la fissuration, mais aussi le comportement mécanique local du matériau en pointe de fissure, ce qui à notre connaissance n'a pas été étudié avec les superalliages ;

- mettre en évidence des mécanismes susceptibles —pourquoi pas ? — d'agir également à plus basse température, voire dans d'autres environnements tels que le milieu primaire des réacteurs à eau sous pression.

Les moyens mis en œuvre au cours de cette étude sont les suivants :

- des essais de propagation de fissure, pour connaître l'effet de l'environnement dans le mode de rupture et la vitesse de propagation ;

- des calculs de structure qui permettent d'accéder au chargement mécanique en pointe de fissure et de déterminer, au vu des résultats expérimentaux, le paramètre mécanique qui gouverne la vitesse de propagation de la fissure ; ces calculs ont été décrits dans le Chapitre B-4 ;

- une étude détaillée des effets d'environnement sur le mode d'oxydation et sur le comportement mécanique local du matériau situé sous la surface.

CHAPITRE C-2 :
PROPAGATION DE FISSURE SOUS AIR A HAUTE TEMPERATURE
ESSAIS DE PROPAGATION DE FISSURE

La propagation de fissure à 550°C dans l'Alliage 600 a été étudiée en deux temps, à l'aide de deux éprouvettes CT de la coulée A. Une première éprouvette, repérée T_2A, a été testée à titre exploratoire à 550°C en fatigue-fluage ; la Figure C-8 montre que la fissure s'est propagée de manière intergranulaire. Les joints de grains de l'Alliage 600 sont donc sensibles à la fissuration à 550°C. Ceci peut être dû à deux phénomènes, éventuellement couplés :

- un endommagement mécanique lié à la valeur relativement élevée de la température ($T/T_F = 0,49$), qui peut intervenir au cours des cycles de fatigue et surtout lors de maintiens à la charge maximale ;

- un effet d'environnement, qui peut faire intervenir en particulier le mode d'oxydation du matériau ; celui-ci dépend de la pression partielle d'oxygène (ici 200 mbar) imposée au cours de l'essai.

Afin de déterminer le ou les mécanismes de fragilisation intergranulaire de l'Alliage 600 à 550°C, il est nécessaire de connaître les rôles respectifs de ces deux modes d'endommagement. La seconde éprouvette CT (T_2B) a donc été testée en faisant varier au cours de l'essai les conditions mécaniques (forme du cycle imposé) et la pression partielle d'oxygène à l'intérieur de l'enceinte. Tous les résultats présentés dans la suite de ce chapitre ont été obtenus avec cette éprouvette.

On a vérifié (voir Présentation des Matériaux) que la microstructure restait stable au cours des essais, y compris dans les zones les plus sollicitées d'un point de vue mécanique.

I. CONDITIONS EXPERIMENTALES

I.1. Géométrie des éprouvettes

La propagation de fissure a donc été étudiée sur deux éprouvettes de type CT20 d'épaisseur 10 mm, dont la géométrie est représentée sur la Figure C-9. La fissure se propage dans la direction θ et dans un plan (θ,r) de la manchette d'adaptateur. Chaque éprouvette a été préfissurée à la température ambiante avec une fréquence de 50 Hz et un rapport de charge de 0,1. L'éprouvette T_2B a ensuite été préfissurée à 550°C en fatigue-fluage de manière à partir d'une fissure intergranulaire.

I.2. Montage expérimental

Les éprouvettes CT ont été montées sur une machine servohydraulique de type MTS 810, d'une capacité de 100 kN, asservie au signal délivré par une cellule de charge de même capacité, montée en série avec les lignes d'amarrage. L'installation comprend également un four à radiations et une enceinte à ultravide, dans laquelle la pression totale est ajustée au moyen d'une microfuite d'air. La gamme de valeurs de pression totale ainsi atteintes s'étend de 10^{-7} mbar à la pression atmosphérique.

Les essais de propagation de fissure ont été effectués à K_{max} et ΔK constants, avec un rapport de charge de 0,1 pour l'éprouvette T_2A et de 0,3 pour l'éprouvette T_2B. La charge a donc été réduite au fur et à mesure de l'avancée de la fissure, mesurée à l'aide de la méthode du potentiel.

Les informations données par le suivi électrique de fissure ont été confrontées aux données relevées sur le faciès de rupture observé par microscopie électronique à balayage. Le mode de rupture de l'alliage et la vitesse de propagation de la fissure ont ainsi été déterminés en fonction de la forme du cycle mécanique imposé et de la pression partielle d'oxygène dans l'enceinte. Une expertise métallographique sur coupes polies a permis d'observer la fissuration secondaire et de contrôler la stabilité de la microstructure, y compris dans les zones qui ont subi des contraintes élevées au cours des essais. Les échantillons ont été polis à la silice colloïdale puis attaqués au réactif de Kalling.

I.3. Choix des conditions d'essai

La sensibilité de l'Alliage 600 à la fissuration a été étudiée en fonction de l'environnement en faisant varier la pression partielle d'oxygène dans l'enceinte pour différentes formes de cycle imposées à l'éprouvette.

I.3.a. Formes de cycle mécanique utilisées

La charge maximale a été choisie de manière à maintenir $K_{max} = 28$ MPa$\sqrt{m}$ tout au long de l'essai. Deux types de cycles ont été utilisés : des cycles de fatigue continue repérés « 20-20 » (Figure C-10) et des cycles de fatigue-fluage avec temps de maintien à la charge maximale (Figure C-11). Le cycle « 10-90-10 » fait intervenir un temps de maintien long tandis que le cycle « 140-60-20 » conjugue fatigue lente et maintien à la charge maximale.

On a vu avec le calcul de structure que le cycle 20-20 permet d'imposer à chaque cycle un endommagement mécanique « rapide » tandis que les cycles avec temps de maintien imposent de plus une déformation viscoplastique « lente » en pointe de fissure. Cette déformation lente est susceptible d'accentuer à la fois l'endommagement d'origine purement mécanique, évalué sous vide et les effets d'environnement liés à la pression partielle d'oxygène Po_2 à l'intérieur de l'enceinte.

I.3.b. Plan d'expérience

Le Tableau C-2 rassemble les différentes conditions d'essai qui ont été testées sur l'éprouvette T_2B. La pression partielle d'oxygène est calculée comme le cinquième de la pression totale, en supposant que la vapeur d'eau résiduelle est piégée sur les parois de l'installation. Cette valeur est un indicateur macroscopique des conditions électrochimiques qui règnent à la surface du métal en pointe de fissure.

La première série d'essais a été effectuée en fatigue-fluage selon des cycles 10-90-10, pour des valeurs de Po_2 de 2.10^{-7} à 20 mbar. Le suivi de fissure n'ayant pas indiqué de transition nette de vitesse de propagation en fonction de l'environnement, une seconde série d'essais a été effectuée en fatigue continue (cycles 20-20) de part et d'autre de la pression de transition caractéristique de l'alliage Ni-20Cr (5.10^{-4} mbar), dont le taux de chrome est voisin de celui de l'Alliage 600. Une troisième série d'essais a enfin été effectuée avec des cycles 140-60-20 pour tester l'effet d'une combinaison fatigue lente-fluage sur la vitesse et le mode de propagation de la fissure.

Bloc	Cycles	Pression partielle d'oxygène (mbar)	Propagation de la fissure au cours du bloc (µm)
1	10-90-10	2.10^{-7}	255
2	10-90-10	2.10^{-5}	315
3	10-90-10	2.10^{-2}	136
4	10-90-10	2.10^{-1}	181
5	10-90-10	20	(16)
6	20-20	4.10^{-7}	156
7	20-20	2	524
8	20-20	20	639
9	20-20	4.10^{-3}	326
10	20-20	2.10^{-2}	424
11	20-20	2.10^{-1}	255
12	20-20	2.10^{-4}	1000
13	20-20	2.10^{-4}	282
14	140-60-20	2.10^{-7}	509
15	140-60-20	2	606

Tableau C-2 : Conditions d'essai testées sur l'éprouvette T_2B

II. RESULTATS

II.1. Effet de la pression partielle d'oxygène sur la vitesse de propagation de la fissure

Une courbe da/dN = f(Po_2) a été tracée et analysée pour chaque forme de cycle imposée.

II.1.a. Cycles de fatigue-fluage

La Figure C-12 montre l'évolution de la vitesse de propagation de la fissure, da/dN, en fonction de la pression partielle d'oxygène. On constate qu'en fatigue-fluage la vitesse de propagation de la fissure est indépendante de la pression partielle d'oxygène. Pour les cycles 10-90-10, elle se situe aux alentours de 0,2 µm par cycle pour une propagation de l'ordre de 150 µm par bloc. En 140-60-20, pour une propagation de 550 et 650 µm par bloc, la vitesse s'est élevée à 0,25 µm par cycle, sous vide comme sous air.

Les cycles de fatigue-fluage ont donc conduit à une vitesse de propagation de la fissure de l'ordre de 0,2 µm par cycle quelle que soit la pression partielle d'oxygène.

II.1.b. Cycles de fatigue continue

La Figure C-13 montre l'évolution de la vitesse de propagation de la fissure en fatigue continue en fonction de la pression partielle d'oxygène. On constate que les valeurs obtenues sous une pression partielle d'oxygène supérieure ou égale à 2.10^{-4} mbar sont situées sur un plateau aux alentours de 0,2 µm par cycle, tandis que la vitesse de propagation sous vide secondaire est inférieure à 0,05 µm par cycle. Bien que la courbe comporte peu de points, en particulier pour $Po_2 < 10^{-3}$ mbar, ces résultats sont compatibles avec l'existence d'une pression partielle d'oxygène de transition de l'ordre de quelques 10^{-4} mbar sur l'alliage Ni-20Cr et les superalliages base nickel contenant environ 20% en masse de chrome, comme l'Alliage 718 ou la Nuance 18 [Andrieu 1987a, 1993]. La vitesse obtenue sous vide est proche des valeurs obtenues par James [1973] avec des cycles plus rapides, dans des conditions où l'environnement aurait donc moins la possibilité d'intervenir qu'au cours des cycles plus lents utilisés pour notre étude.

II.1.c. Effet de la forme du cycle mécanique imposé

La comparaison entre les vitesses de propagation obtenues en fatigue et en fatigue-fluage amène aux conclusions suivantes :

- en fatigue continue (cycles 20-20) il existe une pression partielle d'oxygène de transition P_T de l'ordre de 10^{-4} mbar ; pour $Po_2 > P_T$ la vitesse de propagation est de l'ordre de 0,2 µm par cycle tandis que pour $Po_2 < P_T$ elle est inférieure à 0,05 µm par cycle.

- en fatigue-fluage la vitesse de propagation reste aux alentours de 0,2 µm par cycle quelle que soit la pression partielle d'oxygène, sans effet d'environnement détectable.

Seuls les cycles de fatigue continue font donc apparaître une variation de la vitesse de propagation de la fissure en fonction de l'environnement. Il reste à vérifier s'il en est de même pour le mode de rupture.

II.2. Effet de la pression partielle d'oxygène sur le mode de rupture

L'examen fractographique de l'éprouvette T_2B, ouverte en fatigue à la température ambiante, a fourni une corrélation entre le mode de rupture (à cœur comme sur les bords) et les conditions d'essai.

Les Figures C-14a et C-14c montrent les deux types de faciès de rupture observés. Avec les cycles 20-20 et (peut-être) 10-90-10, on retrouve une transition de mode de rupture aux alentours de 10^{-4} mbar. Pour $Po_2 < P_T$ la rupture est transgranulaire tandis que pour $Po_2 > P_T$ la rupture est intergranulaire et le matériau semble nettement plus oxydé. La rupture transgranulaire est associée à un faciès relativement plat, avec quelques rares fissures secondaires (Figure C-14b) tandis que la rupture intergranulaire correspond à un faciès plus accidenté, avec une fissuration secondaire également intergranulaire (Figure C-14d).

Les cycles 140-60-20 ne font en revanche pas apparaître de transition, la rupture reste intergranulaire pour une pression partielle d'oxygène de 2.10^{-7} mbar (Figure C-15). Il semble donc que la composante de fatigue lente du cycle 140-60-20 favorise la rupture intergranulaire de l'Alliage 600 à 550°C quelles que soient les conditions d'environnement.

II.3. Conclusions

Le Tableau C-3 résume les résultats de l'essai effectué sur l'éprouvette T_2B. Les cycles 20-20 et en 140-60-20 font apparaître une correspondance entre rupture intergranulaire et propagation « rapide » quelle que soit la pression partielle d'oxygène dans l'enceinte. L'endommagement introduit par la composante de fatigue « lente » (montée en 140 s) favorise l'apparition de la fissuration intergranulaire et de la propagation rapide, y compris sous vide.

Les résultats des essais en 10-90-10 sont plus surprenants : il semble exister une transition de mode de rupture sans transition détectable de vitesse de propagation de la fissure. On peut néanmoins remarquer que les propagations ont été effectuées sur des longueurs de fissure généralement plus faibles en 10-90-10 (<350 µm) qu'en 20-20 (≈ 400 µm) (voir Tableau C-2). L'incertitude sur les mesures de vitesse et sur la position des blocs repérée au MEB est donc plus élevée pour les cycles 10-90-10 que pour les cycles 20-20 ou 140-60-20. Le faciès de rupture lié aux cycles 10-90-10 est de plus très oxydé, du fait qu'il a été obtenu au début de l'essai. Le mode de rupture est donc plus difficile à déterminer que pour les deux autres formes de cycle.

forme de cycle	transition de vitesse de propagation	transition de mode de rupture
20-20	OUI	OUI
10-90-10	NON	OUI (?)
140-60-20	NON	NON

Tableau C-3 : Effets d'environnement sur la fissuration de l'Alliage 600 à 550°C

Les essais de propagation de fissure à 550°C ont montré que les joints de grains sont sensibles à la fissuration intergranulaire ; les vitesses obtenues sous air et sous vide montrent que la fissuration des joints de grains semble faire intervenir deux effets, en fonction de la pression partielle d'oxygène et la forme du cycle :

- une contribution d'origine purement mécanique, qui intervient en particulier lors des essais sous vide ; elle est liée à une sollicitation macroscopique « lente » ; l'endommagement induit est suffisamment rapide pour conduire à des vitesses de propagation de fissure de l'ordre de 0,1 µm/cycle même sous vide ;

- une contribution liée à la présence d'oxygène en quantité suffisante près de la pointe de la fissure, qui « élargit » le domaine de sensibilité des joints de grains vers les vitesses de sollicitation plus élevées.

III. INFORMATIONS APPORTEES PAR LE CALCUL DE STRUCTURE SUR LE MECANISME DE PROPAGATION DE FISSURE

Pour étudier à terme le mécanisme de rupture des joints de grains, il faut pouvoir évaluer la localisation du chargement à la pointe de la fissure. Le principal apport du calcul de structure est de fournir le paramètre mécanique local qui gouverne la propagation.

III.1. Rôle de la vitesse de déformation locale

L'effet de la forme du cycle ne peut pas s'expliquer par le niveau des contraintes locales puisque le calcul de structure prévoit des niveaux analogues, voire inférieurs pour les sollicitations avec temps de maintien à la charge maximale. Le seul paramètre mécanique local qui varie, d'une manière significative, avec la forme du cycle est la vitesse de déformation. Celle-ci joue donc un rôle majeur dans le mécanisme de rupture :

- une déformation « lente » (de l'ordre de quelques 10^{-6} à quelques 10^{-5} s^{-1}) est endommageante même sous vide ;

- une déformation « rapide » (quelques 10^{-4} à quelques 10^{-3} s^{-1}) n'endommage pas les joints de grains.

Dans ce domaine de température, la part des mécanismes de déformation « lents », thermiquement activés, dépendant du temps, correspondant au fluage proprement dit, joue donc un rôle essentiel dans l'endommagement intergranulaire. Ces mécanismes participent d'autant plus à la déformation totale que la vitesse de déformation viscoplastique est faible et/ou que la température est élevée. Ils finissent alors par masquer, voire même supprimer les effets d'environnement sur la vitesse de propagation, ce que l'on a constaté avec les cycles 140-60-20. Rappelons qu'il suffit d'élever la température de 50°C pour faire fissurer les joints de grains en traction à 10^{-3} s^{-1}.

III.2. Rôle de l'environnement dans le mécanisme de fissuration

III.2.a. Endommagement intergranulaire sous vide

La vitesse de propagation et le mode de rupture sous vide secondaire dépendent de la forme du cycle. L'endommagement des joints de grains à $Po_2 < P_T$ est donc associé à une déformation « lente » en pointe de fissure, qui s'effectue par des mécanismes thermiquement activés (montée des dislocations et/ou glissement intergranulaire) endommageants pour les joints de grains.

La résistance des joints de grains à la propagation en fatigue continue à $Po_2 < P_T$ montre que pour cette forme de cycle, avec une vitesse de déformation locale de quelques 10^{-3} s^{-1}, l'endommagement de fluage est devancé par des mécanismes de déformation « rapides », comme le glissement dans les grains. Ceux-ci ne sont pas endommageants en termes d'amorçage : l'éprouvette F11' est restée intacte après plus de 100% de déformation viscoplastique cumulée en fatigue oligocyclique à 550°C. Les essais sur éprouvette CT ont montré que les mécanismes de déformation « rapides » ne sont pas endommageants non plus en termes de propagation intergranulaire.

III.2.b. Effet de la pression partielle d'oxygène

Lors des cycles de fatigue-fluage, une pression partielle d'oxygène supérieure à la pression de transition n'influence pas la vitesse de propagation de la fissure ; elle n'aggrave donc pas l'endommagement des joints de grains. Celui-ci est donc, dans cette gamme de vitesses de déformation, intrinsèque au matériau.

L'effet d'environnement en fatigue continue montre que dans le cas de l'Alliage 600, contrairement à ce que l'on sait sur les superalliages, le couplage mécanique-environnement en propagation de fissure intervient uniquement lorsque la vitesse de déformation viscoplastique en avant de la pointe de la fissure est relativement élevée, de l'ordre de quelques 10^{-3} s^{-1} d'après les calculs de structure. Une pression partielle d'oxygène au-dessus de la pression de transition étend donc, vers des valeurs plus élevées, le domaine de vitesses de déformation favorables à l'endommagement intergranulaire. L'influence de la pression partielle d'oxygène a deux origines possibles :

- un couplage environnement-endommagement, l'oxygène fragilisant alors plus ou moins directement les joints de grains, sans modifier le comportement du matériau ;

- un couplage environnement-comportement : l'environnement modifie localement le comportement du matériau, par exemple à travers les mécanismes de déformation et cette modification est à son tour endommageante pour les joints de grains.

Pour explorer ce couplage, il faudrait pouvoir déterminer l'effet de la pression partielle d'oxygène sur le comportement mécanique du matériau en pointe de fissure. Celui-ci est cependant très difficile à appréhender d'un point de vue expérimental. Dans le cadre de cette étude, on se propose, comme première étape, de représenter le matériau en pointe de fissure par une structure mince (feuillard), de grande surface spécifique, pour étudier les effets d'environnement sur les propriétés mécaniques du matériau « de surface ». Le confinement du chargement mécanique n'est alors assuré que par la présence de plusieurs grains dans l'épaisseur.

Les essais mécaniques sur de telles éprouvettes sont donc au cœur de notre investigation des effets d'environnement. Ils sont destinés à évaluer l'effet de la pression partielle d'oxygène sur le comportement mécanique de l'Alliage 600 en fluage, en lien avec le mode d'oxydation du matériau. En choisissant des essais de fluage, on se place directement dans les conditions de déformation « lente » dans lesquelles les joints de grains sont sensibles à la fissuration, y compris sous vide secondaire. On peut ainsi explorer l'effet de l'environnement sur le comportement et l'endommagement de l'Alliage 600.

CHAPITRE C-3 :
PROPAGATION DE FISSURE SOUS AIR A HAUTE TEMPERATURE
EFFETS D'ENVIRONNEMENT

L'étude de la propagation de fissure dans l'Alliage 600 sollicité à haute température a montré, comme c'est également le cas pour les superalliages base nickel, un effet de la pression partielle d'oxygène. L'amplitude de cet effet dépend du mode de chargement mécanique et en particulier de la forme du cycle, du rapport de charge et du facteur d'intensité de contrainte maximal, tandis que la pression partielle d'oxygène de transition ne dépend que de la teneur en chrome dans le matériau.

On se propose dans ce chapitre d'étudier l'effet de la pression partielle d'oxygène sur l'Alliage 600 à partir de 550°C, en montrant que la pression de transition correspond à un changement de mode d'oxydation mais aussi à un changement de comportement du matériau, au moins à proximité de la surface, comme c'est le cas pour les produits minces de la coulée D. On étudie à cette fin le comportement du feuillard de part et d'autre de la pression de transition.

Les essais étant réalisés avec de l'air, l'effet de l'environnement est décrit par les pressions partielles respectives des gaz « actifs » présents dans l'air, à savoir l'oxygène et la vapeur d'eau. De même que pour la propagation de fissure, on choisit de ne considérer dans ce qui suit que l'effet de la pression partielle d'oxygène Po_2.

I. OXYDATION DE L'ALLIAGE 600 SOUS AIR ENTRE 550 ET 650°C

L'oxydation « statique » de l'Alliage 600, c'est-à-dire sans sollicitation mécanique appliquée, a été étudiée à deux échelles :

- la cinétique d'oxydation du feuillard D a été déterminée à l'échelle macroscopique par thermogravimétrie à 550°C, sous air et sous vide primaire ;

- la nature des oxydes formés a été étudiée par l'oxydation à 650°C de lames minces, de part et d'autre de la pression de transition, et par l'étude de ces lames par microscopie électronique en transmission analytique. Ces lames minces ont été prélevées dans la manchette A.

I.1. Cinétique d'oxydation du feuillard D (épaisseur 100 µm) à 550°C

Trois essais de thermogravimétrie ont été réalisés au Laboratoire de Cristallochimie, Réactivité et Protection des Matériaux de l'Ecole Nationale Supérieure de Chimie de Toulouse.

I.1.a. Principe et description des essais

Un essai consiste à faire séjourner un échantillon en température dans un environnement déterminé et à enregistrer sa prise de masse Δm au cours du temps. On dispose pour cela d'un appareil SETARAM TAG 24 à deux fours symétriques à résistances en graphite (Figure C-16a). Le premier contient l'échantillon, suspendu à un fil de platine ; le second contient un échantillon inerte en alumine, de géométrie semblable à celle de l'échantillon testé et maintenu par le même système. On peut faire circuler un gaz dans les deux fours (dans notre cas, de l'air synthétique sous un débit de trois litres par heure) ou bien y faire régner un vide primaire (3 à 4.10^{-2} mbar). La sensibilité et la résolution théoriques de la thermobalance sont égales à 10^{-6} g. Les fours sont pilotés par deux thermocouples platine-platine rhodié situés à proximité des échantillons, avec une précision de ±1°C.

La masse initiale de l'échantillon étant déterminée, le fléau de la balance est équilibré à l'aide de petites billes de plomb. Au cours de l'essai, l'appareil calcule à tout instant la charge à appliquer pour maintenir le fléau en position horizontale. Le fait de travailler avec un fléau « immobile » et deux échantillons soumis aux mêmes conditions de température et de flux permet de s'affranchir au maximum de l'effet de la poussée d'Archimède et des courants de convection sur l'équilibre mécanique de la balance.

Les échantillons mesurent 20 mm de longueur et 10 mm de largeur. La surface du feuillard a été laissée brute de fabrication, comme c'est également le cas pour les essais mécaniques réalisés sur ce matériau. Le cycle de température est décrit sur la Figure C-16b et comporte trois étapes :

- le chauffage de l'échantillon à 60°C par minute ;
- un maintien de 72 heures à 550°C (48 heures pour le troisième essai), qui correspond à la durée des essais de fluage réalisés sur le feuillard (voir ci-dessous) ;
- le refroidissement à 60°C par minute.

Le second essai a été partiellement réalisé sous vide d'air (4 à 3 10^{-2} mbar) et le troisième sous vide d'argon (même pression totale) ; ce dernier correspond à une pression partielle d'oxygène plus basse, sans doute située au-dessous de la pression de transition déterminée en propagation de fissure (quelques 10^{-4} mbar). Au bout de 24 heures à 550°C, l'air synthétique a été introduit dans les fours. Les essais sous vide permettent d'évaluer l'effet de la pression partielle d'oxygène sur la cinétique d'oxydation lorsqu'elle se rapproche de la valeur de transition.

I.1.b. Résultats

Les courbes de prise de masse par unité de surface obtenues sous air et sous vide primaire sont représentées sur la Figure C-17, en regard des données bibliographiques obtenues dans les mêmes conditions expérimentales avec le nickel (NiO-formeur) et l'acier NF616 $(Fe,Cr)_2O_3$-formeur.

Au cours de l'oxydation sous un bar d'air la prise de masse suit successivement deux lois paraboliques complètes, c'est-à-dire comportant un terme linéaire et un terme quadratique. Les deux constantes paraboliques k_p^1 et k_p^2 sont données dans le Tableau C-4. La seconde correspond à la croissance d'une couche de Cr_2O_3 ; le gain de vitesse initial, qui correspond à la première constante parabolique, pourrait être attribué à la formation d'autres oxydes, peut-être NiO et/ou des oxydes mixtes (spinelles) de nickel, de fer et de chrome. La valeur de k_p^1 est en effet trop faible pour être relative à la croissance de NiO seul ; d'après les résultats de Gonzalès [1995], extrapolés de 600 à 550°C et de $Po_2 = 1$ bar à $Po_2 = 0,2$ bar, k_p^1 devrait être de l'ordre de 6,5 10^{-7} $mg^2.cm^{-4}.s^{-1}$. S'il est donc peu probable que NiO se développe seul à la surface de l'échantillon en début d'essai, l'Alliage 600 n'est pas chrome-formeur sous air à 550°C : il lui faut au moins une heure pour développer une couche de Cr_2O_3 suffisante pour contrôler la cinétique d'oxydation.

L'abaissement de la pression partielle d'oxygène aux alentours de 10^{-3} mbar lors du second essai n'a pas d'effet significatif sur k_p alors qu'une dépendance en $Po_2^{1/6}$ devrait faire chuter k_p d'un facteur 5 s'il s'agissait de NiO pur. La première couche d'oxydes se forme néanmoins plus lentement que sous 0,2 bar d'oxygène. La passivation est encore suffisamment rapide pour qu'au bout de 24 heures l'entrée d'air n'accélère pas la prise de masse.

Les résultats du troisième essai sont plus surprenants. Au lieu de prendre de la masse, l'échantillon en perd, du moins tant qu'il est maintenu sous vide d'argon. Ce phénomène n'est pas dû à un effet de pression totale puisqu'il n'a pas été rencontré au cours du second essai. L'absence de prise de masse à l'entrée de l'air indique toutefois que l'échantillon a été passivé sous vide. Le gain d'oxygène pourrait avoir été masqué par la perte d'un autre élément, peut-être du carbone. Une telle perte de masse correspondrait alors à une décarburation complète du matériau. Ceci semble peu probable, dans la mesure où une part importante du carbone est piégée sous forme de carbures de chrome, stables dans ce domaine de température. On retiendra donc de cet essai uniquement le fait que l'échantillon a été passivé en 24 heures sous vide d'argon.

matériau	pression totale (bar)	k_p^1 ($mg^2.cm^{-4}.s^{-1}$)	k_p^2 ($mg^2.cm^{-4}.s^{-1}$)
Alliage 600	0,2	$1,3.10^{-9}$	$\approx 10^{-10}$
Alliage 600	$\approx 10^{-5}$	$1,4.10^{-9}$	$\approx 10^{-10}$
Alliage 600	$< 10^{-5}$ (3.10^{-5} bar Ar)	occulté par perte de masse	$\approx 10^{-10}$
Ni*	0,2	$\approx 6,5.10^{-7}$	non observé
Ni*	10^{-5}	3.10^{-10}	non observé
Acier NF616**	1	$\approx 10^{-7}$	non observé

* [Gonzalès 1995] : extrapolation à partir d'essais à 600°C, sous 1 bar O_2 ; formation de NiO

** [Elstner 1997] : données obtenues à 600°C, formation de $(Fe,Cr)_2O_3$
acier martensitique NF616 : 9Cr 0,1C 0,02Si 0,4Mo 0,2V et 1,8W en pourcentages pondéraux

Tableau C-4 : Constantes paraboliques d'oxydation déterminées sur le feuillard D Comparaison avec des données de la littérature

I.1.c. Discussion : effet de l'environnement

Les deux premiers essais montrent qu'au-dessus de la pression partielle d'oxygène de transition P_T, l'oxydation de l'Alliage 600 est gouvernée simultanément par des réactions chimiques (termes linéaires) et par des phénomènes de diffusion (termes quadratiques). Le premier oxyde formé lors de ces essais croît trop vite pour être Cr_2O_3 et trop lentement pour être NiO seul. Il s'agit sans doute d'un mélange d'oxydes mixtes et/ou de NiO. Le contrôle de la cinétique d'oxydation par la croissance de Cr_2O_3 intervient beaucoup plus tard, au bout de quelques heures d'exposition à 550°C. Pour les laps de temps plus courts qui interviennent à la pointe d'une fissure qui se propage, le matériau est donc de type nickel-formeur au-dessus de P_T.

L'échantillon oxydé sous vide d'argon s'est passivé rapidement (Figure C-18a) ; les nodules sphériques de 200 nm de diamètre, qui recouvrent la surface des deux autres échantillons (Figure C-18b) sont remplacés ici par une couche compacte, dont les constituants ne sont pas résolus individuellement au MEB et qui pourrait bien être la seule couche formée sur le matériau, en l'occurrence Cr_2O_3. L'Alliage 600 est donc chrome-formeur pour cette valeur de la pression partielle d'oxygène. Par ailleurs, il suffit que l'atmosphère résiduelle ait contenu moins de 1000 ppm d'oxygène pour qu'un vide de quelques 10^{-2} mbar d'argon conduise à une valeur de Po_2 inférieure à P_T. Il est donc vraisemblable que l'Alliage 600 est chrome-formeur au-dessous de la pression de transition.

On retiendra de ces essais qu'à 550°C l'Alliage 600 est nickel-formeur au-dessus de la pression de transition et chrome-formeur au-dessous. Ce comportement est confirmé à 650°C par l'étude, au microscope électronique en transmission analytique, de lames minces oxydées sous différentes pressions partielles d'oxygène.

I.2. Oxydation de lames minces d'Alliage 600 à 650°C

Ce sont chronologiquement les premiers essais que nous avons effectués sur l'Alliage 600 à haute température, de manière à vérifier que l'on retrouvait la transition de mode d'oxydation observée dans les mêmes conditions expérimentales sur plusieurs superalliages base nickel et alliages binaires nickel-chrome [Molins 1995]. L'existence d'une transition de mode d'oxydation nous a alors incités à lancer les essais de propagation de fissure et de comportement mécanique à 550°C.

I.2.a. Description des essais

Les échantillons sont des lames minces de 3 mm de diamètre. Pour leur réalisation, des cylindres de même diamètre ont été prélevés par électroérosion dans la manchette A, découpés en rondelles, amincis mécaniquement jusqu'à une épaisseur d'environ 150 µm puis au jet, dans une solution à 45% d'acide acétique, 45% de butoxyéthanol et 10% d'acide perchlorique, à 0°C et sous 30 V.

Les lames minces sont placées à l'intérieur d'un tube de quartz, en doigt de gant, maintenu sous vide grâce à un ensemble pompe primaire-pompe turbomoléculaire. Le tube est entouré

d'un four à radiations qui assure le chauffage des échantillons. Une microfuite d'air permet d'ajuster la pression totale à la valeur désirée. La procédure expérimentale se déroule de la manière suivante :

- mise sous vide secondaire de l'intérieur du tube ;
- chauffage à 650°C ;
- mise sous vide statique ;
- introduction, par la microfuite, de l'air du laboratoire ;
- au bout du temps d'oxydation choisi, fermeture de la microfuite et pompage immédiat de l'installation ;
- refroidissement des échantillons sous vide secondaire ;
- ouverture de l'enceinte et analyse des lames au microscope électronique à balayage et en transmission.

Deux valeurs de la pression totale ont été choisies, situées de part et d'autre de la pression de transition : 10^{-4} et 10^{-1} torr, correspondant respectivement à une pression partielle d'oxygène de $2{,}6.10^{-5}$ et $2{,}6.10^{-2}$ mbar. Le temps d'oxydation, identique pour les deux essais a été fixé à deux minutes.

I.2.b. Morphologie des oxydes formés

Les lames oxydées sous $2{,}6.10^{-5}$ mbar d'oxygène présentent un aspect brillant, sans reflet coloré et leur examen au microscope électronique à balayage (MEB) montre une couche fine qui révèle les grains du matériau (Figure C-19a). Les lames oxydées sous $2{,}6.10^{-2}$ mbar sont plus mates, colorées d'un reflet bronze et recouvertes d'une couche épaisse nettement visible au MEB (Figure C-19b). On remarque dans ce dernier cas la présence de zones plus foncées autour des carbures et des joints de grains, qui correspond à une couche plus fine.

Les morphologies des couches d'oxyde sont identiques au bord du trou central de la lame (zone observée au microscope électronique en transmission ou MET) et dans les zones plus épaisses. On laissera donc de côté l'effet de « produit ultra-mince » dans la suite de l'analyse.

I.2.c. Analyse des couches d'oxyde au microscope électronique en transmission

Les lames minces oxydées ont été montées dans un MET Philips de type EM430, de résolution maximale 0,23 nm, travaillant sous une tension d'accélération de 300 kV. L'appareil est équipé d'un détecteur de rayons X à fenêtre de béryllium (épaisseur 7,5 µm) couplé à un système d'analyse Tracor de type TN5500. L'ensemble permet d'effectuer des analyses chimiques locales de manière semi-quantitative par spectrométrie à dispersion d'énergie des rayons X. Le détecteur ne permet cependant pas d'analyser des éléments dont la

masse atomique est inférieure à celle du sodium ; on n'a donc pas directement accès aux teneurs en oxygène. La nature des oxydes a été déterminée en combinant les résultats obtenus par analyse chimique et par diffraction électronique en sélection d'aire.

Les lames oxydées sous $2{,}6.10^{-5}$ mbar présentent une fine couche d'oxydes riches en chrome que l'on identifie à des cristaux de Cr_2O_3 (Figure C-20). Les lames sont peu oxydées, et les analyses chimiques portent donc à la fois sur l'oxyde et sur le métal qui reste entre les couches d'oxydes. L'enrichissement en chrome est donc faible quoique perceptible (allant jusqu'à un taux de 24% en masse au lieu de 15,7% dans le matériau de départ). On trouve également quelques rares cristaux de NiO mais celui-ci est loin de constituer une couche continue. Les joints de grains sont entièrement oxydés en Cr_2O_3.

Les lames oxydées sous $2{,}6.10^{-2}$ mbar présentent une couche épaisse de cristallites de NiO. Les carbures sont entourés d'une zone très oxydée, constituée de Cr_2O_3, qui a pris la place du métal (Figure C-21a). Ils semblent protéger leur voisinage de l'oxydation. Les joints de grains sont également recouverts d'une fine couche d'oxyde de chrome, tandis que le reste des grains est recouvert de NiO (Figure C-21b).

I.2.d. Effet de l'environnement

On observe une nette différence de mode d'oxydation de part et d'autre de la pression de transition, ce qui confirme les résultats obtenus par Molins [1995] avec les Alliages 718 et Ni-20Cr :

- au-dessous de la pression de transition l'oxyde formé est principalement Cr_2O_3 en couche mince, à peine visible au MEB après deux minutes d'oxydation ; les rares germes de NiO n'ont pas eu le temps de se développer avant l'apparition de la couche continue de Cr_2O_3 ;

- au-dessus de la pression de transition les grains sont « nickel-formeurs » malgré l'apparition de quelques germes de Cr_2O_3 ; les joints de grains et l'entourage des carbures de chrome transgranulaires sont en revanche « chrome-formeurs ».

I.3. Conclusions

L'étude de l'effet d'environnement sur la vitesse de propagation de fissure est envisageable dans les mêmes conditions que dans le cas des alliages nickel-chrome [Molins 1995], la transition de vitesse de propagation de fissure correspondant à un changement de mode d'oxydation. Comme pour les superalliages base nickel, la modélisation des effets d'environnement devra tenir compte du fait que l'étude de l'oxydation a été effectuée sur des échantillons non sollicités mécaniquement ; le comportement de joints de grains fissurés vis-à-vis de l'oxydation n'est pas le même que celui d'émergences de joints oxydés de manière « statique ». Ceci explique l'existence d'une pression de transition bien que les joints oxydés de manière statique soient toujours « chrome-formeurs » [voir par exemple Andrieu 1987a, Molins 1995].

Par ailleurs les carbures de chrome protègent le métal de l'oxydation et leur présence dans les joints de grains pourrait favoriser un comportement localement chrome-formeur, y compris en pointe de fissure.

II. EFFET DE LA PRESSION PARTIELLE D'OXYGENE SUR LE COMPORTEMENT DE L'ALLIAGE 600 EN PRODUIT MINCE A 550°C

Par les essais sur les feuillards, on espère accéder au comportement mécanique d'un matériau « proche de la surface » et en particulier à l'effet de la pression partielle d'oxygène sur la réponse à une sollicitation de déformation « lente » imposée par des essais de fluage.

Contrairement aux manchettes d'adaptateur, les éprouvettes de feuillard ne sont pas considérées comme des éléments de volume mais comme des structures à part entière, en raison de leur faible épaisseur :

- de par leur géométrie elles sont testées en « contraintes planes » mais on n'est pas sûr a priori d'être sous sollicitations uniaxiales dans la partie utile, c'est-à-dire que les champs de contrainte et de déformation soient homogènes et isotropes dans la section ; les essais sont dépouillés en supposant que la sollicitation est effectivement uniaxiale, ce qui sera vérifié a posteriori par le calcul de l'éprouvette en trois dimensions ;

- malgré une taille de grains homogène, le faible nombre de grains dans l'épaisseur (5 à 7 en moyenne, parfois moins) ne garantit pas que le comportement soit indépendant de l'éprouvette testée ;

- dans le cas extrême où l'on ne rencontrerait localement que deux grains dans l'épaisseur, les dislocations pourraient s'échapper par les surfaces libres, sans rencontrer la même résistance qu'aux joints de grains : on a alors affaire à un « polycristal plan » et on s'éloignerait davantage encore des conditions de confinement du chargement que l'on cherche à représenter, qui sont celles d'un matériau proche de la surface d'un massif semi-infini.

Les essais de traction, conduits sur les deux produits, montrent que les deux derniers effets sont particulièrement sensibles sur le produit le plus mince. Le comportement en fluage a donc été déterminé pour le seul feuillard d'épaisseur 200 µm, dans lequel les joints de grains constituent réellement un obstacle au mouvement des dislocations intragranulaires.

II.1. Description des essais

Deux géométries d'éprouvette ont été utilisées en traction (Figure C-22), sur deux machines différentes tandis que seule la géométrie représentée sur la Figure C-22b a été utilisée pour les essais de fluage.

II.1.a. Essais de traction

La plus grande partie des essais de traction a été menée jusqu'à rupture, sur une machine adaptée à l'étude des produits minces. Le vérin est actionné par un moteur pas à pas, qui peut être commandé en mode manuel ou être asservi au signal d'une cellule de charge. Un extensomètre permet de mesurer in situ l'allongement du centre de la partie utile de l'éprouvette, pour une base de mesure de 20 mm. En cours d'essai, on acquiert l'évolution, dans le temps, de la charge et du signal de l'extensomètre. Le chauffage est assuré par un four à radiations, piloté à l'aide d'un thermocouple soudé par point sur un feuillard d'alliage fer-chrome-aluminium, lui-même fixé à l'éprouvette par l'intermédiaire d'une attache en alliage réfractaire. Tous ces essais ont été effectués à l'air du laboratoire. Le Tableau C-5 donne le plan d'expérience qui a été suivi ; la vitesse de déformation mesurée est de l'ordre de 4.10^{-4} à 9.10^{-4} s^{-1} avec un pilotage en mode manuel.

T (°C)	400	550	600	700
e = 100 µm	t1-1 ; t2-1	t3-1 ; f8-1*	t4-1	t5-1
e = 200 µm	t1-2 ; t2-2 ; t3-2	f8-2*	-	-

*essais réalisés sur la machine de fluage

Tableau C-5 : Essais de traction effectués avec les feuillards d'Alliage 600

A titre de comparaison, deux essais ont été effectués avec les éprouvettes f8-1 et f8-2 sur la machine utilisée pour les essais de fluage. L'analyse a été limitée dans ce cas au domaine de charge et d'allongement dans lequel les frottements au niveau du levier sont insignifiants.

II.1.b. Essais de fluage

L'installation utilisée pour les essais de fluage à 550°C est représentée sur la Figure C-23. Le vérin est actionné par un moteur pas à pas ; il est relié à la ligne d'amarrage supérieure de la machine par un levier qui multiplie les efforts par dix. Le chauffage est assuré par un four à radiations, piloté comme pour les essais de traction. Four, lignes d'amarrage et extensomètre sont placés dans une enceinte à l'intérieur de laquelle on peut faire régner la pression atmosphérique, un vide primaire ou un vide secondaire, ce dernier étant obtenu grâce à une pompe à diffusion d'huile. Le déplacement du vérin est asservi, soit au signal délivré par la cellule de charge, d'une capacité de 445 N (4450 N sur la ligne), soit au signal délivré par l'extensomètre. Il peut également être piloté en mode manuel.

L'essai de traction a été effectué en mode manuel tandis que les essais de fluage ont été pilotés grâce à la cellule de charge. Les séquences de relaxation imposées à l'une des éprouvettes (f3) ont été pilotées à l'aide de l'extensomètre. Les essais ont commencé dès la stabilisation de la température. Les évolutions respectives de la charge, de la température et de l'allongement de la base de mesure de l'extensomètre ont été relevées au cours du temps sur un enregistreur.

La campagne d'essais de fluage a permis de déterminer pour ce matériau particulier l'évolution de la vitesse de déformation stationnaire en fonction :

- de la contrainte appliquée (loi de fluage) ;
- du trajet de chargement (première mise en charge et séquences de paliers à différents niveaux de contrainte imposés) ;
- de la pression totale : 1 bar ou 10^{-4} mbar.

Les modes d'endommagement et de rupture ont également été caractérisés en fonction de la pression totale.

Les effets respectifs de la contrainte et du trajet de chargement ont été étudiés par des essais avec sauts de charge, dans un sens ou dans l'autre. La vitesse de passage d'un niveau de charge au suivant a été imposée par pilotage informatique ; elle est égale à 5 MPa.s^{-1}. Sauf dans le cas de l'éprouvette f3, les incréments de contrainte nominale sont de 25 MPa, le premier palier de fluage étant fixé à 100 MPa. Cette procédure permet d'éviter autant que possible de perturber les structures de déformation, développées au cours du fluage, par la déformation plastique entre deux paliers successifs.

L'effet de la pression partielle d'oxygène dans l'enceinte a été abordé en comparant les résultats d'essais sous air et sous vide secondaire effectués dans les mêmes conditions de chargement mécanique. Le zéro électrique de la charge a été déterminé sous vide lors de la rupture des éprouvettes. Deux essais ont été commencés sous vide et terminés sous air. L'éprouvette f3 a fait l'objet d'un essai plus complexe de fluage-relaxation, afin de comparer les résultats aux données expérimentales de relaxation obtenues sur le matériau « massif » (éprouvette de fatigue oligocyclique F11' usinée dans la manchette de la coulée A).

Les modes d'endommagement et de rupture ont été déterminés par l'expertise des éprouvettes : fractographie au MEB, observation des coupes polies au microscope optique et au MEB à fort grossissement.

Le plan d'expérience est représenté sur le Tableau C-6, après correction du zéro de charge sous vide. La contrainte est calculée à partir de la section de l'éprouvette au début du palier considéré (contraintes « vraies »). Sauf indication contraire, cette contrainte vraie ne varie pas de plus de 1 à 4 MPa au cours du palier. On mesure également la « ductilité » des éprouvettes, en l'occurrence leur déformation au début du stade tertiaire.

éprouvette	Po_2 (mbar)	paliers de fluage (MPa)	durée (heures)	ductilité (%)
f3	200	301 relaxation de 301 à 155 (16 heures, traverse fixe) 155 202 253 307 à 311 relaxation de 311 à 144 (1,25 heures, ε constante) 144 156 208 260 313 371 432 496	69,6	15,7
f4	200	100 127 154 182 219 250 283 314 319	24,1	17,7
f5	4.10^{-5}	88 113 138 163 189 215 242 269 296 323 353 383 413 441 471 502 539 542 580 630 675	65,9	20,6
f6	4.10^{-5}	95 120 145 171 196 172 198 224 251	74,0	6,9*
	0,2	251 227 254 281 309 337 367 traction finale		
f7	$1,6.10^{-5}$	94 119 144 170 195 222 253	78,4	> 16,8
	0,2	253 à 289 (contrainte nominale de 250 MPa)		
f9	200	97 122 148 174 200 228 256 287 322 356 335 360 386 395 à 406	11,6	19,2

* avant la séquence finale de traction

Tableau C-6 : Plan d'expérience suivi pour les essais de fluage sur feuillard

II.2. Résultats obtenus en traction

II.2.a. Courbes contrainte-déformation

Les courbes rationnelles, obtenues à 400°C et correspondant à un allongement homogène, sont représentées sur la Figure C-24. On constate que les deux feuillards présentent des propriétés similaires, celui d'épaisseur 100 µm s'écrouissant un peu plus que celui d'épaisseur 200 µm. L'apparition d'un plateau en début d'écoulement montre que malgré une faible teneur en carbone (0,02% en masse mais presque entièrement en solution solide), la coulée D est sensible aux phénomènes de vieillissement.

Les courbes obtenues à 550°C avec les deux machines se superposent d'une manière très satisfaisante (Figure C-25). Cela signifie que la réponse mécanique mesurée lors des essais est caractéristique du produit lui-même et non du couple éprouvette-machine. On utilisera donc les résultats acquis en traction et en fluage sans tenir compte du fait que les essais ont été réalisés avec des géométries d'éprouvettes et des machines différentes.

Le matériau contenant très peu de dislocations à l'état de réception, la contrainte d'écoulement est nettement plus faible que celle des éprouvettes prélevées dans la manchette A très écrouie. La capacité d'écrouissage du feuillard est donc très importante, la charge maximale étant même supérieure à celle de la manchette (Tableau C-7). L'effet de la température est relativement faible jusqu'à 550°C (Figure C-26) ; pour des valeurs plus élevées de la température, la ductilité et le taux de consolidation diminuent nettement, bien que la limite d'élasticité reste quasiment constante jusqu'à 700°C. Les valeurs de l'allongement à rupture ont été mesurées sur les éprouvettes d'épaisseur 100 µm.

T (°C)	épaisseur (µm)	éprouvette	$Rp_{0,2\%}$ (MPa)	Rm (MPa)	allongement max. réparti (%)	allongement à rupture (%)	$Rm/Rp_{0,2\%}$
400	100	t1-1	243	774	20,9	23,2	3,19
		t2-1	242	787	21,5	26,5	3,25
	200	t1-2	225	711	19,2	*	3,16
		t2-2	234	782	22,9	*	3,34
		t3-2	262	720	19,7	*	2,75
550	100	t3-1	220	695	20,5	20,5	3,16
	100	f8-1	220	> 680	*	*	> 3,09
	200	f8-2	203	> 680	*	*	> 3,35
	(A)	T3	390	542	16	21	1,39
	(A)	T5	381	574	20	28	1,51
600	100	t4-1	200	592	17,3	17,4	2,96
700	100	t5-1	200	331	9,8	14,2	1,66

* valeur non mesurée

Tableau C-7 : caractéristiques en traction des deux feuillards

II.2.b. Modes de rupture

Les modes de rupture observés en traction sont illustrés sur la Figure C-27 en fonction de la température d'essai, pour une épaisseur initiale de 100 µm. La rupture est ductile jusqu'à 550°C tandis que l'on trouve des joints de grains fissurés à 600°C et surtout à 700°C. La Figure C-27d montre que la striction dans le sens de l'épaisseur est quasiment égale à 100% ; ce phénomène est également observé, quoique de manière moins significative, avec le produit d'épaisseur 200 µm. Ceci est dû à la faible épaisseur des feuillards : un nombre significatif de grains rencontrent la surface de l'éprouvette et les dislocations mobiles de ces grains s'échappent facilement par les surfaces libres. Il est probable que, comme pour le matériau « massif », une grande partie des joints de grains sont déjà endommagés à 600°C mais la géométrie du produit ne permet pas de confiner suffisamment le chargement sur ces joints de grains endommagés, via les incompatibilités de déformation d'un grain à l'autre : ces incompatibilités peuvent être résolues plus facilement à la surface des éprouvettes qu'à cœur et la rupture a lieu par instabilité géométrique.

II.3. Aspects macroscopiques du comportement en fluage

II.3.a. Caractéristiques générales des courbes de fluage sous air

La Figure C-28a montre que le chargement est effectué en élasticité sur les premiers paliers. Les dernières montées en charge sont perturbées par un fort effet Portevin-Le Chatelier qui conduit à des incréments brutaux de déformation, combinés à des chutes de charge que la machine a du mal à enrayer. Ceci conduit à un « pseudo-stade primaire », lié au fait que la charge met du temps à se stabiliser au début du palier. Aucun écoulement brutal lié à l'effet Portevin-Le Chatelier n'a été relevé au cours du fluage stationnaire.

L'évolution de l'allongement de l'échantillon s'effectue à vitesse constante dès que la charge est stabilisée. Le stade tertiaire, atteint en fin d'essai, correspond à une déformation importante mais très brève : celle-ci s'étend tout au plus sur quelques dizaines de secondes, soit moins de 0,2% de la durée totale des essais.

La Figure C-28b montre la courbe obtenue pour l'éprouvette f3, avec laquelle on a testé l'effet du trajet de chargement. Les essais menés dans les mêmes conditions de chargement mécanique donnent des résultats très reproductibles, en particulier sous air (éprouvettes f4 et f9). Malgré le très faible écrouissage du matériau en début d'essai, la vitesse de fluage dépend peu du nombre de paliers de fluage et/ou de relaxation imposés mais dépend étroitement de la première valeur de la contrainte imposée.

Les éprouvettes f4 et f9 ont été chargées de manière « incrémentale » à partir de 100 MPa, les sauts de charge de 25 MPa perturbant peu les structures de déformation développées au cours du palier précédent. La première montée en charge de 300 MPa imposée à l'éprouvette f3 a introduit pour sa part une déformation inélastique non négligeable (4,0%) qui influence le comportement ultérieur en fluage. A titre de comparaison, la mise en charge initiale de 100 MPa imposée à l'éprouvette f9 conduit à une déformation inélastique de $2{,}4.10^{-4}$. L'effet de la première mise en charge est donc important car il y a couplage entre la déformation « rapide » de mise en charge et la déformation « lente » de fluage proprement dite. Le matériau est en revanche insensible à l'écrouissage par le temps ou la déformation de fluage stationnaire elle-même.

II.3.b. Effet de la pression partielle d'oxygène à l'intérieur de l'enceinte

La Figure C-29 montre les courbes obtenues sous vide (essai jusqu'à rupture pour l'éprouvette f5, début des essais pour les éprouvettes f6 et f7) et les compare aux courbes obtenues sous air dans les mêmes conditions de chargement mécanique. Les résultats sont également reproductibles sous vide de manière satisfaisante malgré une incertitude non négligeable pour les faibles vitesses de déformation, en particulier dans le cas de l'éprouvette f7, pour laquelle on a utilisé une sensibilité plus faible sur l'enregistreur en début d'essai. La déformation de fluage correspond exclusivement au stade secondaire : le primaire est inexistant et le tertiaire est très bref.

Les vitesses de fluage obtenues sous vide, pour un niveau de contrainte donné, sont inférieures d'environ un facteur 10 à celles qui sont obtenues sous air, sans qu'il y ait pour autant perte de ductilité sous air (voir Tableau C-6). L'effet de la pression totale est donc considérable sur la vitesse de fluage stationnaire de ces éprouvettes de grande surface spécifique.

On n'observe pas de transition de vitesse de déformation dans les 28 heures qui suivent le passage sous 1 mbar d'air (éprouvettes f6 et f7, Figure C-30). Si transition il y a, celle-ci demande un temps d'incubation élevé et/ou une déformation cumulée sous air élevée (supérieure à 7% dans le cas de l'éprouvette f7), supérieure a priori à la ductilité de la couche d'oxydes si l'on néglige les phénomènes de cicatrisation. L'existence de la transition sera

discutée dans le paragraphe consacré aux modes d'endommagement et de rupture des éprouvettes.

II.3.c. Détermination d'une loi de fluage

Les Figures C-28 à C-30 montrent que l'on peut identifier avec ces essais les coefficients d'une loi puissance, que nous prenons sous la forme suivante (loi de Norton avec seuil) :

$$\dot{\varepsilon}_s = \left(\frac{\sigma - \sigma_0}{K_v} \right)^{n_v}$$

- σ_0 est la contrainte seuil, exprimée en MPa ;
- K_v est exprimée en $MPa.s^{1/n_v}$;
- n_v est l'exposant de fluage.

Le Tableau C-8 donne les valeurs respectives de ces trois coefficients pour les essais sous air et sous vide. Elles ont été déterminées à l'aide du logiciel SiDoLo déjà utilisé pour modéliser le comportement mécanique de la coulée A.

environnement	σ_0 (MPa)	K_v ($MPa.s^{1/n_v}$)	n_v
vide	< 1	3627	5.23
air	< 1	1865	5.63

Tableau C-8 : Coefficients de la loi de fluage du feuillard sous vide et sous air

On remarque que la loi est sans seuil et que l'environnement agit essentiellement sur la valeur de K_v, c'est-à-dire sur un facteur multiplicatif par rapport à la contrainte imposée. La valeur élevée de n_v, qui dépend peu de l'environnement, incite à penser que le matériau se déforme dans les deux environnements par fluage dislocation. La présence d'air à la pression atmosphérique se traduit par une multiplication de la vitesse de fluage par un facteur qui dépend peu du niveau de contrainte. Elle n'implique pas, du moins en apparence, de changement de mécanisme de déformation. Ce résultat est confirmé par l'expertise des éprouvettes sur coupes polies.

II.4. Modes d'endommagement et de rupture des éprouvettes testées en fluage

L'expertise des éprouvettes de fluage a été effectuée en deux étapes :

- la fractographie donne accès aux modes de rupture et permet d'observer les couches d'oxydes développées à la surface des éprouvettes ;
- l'examen de coupes polies donne accès aux modes d'endommagement à cœur.

Trois éprouvettes ont été choisies pour ces analyses :

- l'éprouvette f4, caractéristique des essais sous air ;
- l'éprouvette f5, la seule qui a été testée sous vide jusqu'à rupture ;
- l'éprouvette f7, caractéristique de la transition vide-air.

II.4.a. Analyses fractographiques

Eprouvette f4 testée sous air

Le faciès de rupture est essentiellement intergranulaire, avec une fissuration secondaire importante (Figure C-31a). On trouve des joints de grains ouverts à l'intérieur des nombreuses fissures de la couche d'oxydes qui recouvre les faces (Figure C-31b). Cette couche est épaisse, constituée de nodules micrométriques reposant sur un substrat plus compact de cristaux de quelques dizaines de nanomètres de diamètre (Figure C-31c). La rupture en fluage sous air est donc associée à une fissuration intergranulaire, y compris sur les faces de l'éprouvette.

Eprouvette f5 testée sous vide

Quelques facettes de joints de grains voisinent avec des cupules sur un faciès globalement ductile (Figure C-32a). La couche d'oxydes est toujours multifissurée (Figure C-32b) mais présente un aspect plus « compact », bien que l'on voie très peu de signes de cicatrisation (Figure C-32c). Les joints de grains restent donc sensibles sous vide mais de manière apparemment moins prononcée que sous air. Ceci peut être dû à plusieurs mécanismes :

- soit à une baisse de la sensibilité « intrinsèque » des joints de grains, directement liée à la pression partielle d'oxygène dans l'enceinte ;
- soit à une diminution des contraintes locales aux joints de grains, liée par exemple à un changement de mode de déformation à l'intérieur des grains ;
- soit à l'apparition d'une instabilité géométrique, comme en traction, du fait que la contrainte à rupture sous vide (675 MPa) est notablement plus élevée que sous air (319 MPa pour l'éprouvette f4).

Eprouvette f7 (transition vide-air)

Le faciès de rupture de l'éprouvette f7 est totalement intergranulaire (Figure C-33) ; il est donc identique au faciès de rupture obtenu sous air. Il y a bien une « transition » de mode de rupture au passage sous 1 mbar d'air : l'éprouvette, testée initialement sous vide, a fini par rompre comme si elle avait été entièrement testée sous air. L'interruption du suivi de l'allongement après 28 heures sous 1 mbar n'a pas permis de détecter de transition au niveau du comportement.

Conclusions

La pression totale a un effet sur le mode de rupture en fluage du feuillard. Cet effet est probablement couplé à celui du chargement mécanique : les charges finales atteintes sous vide sont plus élevées et l'ouverture des premiers joints de grains conduit à une rupture instable, à caractère essentiellement ductile. Les charges finales appliquées aux éprouvettes f4 et f7 conduisent à une propagation de fissure rapide (stade tertiaire bref) mais suffisamment stable pour permettre une rupture totalement intergranulaire. Le meilleur moyen de caractériser la fissuration intergranulaire dans ces éprouvettes en fonction de l'environnement reste donc l'investigation sur coupes polies.

II.4.b. Examens en coupe polie

Les éprouvettes f4, f5 et f7 ont été découpées de manière à observer l'endommagement à mi-largeur au centre de la partie utile. Elles ont été recouvertes d'une couche de nickel par dépôt électrolytique, enrobées puis polies à la pâte diamantée et finies avec une suspension de silice colloïdale, de manière à révéler légèrement les grains sans attaquer les interfaces. Les échantillons ont été observés au microscope optique ; les cavités les plus petites ont été examinées à l'aide d'un MEB équipé d'un canon à émission de champ et d'un détecteur d'électrons secondaires à l'intérieur de la lentille.

Eprouvette f4 testée sous air

L'éprouvette f4 présente, dans toute son épaisseur, de nombreuses cavités généralement intergranulaires (Figure C-34). Ces cavités sont de formes complexes, aux contours souvent arrondis (Figure C-34b) et correspondent à de véritables « cavernes », situées au voisinage des lignes triples ; elles sont accompagnées de fissures ou des cavités plus petites dans les joints de grains voisins (Figure C-34c). Cet endommagement est présent sur plusieurs millimètres le long de la partie utile.

Eprouvette f5 testée sous vide

L'éprouvette f5 est également affectée par la cavitation intergranulaire (Figure C-35). Cet endommagement est également présent sur plusieurs millimètres le long de la partie utile. Les cavités sont moins nombreuses et surtout beaucoup plus allongées que dans le cas de l'éprouvette testée sous air. Elles sont ici encore associées à de la fissuration intergranulaire, qui apparaît généralement dans les joints inclinés à 45° par rapport à l'axe du chargement.

Eprouvette f7 testée sous vide, puis sous air

L'éprouvette f7 présente une cavitation semblable à celle de l'éprouvette f4 (Figure C-36). La cavité représentée sur la Figure C-36b fait songer à un glissement intergranulaire prononcé. De nombreuses fissures partent depuis ces cavités dans les joints de grains voisins.

Conclusions

Dans tous les cas on remarque que la microstructure du matériau n'a pas évolué et qu'en particulier aucun carbure n'a été formé dans les joints de grains ; on ne relève pas non plus d'augmentation de la taille de grains. Les grains eux-mêmes sont très allongés, même à quelques millimètres de la surface de rupture ou relativement « loin » des cavités. La plus grande part de la déformation est donc due au fluage dislocation. L'endommagement serait alors le résultat de deux mécanismes possibles :

- les dislocations intragranulaires (voire éventuellement intergranulaires) peuvent drainer un flux de lacunes depuis la surface (où elles sont par exemple créées au cours de la réaction d'oxydation) vers les joints de grains situés au cœur de l'éprouvette ; ces lacunes faciliteraient au passage les phénomènes de restauration par montée ou glissement dévié, accélérant ainsi la déformation dans les grains ;

- la déformation importante des grains peut créer des incompatibilités de déformation et donc des contraintes locales importantes au niveau des joints de grains, accommodées par exemple par le glissement intergranulaire, qui finit par faire naître des cavités dans le matériau, en particulier aux lignes triples [Yoo 1993].

III. DISCUSSION : EFFET DE L'ENVIRONNEMENT SUR LE COMPORTEMENT MECANIQUE EN FLUAGE DE L'ALLIAGE 600 EN PRODUIT MINCE

Avant de mettre en place une modélisation des effets observés, il convient d'analyser les conditions dans lesquelles les résultats expérimentaux ont été obtenus afin de mieux définir l'influence de l'environnement sur le comportement mécanique du feuillard. La discussion porte sur les points suivants :

- les conditions de mesure de la charge au cours des essais sous vide ;

- la comparaison des résultats avec les données publiées dans la littérature ;

- l'effet de renforcement mécanique lié à la présence d'une couche d'oxydes sur l'éprouvette ;

- l'influence du chargement mécanique sur l'effet d'environnement ;

- le couplage entre l'effet d'environnement et le comportement mécanique du feuillard.

III.1. Effet de la correction du zéro électrique de charge appliquée sous vide

Avant de modéliser l'accélération du fluage observée sous air, il convient de vérifier que le décalage entre les courbes obtenues respectivement sous air et sous vide ne peut pas être attribué à une incertitude sur la mesure de la charge sous vide. La cellule de charge est en effet

placée hors de l'enceinte et le signal qu'elle délivre n'intègre pas l'effet de la différence de pression entre l'intérieur et l'extérieur. Celle-ci produit une surcharge de 200 N sur l'éprouvette par rapport à la valeur lue avec la cellule, que l'on retrouve lors de la correction du zéro électrique sur l'éprouvette en utilisant le fait que la charge après rupture est nulle. L'incertitude sur la mesure est donc faible (nettement inférieure à ±25 MPa) et ne rend pas compte d'une multiplication par 10 des vitesses de fluage mesurées.

On considérera donc dans la suite de l'analyse que l'accélération de la vitesse de fluage observée sous air est bien le résultat d'une modification de la réponse mécanique de l'éprouvette elle-même.

III.2. Comparaison des résultats avec les données disponibles sur l'alliage Ni-20Cr

Les données de comportement, d'endommagement et de rupture recueillies sur le feuillard d'Alliage 600 sont comparées aux résultats disponibles sur un alliage proche de l'Alliage 600, le Nichrome Ni-20Cr.

III.2.a. Comportement

Les valeurs de n_v obtenues sous air et sous vide sont en bon accord avec la valeur de 5,8 calculée à partir des courbes de Shahinian et Achter [1959b]. Ces derniers observent un faible effet d'environnement à 593°C mais utilisent des éprouvettes d'épaisseur 1,27 mm, sans doute moins sensibles aux effets d'environnement que les feuillards. Ils montrent que l'écart obtenu, à différentes températures, entre le comportement sous vide et sous air ne s'explique pas par une variation de l'énergie de surface du matériau.

La comparaison de nos résultats avec les données représentées sur les cartes de modes de déformation de Frost et Ashby [1982] (voir Présentation des matériaux) montrent que l'on se situe bien dans le domaine de fluage en loi puissance (« power-law creep »), contrôlé par la montée des dislocations dans les grains, et plus précisément dans le domaine des « basses températures ». La montée des dislocations est donc probablement contrôlée par la diffusion « de cœur », c'est-à-dire que les lignes de dislocations jouent elles-mêmes le rôle de courts-circuits de diffusion (« pipe diffusion »). Les valeurs de n_v mesurées sous air et sous vide, qui sont comprises entre 5 et 6, sont en effet en accord avec un tel mécanisme [Evans 1977, Spingarn 1979]. La Figure C-37 montre que la loi proposée par Frost et Ashby pour le Nichrome Ni-20Cr correspond à nos données de comportement obtenues sous vide, ce qui semble logique puisque les cartes ont été dressées à partir de données obtenues sur des éprouvettes épaisses, donc a priori peu sensibles aux effets d'environnement [Shahinian 1959b]. Il convient toutefois de noter que la taille de grains de référence utilisée pour les cartes est de 100 µm, soit six à dix fois plus élevée que celle des feuillards. Par ailleurs l'extrapolation des résultats publiés par Monma et coll. [1964] montre que même sous faible contrainte le coefficient n_v est caractéristique d'un mécanisme de fluage dislocation.

III.2.b. Endommagement et rupture

Les examens effectués sur coupes polies ont montré que les éprouvettes d'Alliage 600 rompues en fluage présentent le même aspect que les éprouvettes de Nichrome Ni-20Cr

testées par Shahinian et Achter [Shahinian 1959b] : ceux-ci ont observé un allongement significatif des grains associé à une cavitation intergranulaire importante. Comme dans le cas de l'Alliage 600, le changement de pression totale n'induit aucune perte de ductilité, celle-ci restant toujours supérieure à 30%.

D'une manière plus générale, le mode de rupture est conforme à ce qui est prévu par les cartes de mécanismes de rupture, dressées pour le Nichrome Ni-20Cr par Ashby, Gandhi et Taplin [1979] (voir Présentation des matériaux). Celles-ci indiquent en effet un mode de rupture intergranulaire dans le domaine de température et de contraintes dans lequel ont été testés les feuillards. Seule la rupture par instabilité géométrique, qui apparaît rapidement pour cette structure mince, a devancé la rupture intergranulaire pour les forts niveaux de contrainte utilisés sous vide. L'endommagement intergranulaire est toutefois présent pour toutes les conditions testées.

L'endommagement se manifeste le plus souvent par des cavités de forme allongée pour les éprouvettes rompues sous air (à 319 MPa pour l'éprouvette f4 et à 289 MPa pour l'éprouvette f7) et par des fissures partant des points triples pour l'éprouvette f5 rompue sous vide à 675 MPa. Le mode d'endommagement dépend sans doute du niveau de la contrainte appliquée et de la vitesse de déformation.

Les cavités observées après rupture sous air sont de forme dendritique, ce qui correspond bien à une vitesse de déformation élevée [Perry 1974] ; leur forme allongée suggère que la diffusion en surface n'est pas assez rapide pour permettre la redistribution des lacunes qui arrivent au niveau des joints de grains [Chuang 1979].

Les joints de grains endommagés sous vide sont fréquemment inclinés à 45° par rapport à l'axe du chargement. Ils sont souvent fissurés par cisaillement ; ce mode d'endommagement correspond à une contrainte suffisamment élevée pour que le cisaillement et/ou le glissement intergranulaire prenne le pas sur les mécanismes de cavitation par diffusion.

Le fait que la vitesse de fluage stationnaire ne dépend pas du trajet de chargement, du moins tant que celui-ci ne fait pas intervenir de déformation « rapide », indique que l'endommagement ne participe pas d'une manière importante à la déformation totale. Les cavités sont par ailleurs suffisamment espacées pour que leur croissance soit contrôlée par le fluage de la matrice environnante. Ceci est en accord avec l'existence d'un stade stationnaire à tous les niveaux de contrainte testés : on mesure bien la vitesse de fluage de la matrice et non la vitesse de déformation globale d'un matériau poreux, puisque la déformation induite par la cavitation est très faible par rapport à la déformation totale [Raj 1983].

III.2.c. Conclusions

Les essais de fluage sur le feuillard d'Alliage 600 ont donné sous vide des résultats conformes aux données disponibles dans la littérature. La faible épaisseur des éprouvettes nous a de plus donné accès aux effets d'environnement, ce que ne permet pas l'utilisation d'éprouvettes plus épaisses. La suite du chapitre est consacrée à la modélisation du couplage entre le comportement mécanique et les effets d'environnement.

III.3. Influence de la couche d'oxydes sur la réponse mécanique globale des éprouvettes

La première précaution prise vis-à-vis des effets d'environnement a été de vérifier que l'écart entre les vitesses de fluage obtenues respectivement sous air et sous vide n'est pas dû au fait que la couche d'oxydes formée sous vide, plus « compacte » et peut-être plus adhérente que celle qui est formée sous air, serait capable de renforcer le matériau par effet composite, c'est-à-dire en « reprenant » une partie du chargement au fur et à mesure de sa croissance. Cet effet de renforcement mécanique a notamment été observé lors d'essais de fluage sur le nickel [Shahinian 1959a] et sur l'Alliage 600 lui-même à 816°C [Douglas 1959], mais dans le sens inverse : la couche d'oxydes formée sous air à basse contrainte et à haute température renforce le matériau et l'éprouvette flue de ce fait moins vite sous air que sous vide [Shahinian 1959a].

III.3.a. Position du problème

L'objectif de la simulation est double :

- vérifier que la vitesse de déformation obtenue par le calcul de l'éprouvette « nue » correspond aux mesures expérimentales, c'est-à-dire qu'il est possible de modéliser le comportement de cette structure à l'aide de la mécanique des milieux continus, en considérant un matériau homogène et isotrope ; ceci revient à justifier a posteriori le dépouillement des essais à l'aide de paramètres globaux en supposant un état de contraintes uniaxial ;

- estimer l'effet de renforcement mécanique dû à la présence de la couche d'oxydes : on cherche à savoir si, avec une couche d'oxydes de 200 nm d'épaisseur et les coefficients de la loi de fluage du métal déterminés sous air, on retrouve la réponse globale de l'éprouvette déterminée expérimentalement sous vide.
-

III.3.b. Conditions de calcul

Un calcul de structure tridimensionnel de l'éprouvette nue et de l'éprouvette oxydée a été effectué en considérant une couche d'oxydes élastique, parfaitement adhérente au métal sous-jacent (Figure C-38a). L'épaisseur de cette couche a été fixée à 200 nm, d'après les observations effectuées au MEB sur la coupe polie de l'éprouvette f5 testée sous vide. Le comportement des deux matériaux, métal et oxyde, a été modélisé de la manière suivante :

- l'oxyde est élastique ; de manière à ne pas sous-estimer son effet sur la réponse mécanique de l'éprouvette, on a choisi d'utiliser le module d'Young de Cr_2O_3, qui est plus élevé que celui de NiO ; sa valeur a été estimée à 314 GPa, d'après les résultats de la littérature [Huntz 1995], pour un coefficient de Poisson égal à 0,28 ;

- le métal est considéré comme homogène, c'est-à-dire que son comportement est le même dans toute l'épaisseur de l'éprouvette ; son comportement est modélisé par une loi élastoviscoplastique.

La déformation du métal est composée de trois termes :

- une déformation élastique ;
- une déformation viscoplastique « lente », qui est modélisée par la loi de Norton avec les coefficients déterminés sous air ;
- une déformation viscoplastique « rapide », qui est déterminée avec le modèle utilisé pour la manchette (Chapitre B-3), en identifiant les coefficients à l'aide de l'essai de traction mené à rupture sur l'éprouvette t3-1.

Ce modèle introduit une simplification du comportement dans la mesure où la déformation viscoplastique « lente » est découplée de la déformation « rapide » de mise en charge, ce qui ne correspond pas aux données expérimentales. Il permet cependant de décrire correctement le fluage stationnaire observé dans le cadre de nos essais. Il ne tient pas compte des différences de comportement mécanique en traction entre le feuillard et la manchette mais le métal est sollicité ici dans le domaine élastique (200 MPa). Les coefficients de la loi de fluage ne sont d'ailleurs pas caractéristiques du matériau mais dépendent des conditions de mise en charge. Ils sont représentatifs des données acquises avec les sauts de charge de 25 MPa, pour une mise en charge initiale de 100 MPa. Ils permettent de simuler un essai en simplifiant l'étape de mise en charge, puisque celle-ci n'influence pas la vitesse de fluage stationnaire prédite par le modèle.

La simulation est effectuée à l'aide d'une mise en charge à 200 MPa en 10 secondes suivie d'un palier d'une durée de 1000 secondes. Ce temps de maintien est largement supérieur à celui que met réellement l'éprouvette à atteindre une vitesse de fluage stationnaire, qui est de quelques dizaines de secondes.

III.3.c. Résultats

La Figure C-38b illustre les résultats obtenus sur l'éprouvette « nue », pour laquelle la couche d'oxydes a été remplacée par une couche de métal de même épaisseur. La déformation est homogène dans la partie utile ; la vitesse de déformation diminue légèrement au cours du palier, ce qui n'est pas observé sur les courbes expérimentales mais la valeur relevée sur les 100 dernières secondes du palier, qui est de $5{,}49.10^{-6}$ s^{-1}, est proche de la valeur expérimentale de $6{,}12.10^{-6}$ s^{-1} mesurée sous air. On a également vérifié que l'état de contraintes est uniforme et uniaxial dans la partie utile de l'éprouvette. L'approche par la mécanique des milieux continus homogènes est de ce fait validée, au moins d'un point de vue phénoménologique ; la réponse globale de l'éprouvette reflète donc fidèlement le comportement du métal sous sollicitation uniaxiale.

La Figure C-39 montre l'évolution de la déformation de l'éprouvette oxydée. La vitesse de déformation ne cesse de diminuer et ne parvient pas à se stabiliser au bout de 1000 secondes. Elle est alors de $4{,}8.10^{-6}$ s^{-1}, ce qui est encore proche de la valeur calculée sur éprouvette « nue ». L'effet de renforcement par la couche d'oxydes, supposée plus résistante ou plus adhérente sous vide que sous air, ne rend donc pas compte des écarts de vitesse observés expérimentalement.

III.4. Influence du mode de sollicitation mécanique sur l'effet de l'environnement

Le feuillard testé à 550°C est sensible à la pression partielle d'oxygène à l'intérieur de l'enceinte. Cet effet est différent selon que les éprouvettes sont sollicitées en traction ou en fluage.

En traction, la vitesse de déformation semble suffisamment élevée pour masquer les effets d'environnement ; comme sur les éprouvettes plus épaisses tirées de la manchette, il faut monter à 600°C pour observer des fissures dans les joints de grains.

En fluage, la vitesse de déformation et le mode de rupture dépendent étroitement de la pression partielle d'oxygène ; bien que l'on observe dans tous les cas de la cavitation et de la fissuration intergranulaires liées à une déformation importante dans les grains, le glissement intergranulaire ou les incompatibilités de déformation d'un grain à l'autre semblent être à l'origine de la formation des cavités effilées observées sous vide, tandis que sous air les cavités, plus arrondies, correspondent sans doute à une croissance par diffusion assistée par la déformation dans les grains eux-mêmes.

Les essais de fluage ont donc montré qu'il est possible d'obtenir une rupture intergranulaire des feuillards d'épaisseur 200 µm à 550°C alors qu'il faut monter à 600°C pour observer des joints de grains fissurés sur les faciès de rupture obtenus en traction. On retrouve ici les résultats obtenus avec la manchette : une sollicitation de traction à 550°C ne permet pas de mettre en évidence une fragilité des joints de grains alors qu'une sollicitation à 600°C le permet. Une déformation « lente », en pointe de fissure pour la manchette et en fluage pour le feuillard mince, montre cependant que l'on rencontre bien le « trou de ductilité » des alliages base nickel et une sensibilité intrinsèque des joints de grains à la fissuration, y compris sous vide. Cette sensibilité est d'autant plus importante que la pression partielle d'oxygène est élevée.

III.5. Couplage entre l'effet d'environnement et le comportement mécanique du feuillard

La campagne d'essais menée sur le feuillard d'épaisseur 200 µm a mis en évidence un couplage entre le comportement et l'endommagement du matériau, d'une part, et les effets d'environnement d'autre part.

L'influence de l'environnement sur le comportement, pour une sollicitation mécanique donnée, n'est décelable que si la vitesse de déformation imposée est suffisamment lente. L'influence de l'environnement sur l'endommagement et la rupture demanderait à être établie de manière définitive à l'aide d'essais effectués à la même contrainte sous air et sous vide, ce qui n'est pas le cas ici.

La pression partielle d'oxygène joue à son tour un rôle important à la fois sur le comportement et sur le mode d'endommagement du feuillard : elle augmente la vitesse de fluage d'un ordre de grandeur et favorise la croissance de cavités intergranulaires assistée par la déformation dans les grains. La rupture intervient sous air pour une déformation cumulée importante : il n'y a pas de perte de ductilité à proprement parler mais les niveaux de

contrainte à rupture sont suffisamment faibles pour que la propagation de la fissure en fin d'essai soit intergranulaire.

On peut donc parler d'un couplage entre l'effet de la pression totale, le comportement mécanique du matériau et le mode de sollicitation imposé et en particulier :

- entre le mode de sollicitation et l'existence d'un endommagement intergranulaire ;
- entre l'environnement et le comportement (et l'endommagement) du matériau sollicité en fluage.

On s'intéressera dans la suite de ce chapitre au second couplage, que l'on soupçonne d'intervenir en pointe de fissure sur les éprouvettes de mécanique de la rupture.

IV. PROPOSITION D'UN MECANISME DE COUPLAGE ENTRE LE COMPORTEMENT DU FEUILLARD ET LES EFFETS D'ENVIRONNEMENT

La modélisation de l'effet de la pression totale sur le comportement du matériau a été centrée sur trois points :

- le changement de comportement du matériau ;
- le rôle de l'environnement dans ce changement de comportement ;
- les conditions d'application d'un tel modèle au cas de la propagation de fissure.

IV.1. Modélisation de l'accélération du fluage induite par la présence d'air

Quel que soit l'environnement, la loi de fluage est représentée par une fonction puissance dont l'exposant est de l'ordre de 5 à 6. Cette valeur est associée au fluage dislocation ; si le fluage était contrôlé par la diffusion, soit de manière directe (le glissement intergranulaire est observé mais n'est pas le mécanisme de déformation prépondérant), soit à travers la croissance de cavités, on rencontrerait un exposant de l'ordre de 2, ce qui de toute évidence n'est pas le cas sur les courbes expérimentales. On constate même que la présence d'air à la pression atmosphérique conduit à une légère augmentation de l'exposant, donc à une dépendance encore plus élevée vis-à-vis de la contrainte appliquée.

On choisira donc de décrire l'augmentation de la vitesse de fluage par l'accélération du mouvement des dislocations : le mécanisme de déformation dominant est le même quelle que soit la pression totale mais il est fortement activé par la présence d'air près de la surface de l'éprouvette.

Ce choix conduit en particulier à négliger le rôle du glissement intergranulaire sur le comportement du feuillard. Celui-ci ne participe pas de manière significative à la déformation

totale [Crossman 1975]. Il est plutôt considéré comme un moyen parmi d'autres (dont la cavitation intergranulaire) de résoudre les incompatibilités de déformation aux joints de grains, suite à la déformation importante des grains. Il est donc « fragilisant » dans la mesure où il conduit à des concentrations importantes de contraintes aux discontinuités telles que les lignes triples, qui sont sans doute à l'origine de la germination et de la croissance des cavités observées sous vide. Les formes plus arrondies des cavités observées après l'essai sous air sont liées à une croissance assistée par la déformation des grains.

IV.2. Modélisation de l'effet de l'environnement

L'oxygène ne diffuse pas assez vite à 550°C dans le matériau pour atteindre, dès le premier palier de fluage, tous les joints de grains des feuillards. Son rôle est donc essentiellement de participer à la réaction d'oxydation à la surface des éprouvettes. L'épaisseur de la couche d'oxydes, inférieure au micromètre dans tous les cas, ne justifie pas à elle seule le changement de comportement macroscopique observé en fonction de la pression partielle d'oxygène.

Il est donc probable qu'à travers la réaction d'oxydation, l'oxygène gouverne indirectement le changement de comportement du métal lui-même, en activant les mouvements des dislocations à l'intérieur des grains. Ce mouvement étant limité par la vitesse de montée, il est possible que l'oxydation facilite cette montée par l'injection de défauts ponctuels depuis l'interface qui sépare le métal et l'oxyde. Ces défauts migreraient ensuite, avec les dislocations, vers les joints de grains du métal, voire d'un grain à l'autre. Ceci rendrait compte du fait que toute l'épaisseur de l'éprouvette est affectée rapidement et d'une manière homogène. L'interaction entre les défauts et les dislocations serait double :

- les dislocations sont les vecteurs des défauts, qu'elles entraînent avec elles vers l'intérieur du métal ; les interactions entre dislocations peuvent même faire varier le nombre de ces défauts à travers les phénomènes de restauration, très actifs en fluage stationnaire ;

- les défauts à leur tour facilitent le mouvement des dislocations en favorisant la montée, ce qui conduit à une augmentation de la vitesse de déformation macroscopique.

IV.3. Conditions d'application en pointe de fissure

Les résultats acquis sur les feuillards montrent que le comportement d'éprouvettes de grande surface spécifique est affecté par l'environnement. Il en est sans doute de même pour le matériau proche de la surface en pointe de fissure mais les conditions aux limites mécaniques ne sont pas les mêmes :

- le matériau est en situation de relaxation des contraintes ; la déformation de fluage sert donc à accommoder la déformation imposée à la frontière de la zone viscoplastique, tandis que la contrainte diminue ;

- à proximité de la surface, le matériau ne comporte pas deux surfaces libres comme le feuillard ; il est maintenu d'un côté par un massif semi-infini qui n'a pas les mêmes propriétés en fluage que lui ;

- les propriétés mécaniques du matériau varient peut-être de manière continue lorsque l'on s'éloigne de la surface, pour rejoindre progressivement les propriétés du matériau massif ; plus qu'une discontinuité il faudrait peut-être prendre en compte une évolution continue de propriétés, à moins que l'effet d'environnement s'arrête au premier joint de grains rencontré ; dans ce cas on ne peut plus considérer le matériau comme homogène au sens de la mécanique des milieux continus ;

- la géométrie complexe, fortement concave de la pointe de la fissure et la vitesse de déformation élevée au cours des cycles de fatigue perturbent certainement les réactions d'interface, dans une mesure qu'il est difficile de prévoir d'une manière quantitative.

Les données relatives au comportement des feuillards ne sont donc pas directement transposables en pointe de fissure. Elles permettent cependant d'affiner l'interprétation du couplage entre l'environnement, le comportement mécanique et l'endommagement qui intervient dans la propagation de fissure à 550°C.

IV.3.a. Lien entre le comportement et la propagation de fissure sous vide ($Po_2 < P_T$)

Les données publiées sur les superalliages base nickel ont montré que la vitesse de propagation de fissure en fatigue et en fatigue-fluage sous vide dépend généralement peu de la forme du cycle (chapitre C-1). Il n'en est pas de même pour l'Alliage 600 : la vitesse de propagation de fissure en fatigue continue (cycles 20-20) est plus basse que la vitesse obtenue en ajoutant un temps de maintien à la charge maximale ou en ralentissant la montée en charge sur chaque cycle. Cette vitesse de propagation élevée est généralement associée à une fissuration intergranulaire importante que l'on retrouve lors des essais de fluage sur les feuillards : les joints de grains sollicités à faible vitesse de déformation sont intrinsèquement sensibles à la fissuration, même sous vide secondaire. Les vitesses de déformation plus élevées, imposées en traction sur les feuillards ou les éprouvettes lisses plus épaisses, ou encore en pointe de fissure en fatigue continue, n'entraînent pas d'endommagement des joints de grains. On peut donc considérer que la fissuration intergranulaire de l'Alliage 600 sous vide à 550°C est liée à un endommagement de fluage.

IV.3.b. Lien entre le comportement et la propagation de fissure sous air ($Po_2 > P_T$)

La vitesse de propagation de fissure sous air ne dépend pas de la forme du cycle utilisé. Elle se situe sur un « plateau haut ». L'endommagement de fluage lié à la déformation « lente » n'a donc pas été aggravé par l'augmentation de la pression partielle d'oxygène. Son domaine d'existence a en revanche été étendu aux cycles de fatigue continue : la vitesse de fluage proprement dite, qui correspond à des modes de déformation « lents », devient localement suffisamment élevée pour contribuer de manière significative à la vitesse de déformation totale et le matériau s'endommage comme pour les cycles plus « lents ».

Il est alors logique de relier l'endommagement intergranulaire (sous air comme sous vide) au fluage dislocation dans les grains, éventuellement accéléré par la présence d'une quantité suffisante d'oxygène au voisinage de la surface.

IV.3.c. Remarques complémentaires

Si l'on transpose directement les résultats des feuillards aux éprouvettes CT, on trouve que la taille de la zone affectée par l'environnement doit être au moins égale à la moitié de l'épaisseur du feuillard, soit 100 µm en début d'essai. Les grains du matériau en pointe de fissure devraient être dans ce cas nettement plus déformés que le reste de l'éprouvette. L'observation des éprouvettes CT en coupe polie montre qu'il n'en est rien. La déformation des grains les plus proches de la surface est en effet limitée par celle de l'ensemble de l'éprouvette. Il est cependant possible que localement le matériau se soit suffisamment adouci pour permettre une déformation de fluage importante près des joints de grains et faire apparaître rapidement un endommagement intergranulaire. Le critère de rupture serait alors une déformation locale de fluage « critique » dans une partie des grains, qui entraînerait la rupture d'un ou de plusieurs joints de grains voisins.

Le fait que l'on ne retrouve pas de cavité sur les joints de grains, ni sur le faciès de rupture, ni en coupe polie indique que la propagation s'est effectuée soit sur les premières cavités germées, soit par fissuration sans formation de cavité du fait du niveau élevé des contraintes locales. On retrouverait alors l'endommagement caractéristique du fluage sous forte contrainte, observé sous vide avec les feuillards.

V. APPORT DES ESSAIS SUR PRODUIT MINCE DANS L'ETUDE DU MECANISME DE FISSURATION DE L'ALLIAGE 600 A 550°C

Le principal apport des essais sur les feuillards est de montrer que le couplage mécanique-environnement est en fait un couplage comportement-environnement. Ce résultat permet de comprendre l'effet de la forme du cycle, qui est différent de celui observé sur les superalliages base nickel.

V.1. Couplage mécanique-environnement à 550°C

V.1.a. Couplage entre le comportement mécanique et le mode d'oxydation

Comme pour les superalliages base nickel, la transition de vitesse de propagation de fissure et de mode de rupture est liée à un changement de mode d'oxydation du matériau : les grains sont globalement chrome-formeurs à $Po_2 < P_T$ et nickel-formeurs à $Po_2 > P_T$; les joints de grains émergeant à la surface sont toujours chrome-formeurs mais ils se comportent sans doute comme les grains lorsqu'une fissure s'y propage.

L'activation du fluage dislocation dans les grains, pour $Po_2 > P_T$, est assistée par la réaction d'interface qui se produit à la surface du métal au cours de l'oxydation ; cette réaction d'interface est elle-même liée au mode d'oxydation du matériau.

Il y a donc un couplage entre le mode d'oxydation, représenté à l'échelle macroscopique par la pression partielle d'oxygène dans l'enceinte et le comportement mécanique de l'Alliage

600 : la formation d'oxydes riches en nickel et/ou en fer accélère le fluage dislocation. Celui-ci peut alors prendre une plus grande part à la déformation viscoplastique totale, y compris en fatigue continue. On aboutit à un élargissement du domaine de vitesses de déformation dans lequel les joints de grains peuvent être endommagés à travers le fluage dislocation. Il y a donc interaction entre l'environnement et l'endommagement à travers le comportement du matériau : le couplage mécanique-environnement pourrait se réduire à un couplage entre le mode d'oxydation et le comportement mécanique.

La Figure C-40 représente schématiquement l'influence de la pression partielle d'oxygène sur la vitesse de propagation de la fissure à un instant donné, en fonction de la vitesse de déformation viscoplastique en pointe de fissure, estimée par le calcul de structure au cours de la montée en charge et du maintien à la charge maximale. On suppose ainsi implicitement un mécanisme de propagation continu. L'effet de la pression partielle d'oxygène correspond à une translation de la courbe vers les valeurs plus élevées de la vitesse de déformation.

V.1.b. Rôle de l'oxydation vis-à-vis des mécanismes de déformation

Dans ce paragraphe, on précise le rôle de l'environnement déjà évoqué au IV.2, en tentant de l'appliquer en pointe de fissure.

L'activation des modes de déformation « lents », qui se manifeste en particulier lors du fluage stationnaire à 550°C et peut-être en fluage primaire en autoclave à 360°C [Boursier 1993a], correspond à un déplacement de l'équilibre entre l'écrouissage et la restauration, qui régit la vitesse de déformation en fluage dislocation. L'Alliage 600 s'écrouissant facilement, la vitesse de déformation est limitée par le terme de restauration. Comme il est peu probable que la réaction d'oxydation conduise à un blocage des sources de dislocations, en particulier au cœur des éprouvettes de feuillard, c'est donc le terme de restauration qui est affecté par les réactions d'interface. La restauration implique des mouvements de dislocations thermiquement activés, tels que le glissement dévié ou la montée, qui font à leur tour intervenir des lacunes. On peut donc attribuer l'activation du fluage à une modification de la concentration en lacunes susceptibles de faciliter les mouvements des dislocations.

La propagation de la fissure a lieu au cours des premières étapes de l'oxydation, c'est-à-dire au cours de la croissance des germes d'oxydes à la surface du métal. Les germes de Cr_2O_3 croissent très lentement, probablement de manière anionique et ne permettent pas une injection importante de lacunes dans le métal. Il n'en est pas de même avec les oxydes riches en nickel et/ou en fer, qui croissent rapidement, d'une manière cationique, le plus souvent en épitaxie avec le métal. Dans ce cas, l'interface métal/oxyde ne peut pas jouer le rôle de puits de lacunes, ni à l'échelle atomique (elle est cohérente), ni à l'échelle microscopique puisqu'elle est géométriquement bloquée par sa propre courbure en pointe de fissure, voire localement par des bouchons de Cr_2O_3 formés à l'aplomb des émergences de joints de grains.

V.2. Comparaison avec les superalliages base nickel testés à 650°C

Dans le cas des superalliages base nickel, par exemple les Alliages 718 et N18, l'effet de la pression partielle d'oxygène est sensible en fatigue continue mais plus encore en fatigue-

fluage. Dans ces matériaux résistants au fluage, la part de la déformation viscoplastique liée à des mécanismes de déformation endommageants pour les joints de grains est trop faible en fatigue continue pour conduire à la vitesse de propagation très élevée que l'on rencontre sur les microstructures les plus sensibles au temps de maintien à K_{max}. En considérant que l'endommagement est tout de même lié à une composante de fluage, on aboutit au schéma de la Figure C-41. Dans le cas des superalliages la vitesse de propagation maximale est atteinte en fluage pur sous air, les effets d'environnement subsistant pour les vitesses de déformation les plus faibles ; l'écart entre les vitesses « haute » et « basse » dépend de la microstructure.

La comparaison entre les Figures C-40 et C-41 montre que les effets d'environnement se manifestent à l'intérieur d'une « fenêtre » de valeurs de la vitesse de déformation viscoplastique, qui varie suivant les matériaux, en fonction de leurs propriétés en fluage (Figure C-42). On distingue alors trois régimes de propagation de la fissure :

- Régime I : la déformation est « très lente », elle est assurée par des mécanismes endommageants pour les joints de grains du matériau, sous vide comme sous air ; dans le cas de l'Alliage 600, cet endommagement est suffisant pour masquer les effets d'environnement sur la vitesse de propagation de fissure ; on est en régime dépendant du temps (voir Chapitre C-1) ;

- Régime II : la vitesse de déformation est plus élevée et les mécanismes « lents » ne peuvent pas se développer suffisamment, sous vide, pour conduire à une propagation intergranulaire aussi rapide qu'en Régime I ; leur activation par la réaction d'oxydation à $Po_2 > P_T$ est suffisante pour que sous air ils jouent de nouveau un rôle important dans le mécanisme de rupture ; on observe alors une transition dans la courbe $(da/dN) = f(Po_2)$ qui correspond au changement du mode d'oxydation ;

- Régime III : le matériau se déforme rapidement ; même lorsqu'il est nickel-formeur, les mécanismes de déformation « lents » ne peuvent pas se développer suffisamment pour entraîner une propagation intergranulaire et l'effet d'environnement disparaît ; la rupture a lieu par un endommagement de fatigue « rapide », de nouveau contrôlé par la sollicitation mécanique, cette fois-ci en régime dépendant du cycle (voir Chapitre C-1).

V.3. Représentation des effets d'environnement en fonction de la vitesse de déformation locale imposée

On se propose de donner une représentation graphique des effets respectifs de l'environnement et de la vitesse de déformation sur l'endommagement intergranulaire. A cette fin, on se place dans un espace à trois dimensions, dont les axes représentent respectivement :

- le paramètre mécanique endommageant, qui est la vitesse de déformation totale instantanée, peut également être représenté par la période de cycles de fatigue continue ; ce paramètre représente également l'effet de la forme du cycle ;

- l'influence de l'environnement, à travers la pression partielle d'oxygène qui gouverne le mode d'oxydation du matériau, y compris en pointe de fissure ;

- l'endommagement intergranulaire, représenté ici par la vitesse de propagation d'une fissure intergranulaire, notée v, ou éventuellement par la fraction surfacique du faciès de rupture qui correspond à une rupture intergranulaire.

La Figure C-43a illustre le cas de l'Alliage 600, pour lequel il n'y a pas d'effet d'environnement au-dessous d'un certain seuil de vitesse de déformation, alors que les superalliages connaissent encore un effet d'environnement pour les vitesses de déformation les plus faibles (Figure C-43b).

L'endommagement intergranulaire résulte d'une vitesse de déformation basse et/ou d'une pression partielle d'oxygène suffisamment élevée pour favoriser une déformation lente en pointe de fissure. Ce mécanisme est illustré dans le cas de la fatigue-fluage par la Figure C-44. Sa modélisation nécessiterait la connaissance de paramètres physiques tels que les portées respectives du couplage environnement-comportement et de l'endommagement induit par ce couplage. En l'absence de telles données, nous nous contenterons des représentations schématiques de la Figure C-43.

Le domaine de transition, caractérisé par un couplage intense mécanique-environnement, est limité par les deux courbes **A** (vitesse basse) et **B** (vitesse haute), également représentées sur la Figure C-45 dans le cas de l'Alliage 600. Les essais sur les superalliages [Hochstetter 1994, Molins 1997] et sur les alliages binaires nickel-chrome [Molins 1995] ont montré que la pression de début de transition, que nous avons notée P_T, ne dépend pas de la forme de cycle testée. Elle est donc constante dans une large gamme de vitesse de déformation locale imposée. La fin de la transition dépend en revanche de la vitesse de déformation : plus celle-ci est élevée, plus l'effet de l'endommagement de fluage tarde à saturer ; il faut alors une pression partielle d'oxygène plus importante pour que l'effet devienne maximal.

La Figure C-46 représente des coupes de la surface de la Figure C-43a par des plans (Po_2 = constante), c'est-à-dire que l'on fixe les conditions d'environnement (courbes **1** et **2**). On retrouve les courbes de la Figure C-42 et l'effet de la forme du cycle sur l'endommagement intergranulaire, représenté ici par la vitesse de propagation par cycle da/dN. L'activation du fluage par la formation d'oxydes riches en fer ou en nickel se traduit par un élargissement du domaine de propagation rapide vers les vitesses de déformation les plus élevées (cycles 20-20). Par souci de clarté, la courbe intermédiaire **6** de la Figure C-43a n'est pas représentée sur la Figure C-46.

Les courbes **3**, **4** et **5** de la Figure C-47 sont des coupes de la surface de la Figure C-43a par des plans (vitesse de déformation = constante). L'effet de la pression partielle d'oxygène sur la vitesse de propagation de fissure disparaît au-dessous d'un seuil en vitesse de déformation, notamment dans le cas des cycles de fatigue-fluage (courbe **5**). La propagation, entièrement intergranulaire, s'effectue à la vitesse maximale v_M qui est d'environ 0,2 µm par cycle. A partir d'une certaine vitesse de déformation, supérieure à 10^{-5} s^{-1} d'après le calcul de structure, apparaît une pression partielle d'oxygène de transition ; la vitesse de propagation dépend alors de l'environnement (courbe **4**), comme on l'a observé avec les cycles 20-20. Si l'on augmente encore la vitesse de déformation locale imposée, la cinétique d'endommagement mécanique (de traction ou de fatigue) finit par prendre le pas sur la cinétique d'oxydation et les effets d'environnement n'ont plus le temps de se manifester (courbe **3**). L'endommagement est alors de nouveau gouverné par la sollicitation mécanique.

Les cartes de fissuration intergranulaire telles que celles de la Figure C-43 sont un précieux outil pour la caractérisation et la comparaison des alliages base nickel. Elles peuvent être construites par des essais de propagation de fissure sous différentes sollicitations cycliques, en fixant la pression partielle d'oxygène (courbes de la Figure C-47), par exemple en évaluant l'effet de la fréquence de sollicitation avec des cycles triangulaires de fatigue continue. De telles études ont déjà été publiées sous air et sous vide secondaire dans le cas des superalliages [Weerasooriya 1988] et pourraient être étendues à un plus grand nombre de valeurs de la pression partielle d'oxygène. L'axe des sollicitations mécaniques peut être gradué soit directement en fonction de la fréquence des cycles, soit en vitesse de déformation, ce qui nécessite des calculs de structure mais donne une information intrinsèque au matériau.

En effectuant des essais à basse vitesse de déformation, on peut déterminer si un matériau, durci par précipitation ou uniquement par effet de solution solide, est très sensible à l'endommagement de fluage, y compris sous vide (Figure C-43a) ou s'il résiste mieux que l'Alliage 600 (Figure C-43b). On pourrait également préciser l'évolution de la pression de transition en fonction du taux de chrome et de la vitesse de déformation, en particulier dans le domaine où P_T n'est pas constante, c'est-à-dire où il y a couplage entre la sollicitation mécanique (en particulier le mode de déformation) et la formation des oxydes. Certains modes de déformation favorisent en effet le drainage du chrome vers la surface et donc la formation de Cr_2O_3 (voir Chapitre C-1).

V.4. Conclusions

L'étude des effets d'environnement à 550°C a montré que la rupture intergranulaire observée en fatigue-fluage et sous air en fatigue continue est associée à un endommagement de fluage, assisté par la formation d'oxydes riches en fer et en nickel. L'accélération du fluage affecte une zone suffisamment étendue pour influencer nettement le comportement d'éprouvettes de 200 µm d'épaisseur. Elle est associée à la germination et à la croissance d'un oxyde cationique, en relation cristallographique étroite avec le métal, susceptible d'injecter des lacunes. Celles-ci favorisent le fluage dislocation et pourraient également, après transport par les dislocations, venir s'accumuler dans les joints de grains et les endommager. Ces phénomènes sont pris en compte dans une représentation graphique conçue comme un outil d'évaluation de la résistance d'un alliage à la fissuration intergranulaire assistée par l'environnement.

PROPAGATION DE FISSURE A HAUTE TEMPERATURE :

CONCLUSIONS

Les essais de propagation de fissure dans l'Alliage 600 à 550°C ont montré que les effets d'environnement mis en évidence sur les superalliages base nickel sont également rencontrés dans le cas de l'Alliage 600, durci par effet de solution solide.

On retrouve ainsi, en fatigue continue, l'existence d'une pression partielle d'oxygène de transition. Celle-ci correspond à un changement de mode d'oxydation, une multiplication par cinq de la vitesse de propagation de fissure et un changement de mode de rupture, qui devient intergranulaire sous air. La valeur de la pression de transition (quelques 10^{-4} mbar) est conforme à l'effet déjà connu de la teneur en chrome dans la matrice austénitique des alliages base nickel.

Le fait que l'on ne retrouve pas cette transition en fatigue-fluage a amené à s'interroger sur l'effet de la vitesse de déformation locale et montre que la médiocre résistance des joints de grains de l'Alliage 600 à l'endommagement de fluage à 550°C masque l'effet de l'environnement sur la vitesse de propagation. Des essais complémentaires sur feuillards minces, simulant le matériau proche de la pointe de la fissure, ont montré que la formation d'oxydes riches en nickel et en fer (comportement nickel-formeur) multiplie par dix la vitesse de fluage stationnaire par rapport à une situation dans laquelle le matériau forme préférentiellement une couche de Cr_2O_3 (comportement chrome-formeur). Cette activation du fluage dislocation est attribuée à une activation de la restauration, probablement par injection de lacunes à l'interface métal-oxyde. La fissuration intergranulaire est donc le fait d'un endommagement mécanique de fluage, qui est accéléré lorsque le matériau est nickel-formeur et intervient lorsque la vitesse de déformation totale est plus élevée, comme c'est le cas en fatigue continue.

Dans la suite de ce mémoire, on montre que cette approche est également applicable au cas de la fissuration de l'Alliage 600 à plus basse température, en particulier dans le milieu primaire des réacteurs nucléaires à eau sous pression.

PROPAGATION DE FISSURE ASSISTEE PAR L'ENVIRONNEMENT

ENTRE 320 ET 400°C

Partie D : Propagation de fissure assistée par l'environnement entre 320 et 400°C

La Partie D de ce mémoire est consacrée à l'application de la démarche mise en œuvre à 550°C, à l'étude de la fissuration de l'Alliage 600 dans le milieu primaire des réacteurs à eau sous pression.

Le Chapitre D-1 rappelle l'ensemble, des données expérimentales et des modèles disponibles à propos de la fissuration de l'Alliage 600 dans le milieu primaire. Il aborde également les modalités du passage —a priori audacieux— de la fissuration sous air à haute température à la corrosion sous contrainte dans le milieu primaire. Plusieurs couples environnement-température ont été étudiés à cet effet :

- air/vide à 400°C : effet de la température ;
- H_2/H_2O à 400°C, basse pression : influence de la présence d'hydrogène dans un milieu plus ou moins oxydant ;
- milieu primaire à 320°C, sous 125 bar : influence de la température et de la pression totale.

Les essais de propagation de fissure sont exposés dans le Chapitre D-2. La fissuration intergranulaire est observée dans tous les milieux oxydants, y compris sous air et indépendamment de la pression totale.

Comme à 550°C, les effets d'environnement ont fait l'objet d'études particulières (Chapitre D-3). Si les propriétés de l'Alliage 600 en fluage sont difficiles à évaluer à 400°C, même sur produit mince, le mode d'oxydation dans le milieu primaire a pu être caractérisé par microscopie électronique en transmission analytique. Compte tenu des données disponibles dans la littérature, une activation locale du fluage dislocation en pointe de fissure n'est pas à exclure dans le milieu primaire. Le rôle de l'hydrogène est ambigu : il peut sans doute pénétrer dans le métal et favoriser un adoucissement local en présence d'eau désaérée mais il n'est peut-être pas indispensable, puisque la rupture est également intergranulaire sous air.

CHAPITRE D-1 : PROPAGATION DE FISSURE ENTRE 320 ET 400°C CONTEXTE DE L'ETUDE

Tandis que l'on s'est peu intéressé à la fragilisation de l'Alliage 600 entre 500 et 600°C, la fissuration par corrosion sous contrainte dans le milieu primaire des réacteurs à eau sous pression a passionné de nombreuses équipes de recherche depuis plusieurs décennies. Le contexte de notre étude est donc très différent de celui que nous avons rencontré à plus haute température. C'est un domaine riche en données expérimentales, dans lequel de nombreux modèles ont été développés. Le passage des propriétés à 550°C sous air à la résistance à la corrosion sous contrainte dans le milieu primaire est donc loin de s'imposer comme une évidence a priori.

Nous nous proposons dans ce chapitre de replacer ce passage dans le contexte de la fissuration par corrosion sous contrainte. La base de données sur ce sujet, considérable et très évolutive, ainsi que les nombreux mécanismes proposés ont fait l'objet de revues détaillées (voir par exemple [Gras 1992], [Parkins 1992], [Boursier 1993a]). Nous ne prétendrons pas en donner une vision exhaustive mais nous insisterons, comme à plus haute température, sur la démarche qui a été progressivement développée.

Les données expérimentales ont été obtenues avec des outils et des méthodes souvent très différents de ceux qui ont été mis en œuvre à plus haute température. Ceci s'explique en particulier par la présence d'un électrolyte conducteur et par la cinétique « lente » de la fissuration. Ce point est abordé dans la première partie de ce chapitre et constitue le cadre général des travaux sur la fissuration de l'Alliage 600 par corrosion sous contrainte.

La seconde partie recense les principaux faits expérimentaux et souligne les paramètres importants vis-à-vis de la résistance du matériau à la corrosion sous contrainte.

Les trois parties suivantes sont consacrées à la modélisation. On s'aperçoit que de nombreux mécanismes ont été proposés, qui ne sont pas compatibles entre eux mais cherchent tous à rendre compte des phénomènes observés. La plupart des modèles font intervenir, à des degrés divers, des paramètres mécaniques et électrochimiques pour décrire la fissuration. Nous choisirons de les présenter en trois familles :

- endommagement par effet électrochimique : dissolution et/ou pénétration d'espèces fragilisantes (Partie III) ;
- endommagement mécanique couplé aux effets d'environnement, en clivage, en fluage ou par localisation de la déformation plastique (Partie IV) ;
- endommagement induit par une modification du comportement mécanique liée aux effets d'environnement : adoucissement en plasticité ou en fluage (Partie V).

En termes de modélisation, nous abordons ici un domaine plus riche que celui des plus hautes températures, bien que peu de modèles aboutissent à des propositions pratiques pour résoudre ce problème industriel considérable. Des calculs de prévision de durée de vie sont néanmoins disponibles (sixième partie), ce qui permet de gérer les interventions, très coûteuses, de contrôle et de remplacement des pièces en service.

Dans la dernière partie de ce chapitre, nous discuterons l'opportunité de notre démarche en montrant qu'elle rejoint certains modèles de corrosion sous contrainte récents et que le passage depuis les hautes températures ne se réduit pas à la proposition d'un mécanisme supplémentaire.

I. MOYENS D'ETUDE DE LA CORROSION SOUS CONTRAINTE DE L'ALLIAGE 600

Les premiers essais de corrosion sous contrainte se sont heurtés à un problème de délai : les fissures n'apparaissent en service qu'au bout de plusieurs milliers d'heures de fonctionnement alors que la détermination du mécanisme de corrosion sous contrainte demande un grand nombre d'essais dans un laps de temps limité. La corrosion sous contrainte de l'Alliage 600 dans le milieu primaire n'a donc pu être étudiée que par des essais « accélérés », que ce soit par une augmentation de la température (jusqu'à 400°C), une modification des conditions électrochimiques (composition du milieu, pH, surpression d'hydrogène) ou l'application de chargements mécaniques « sévères ».

La présence d'un milieu aqueux, le plus souvent liquide ou à l'état de vapeur très dense rend les études plus délicates qu'en milieu gazeux et même sous vide. Aux phénomènes d'oxydoréduction vient s'ajouter le fait que le milieu peut être conducteur, notamment s'il est aéré ou s'il vient à se charger localement en ions. Il peut donc y avoir couplage galvanique entre deux zones d'une même éprouvette et dissolution du métal dans le milieu. L'environnement est également très sensible à la présence d'impuretés qui peuvent migrer vers la pointe des fissures. Les essais requièrent de plus l'application de hautes pressions. Enfin les premiers produits testés en corrosion sous contrainte, qui sont restés longtemps les seuls à fissurer en service, sont les tubes de générateur de vapeur. Leur géométrie est telle qu'il est difficile d'y prélever des éprouvettes « simples » à analyser d'un point de vue mécanique. La sensibilité à la corrosion sous contrainte étant intimement liée aux caractéristiques métallurgiques du produit, on a généralement attendu la fissuration en service de pièces plus épaisses pour tester des éprouvettes plus « classiques », notamment en mécanique de la rupture.

I.1. Essais de corrosion sous contrainte

Nous considérerons successivement les différentes caractéristiques des essais de corrosion sous contrainte, qui sont autant de variables dont les effets sont à déterminer.

I.1.a. Géométrie des éprouvettes et sollicitations mécaniques imposées

Depuis la mise en évidence de la fissuration par Coriou [1959], la première préoccupation a été l'obtention reproductible de fissures dans un délai suffisamment court, qui s'est avérée difficile pendant une dizaine d'années. L'ingéniosité des expérimentateurs, qui ignoraient les paramètres gouvernant le mécanisme de fissuration, a donné le jour à une série d'éprouvettes de formes plus ou moins complexes, destinées à se fissurer en quelques centaines d'heures. Citons comme exemple les « selles de cheval », les « C-Rings » et les « U-Bends », qui ont été l'instrument principal de caractérisation des coulées d'Alliage 600 jusque dans les années soixante-dix. Elles sont généralement testées à déplacement imposé, sous forme de montage qui sont regroupés par lots dans des autoclaves.

Les champs de contraintes et de déformations étant très difficiles à évaluer pour ces éprouvettes, sont apparus des essais sur des éprouvettes de traction lisses, généralement usinées à partir de tubes de générateur de vapeur et testées soit en traction lente, soit à charge imposée, dans un autoclave. Celui-ci est monté sur une machine d'essais mécaniques instrumentée « ex situ ». Ces essais ont permis d'évaluer l'effet de paramètres mécaniques tels que la contrainte, la déformation plastique (état d'écrouissage) et la vitesse de déformation sur la sensibilité à la corrosion sous contrainte. Ils sont relativement rapides mais leur exploitation est limitée par l'apparition de nombreuses fissures à la surface des éprouvettes. Ils deviennent très longs lorsque l'on travaille au-dessous de 300°C.

Une troisième série d'éprouvettes est inspirée de la mécanique de la rupture ; celles-ci sont généralement usinées dans un produit plus épais que les tubes de générateur de vapeur, par exemple des manchettes d'adaptateur ou des tôles. Une seule fissure se propage, à déplacement ou à charge imposée et on est capable de mesurer in situ sa vitesse de propagation, ce qui n'est pas possible avec les éprouvettes lisses multifissurées. On se rapproche ici des conditions d'essais instrumentés in situ, développées à plus haute température. Les résultats sont d'ailleurs moins dispersés, surtout d'un laboratoire à l'autre, que ceux obtenus avec les autres types d'éprouvette.

Les essais mécaniques sont généralement effectués sous sollicitation monotone mais des tentatives récentes en fatigue se sont révélées fructueuses et ont éclairé des résultats plus anciens, notamment le succès des éprouvettes selle de cheval.

I.1.b. Effets d'environnement

Outre la sensibilité à la corrosion sous contrainte, l'Alliage 600 a été caractérisé en termes de corrosion, en fonction de la composition chimique du milieu et du potentiel électrochimique. Les films d'oxydes, qui semblent jouer un rôle important ont également été étudiés en détail. L'influence du milieu est délicate à étudier car le confinement important en pointe de fissure peut modifier les conditions électrochimiques. D'autre part, l'inertie thermique, liée à la capacité calorifique élevée du milieu et à la nécessité de contrôler la pression totale, impose des transitoires de température qui influencent sans doute les premières couches d'oxyde formées, au début de l'essai, à la surface des échantillons sur lesquels on souhaite faire amorcer des fissures.

I.2. Exploitation des essais de corrosion sous contrainte

Nous rappelons ici le type de données qui sont accessibles par les mesures macroscopiques et l'expertise des éprouvettes.

I.2.a. Données fournies par les mesures en cours d'essai

On distingue deux types d'essais : ceux pour lesquels on cherche à obtenir des fissures et ceux qui donnent des informations quantitatives sur les conditions d'amorçage et de propagation de ces fissures.

Les premiers essais de corrosion sous contrainte à déplacement imposé ont utilisé des éprouvettes très déformées, par exemple les selles de cheval, qui sont exposées par lots en autoclave. Ceci permet de tester un grand nombre d'échantillons dans des conditions thermiques et électrochimiques identiques. Les éprouvettes sont périodiquement retirées et inspectées par contrôle non destructif, généralement à la loupe binoculaire. On relève ainsi, pour chacune d'elles, le temps au bout duquel on a détecté la présence de fissures. Ce temps est donc un majorant du temps à l'amorçage des fissures, comme le montrent les coupes métallographiques sur éprouvettes réputées non fissurées. Un traitement statistique des données est nécessaire car la dispersion des résultats est importante, y compris pour un même lot et une même coulée. L'information retenue est en général le « temps à la fissuration » d'une certaine fraction des éprouvettes d'un même lot, qui s'étend de 30 à 100%. Nous noterons par la suite $t_{R\,n\%}$ le temps à la fissuration de *n%* des éprouvettes selle de cheval d'un lot considéré.

Les essais sur éprouvettes lisses fournissent des courbes force-déplacement qui peuvent être comparées les unes aux autres. Les paramètres généralement retenus sont le temps à rupture t_R, l'allongement maximum réparti, la contrainte maximale atteinte et la réduction d'aire à rupture. En traction lente on considère souvent que le temps à l'amorçage, estimé à partir d'essais interrompus, est faible devant le temps à rupture et on calcule une vitesse de propagation apparente en divisant la longueur de la plus grande fissure de corrosion sous contrainte par le temps à rupture, éventuellement corrigé d'un temps à l'amorçage. A charge constante on considère souvent, au contraire, que la propagation est instantanée et on identifie le temps à l'amorçage au temps à rupture. Quelques essais à charge constante ont également visé à déterminer, malgré les effets de multifissuration, l'effet de l'environnement (air, argon ou milieu primaire) sur le comportement en fluage.

Les essais sur éprouvettes fissurées donnent accès à la vitesse de propagation de la fissure, mesurée par suivi électrique ou estimée post mortem comme pour les éprouvettes lisses. Cette vitesse est généralement non constante. On peut ainsi étudier l'influence du facteur d'intensité des contraintes K, le plus souvent à charge constante (K croissant) pour assurer une propagation suffisamment rapide ; quelques essais ont récemment été effectués en « traction pulsée », c'est-à-dire ce que nous avons précédemment appelé fatigue-fluage.

I.2.b. Données fournies par l'expertise des éprouvettes

L'analyse fractographique donne accès à la part de la surface de rupture qui correspond à une rupture intergranulaire. Elle est généralement complétée par une observation sur coupes polies, surtout lorsque l'on travaille sur la population de fissures amorcées en traction lente sur éprouvettes lisses. Un traitement statistique, reposant sur la morphologie et la répartition des longueurs de traces de fissures, est proposé par Santarini [1989]. Il permet de déterminer la vitesse de propagation de chaque fissure, considérée comme indépendante de ses voisines.

Les films d'oxydes sont analysés à la surface des échantillons, le plus souvent après une exposition au milieu sans sollicitation mécanique appliquée. Quelques équipes ont également analysé le matériau en pointe de fissure, à l'échelle de la microscopie électronique en transmission, soit en prélevant des lames minces dans des échantillons fissurés, soit en travaillant sur répliques. Peu de résultats ont cependant été publiés à ce sujet.

L'expertise des éprouvettes de corrosion sous contrainte fournit donc des données indirectes sur les conditions électrochimiques et mécaniques qui règnent en pointe de fissure. Notons que dans ce domaine également la dispersion des résultats est importante.

I.3. Conclusions

La fissuration de l'Alliage 600 par corrosion sous contrainte dans le milieu primaire des réacteurs à eau sous pression est un phénomène délicat à étudier. Les techniques expérimentales actuellement utilisées sont le fruit d'un développement progressif, depuis l'obtention des premières fissures jusqu'à la mesure in situ des vitesses de propagation en chargement monotone ou cyclique. Les développements les plus récents, qui consistent à coupler ces essais à des expertises plus fines sur le matériau en pointe de fissure, se rapprochent des méthodes utilisées avec les superalliages à plus haute température.

Une caractéristique importante de la base de données expérimentales réside dans la variété des conditions d'essai, en termes mécaniques, métallurgiques et électrochimiques. Il est difficile de ne pas faire varier plusieurs paramètres en même temps, par exemple la précipitation de carbures et le taux de carbone en solution. Un certain nombre d'auteurs se sont alors attachés à construire des outils de normalisation des résultats expérimentaux, en cherchant par exemple un paramètre mécanique (vitesse de déformation locale) ou électrochimique (rapport P_{H_2}/P_{H_2O}) représentatif des essais à comparer. Ces calculs font plus ou moins implicitement intervenir des hypothèses sur les mécanismes en jeu. Les courbes maîtresses obtenues sont à la base des calculs de durée de vie des pièces en service.

La dispersion importante des résultats, voire leur caractère parfois contradictoire, n'est sans doute pas entièrement due à la variété des paramètres testés. On ne dispose pas à l'heure actuelle des outils de mesure et de contrôle in situ des conditions qui règnent à la pointe d'une fissure, conditions qui sont peut-être éloignées à la fois des conditions « macroscopiques » et des conditions d'équilibre, comme on l'a montré pour les essais à plus haute température. Nous retiendrons donc les grandes tendances qui ont pu être dégagées pour les présenter dans la suite de ce chapitre, en sachant que ce sont les seules informations actuellement accessibles à l'expérimentateur.

II. ETUDES PARAMETRIQUES DE LA CORROSION SOUS CONTRAINTE DE L'ALLIAGE 600 DANS LE MILIEU PRIMAIRE

II.1. Influence de la température d'essai

L'effet de la température a été modélisé par la détermination d'énergies d'activation apparentes à partir des résultats des différents types d'essais de corrosion sous contrainte. Les valeurs sont élevées et très dispersées, y compris pour un même type d'essai ; elles s'étendent en effet de 80 à 280 kJ/mol. Cette dispersion est due en partie à l'étendue limitée du domaine de température étudié (une centaine de degrés). Les Tableaux D-1 à D-4 résument les principaux résultats acquis dans ce domaine.

critère	$t_{R\ 100\%}$	$t_{R\ 100\%}$	$t_{R\ 100\%}$	$t_{R\ 100\%}$	$t_{R\ 100\%}$	$t_{R\ 50\%}$	$t_{R\ 30\%}$
énergie d'activation (kJ/mol)	126 à 168	> 150	138	125 à 280	> 150	184	104
intervalle de température (°C)	290 à 365	290 à 315	315 à 365	325 à 365	290 à 315	332 à 400	360 à 400
références bibliographiques	*a*	*b, c*	*c*	*b*	*b*	*d*	*e*

a = [Bulischeck 1981] ; *b* = [Bandy 1984] ; *c* = [Bandy 1985] ;
d = [Economy 1986] ; *e* = [Economy 1987]

Tableau D-1 : Energies d'activation déterminées sur éprouvettes selles de cheval

critère	t_R	$t_{amorçage}$	da/dt apparente
énergie d'activation (kJ/mol)	180	138	138
intervalle de température (°C)	290 à 365	290 à 365	325 à 365
références bibliographiques	*a*	*c*	*b*

a = [Bulischeck 1981] ; *b* = [Bandy 1984] ; *c* = [Bandy 1985]

Tableau D-2 : Energies d'activation déterminées sur éprouvettes de traction lente

critère	$t_{R\ 100\%}$
énergie d'activation (kJ/mol)	142
intervalle de température (°C)	345 à 365
références bibliographiques	*c*

c = [Bandy 1985]

Tableau D-3 : Energies d'activation déterminées sur éprouvettes testées à charge constante

éprouvettes	WOL	tubes fendus
critère	da/dt apparente	da/dt apparente
énergie d'activation (kJ/mol)	80±10	84 à 117 suivant écrouissage
intervalle de température (°C)	320 à 420	315 à 360
références bibliographiques	*f*	*g*

f = [Shen 1990] ; *g* = [Cassagne 1993]

Tableau D-4 : Energies d'activation déterminées sur éprouvettes de mécanique de la rupture

II.2. Influence de la composition chimique du milieu

L'ajout de bore sous la forme d'acide borique H_3BO_3 et de lithium sous forme de lithine LiOH modifie à la fois la composition chimique du milieu et son pH ; les deux effets sont donc expérimentalement indissociables [Cassagne 1992b]. Le milieu primaire est généralement plus agressif, en termes de corrosion sous contrainte, que l'eau pure désaérée mais ce résultat reste contesté. L'ajout d'acide borique ne semble pas influencer la résistance de l'Alliage 600 à la corrosion sous contrainte, évaluée sur des éprouvettes lisses [Bandy 1984] ou fissurées [Lott 1992] testées à charge imposée. L'ajout de lithine augmente en revanche la sensibilité des éprouvettes de traction lente écrouies par poinçonnage [Szklarska-Smialowska 1994]. Lott et coll. [1992] ont testé des tubes fissurés selon leur circonférence et testés à charge imposée. Ils ont mesuré les vitesses de propagation les plus élevées dans des milieux à haut pH, contenant peu de bore et de lithium, c'est-à-dire proches de la composition chimique du milieu primaire en fin de cycle combustible. Economy et coll. [1987] constatent de leur côté que l'ajout de bore et/ou de lithium à 330°C réduit la résistance des éprouvettes selles de cheval à la fissuration.

II.3. Influence du potentiel électrochimique et de la pression partielle d'hydrogène

L'influence du potentiel électrochimique sur la vitesse de fissuration de l'Alliage 600 dans le milieu primaire a été étudiée à 350°C par Totsuka et coll. [1987c] sur des éprouvettes de traction lente écrouies par poinçonnage. La courbe représentant l'évolution du pourcentage du faciès de rupture intergranulaire (%IG) en fonction du potentiel imposé, rapporté à celui du couple H^+/H_2, présente deux plateaux : un plateau haut en potentiel très cathodique (%IG = 70%) et un plateau bas (0%IG au-dessus de -800 mV). La transition entre les deux plateaux est très brutale. La courbe semble indépendante de la pression partielle d'hydrogène dans le milieu (0,05 ou 1 bar).

L'influence de la pression partielle d'hydrogène a été étudiée par Economy et coll. [1987] sur des éprouvettes selle de cheval testées en vapeur surchauffée à 400°C, la pression partielle d'hydrogène dans le milieu variant entre 0 et 2,42 bar pour une pression totale de 208 bar. Le temps à l'amorçage de 30% des échantillons d'une même coulée diminue lorsque la pression partielle d'hydrogène passe de 0 à 0,21 bar et augmente lorsque celle-ci passe de 0,76 à 2,42 bar (Figure D-1a). Malgré une dispersion importante des résultats, y compris sur une même

coulée, ils concluent à l'existence d'une « fenêtre » de pression partielle d'hydrogène pour laquelle la sensibilité de l'Alliage 600 à la corrosion sous contrainte est maximale.

Boursier et coll. [1993b] sont parvenus à une conclusion analogue à partir d'essais sur selles de cheval et sur éprouvettes de traction lente. Ils montrent qu'à 360°C en milieu primaire, pour une pression partielle d'hydrogène variant entre 5.10^{-3} et 20 bar, la sensibilité de l'Alliage 600 à la corrosion sous contrainte est maximale lorsque la pression partielle d'hydrogène est comprise entre 1 et 4 bar (Figure D-1b). Bandy et Van Rooyen ont également montré qu'une surpression de quelques bars d'hydrogène dans l'eau pure à 365°C augmente à la fois le nombre de fissures et leur vitesse de propagation mesurée en traction lente [Bandy 1984]. Totsuka et coll. [1987b] ont observé que l'ajout de un à quelques bars d'hydrogène réduit nettement le temps à rupture des éprouvettes selle de cheval. Shen et Shewmon [1990] ont testé des selles de cheval en vapeur à 380°C sous 200 bar, avec des pressions partielles d'hydrogène comprises entre 1 et 8 bar. Le temps d'amorçage des fissures est une fonction croissante de la pression partielle d'hydrogène.

De leur côté, Cassagne et Gelpi [1992b] ne relèvent aucune influence d'une variation de la pression partielle d'hydrogène entre 0,3 et 3 bar sur la résistance à la corrosion sous contrainte, évaluée sur des tubes fissurés longitudinalement et chargés à déplacement imposé à 360 °C dans le milieu primaire.

Shen et Shewmon [1990] ont montré par ailleurs que les selles de cheval ne se fissurent pas dans l'hydrogène pur à 400°C sous 273 bar.

Une revue bibliographique a récemment été publiée sur ce point par Cassagne et coll. [1997]. Elle montre en particulier que les données obtenues en contrôlant la pression partielle d'hydrogène et en contrôlant le potentiel ne sont pas toutes cohérentes, même si la sensibilité maximale à la fissuration est généralement observée autour de l'équilibre Ni/NiO. Par ailleurs, on manque de données aux basses températures, correspondant aux conditions en service. L'effet des conditions électrochimiques est de contrôler la composition et surtout le caractère protecteur du film d'oxydes mais aussi de fournir, surtout en potentiel cathodique, de l'hydrogène très fugace au voisinage de la surface.

On retiendra d'une manière générale avec Scott [1996a] que la sensibilité de l'Alliage 600 à la corrosion sous contrainte est maximale dans une « fenêtre » de potentiel d'oxydoréduction, de 50 mV de part et d'autre autour de l'équilibre thermodynamique entre Ni et NiO (Figure D-1c). Ce potentiel est le plus souvent fixé par la fugacité (et non la pression partielle) de l'hydrogène dans le milieu.

II.4. Influence de la composition chimique et de la microstructure de l'Alliage 600

L'influence des paramètres métallurgiques est très importante puisque le phénomène de corrosion sous contrainte, que ce soit en service ou au laboratoire, affecte les coulées d'une manière très sélective. Elle a déjà été exposée lors de la présentation des matériaux et le lecteur est invité à s'y reporter. Nous retiendrons qu'une coulée résistante à la corrosion sous contrainte comporte en général de gros grains et une précipitation importante de carbures de chromes intergranulaires. Le rôle du carbone en solution est plus contesté.

II.5. Influence des paramètres de chargement mécanique

La diversité et la complexité des chargements mécaniques appliqués sur les éprouvettes de corrosion sous contrainte ne permettent généralement pas de distinguer les rôles respectifs de la contrainte imposée, de la vitesse de déformation ou du taux d'écrouissage. Nous nous contenterons donc d'indiquer les principales tendances qui ont été relevées lors des essais sur éprouvettes lisses ou fissurées.

II.5.a. Résultats obtenus sur éprouvettes lisses

L'influence de la contrainte a été évaluée sur éprouvettes lisses par des essais à charge constante. Bandy et Van Rooyen [1985] ont montré que le temps à rupture est proportionnel à σ^{-4} et que la corrosion sous contrainte peut intervenir à des charges inférieures à la limite d'élasticité macroscopique mesurée en traction [Bandy 1982].

L'effet de la vitesse de déformation imposée a été évalué par Bulischeck et Van Rooyen [1981] par des essais de traction lente. La sensibilité de l'Alliage 600 à la corrosion sous contrainte augmente lorsque la vitesse de déformation initiale passe de 10^{-4} à 10^{-9} s^{-1} et le seuil de fissuration, c'est-à-dire la vitesse de déformation maximale que l'on puisse imposer à une éprouvette de traction lente pour la faire fissurer par corrosion sous contrainte, augmente avec la température d'essai. Ce seuil est situé aux alentours de 2.10^{-7} s^{-1} entre 325 et 365°C [Bandy 1984].

II.5.b. Résultats obtenus sur éprouvettes fissurées

Les essais sur éprouvettes fissurées ont mis en avant un autre paramètre de chargement qui est le facteur d'intensité des contraintes K. Ce paramètre est représentatif du chargement subi par le matériau à la pointe d'une fissure car la rupture est fragile et les éprouvettes restent en plasticité confinée. L'influence de K a été testée sur des éprouvettes de géométries diverses : tubulaires [Cassagne 1992c, 1993] ou compactes [Shen 1991a], testées à charge ou à déplacement imposé. Cassagne et coll. [1992b] ont montré que le seuil de fissuration, mesuré sur des tubes fendus, est faible, de l'ordre de 10 MPa$\sqrt{m}$.

L'influence de la valeur de K sur la vitesse de propagation des fissures de corrosion sous contrainte ne fait pas l'unanimité. Cassagne et Gelpi [1993] n'ont pas observé d'influence de K entre 20 et 30 MPa$\sqrt{m}$. La vitesse de propagation de fissure sur éprouvettes WOL augmente avec K pour $K_{initial} \approx 15,4$ à 80 MPa$\sqrt{m}$ [Shen 1991] alors que sur tubes fissurés l'augmentation de K n'accroît la vitesse de propagation que jusque vers 50 MPa$\sqrt{m}$ [Lott 1992]. Speidel et Magdowski [1993] avancent même ce seuil maximal à 25 MPa$\sqrt{m}$ à partir d'essais sur éprouvettes double poutre (DCB).

Dans l'ensemble les données expérimentales restent dispersées, comme le montre l'exemple de la Figure D-2 [Cassagne 1992b]. Les résultats rassemblés par [Vaillant 1997], issus de plusieurs laboratoires français et suisses, forment cependant un ensemble cohérent et montrent une très faible influence de K au-delà de 10 MPa$\sqrt{m}$. L'introduction d'une composante cyclique [Foster 1995, Vaillant 1997] augmente la vitesse de fissuration moyenne mais tend à

modifier le faciès de rupture. Celui-ci comprend moins de zones intergranulaires et son relief est moins accusé qu'en corrosion sous contrainte (essais monotones).

II.5.c. Effet de l'état d'écrouissage du matériau

Un autre paramètre mécanique important, étudié lors des essais de corrosion sous contrainte est l'état d'écrouissage du matériau. Boursier [1993a] a montré que l'état de surface des tubes de générateur de vapeur, bruts de fabrication ou polis électrolytiquement, joue un rôle important dans l'amorçage des fissures de corrosion sous contrainte. Un aplatissement des éprouvettes de traction lente usinées dans ces mêmes tubes augmente leur sensibilité à la corrosion sous contrainte [Bulischeck 1981]. Un étirage de 5% en traction avant l'essai de corrosion sous contrainte abaisse la résistance du matériau [Bandy 1985, Cassagne 1992c et 1993] tandis qu'un étirage de 20% n'a pas nécessairement le même effet [Bandy 1985] (Figure D-3). Enfin Totsuka et coll. [1987b] ont montré qu'un écrouissage par poinçonnage à froid est plus nocif en traction lente que le confinement du chargement au fond d'une entaille.

Une indication précieuse est fournie par l'orientation des fissures sur les éprouvettes testées à déplacement imposé. L'étude soigneuse d'éprouvettes selle de cheval par Garriga-Majo [1993] a montré que les fissures naissent dans les zones qui correspondent à un demi-cycle de compression-traction, en particulier sur les ailes des éprouvettes. L'état de contrainte et d'écrouissage biaxial, sans demi-cycle de compression, conduit à une fissuration plus tardive sur le col. La même analyse a été conduite par Totsuka et coll. [1987a] sur des éprouvettes de traction lente écrouies par poinçonnage à froid, qui sont très sensibles à la corrosion sous contrainte. Rebak et coll. [1995b] suggèrent également que le gradient de contraintes ou de déformations résiduelles en surface peut jouer un rôle important.

II.5.d. Conclusions

L'effet des paramètres de chargement mécanique a été étudié par une approche globale alors que l'importance des champs locaux, obtenus par écrouissage ou préfissuration, est démontrée d'une manière de plus en plus convaincante. Un exemple en est donné par Toribio [1994], qui montre à propos d'un acier perlitique testé en milieu basique que le paramètre mécanique déterminant sur éprouvette entaillée est la vitesse de déformation à fond d'entaille, qui n'est accessible que par le calcul. Cette approche est l'un des points importants de notre étude. La vitesse de déformation en pointe de fissure a en effet souvent été estimée à partir de lois empiriques (voir par exemple [Cassagne 1992b]), qui ne font pas toujours intervenir explicitement le comportement mécanique du matériau.

II.6. Conclusions : paramètres déterminants

La richesse mais aussi la dispersion des résultats expérimentaux rendent difficile la détermination des paramètres mécaniques, métallurgiques et électrochimiques qui gouvernent la résistance d'une coulée donnée à la corrosion sous contrainte dans le milieu primaire. Nous retiendrons les conclusions qui font l'objet d'un consensus large pour rappeler les paramètres liés à une sensibilité élevée à la corrosion sous contrainte.

Matériau

- présence de carbures de chrome dans les grains et absence de carbures dans les joints de grains ;
- faible taille de grains et/ou limite d'élasticité élevée ;
- proportion importante de joints de grains de haute énergie ;
- l'effet du taux de carbone (global ou en solution) est contesté.

Environnement

- dépendance en température : énergie d'activation élevée, valeurs dispersées ;
- milieu primaire généralement plus nocif que l'eau pure ;
- « fenêtre de potentiel » autour de l'équilibre Ni/NiO ;

Chargement mécanique et état d'écrouissage

- dépendance en σ^4 (amorçage sur éprouvettes lisses) mais indépendance vis-à-vis de K (propagation) ;
- écrouissage superficiel ou en volume, notamment cycle compression-traction ou déformations résiduelles très localisées.

La modélisation qui repose sur ces faits expérimentaux est abondante et variée, donnant plus de poids à tel ou tel paramètre. Les trois parties suivantes présentent ces modèles en insistant sur la nature des mécanismes mis en jeu : effets d'environnement et sollicitations mécaniques. Les modèles les plus récents font intervenir un couplage entre les effets d'environnement et les sollicitations mécaniques locales. Ils s'inspirent souvent de résultats connus en corrosion sous contrainte ou en fatigue-corrosion avec d'autres couples matériau/milieu, voire de la fissuration assistée par l'oxydation à haute température, ce qui correspond à la démarche que nous avons suivie pour cette étude. Le Tableau D-5 résume les grandes lignes des modèles qui seront présentés dans la suite de ce chapitre, accompagnés des résultats des études complémentaires qui viennent à l'appui de tel ou tel mécanisme.

effet prépondérant	mécanisme proposé	références
réactions électrochimiques (partie III)	dissolution anodique et consommation du métal	Ford 1992
	pénétration d'espèces fragilisantes : hydrogène oxygène	Shen 1990 Scott 1993, Gendron 1996
fragilisation, rupture mécanique (partie IV)	clivage induit par rupture de film	Cassagne 1992a, Newman 1990
	cumul d'endommagement en fluage	Sung 1992
	glissement intergranulaire	Kergaravat 1996
	localisation de la déformation	Bruemmer 1988
couplage comportement-environnement (partie V)	fluage assisté par l'environnement	Angeliu 1995
	rupture fragile par adoucissement localisé	Magnin 1993, Flanagan 1993, Rios 1995 Saario 1995

Tableau D-5 : Mécanismes de fissuration de l'Alliage 600 par corrosion sous contrainte dans le milieu primaire

III. MODELES D'ENDOMMAGEMENT INDUIT PAR DES REACTIONS ELECTROCHIMIQUES

Les mécanismes présentés dans cette partie privilégient le rôle des effets d'environnement sur celui de la sollicitation mécanique :

- consommation du métal par dissolution anodique ; nous rappellerons à ce propos les résultats disponibles sur les films d'oxydes formés sur l'Alliage 600 dans le milieu primaire ;
- pénétration d'espèces fragilisantes, pouvant endommager le matériau par formation de bulles de gaz ou par ségrégation dans les joints de grains.

III.1. Consommation du métal par dissolution anodique

III.1.a. Caractéristiques du modèle

Un des premiers modèles élaborés pour décrire la corrosion sous contrainte de l'Alliage 600 en milieu primaire est fondé sur un mécanisme de dissolution anodique [Ford 1992]. Dans ce modèle, la fissure avance par la répétition des étapes suivantes :

- rupture du film après déformation du métal en fluage ou à l'émergence des bandes de glissement aux joints de grains ;

- dissolution anodique du métal sous-jacent ;

- formation d'un nouveau film.

Ce modèle est couramment utilisé dans les calculs de prévision de durée de vie. La vitesse de propagation de la fissure est régie par la compétition entre la dissolution anodique et la passivation du métal. Il sous-estime néanmoins la vitesse de propagation des fissures ; une solution à ce problème est d'introduire une accélération de la diffusion en surface telle que la propose Galvele dans un autre contexte [1993]. Dans le modèle de dissolution la nature et les propriétés mécaniques du film jouent un rôle considérable

III.1.b. Corrosion de l'Alliage 600 dans le milieu primaire

Analyse des couches d'oxydes formées sur des surfaces planes

Les études liées à la corrosion ont également porté sur les films formés dans le milieu primaire. Bandy et Van Rooyen [1985] ont observé au MET des répliques réalisées sur des échantillons d'Alliage 600 exposés deux semaines en eau pure désaérée à 365°C. Les oxydes ainsi formés, riches en nickel, ont des orientations cristallographiques liées à celles du métal sous-jacent.

Hanson et coll. [1985] ont exposé des échantillons d'Alliage 600 recuit (mill-annealed) au milieu primaire, durant 450 heures à 300°C, sous différents potentiels électrochimiques. Les films obtenus sont trop minces pour être examinés au MEB. Leur analyse par spectroscopie rétrodiffusée de Rutherford (RBS) ou par analyse de réactions nucléaires (NRA–diffusion inélastique des protons) a montré qu'à un potentiel supérieur à 250 mV (par rapport à l'électrode Ni/NiO) le chrome disparaît de la couche d'oxydes. Le taux d'oxygène dans les films augmente avec le potentiel, les taux d'aluminium et de silicium augmentent proportionnellement l'un à l'autre jusqu'à atteindre une valeur totale de l'ordre de 20%.

Angeliu et Was [1993] ont exposé des échantillons d'alliages Ni-xCr-9Fe-C ultra-purs dans un autoclave de recirculation contenant de l'eau pure désaérée, durant 100 heures à 360°C sous un bar d'hydrogène. La surface des échantillons à 5% de chrome est recouverte de plaquettes hexagonales riches en nickel, sans doute sous forme d'hydroxydes $Ni(OH)_2$. Le passage à 17% de chrome conduit à des films d'épaisseur identique, dans lesquels $Ni(OH)_2$ a disparu au profit de Cr_2O_3. L'augmentation du taux de chrome jusqu'à 30% n'induit pas d'effet supplémentaire. Le carbone (jusqu'à 0,03% en masse) semble favoriser la formation de $Ni(OH)_2$ aux dépens de Cr_2O_3, c'est-à-dire qu'il augmente la teneur en chrome nécessaire pour former Cr_2O_3 à la place de $Ni(OH)_2$.

Hakiki et coll. [1994] ont exposé des échantillons d'Alliage 600 dans une boucle, en milieu primaire hydrogéné, à 350°C durant 2000 heures. L'analyse de ces échantillons, au MET et au microscope à force atomique, a montré l'existence d'une couche externe de microcristaux de 100 à 250 nanomètres de diamètre et d'une couche interne de nanocristaux. Les examens par

spectrométrie Raman révèlent du $FeCr_2O_4$ tandis que la diffraction des rayons X montre un mélange NiO/Cr_2O_3.

Enfin McIntyre et coll. [1979] ont exposé des échantillons d'Alliage 600 dans l'eau pure désaérée, en autoclave de recirculation, entre 280 et 290°C. Les films formés sont essentiellement composés d'oxydes (ou d'hydroxydes) de fer et de chrome recouverts par de l'hydroxyde de nickel. La formation de ce dernier est attribuée à un mécanisme de dissolution-reprécipitation.

L'analyse détaillée des films formés sur l'Alliage 600, dans des conditions où il est sensible à la corrosion sous contrainte, a montré la formation d'oxydes mixtes, de NiO, de Fe_3O_4 et d'oxydes riches en chrome à l'interface oxyde/métal. Aucune analyse du métal sous-jacent ne semble cependant avoir été effectuée à ce jour. L'Alliage 600 a donc un comportement de type « nickel (ou fer)-formeur » dans le milieu primaire (nous dirons par la suite « nickel-formeur »), du moins dans les conditions de fissuration par corrosion sous contrainte.

La présence d'un milieu conducteur et d'un confinement imposé par les conditions géométriques laisse cependant subsister une incertitude sur les conditions électrochimiques qui règnent en pointe de fissure. Une analyse locale des oxydes, quoique délicate, est donc nécessaire.

Oxydation de l'Alliage 600 au fond des fissures de corrosion sous contrainte

L'Alliage 600 n'est pas chrome-formeur en condition de propagation de fissure. Thompson et coll. [1996] ont détecté la présence de $NiCr_2O_4$. Ils ont également montré [1995] que les films formés en fond de fissure ne sont pas identiques à ceux qui sont formés en surface :

- à la surface des échantillons ils ont trouvé des oxydes riches en nickel et en chrome près du métal, NiO et des oxydes mixtes en couche externe ;
- en fond de fissure ils ont souvent relevé la présence de NiO très près de l'interface oxyde/métal.

L'Alliage 600 est donc nickel-formeur et on retrouve NiO, déjà impliqué dans la fissuration à haute température, au fond des fissures de corrosion sous contrainte.

Conclusions : rôle des films d'oxydes

Les conclusions de Combrade [1996a et b] sur la formation de films à la surface d'échantillons d'Alliage 600 valent également pour les films formés en fond de fissure :

- beaucoup de nickel dans les couches externes (NiO ou oxydes mixtes riches en nickel selon les cas) : l'Alliage 600 est nickel-formeur en conditions de corrosion sous contrainte ;
- couche riche en chrome près de l'interface oxyde/métal.

Les conditions d'oxydoréduction de l'Alliage 600 dans le milieu primaire, au voisinage de l'équilibre thermodynamique entre Ni et NiO, sont donc proches de celles que nous avons rencontrées sous air à plus haute température. Dans les deux cas, les couches d'oxydes se sont sans doute formées après le passage de la fissure ; il est possible que, comme à plus haute température, le mécanisme de fissuration soit suffisamment « continu » pour que la propagation ait lieu au cours de l'étape de germination. Cette hypothèse est cependant écartée des modèles actuels de corrosion sous contrainte, qui supposent que le film a le temps de se reformer entre deux incréments de propagation. Le rôle du film est donc généralement évalué en termes de cinétique de croissance ou de propriétés diélectriques.

III.2. Pénétration d'espèces fragilisantes

Cette approche est inspirée de celle de Bricknell et Woodford à haute température. La corrosion de l'Alliage 600 dans le milieu primaire produit, par dissociation des molécules d'eau, deux espèces susceptibles de pénétrer dans le métal et de le fragiliser : l'hydrogène et l'oxygène. Cette fragilisation peut avoir lieu par cavitation ou par ségrégation dans les joints de grains et abaissement de leur énergie de cohésion.

III.2.a. Cavitation induite par la présence d'espèces fragilisantes

Pénétration d'hydrogène

Les principaux tenants d'une fragilisation de l'Alliage 600 par cavitation sont l'équipe de Shewmon [Shen (C.H.) 1990, Shen (Y.) 1991a et 1991b], qui a observé au MET des répliques de zones situées en avant de pointes de fissures de corrosion sous contrainte. Ces fissures ont été obtenues sur des éprouvettes selle de cheval et WOL testées à 380°C avec une surpression de 1 bar d'hydrogène. Les auteurs ont remarqué la présence de deux populations de cavités dans les joints de grains, sur 20 µm en avant de la pointe de la fissure, sans contact apparent avec le milieu primaire. Ils ont attribué cette cavitation à la formation de gaz (probablement CH_4) par réaction chimique entre le carbone interstitiel proche des joints de grains et l'hydrogène venant du milieu, diffusant dans les joints de grains en amont de la fissure (Figure D-4).

Des essais de thermodésorption sur des éprouvettes fissurées dans le milieu primaire ont montré que le méthane (et non le dihydrogène) est peut-être à l'origine de la formation des cavités. Sa concentration dans les échantillons est cependant insuffisante pour alimenter la croissance des bulles [Shewmon 1989]. Dans le modèle, la germination des premières bulles est donc liée à une réaction chimique et à l'aboutissement des lignes de glissement dans les joints de grains alors que leur croissance est assistée par la contrainte. Un calcul de cavitation [Shen 1990] conduit à un espacement entre bulles de quelques dixièmes de microns, qui est conforme aux observations [Shen 1991b]. Shen et Shewmon [1991a] ont également interprété le rôle du facteur d'intensité des contraintes K par rapport à l'énergie d'activation : pour les faibles valeurs de K la germination de la seconde population de bulles est l'étape limitante et

elle dépend davantage de la contrainte que la croissance des bulles ; celle-ci contrôle le mécanisme pour les valeurs de K plus élevées.

Le modèle de Shewmon est très contesté dans la mesure où la plupart des faciès intergranulaires de corrosion sous contrainte dans le milieu primaire montrent des facettes très lisses, visiblement exemptes de trace de cavitation.

Young et Scully [1997] ont montré que l'effet bénéfique des carbures de chrome intergranulaires pourrait être lié à un piégeage de l'hydrogène aux interfaces entre ces carbures et le métal. Le rôle néfaste des carbures de chrome transgranulaires n'est cependant pas évoqué dans leur étude.

Pénétration d'oxygène

La démarche de Bricknell et Woodford a été reprise par Scott et Le Calvar [1993]. Ceux-ci proposent un modèle de fragilisation par oxydation interne, dans lequel l'oxygène serait soit absorbé à l'état atomique dans les joints de grains, soit piégé par le chrome (formation de Cr_2O_3) ou le carbone (formation de bulles de CO_2, voir le modèle de Bricknell et Woodford, Chapitre C-1). Cette oxydation interne affecterait une zone en avant des fissures de corrosion sous contrainte. Ici encore, une analyse détaillée du matériau en pointe de fissure se révèle nécessaire pour confirmer le rôle de ces mécanismes dans le cas de l'Alliage 600 à basse température (inférieures à 400°C).

Discussion : l'Alliage 600 cavite-t-il dans le milieu primaire ?

La présence de bulles en avant des fissures de corrosion sous contrainte est très discutée. Si Shen et Shewmon ont observé des cavités, Thompson et coll. [1995] affirment catégoriquement que le matériau en avant des pointes de fissure ne présente aucun signe de cavitation visible au MET. Les résultats expérimentaux indiquent donc que la cavitation n'est sans doute pas un mécanisme prépondérant de fissuration de l'Alliage 600 ou que la rupture intervient avant que les cavités aient atteint une taille de quelques dizaines de nanomètres. On se rapproche ici des conditions de germination de ces cavités, voire de ségrégation des espèces fragilisantes dans les joints de grains.

III.2.b. Ségrégation dans les joints de grains

Pénétration de l'hydrogène

La pénétration de l'hydrogène dans l'Alliage 600 exposé au milieu primaire a été montrée par Totsuka et coll. [1987b]. La concentration en hydrogène est quasiment nulle dans les zones mécaniquement non sollicitées et augmente lorsque l'on se rapproche de la surface de rupture des éprouvettes, jusqu'à atteindre une valeur maximale de l'ordre de 80 ppm. Or Rebak et Smialowska [1991] ont évalué la solubilité de l'hydrogène dans le nickel, sous une pression d'une atmosphère d'hydrogène gazeux. Un calcul thermodynamique les a conduits à des

valeurs inférieures à 5 ppm pour des températures comprises entre 20 et 400 °C. La teneur en hydrogène déterminée près des surfaces de rupture est donc très supérieure à la limite de solubilité de l'hydrogène dans le métal. Au bout de 100 heures, elle atteint une valeur indépendante de la pression partielle d'hydrogène dans le milieu —et donc du potentiel électrochimique, qui joue pourtant un rôle important dans la sensibilité du matériau à la fissuration [Totsuka 1987b].

Cette absorption d'hydrogène, sans doute liée à l'oxydation du métal et au fort niveau de la contrainte hydrostatique en pointe de fissure, peut même conduire à des ruptures différées à la sortie de l'autoclave. De telles ruptures ont été observées par Xia et coll. [1991] sur des selles de cheval testées à 360°C dans le milieu primaire sous 2,4 bar d'hydrogène. Il semble en revanche impossible de relier cette concentration d'hydrogène analysé dans le matériau à la sensibilité de celui-ci à la corrosion sous contrainte car le taux d'hydrogène est indépendant de la pression partielle imposée au cours des essais de corrosion sous contrainte. Cassagne et coll. [1997] remarquent enfin que l'accumulation d'hydrogène dans le matériau n'est observée qu'en présence d'une fissure. Elle est donc peut-être liée à la fissuration sans nécessairement en être la cause, même si cela est difficile à vérifier.

L'étude de la pénétration de l'hydrogène dans l'Alliage 600 montre donc que celui-ci a tendance à diffuser, voire à s'accumuler dans les zones les plus proches de la rupture. Aucune corrélation directe n'a cependant pu être établie entre cette pénétration d'hydrogène et la fissuration par corrosion sous contrainte. L'effet de l'hydrogène est indéniable mais il ne saurait être seul responsable de la fissuration de l'Alliage 600 dans le milieu primaire.

Pénétration de l'oxygène

Gendron et coll. [1994, 1996] ont utilisé des éprouvettes « minces », d'une épaisseur de 20 à 30 µm, prélevées dans des tubes de générateur de vapeur et amincies par polissage électrolytique. Ils les ont fait séjourner, sans contrainte appliquée, en vapeur hydrogénée à 400°C durant un à quatre jours. Elles ont ensuite été testées en traction à la température ambiante.

L'observation au MEB des faces des éprouvettes ainsi rompues a révélé la présence d'ouvertures intergranulaires profondes de un à trois micromètres. L'analyse par spectrométrie de masse des ions secondaires (SIMS) montre une indentation des joints de grains sur 400 nm par de l'oxyde de chrome et une pénétration intergranulaire d'atomes d'oxygène sur 900 nm, ce qui correspond à la profondeur des fissures observées au MEB. Une telle « fragilisation par l'oxygène » est cependant peu compatible avec le coefficient de diffusion de l'oxygène dans ce domaine de température, même si l'on tient compte d'une accélération liée au chargement mécanique. Les résultats de Gendron et coll. méritent donc d'être confirmés. Scott et Le Calvar [1993] ainsi que les auteurs eux-mêmes proposent d'utiliser des molécules $H_2{}^{18}O$ pour déterminer l'origine de l'oxygène dans les joints de grains.

Conclusion : rôle des espèces fragilisantes

La participation directe d'atomes d'hydrogène ou d'oxygène au processus de fissuration de l'Alliage 600 par corrosion sous contrainte n'est pas prouvée à l'heure actuelle. Il est en

revanche très probable qu'ils jouent un rôle essentiel, mais indirect, par exemple dans la détermination des conditions électrochimiques et du mode d'oxydation de l'Alliage 600 dans le milieu primaire.

III.2.c. Conclusion : participation de l'environnement à la fissuration par corrosion sous contrainte

La fissuration de l'Alliage 600 par corrosion sous contrainte a lieu dans des conditions d'environnement telles que le matériau est nickel-formeur, en particulier en pointe de fissure intergranulaire. Les effets d'environnement sont importants, même s'ils n'induisent pas à eux seuls d'endommagement intergranulaire dans le milieu primaire.

IV. MODELES D'ENDOMMAGEMENT MECANIQUE ASSISTE PAR L'ENVIRONNEMENT

La plupart des résultats de propagation de fissure dans le milieu primaire ont été obtenus avec des sollicitations mécaniques monotones ; les outils d'étude sont donc très différents de ceux qui sont utilisés à plus haute température, en particulier le choix de différentes formes de cycle. Les modèles présentés ici font donc appel à un effet des sollicitations de traction, qui est assisté (ou révélé) par l'environnement.

IV.1. Clivage induit par rupture du film

Dans ce modèle, la propagation de la fissure est totalement discontinue. Dans une première étape, un film se développe en surface ; il se rompt sous l'effet des contraintes de croissance ou de la déformation du métal sous-jacent et une fissure acérée se propage très rapidement, pénètre dans le métal (par clivage), où elle perd de l'énergie par branchement, émission de dislocations ou rupture de ligaments entre les facettes de clivage ; elle finit alors par s'arrêter [Cassagne 1992a]. Un nouveau cycle oxydation-fissuration peut alors commencer. Ce modèle est principalement appliqué à la corrosion sous contrainte transgranulaire des alliages cubiques à faces centrées mais il est également étendu à la corrosion sous contrainte intergranulaire [Newman 1990], notamment à l'étape d'amorçage des fissures. L'environnement et la sollicitation mécanique agissent ici en alternance.

IV.2. Cumul d'endommagement lié au fluage dans le volume du matériau

Lors de la présentation des propriétés mécaniques de l'Alliage 600, nous avons remarqué que ce matériau est susceptible de fluer au-dessous de 400°C. La vitesse de déformation est cependant très faible, voire inférieure au seuil de détection des machines pour certains essais et le fluage secondaire n'est obtenu que pour les alliages ultra-purs contenant moins de 50 ppm de carbone.

Le fait que la sensibilité de l'Alliage 600 à la corrosion sous contrainte dépend de σ^4 a cependant incité certains auteurs à développer des modèles de cumul d'endommagement en fluage. La déformation de fluage est considérée comme endommageante dans le milieu primaire et un matériau qui flue « vite », testé en traction lente, se comportera de manière telle que les effets de viscoplasticité auront le temps de se manifester et d'endommager le matériau. Une part de la déformation totale est alors due au fluage. Ce modèle est surtout appliqué aux matériaux ultra-purs à bas taux de carbone [Sung 1992] mais il est possible de l'étendre au cas de l'Alliage 600, comme nous l'avons fait précédemment à plus haute température. Le fluage et la fissuration par corrosion sous contrainte sont en effet tous deux fortement dépendants de la contrainte et liés à une déformation « lente ».

IV.3. Rôle du glissement intergranulaire

Plusieurs études ont montré que l'Alliage 600 sollicité dans le milieu primaire développe du glissement intergranulaire par injection de dislocations extrinsèques dans les joints de grains [Thaveeprungsriporn 1996, Kergaravat 1996]. Ce mécanisme est connu pour fragiliser les joints, notamment en créant des incompatibilités de déformation aux lignes triples ; il est aussi un moyen pour le matériau de résoudre localement les incompatibilités de déformation entre grains adjacents. Kergaravat [1996] plaide en faveur d'un rôle important du glissement intergranulaire en montrant que l'effet des paramètres métallurgiques et des sollicitations mécaniques est le même vis-à-vis du glissement intergranulaire et de la corrosion sous contrainte. Angeliu et coll. [1995] ont cependant montré que l'alliage Ni-16Cr-9Fe ultra-pur est plus sensible à la fissuration et moins sensible au glissement intergranulaire dans le milieu primaire que dans l'argon à 360°C.

Le rôle du glissement intergranulaire, par ailleurs difficile à évaluer dans le volume du matériau, est donc contesté. Il est possible que ce mécanisme intervienne mais dans l'Alliage 600 industriel, riche en carbone, il ne joue sans doute pas un rôle prépondérant...à moins que le matériau ne se décarbure localement au contact du milieu primaire, une hypothèse qui ne semble pas avoir été envisagée à ce jour : dans ce cas l'alliage « traité thermiquement » serait plus sensible à la corrosion sous contrainte, le carbone en solution ayant partiellement précipité sous forme de carbures de chrome.

IV.4. Rôle du caractère plus ou moins homogène de la déformation

On a déjà noté que la déformation de l'Alliage 600 est d'autant plus localisée dans des bandes de glissement intense espacées que le matériau contient peu de carbures intergranulaires et beaucoup de carbures intragranulaires. Le caractère localisé de la déformation dans les grains va donc de pair avec une sensibilité élevée à la corrosion sous contrainte [Bruemmer 1986 et 1988]. Comme à plus haute température, la présence de bandes de glissement localisé peut donc favoriser la fissuration intergranulaire mais il faut un autre mécanisme pour rendre compte des effets d'environnement.

IV.5. Conclusions : effets des paramètres mécaniques

Les mécanismes que nous avons mentionnés supposent que c'est le mode de déformation local du matériau qui détermine la sensibilité à la corrosion sous contrainte. Celui-ci est susceptible d'être modifié par les effets d'environnement et en particulier par les réactions d'interface liées à la dissolution anodique du métal en fond de fissure.

V. COUPLAGE ENTRE LE COMPORTEMENT MECANIQUE LOCAL ET LES EFFETS D'ENVIRONNEMENT

Contrairement à la fissuration à haute température, la fissuration par corrosion sous contrainte a été abondamment modélisée en considérant une interaction entre le comportement local du matériau et les effets d'environnement. Les conditions expérimentales, notamment l'absence de mesure in situ des charges et des déformations, ne permettent cependant pas de valider aisément les hypothèses de ces modèles et invitent à trouver de nouvelles techniques d'essai. Des résultats encourageants ont cependant été obtenus en fluage.

V.1. Influence du milieu primaire sur le comportement en fluage

Les essais de fluage effectués dans le milieu primaire reposent sur un pari, à savoir que les effets d'environnement sont capables d'affecter suffisamment le comportement du matériau pour que l'effet soit détectable à l'échelle d'une éprouvette d'un ou de plusieurs millimètres d'épaisseur.

Une série d'essais a été effectuée avec des alliages Ni-xCr-9Fe ultra-purs contenant moins de 10 ppm de carbone [Angeliu 1995]. La vitesse de fluage secondaire à 360°C est multipliée par un facteur 4 à 9 entre l'argon et le milieu primaire, pour une contrainte nominale de l'ordre de 500 MPa. La fraction du faciès de rupture qui correspond à une fissuration intergranulaire augmente lorsque l'on passe de l'argon au milieu primaire : de 56% pour l'alliage à 5% de chrome et de 25% pour celui à 17% de chrome, proche de l'Alliage 600.

Le fluage de l'Alliage 600 « industriel » est caractérisé, quel que soit l'environnement (air ou milieu primaire) par l'absence du stade stationnaire [Boursier 1993a]. Le comportement des éprouvettes, tirées de tubes de générateur de vapeur, n'est pas corrélé à leur état de surface et les éprouvettes comportant des carbures intergranulaires fluent généralement plus vite que celles qui n'en comportent pas. Par ailleurs l'Alliage 690, réputé insensible à la corrosion sous contrainte dans le milieu primaire, flue également plus vite dans celui-ci que dans l'argon à 360°C [Boursier 1993b]. La résistance au fluage sous air n'est donc pas directement liée à la résistance à la corrosion sous contrainte.

L'étude des mécanismes de déformation [Angeliu 1995] a montré que l'accélération du fluage dans le milieu primaire est due à une activation des mouvements des dislocations dans les grains, qui affecte un volume suffisant pour être détectée à l'échelle d'une éprouvette. Il n'est pas impossible que cet effet soit dû à la pénétration de l'hydrogène en quantité importante dans le matériau. Le comportement macroscopique n'est cependant pas corrélé à la sensibilité

à la corrosion sous contrainte, qui est sans doute gouvernée par des paramètres plus locaux, en particulier pour l'amorçage.

Le comportement mécanique du matériau proche de la surface, qui pour sa part est sans doute corrélé à la résistance à la corrosion sous contrainte, est également perturbé par les réactions d'interface entre le métal et le milieu primaire et la pénétration d'éléments et/ou de défauts (lacunes) qui peut éventuellement en résulter.

V.2. Couplage entre les effets d'environnement et le comportement mécanique local

Les modèles reposant sur les interactions corrosion/déformation ont été développés à partir de l'hypothèse que le comportement et/ou l'endommagement du métal est affecté par le déroulement des réactions électrochimiques en surface. L'agent invoqué dans le couplage varie selon les modèles (Tableau D-6).

agent invoqué	action	mécanisme de rupture local	références
hydrogène	activation du fluage-dislocation	fluage	Angeliu 1995
réaction de dissolution	adoucissement local	quasi-clivage ou cisaillement	Magnin 1993 Flanagan 1993 Rios 1995
lacunes	activation du fluage accumulation locale	décohésion par condensation de lacunes ou cavitation locale	Saario 1995

Tableau D-6 : Interactions corrosion/déformation proposées dans le cas de l'Alliage 600

V.2.a. Fluage assisté par l'hydrogène

L'hypothèse d'une fragilisation par l'hydrogène dans le milieu primaire est généralement écartée mais Angeliu et coll. [1995] interprètent l'effet du milieu primaire en supposant que la fissuration a lieu par fluage et que le mouvement des dislocations est activé par la présence d'hydrogène venant du milieu. Ils s'appuient sur les résultats obtenus à la température ambiante avec le nickel et les alliages nickel-carbone, notamment avec des feuillards minces [Sirois 1992a]. L'hydrogène adoucit en effet le nickel en traction lente et augmente sa vitesse de relaxation. Cet effet est modélisé par Sirois et coll. [1992b], qui montrent par le calcul qu'en solution solide d'insertion dans les grains, l'hydrogène peut jouer un rôle de bouclier dans les interactions entre dislocations et neutraliser l'effet durcissant du carbone en solution. L'activation du mouvement des dislocations par la présence d'hydrogène a également été montrée par des essais in situ dans le microscope électronique en transmission [Robertson 1986 et 1996].

Les échantillons d'Alliage 600, en particulier lorsqu'ils sont fissurés, se chargent en hydrogène dans le milieu primaire mais ce chargement n'affecte pas leur résistance à la corrosion sous contrainte (voir III.2.b). De même, l'accélération du fluage dans le milieu

primaire est détectée sur des coulées de sensibilités très différentes à la corrosion sous contrainte. Il ne semble donc pas que le fluage « macroscopique », même assisté par l'hydrogène, soit à l'origine de la fissuration. Il est en revanche possible que ce mécanisme agisse de manière localisée. Deux possibilités sont alors offertes, entre lesquelles l'état actuel des connaissances ne permet pas de trancher :

- soit l'hydrogène agit sur le comportement de manière trop localisée pour en laisser la trace visible post mortem ;
- soit l'agent actif n'est pas seulement l'hydrogène.

V.2.b. Adoucissement et endommagement localisés assistés par l'environnement

Mise en place des grandes lignes du modèle

L'adoucissement local provoqué par les effets d'environnement a été couplé avec des mécanismes de rupture à l'échelle locale pour modéliser la fissuration des métaux en fatigue-corrosion, ainsi qu'en corrosion sous contrainte transgranulaire puis intergranulaire.

Jones [1985] est parti de l'effet Rehbinder (adoucissement en présence de réactions de surface), déjà mis en évidence par exemple sur le cuivre, le fer et plus récemment sur l'acier inoxydable austénitique 304L en conditions de polissage électrolytique [Olive 1993]. Il postule l'injection de lacunes dans le métal au cours des réactions à l'interface métal/milieu. Ces lacunes se combinent rapidement pour donner des dilacunes qui s'accumulent sur des plans peu denses. Le matériau finit par se rompre localement par microclivage. Le rôle du milieu dans ce modèle est double. Dans le cas des aciers inoxydables en milieu chloruré, il donne lieu à la réaction de dissolution anodique (rôle rempli par l'oxygène de l'eau) et il retarde la passivation (rôle rempli par l'ion Cl^-).

Le modèle de Jones a été repris par Meletis et coll. [1993], qui supposent que la diffusion des lacunes s'effectue en synergie avec le mouvement des dislocations en pointe de fissure. Ils utilisent les équations du fluage (diffusion des lacunes assistée par la contrainte) pour déterminer le profil de concentration en lacunes en avant de la pointe de la fissure, en fonction du champ de contraintes, en prenant en pointe de fissure une fonction logarithmique. La rupture se produit toujours par clivage local.

Magnin et coll. [1990] ont adapté le modèle précédent au cas de l'acier inoxydable 316 dans le chlorure de magnésium bouillant. Le couplage dynamique entre le glissement et la dissolution anodique, étudié par Flanagan et coll. [1993], active le mouvement des dislocations émises en pointe de fissure. La rupture a lieu soit par clivage, soit par cisaillement du matériau en tête des empilements de dislocations ainsi formés.

Application à la corrosion sous contrainte de l'Alliage 600 dans le milieu primaire

Le modèle de Magnin [1993] et Flanagan [1993] s'appuie sur des données fractographiques obtenues sur des éprouvettes de traction lente, fissurées par corrosion sous contrainte dans le

milieu primaire à 360°C avec une surpression d'hydrogène de quelques bars. Certaines zones du faciès de rupture présentent une suite de facettes qui rappellent du clivage. Cette fissuration « pseudo-intergranulaire » affecte des zones proches de joints de grains qui sont très inclinés par rapport à l'axe principal de traction.

L'équipe de Magnin reprend alors le modèle précédent. Le milieu intervient dans la première étape du mécanisme, par la dissolution anodique ou l'injection d'hydrogène dans le métal [Rios 1995] ; son rôle est d'introduire un adoucissement localisé de la matrice en avant de la pointe de la fissure. Cette zone « molle » incluse dans un matériau écroui se déforme plastiquement sous l'effet de la contrainte (Figure D-5a). De nombreuses dislocations naissent et s'empilent devant les obstacles présents ; elles créent à leur tour une augmentation de la contrainte locale qui conduit à des décohésions et à la propagation de la fissure. Les facettes ainsi créées sont des plans {111} ou {100} du matériau.

Ce modèle explique la présence de facettes sur les faciès de rupture sans préjuger du fait que ce mécanisme de microclivage soit ou non indispensable à la propagation des fissures de corrosion sous contrainte.

Flanagan et coll. [1993] et Rios et coll. [1995] couplent le modèle de Magnin aux modèles de clivage induit par rupture de film ou de fragilisation par l'hydrogène, qui sont alors considérés comme des mécanismes de réamorçage de la fissure.

Saario [1995] a repris le modèle de Magnin, toujours dans le cas de l'Alliage 600, en supposant que l'étape limitante du mécanisme est l'injection de lacunes au cours de la dissolution sélective du fer ; il n'émet pas d'hypothèse sur le caractère mobile de l'interface entre le film et le métal. Il remarque également que les valeurs élevées de l'énergie d'activation de la fissuration correspondent à celle de l'autodiffusion dans le matériau. La dissolution sélective est supposée affecter préférentiellement les joints de grains et la rupture a lieu cette fois par accumulation de lacunes près de la zone où la contrainte d'ouverture est maximale. La faiblesse du modèle réside dans le fait qu'aucun résultat expérimental ne montre d'appauvrissement chimique en fer du matériau à proximité de la pointe des fissures.

L'avantage du modèle de Saario est de permettre une estimation quantitative de la vitesse de propagation de fissure à partir des équations qui gouvernent d'une part la dissolution et d'autre part la migration des lacunes par fluage-dislocation, comme dans l'approche de Meletis (Figure D-5b). Comme tous les mécanismes de corrosion sous contrainte proposés à ce jour, il est éminemment discontinu mais il est possible d'imaginer qu'une réaction d'interface particulière permettrait d'injecter « continûment » des lacunes, tout en créant continûment des surfaces fraîches par déformation du substrat et/ou avancée de la fissure. On se rapproche ici des modèles les plus récents développés pour la fissuration sous air à haute température.

V.3. Mise en évidence expérimentale du couplage environnement-déformation en fatigue-corrosion

Si les couples matériau/environnement étudiés en fatigue-corrosion sont souvent les mêmes qu'en corrosion sous contrainte, les méthodes d'investigation sont en revanche très proches de

celles qui ont été employées pour la fissuration sous air à haute température. La frontière entre fatigue-corrosion et corrosion sous contrainte est d'ailleurs parfois ténue, bien que les conditions électrochimiuques permettant l'endommagement en fatigue-corrosion soient souvent moins exigeantes qu'en corrosion sous contrainte. Les résultats acquis en fatigue-corrosion sont donc intéressants à considérer dans le cadre de notre étude. A titre d'exemple, nous reprenons avec Jones [1985] les principaux résultats de l'équipe de Parkins sur quelques couples matériau/milieu.

V.3.a. Interaction entre la vitesse de déformation et les effets d'environnement

Les tubes de transport de gaz, en acier roulé soudé, sont soumis en service à des contraintes élevées du fait de la pression du gaz, à un échauffement modéré (jusqu'à 75°C) et à l'action des ions carbonate et bicarbonate en solution plus ou moins concentrée ; ceux-ci viennent de la dissolution, dans les eaux souterraines, du dioxyde de carbone produit par la décomposition des produits organiques présents dans le sol [Parkins 1990]. La fissuration de ces tubes par corrosion sous contrainte a été étudiée en termes d'amorçage (contrainte seuil, K_{ICSC}), de propagation et de coalescence, pour établir des prévisions de durée de vie.

Parkins et Greenwell [1977] et Parkins [1990] ont établi les domaines dans lesquels la fissuration est en régime dépendant respectivement du temps (rupture intergranulaire) ou du cycle (rupture transgranulaire), en fonction de K_{max}, de ΔK et de la fréquence des cycles (Figure D-6a). Ils ont notamment montré que lorsque le matériau est sensible à la corrosion sous contrainte (potentiel à -650 mV par rapport à l'électrode au calomel saturé), la composante cyclique favorise l'apparition de la fissuration pour des valeurs de K_{max} inférieures au seuil K_{ICSC} déterminé à charge constante. Elle élimine également la dispersion des valeurs du temps à l'amorçage, couramment observée en corrosion sous contrainte [Evans 1976].

Parkins [1979] a également montré, cette fois-ci à charge constante, que si on laisse la vitesse de fluage diminuer dans des conditions d'environnement « non agressives » (-950 mV) avant d'appliquer le potentiel favorable à la corrosion sous contrainte (-650 mV), celle-ci est retardée, voire inhibée si la vitesse de déformation est passée au-dessous d'un certain seuil. Ainsi, même à charge constante, c'est-à-dire en corrosion sous contrainte, le paramètre mécanique fondamental est la vitesse de déformation du matériau.

De même, l'effet de la composante cyclique sur la sensibilité à la fissuration a été attribué au fait que le cycle « réamorce » le fluage (Figure D-6b) en bouleversant les structures de déformation [Evans 1976, Parkins 1990]. La vitesse de déformation repasse alors dans la gamme de valeurs où elle contribue à la fissuration dans le milieu. L'effet est d'autant plus marqué que la contrainte imposée avant les cycles est élevée. Cela est dû au fait que ces aciers présentent un adoucissement cyclique prononcé [Parkins 1993] et une déformation (visco)plastique importante lors des cycles déchargement-rechargement.

Des effets similaires ont été montrés avec d'autres couples matériau/environnement, par exemple le laiton α dans une solution aqueuse de $NaNO_2$ [Wu 1991]. Celui-ci est également sensible à l'application d'une sollicitation cyclique ; les lignes de glissement, attaquées par le milieu, apparaissent plus rapidement et sont plus espacées les unes des autres pour les cycles à

basse fréquence, qui correspondent à une vitesse de propagation da/dN plus élevée. Les fissures s'arrêtent si l'on supprime la sollicitation cyclique.

V.3.b. Liens entre la fatigue-corrosion et la corrosion sous contrainte

Parkins a montré qu'il existe de grandes similitudes, y compris pour les mécanismes de fissuration, entre la fatigue-corrosion, en particulier en régime dépendant du temps et la corrosion sous contrainte [Parkins 1979 et 1990]. Il mise pour cela sur le rôle capital de la vitesse de déformation lente (fluage), qui doit être maintenue en pointe de fissure :

- soit par l'avancée de la fissure elle-même et les redistributions de contrainte qui en résultent, en particulier à charge constante (corrosion sous contrainte) ;

- soit par l'introduction d'une sollicitation cyclique, en particulier lorsque $K_{max} < K_{ICSC}$ et lorsque ΔK est suffisante pour que la déformation plastique cyclique déstabilise les structures de déformation mises en place par l'écrouissage au cours du fluage.

Parkins s'est davantage intéressé à la prévision de la durée de vie résiduelle des tubes qu'à l'identification du mécanisme de fissuration et en particulier des effets d'environnement [Parkins 1993]. Jones [1985] a repris la même démarche pour d'autres couples matériau/milieu ; il est allé plus loin en proposant un mécanisme commun à la fissuration par fatigue-corrosion et par corrosion sous contrainte, mécanisme dont il a été question plus haut (V.2.b).

V.4. Conclusions

Le rôle important de la vitesse de déformation locale, couplée éventuellement aux effets d'environnement, est un point commun à la fissuration par corrosion sous contrainte, par fatigue-corrosion et par « fatigue-oxydation » à haute température. Les modèles les plus récents développés dans ces trois domaines sont très proches les uns des autres (par exemple injection de lacunes au cours d'une réaction d'interface [Jones 1985]). Par ailleurs les essais font appel, dans le cas de la fatigue, aux effets de K_{max}, de ΔK et de la fréquence de sollicitation pour définir les régimes dépendant respectivement du temps et du cycle. Le créneau de pression partielle d'oxygène, utilisé comme « sonde » pour évaluer les parties sensibles des cycles à haute température, peut être remplacé en fatigue-corrosion par le créneau de potentiel, relativement souple à mettre en œuvre. L'hydrogène, qui est spécifique aux essais en milieu aqueux, est injecté dans l'Alliage 600 en quantité importante mais il n'est pas nécessairement fragilisant et les réactions d'oxydation pourraient être les principales responsables de la fissuration et de l'accélération du fluage dans l'eau comme dans l'air.

L'effet de la composante de fluage semble le même en fatigue-corrosion et en corrosion sous contrainte, tout comme il y a continuité à plus haute température entre la fissuration en fatigue-fluage et en fluage. Foster et coll. [1995] ont appliqué au couple Alliage 600/milieu primaire les techniques utilisées en fatigue-corrosion. Ils ont montré qu'une séquence périodique de déchargement-rechargement, réalisée comme en fatigue-corrosion à l'aide de bras élévateurs et de poids, permet de faire propager une fissure intergranulaire dans l'Alliage

600 à « basse » température (327°C) et que les faciès de rupture présentent les mêmes caractéristiques qu'en corrosion sous contrainte. Ces résultats sont reproduits au cours de la présente étude.

Une autre campagne d'essais a été publiée très récemment sur l'Alliage 600 [Vaillant1997]. La sollicitation cyclique permet d'obtenir des fissures à basse température (290°C), qui ne sont pas toujours obtenues à charge constante. De plus elle multiplie généralement par 3 la vitesse de propagation da/dt mais elle réduit la propension à la rupture intergranulaire.

L'identification du ou des mécanismes qui régissent la fissuration de l'Alliage 600 par corrosion sous contrainte est délicate. Elle fait intervenir des couplages entre le comportement, les effets d'environnement et la fissuration. Ceci nécessite en particulier beaucoup de temps, alors que depuis une vingtaine d'années il faut gérer le phénomène sur site. Des méthodes ont donc été mises au point pour prévoir la durée de vie pour les pièces actuellement en service, en attendant de confirmer le fait que les matériaux de remplacement, notamment l'Alliage 690 en France, sont insensibles à ce type de fissuration.

VI. PREVISION DE LA DUREE DE VIE DES PIECES EN SERVICE

La prévision de la durée de vie et de la tolérance au dommage des pièces en Alliage 600 encore en service est un des objectifs principaux de la modélisation, étant donnés les enjeux économiques considérables liés au contrôle et au remplacement des pièces défectueuses. La confrontation aux données expérimentales de propagation de fissure, en particulier en mécanique de la rupture, est un critère de validation essentiel pour les modèles précédents. Nous en avons indiqué au fur et à mesure l'utilisation, en particulier pour les modèles couplant la dissolution anodique et l'adoucissement local du matériau. Cette approche permet de déduire les vitesses de propagation de fissure à partir de la modélisation des mécanismes physiques.

La démarche complémentaire, qui consiste à rassembler les données expérimentales existantes et à identifier une loi phénoménologique permet d'établir une ou plusieurs équations maîtresses utilisables par l'ingénieur. Nous en donnons ici quelques exemples.

VI.1. Modèle de cumul d'endommagement

Garud et McIlree [1995] ont utilisé une loi de cumul d'endommagement gouvernée par la vitesse de déformation locale. Ils en ont déduit le temps à rupture des tubes de générateur de vapeur pour différentes microstructures, en intégrant les grandes lignes des données expérimentales dans le comportement du matériau. La distribution de contrainte le long d'une zone de transition de dudgeonnage est supposée connue (loi β) et invariable dans le temps.

VI.2. Modèles phénoménologiques de propagation de fissure

Rebak et Smialowska [1995c] donnent deux équations pour calculer la vitesse de propagation de fissure suivant que le facteur d'intensité de contrainte K est inférieur à 20 MPa$\sqrt{m}$ ou supérieur à 40 MPa$\sqrt{m}$; ils appliquent la règle du levier entre ces deux valeurs. Le temps d'amorçage constaté en service sur les tubes de générateur de vapeur, qui est de l'ordre de 15 ans, leur semble compatible avec la création de défauts par un mécanisme de diffusion, par exemple l'indentation des joints de grains par de l'oxyde de chrome.

Une équation donnant la vitesse de propagation de fissure, évaluée en laboratoire, a été publiée récemment [Vaillant 1997]. Elle fait intervenir la pression partielle d'hydrogène, la température, le facteur d'intensité des contraintes K, la limite d'élasticité du matériau et le taux de couverture des joints de grains par les carbures de chrome.

VI.3. Modèle « stochastique »

Scott [1996a] a appliqué des méthodes statistiques pour prévoir la distribution des temps à l'amorçage et à la rupture de pièces telles que les tubes de générateur de vapeur ou les manchettes d'adaptateur. La vitesse de propagation des fissures est proportionnelle à $(K_I - 9)^{1,16}$, c'est-à-dire avec un seuil à 9 MPa$\sqrt{m}$. Les effets respectifs de l'écrouissage et de la microstructure sont introduits à l'aide de termes de correction multiplicatifs. Un traitement spécial est réservé dans ce modèle aux petites fissures.

Scott utilise une statistique de Weibull, qui repose sur le principe du maillon le plus faible dans une distribution d'événements (amorçage ou rupture) indépendants les uns des autres. Les paramètres de la loi de Weibull relatifs aux tubes de générateur de vapeur ont été identifiés avec le retour d'expérience en service et comparés à une simulation de Monte-Carlo. Dans le cas des manchettes, seules les simulations sont disponibles à l'heure actuelle. A titre indicatif le temps à rupture caractéristique des tubes de générateur de vapeur est de 30.000 à 40.000 heures avec une incertitude de 15.000 heures.

La modélisation de la fissuration par corrosion sous contrainte permet donc d'établir des prévisions de durée de vie. L'incertitude reste importante mais les données expérimentales, obtenues aussi bien au laboratoire que par le retour d'expérience, sont elles aussi très dispersées.

VII. CONCLUSIONS. DEMARCHE SUIVIE AU COURS DE L'ETUDE

Les nombreux travaux effectués depuis plusieurs décennies sur la corrosion sous contrainte intergranulaire de l'Alliage 600 dans le milieu primaire ont permis de dégager l'influence des paramètres mécaniques et métallurgiques et des effets d'environnement. La modélisation est rendue difficile par la dispersion des données expérimentales et par la multiplicité et la complexité des mécanismes possibles. Elle tente d'intégrer l'influence des différents éléments et d'identifier les couplages mis en jeu. On s'oriente ainsi actuellement vers une modification du comportement mécanique local par les effets d'environnement. Les modèles les plus récents sont proches de ceux qui sont actuellement développés à propos de la fissuration à

plus haute température des alliages base nickel, y compris, dans le cadre de cette étude, de l'Alliage 600.

Plutôt que d'ajouter un nouveau mécanisme, nous proposons une démarche d'unification entre ces deux domaines d'investigation, telle qu'elle a déjà été suggérée par Jones [1985] et par Scott et Le Calvar [1996b]. Nous examinerons successivement l'opportunité d'une telle démarche et les modalités de sa mise en œuvre au cours de notre étude.

VII.1. Opportunité d'une comparaison entre la fissuration sous air à haute température et la corrosion sous contrainte

Le passage de la fissuration à haute température à la corrosion sous contrainte ne suppose pas a priori que les mécanismes qui gouvernent les deux phénomènes sont identiques. Il s'agit dans un premier temps d'identifier, sur le plan expérimental, les dissemblances et les similitudes entre les deux domaines d'investigation pour définir ensuite les conditions de passage de l'un à l'autre.

VII.1.a. Effets a priori du changement de température et de milieu

Les deux domaines de la fissuration sous air à haute température et de la corrosion sous contrainte dans le milieu primaire se heurte a priori à des différences importantes en termes de comportement du matériau et de conditions électrochimiques :

- le comportement mécanique du matériau est affecté par la température ; on a vu dans la première partie de cette étude que les propriétés en viscoplasticité de l'Alliage 600 varient notablement entre 400 et 550°C ;

- il pourrait y avoir un effet de la pression totale qui fasse que la fissuration obtenue sous haute pression dans le milieu primaire et la vapeur surchauffée ne puisse pas se produire pour les valeurs de pression utilisées sous air, généralement inférieures à une atmosphère ;

- le transport de charge par couplage galvanique, qui peut jouer un rôle important en milieu aqueux, n'a pas lieu en milieu gazeux, ce qui modifie les conditions électrochimiques, notamment en pointe de fissure ;

- le potentiel électrochimique est a priori inconnu à haute température (essais sous air) et on est peut-être loin des conditions d'équilibre thermodynamique entre Ni et NiO, dans lesquelles on se place en corrosion sous contrainte.

VII.1.b. Eléments de comparaison entre les deux domaines d'investigation

Les résultats obtenus sur les plans de l'expérience et de la modélisation dans les deux domaines montrent qu'il est sans doute fructueux d'associer les deux approches.

Si l'on considère les sollicitations mécaniques, on doit admettre que le comportement de l'Alliage 600 entre 300 et 400°C est différent de celui que l'on rencontre à 550°C. On observe cependant dans les deux cas que la déformation de fluage est endommageante pour les joints de grains et qu'elle est accélérée d'un ordre de grandeur dans le milieu. Les derniers modèles de corrosion sous contrainte insistent sur le couplage entre le comportement mécanique et les effets d'environnement, qui a été mis en évidence à plus haute température sur l'Alliage 600 dans la seconde partie de notre étude. Par ailleurs des résultats encourageants ont été obtenus en fatigue-corrosion par Foster et coll. [1995] et Vaillant et coll. [1997] sur l'Alliage 600 dans le milieu primaire, avec des sollicitations mécaniques non monotones, qui permettent de « recharger » périodiquement la pointe de la fissure et d'obtenir une fissuration intergranulaire rapide.

Browning et coll. [1997] ont suivi une approche complémentaire en testant des éprouvettes CT d'Alliage 718 à 593°C dans un mélange H_2/H_2O, dosé de manière à contrôler le potentiel d'oxydoréduction appliqué ou, ce qui est équivalent, la pression partielle d'oxygène à l'équilibre thermodynamique. Ils retrouvent dans ce milieu gazeux « humide » des résultats très proches des données obtenues sous vide d'air : deux plateaux de vitesse de propagation (avec les mêmes valeurs que sous air et sous vide), une transition brutale qui correspond à un changement de mode d'oxydation, c'est-à-dire au passage d'un comportement chrome-formeur à un comportement nickel-formeur. Seule la pression partielle d'oxygène de transition change entre les deux milieux. Ces résultats montrent en particulier que l'effet d'environnement sur la propagation de fissure à 593°C dans l'Alliage 718 est entièrement lié au processus d'oxydation, quel que soit le milieu dans lequel se forme l'oxyde et en particulier indépendamment de la présence d'hydrogène.

Le milieu n'agit donc que dans la détermination de la pression partielle d'oxygène « macroscopique » qui correspond, à l'échelle locale, à la formation possible d'un film de NiO. En particulier, l'effet fragilisant de l'hydrogène ne joue pas de rôle majeur dans ce domaine de température. Il est donc légitime de tenter de passer d'un environnement gazeux, dans lequel l'espèce oxydante est principalement l'oxygène, à un environnement liquide en solution aqueuse.

Sur le plan de la modélisation enfin, on a vu que les modèles les plus récents sont quasiment directement transposables d'un domaine à l'autre, puisque la seule différence qui peut éventuellement subsister réside dans les réactions d'interface, qui conduisent pourtant à la formation des mêmes oxydes. On peut donc espérer, avec Scott et Le Calvar [1996b], pouvoir transposer la démarche, en particulier expérimentale, déjà suivie avec succès à haute température au cas de la corrosion sous contrainte dans le milieu primaire. L'apport de la connaissance du comportement mécanique dans la détermination de l'effet des sollicitations mécaniques locales, qui est un point important de notre étude, sera également utilisé dans le domaine de température qui correspond à la corrosion sous contrainte.

VII.2. Passage de la fissuration sous air à haute température à la corrosion sous contrainte

Les conditions expérimentales de fissuration de l'Alliage 600 ont été progressivement modifiées pour aboutir aux conditions de corrosion sous contrainte dans le milieu primaire.

Les deux premières étapes font l'objet du chapitre suivant (D-2). Un chapitre est consacré à chacune des étapes ultérieures.

La première étape consiste à abaisser la température. A partir des essais effectués à 550°C, on choisit le cycle le plus « sensible » aux effets d'environnement, en l'occurrence un cycle de fatigue continue à 0,05 Hz, avec un rapport de charge de 0,3. On utilise alors ce cycle pour étudier l'influence de la pression partielle d'oxygène à une température qui correspond aux essais de corrosion sous contrainte. On choisit de travailler à 400°C pour obtenir une cinétique la plus élevée possible pour les effets d'environnement, tout en sachant que la corrosion sous contrainte de l'Alliage 600 dans la vapeur surchauffée à 400°C (sous 200 bar) obéit apparemment aux mêmes mécanismes que dans le milieu primaire.

La seconde étape est le changement d'environnement. On effectue les mêmes essais en remplaçant l'air par de la vapeur d'eau déminéralisée et désaérée, dans laquelle on peut injecter un mélange d'argon et de dihydrogène ; la pression totale est maintenue à une valeur inférieure à un bar. Les résultats sont comparés aux vitesses de propagation obtenues sous air mais aussi aux faciès de rupture observés sous air et en corrosion sous contrainte. On teste ainsi l'effet de la pression totale sur la fissuration de l'Alliage 600 dans la vapeur d'eau à 400°C.

La troisième étape consiste à effectuer le même type d'essai dans le milieu primaire, à une température plus basse encore (320°C). On cherche dans le même temps à confirmer les résultats obtenus par Foster et coll. [1995] en fatigue-corrosion. L'interprétation des résultats expérimentaux à la lumière du calcul de structure, met en évidence l'effet du comportement mécanique local.

La dernière série d'expériences s'intéresse aux effets de fragilisation statique, c'est-à-dire sans contrainte appliquée. Cet effet n'est pas observé à plus haute température sur l'Alliage 718 pourtant très sensible aux effets d'environnement [Andrieu 1987a] mais a été mis en évidence dans la vapeur surchauffée à 400°C par Gendron et coll. [1996]. Dans le cadre de notre étude, cet effet n'a été mis en évidence dans le milieu primaire à 360°C qu'en présence de polluants tels que l'aluminium et le silicium. Il est révélateur du rôle crucial joué par le film, dont la formation peut être retardée par des impuretés, en particulier dans le milieu secondaire.

CHAPITRE D-2 : PROPAGATION DE FISSURE ENTRE 320 ET 400°C ESSAIS DE PROPAGATION DE FISSURE

Ce chapitre est consacré à l'application des résultats obtenus en propagation de fissure sous air à 550°C à la fissuration par corrosion sous contrainte dans le milieu primaire. Ce passage a été organisé en trois étapes : l'abaissement de la température à 400°C, l'introduction de la vapeur d'eau désaérée et le passage dans le milieu primaire, liquide et à haute pression.

Les deux premières étapes sont traitées simultanément puisque les essais ont été réalisés sur les mêmes éprouvettes, testées d'abord sous air, puis dans la vapeur d'eau. A titre prospectif, quelques essais ont également été réalisés dans un mélange d'argon et d'hydrogène. Les conditions d'essai, proches de celles qui ont été utilisées à 550°C, sont rappelées dans la première partie.

La troisième étape a fait appel à une technologie particulière aux essais en autoclave et sera traitée à part.

Les résultats, vitesse de propagation de fissure et modes de rupture, ont été interprétés à la lumière de l'analyse des sollicitations mécaniques par le calcul de structure. Ils montrent que la vapeur d'eau « à basse pression » à 400°C favorise une fissuration proche de celle qui est rencontrée dans le milieu primaire et que l'environnement modifie très probablement le comportement mécanique local du matériau.

I. CONDITIONS D'ESSAI EN MILIEU GAZEUX A 400°C

I.1. Géométrie et prélèvement des éprouvettes

Les essais ont été effectués sur trois éprouvettes CT 12,5-10 dont les caractéristiques géométriques sont représentées sur la Figure D-7a. La fissure se propage dans un plan perpendiculaire à l'axe de la manchette d'adaptateur, le front de fissure étant parallèle à la direction radiale (Figure D-7b). Toutes les éprouvettes CT12,5-10 utilisées au cours de cette étude, en milieu gazeux comme dans le milieu primaire, ont été prélevées dans la manchette d'adaptateur B.

Les trois éprouvettes utilisées en milieu gazeux, repérées respectivement ST2-1, ST2-2 et ST2-3, ont été préfissurées en fatigue à la température ambiante, avec un rapport de charge K_{min}/K_{max} de 0,1 et une valeur finale de K_{max} de 13 à 16 MPa$\sqrt{m}$. L'éprouvette ST2-2 a subi en outre une première propagation en fatigue lente sous air (cycles 20-20, voir Figure D-8), de manière à partir d'une fissure intergranulaire. La longueur initiale de la fissure était de 10 mm, soit un rapport a/W de 0,4.

I.2. Sollicitations mécaniques imposées

Les éprouvettes ont été montées une par une sur une machine à vérin électromécanique, asservie au signal délivré par la cellule de charge (Figure D-9). Celle-ci est montée hors de l'enceinte, en série avec les lignes d'amarrage. Sa capacité est de 10 kN. Comme pour les essais à 550°C, la charge appliquée a tenu compte de l'effet de la pression totale sur les lignes d'amarrage.

Afin de ne pas multiplier les conditions d'essai, une seule forme de cycle a été choisie : le cycle 20-20, représenté sur la Figure D-8. Il a permis de mettre en évidence la sensibilité de l'Alliage 600 à la pression partielle d'oxygène à 550°C. Le rapport de charge a été fixé à 0,3 pour éviter les effets de fermeture et la charge maximale a été ajustée tout au long de l'essai, de manière à maintenir le facteur d'intensité des contraintes maximal à 28 MPa$\sqrt{m}$ et le rapport de charge à 0,3.

I.3. Conditions d'environnement

Les essais ont été effectués à 400°C, le chauffage étant assuré par un four à radiations, placé hors de l'enceinte et asservi au signal délivré par un thermocouple chromel-alumel soudé par point sur l'éprouvette. Les lignes d'amarrage et l'éprouvette ont été placées dans une enceinte à ultravide en acier inoxydable, qui a également servi de moufle thermique. Le vide a été assuré par une pompe primaire couplée à une pompe turbomoléculaire. Le montage permet d'explorer une gamme de pression qui comprend le vide secondaire et un vide primaire plus ou moins poussé, selon l'ouverture d'une microfuite. On peut y introduire un gaz, ici un mélange d'argon à 5% d'hydrogène très pur, contenant moins de 1 ppm d'oxygène. On peut également introduire de la vapeur d'eau déminéralisée et désaérée par un pompage à chaud. Un spectromètre de masse a permis de contrôler la composition chimique de l'atmosphère tandis que les valeurs de la pression partielle du mélange argon-hydrogène et de la vapeur d'eau ont été ajustées à l'aide d'un manomètre placé près de l'éprouvette. L'isolation électrique entre l'éprouvette et les lignes d'amarrage en Alliage 718 a été réalisée par des goupilles en alliage MA956, oxydées 8 heures à 1200°C.

Chaque éprouvette a d'abord été testée sous différentes pressions totales d'air, puis dans l'argon hydrogéné ou dans la vapeur d'eau désaérée, contenant ou non de l'hydrogène. Chaque condition a fait l'objet d'une propagation de la fissure sur plusieurs centaines de micromètres. Quelques allers et retours, portant sur des distances de propagation plus faibles, ont permis de vérifier la reproductibilité des valeurs obtenues pour la vitesse de propagation.

I.4. Grandeurs mesurées

Comme à 550°C l'avancée de la fissure a été mesurée par la méthode du potentiel. Le signal a été étalonné à la température ambiante avec une éprouvette d'Alliage 600 de même géométrie. La charge a donc pu être corrigée au fur et à mesure de l'avancée de la fissure, de manière à maintenir K_{max} constant.

A la fin des essais, les éprouvettes ont été refroidies sous vide, retirées de l'enceinte et ouvertes en fatigue sur une machine servohydraulique. L'observation au MEB des faciès de

rupture a permis de vérifier les longueurs de fissure estimées en cours d'essai. Les différents modes de rupture ont ensuite été corrélés aux conditions d'environnement et à la fissuration secondaire observée sur coupes polies.

II. RESULTATS EXPERIMENTAUX OBTENUS A 400°C

Les essais de propagation de fissure à 400°C ont montré l'intérêt de cette approche, à la fois en termes de vitesse de propagation et de mode de rupture.

II.1. Vitesse de propagation de fissure

II.1.a. Transition de vitesse sous vide d'air

Les résultats obtenus sur les trois éprouvettes sont regroupés sur la Figure D-10 et le Tableau D-7. On remarque une transition brutale de la vitesse pour une valeur P_T de la pression partielle d'oxygène Po_2 égale à 10^{-2} mbar. Au-dessous de P_T la propagation est « lente » et seul l'emploi d'un suivi de fissure plus sensible et exempt de parasites a permis de la mesurer sur l'éprouvette ST2-2 ; on en a seulement une estimation sur les éprouvettes ST2-1 et ST2-3. Au-dessus de P_T la vitesse de propagation de la fissure est multipliée par 10 et semble dépendre de Po_2, bien que les valeurs soient plus dispersées. Il y a donc, entre la vitesse de propagation et la pression partielle d'oxygène, un couplage intense lorsque $Po_2 \geq P_T$.

Po_2 (mbar)	Δa (µm)	da/dN (µm/cycle)	éprouvettes
$2,0\ 10^{-8}$	246	0,0172	ST2-2
$2,0\ 10^{-8}$	(62)	0,0197	ST2-2
$2,0\ 10^{-3}$	---	$\leq 0,02$	ST2-1 et ST2-3
$1,0\ 10^{-2}$	305	0,0409	ST2-2
$1,0\ 10^{-2}$	(136)	0,0762	ST2-2
$1,5\ 10^{-2}$	626	0,0855	ST2-2
$2,0\ 10^{-2}$	(158)	0,1005	ST2-1
$2,0\ 10^{-2}$	690	0,1581	ST2-1
$2,0\ 10^{-2}$	(113)	0,2010	ST2-3
$4,0\ 10^{-2}$	328	0,5601	ST2-1
$2,0\ 10^{-1}$	(101)	0,1086	ST2-3
$2,0\ 10^{-1}$	(91)	0,1600	ST2-3

entre parenthèses : vérification des résultats sur des blocs de faible Δa

Tableau D-7 : Transition de vitesse de propagation sous vide d'air

L'Alliage 600 est donc sensible à la pression partielle d'oxygène pour une valeur de la température aussi basse que 400°C. L'effet est même plus marqué qu'à 550°C, alors que le matériau résiste très bien au fluage sur éprouvette « massive », comme on l'a montré dans la première partie de cette étude. On peut donc considérer que la première étape de notre passage de l'air à haute température vers le milieu primaire a été franchie.

II.1.b. Propagation de fissure dans l'hydrogène

A titre prospectif, un essai de propagation de fissure a été mené sur l'éprouvette ST2-1 dans le mélange Ar-5%H_2, pour une pression totale de un bar, soit une pression partielle d'hydrogène de 50 mbar et une pression partielle d'oxygène inférieure à 10^{-3} mbar. La fissure s'est propagée sur 280 µm à une vitesse de 0,268 µm/cycle, qui correspond aux valeurs obtenues sous air au-dessus de 10^{-2} mbar. L'Alliage 600 est donc sensible à la propagation de fissure sous hydrogène.

II.1.c. Propagation de fissure dans la vapeur d'eau désaérée

Nous abordons ici la seconde étape du passage vers le milieu primaire. L'objectif des essais a été de mesurer, comme sous air, l'évolution de la vitesse de propagation de la fissure en fonction d'un potentiel d'oxydoréduction « macroscopique », imposé cette fois par un mélange d'hydrogène et de vapeur d'eau désaérée. Ces essais ont été réalisés sur les dernières séquences pour les éprouvettes ST2-3 et ST2-2. L'éprouvette ST2-1, déjà testée dans le mélange argon-hydrogène, a été écartée pour prévenir tout effet « parasite » de la pénétration d'hydrogène dans le matériau avant l'introduction de la vapeur d'eau.

L'introduction de 400 à 500 mbar de vapeur d'eau dans l'enceinte, préalablement placée sous vide secondaire, a conduit à une vitesse de propagation supérieure à 0,2 µm/cycle sur les deux éprouvettes (Tableau D-8). Un ajout supplémentaire de 50 mbar d'argon hydrogéné a été réalisé avec l'éprouvette ST2-3, pour aboutir à un rapport P_{H_2}/P_{H_2O} de 1/200, correspondant à l'équilibre thermodynamique entre Ni et NiO à 400°C. La vitesse de propagation de la fissure est restée du même ordre de grandeur qu'en l'absence d'hydrogène.

éprouvette	vapeur d'eau pure		vapeur d'eau + argon hydrogéné		
	P_{H_2O} (mbar)	da/dN (µm/cycle) Δa (µm)	P_{H_2O} (mbar)	P_{H_2} initiale (mbar)	da/dN (µm/cycle)
ST2-2	500	0,2208 (815 µm)	500	2,5	0,2098 (598 µm)
ST2-3	400	0,2680 (122 µm)	---	---	---

Tableau D-8 : Propagation de fissure dans la vapeur d'eau désaérée à 400°C

L'Alliage 600 est donc sensible à la propagation de fissure dans la vapeur d'eau. La vitesse de propagation est du même ordre de grandeur que celle mesurée sous air. La seconde étape du passage vers le milieu primaire est donc franchie, sous réserve que l'observation fractographique révèle un mode de rupture intergranulaire dans les deux cas. Ce point a été vérifié et fait l'objet du paragraphe suivant.

II.2. Modes de rupture de l'Alliage 600 à 400°C en fonction de l'environnement

Comme à 550°C, le cycle 20-20 a permis de faire correspondre les différentes conditions de propagation à des modes de rupture différents de l'Alliage 600, qui sont indépendants de l'éprouvette observée.

II.2.a. Mode de rupture sous vide secondaire

La fissure se propage sous vide de manière transgranulaire, indépendamment des grains rencontrés (Figure D-11a). La fissuration secondaire est rare, peu profonde, également transgranulaire (Figure D-11b). Le mécanisme de rupture qui conduit à la formation de ces « rivières » n'est pas du pseudo-clivage, étant donné le sens de propagation de la fissure. Il n'a pas été identifié mais le faciès est très différent de celui qui est obtenu en fatigue à haute fréquence, lors de l'ouverture des éprouvettes à la température ambiante (Figure D-11c).

II.2.b. Mode de rupture sous air

Le saut de vitesse de propagation lorsque Po_2 dépasse P_T s'accompagne d'un changement de mode de rupture qui devient en grande partie intergranulaire. Des fissures secondaires, souvent intergranulaires, sont également présentes sous la surface (Figure D-12).

II.2.c. Mode de rupture sous hydrogène

La Figure D-13 montre que sous hydrogène la rupture est en majorité transgranulaire avec de temps à autre quelques amorces intergranulaires. La surface du matériau est recouverte d'une couche épaisse, de granulométrie très fine, multifissurée. Il s'agit probablement d'oxydes qui ont été formés à la fin de l'essai, lors d'une surchauffe accidentelle de l'éprouvette. Quoi qu'il en soit, le mode de rupture est très différent de celui qui a été obtenu sous air ou dans la vapeur d'eau, la fissuration n'est donc pas due à l'apport d'oxygène ou d'eau, même à l'état de traces, dans le mélange argon-hydrogène.

Sans être notoirement sensible à la fragilisation par l'hydrogène à 400°C [Shen 1990], du moins sur des éprouvettes selle de cheval, l'Alliage 600 présente donc un mode de rupture spécifique et une propagation « rapide » en fatigue « lente » sous 50 mbar d'hydrogène.

II.2.d. Mode de rupture dans la vapeur d'eau

Le faciès de rupture de la Figure D-14 est proche de ceux que l'on rencontre en corrosion sous contrainte dans le milieu primaire : la fissure principale est intergranulaire avec des traces de rupture transgranulaire ; des fissures secondaires, intergranulaires et très fermées, se sont également développées. La propagation de fissure dans la vapeur d'eau désaérée est donc plus proche, en termes de faciès de rupture, de la corrosion sous contrainte que de la fissuration dans l'air à 400°C.

II.3. Discussion : propagation de fissure dans l'Alliage 600 à 400°C

Le Tableau D-9 résume les résultats obtenus à 400°C avec les différents environnements utilisés. En laissant à part la fissuration sous hydrogène, qui obéit probablement à un mécanisme particulier et sort du cadre de notre étude, on constate que la propagation « rapide » fait intervenir la rupture intergranulaire. La température de 400°C fournit un cadre très intéressant à l'étude de la propagation de fissure dans l'Alliage 600 :

- sous air on trouve des résultats analogues à ce que l'on a déjà obtenu à 550°C (Tableau D-10) : une transition de vitesse de propagation et de mode de rupture, les niveaux de vitesse « hauts » étant comparables à 400 et 550°C ;

- dans la vapeur d'eau on obtient, à la pression atmosphérique, une propagation de fissure « rapide » et un faciès de rupture qui rappelle la corrosion sous contrainte et ne ressemble pas à ceux qui ont été observés sous air ou sous hydrogène.

environnement	da/dN (µm/cycle)	mode de rupture
air $Po_2 < 10^{-2}$ mbar	≤ 0,02	transgranulaire (rivières)
air $Po_2 > 10^{-2}$ mbar	0,1 à 0,6	intergranulaire (cf. 550°C)
Ar-5%H_2 P_{H_2} = 50 mbar	0,27	transgranulaire
H_2O (+ H_2) $P_{H_2O} \approx$ 500 mbar	0,25	intergranulaire (cf. CSC)

Tableau D-9 : Propagation de fissure dans l'Alliage 600 à 400°C
Cycles 20-20 $R = 0,3$ $K_{max} = 28\ MPa\sqrt{m}$

T (°C)	coulée	P_T (mbar)	$Po_2 < P_T$		$Po_2 > P_T$	
			da/dN (µm/cycle)	mode de rupture	da/dN (µm/cycle)	mode de rupture
400	B	10^{-2}	0.018	trans.	0.1 à 0.6	inter.
550	A	$\approx 10^{-4}$	0.010 à 0.020	trans.	0.1 à 0.28	inter.

trans. : rupture transgranulaire ; inter. : rupture intergranulaire

Tableau D-10 : Comparaison entre les résultats obtenus sous air à 400 et 550°C
Cycles 20-20 $R = 0,3$ $K_{max} = 28\ MPa\sqrt{m}$

Comme à 550°C, la vitesse de propagation obtenue pour $Po_2 < P_T$ est semblable à celle obtenue par James [1973] avec des cycles 1,5-1,5 à la pression atmosphérique ; on retrouve donc à 400°C l'effet de fréquence déjà observé à 550°C.

L'absence d'effet de l'hydrogène dans la vapeur d'eau est surprenante si l'on se réfère aux résultats obtenus en corrosion sous contrainte. Elle est peut-être due à une consommation rapide de l'hydrogène par l'ensemble de l'installation au début de la séquence, le milieu n'étant pas « tamponné » comme celui qu'ont utilisé Browning et Henry [1997] à 593°C. Pour s'en assurer, il faudrait mesurer la pression partielle d'hydrogène à l'aide d'une sonde spécifique, comme c'est le cas pour les essais dans le milieu primaire.

Il nous reste à présent à franchir la dernière étape de ce passage avec l'étude de la fissuration dans le milieu primaire.

III. CONDITIONS D'ESSAI DANS LE MILIEU PRIMAIRE A 320°C

La propagation de fissure dans l'Alliage 600 a été étudiée dans le milieu primaire à l'aide d'un essai de fatigue-fluage. La valeur relativement basse de la température (320°C) ne favorise pas a priori la propagation rapide de fissure. Les résultats ont néanmoins montré qu'en choisissant des conditions de sollicitation mécanique particulières on peut faire propager une fissure intergranulaire relativement rapidement dans ce matériau.

L'essai a été préparé et conduit en étroite collaboration avec le Centre Technique FRAMATOME (Chimie-Corrosion) du Creusot, où est situé l'ensemble de l'équipement.

III.1. Choix de l'éprouvette et des sollicitations mécaniques

L'éprouvette CT12,5-10 utilisée pour cet essai, repérée SL2-1, est identique à celles qui ont été testées à 400°C, si ce n'est le sens de prélèvement (voir Figure D-7). La microstructure du matériau ne présente pas d'orientation préférentielle marquée (voir Présentation des matériaux) et on ne s'attend pas à déceler d'effet significatif du sens de prélèvement. On n'en tiendra donc pas compte dans la suite de ce chapitre.

L'éprouvette SL2-1 a été préfissurée à l'ambiante à 13 MPa$\sqrt{m}$, le rapport de la longueur de fissure au ligament étant de $a/W = 0{,}375$. Elle a ensuite été montée sur une machine de traction lente OY HUBER CORMET, d'une capacité de 25 kN, équipée d'un autoclave de cinq litres (Figure D-15). Le pilotage a été adapté pour permettre l'application de sollicitations cycliques ; le mouvement de la ligne d'amarrage mobile a été asservi au signal délivré par la cellule de charge, d'une capacité de 50 kN.

Les essais sous sollicitations cycliques présentent dans le milieu primaire une difficulté supplémentaire par rapport aux essais monotones. Le frottement dynamique et surtout statique du joint d'étanchéité entre la ligne d'amarrage mobile et le couvercle de l'autoclave introduit en effet un décalage entre la charge mesurée par la cellule (même corrigée de l'effet de la pression totale) et la charge réellement appliquée à l'éprouvette. Ce décalage a été évalué par des essais à froid, sans éprouvette, à vitesse de déplacement imposée, avec des inversions périodiques du sens de la sollicitation. L'écart entre les valeurs stationnaires de la charge, lues dans un sens et dans l'autre, est de 400 N.

Quelques essais ont également été réalisés à charge imposée avec une éprouvette de traction lente, usinée dans un superalliage base nickel, équipée d'un extensomètre et sollicitée dans le domaine d'élasticité. On a ainsi vérifié, malgré les fluctuations dues à la résolution de l'extensomètre, que la charge lue sur la cellule correspondait bien au produit de la déformation élastique par le module d'Young de l'éprouvette (Figure D-16). Le signal délivré par la cellule est donc une mesure fiable de la charge imposée à l'éprouvette, au décalage de ±200 N près. Celui-ci est faible devant les valeurs de la charge imposée, le plus souvent supérieures à 8 kN. Il sera laissé de côté dans la suite de ce chapitre.

La machine utilisée étant destinée à des essais de traction lente, la vitesse de sollicitation est limitée à des valeurs relativement faibles, au-delà desquelles le pilotage n'est pas satisfaisant. Les Figures D-16b et D-16c montrent qu'il est impossible d'appliquer les cycles 20-20 utilisés sous air et qu'une durée de 100 secondes est un minimum pour la montée en charge, alors même que les déplacements sont très faibles, inférieurs à 100 µm.

Les deux formes de cycle imposées à l'éprouvette SL2-1 sont représentées sur la Figure D-17. La sollicitation mécanique a été choisie de manière à favoriser autant que possible les interactions entre la sollicitation mécanique et les effets d'environnement, tout en évitant l'endommagement purement mécanique de fatigue. Le rapport de charge a donc été fixé à une valeur élevée (0,8) de manière à maintenir une charge moyenne importante. Le calcul de structure a montré que le matériau en pointe de fissure est sollicité en fatigue plastique (oligocyclique) à chaque séquence de déchargement-rechargement. Le cycle 250-10 fait donc subir périodiquement au matériau une montée en charge lente et une descente rapide. Le cycle 250-300-10 superpose un temps de maintien, qui permet peut-être au matériau de relaxer les contraintes mais d'une manière extrêmement lente, sauf si l'environnement accélère localement le fluage comme c'est le cas sous air à haute température.

La valeur maximale K_{max} du facteur d'intensité des contraintes a été graduellement augmentée de 18 à 35 MPa$\sqrt{m}$ en fatigue continue, par pas de 1 MPa$\sqrt{m}$. Des cycles de fatigue-fluage ont ensuite été appliqués à 35 MPa$\sqrt{m}$, puis à 44,5 MPa$\sqrt{m}$, de manière à donner à la fissure les conditions les plus favorables possible à sa propagation (Tableau D-11).

cycle	Kmax (MPa$\sqrt{m}$)	ΔK (MPa$\sqrt{m}$)	nombre de cycles	durée (heures)
250-10	18 à 34	3,6 à 6,8	2985*	216
250-10	35	7,0	5660	409
250-300-10	35	7,0	1685	262
250-300-10	44,5	8,9	3250	506

*dont 660 cycles à 18 MPa$\sqrt{m}$, 910 à 22 MPa$\sqrt{m}$ et 545 à 28 MPa$\sqrt{m}$

Tableau D-11 : Cycles imposés à l'éprouvette SL2-1 dans le milieu primaire

On s'est assuré au cours de l'essai que la machine parvenait à asservir correctement le mouvement de la ligne d'amarrage (Figure D-18). Les résultats concernant la dernière séquence sont reportés dans le Tableau D-12.

valeur	P_{max} (daN)	P_{min} (daN)	K_{max} (MPa$\sqrt{m}$)	K_{min} (MPa$\sqrt{m}$)	R = K_{min}/K_{max}	dK/dt montée*	dK/dt descente*
consigne	1022	817	44,5	8,9	0,800	0,0356	0,89
mesure	1030	836	44,8	8,4	0,812	0,0336	0,84

* en MPa$\sqrt{m}$ s^{-1}

Tableau D-12 : Asservissement de la machine de traction lente lors des cycles 250-300-10 à K_{max} = 44,5 MPa$\sqrt{m}$

III.2. Conditions d'environnement

L'autoclave en acier inoxydable a été rincé à l'eau déminéralisée puis rempli d'une solution à 1300 ppm d'acide borique et 2 ppm de lithine dans de l'eau déminéralisée. Le milieu a été désaéré par bullage à l'argon jusqu'à une teneur en oxygène de 6 ppb. Le chauffage a été effectué par des colliers fixés autour de l'autoclave, en imposant une légère traction à l'éprouvette (de l'ordre de 1000 N), de manière à retrouver une charge effectivement nulle à la fin de la montée en pression (125 bar). Une fois la température stabilisée à 320°C, 15 bars d'un mélange Ar-20%H_2 ont été injectés dans l'autoclave. La pression a été ajustée au cours de l'essai par des injections du même mélange.

L'éprouvette a été laissée à potentiel libre ; elle a été isolée des lignes d'amarrage (en Alliage 718) par des inserts de Zircaloy oxydé. Une éprouvette selle de cheval de la coulée C a également été placée dans l'autoclave.

III.3. Grandeurs mesurées

La charge et la température ont été contrôlées en permanence tout au long de l'essai. L'avancée de la fissure devait être suivie par la méthode du potentiel, l'éprouvette étant montée en série avec une référence, également en Alliage 600, pour s'affranchir des effets de dérive dans le temps. Le signal délivré n'a malheureusement pas permis de détecter la propagation de la fissure, ce qui explique les modifications successives des conditions de sollicitation mécanique pour tenter de faire propager une fissure que l'on croyait bloquée. On ne dispose donc in fine que d'un ordre de grandeur de la vitesse de propagation, en mesurant la longueur de la fissure après l'ouverture de l'éprouvette en fatigue. Le mode de rupture a été pour sa part caractérisé par des observations fractographiques au MEB et l'examen sur coupes polies.

IV. RESULTATS EXPERIMENTAUX OBTENUS DANS LE MILIEU PRIMAIRE A 320°C

IV.1. Vitesse de propagation de la fissure

L'ouverture de l'éprouvette SL2-1 a montré que la fissure s'était propagée sur environ 300 µm ; le front étant de forme irrégulière, la propagation s'est réellement effectuée sur 100 à 500 µm. Le signal délivré par le suivi électrique a marqué une très légère progression sur les 500 à 700 dernières heures d'essai (Figure D-19) tandis que les « sauts » précédents sont dus aux changements de charge. On estimera donc que la fissure ne s'est propagée qu'au cours des 500 à 700 dernières heures, c'est-à-dire au cours des cycles trapézoïdaux à 44,5 et/ou à 35 MPa$\sqrt{m}$.

On aboutit ainsi à une vitesse de propagation « apparente » de 0,4 à 0,6 µm/heure, soit 0,06 à 0,09 µm/cycle. Ces valeurs sont proches de celles qui ont été obtenues à 400°C. L'éprouvette

selle de cheval n'a en revanche pas présenté de fissure en fin d'essai, ce qui est concevable pour la valeur modérée de la température choisie.

IV.2. Mode de rupture

La rupture est essentiellement intergranulaire, avec des fissures secondaires également intergranulaires, dont la profondeur est de l'ordre de la taille de grains (Figure D-20). Les joints ne sont pas nécessairement fissurés sur toute leur surface (Figure D-20e) et certaines fissures secondaires semblent s'être arrêtées sur des carbures de chrome (Figure D-20f).

IV.3. Discussion : propagation de fissure dans l'Alliage 600 dans le milieu primaire

Le mode de rupture est tout à fait proche de celui que l'on rencontre habituellement en corrosion sous contrainte, par exemple sur les éprouvettes selle de cheval (dans le milieu primaire ou la vapeur surchauffée à 400°C sous 200 bar), ainsi qu'à 400°C dans la vapeur d'eau désaérée (Figure D-14).

La comparaison de nos résultats avec ceux de Foster et coll. [1995] et Vaillant et coll. [1997] est délicate, dans la mesure où la vitesse de propagation peut dépendre a priori du cycle (donc de ΔK) et du temps de maintien à la charge maximale K_{max}. La valeur obtenue ici à 320°C est cependant proche des valeurs mesurées entre 310 et 330°C par Foster et coll. pour Kmax = 40 MPa$\sqrt{m}$ et R = 0,6 à 0,7, qui varient selon les coulées entre 0,18 et 1,2 µm/heure, soit environ 0,06 à 0,4 µm/cycle. Le rapport de charge ne semble pas jouer un rôle important, ce qui conduit à penser que la fissuration se produit dans un régime dépendant du temps, plus proche de la corrosion sous contrainte que de la fatigue-corrosion.

V. VERS UN MECANISME DE PROPAGATION DE FISSURE DANS LE MILIEU PRIMAIRE

Au vu des résultats expérimentaux présentés dans ce chapitre, on se propose d'intégrer l'ensemble des données obtenues en propagation de fissure dans une démarche qui unifie les effets observés dans les deux domaines de température. On gardera cependant en mémoire le fait que les sollicitations mécaniques sont cycliques. Les essais de propagation de fissure ont donc été effectués dans des conditions expérimentales plus proches de la fatigue-corrosion que de la corrosion sous contrainte.

V.1. Succès du passage « des hautes températures vers le milieu primaire »

V.1.a. Fissuration sous air

La propagation « rapide » d'une fissure intergranulaire sous air à 400°C, avec les cycles 20-20, montre que la composante mécanique endommageante subsiste et conduit, malgré une baisse de la cinétique des mécanismes thermiquement activés (fluage et oxydation), aux

mêmes résultats qu'à 550°C. Les conditions de propagation sont donc probablement les mêmes, à l'échelle locale, pour les deux températures. Le comportement du matériau en fluage est modifié dans les deux cas par les effets d'environnement, via le mode d'oxydation.

La pression de transition, liée au changement de mode d'oxydation, dépend de la température puisque la croissance de la couche d'oxydes est gouvernée par la compétition entre celle des germes riches en nickel et en fer d'un côté et celle des germes de Cr_2O_3, plus stables mais plus lents à croître, de l'autre, chacune étant activée thermiquement.

L'effet de la température étant essentiellement résumé dans la variation de la pression de transition, les données expérimentales acquises à 550°C sont transposables à plus basse température à condition de connaître la pression de transition.

Inversement, l'effet de la température dépend de la pression partielle d'oxygène : pour $Po_2 < 10^{-4}$ mbar ou $Po_2 > 10^{-2}$ mbar il n'y a quasiment pas d'effet de la température ; pour 10^{-4} mbar $< Po_2 < 10^{-2}$ mbar on multiplie la vitesse de propagation par 7,5 à 10 en passant de 400 à 550°C. Dans ce domaine de pression partielle d'oxygène, on pourrait représenter l'effet de la température par une énergie d'activation apparente de 25 à 34 kJ/mol ; on commettrait cependant une erreur car les mécanismes de rupture ne sont pas rigoureusement les mêmes pour les deux températures: à 550°C le matériau est déjà nickel-formeur et le fluage est assisté par l'oxydation, tandis qu'à 400°C le matériau est encore chrome-formeur.

V.1.b. Fissuration sous hydrogène

La propagation de fissure est plus rapide sous hydrogène que sous vide mais l'endommagement reste transgranulaire. Il est possible que, comme sous air, le comportement du matériau ou son mode d'endommagement soit modifié en pointe de fissure, bien que le mécanisme de rupture ne soit sans doute pas le même qu'en milieu plus oxydant (oxygène ou vapeur d'eau). Le fait que Shen et Shewmon [1990] n'aient pas observé de fissuration sur des selles de cheval exposées à l'hydrogène pur, sous 200 bar à 400°C pourrait donc être lié à un problème d'amorçage. La propagation, du moins sous sollicitations cycliques, est tout aussi rapide qu'en présence de vapeur d'eau désaérée ou dans le milieu primaire.

V.1.c. Fissuration dans la vapeur d'eau désaérée

Les modes de rupture sous air et dans la vapeur d'eau sont différents mais les joints de grains sont affectés dans les deux cas et les vitesses de propagation sont comparables. Ils pourraient donc être deux manifestations différentes d'un même mécanisme de fragilisation, même si nos résultats ne permettent pas de le vérifier. Il serait intéressant dans ce cadre d'utiliser des mélanges d'oxygène et de vapeur d'eau pour connaître l'évolution du mode de rupture entre les deux situations extrêmes de l'oxygène pur et de la vapeur d'eau désaérée. L'utilisation d'un milieu gazeux et d'une basse pression totale donne des conditions de souplesse tout à fait avantageuses pour ce type d'essai. Elle permettrait de déterminer si le passage d'un mode de rupture à l'autre est continu ou s'il existe une transition brutale, voire un pic de sensibilité.

La vitesse de propagation, évaluée dans le milieu primaire, est plus basse que celle qui a été mesurée à 400°C mais il est possible que localement la fissure ait progressé de grain en grain, à une vitesse plus élevée ou encore que l'on ait sous-estimé le temps à l'amorçage. Par ailleurs la composante de fluage est nettement favorisée dans le milieu primaire (K_{max} = 44,8 MPa$\sqrt{m}$ et ΔK = 8,4 MPa$\sqrt{m}$) par rapport à la vapeur d'eau désaérée à 400°C (K_{max} = 28 MPa$\sqrt{m}$ et ΔK = 19,6 MPa$\sqrt{m}$). Ceci explique peut-être la part plus importante de la rupture intergranulaire sur le faciès de rupture obtenu dans le milieu primaire.

Il serait également intéressant de pouvoir mesurer la vitesse de propagation de fissure en fonction du rapport P_{H_2}/P_{H_2O}, qui jouerait dans ce cas le rôle d'indicateur des conditions d'oxydoréduction, tenu par P_{O_2} dans les essais sous vide d'air.

V.2. Couplage mécanique-environnement et propagation de fissure

V.2.a. Comparaison avec la fissuration des alliages base nickel sous air

On se rapproche du cas des superalliages, dans la mesure où le matériau résiste bien (en tant qu'élément de volume) à la déformation par fluage, tout en étant sensible à la fissuration intergranulaire assistée par l'oxydation. Les contraintes en pointe de fissure, donc l'énergie potentielle élastique, sont élevées ; la consommation de cette énergie par relaxation des contraintes, assistée par l'oxydation, est particulièrement endommageante pour les joints de grains. La résistance à la déformation de fluage joue ainsi deux rôles contradictoires :

- sur le niveau des contraintes : plus le matériau flue vite, moins les contraintes sont élevées et plus l'énergie potentielle à relaxer est faible ;

- sur l'endommagement, c'est-à-dire la capacité du matériau à relaxer une énergie potentielle élastique donnée, par les mécanismes « lents » de déformation.

Trois cas de figure sont alors envisageables :

- alliages très résistants à la déformation de fluage (Alliages 718 « standard » et N18 « peau » à 650°C ; Alliage 600 à 400°C ?) : les contraintes sont élevées, il n'y a pas de relaxation sous vide mais il pourrait y en avoir localement sous air, d'où un effet d'environnement important sur la vitesse de propagation de fissure ;

- alliages moins résistants au fluage (N18 « cœur », à 650°C) : relaxation très rapide des contraintes, l'effet d'environnement est moins important ;

- alliages peu résistants au fluage (Alliage 600 à 550°C, peut-être également Alliage 316L [Cook 1974]) : faible énergie potentielle élastique mais la capacité de relaxation est importante, même sous vide et conduit à un endommagement intergranulaire important ; l'effet d'environnement intervient uniquement pour les vitesses de déformation relativement élevées (10^{-3} s^{-1}).

En bref, si le matériau relaxe très vite les contraintes, il est sensible à l'endommagement de fluage dans le volume. A l'inverse, s'il relaxe trop peu les contraintes il devient sensible aux effets d'environnement.

V.2.b. Nécessité de l'acquisition de données expérimentales complémentaires

Les niveaux « haut » et « bas » de la vitesse de propagation dépendent des modes d'endommagement du matériau. Ils varient donc avec la microstructure, en particulier près des joints de grains (présence de phase δ pour l'Alliage 718, de très fins précipités γ' pour l'Alliage N18, de carbures de chrome pour l'Alliage 600 ?) mais aussi avec l'environnement qui peut activer tel ou tel mode de déformation.

Les essais effectués dans le cadre de cette étude ne prétendent pas caractériser d'une manière exhaustive la fissuration de l'Alliage 600 assistée par l'environnement entre 320 et 400°C. Il faudrait pour cela acquérir des données expérimentales complémentaires, notamment sur les effets respectifs du niveau de chargement et de la forme du cycle : fatigue-fluage à 400°C et cycles 20-20 dans le milieu primaire, si toutefois l'on parvient à s'affranchir des problèmes expérimentaux liés à la maîtrise du chargement mécanique et du suivi de fissure.

Un autre point important à vérifier est la similarité des mécanismes de fissuration en fatigue-corrosion et en corrosion sous contrainte. En particulier, le film d'oxydes est certainement rompu à chaque cycle de fatigue, ce qui entraîne une perturbation périodique des conditions d'environnement à la surface du métal. Ce n'est pas le cas en corrosion sous contrainte. L'effet des conditions électrochimiques n'est donc peut-être pas le même dans les deux cas, la sollicitation cyclique permettant de franchir une étape limitante du mécanisme de fissuration.

V.3. Interactions environnement-comportement et calcul de structure

Comme à 550°C, le comportement mécanique du matériau en pointe de fissure est affecté par les effets d'environnement. On confirme par là même les hypothèses du modèle de Meletis [1993] et Saario [1995], en matière d'accélération du fluage. Le calcul de structure, effectué jusqu'ici pour un matériau homogène, devrait permettre d'intégrer les interactions environnement-comportement dans une prévision de durée de vie des pièces en service. Des paramètres représentatifs du mécanisme physique restent à déterminer :

- la « distance caractéristique » à prendre en compte, c'est-à-dire la profondeur de la zone affectée par l'environnement ;

- la cinétique d'endommagement, liée au mode d'oxydation, qui dépend peut-être à son tour des sollicitations mécaniques locales.

Les deux points ont été abordés par l'étude des effets d'environnement dans ce domaine de température, qui est présentée dans le chapitre suivant.

CHAPITRE D-3 :
PROPAGATION DE FISSURE ENTRE 320 ET 400°C
EFFETS D'ENVIRONNEMENT

Les essais de propagation de fissure dans l'Alliage 600 sollicité à 400°C en milieu gazeux et à 320°C dans le milieu primaire ont mis en évidence le rôle de l'environnement sur la vitesse de propagation et le mode de rupture. Il est donc intéressant de connaître, comme à plus haute température, l'effet des conditions chimiques et/ou électrochimiques (pression partielle d'oxygène dans l'air et pression partielle d'hydrogène dans le milieu primaire), sur le mode d'oxydation et surtout sur le comportement mécanique du matériau à proximité de la surface.

Des essais de fluage ont été menés avec le feuillard de la coulée D. Les résultats de ces essais, qui font l'objet de la première partie de ce chapitre, ont montré que l'effet de la pression partielle d'oxygène est plus difficile à étudier qu'à 550°C.

Comme on ne dispose pas d'une mesure in situ de la charge et surtout de la déformation dans le milieu primaire, il est actuellement impossible d'y conduire des essais de fluage sur des feuillards minces, soumis à de faibles charges et se déformant très lentement. L'étude des effets d'environnement dans le milieu primaire a donc été découplée de la sollicitation mécanique, c'est-à-dire que les éprouvettes ont été testées mécaniquement après leur séjour dans le milieu. Les modes d'oxydation de l'Alliage 600 dans le milieu primaire ont été analysés par microscopie électronique à balayage et en transmission.

I. ESSAIS DE FLUAGE SUR LE FEUILLARD A 400°C

Pour étudier les interactions entre le comportement mécanique du matériau et les effets d'environnement, des essais de fluage sur le feuillard d'épaisseur 200 µm ont été réalisés à 400°C sur deux éprouvettes, repérées f1 et f2, dans les mêmes conditions qu'à 550°C. L'éprouvette f1 a été chargée à 5 MPa s^{-1} jusqu'à une contrainte de 300 MPa mais le fort effet Portevin-Le Chatelier a causé de brusques incréments de déformation qui ont atteint plus de 5% avant même le début du fluage. L'essai a donc été arrêté. L'éprouvette f2 a été chargée plus rapidement, à 50 MPa s^{-1}, ce qui a permis d'atteindre les niveaux de chargement désirés sans déformation excessive. Le Tableau D-13 montre que la vitesse de fluage est très faible, à la limite des possibilités de détection de la machine. Elle est équivalente à celle qui a été mesurée à 360°C avec les éprouvettes « massives » de fatigue oligocyclique ($\approx 10^{-8}$ s^{-1}, voir Comportement mécanique), pour lesquelles on peut supposer que l'environnement n'intervient pas et que les résultats sont équivalents à ce que l'on aurait obtenu sous vide avec le feuillard.

Contrairement à ce que l'on a observé à 550°C, les essais sur le feuillard d'Alliage 600 ne permettent pas de mettre en évidence une accélération du fluage sous air. Ceci peut être dû à plusieurs causes :

- la déformation plastique au chargement, amplifiée par l'effet Portevin-Le Chatelier à charge imposée, ne produit peut-être pas une microstructure « favorable » au fluage ; on a vu en effet qu'à 550°C une déformation plastique « rapide » importante, correspondant comme ici à un chargement de zéro à 300 MPa, conduit à une vitesse de fluage plus basse qu'après un chargement globalement élastique ;

- du fait de la valeur modérée de la température, les cinétiques des réactions d'interface et/ou de diffusion sont plus basses qu'à 550°C et le volume de matière « affecté par l'environnement » n'est peut-être pas suffisant pour que la modification de son comportement soit détectable à l'échelle d'un feuillard de 200 µm d'épaisseur.

L'étude des interactions entre les effets d'environnement et le comportement mécanique de l'Alliage 600 à 400°C nécessite donc l'emploi d'une extensométrie plus sensible et d'une machine disponible pour des essais de longue durée. L'utilisation de feuillards de différentes épaisseurs permettrait peut-être de détecter une accélération du fluage, si toutefois l'on parvient à s'affranchir des instabilités de déformation, par exemple en appliquant des incréments de chargement plus faibles. Il est également possible que la profondeur de la zone affectée par l'environnement soit trop faible pour influencer les propriétés mécaniques d'une éprouvette, aussi fine soit-elle. Une autre possibilité serait alors de recourir à des essais d'oxydation sous contrainte avec des échantillons très minces, à l'intérieur d'un microscope électronique en transmission, pour observer le couplage entre les réactions d'oxydation et le mouvement des dislocations proches de la surface.

contrainte nominale au palier (MPa)	contrainte vraie (MPa)	déformation « rapide » au chargement	déformation de fluage au palier considéré	vitesse de fluage (s^{-1})
300	310	3,14%	≈ 0	≈ 0
400	419	1,40%	$< 5.\ 10^{-5}$	$< 10^{-8}$
500	539	2,97%	$9{,}3.\ 10^{-5}$	$1{,}2.\ 10^{-8}$
600	667	3,08%	$1{,}1.\ 10^{-4}$	$1{,}5.\ 10^{-8}$

Tableau D-13 : Résultats de l'essai de fluage à 400°C sur le feuillard d'épaisseur 200 µm

II. FRAGILISATION D'EPROUVETTES MINCES D'ALLIAGE 600 DANS LE MILIEU PRIMAIRE POLLUE

Les essais d'exposition statique, c'est-à-dire sans contrainte extérieure appliquée, d'échantillons d'Alliage 600 dans le milieu primaire ont été réalisés avec deux objectifs :

- caractériser les réactions de surface en lien avec la sensibilité à la corrosion sous contrainte, évaluée avec des éprouvettes selle de cheval ;

- mettre en évidence le rôle des conditions électrochimiques, en particulier en présence d'espèces « polluantes » dans le milieu.

Quatre séjours ont été effectués, le premier en capsule dans un milieu « pollué », les trois autres en autoclave, dans le milieu primaire, pour différentes durées d'exposition et différentes valeurs de la pression partielle d'hydrogène. Les conditions de séjour sont reportées dans le Tableau D-14. Les campagnes 1 à 3 ont été menées à l'I.R.S.I.D. (Etablissement d'Unieux). La dernière campagne a eu lieu après le déménagement de l'équipe et son intégration au Centre Technique FRAMATOME du Creusot.

Le premier essai est une exposition d'éprouvettes amincies, pour étudier la fragilisation des joints de grains en milieu pollué. Il a été mené en même temps que les études de Gendron et coll. [1994, 1996]. Une fragilisation a effectivement été observée et caractérisée par des essais mécaniques à la température ambiante, sur les parties minces mais également sur les parties plus épaisses des éprouvettes. L'emploi d'éprouvettes minces a donc été laissé de côté pour les essais suivants, au profit d'éprouvettes d'épaisseur constante, de l'ordre du millimètre.

Les trois séjours en autoclave n'ont pas provoqué de fragilisation décelable par des essais mécaniques de traction ou de flexion à la température ambiante. Ils ont néanmoins permis d'étudier les modes d'oxydation de surfaces « lisses » d'Alliage 600 en fonction de la pression partielle d'hydrogène et de la durée d'exposition, en lien avec la fissuration des selles de cheval. Les résultats concernant ces trois dernières campagnes sont développés dans l'Annexe D-a_1 et repris brièvement à la fin de ce chapitre.

séjour	température (°C)	P_{H_2} à 360°C (bar)	durée (heures)	échantillons exposés	conditions particulières
1	360	≤ 5	1220	éprouvettes minces	capsule + polluants
2	360	1,45	500	éprouvettes lisses de traction	autoclave
3	360	0,01	500	lames minces	
4	360	1,95	1150	plaquettes polies	

Tableau D-14 : Conditions de séjour de l'Alliage 600 dans le milieu primaire à 360°C

II.1. Conditions expérimentales du séjour en capsule

II.1.a. Réalisation des éprouvettes « minces »

Les éprouvettes minces ont été préparées à partir d'un tube de générateur de vapeur de la coulée C, réputée très sensible à la corrosion sous contrainte dans le milieu primaire. Elles ont été prélevées par électroérosion dans le sens long du tube (Figure D-21a). Afin de préserver l'état d'écrouissage initial du matériau, les éprouvettes n'ont pas été aplaties après leur prélèvement, ce qui explique la forme de la section A-A de la Figure D-21b.

La partie utile des éprouvettes a été amincie jusqu'à atteindre localement une épaisseur équivalente à quelques tailles de grains. Ce procédé permet d'accroître la surface spécifique de la partie utile tout en gardant une géométrie commode pour les essais de traction.

La méthode d'amincissement est décrite sur la Figure D-22. Dans un premier temps, les éprouvettes ont été enrobées dans de l'araldite pour éviter tout déformation parasite lors des premières opérations d'amincissement. Le bloc ainsi obtenu a été poli au papier SiC (carbure de silicium) jusqu'à la granulométrie 1200 afin d'obtenir les têtes d'éprouvettes les plus planes possible. Les éprouvettes avaient alors une épaisseur de l'ordre du millimètre. La partie centrale a ensuite été creusée par rectification et polie à son tour au papier SiC jusqu'à la granulométrie 1200 (Figure D-22a). Après dissolution de l'araldite, la face concave de chaque éprouvette a été polie jusqu'à la granulométrie 1200 (Figure D-22b). La surface plane a finalement été préparée par un polissage électrolytique dans une solution composée à 45% d'acide acétique, de 45% de butoxyéthanol et de 10% d'acide perchlorique, à 0°C sous 60V (Figure D-22c).

L'étape la plus délicate est l'amincissement final. L'éprouvette a été collée sur un support plan qui a été monté sur une polisseuse. L'évolution de l'épaisseur de la partie utile a été suivie grâce à un capteur de déplacement (Figure D-22d). Le polissage a été réalisé au papier SiC jusqu'à la granulométrie 1200. Ce procédé permet de contrôler, à une dizaine de micromètres près, l'épaisseur de la partie utile et d'obtenir deux faces planes bien parallèles au niveau des têtes.

Une partie des éprouvettes minces a subi un polissage électrolytique final, dans les mêmes conditions que précédemment, jusqu'à la disparition des rayures dues au carbure de silicium (Figure D-22e). L'épaisseur finale de la partie utile des vingt-quatre éprouvettes obtenues par ce procédé a varié entre 10 et 70 micromètres, ce qui est de l'ordre de grandeur de la taille de grain du matériau.

II.1.b. Conditions de séjour des éprouvettes minces

Dix-sept éprouvettes ont été montées sur un support en Alliage 600 et exposées dans le milieu primaire. L'isolation électrique et l'accommodation des différences d'épaisseur entre les têtes des différents échantillons ont été réalisées par l'interposition de feuilles de mica et d'une tresse d'alumine entre les éprouvettes et le montage ; ces deux composants ont été à l'origine de la « pollution » introduite dans le milieu. La Figure D-23 montre le montage des éprouvettes sur le support. A titre de référence, quelques éprouvettes ont été réservées à des essais sans exposition préalable dans le milieu.

Le montage a été enfermé dans une capsule d'une capacité d'environ un litre, contenant le milieu primaire et une surpression de 5 bar d'hydrogène pour une pression totale de 200 bar à 360°C. Après l'exposition dans le milieu, le montage a été renvoyé tel quel au Centre des Matériaux, où les éprouvettes ont été démontées avec précaution. Etant donnée la faible épaisseur de la partie utile, le nettoyage par ultrasons n'a pas été utilisé avec ces échantillons.

L'utilisation de mica et d'alumine au cours du séjour dans le milieu primaire a entraîné un enrichissement de celui-ci en silicium et en aluminium. Le Tableau D-15 montre les résultats de l'analyse chimique après l'essai et les compare à ceux relatifs au séjour n° 4, pour une durée d'exposition similaire. L'aluminium n'a pas été dosé.

séjour	pH (20°C)	résistance (kΩ/cm)	B (ppm)	Li (ppm)	Cl (ppm)	SO_4 (ppm)	Na (ppm)	SiO_2 (ppm)	Fe (ppm)
1	5,8	1,4	1350	1,28	5,0	0,28	1,8	98,5	< 0,05
4	5,65	48	1270	2,24	0,15	< 0,1	< 0,01	2,55	< 0,01

Tableau D-15 : Composition du milieu après les séjours 1 et 4

II.2. Mise en évidence de la fragilisation des joints de grains

Les éprouvettes minces rompues en traction après le séjour dans le milieu primaire présentent des défauts intergranulaires profonds de quelques micromètres (Figure D-24), suffisamment acérés pour ne pas être confondus avec un creusement des joints de grains par l'oxydation. La présence de ces défauts montre que les éprouvettes minces ont été fragilisées lors de leur séjour en capsule. Tous les joints de grains semblent avoir été touchés par ce phénomène, quel que soit l'état de surface initial des éprouvettes. Par ailleurs les éprouvettes minces testées en traction sans séjour dans le milieu primaire n'ont pas montré de défaut intergranulaire (Figure D-24c).

Afin de savoir si la fragilisation avait affecté uniquement les parties minces des éprouvettes, des essais de flexion et de cisaillement ont été réalisés sur des têtes d'éprouvettes minces. Ces échantillons ont subi auparavant une léger polissage mécanique à la pâte diamantée pour retirer la couche d'oxydes et observer plus commodément le métal sous-jacent. La Figure D-25 montre que les joints de grains des parties « épaisses » ont également été affectés par la fragilisation. Il ne s'agit pas d'une attaque intergranulaire généralisée puisque les joints de grains sont intacts avant les essais mécaniques et que seuls s'ouvrent les joints perpendiculaires à la plus grande contrainte principale appliquée à la température ambiante.

Le mécanisme de cette fragilisation est a priori inconnu mais il est suffisamment rapide pour affecter le métal sur une profondeur de l'ordre du micromètre, en 1220 heures à 360°C. Il est sans doute lié à la formation du film, voire à la pénétration d'espèces fragilisantes ou de lacunes. L'analyse des éprouvettes a tenté de révéler ce mécanisme de fragilisation :

- la pénétration d'espèces fragilisantes et/ou de lacunes a été étudiée par des essais de thermodésorption ;

- la formation éventuelle de produits de réactions chimiques ou de cavités dans les joints de grains a été testée par une expertise détaillée des éprouvettes au MEB et au MET.

II.3. Etude de la fragilisation intergranulaire

II.3.a. Essais de thermodésorption

L'hypothèse testée ici est la pénétration, au cours de la formation du film, de lacunes ou d'espèces susceptibles de se concentrer dans les joints de grains et d'abaisser leur énergie d'interface. Quelques éprouvettes, auxquelles on avait éventuellement retiré la couche d'oxydes par un léger polissage mécanique, ont été soumises à un chauffage sous vide

secondaire, tandis que les espèces chimiques libérées dans l'enceinte à ultravide étaient analysées en temps réel par un spectromètre de masse. La séquence d'essai a comporté les étapes suivantes :

- mise de l'éprouvette sous vide secondaire ;
- chauffage par un four à radiations, à 5°C par minute, en pompage dynamique ;
- maintien à la température maximale, dite « de palier », jusqu'à ce que le vide dans l'enceinte soit revenu au niveau de ce qu'il était au début de l'essai (quelques 10^{-8} mbar) ;
- coupure du four et refroidissement sous vide ;
- démontage de l'éprouvette et essais mécaniques de traction et/ou de flexion.

Trois valeurs ont été choisies pour la température de palier : 400, 460 et 550°C. Elles sont suffisamment basses pour que le maintien en température, de l'ordre de quelques jours, ne modifie pas les caractéristiques microstructurales du matériau, telles que la position des joints de grains et la population des carbures de chrome.

Au cours de la montée en température, quatre espèces ont été détectées : H_2, H_2O, CO et CO_2. La Figure D-26a montre l'évolution des deux principaux pics, correspondant à l'hydrogène et à l'eau, au cours du chauffage jusqu'à 550°C. Les valeurs de la température correspondant au maximum des pics sont reportées dans le Tableau D-16, en regard des valeurs données par la littérature avec des échantillons « neufs » [Reiter 1982], chargés en hydrogène [Young 1997] et des éprouvettes rompues en traction lente dans le milieu primaire à 350°C [Shewmon 1989]. Les positions des pics sont sensiblement différentes et les types de pièges associés n'ont pas été identifiés. Il est cependant probable, au vu des analyses de Shewmon et coll. [1989], que le piégeage des atomes d'hydrogène en solution interstitielle dans le réseau des grains corresponde à une gamme de température largement englobée dans le domaine analysé ici.

La Figure D-26b montre que le taux de relâchement de l'hydrogène et de l'eau, lors d'un maintien isotherme, varie avec le temps sans suivre une loi exponentielle ; Shewmon et coll. [1989] ont observé le même phénomène et l'attribuent à l'existence d'une distribution relativement large des énergies de piégeage.

pic / source	m/e = 2 (H_2)	m/e = 18 (H_2O)	vitesse de chauffage (°C/min)
Reiter 1982	383 309	278 246	8,16 0,78
Shewmon 1989	330 et > 600	non étudié	non communiquée
Young 1997	200 et 400	non étudié	5
la présente étude	280 et 480	309 et 475	5

Tableau D-16 : Données de thermodésorption sur l'Alliage 600 exposé ou non au milieu primaire

La Figure D-27 montre qu'après un maintien de trois jours à 550°C sous vide secondaire les joints de grains sont restés fragiles. On retrouve le même résultat après un vieillissement de plus de deux ans à la température ambiante. On peut pourtant supposer que les pièges correspondant aux deux pics détectés au cours du chauffage ne contiennent plus ni hydrogène ni molécule d'eau. Il est cependant difficile de déterminer ce qui vient du métal et ce qui vient de la couche d'oxydes, qui avait été laissée sur l'éprouvette, même si les atomes d'hydrogène présents dans le réseau en solution interstitielle ont sans doute été libérés au cours de l'essai. Les autres types de pièges évoqués par Shewmon et coll. [1989], notamment les cavités, sont susceptibles d'être observés directement. La zone « fragilisée » des éprouvettes minces a dans ce but été examinée au microscope électronique en transmission analytique.

II.3.b. Analyse des films formés au cours du séjour en capsule

A la sortie de la capsule, les éprouvettes étaient recouvertes d'une couche épaisse, verdâtre, qui résiste à un nettoyage à l'eau bouillante. Cette couche est constituée de « rosettes » visibles sur la Figure D-28a, qui reposent sur un film plus fin et plus compact, du moins à l'échelle du MEB (Figure D-28b, observation en coupe polie et attaquée au réactif de Kalling). L'attaque métallographique a creusé les joints de grains qui étaient intacts auparavant.

Une analyse semi-quantitative, dans un MEB équipé d'un canon à émission de champ et d'un spectromètre de perte d'énergie des rayons X adapté à l'étude des éléments « légers », a été menée sur une coupe. Elle a montré que les rosettes sont essentiellement constituées de silicium, d'aluminium et d'oxygène avec un peu de nickel ; elles ne contiennent pas de chrome. La couche plus mince, qui sert de support aux rosettes est plus difficile à analyser par cette méthode, en raison de sa faible épaisseur et des effets de relief (Figure D-28b).

L'analyse au MET d'une lame prélevée parallèlement à la surface d'une tête d'éprouvette, sur laquelle subsistaient quelques lambeaux de la couche fine, a montré la présence de NiO et de quelques oxydes mixtes ; des oxydes riches en chrome, sans doute Cr_2O_3, ont été formés au voisinage des joints de grains (Figure D-29). La couche est constituée de nodules, de quelques dizaines de nanomètres de diamètre. Elle semble peu compacte et par conséquent peu protectrice.

II.3.c. Analyse au MET de la zone fragilisée

L'étude au MET des joints de grains « fragilisés », sous réserve que la lame mince soit effectivement prélevée à la surface du matériau, permet d'y rechercher par exemple la présence de petits précipités, de cavités ou de ségrégations importantes, susceptibles de révéler le mécanisme de fragilisation.

Réalisation des lames minces

La couche fragile est sans doute peu épaisse et la préparation de lames minces parallèles à la surface de l'éprouvette a nécessité quelques précautions. Plusieurs têtes d'éprouvettes ont été polies mécaniquement d'un côté jusqu'à l'obtention d'une épaisseur d'environ 100 µm. Des

pastilles de diamètre 3 mm ont été prélevées par poinçonnage. La couche d'oxydes de la face non polie a été déstabilisée par un léger polissage électrolytique de manière à dégager la surface du métal sous-jacent. Celle-ci a ensuite été protégée par une laque et l'amincissement électrolytique au jet a été mené jusqu'à la perforation. La laque a enfin été dissoute avant l'observation des lames.

Quelques lames ont été réalisées avec la même technique à partir d'échantillons non exposés au milieu primaire. On a ainsi vérifié que la laque n'introduisait pas de défauts ou de modifications de composition chimique.

Résultats

Avant le séjour dans le milieu primaire, les joints de grains des éprouvettes de la Figure D-30 avaient été creusés par le polissage électrolytique (Figure D-30a), ce que l'on constate également en observant une éprouvette semblable après un léger polissage mécanique de la surface (Figure D-30b). Les échantillons polis mécaniquement et exposés au milieu primaire n'ont pas présenté cette indentation ; dans le cas particulier des éprouvettes observées au MET, l'oxyde est simplement venu remplir les zones creusées et la présence de ce creusement sur les lames minces montre que les observations au MET ont bien été menées dans la couche fragilisée.

L'absence de cavitation et de précipitation intergranulaire montre que la fragilisation n'est due ni à la formation de précipités par oxydation interne, ni à la formation de bulles de gaz par réaction de l'hydrogène ou de l'oxygène injecté par le milieu primaire avec le carbone présent à l'état libre près des joints de grains.

Plusieurs profils d'analyse par spectrométrie à dispersion d'énergie des rayons X ont été effectués en mode balayage, avec une taille de sonde de l'ordre de 2 nanomètres. Aucune modification de la composition chimique n'a été détectée à la traversée des joints de grains. Quelques analyses par spectrométrie de perte d'énergie des électrons ont conduit au même résultat. On n'a donc pas détecté d'enrichissement particulier en oxygène ou en silicium dans les joints de grains. La méthode est cependant peu sensible aux faibles teneurs en éléments « légers » et il est possible que l'un de ces éléments ait ségrégé à l'échelle d'une couche atomique, sans que l'on ait pu le détecter par cette technique d'analyse.

II.4. Discussion : mécanismes de fragilisation possibles

Les éprouvettes minces, exposées au milieu primaire « pollué », ont subi une fragilisation intergranulaire qui s'est manifestée au cours des essais mécaniques à la température ambiante. Les analyses par thermodésorption ont montré que cette fragilité résistait à un pompage de plusieurs dizaines d'heures sous vide secondaire à 550°C. Les espèces chimiques responsables de cette fragilisation ne semblent pas avoir réagi avec les éléments présents dans le métal car on ne détecte ni précipitation ni cavitation dans les joints de grains observés au MET.

Il est possible qu'une espèce chimique ait pénétré dans les joints de grains au cours de l'oxydation du matériau. Elle aurait alors été piégée sans pouvoir diffuser en retour vers la surface à des températures inférieures ou égales à 550°C. Il pourrait alors s'agir soit de

l'oxygène, soit du silicium, présents en quantités infimes dans les joints de grains et non détectables par les méthodes d'analyse que nous avons utilisées. Une profondeur de pénétration de plusieurs micromètres en 1220 heures à 360°C semble cependant excessive en termes de cinétique de diffusion.

Les résultats obtenus avec les éprouvettes minces exposées en capsule sont proches de ceux de Gendron et coll. [1994, 1996] dans la vapeur surchauffée à 400°C : sollicitées à la température ambiante après l'exposition au milieu, les éprouvettes rompent par instabilité plastique, accompagnée de défauts intergranulaires acérés d'une profondeur de quelques micromètres. Gendron et coll. ont repéré la présence d'oxygène dans les joints, sur une profondeur de l'ordre du micromètre. Comme dans notre cas, les joints de grains sont chrome-formeurs. Gendron et coll. ont conclu à une oxydation interne du matériau, conduisant à la ségrégation d'atomes d'oxygène et à l'affaiblissement de l'énergie de cohésion des joints de grains.

D'une manière plus générale, Sala et coll. [1995] ont montré que la présence de silicium dans un milieu secondaire « synthétique » conduisait à la déstabilisation du film d'oxydes et à un dépôt d'aluminosilicates qui ressemble à celui que nous avons observé. Ils ont cependant également constaté une attaque intergranulaire généralisée sévère, que n'ont pas subie les joints de grains de nos éprouvettes minces. Il est possible que dans notre cas la couche d'oxydes formée en présence de silicium ait été particulièrement peu protectrice, voire favorable à l'oxydation interne du matériau ou à la pénétration d'atomes d'oxygène dans les joints, telle que l'ont observée Gendron et coll. [1996]. Pour s'en assurer, il faudrait pouvoir analyser des défauts intergranulaires par spectrométrie Auger, tout en s'affranchissant au maximum de l'effet de relief.

III. RESULTATS OBTENUS DANS LE MILIEU PRIMAIRE

La préparation des échantillons et le détail de l'analyse des modes d'oxydation sont développés dans l'Annexe D-a_1. Nous reprenons ici les principaux résultats.

III.1. Fissuration des éprouvettes selle de cheval

Toutes les éprouvettes selle de cheval exposées au cours des différents séjours ont présenté une fissuration importante sur les ailes, la fissuration la plus sévère étant rencontrée après le dernier séjour. Les trois conditions d'exposition sont donc favorables à la fissuration de l'Alliage 600 par corrosion sous contrainte.

La rupture est entièrement intergranulaire, avec des fissures secondaires souvent très fines (Figure D-31) qui rappellent les faciès de rupture obtenus en propagation de fissure à 320°C dans le milieu primaire et à 400°C en vapeur d'eau désaérée. La fissuration, au bout de 500 heures, des trois éprouvettes exposées sous 0,01 bar d'hydrogène contredit les observations d'Economy et coll. [1987] qui ont montré, avec des éprouvettes selle de cheval, que l'absence d'hydrogène dans le milieu à 400°C favorisait la résistance à la corrosion sous contrainte. Afin de vérifier que les conditions électrochimiques étaient différentes au cours des deux séjours de 500 heures, la nature et la morphologie des oxydes formés ont été déterminées par microscopie électronique à balayage et en transmission analytique.

Un autre résultat de cette étude est qu'il est nécessaire de maintenir les éprouvettes selle de cheval serrées au cours de l'exposition dans le milieu primaire pour provoquer leur fissuration. L'écrouissage et les contraintes résiduelles de traction ne permettent donc pas à eux seuls l'amorçage des fissures de corrosion sous contrainte en 1150 heures à 360°C.

III.2. Absence de fragilisation après les trois séjours en autoclave

Les éprouvettes exposées au milieu primaire lors des trois séjours en autoclave ont suivi les mêmes essais mécaniques que les éprouvettes minces sans qu'aucun joint de grains ne semble fragile, ceci quel que soit l'état de surface, l'écrouissage ou la triaxialité des contraintes dans les éprouvettes testées, alors que les éprouvettes selle de cheval exposées dans les mêmes conditions ont fissuré. La sensibilité à la corrosion sous contrainte ne va donc pas de pair avec la fragilisation des joints de grains sur une profondeur de l'ordre du micromètre. Si fragilisation il y a, sa portée est trop réduite pour être observable par des essais mécaniques découplés de l'exposition dans le milieu.

III.3. Analyse des films formés dans le milieu primaire

Comme on s'y attendait, la couche de rosettes formée au cours du premier séjour est absente des échantillons exposés dans le milieu primaire non pollué. Le Tableau D-17 résume les résultats des expertises sur lames minces et des observations au MEB. Dans tous les cas on trouve rarement des traces de la formation de Cr_2O_3 et le matériau est nettement nickel-formeur. Des cristaux de NiO et $NiFe_2O_4$ se développent en effet en épitaxie avec le métal sous-jacent, tandis que $NiCr_2O_4$ se forme préférentiellement à l'aplomb des joints de grains. Les séjours 3 et 4 ont en outre conduit à la précipitation de plaquettes très fines de $Ni(OH)_2$ en couche externe, sans doute formées au cours du refroidissement.

séjour	durée (heures)	P_{H_2} (bar)	couches formées
2	500	1,45	couche continue NiO + oxydes mixtes (spinelles), souvent $NiFe_2O_4$
3	500	0,01	la même couche continue + rosettes $Ni(OH)_2$
4	1150	1,95	sans doute la même couche continue + rosettes $Ni(OH)_2$

Tableau D-17 : Modes d'oxydation de l'Alliage 600 au cours des trois séjours dans le milieu primaire

Les oxydes formés sur les lèvres des fissures des éprouvettes selle de cheval présentent les mêmes caractéristiques morphologiques mais peu de plaquettes ont eu le temps de se développer. L'observation en fond de fissure montre cependant que la propagation a eu lieu avant que les surfaces fraîches ainsi créées aient eu le temps de former un film épais, détectable au MEB. Aucune trace de cavitation ou de rupture de film n'a été détectée.

III.4. Conclusions

Les trois séjours dans le milieu primaire ont confirmé le fait que quelle que soit la pression partielle d'hydrogène, l'Alliage 600 est nickel-formeur lorsqu'il fissure par corrosion sous contrainte. La propagation des fissures a lieu avant que le matériau ait le temps de développer un film détectable au MEB. Le caractère acéré des fissures secondaires, en particulier aux lignes triples, laisse penser que la dissolution n'est pas seule responsable de la propagation. Des traces de plasticité sont visibles par endroits, quoique de manière ténue, sur les facettes des joints de grains les moins oxydés.

IV. MODELISATION DES EFFETS D'ENVIRONNEMENT ENTRE 320 ET 400°C

IV.1. Eprouvettes minces fragilisées en milieu pollué

Le mécanisme de la fragilisation des éprouvettes minces n'est pas encore élucidé. Il est lié à la présence de silicium et/ou d'aluminium dans le milieu et à la surface des éprouvettes. Il serait intéressant d'aller plus loin dans cette voie, notamment en reproduisant les essais, pour évaluer le rôle polluant du silicium et/ou de l'aluminium vis-à-vis des joints de grains exposés dans le milieu primaire ou surtout secondaire. Cette fragilisation est en effet redoutable car elle ne peut pas être détectée par contrôle non destructif. Elle révèle une fois de plus le rôle crucial joué par les conditions électrochimiques à la surface du matériau, conditions qui restent encore en partie inconnues en pointe de fissure.

IV.2. Propagation de fissure assistée par l'environnement

IV.2.a. Propagation de fissure et oxydation dans le milieu primaire

Les expositions d'échantillons dans le milieu primaire ont montré le rôle important des processus de formation du film, qui est analogue à celui du mode d'oxydation en milieu gazeux : tout se joue autour de l'équilibre local entre Ni et NiO. Ainsi, lorsque le matériau est nickel-formeur, il peut suffire de 500 heures à 360°C pour faire fissurer des éprouvettes selle de cheval dans le milieu primaire. La fissuration a lieu avant la formation d'une couche d'oxydes détectable au MEB. Il semble donc que, comme sous air, la propagation de la fissure s'effectue au cours des tout premiers instants de l'oxydation, ce qui plaide pour un caractère très localisé et « dynamique » des interactions mécanique-environnement. Par ailleurs le taux de chrome de l'Alliage 600 n'est pas suffisant pour rendre celui-ci chrome-formeur, même sous une surpression de quelques bars d'hydrogène à 360°C.

L'endommagement en fluage sous vide secondaire à 550°C montre que le terme de restauration est loin d'être négligeable, même en dehors des effets d'environnement, à température élevée. Il est en revanche très faible à 400°C ou bien masqué par les effets de vieillissement dynamique. Les réactions d'oxydation induiraient alors une injection de lacunes

suffisante pour éliminer localement —c'est suffisant en propagation de fissure fragile— l'effet de la température et conduire à la même vitesse de propagation qu'à 550°C.

Les essais de fluage sous air ont montré qu'à 400°C la pression partielle d'oxygène ne semble pas influencer le comportement d'éprouvettes de 200 µm d'épaisseur. L'effet de l'oxygène sur le comportement mécanique, s'il existe, se produit donc sur une épaisseur très faible. Pour s'en assurer, il faudrait peut-être utiliser des éprouvettes plus fines, par exemple de 100 µm. Il serait également intéressant de reproduire ces essais dans le milieu primaire, pour lequel la cinétique de croissance des oxydes est plus rapide. Il faut alors maîtriser parfaitement les conditions de chargement mécanique et disposer d'une extensométrie appropriée. Un autre point important consiste à montrer d'une manière directe que la pression partielle d'oxygène de transition correspond, comme à plus haute température, à un changement de mode d'oxydation du matériau.

IV.2.b. Endommagement des joints de grains

Dans l'état actuel des connaissances, on peut proposer, pour l'endommagement des joints de grains, trois mécanismes entre lesquels il n'est pas encore possible de trancher.

Le premier modèle repose sur l'activation du fluage dislocation dans les grains par injection de lacunes dans le métal, via la réaction à l'interface métal/oxyde. Ces lacunes seraient alors transportées par les dislocations —dont elle faciliteraient au passage les mouvements— et aboutiraient aux joints de grains ; on retrouve ici les modèles développés par Meletis [1993] et Jones [1985]. On peut également imaginer que l'endommagement intergranulaire serait dû à une localisation de la déformation induite par le fluage. La distance caractéristique de tels phénomènes est de l'ordre de la taille de grains, soit une dizaine de micromètres.

On peut également imaginer que l'activation du fluage est limitée au voisinage des joints de grains émergeant à la surface, voire aux joints eux-mêmes (glissement intergranulaire). Cet effet interviendrait à plus basse température, en particulier à 400°C sous air ; il serait suffisamment localisé pour ne pas modifier le comportement macroscopique d'une éprouvette de feuillard. On pourrait ainsi rendre compte de l'absence d'effets d'environnement sur le comportement du feuillard et de la fissuration intergranulaire dans le milieu primaire.

Le troisième modèle suppose que l'endommagement est directement lié au blocage de la croissance des germes d'oxydes par des bouchons de Cr_2O_3 formés à l'aplomb des joints de grains. Les contraintes de croissance des oxydes provoqueraient alors soit une injection extrêmement localisée de lacunes, soit directement une propagation fragile de la fissure dans le joint de grains. Les surfaces fraîches ainsi créées se comporteraient ensuite, en termes d'oxydation, comme des grains et le processus recommencerait.

En milieu aqueux, on peut également penser que le rôle des lacunes pourrait être tenu par l'hydrogène. Celui-ci est en effet produit par l'oxydation et sa fugacité est telle qu'il pourrait aisément pénétrer dans le métal . Il pourrait alors interagir avec les dislocations, comme le proposent Sirois et coll. [1992b]. Aucune pénétration significative d'hydrogène n'a cependant été détectée dans des échantillons non fissurés [Cassagne 1997]. Par ailleurs ce mécanisme ne rend pas compte de la fissuration des joints de grains dans l'air.

Quoi qu'il en soit, la présence d'un film semi-continu de carbures de chrome imposerait un comportement chrome-formeur, rendrait éventuellement la déformation plus homogène (voir Présentation des matériaux) et supprimerait les effets d'environnement. La teneur en chrome élevée de l'Alliage 690 constitue peut-être une solution définitive à ce problème, du moins si aucune zone appauvrie en chrome n'apparaît à la pointe de la fissure, au contact avec le milieu, par exemple après une éventuelle rupture du film d'oxydes.

IV.3. Vers une prise en compte du couplage environnement-comportement dans le calcul de structure

Au terme de cette étude, on dispose, avec l'intégration du comportement mécanique au calcul de structure, d'un outil d'autant plus puissant que la rupture est d'origine « mécanique », liée à un endommagement mécanique accéléré par les effets d'environnement. L'étape suivante consistera à améliorer cet outil en affinant la détermination des champs de contraintes et de déformation locaux en tenant compte des interactions entre l'environnement et le comportement à la pointe de la fissure. Le calcul « idéal » consisterait à coupler le comportement et les effets d'environnement mais on manque encore de données physiques sur les mécanismes de fragilisation des joints de grains, ainsi que sur l'influence de l'état de contraintes et de déformation sur le mode d'oxydation du matériau, notamment au voisinage des joints de grains. On se contentera donc, dans un premier temps, de modifier localement le comportement du matériau pour l'ensemble du calcul.

L'éprouvette n'est plus considérée comme homogène. Deux possibilités se présentent alors pour la modélisation, selon que le caractère hétérogène du matériau se manifeste dans un petit volume « caractéristique » en pointe de fissure ou bien, à une échelle plus fine, dans chaque élément de ce même petit volume.

Dans le premier cas, on considère que chaque élément du maillage reste homogène mais que les éléments « proches de la surface » n'ont pas le même comportement que les autres. Au risque de se heurter à des problèmes de discontinuité à la frontière entre les éléments, on peut alors tester « virtuellement » l'effet d'un adoucissement localisé sur la distribution des contraintes.

Dans le second cas on s'attache à décrire l'endommagement dans les joints de grains, en considérant que l'élément de volume lui-même n'est pas homogène ; on peut par exemple considérer qu'il est biphasé, composé du cœur des grains et d'une « zone affectée par les joints de grains ». On n'utilise donc plus le modèle « une phase », qui décrit le comportement d'un matériau homogène. On passe par un modèle micromécanique de comportement pour relier les contraintes et les déformations moyennes dans chaque phase aux contraintes et aux déformations « homogénéisées » dans l'ensemble de l'élément de volume. Après le calcul complet de l'éprouvette, le modèle micromécanique permet également d'estimer les contraintes et les déformations dans chaque phase pour chaque incrément de la simulation. On peut alors appliquer un critère de rupture « intergranulaire ».

L'association de ces deux approches devrait permettre d'améliorer la connaissance des champs mécaniques locaux, mais aussi de « tester » les différents modèles existants en matière d'interactions corrosion-déformation.

A titre prospectif, quelques calculs ont été menés avec la première approche, en choisissant pour la pointe de la fissure le comportement mécanique identifié à 550°C, qui se distingue du comportement à 360°C par les propriétés en relaxation. Les résultats sont donnés en détail dans l'Annexe D-a_2. On aboutit à des champs de contraintes et de déformation continus, du fait que les propriétés en déformation « rapide » sont quasiment identiques pour les deux températures. Le temps de maintien à la charge maximale se traduit cette fois par une relaxation des contraintes et une déformation lente (10^{-5} s^{-1}). D'un point de vue strictement mécanique, une activation locale des mécanismes de fluage peut donc induire un endommagement local. Ces résultats montent l'intérêt de l'approche, même si les hypothèses de ces premiers calculs demandent à être affinées, notamment en intégrant davantage de données physiques expérimentales.

PROPAGATION DE FISSURE ENTRE 320 ET 400°C :

CONCLUSIONS

Les essais de propagation de fissure ont montré qu'il est non seulement possible mais fructueux de faire le lien entre la fissuration de l'Alliage 600 à haute température et dans le milieu primaire. L'effet de la température en fissuration sous air est essentiellement résumé, pour les conditions mécaniques de fatigue continue utilisées, dans la valeur de la pression partielle d'oxygène de transition. Ceci montre au passage qu'il faut prendre des précautions lors des calculs d'énergies d'activation couramment employés en corrosion sous contrainte.

Dans le milieu primaire, l'Alliage 600 peut également fissurer en fatigue-fluage et/ou en fatigue continue « lente », plus rapidement que lors des essais sur éprouvettes « selle de cheval ». Une équivalence semble par ailleurs se dessiner entre la propagation dans le milieu primaire et dans la vapeur d'eau désaérée à basse pression.

Il reste à vérifier que dans le milieu primaire, les mécanismes de rupture sous sollicitations cycliques (fatigue-corrosion) sont les mêmes que sous sollicitations monotones (corrosion sous contrainte), bien que la rupture périodique du film lors des cycles de fatigue contribue certainement à l'accélération de la propagation observée en fatigue-corrosion.

Dans tous les cas, la rupture des joints de grains se produit avant la formation d'une épaisse couche d'oxydes et —au moins dans le milieu primaire— lorsque le matériau est nickel-formeur. Le calcul des éprouvettes par éléments finis montre qu'il est tout à fait possible que le mécanisme de fissuration intergranulaire soit le même qu'à 550°C, c'est-à-dire qu'il soit dû à un endommagement de fluage, localisé au niveau des joints de grains et accéléré par certains modes d'oxydation.

PROPAGATION DE FISSURE ASSISTEE PAR L'ENVIRONNEMENT

ENTRE 320 ET 400°C

ANNEXES

ANNEXE D-a_1 :
EXPOSITION D'ECHANTILLONS D'ALLIAGE 600
DANS LE MILIEU PRIMAIRE

Les trois séjours effectués en autoclave ont permis d'étudier les modes d'oxydation de l'Alliage 600 dans le milieu primaire à 360°C, en lien avec la résistance du matériau à la corrosion sous contrainte. Différents types d'échantillons ont été exposés dans le milieu :

- des éprouvettes selle de cheval pour les essais de corrosion sous contrainte et des éprouvettes de traction pour l'étude de la fragilisation ;
- des lames minces à observer directement par microscopie électronique en transmission analytique, sans préparation particulière après leur séjour dans le milieu primaire ;
- des plaquettes polies pour caractériser l'oxydation d'échantillons plus épais, comportant des surfaces planes, notamment en préparant des lames minces en section transverse.

L'expertise des échantillons à la sortie de l'autoclave a été effectuée en quatre étapes : observation de la fissuration des éprouvettes selle de cheval, essais mécaniques sur les éprouvettes de traction, caractérisation de la morphologie des couches d'oxydes formées en fonction des conditions de séjour et de l'épaisseur de l'échantillon de départ, enfin étude des oxydes au MET.

I. PREPARATION DES ECHANTILLONS ET CONDITIONS DE SEJOUR

I.1. Eprouvettes « selle de cheval »

Pour chaque campagne, une ou deux éprouvettes selle de cheval ont été mises en forme suivant la procédure FRAMATOME (Figure D-a_1-1a), à partir du tube de générateur de vapeur de la coulée C (Tableau D-a_1-1). Pour le dernier séjour, la seconde éprouvette a subi une déformation plus sévère et a été exposée sans serrage (Figure D-a_1-1b), afin de savoir si l'apparition des fissures ne dépend que des contraintes résiduelles (également présentes dans l'éprouvette non serrée) et/ou du niveau de déformation ou s'il faut appliquer un chargement au cours de l'exposition (éprouvette serrée).

séjour	durée (heures)	P_{H_2} (bar)	nombre d'éprouvettes
2	500	1,45	3
3	500	0,01	2
4	1150	1,95	1 + 1 non serrée

Tableau D-a_1-1 : Conditions d'exposition des éprouvettes selle de cheval

I.2. Eprouvettes de traction

Le caractère « fragile » des joints de grains exposés au milieu primaire a été évalué à l'aide d'éprouvettes de traction, qui ont subi à leur sortie de l'autoclave les mêmes essais que les éprouvettes minces du premier séjour : traction jusqu'à rupture et flexion sur les têtes. La géométrie de ces éprouvettes est représentée sur la Figure D-a_1-2. La plupart d'entre elles ont été prélevées par électroérosion dans la manchette d'adaptateur de la coulée A, réputée très sensible à la corrosion sous contrainte.

Pour le dernier séjour, quelques éprouvettes ont été prélevées par estampage dans le tube de la coulée C, dans une portion de tube écrouie par laminage à froid. Quelques-unes des éprouvettes de chaque lot ont été entaillées pour imposer lors de l'essai de traction un état de contrainte triaxial au matériau exposé dans le milieu primaire. Sept éprouvettes destinées au quatrième séjour ont en outre subi un étirage préalable en traction d'au moins 10% pour étudier l'effet de l'état d'écrouissage sur la fragilisation. De plus, les éprouvettes tirées du tube de générateur de vapeur ont été aplaties au cours de l'estampage.

Deux états de surface ont été choisis pour chaque condition : polissage mécanique au carbure de silicium (1200) ou polissage électrolytique dans un mélange de 45% d'acide acétique, 45% de butoxyéthanol et 10% d'acide perchlorique, à 0°C et sous 30 volts.

I.3. Plaquettes polies

Les plaquettes ont toutes été prélevées par tronçonnage dans la manchette d'adaptateur A ; leur épaisseur a varié entre 150 µm et 1 mm. L'attention a été portée sur l'état de surface obtenu soit par polissage mécanique à la pâte diamantée 3 µm, soit par polissage électrolytique dans les mêmes conditions que les éprouvettes de traction. Le Tableau D-a_1-2 indique la répartition des plaquettes entre les trois séjours en autoclave.

séjour	durée (heures)	P_{H_2} (bar)	nombre de plaquettes
2	500	1,45	19
3	500	0,01	27
4	1150	1,45	11

Tableau D-a_1-2 : Préparation de plaquettes destinées à l'analyse des couches d'oxydes formées dans le milieu primaire

I.4. Lames minces

Les modes d'oxydation de l'Alliage 600 ont également été étudiés à l'aide de lames minces exposées au milieu primaire. Des pastilles de diamètre 3 mm ont été prélevées par électroérosion ou par polissage dans la manchette d'adaptateur A, amincies par polissage mécanique au carbure de silicium (granulométrie 1200) jusqu'à une épaisseur de 150 à

200 µm, puis amincies électrolytiquement au jet, dans les mêmes conditions électrochimiques que les éprouvettes de traction, jusqu'à l'obtention d'un trou au centre de la lame.

La Figure D-a_1-3 montre un des supports en Alliage 600 qui ont été usinés pour maintenir les lames minces dans le milieu. La répartition des lames minces entre les différents séjours est indiquée sur le Tableau D-a_1-3.

séjour	durée (heures)	P_{H_2} (bar)	nombre de lames minces
2	500	1,45	14
3	500	0,01	21
4	1500	1,95	19

Tableau D-a_1-3 : Lames minces destinées à séjourner en milieu primaire

Les lames minces ont été observées au MET, puis au MEB, directement après leur sortie de l'autoclave. Dans le cas du troisième séjour, deux plaquettes polies ont été utilisées pour la confection d'une lame mince en section transverse. A cet effet, elles ont été collées l'une sur l'autre et un morceau de cet assemblage a été inséré dans une tube de laiton de diamètre 3 mm et maintenu par de la résine. Des pastilles découpées par tronçonnage ont ensuite subi un amincissement mécanique (polissage et meulage concave) et ionique avant l'observation au MET.

I.5. Bilan des échantillons exposés

Le Tableau D-a_1-4 résume les études qui ont été menées autour des trois séjours en autoclave.

séjour	durée (heures)	PH_2 (bar)	selles de cheval : corrosion sous contrainte	éprouvettes de traction : fragilisation	plaquettes polies : oxydation	lames minces: oxydation	études spécifiques
2	500	1,45	3	60	19	14	-
3	500	0,01	2	35	27	21	section transverse (MET)
4	1150	1,95	1+1	50 (A) 6 (C)	11	19	une selle de cheval non serrée

Tableau D-a_1-4 : Etude de l'oxydation et de la fragilisation de l'Alliage 600 dans le milieu primaire à 360°C

II. MORPHOLOGIE DES OXYDES FORMES

Comme les plaquettes polies, les lames minces oxydées dans le milieu primaire ont été observées au MEB, où leur faible épaisseur a permis d'obtenir une bonne résolution et de comparer les morphologies respectives des couches observées sur les zones minces, seules observables au MET, et sur les plaquettes polies, plus épaisses. Cette comparaison donne une information, au moins qualitative, sur l'effet de « produit mince », qui pourrait affecter la représentativité des analyses effectuées au MET. La Figure D-a_1-4 et le Tableau D-a_1-5 résument les résultats des observations, qui sont identiques pour les plaquettes polies et les lames minces, à ceci près qu'il a été impossible de résoudre les rosettes formées sur les plaquettes polies exposées lors du troisième séjour.

séjour	durée (heures)	P_{H_2} (bar)	épaisseur de la couche (µm)	morphologie observée
2	500	1,45	< 0,1	petites particules globulaires + quelques gros cristaux
3	500	0,01	> 1	« rosettes » et longues aiguilles très fines substrat plus compact que les rosettes
4	1150	1,95	> 1	« rosettes » + quelques microcristaux substrat plus compact que les rosettes

Tableau D-a_1-5 : Morphologie des oxydes examinés au MEB

III. ETUDE DE L'OXYDATION AU MET ANALYTIQUE

Les oxydes formés sur les lames minces ont été analysés par diffraction électronique en sélection d'aire et par spectrométrie à dispersion d'énergie des rayons X.

III.1. Exposition de 500 heures sous 1,45 bar d'hydrogène

Les cristaux globulaires repérés au MEB reposent sur une fine couche de nanocristaux qui altère peu la transparence des lames aux électrons (Figure D-a_1-5a). Cette couche est composée de NiO et d'oxydes mixtes, notamment $NiFe_2O_4$, faciles à illuminer en fond noir (Figure D-a_1-5b). Certains joints de grains sont recouverts d'un film d'oxydes, probablement $NiCr_2O_4$, composé de particules d'environ 20 nanomètres de diamètre (Figure D-a_1-5c). Les interfaces entre les carbures $Cr_{23}C_6$ et les grains sont également oxydées, sans doute en Cr_2O_3 (Figure D-a_1-5d).

Les lames minces exposées au cours du second séjour sont donc recouvertes d'un mince film d'oxydes riches en fer et en nickel, tandis que les joints de grains forment des oxydes plus riches en chrome. Le matériau est donc « nickel-formeur » dans ces conditions d'exposition au milieu primaire.

III.2. Exposition de 500 heures sous 0,01 bar d'hydrogène

Les rosettes observées au MEB sont en fait des cristaux extrêmement fins qui recouvrent une couche de NiO et d'oxydes mixtes (Figure D-a_1-6). Elles sont monocristallines, souvent hexagonales ; étant de très faible volume, elles participent peu à l'ensemble du cliché de diffraction tandis que l'on détecte NiO en relation d'épitaxie avec le métal (Figure D-a_1-6a). Les rosettes sont très riches en nickel et l'analyse en diffraction électronique montre qu'elles sont composées de $Ni(OH)_2$ (Figure D-a_1-6c), comme celles observées par Angeliu [1993] sur des alliages Ni-17Cr-9Fe de haute pureté, oxydés dans l'eau pure hydrogénée à 360°C. Quelques taches caractéristiques de Cr_2O_3 sont observées par endroits. L'observation en section transverse confirme l'ensemble de ces résultats (Figure D-a_1-6d).

L'Alliage 600 est donc globalement nickel-formeur dans les conditions du troisième séjour. L'absence d'hydrogène a simplement conduit à la formation supplémentaire de rosettes d'hydroxyde de nickel, peut-être par dissolution-reprécipitation.

III.3. Exposition de 1150 heures sous 1,95 bar d'hydrogène

Le dernier séjour a conduit, malgré la présence d'hydrogène tout au long de l'essai, à la précipitation de rosettes d'hydroxyde de nickel, qui dissimulent le plus souvent la surface du métal (Figure D-a_1-7). On détecte toutefois, par diffraction des électrons, des oxydes mixtes, souvent $NiFe_2O_4$ et par endroits de faibles traces de Cr_2O_3. Malgré la durée plus importante du séjour dans le milieu primaire, le matériau ne semble pas avoir formé de sous-couche continue de Cr_2O_3. Il est donc resté nickel-formeur durant cette exposition.

IV. CONCLUSIONS

Dans les trois types de conditions testées, l'Alliage 600 forme des oxydes riches en nickel (NiO et oxydes mixtes), de quelques dizaines à quelques centaines de nanomètres de diamètre, au cours de son séjour dans le milieu primaire. L'oxyde de chrome Cr_2O_3 est rarement détecté mais les joints de grains émergeant en surface semblent former des oxydes riches en chrome, sans doute $NiCr_2O_4$. Une précipitation supplémentaire de plaquettes très fines d'hydroxyde de nickel, a eu lieu au cours des deux derniers séjours. Elle a gêné l'observation de la couche d'oxydes, dont l'analyse n'a pu être effectuée que par diffraction électronique.

Quoi qu'il en soit, l'Alliage 600 est essentiellement nickel-formeur dans les conditions testées. Ce comportement, sans doute lié à un taux de chrome « trop faible », semble aller de pair avec la fissuration des éprouvettes selle de cheval. Pour vérifier ce point, il faudrait disposer de données relatives à une pression partielle d'hydrogène plus élevée, de l'ordre de

20 bars [Economy 1987], pour étudier l'oxydation de l'Alliage 600 lorsqu'il n'est pas affecté par la corrosion sous contrainte. Il faudrait également observer des fissures de corrosion sous contrainte apparues dans des joints de grains contenant ou non des carbures de chrome, afin de connaître l'effet de la présence de ces carbures sur le mode d'oxydation des joints de grains en pointe de fissure intergranulaire. Il faudrait enfin disposer de données analogues avec l'Alliage 690 pour vérifier que sa teneur élevée en chrome le protège en le rendant chrome-formeur.

ANNEXE D-a_2 :

CALCULS DE STRUCTURE SUR EPROUVETTES CT NON HOMOGENES

Les calculs présentés dans cette annexe sont destinés à explorer, d'un point de vue strictement mécanique, l'effet d'une modification locale du comportement en pointe de fissure sur les champs de contrainte et de déformation dans la zone modifiée et son voisinage. On se place à 360°C, température pour laquelle le matériau flue en principe très peu et on cherche à produire, avec les cycles utilisés pour les essais, une déformation viscoplastique « lente » localisée à la pointe de la fissure.

I. CONDITIONS DE CALCUL

I.1. Maillage et comportement mécanique des éléments

Afin de permettre la comparaison avec la simulation sur éprouvette totalement homogène (T = 360°C), on a gardé le même maillage, y compris à la pointe de la fissure. Chaque élément est constitué d'un matériau homogène, isotrope, obéissant au critère de Von Misès ; son comportement est décrit par un jeu de coefficients du modèle « une phase ».

L'hétérogénéité de comportement se situe donc au niveau des variations d'un élément du maillage à l'autre. La plupart d'entre eux ont le comportement déterminé à 360°C. Seul un groupe d'éléments, appelé « zone affectée par l'environnement » (ZAE), proche de la pointe de la fissure, a un comportement mécanique différent. Pour simuler une activation du fluage, par exemple une augmentation de la concentration en lacunes « mobiles », susceptibles de favoriser la restauration, on a affecté —d'une manière arbitraire et à titre prospectif— des coefficients correspondant à une température plus élevée, ici 550°C. La ZAE s'étend sur plusieurs couronnes d'éléments qui entourent la pointe de la fissure, sur une longueur de l'ordre de la taille des grains les plus fins, soit une dizaine de micromètres. Deux valeurs ont été choisies : 7 µm (trois couronnes modifiées) et 11,7 µm (quatre couronnes modifiées) (Figure D-a_2-1).

Pour les déformations « rapides », qui conditionnent de fait le niveau des contraintes, les deux jeux de coefficients représentent des comportements proches l'un de l'autre, en traction comme en fatigue oligocyclique (Tableau D-a_2-1). Dans les deux cas, la sensibilité à la vitesse est très faible. La principale différence entre les deux températures réside dans la capacité qu'a le matériau à 550°C de relaxer les contraintes à déformation imposée. Par mesure de prudence, le dépouillement tient compte cependant d'éventuelles concentrations de contraintes résultant d'incompatibilités de déformation à la frontière de la ZAE.

	traction 10^{-3} s^{-1}			fatigue ± 0,7% 10^{-3} s^{-1}
T (°C)	$Rp_{0,2\%}$ (MPa)	Rm (MPa)	A%	$\Delta\sigma/2$ (MPa)
360	385 à 394	621 à 622	24 à 32	515
550	381	574	20	462

Tableau D-a_2-1 : Quelques propriétés mécaniques de l'Alliage 600 déterminées à 360 et 550°C

I.2. Chargement mécanique des éprouvettes

Les calculs ont été effectués avec les cycles 250-300-10, pour R = 0,8, afin d'évaluer l'effet du temps de maintien à la charge maximale. Rappelons que celui-ci ne permet pas de déformation lente lorsque toute l'éprouvette est décrite par le comportement du matériau à 360°C.

II. RESULTATS

II.1. Déformation en pointe de fissure

Comme pour les calculs sur éprouvette homogène, l'élongation et la rotation des éléments restent modérées, ce qui justifie un calcul en petites déformations avec réactualisation de la géométrie. Le CTOD est un peu plus élevé en présence de la ZAE ; il croît davantage au cours des cycles (Tableau D-a_2-2).

CTOD en µm, à 2 (4) µm de la pointe de la fissure	CT homogène	ZAE = 7 µm	ZAE = 11,7 µm
cycle 1 début maintien à $K = K_{max}$	9 (11)	10,4 (11,8)	10,5 (12,0)
cycle 40 début maintien à $K = K_{max}$	10 (12)	12,1 (13,4)	12,4 (13,8)

Tableau D-a_2-2 : Effet d'une modification locale du comportement sur l'ouverture des lèvres de la fissure

II.2. Forme et étendue de la zone viscoplastique

La présence de la ZAE ne modifie ni la forme (Figure D-a_2-2) ni l'étendue (Tableau D-a_2-3) de la zone viscoplastique au premier cycle. Elle conduit à une extension à peine plus élevée au cours des cycles. La zone viscoplastique englobe en effet largement la ZAE et sa frontière est déterminée par le comportement du matériau à 360°C. La portée de la modification locale du comportement est donc inférieure à la taille de la zone viscoplastique, lorsque la ZAE s'étend sur une dizaine de micromètres autour de la pointe de la fissure.

CT	homogène		ZAE = 7 µm		ZAE = 11,7 µm	
cycle	1	40	1	40	1	40
ω_x (0,05%) (µm)	475	490	475	495	475	500
ω_x (0,2%) (µm)	110	155	110	170	110	180
ω_y (0,05%) (µm)	1825	1830	1825	1840	1825	1835
ω_y (0,2%) (µm)	1000	1020	1000	1020	1000	1020

Tableau D-a_2-3 : Etendue de la zone viscoplastique au début du temps de maintien à la charge maximale

II.3. Etat de contraintes dans le ligament

Les contraintes d'ouverture σ_{yy} et hydrostatique σ_m prennent leurs valeurs maximales sur le ligament ; la frontière de la ZAE ne subit par ailleurs aucune concentration de contraintes, y compris en cisaillement.

La présence de la ZAE réduit le niveau des contraintes (Figures D-a_2-3 et D-a_2-4), en particulier au cours du temps de maintien, tout en éloignant le maximum de la pointe de la fissure. On retrouve alors l'effet du temps de maintien déjà observé avec les simulations à 550°C. Avec une ZAE de 11,7 µm, la contrainte dans la ZAE est très faible à la fin du temps de maintien ; la quasi-totalité de l'énergie potentielle élastique a donc été consommée par la déformation viscoplastique liée à la relaxation des contraintes. Ceci est particulièrement net pour le premier cycle, le niveau des contraintes diminuant sensiblement au cours des cycles suivants. En termes de contraintes, la présence de la ZAE est donc bénéfique à 360°C, tout comme la relaxation des contraintes l'est à 550°C.

II.4. Courbes contrainte-déformation

Les Figures D-a_2-5 et D-a_2-6 montrent l'effet de la ZAE sur la redistribution des contraintes pour les nœuds 15 et 51, déjà étudiés dans le cas de l'éprouvette homogène. Le nœud 15 est situé à l'intérieur de la ZAE ; il subit des cycles de fatigue oligocyclique qui deviennent symétriques en contrainte, malgré le rapport de charge macroscopique très élevé (0,8). L'effet ne devient sensible pour le nœud 51 qu'à partir du moment où celui-ci touche la ZAE (Figure D-a_2-6c). La présence de la ZAE entraîne en revanche une déformation importante lors du premier cycle et un effet de rochet plus important que lorsque l'éprouvette est homogène.

II.5. Vitesse de déformation viscoplastique sur le ligament

Au bout de quelques cycles, la vitesse de déformation viscoplastique suit une évolution périodique pour les deux nœuds considérés et le temps de maintien se traduit localement par une déformation lente à 10^{-5} s^{-1}, que l'on n'a pas rencontrée sur l'éprouvette homogène. Comme à 550°C, un endommagement local est alors possible dans l'ensemble de la ZAE, c'est-à-dire ici sur le premier grain en avant de la pointe de la fissure.

III. CONCLUSIONS

Les calculs sur éprouvettes CT non homogènes ont montré qu'en modifiant localement les propriétés mécaniques du matériau en relaxation, on ne provoque ni durcissement localisé ni concentration de contraintes à la frontière entre la ZAE et le reste de l'éprouvette. Les cycles sont plus symétriques en contraintes et une déformation lente en pointe de fissure apparaît au cours du temps de maintien, pouvant provoquer un endommagement analogue à celui qui a été observé à 550°C. C'est bien ce que l'on retrouve lors des essais de propagation de fissure.

L'ensemble de ces calculs ont été effectués à titre prédictif, comme une première étape de l'intégration des interactions mécanique-environnement dans le calcul de structure. Ils ont permis de vérifier, d'un point de vue mécanique, la validité du concept d'activation locale du fluage, qui gouverne la vitesse de propagation de fissure en fatigue continue (cycles 20-20). Les hypothèses de ces premiers calculs, en particulier sur la modification du comportement mécanique, sont particulièrement simples. Elles demandent à être affinées et davantage appuyées sur des bases physiques.

Un dialogue permanent doit donc être mis en place entre la détermination des contraintes et des déformations locales (calcul de structure) et la mise en évidence expérimentale du couplage mécanique-environnement. Un premier va-et-vient a déjà été effectué dans le cadre de cette étude :

- caractérisation mécanique de l'effet de la forme du cycle par le calcul de structure sur éprouvette homogène ;
- prise en compte de l'activation locale du fluage, observée à 550°C, dans le calcul des éprouvettes sollicitées à 360°C ;
- nouvelle caractérisation mécanique de l'effet de la forme du cycle à 360°C.

Ces premiers jalons doivent être dépassés par la compréhension plus fine des phénomènes, à la fois électrochimiques et mécaniques, en vue de déterminer le mécanisme de propagation de fissure. Deux objectifs particuliers sont visés :

- prédire des vitesses de propagation de fissure à partir de données physiques ;
- comprendre et évaluer quantitativement l'impact des modifications de microstructure (précipitation de carbures dans les joints de grains) ou de composition chimique (passage à l'Alliage 690) sur la résistance du matériau à la propagation de fissure intergranulaire.

CONCLUSIONS

L'ensemble des résultats obtenus dans les différentes conditions de propagation de fissure testées au cours de cette étude montre l'intérêt de l'approche qui a été suivie : construire et utiliser un outil d'estimation des sollicitations mécaniques locales pour explorer, à l'aide d'essais spécifiques, les interactions mécanique-environnement.

Etude des sollicitations mécaniques en pointe de fissure

Le comportement mécanique de l'Alliage 600, déterminé et modélisé en condition isotherme entre 20 et 600°C, est gouverné par la compétition entre deux termes :

- une composante viscoplastique, qui croît avec la température et produit un écrouissage essentiellement cinématique ;

- des phénomènes dits de vieillissement, dont l'influence est maximale aux environs de 360 à 400°C, qui se traduisent par un fort effet Portevin-Le Chatelier entre 300 et 600°C, une sensibilité à la vitesse très faible, voire négative et une évolution de la limite d'élasticité au cours du maintien à déformation totale constante (vieillissement statique).

L'utilisation des données expérimentales dans le calcul de structure sur éprouvettes CT montre qu'à 550°C l'effet de la forme des cycles est caractérisé, à l'échelle locale, par la vitesse de déformation imposée au matériau en pointe de fissure. Les calculs relatifs aux essais à plus basse température ne font cependant pas apparaître d'effet du temps de maintien à la charge maximale.

Le modèle de comportement représente correctement les données expérimentales en traction et en fatigue oligocyclique uniaxiales et peut être utilisé, grâce au calcul de structure, pour l'interprétation des essais de corrosion sous contrainte, en particulier lorsqu'une composante cyclique est introduite par écrouissage du matériau. Une validation supplémentaire est cependant nécessaire avant d'aborder les calculs sous sollicitations triaxiales, en particulier pour des chargements non proportionnels, comme c'est par exemple le cas des éprouvettes selle de cheval.

Propagation de fissure dans l'air à haute température

Dans l'air à haute température, on retrouve, en fatigue continue, la même transition que sur les superalliages. Elle correspond à une accélération de la propagation d'un facteur cinq, à un changement de mode de rupture, qui devient intergranulaire et à un changement du mode d'oxydation, le matériau formant des oxydes riches en fer et en nickel pour les pressions partielles d'oxygène supérieures à la pression de transition. La superposition d'un temps de maintien à la charge maximale supprime l'effet d'environnement, la propagation étant dans ce cas rapide et intergranulaire, y compris sous vide secondaire. Ce dernier résultat montre que la fissuration des joints de grains à faible vitesse de déformation est due à un endommagement de fluage, qui peut également être activé par l'environnement jusqu'à intervenir d'une manière significative au cours des cycles, plus rapides, de fatigue continue.

Le couplage mécanique-environnement a été attribué à une injection de défauts ponctuels géométriquement nécessaires (lacunes) au cours de la réaction d'oxydation, lorsque le matériau forme préférentiellement des oxydes à base de nickel et de fer. Il s'ensuit notamment une accélération du fluage dislocation, observable sur feuillards minces, qui peut être très préjudiciable à la tenue des joints de grains. Dans des conditions de sollicitations mécaniques et d'environnement données, la résistance du matériau à la propagation de fissure intergranulaire dépend de sa composition chimique, le taux de chrome déterminant l'aptitude de la surface du métal à former Cr_2O_3. Elle dépend également du caractère plus ou moins endommageant des modes de déformation liés au fluage dislocation (hétérogénéité du glissement et/ou transport de lacunes vers les joints de grains), en lien avec la nocivité de l'injection de défauts ponctuels au cours des premiers stades de l'oxydation. Elle est donc intimement liée aux propriétés locales du matériau, en particulier près des joints de grains. L'activation du fluage lorsque le matériau ne peut former suffisamment vite Cr_2O_3 permet enfin d'interpréter l'effet de la pression partielle d'oxygène en fatigue continue.

Les mécanismes de fragilisation des joints de grains pourraient également intervenir dans le cas d'autres solutions solides à base de nickel, voire des superalliages eux-mêmes. Il serait intéressant de le vérifier, en particulier avec des essais sur produits minces.

Passage des hautes températures vers le milieu primaire

La propagation de fissure à 400°C en fonction de la pression partielle d'oxygène garde les mêmes caractéristiques qu'à 550°C, alors que l'Alliage 600 se déforme très peu lors des essais de fluage. Seule la pression de transition évolue, sans doute à cause des évolutions relatives des cinétiques de formation des différents oxydes à la surface du matériau. Les essais sur éprouvettes lisses ne fournissent donc pas une information exhaustive sur la résistance du matériau à la propagation de fissure, même dans des milieux notoirement moins agressifs que le milieu primaire : si l'amorçage de fissures intergranulaires n'est pas favorisé dans ces conditions thermiques et chimiques, leur propagation est en revanche tout à fait possible et même aussi rapide qu'à plus haute température. Les essais sous hydrogène conduisent à des résultats analogues, même si la propagation est dans ce cas transgranulaire et fait peut-être intervenir d'autres couplages mécanique-environnement.

La propagation de fissure à 400°C dans la vapeur d'eau désaérée est intergranulaire, aussi rapide que sous air et conduit aux mêmes faciès de rupture que les essais de corrosion sous contrainte, alors que l'essai lui-même est moins difficile à mettre en œuvre qu'en autoclave sous haute pression.

Les essais dans le milieu primaire montrent que l'on peut faire propager rapidement à 320°C une fissure intergranulaire, semblable aux fissures de corrosion sous contrainte, en appliquant des sollicitations mécaniques cycliques de très faible amplitude : $\Delta K = 8{,}9\ MPa\sqrt{m}$ est de l'ordre du seuil de non-propagation généralement relevé lors des essais à charge constante sur éprouvettes de mécanique de la rupture. La fragilisation d'éprouvettes minces à 360°C en milieu pollué et la fissuration d'éprouvettes selles de cheval, en moins de 500 heures, sous 0,1 et 1,45 bar d'hydrogène montrent le rôle crucial du film d'oxydes formé lors de l'exposition

dans le milieu, ainsi que la nécessité d'une très bonne maîtrise des conditions électrochimiques. Les échantillons exposés au milieu primaire et expertisés au cours de cette étude montrent que les fissures de corrosion sous contrainte se propagent dans un matériau nickel-formeur, au cours des premières étapes de l'oxydation.

La propagation de fissure intergranulaire dans l'Alliage 600 dans les différentes conditions thermiques et électrochimiques explorées au cours de cette étude pourrait être le fait d'un mécanisme unique : l'injection de défauts ponctuels qui accélère l'endommagement lié au fluage dislocation au cours de la réaction d'oxydation, lorsque le matériau ne forme pas préférentiellement Cr_2O_3. Le passage de la fissuration assistée par l'oxydation à haute température à la propagation de fissure dans le milieu primaire est donc à la fois légitime et réussi, même si le rôle de l'hydrogène de l'eau n'est pas encore éclairci.

Il reste à affiner la comparaison entre les essais cycliques (fatigue-corrosion) et les essais monotones (corrosion sous contrainte) dans le milieu primaire, en fonction notamment de la température, des conditions électrochimiques et de la microstructure du matériau. L'effet de ces paramètres est en effet bien établi en corrosion sous contrainte.

Perspectives

Les résultats de cette étude, en particulier la compréhension des interactions entre la sollicitation mécanique et les effets d'environnement à haute température, ont été obtenus à l'aide de trois éléments dont l'association constitue un outil puissant d'investigation de ce type d'interactions :

- la caractérisation et la modélisation du comportement sur éprouvette lisse, utilisées pour estimer les sollicitations mécaniques en pointe de fissure à l'aide de calculs par éléments finis ;

- les essais de propagation de fissure en fonction de l'environnement et de la forme du cycle ;

- les essais de couplage entre l'environnement et le comportement mécanique, notamment sur produit mince, en lien avec les modes d'oxydation du matériau.

Cet outil a été validé d'une manière satisfaisante dans le cas de l'air à 550°C. Il a donné des résultats intéressants à plus basse température, en particulier dans des environnements proches du milieu primaire mais moins difficiles à maîtriser du point de vue expérimental. Il peut être mis en œuvre pour déterminer l'effet de la précipitation de carbures de chrome intergranulaires sur la résistance de l'Alliage 600 à la corrosion sous contrainte dans le milieu primaire, voire sous vide pour différentes valeurs de la pression partielle d'oxygène. Les carbures intergranulaires peuvent en effet perturber les deux termes du couplage, d'une part en constituant des sources de chrome qui interviennent à point nommé lors de l'oxydation des éventuelles amorces de fissures intergranulaires, d'autre part en rendant plus homogène la déformation dans le matériau, réduisant ainsi les concentrations locales de contraintes au niveau des joints de grains.

On pourrait également évaluer la résistance de l'Alliage 690, plus riche en chrome, à la propagation de fissure intergranulaire, sachant que l'on n'observe pas de pression de transition à 650°C avec les alliages binaires nickel-chrome contenant 30% de chrome. On peut également envisager des essais sur d'autres couples matériau-environnement, en étudiant par exemple les interactions hydrogène-plasticité en lien avec la fragilisation par l'hydrogène de certains alliages base nickel et base fer.

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION

A - PRESENTATION DES MATERIAUX

I. PROPRIETES METALLURGIQUES REMARQUABLES DE L'ALLIAGE 600 ... A-1
I.1. Caractéristiques métallurgiques et chimiques de l'Alliage 600 ... A-1
I.2. Propriétés cristallographiques des joints de grains ... A-8
I.3. Influence des propriétés métallurgiques de l'Alliage 600 sur sa résistance à la corrosion sous contrainte dans le milieu primaire ... A-14
I.4. Conclusions ... A-16

II. CHOIX DES MATERIAUX DE L'ETUDE ... A-17

III. PROPRIETES DES MATERIAUX DE L'ETUDE ... A-17
III.1. Origine des matériaux ... A-17
III.2. Compositions chimiques ... A-18
III.3. Traitements thermiques et microstructures résultantes ... A-18
III.4. Stabilité de la microstructure au cours des essais mécaniques ... A-20
III.5. Propriétés mécaniques élémentaires des produits étudiés ... A-21

IV. UTILISATION DES MATERIAUX FOURNIS POUR L'ETUDE ... A-22

B - COMPORTEMENT MECANIQUE DE L'ALLIAGE 600

Chapitre B-1 : Contexte de l'étude

I. PHENOMENES DE VIEILLISSEMENT ... B-2
I.1. Cadre général des études sur le vieillissement ... B-3
I.2. Modélisation des phénomènes de vieillissement ... B-4
I.3. Nickel et alliages nickel-carbone ... B-7
I.4. Alliages nickel-chrome ... B-7
I.5. Alliage 316L ... B-7
I.6. Résultats obtenus avec l'Alliage 600 ... B-8
I.7. Conclusions ... B-10

II. MODES DE DEFORMATION DE L'ALLIAGE 600 ... B-10
II.1. Déformation dans les grains ... B-10
II.2. Déformation au voisinage des joints de grains ... B-13
II.3. Conclusions ... B-15

III. PROPRIETES EN FLUAGE DE L'ALLIAGE 600 ET DES ALLIAGES Ni-Cr-Fe-C ULTRA-PURS ... B-15
III.1. Données fondamentales sur le fluage d'alliages proches de l'Alliage 600 ... B-16
III.2. Fluage des alliages Ni-Cr-Fe-C ultra-purs en milieu inerte ... B-17
III.3. Fluage de l'Alliage 600 ... B-19
III.4. Conclusions ... B-20

IV. DEMARCHE ADOPTEE ... B-21
IV.1. Démarche « élément de volume » ... B-21
IV.2. Domaine de température exploré ... B-21
IV.3. Domaine de vitesse de déformation exploré ... B-22
IV.4. Conclusions ... B-23

Chapitre B-2 : Etude expérimentale

I. PRESENTATION DES ESSAIS B-25
I.1. Essais de traction B-25
I.2. Essais cycliques B-26
I.3. Plan d'expérience B-28

II. PROPRIETES MECANIQUES DE L'ALLIAGE 600 A LA TEMPERATURE AMBIANTE B-30
II.1. Comportement en traction B-30
II.2. Comportement en fatigue oligocyclique B-31
II.3. Couplage entre le comportement en traction et le comportement cyclique B-32
II.4. Conclusions : propriétés mécaniques de l'Alliage 600 à 25°C B-33

III. PROPRIETES MECANIQUES DE L'ALLIAGE 600 ENTRE 300 ET 400°C B-34
III.1. Comportement en traction B-34
III.2. Comportement en fatigue oligocyclique B-35
III.3. Effets de viscosité : fluage et relaxation B-36
III.4. Conclusions : propriétés mécaniques de l'Alliage 600 entre 300 et 400°C B-37

IV. PROPRIETES MECANIQUES DE L'ALLIAGE 600 A 550 ET 600°C B-37
IV.1. Comportement en traction B-38
IV.2. Comportement en fatigue oligocyclique B-38
IV.3. Effets de viscosité : comportement en relaxation B-39
IV.4. Conclusions : propriétés mécaniques de l'Alliage 600 à 550 et 600°C B-40

V. CONCLUSIONS : PRINCIPALES PROPRIETES MECANIQUES DE L'ALLIAGE 600 EN FONCTION DE LA TEMPERATURE B-40
V.1. Comportement de l'Alliage 600 en traction B-40
V.2. Comportement cyclique de l'Alliage 600. Effets de viscosité B-40

Chapitre B-3 : Modélisation

I. CADRE DE LA MODELISATION B-44
I.1. Choix du cadre de la modélisation B-44
I.2. Choix des phénomènes modélisés B-45
I.3. Démarche de modélisation B-45

II. IDENTIFICATION DES COEFFICIENTS D'UNE LOI PUISSANCE EN TRACTION SIMPLE B-46
II.1. Description du modèle et résultats de l'identification B-46
II.2. Utilisation du modèle B-46

III. MODELE PHENOMENOLOGIQUE « UNE PHASE » B-46
III.1. Présentation du modèle B-46
III.2. Conditions d'utilisation du modèle B-52

IV. RESULTATS DONNES PAR LE MODELE « UNE PHASE » B-52
IV.1. Identification des coefficients du modèle « une phase » à 360°C B-52
IV.2. Identification des coefficients du modèle « une phase » à 550°C B-54
IV.3. Modèle « une phase » : conclusions B-55

Chapitre B-4 : Calcul de structure

I. CADRE THEORIQUE DES CALCULS DE STRUCTURE B-57
I.1. Mécanique linéaire de la rupture en fatigue B-58
I.2. Intervention du fluage B-59
I.3. Résolution de la singularité des contraintes en pointe de fissure B-59
I.4. Application à la fissuration assistée par l'environnement B-60

II. MISE EN ŒUVRE DES CALCULS B-61
II.1. Conditions géométriques B-61
II.2. Comportement du matériau B-62
II.3. Chargement mécanique B-62
II.4. Exploitation des résultats B-63

III. RESULTATS OBTENUS A 550°C B-63
III.1. Déformation des éléments en pointe de fissure B-63
III.2. Forme et étendue de la zone viscoplastique B-64
III.3. Etat de contraintes dans le ligament B-65
III.4. Evolution de la contrainte d'ouverture sur le ligament B-67
III.5. Evolution de la contrainte hydrostatique sur le ligament B-69
III.6. Evolution de la déformation viscoplastique cumulée B-70
III.7. Discussion : application aux essais de propagation de fissure B-71

IV. RESULTATS OBTENUS A 360°C B-72
IV.1. Déformation des éléments en pointe de fissure B-72
IV.2. Forme et étendue de la zone viscoplastique B-73
IV.3. Etat de contraintes dans le ligament B-73
IV.4. Evolution de la contrainte d'ouverture sur le ligament B-74
IV.5. Evolution de la contrainte hydrostatique sur le ligament B-76
IV.6. Evolution de la déformation viscoplastique cumulée B-77
IV.7. Discussion : application aux essais de propagation de fissure B-77

V. CONCLUSIONS : APPORTS DU CALCUL DE STRUCTURE B-78

Chapitre B-5 : Application à la fissuration assistée par l'environnement

I. INTERPRETATION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX ACQUIS EN CORROSION SOUS CONTRAINTE B-81
I.1. Calcul des champs de contrainte et de déformation dans des structures complexes B-81
I.2. Ecrouissage cinématique et rôle d'un chargement cyclique B-82
I.3. Rôle de la déformation « lente » B-83

II. CONCEPTION D'ESSAIS DE CORROSION SOUS CONTRAINTE B-84
II.1. Choix d'un paramètre de chargement mécanique B-84
II.2. Effet de la vitesse de déformation au voisinage de la pointe d'une fissure de corrosion sous contrainte B-84

III. REFLEXION SUR LES MECANISMES DE FISSURATION DE L'ALLIAGE 600 ASSISTEE PAR L'ENVIRONNEMENT B-85
III.1. Déformation au voisinage des joints de grains B-86
III.2. Comportement mécanique et effets d'environnement B-86

IV. ESSAIS DE PROPAGATION DE FISSURE B-87

C - PROPAGATION DE FISSURE ASSISTEE PAR L'OXYDATION A 550°C

Chapitre C-1 : Contexte de l'étude

I. EFFET DE L'ENVIRONNEMENT SUR LA TENUE MECANIQUE DES MATERIAUX METALLIQUES C-2
I.1. Le « trou de ductilité » des alliages base nickel C-2
I.2. Mise en évidence de l'effet de l'environnement C-3

II. EFFETS D'ENVIRONNEMENT ET PROPAGATION DE FISSURE C-5
II.1. Mise en évidence de l'effet d'environnement sur la propagation de fissure C-5
II.2. Influence du mode de sollicitation mécanique sur l'effet de l'environnement C-8
II.3. Effet de l'environnement en dehors de toute sollicitation mécanique C-9

III. INTERVENTION DES PROPRIETES DU MATERIAU DANS LE COUPLAGE ENTRE FISSURATION ET ENVIRONNEMENT C-12
III.1. Détermination des sollicitations mécaniques les plus « endommageantes » C-13
III.2. Intervention du comportement mécanique du matériau dans le couplage entre la propagation de fissure et les effets d'environnement C-14
III.3. Amélioration de la résistance des superalliages base nickel à la propagation de fissure C-14
III.4. Prédiction de la tenue des pièces en service C-18
III.5. Conclusions C-20

IV. DONNEES COMPLEMENTAIRES UTILES A L'ETUDE C-21
IV.1. Données disponibles sur l'Alliage 600 ..... C-21
IV.2. Effets possibles des réactions en surface sur le comportement de matériaux métalliques . C-23
IV.3. Oxydation du nickel et croissance de NiO C-24
IV.4. Modélisation des réactions à l'interface métal/oxyde C-26

V. DEMARCHE ADOPTEE AU COURS DE L'ETUDE C-27

Chapitre C-2 : Essais de propagation de fissure

I. CONDITIONS EXPERIMENTALES C-29
I.1. Géométrie des éprouvettes C-29
I.2. Montage expérimental C-30
I.3. Choix des conditions d'essai C-30

II. RESULTATS C-32
II.1. Effet de la pression partielle d'oxygène sur la vitesse de propagation de la fissure C-32
II.2. Effet de la pression partielle d'oxygène sur le mode de rupture C-33
II.3. Conclusions C-33

III. INFORMATIONS APPORTEES PAR LE CALCUL DE STRUCTURE SUR LE MECANISME DE PROPAGATION DE FISSURE C-34
III.1. Rôle de la vitesse de déformation locale C-34
III.2. Rôle de l'environnement dans le mécanisme de fissuration C-35

Chapitre C-3 : Effets d'environnement

I. OXYDATION DE L'ALLIAGE 600 SOUS AIR ENTRE 550 ET 650°C C-37
I.1. Cinétique d'oxydation du feuillard D (épaisseur 100 µm) à 550°C C-37
I.2. Oxydation de lames minces d'Alliage 600 à 650°C C-40
I.3. Conclusions C-42

II. EFFET DE LA PRESSION PARTIELLE D'OXYGENE SUR LE COMPORTEMENT DE L'ALLIAGE 600 EN PRODUIT MINCE A 550°C ... C-43
II.1. Description des essais C-43
II.2. Résultats obtenus en traction C-46
II.3. Aspects macroscopiques du comportement en fluage C-47
II.4. Modes d'endommagement et de rupture des éprouvettes testées en fluage C-49

III. DISCUSSION : EFFET DE L'ENVIRONNEMENT SUR LE COMPORTEMENT MECANIQUE EN FLUAGE DE L'ALLIAGE 600 EN PRODUIT MINCE C-52
III.1. Effet de la correction du zéro électrique de charge appliquée sous vide C-52
III.2. Comparaison des résultats avec les données disponibles sur l'alliage Ni-20Cr C-53
III.3. Influence de la couche d'oxydes sur la réponse mécanique globale des éprouvettes C-55
III.4. Influence du mode de sollicitation mécanique sur l'effet de l'environnement C-57
III.5. Couplage entre l'effet d'environnement et le comportement mécanique du feuillard C-57

IV. PROPOSITION D'UN MECANISME DE COUPLAGE ENTRE LE COMPORTEMENT DU FEUILLARD ET LES EFFETS D'ENVIRONNEMENT C-58
IV.1. Modélisation de l'accélération du fluage induite par la présence d'air C-58
IV.2. Modélisation de l'effet de l'environnement C-59
IV.3. Conditions d'application en pointe de fissure C-59

V. APPORT DES ESSAIS SUR PRODUIT MINCE DANS L'ETUDE DU MECANISME DE FISSURATION DE L'ALLIAGE 600 A 550°C C-61
V.1. Couplage mécanique-environnement à 550°C C-61
V.2. Comparaison avec les superalliages base nickel testés à 650°C C-62
V.3. Représentation des effets d'environnement en fonction de la vitesse de déformation locale imposée C-63
V.4. Conclusions C-65

D - PROPAGATION DE FISSURE ASSISTEE PAR L'ENVIRONNEMENT ENTRE 320 ET 400°C

Chapitre D-1 : Contexte de l'étude

I. MOYENS D'ETUDE DE LA CORROSION SOUS CONTRAINTE DE L'ALLIAGE 600 ..... D-2
I.1. Essais de corrosion sous contrainte D-2
I.2. Exploitation des essais de corrosion sous contrainte D-4
I.3. Conclusions D-5

II. ETUDES PARAMETRIQUES DE LA CORROSION SOUS CONTRAINTE DE L'ALLIAGE 600 DANS LE MILIEU PRIMAIRE D-6
II.1. Influence de la température d'essai D-6
II.2. Influence de la composition chimique du milieu D-7
II.3. Influence du potentiel électrochimique et de la pression partielle d'hydrogène D-7
II.4. Influence de la composition chimique et de la microstructure de l'Alliage 600 ..... D-8
II.5. Influence des paramètres de chargement mécanique D-9
II.6. Conclusions : paramètres déterminants D-10

III. MODELES D'ENDOMMAGEMENT INDUIT PAR DES REACTIONS ELECTROCHIMIQUES D-12
III.1. Consommation du métal par dissolution anodique D-12
III.2. Pénétration d'espèces fragilisantes D-15

IV. MODELES D'ENDOMMAGEMENT MECANIQUE ASSISTE PAR L'ENVIRONNEMENT D-18
IV.1. Clivage induit par rupture du film D-18
IV.2. Cumul d'endommagement lié au fluage dans le volume du matériau D-18
IV.3. Rôle du glissement intergranulaire D-19
IV.4. Rôle du caractère plus ou moins homogène de la déformation D-19
IV.5. Conclusions : effets des paramètres mécaniques D-20

V. COUPLAGE ENTRE LE COMPORTEMENT MECANIQUE LOCAL ET LES EFFETS D'ENVIRONNEMENT D-20
V.1. Influence du milieu primaire sur le comportement en fluage D-20
V.2. Couplage entre les effets d'environnement et le comportement mécanique local D-21
V.3. Mise en évidence expérimentale du couplage environnement-déformation en fatigue-corrosion D-23
V.4. Conclusions D-25

VI. PREVISION DE LA DUREE DE VIE DES PIECES EN SERVICE D-26
VI.1. Modèle de cumul d'endommagement D-26
VI.2. Modèles phénoménologiques de propagation de fissure D-27
VI.3. Modèle « stochastique » D-27

VII. CONCLUSIONS. DEMARCHE SUIVIE AU COURS DE L'ETUDE D-27
VII.1. Opportunité d'une comparaison entre la fissuration sous air à haute température et la corrosion sous contrainte D-28
VII.2. Passage de la fissuration sous air à haute température à la corrosion sous contrainte D-29

Chapitre D-2 : Essais de propagation de fissure

I. CONDITIONS D'ESSAI EN MILIEU GAZEUX A 400°C D-31
I.1. Géométrie et prélèvement des éprouvettes D-31
I.2. Sollicitations mécaniques imposées D-32
I.3. Conditions d'environnement D-32
I.4. Grandeurs mesurées D-32

II. RESULTATS EXPERIMENTAUX OBTENUS A 400°C D-33
II.1. Vitesse de propagation de fissure D-33
II.2. Modes de rupture de l'Alliage 600 à 400°C en fonction de l'environnement D-35
II.3. Discussion : propagation de fissure dans l'Alliage 600 à 400°C D-36

III. CONDITIONS D'ESSAI DANS LE MILIEU PRIMAIRE A 320°C D-37
III.1. Choix de l'éprouvette et des sollicitations mécaniques D-37
III.2. Conditions d'environnement D-39
III.3. Grandeurs mesurées D-39

IV. RESULTATS EXPERIMENTAUX OBTENUS DANS LE MILIEU PRIMAIRE A 320°C D-39
IV.1. Vitesse de propagation de la fissure D-39
IV.2. Mode de rupture D-40
IV.3. Discussion : propagation de fissure dans l'Alliage 600 dans le milieu primaire D-40

V. VERS UN MECANISME DE PROPAGATION DE FISSURE DANS LE MILIEU PRIMAIRE D-40
V.1. Succès du passage « des hautes températures vers le milieu primaire » D-40
V.2. Couplage mécanique-environnement et propagation de fissure D-42
V.3. Interactions environnement-comportement et calcul de structure D-43

Chapitre D-3 : Effets d'environnement

I. ESSAIS DE FLUAGE SUR LE FEUILLARD A 400°C D-45

II. FRAGILISATION D'EPROUVETTES MINCES D'ALLIAGE 600 DANS LE MILIEU PRIMAIRE POLLUE D-46
II.1. Conditions expérimentales du séjour en capsule D-47
II.2. Mise en évidence de la fragilisation des joints de grains D-49
II.3. Etude de la fragilisation intergranulaire D-49
II.4. Discussion : mécanismes de fragilisation possibles D-52

III. RESULTATS OBTENUS DANS LE MILIEU PRIMAIRE D-53
III.1. Fissuration des éprouvettes selle de cheval D-53
III.2. Absence de fragilisation après les trois séjours en autoclave D-54
III.3. Analyse des films formés dans le milieu primaire D-54
III.4. Conclusions D-55

IV. MODELISATION DES EFFETS D'ENVIRONNEMENT ENTRE 320 ET 400°C D-55
IV.1. Eprouvettes minces fragilisées en milieu pollué D-55
IV.2. Propagation de fissure assistée par l'environnement D-55
IV.3. Vers une prise en compte du couplage environnement-comportement dans le calcul de structure D-57

CONCLUSIONS

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

Achon P., « Comportement et ténacité d'alliages d'aluminium à haute résistance », *Thèse de Doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris* (octobre 1994).

Achter M.R., Fox H.W., « The effect of surface adsorption of gas on crack propagation », *Transactions of the Metallurgical Society of AIME*, **215** (1959), pp 295-296.

Achter M.R., Danek G.J. Jr., Smith H.H., « Effect on fatigue of gaseous environments under varying temperature and pressure », *Transactions of the Metallurgical Society of AIME*, **227** (1963), pp. 1296-1301.

Andrieu E., « Influence de l'environnement sur la propagation des fissures dans un superalliage base nickel : l'Inconel 718 », *Thèse de Doctorat, Ecole Nationale Supéreure des Mines de Paris* (janvier 1987[a]).

Andrieu E., Hénon J.P., « Effect of the environment on the high temperature embrittlement of Inconel 718 », *Materials science and engineering*, **88** (1987[b]), pp. 191-197.

Andrieu E., Cozar R., Pineau A., « Effect of environment and microstructure on the high temperature behavior of Alloy 718 », in *: Superalloy 718—metallurgy and applications*, ed. E.A. Loria, The Minerals, Metals and Materials Society 1989, pp. 241-256.

Andrieu E., Hochstetter G., Molins R., Pineau A., « Oxidation and intergranular cracking behaviour of two high strength Ni-base superalloys », in : *Corrosion-deformation interactions CDI'92*, eds. T. Magnin et J.-M. Gras, Les éditions de physique 1993, pp. 461-475.

Andrieu E., Hochstetter G., Molins R., Pineau A., « Oxidation mechanisms in relation to high temperature fatigue crack growth properties of Alloy 718 », in : *Superalloys 718, 625, 706 and various derivatives*, ed. E.A. Loria, The Minerals, Metals and Materials Society 1994, pp. 619-631.

Angeliu T.M., Was G.S., « The effect of chromium, carbon, and yttrium on the oxidation of nickel-base alloys in high temperature water », *Journal of the electrochemical society*, **140** (1993), pp. 1877-1883.

Angeliu T.M., Was G.S., « Creep and intergranular cracking of Ni-Cr-Fe-C in 360°C argon », *Metallurgical and materials transactions A*, **25A** (1994), pp.1169-1183.

Angeliu T.M., Paraventi D.J., Was G.S., « Creep and intergranular cracking behavior of nickel-chromium-iron-carbon alloys in 360°C water », *Corrosion*, **51** (1995), pp. 837-848.

Ashby M.F., Gandhi C., Taplin D.M.R., « Fracture-mechanism maps and their construction for F.C.C. metals and alloys », *Acta metallurgica,* **27** (1979), pp. 699-729.

Atkinson A., « Wagner theory and short circuit diffusion », *Materials science and technology*, **4** (1988), pp. 1046-1051.

Aust K.T., Erb U., Palumbo G., « Interface control for resistance to intergranular cracking », *Materials science and engineering*, **A176** (1994), pp. 329-334.

Bandy R., Van Rooyen D., « Tests with Inconel 600 to obtain quantitative stress corrosion cracking data for evaluating service performance », *Rapport NUREG-31814,* BNL, Upton, NY (septembre 1982), 12 p.

Bandy R., Van Rooyen D., « Stress corrosion cracking of Inconel Alloy 600 in high temperature water—an update », *Corrosion*, **40** (1984), pp. 425-430.

Bandy R., Van Rooyen D., « Quantitative examination of stress corrosion cracking of Alloy 600 in high temperature water », *Nuclear engineering and design*, **86** (1985), pp. 49-56.

Barsom J.M., « Effect of cyclic stress form on corrosion fatigue crack propagation below K_{Iscc} in a high yield strength steel », in : *Corrosion fatigue : chemistry, mechanics and microstructure (NACE-2),* eds. O. Devereux, A.J. McEvily, R.W. Staehle, NACE 1972, pp. 424-436.

Berge P., « Can PWR U-tube steam generators work safely ? », in : *Third international symposium on environmental degradation of materials in nuclear power systems—water reactors*, eds. G.J. Theus et J.R. Weeks, The Metallurgical Society 1988, pp. 49-54.

Blanc D., « Effet de soluté et déformation plastique d'un acier inoxydable austénitique », *Thèse de Doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris* (mars 1986).

Boursier J.M., « Fissuration par corrosion sous contrainte des alliages fer-nickel-chrome en milieu primaire de réacteur à eau sous pression », *Thèse, Université Bordeaux I* (janvier 1993[a]).

Boursier J.M., de Bouvier O., Gras J.-M., Noël D., et coll., « SCC of Alloy 600 in high temperature water : a study of mechanisms », in : *Corrosion-deformation interactions CDI'92*, eds. T. Magnin et J.-M. Gras, Les éditions de physique 1993[b], pp. 117-137.

Brandon D.G., « The structure of high-angle grain boundaries », *Acta metallurgica,* **14** (1966), pp.1479-1484.

Bricknell R.H., Woodford D.A., « The embrittlement of nickel following high temperature air exposure », *Metallurgical transactions A*, **12A** (1981), pp. 425-433.

Bricknell R.H., Woodford D.A., « The mechanism of cavity formation during high temperature oxidation of nickel », *Acta metallurgica*, **30** (1982), pp. 257-264.

Bricknell R.H., Woodford D.A., « Prevention and reversal of oxygen embrittlement in nickel », *Metal science*, **18** (1984), pp. 265-271.

Browning P.F., Henry M.F., Rajan K., « Oxidation mechanisms in relation to high temperature crack propagation properties of Alloy 718 in H_2/H_2O/inert gas environment », in : *Superalloys 718, 625, 706 and Various Derivatives,* The Minerals, Metals and Materials Society 1997, pp. 665-678.

Bruemmer S.M., Henager C.H. Jr, « High voltage electron microscopy observations of microdeformation in Alloy 600 tubing », *Scripta metallurgica*, **20** (1986), pp. 909-914.

Bruemmer S.M., Charlot L.A., Henager C.H. Jr, « Microstructure and microdeformation effects on IGSCC of Alloy 600 steam generator tubing », *Corrosion*, **44** (1988), pp. 782-788.

Bruemmer S.M., Was G.S., « Microstructural and microchemical mechanisms controlling intergranular stress corrosion cracking in light-water-reactor systems », *Journal of nuclear materials,* **216** (1994), pp. 348-363.

Bruemmer S.M., « Interfacial precipitation, segregation and deformation in Alloy 600 : implications on primary-side IGSCC », in : *Proceedings : specialist meeting on environmental degradation of Alloy 600,* ed. R.G. Ballinger, A.R. McIlree, J.P.N. Paine, EPRI, Palo Alto, CA, December, 1996, papier 2.

Bulischeck T.S., Van Rooyen D., « Stress corrosion cracking of Alloy 600 using the constant strain rate test », *Corrosion*, **37** (1981), pp. 597-607.

Caplan D., Hussey R.J., Sproule G.I., Graham M.J., « Effect of carbon on cavity formation during the high-temperature oxidation of Ni », *Oxidation of metals*, **14** (1980), pp. 279-299.

Cassagne T., « Le modèle de clivage induit par un film », in : *Corrosion sous contrainte, phénoménologie et mécanismes*, Ecole d'automne de corrosion sous contrainte, eds. D. Desjardins et R. Oltra, Les éditions de physique 1992[a], pp. 373-396.

Cassagne T., Fleury B., Vaillant F., De Bouvier O., Combrade P., « An update on the influence of hydrogen on the PWSCC of Alloy 600 in high temperature water », in : *Eighth international symposium on environmental degradation of materials in nuclear power systems—water reactors,* American Nuclear Society, à paraître (1997).

Cassagne T.B., Combrade P., Foucault M.A., Gelpi A., « The influence of mechanical and environmental parameters on the crack growth behaviour of Alloy 600 in PWR primary water », in : *Twelfth scandinavian corrosion congress—Eurocorr'92*, Espoo, Finlande, ed. P.J. Tunturi, The Corrosion Society of Finland 1992[b], pp. 55-67.

Cassagne T., Gelpi A., « Crack growth rate measurements on Alloy 600 steam generator tubes in steam and primary water », in : *Fifth international symposium on environmental degradation of materials in nuclear power systems—water reactors*, American Nuclear Society 1992[c], pp. 518-524.

Cassagne T., Gelpi A., « Crack growth rate measurements on Alloy 600 steam generator tubing in primary and hydrogenated AVT water », in : *Sixth international symposium on environmental degradation of materials in nuclear power systems—water reactors*, eds. R.E. Gold, E.P. Simonen, The Minerals, Metals and Materials Society 1993, pp. 679-686.

Čermak J., « Grain boundary self-diffusion of ^{51}Cr in Fe-Cr-Ni alloys », *Zeitschrift für Metallkunde,* **81** (1990), pp. 193-195.

Chang K.M., « Metallurgical control of fatigue crack propagation in Alloy 718 », in : *Superalloys 718, 625 and various derivatives*, ed. E.A. Loria, The Minerals, Metals and Materials Society 1991, pp. 447-456.

Chassaigne J.C., « Fissuration d'un superalliage base nickel à 650°C sous air : effet de l'oxydation », *Matériaux et techniques*, n°XII, (1995), pp. 53-55.

Chassaigne J.C., « Fissuration à hautes températures du superalliage base nickel N18 élaboré par métallurgie des poudres, étude du couplage mécanique-environnement en pointe de fissure », *Thèse de Doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris* (avril 1997).

Chen W., Chaturvedi M.C., « Grain boundary dependent creep behaviour of Inconel 718 », *Canadian metallurgical quarterly*, **32** (1993), pp. 363-367.

Chuang T.J., Kagawa K.I., Rice J.R., Sills L.B., « Non-equilibrium models for diffusive cavitation of grain interfaces », *Acta metallurgica*, **27** (1979), pp. 265-284.

Clad T., « Microstructure and fatigue crack growth in the inertia friction weld of N18 alloy », *Thèse de Doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris* (décembre 1996).

Clavel M., Levaillant C., Pineau A., « Influence of micromechanisms of cyclic deformation at elevated temperature on fatigue behavior », in : *Creep-fatigue-environment interactions*, eds. R.M. Pelloux, N.S. Stoloff, The Minerals, Metals and Materials Society 1980, pp. 24-45.

Clément N., Caillard D., Martin J.L., « Heterogenous deformation of concentrated Ni-Cr F.C.C. alloys : macroscopic and microscopic behaviour », *Acta metallurgica,* **32** (1984), pp. 961-975.

Combrade P., « The role of surface films on the control of Alloy 600 corrosion in PWR reactors », in : *Proceedings : specialist meeting on environmental degradation of Alloy 600,* eds. R.G. Ballinger, A.R. McIlree, J.P.N. Paine, EPRI, Palo Alto, CA, December, 1996[a], papier 3.

Combrade P., Scott P., « The role of surface films on Alloy 600 corrosion in pressurised water reactors », in *: Corrosion-deformation interactions CDI'96*, Nice, septembre 1996[b], eds. T. Magnin et J.-M. Gras, The Institute of Materials, à paraître.

Contesti E., Cailletaud G., « Description of creep-plasticity interaction with non-unified constitutive equations : application to an austenitic stainless steel », *Nuclear engineering and design* **116** (1989), pp. 265-280.

Cook R.H., Skelton R.P., « Environment-dependence of the mechanical properties of metals at high temperature », *International metallurgical reviews*, **19** (1974), pp. 199-222.

Coriou H., Grall L., Le Gall Y., Vettier S., « Corrosion fissurante sous contrainte de l'Inconel dans l'eau à haute température », in : *Troisième colloque de métallurgie corrosion, Saclay,* 29 juin-1er juillet 1959, North Holland Publishing Compagny 1960, pp. 161-169.

Crawford D.C., Was G.S., « The role of grain boundary misorientation in intergranular cracking of Ni-16Cr-9Fe in 360°C argon and high-purity water », *Metallurgical transactions A*, **23A** (1992), pp.1195-1206.

Crossman F.W., Ashby M.F., « The non-uniform flow of polycrystals by grain-boundary sliding accommodated by power-law creep », *Acta metallurgica*, **23** (1975), pp. 425-440.

Delobelle P., « Synthesis of the elastoviscoplastic behavior and modelization of an austenitic stainless steel over a large temperature range, under uniaxial and biaxial loadings—Part I : behavior », *International journal of plasticity* **9** (1993), pp. 65-85.

Douglas D.A., « The effect of environment on high-temperature creep properties of metals and alloys », in : *High temperature materials*, eds. R.F. Hehemann et G. Mervin Ault, John Wiley and Sons Inc., New York 1959, pp. 429-447.

Douglass D.L., « The effect of oxidation on the mechanical behaviour of nickel at 600°C », *Materials science and engineering*, **3** (1968/69), pp. 255-263.

Dyson B., « An analysis of carbon/oxygen gas bubble formation in some nickel alloys », *Acta metallurgica* **30** (1982), pp. 1639-1646.

Economy G., Jacko R.J., Pement F.W., « IGSCC behavior of Alloy 600 steam generator tubing in water or steam tests above 360°C », in : *Corrosion'86*, 17-21 mars 1986, Houston, TX, NACE 1986, papier 250.

Economy G., Jacko R.J., Begley J.A., Pement F.W., « Influence of hydrogen partial pressure on the IGSCC behavior of Alloy 600 tubing in 360°C water or 400°C steam », in : *Corrosion'87,* 9-13 mars 1987, Houston, TX, NACE 1987, papier 92.

Elstner F., Oquab D., Pieraggi B., Monceau D., Ecole Nationale Supérieure de Chimie de Toulouse, *communication privée* (1997).

Ericsson T., « Review of oxidation effects on cyclic life at elevated temperature », *Canadian metallurgical quarterly*, **18** (1979), pp. 177-195.

Evans H.E., Knowles G., « A model of creep in pure materials », *Acta metallurgica*, **25** (1977), pp. 963-975.

Evans H.E., « Cavity formation and metallurgical changes induced by growth of oxide scale », *Materials science and technology*, **4** (1988), pp. 1089-1098.

Evans H.E., « Stress effects in high temperature oxidation of metals », *International materials reviews*, **40** (1995), pp. 1-40.

Evans J.T., Parkins R.N., « Creep induced by load cycling in a C-Mn steel », *Acta metallurgica,* **24** (1976), pp. 511-515.

Flanagan W.F., Lichter B.D., Magnin T., « Dissolution/deformation interactions in stress-corrosion cracking », in : *Corrosion-deformation interactions CDI'92*, eds. T. Magnin et J.-M. Gras, Les éditions de physique 1993, pp. 685-699.

Floreen S., Kane R.H., « Effects of environment on high-temperature fatigue crack growth in a superalloy », *Metallurgical transactions A*, **10A** (1979), pp. 1745-1751.

Floreen S., Raj R., « Environmental effects in nickel-base alloys », in *: Flow and fracture at elevated temperatures*, ed. R. Raj, American Society for Metals 1985, pp. 383-405.

Ford F.P., « Slip-dissolution model », in : *Corrosion sous contrainte, phénoménologie et mécanismes*, Ecole d'automne de corrosion sous contrainte, eds. D. Desjardins et R. Oltra, Les éditions de physique 1992, pp. 307-344.

Foster J.P., Bamford W.H., Pathania R.S., « Initial results of Alloy 600 crack growth rate testing in a PWR environment », in : *Seventh international symposium on environmental degradation of materials in nuclear power systems—water reactors*, National Association of Corrosion Engineers (NACE) 1995, pp. 25-40.

Fraser H.L., Loretto M.H., Smallman R.E., Wasilewski R.J., « Oxidation-induced defects in NiAl », *Philosophical magazine*, **28** (1973), pp. 639-650.

Frost H.J., Ashby M.F., *Deformation-mechanism maps*, Pergamon Press, 1982.

Galvele J.R., « Surface mobility mechanism of stress-corrosion cracking », *Corrosion science*, **35** (1993), pp. 419-434.

Garriga-Majo D., « Etude métallurgique de la corrosion sous contrainte en milieux aqueux de l'alliage 600 (NC15Fe) », *Thèse, Université de Paris-Sud*, Centre d'Orsay (juin 1993).

Garud Y.S., Mc Ilree A.R., « Application of the strain rate damage model to simplified and statistical predictions of IGSCC », in : *Seventh international symposium on environmental degradation of materials in nuclear power systems—water reactors*, NACE 1995, pp. 947-957.

Gaudett M.A., Scully J.R., « Applicability of bond percolation theory to intergranular stress-corrosion cracking of sensitized AISI 304 stainless steel », *Metallurgical and materials transactions A*, **25A** (1994), pp. 775-787.

Gelpi A., Noël D., Hélie M., « La corrosion sous contrainte dans la pratique industrielle. Cas de l'industrie électronucléaire », *Matériaux et techniques,* (septembre 1988), pp. 25-31.

Gendron T.S., Newman R.C., « Irreversible embrittlement of Alloy 600 in hydrogenated steam at 400°C », in : *Corrosion'94*, NACE 1994, paper 227.

Gendron T.S., Newman R.C., Bushby S.J., « Oxidation embrittlement of Ni-Cr-Fe alloys in hydrogenated steam at 400°C », in *: Corrosion-deformation interactions CDI'96*, Nice, septembre 1996, eds. T. Magnin et J.-M. Gras, The Institute of Materials, à paraître.

Gesmundo F., Philibert J., Niu Y., « The effect of the reactions at the scale-gas and scale-metal interfaces on the kinetics oxidation of pure metals », *Revue de métallurgie—CIT/Science et génie des matériaux*, (décembre 1995), pp. 1315-1330.

Ghonem H., Nicholas T., Pineau A., « Elevated temperature fatigue crack growth in alloy 718 », *Fatigue and fracture of engineering materials and structures*, **16** (1993), pp. 565-590.

Gibbs G.B., Hales R., « Influence of metal lattice vacancies on the oxidation of high temperature materials », in : *Vacancies'76*, eds. R.E. Smallman et J.E. Harris, The Metals Society 1976, pp. 201-207.

Goedjen J.G., Shores D.A., Stout J.H., « In-situ strain measurements in the Ni/NiO system during high temperature oxidation », *Materials science and engineering A*, **A222** (1997), pp. 58-69.

Gonzalès-Balanchi, J.J., « Influence des éléments alcalino-terreux sur l'oxydation du nickel », *Thèse de Doctorat, Science des matériaux, Institut National Polytechnique de Toulouse* (1995).

Gras J.-M., « Stress corrosion cracking of steam generator materials : Review and assessment », in : *Parkins symposium on fundamental aspects of stress corrosion cracking*, eds. S.M. Bruemmer, E.I. Meletis, et coll., The Minerals, Metals and Materials Society 1992, pp. 411 et suivantes.

Hakiki N., Colin D., de Bouvier O., Picquenard E., et coll., « Etude des films d'oxyde formés sur les alliages à base de nickel 600 et 690 et l'acier inoxydable 316L en milieu primaire », in : *International symposium Fontevraud III, contribution of materials investigation to the resolution of problems encountered in pressurized water reactors*, 12-16 septembre 1994, SFEN 1994, pp. 327-336.

Hales R., Dobson P.S., Smallman R.E., « The production of vacancies by oxidation in zinc and magnesium », *Metal science journal*, **2** (1968), pp. 224-227.

Hall E.L., Briant C.L., « The microstructural response of mill-annealed and solution-annealed Inconel 600 to heat treatment », *Metallurgical transactions* A, **16A** (1985), pp. 1225-1236.

Hancock P., « Influence of vacancies produced by oxidation on the mechanical properties of nickel and nickel-chromium alloys », in : *Vacancies'76*, eds. R.E. Smallman et J.E. Harris, The Metals Society 1976, pp. 215-222.

Hanson A.L., Isaacs H.S., Kraner H.W., « Determination of surface oxide compositions on Alloy 600 using nuclear analytical techniques », *Corrosion*, **41** (1985), pp. 324-327.

Harris J.E., « Role of interfaces during oxidation », *Materials science and technology*, **4** (1988), pp. 457-459.

Hertzberg J.L., Was G.S., « The effect of carbon distribution on deformation and cracking of Ni-16Cr-9Fe-C alloys », in : *Seventh international symposium on environmental degradation of materials in nuclear power systems—water reactors*, ed. G. Airey et coll., NACE 1995[a], pp. 139-149.

Hertzberg J.L., Was G.S., « The effect of carbon on grain boundary diffusivity in Ni-16Cr-9Fe alloys », *Scripta metallurgica et materialia,* **33** (1995[b]), pp. 1193-1199.

Hochstetter G., « Propagation des fissures à haute température dans le superalliage N18 pour disques de turbomachine. Interactions entre la nature des sollicitations mécaniques et des effets d'oxydation », *Thèse de Doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris* (janvier 1994).

Hong S.H., Kim H.Y., Jang J.S., Kuk I.H., « Dynamic strain aging behavior of Inconel 600 alloy », in : Superalloys 1996, eds. R.D. Kissinger, D.J. Deye, et coll., The Minerals, Metals and Materials Society 1996, pp. 401-407.

Huntz A.M., Rousselet J., Quesne C., Moulin G., « Combined or successive effect of a strain and of oxidation of an Ni Cr-16 Fe-8 alloy », *Key engineering materials* (1988), pp. 3555-3563.

Huntz A.M., Liu C., Lebrun J.L., « Stresses in NiO scales determined by XRD at high temperature. Influence of the cooling rate on the scale spalling », in : *Corrosion-deformation interactions CDI'92*, eds. T. Magnin et J.-M. Gras, Les éditions de physique 1993, pp.841-857.

Huntz A.M., « Stresses in NiO, Cr_2O_3 and Al_2O_3 oxide scales », *Materials science and engineering A*, **A201** (1995), pp. 211-228.

Huddleston R.L., « Assessment of an improved multiaxial strength theory based on creep-rupture data for Inconel 600 », in : *ASME Pressure vessel and piping meeting,* Denver, CO, 26-30 juillet 1993, 11p.

James L.A., « The effect of temperature upon the fatigue-crack growth behavior of two nickel-base alloys », *Journal of engineering materials and technology*, **95** (1973), pp. 254-256.

Jones D.A., « A unified mechanism of stress corrosion and corrosion fatigue cracking », *Metallurgical transactions A*, **16A** (1985), pp. 1133-1141.

Kennedy C.R., Harms W.O., Douglas D.A., « Multiaxial creep studies on Inconel at 1500°F », *Transactions of the ASME—Journal of basic engineering* (décembre 1959), pp. 599-609.

Kergaravat J.-F., « Influence de la microstructure sur la sensibilité à la corrosion sous contrainte des Alliages 600 et 690 en milieu primaire des réacteurs à eau sous pression », *Thèse, Institut National Polytechnique de Grenoble*, (janvier 1996).

Kocks U.F., Cook R.E., Mulford R.A., « Strain aging and strain hardening in Ni-C alloys », *Acta metallurgica,* **33** (1985), pp. 623-638.

Latanision R.M., « Physical metallurgy of nickel-base alloys at it relates to corrosion », *Journal of materials engineering,* **10** (1988), pp. 143-162.

Le Calvar M., Lenglet M., « Etude, par spectroscopies optiques de reflexion dans l'ultraviolet, visible, proche infrarouge et infrarouge, par spectroscopie XPS de l'oxydation d'un alliage Ni-20Cr », *Journal of nuclear materials*, **173** (1990), pp. 71-77.

Lee D., Vermilyea D.A., « The initiation of intergranular failure in Inconel 600 », *Metallurgical transactions,* **2** (1971), pp. 2565-2571.

Lemaitre J., Chaboche J.L., *Mécanique des matériaux solides*, Dunod, Paris 1988, seconde édition.

Levy N., Marcal P.V., Ostergren W.J., Rice J.R., « Small scale yielding near a crack in plane strain : a finite element analysis », *International journal of fracture mechanics,* **7** (1971), pp. 143-156.

Li S., Zhuang J., Yang J., et coll., « The effect of δ-phase on crack propagation under creep and fatigue conditions in Alloy 718 », in : *Superalloys 718, 625, 706 and various derivatives*, ed. E.A. Loria, The Minerals, Metals and Materials Society 1994, pp. 545-555.

Lim L.C., Raj R., « Effect of boundary structure on slip-induced cavitation in polycrystalline nickel », *Acta metallurgica,* **32** (1984), pp. 1183-1190.

Lim, L.C., « Surface intergranular cracking in large strain fatigue », *Acta metallurgica*, **35** (1987), pp. 1653-1662.

Lin P., Palumbo G., Erb U., Aust K.T., « Influence of grain boundary character distribution on sensitization and intergranular corrosion of Alloy 600 », *Scripta metallurgica et materialia,* **33** (1995), pp. 1387-1392.

Liu H., Gao M., Harlow D.G., Wei R.P., « Grain boundary character, and carbide size and spatial distribution in a ternary nickel alloy », *Scripta metallurgica et materialia,* **32** (1995), pp. 1807-1812.

Lott R.G., Jacko R.J., Gold R.E., « Primary water stress corrosion crack growth rates in Alloy 600 steam generator tubing », in : *Fifth international symposium on environmental degradation of materials in nuclear power systems—water reactors*, American Nuclear Society 1992, pp. 525-532.

Loyer Danflou H., Marty M., Walder A., « Formation of serrated grain boundaries and their effect on the mechanical properties in a P/M nickel base superalloy », in : *Superalloys 1992*, eds. S.D. Antolovich, R.W. Stusrud, et coll., The Minerals, Metals and Materials Society 1992, pp. 63-72.

Lu H.-M., Delph T.J., Dwyer D.J., Gao M., Wei R.P., « Environmentally-enhanced cavity growth in nickel and nickel-based alloys », *Acta materialia*, **44** (1996), pp. 3259-3266.

McClintock F.A., « Fracture mechanics for corrosion fatigue », in *: Corrosion fatigue : chemistry, mechanics and microstructure (NACE-2),* eds. O. Devereux, A.J. McEvily, R.W. Staehle, NACE 1972, pp. 289-302.

McCormick P.G., « Theory of flow localisation due to dynamic strain ageing », *Acta metallurgica,* **36** (1988), pp. 3061-3067.

McIntyre N.S., Zetaruk D.G., Owen D., « X-ray photoelectron studies of the aqueous oxidation of Inconel 600 alloy », *Journal of the electrochemical society*, **126** (1979), pp. 750-760.

McIntyre N.S., Chan T.C., Chen C., « Characterization of oxide structures formed on nickel-chromium alloy during low pressure oxidation at 500-600°C », *Oxidation of metals*, **33** (1990), pp. 457-479.

McMeeking R.M., « Finite deformation analysis of crack-tip opening in elastic-plastic materials and implications for fracture », *Journal of mechanics and physics of solids*, **25** (1977), pp. 357-381.

Magnin T., Chieragatti R., Oltra R., « Mechanism of brittle fracture in a ductile 316 alloy during stress corrosion », *Acta metallurgica et materialia*, **38** (1990), pp. 1313-1319.

Magnin T., « Proposition d'un modèle de fissuration en corrosion sous contrainte applicable à l'Alliage 600 en milieu PWR », *Revue de métallurgie—CIT/Science et génie des matériaux* (février 1993), pp. 291-298.

Meletis E.I., Lian K., Huang W., « Vacancy-dislocation interactions and transgranular stress corrosion cracking », in : *Corrosion-deformation interactions CDI'92*, eds. T. Magnin et J.-M. Gras, Les éditions de physique 1993, pp. 69-81.

Mesarovic S.D., « Dynamic strain aging and plastic instabilities », *Journal of the mechanics and physics of solids,* **43** (1995), pp. 671-700.

Molins R., Andrieu E., Pineau A., « Overaging, deformation and rupture micromechanisms of Alloy 718 in relation to notch creep rupture strength », in : *Superalloys 718, 625 and various derivatives*, ed. E.A. Loria, The Minerals, Metals and Materials Society 1991, pp. 589-602.

Molins R., Andrieu E., « TEM investigation of the oxidation of nickel-based superalloys and Ni-Cr alloys », in : *Microscopy of oxidation-2*, eds. S.B. Newcomb, M.J. Bennett, Institute of Materials 1993, pp. 162-171.

(Gervais-)Molins R., « Oxydation de superalliages à base de nickel. Identification des mécanismes et conséquences sur le mode de propagation des fissures en fatigue à haute température », *Thèse de Doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris* (avril 1995).

Molins R., Hochstetter G., Chassaigne J.C., Andrieu E., « Oxidation effects on the fatigue crack growth behaviour of Alloy 718 at high temperature », *Acta materialia*, **45** (1997), pp. 663-674.

Monma K., Suto H., Oikawa H., « High temperature creep of nickel-chromium alloys », *Nippon kinzoky gakkaishi*, **28** (1964), pp. 253-263.

Moulin P., Huntz A.M., Lacombe P., « Influence du carbone sur la diffusion du chrome et du nickel en volume et dans les joints de grains de l'alliage Ni-Cr 80/20 », *Acta metallurgica,* **27** (1979), pp. 1431-1443.

Mulford R.A., « Analysis of strengthening mechanisms in alloys by means of thermal-activation theory », *Acta metallurgica,* **27** (1979[a]), pp. 1115-1124.

Mulford R.A., Kocks U.F., « New observations on the mechanisms of dynamic strain aging and of jerky flow », *Acta metallurgica,* **27** (1979[b]), pp. 1125-1134.

Neuhaus P., Herzig C., « The temperature dependence of grain boundary self diffusion in nickel », *Zeitschrift für Metallkunde,* **79** (1988), pp. 595-599.

Newman R.C., Mehta A., « Stress corrosion cracking of austenitic steels », in : Environment-induced cracking of metals, eds. R.P. Gangloff et M.B. Ives, NACE 1990, pp. 489-509.

Noden J.D., Knights C.J., Thomas M.W., « Growth of austenitic stainless steels oxidised in carbon and oxygen bearing gases », *British corrosion journal,* **3** (1968), pp. 47-55.

Olive J.M., Sarrazin C., « Effect of anodic dissolution on creep rate of austenitic stainless steel », in : *Corrosion-deformation interactions CDI'92*, eds. T. Magnin et J.-M. Gras, Les éditions de physique 1993, pp. 153-162.

Pan Y., Olson T., Adams B.L., « Applications of orientation imaging analysis to microstructural control of intergranular stress corrosion cracking », *Canadian metallurgical quarterly,* **34** (1995), pp. 147-154.

Pandey M.C., Taplin D.M.R., Mukherjee A.K., « Tensile behavior of Inconel alloy X-750 in air and vacuum at elevated temperatures », *Metallurgical transactions A*, **15A** (1984), pp. 1763-1767.

Pandey M.C., Taplin D.M.R., Ashby M.F., Dyson B.F., « The effect of prior exposure-time on air environment/creep interactions », *Acta metallurgica*, **34** (1986), pp. 2225-2233.

Pandey M.C., Rama Rao P., « Effect of exposure to air at 1050°C on precipitation of carbides in Inconel 600 », *Scripta metallurgica*, **22** (1988), pp. 1201-1205.

Pandey M.C., Rama Rao P., « Effect of prior air exposure at elevated temperatures on the creep behaviour of Inconel 600 », *Scripta metallurgica*, **23** (1989), pp. 59-64.

Parkins R.N., Greenwell B.S., « The interface between corrosion fatigue and stress-corrosion cracking », *Metal science* (août-septembre 1977), pp. 405-413.

Parkins R.N., « Development of strain-rate testing and its implications », *Stress corrosion cracking—the slow strain-rate technique,* ASTM STP 665, eds. G.M. Ugiansky et J.H. Payer, ASTM 1979, pp. 5-25.

Parkins R.N., « Strain rate effects in stress corrosion cracking », *Corrosion,* **46** (1990), pp. 178-189.

Parkins R.N., « Current understanding of stress corrosion cracking », *Journal of metals* (décembre 1992), pp. 12-19.

Parkins R.N., Belhimer E, Blanchard W.K. Jr, « Stress corrosion cracking characteristics of a range of pipeline steels in carbonate-bicarbonate solutions », *Corrosion,* **49** (1993), pp. 951-966.

Pédron J.P., Pineau A., « The effect of microstructure and environment on the crack growth behaviour of Inconel 718 alloy at 650°C under fatigue, creep and combined loading », *Materials science and engineering*, **56** (1982), pp. 143-156.

Perry A.J., « Review : cavitation in creep », *Journal of materials science*, **9** (1974), pp. 1016-1039.

Petit J., de Fouquet J., Hénaff G., « Influence of ambient atmosphere on fatigue crack growth behaviour of metals », in : *Handbook of fatigue crack propagation in metallic structures,* ed. A. Carpinteri, Elsevier Science B.V. 1994.

Pichon C., Buisine D., Faidy C., Gelpi, « Phenomenon analysis of stress corrosion cracking in the vessel head penetrations of French PWR's », in : *Seventh international symposium on environmental degradation of materials in nuclear power systems—water reactors*, NACE 1995, pp. 1-11.

Pickus M.R., Parker E.R., « Creep behavior of zinc modified by copper in the surface layer », *Journal of metals*, (septembre 1951), pp. 792-796.

Pieraggi B., Rapp R.A., Hirth J.P., « Role of interface structure and interfacial defects in oxide scale growth », *Oxidation of metals*, **44** (1995), pp. 63-79.

Pilvin P., « Approches multiéchelles pour la prévision du comportement anélastique des métaux », *Thèse, Université Pierre et Marie Curie (Paris VI)* (décembre 1990).

Pineau A., « Intergranular creep-fatigue crack growth in Ni-base alloys », in *: Flow and fracture at elevated temperatures*, ed. R. Raj, American Society for Metals 1985, pp. 317-348.

Pommier S., « Amorçage et propagation de fissures courtes en fond d'entaille. Etude du superalliage N18 en fatigue-fluage », *Thèse, Ecole Centrale de Paris* (octobre 1995).

Raj R., « Correlations between cavitation, creep and dilation for multiaxial loading », *Acta metallurgica*, **31** (1983), pp. 29-36.

Rajan V.B., Sung J.K., Was G.S., « Stress corrosion cracking of controlled purity Inconel 600 type alloys in high purity water and caustic solutions », in : *Third international symposium on environmental degradation of materials in nuclear power systems—water reactors*, eds. G.J Theus et J.R. Weeks, The Minerals, Metals and Materials Society 1988, pp. 545-550.

Rebak R.B., Szklarska-Smialowska Z., « Effect of partial pressure of hydrogen on IGSCC of Alloy 600 in PWR primary water », *Corrosion*, **47** (1991), pp. 754-757.

Rebak R.B., Szklarska-Smialowska Z., « Effect of specimen thickness on cracking susceptibility of Alloy 600 in high-temperature water », *Corrosion,* **51** (1995[a]), pp. 376-379.

Rebak R.B., Xia Z., Szklarska-Smialowska Z., « Effect of temperature and cold work on the crack growth rate of Alloy 600 in primary water », *Corrosion*, **51** (1995[b]), pp. 689-697.

Rebak R.B., Szklarska-Smialowska Z., « About the mechanism of stress corrosion cracking of Alloy 600 in high temperature water », in : *Seventh international symposium on environmental degradation of materials in nuclear power systems—water reactors*, NACE 1995[c], pp. 855-865.

Rehbinder P., « New physico-chemical phenomena in the deformation and mechanical treatment of solids », *Nature*, **159** (1947), pp. 866-867.

Reiter F., Camposilvan J., « Thermal outgassing properties of mechanically polished and of sand- and bead-blasted Inconel 600 surfaces up to 500°C », *Vacuum*, **32** (1982), pp. 227-232.

Rémy L., « Oxidation effects in high temperature creep and fatigue of engineering alloys », in : *Corrosion-deformation interactions CDI'92*, eds. T. Magnin et J.-M. Gras, Les éditions de physique 1993, pp. 425-459.

Revie R.W., Uhlig H.H., « Effect of applied potential and surface dissolution on the creep behavior of copper », *Acta metallurgica*, **22** (1974), pp. 619-627.

Rice J.R., « Mechanics of crack tip deformation and extension by fatigue », in : *Fatigue crack propagation*, ASTM STP 415, 1967, pp. 247-311.

Rice J.R., Johnson M.A., « The role of large crack tip geometry changes in plane strain fracture », in : *Inelastic behavior of solids*, eds. M.F. Kanninen et W.F. Adler, McGraw Hill, New York 1970, pp. 641-672.

Rice J.R., Thomson R., « Ductile versus brittle behaviour of crystals », *Philosophical Magazine,* **29** (1974), pp. 73-97.

Riedel H., Rice J.R., « Tensile cracks in creeping solids », in : *Fracture mechanics : twelfth conference*, ASTM STP 700, 1980, pp. 112-130.

Rios R., Magnin T., Noël D., de Bouvier O., « Critical analysis of Alloy 600 stress corrosion cracking mechanisms in primary water », *Metallurgical and materials transactions A*, **26A** (1995), pp. 925-939.

Robertson I.M., Birnbaum H.K., « An HVEM study of hydrogen effects on the deformation and fracture of nickel », *Acta metallurgica*, **34** (1986), pp. 353-366.

Robertson I.M., Teter D., « Microscopic studies on hydrogen effects on mechanical properties »,9U *Journal of metals*, **48** (1996), pp. 55-60.

Rousselet J.M., « Influence d'une prédéformation et des impuretés S et C sur la résistance à l'oxydation d'un alliage $Ni_{76}Cr_{16}Fe_8$ (Inconel 600) », *Métaux, Corrosion, Industrie,* n^{os} **767** (juillet 1989), **769** (septembre 1989), **770** (octobre 1989) et **773** (janvier 1990).

Saario T., Aaltonen P., Karjalainen-Roikonen P., et coll., « Selective dissolution-vacancy-creep model for IGSCC of Alloy 600 », in : *Seventh international symposium on environmental degradation of materials in nuclear power systems—water reactors*, NACE 1995, pp. 841-854.

Sadananda K., Shahinian P., « High-temperature crack-growth behaviour in Nimonic PE16 and Alloy 718 », *Metals technology*, (janvier 1982), pp. 18-25.

Sadananda K., Shahinian P., « Creep crack growth behavior of several structural alloys », *Metallurgical transactions A*, **14A** (1983), pp. 1467-1480.

Sala B., Organista M., Henry K., Erre R., et coll., « Laboratory study of corrosion of steam generator tubes : preliminary results », in : *Seventh international symposium on environmental degradation of materials in nuclear power systems—water reactors*, NACE 1995, pp. 259-275.

Santarini G., « Comprehensive interpretation of CERTs : a method for the characterization and the prediction of IGSCC », *Corrosion*, **45** (1989), pp. 369-381.

Schmitt J.F., Pacia N., Pigeat P., Weber B., « First steps of the Ni-20Cr alloy oxidation studied by Auger electron microprobe », *Surface and interface analysis*, **18** (1992), pp. 789-793.

Schmitt J.F., Pacia N., Pigeat P., Weber B., « Study of the initial oxidation of a Ni-20Cr alloy in the temperature range 550-830°C : influence of mechanical deformation », *Oxidation of metals*, **44** (1995), pp. 429-452.

Scott P., Le Calvar M., « Some possible mechanisms of intergranular stress corrosion cracking of Alloy 600 in PWR primary water », in : *Sixth international symposium on environmental degradation of materials in nuclear power systems—water reactors*, eds. R.E. Gold, E.P. Simonen, The Minerals, Metals and Materials Society 1993, pp. 657-665.

Scott P.M., « Prediction of Alloy 600 component failures in PWR systems », in : *Proccedings of Corrosion'96, Research topical symposia, Part I : Life prediction of structures subject to environmental degradation,* NACE 1996[a], pp. 135-160.

Scott P.M., Le Calvar M., « On the role of oxygen in SCC as a function of temperature », in : *Corrosion-Deformation Interactions CDI'96*, Nice, 24-26 septembre 1996[b], eds. T. Magnin et J.-M. Gras, The Institute of Materials, à paraître.

Shahinian P., Achter M.R., « A comparison of the creep-rupture properties of nickel in air and in vacuum », *Transactions of the Metallurgical Society of AIME*, **215** (1959[a]), pp. 37-41.

Shahinian P., Achter M.R., « Temperature and stress dependence of the atmosphere effect on a nickel-chromium alloy », *Transactions of the American Society for Metals*, **51** (1959[b]), pp. 244-255.

Shen C.H., Shewmon P.G., « A mechanism for hydrogen-induced intergranular stress corrosion cracking in Alloy 600 », *Metallurgical transactions A*, **21A** (1990), pp. 1261-1271.

Shen Y., Shewmon P.G., « IGSCC crack growth of Alloy 600 and X-750 in steam », *Corrosion*, **47** (1991[a]), pp. 712-718.

Shen Y., Shewmon P.G., « Intergranular stress corrosion cracking of Alloy 600 and X-750 in high-temperature deaerated water/steam », *Metallurgical transactions A*, **22A** (1991[b]), pp. 1857-1864.

Shewmon P., Shen Y.L., Shen C.H., Meshii M., « Analysis of diffusion controlled release of hydrogen from nickel and Inconel 600 », *Acta metallurgica*, **37** (1989), pp. 1913-1921.

Sidey D., Coffin L.F., Jr., « Low-cycle fatigue damage mechanisms at high temperature », in : *Fatigue mechanisms,* ed. J. T. Fong, ASTM STP 675, ASTM 1979, pp. 528-568.

Sirois E., Birnbaum H.K., « Effects of hydrogen and carbon on thermally activated deformation in nickel », *Acta metallurgica et materialia*, **40** (1992[a]), pp. 1377-1385.

Sirois E., Sofronis P., Birnbaum H.K., « Effects of hydrogen and carbon on thermally activated deformation in nickel », in : *Parkins symposium on fundamental aspects of stress corrosion cracking*, eds. S.M. Bruemmer, E.I. Meletis, et coll., The Minerals, Metals and Materials Society 1992[b], pp. 173-190.

Smith H.H., Shahinian P., Achter M.R., « Fatigue crack growth rates in type 316 stainless steel at elevated temperature as a function of oxygen pressure », *Transactions of the Metallurgical Society of AIME*, **245** (1969), pp. 947-953.

Smith H.H., Michel D.J., « Fatigue crack propagation and deformation mode in Alloy 718 at elevated temperatures », in : *Ductility and toughness considerations in elevated temperature service,* ed. G.V. Smith, ASME 1978, pp. 225-246.

Speidel M.O., Magdowski R., « Stress corrosion crack growth of cold worked nickel base Alloy 600 », in : *Corrosion-deformation interactions CDI'92*, eds. T. Magnin et J.-M. Gras, Les éditions de physique 1993, pp. 107-115.

Spingarn J.R., Barnett D.M., Nix W.D., « Theoretical descriptions of climb controlled steady state creep at high and intermediate temperatures », *Acta metallurgica*, **27** (1979), pp. 1549-1561.

Stegman R.L., Shahinian P., « Effect of temperature on the fatigue of nickel at varying oxygen pressures », in : *Fatigue at high temperature*, ASTM STP 459, 1969[a], pp. 42-58.

Stegman R.L., Shahinian P., Achter M.R., « The weakening effect of oxygen on nickel in creep rupture », *Transactions of the Metallurgical Society of AIME*, **245** (1969[b]), pp. 1759-1763.

Stiller K., Nilsson J.-O., Norring K., « Structure, chemistry, and stress corrosion cracking of grain boundaries in Alloys 600 and 690 », *Metallurgical and materials transactions A*, **27A** (1996), pp. 327-341.

Sui G, Titchmarsh J.M., Heys G.B., Congleton J., « Stress corrosion cracking of Alloy 600 and Alloy 690 in hydrogen/steam at 380°C », *Corrosion science*, **39** (1997), pp. 565-587.

Sung J.K., Jones J.W., Was G.S., « Effect of carbon on the low-temperature creep behavior of Ni-16Cr-9Fe », *Metallurgical transactions A*, **23A** (1992), pp. 1033-1037.

Szklarska-Smialowska Z., Xia Z., Valbuena R.R., « Mechanism of crack growth in Alloy 600 in high-temperature deaerated water », *Corrosion*, **50** (1994), pp. 676-681.

Thaveeprungsriporn V., Was G.S., « Grain boundary properties of Ni-16Cr-9Fe at 360°C », *Scripta materialia*, **35** (1996), pp. 1-8.

Thompson C.D., Krasodomski H.T., Lewis N., Makar G.L., « Prediction of PWSCC in nickel base alloys using crack growth rate models », in : *Seventh international symposium on environmental degradation of materials in nuclear power systems—water reactors*, NACE 1995, pp. 867-879.

Thompson C., Lewis N., Krasodomski H., « Analysis of Alloy 600 and X-750 stress corrosion cracks », in : *Proceedings : specialist meeting on environmental degradation of Alloy 600,* eds. R.G. Ballinger, A.R. McIlree, J.P.N. Paine, EPRI, Palo Alto, CA, December, 1996, papier 23.

Toribio J., « Stress corrosion testing with notched specimens : choice of the adequate kinematic variable », in : *ECF 10—Structural integrity : experiments, models and applications*, Berlin, septembre 1994, ed. K.H. Schwalbe, C. Berger, EMAS, pp. 709-720.

Totsuka N., Lunarska E., Cragnolino G., Szklarska-Smialowska Z, « A sensitive technique for evaluating susceptibility to IGSCC of Alloy 600 in high temperature water », *Scripta metallurgica*, **20** (1986), pp. 1035-1040.

Totsuka N., Szklarska-Smialowska Z., « Activation energy for IGSCC of Alloy 600 in an aqueous solution containing dissolved H_2 at 300 to 350°C », *Scripta metallurgica*, **21** (1987[a]), pp. 45-47.

Totsuka N., Lunarska E., Cragnolino G., Szklarska-Smialowska Z., « Effect of hydrogen on the intergranular stress corrosion cracking of Alloy 600 in high temperature aqueous environments », *Corrosion*, **43** (1987[b]), pp. 505-514.

Totsuka N., Szklarska-Smialowska Z., « Effect of electrode potential on the hydrogen-induced IGSCC of Alloy 600 in an aqueous solution at 350 C », *Corrosion,* **43** (1987[c]), pp. 734-738.

Uhlig H.H., « Effect of surface dissolution on plastic deformation of iron and steel », *Journal of the electrochemical society,* **123** (1976), pp. 1699-1701.

Vaillant F., Amzallag C., Champredonde J., « Crack growth rate measurements of Alloy 600 vessel head penetrations », in : *Eighth international symposium on environmental degradation of materials in nuclear power systems—water reactors*, American Nuclear Society, à paraître (1997).

Van den Beukel A., « On the mechanism of serrated yielding and dynamic strain ageing », *Acta metallurgica,* **28** (1980), pp. 965-969.

Van den Beukel A., Kocks U.F., « The strain dependence of static and dynamic strain-aging », *Acta metallurgica,* **30** (1982), pp. 1027-1034.

Was G.S., Tischner H.H., Latanision R.M., « The influence of thermal treatment on the chemistry and structure of grain boundaries in Inconel 600 », *Metallurgical transactions A*, **12A** (1981), pp.1397-1408.

Was G.S., Martin J.R., « The influence of grain boundary precipitation on the measurement of chromium redistribution and phosphorus segregation in Ni-16Cr-9Fe », *Metallurgical transactions A*, **16A** (1985[a]), pp. 349-359.

Was G.S., Kruger R.M., « A thermodynamic and kinetic basis for understanding chromium depletion in Ni-Cr-Fe alloys », *Acta metallurgica* **33** (1985[b]), pp. 841-854.

Was G.S., « Microchemical and microstructural effects on stress corrosion cracking of nickel-base alloys », in : *Parkins symposium on fundamental aspects of stress corrosion cracking*, eds. S.M. Bruemmer, et coll., The Minerals, Metals and Materials Society 1992[a], pp. 371-387.

Was G.S., Sung J.K., Angeliu T.M., « Effects of grain boundary chemistry on the intergranular cracking behavior of Ni-16Cr-9Fe in high-temperature water », *Metallurgical transactions A*, **23A** (1992[b]), pp. 3343-3359.

Was G.S., Angeliu T.M., Sung J.K., « Deformation and intergranular cracking behavior of Ni-Cr-Fe alloys at high temperature », in : *Proceedings : specialist meeting on environmental degradation of Alloy 600,* eds. R.G. Ballinger, A.R. McIlree, J.P.N. Paine, EPRI, Palo Alto, CA, 1996, papier 24.

Weerasooriya T., Venkataraman S., « Frequency and environment effects on crack growth in Inconel 718 », in : *Effects of load and thermal histories on mechanical behavior of materials*, eds. P.K. Liaw, T. Nicholas, The Metallurgical Society 1988, pp. 101-110.

Weinstein A.M., Ferraglio P., Mukherjee K., « Dynamic strain aging of carbon doped Ni », *Materials science and engineering,* **8** (1971), pp. 198-202.

Wells D.B., Stewart J., Herbert A.W., Scott P.M. and Williams D.E., « The use of percolation theory to predict the probability of failure of sensitized austenitic stainless steels by intergranular stress corrosion cracking », *Corrosion* **45** (1989), pp. 649-660.

Woodford D.A., « Environmental damage of a cast nickel base superalloy », *Metallurgical transactions A*, **12A** (1981[a]), pp. 299-308.

Woodford D.A., Bricknell R.H., « Grain boundary penetration of oxygen in nickel and the effect of boron additions », *Metallurgical transactions A*, **12A** (1981[b]), pp. 1467-1475.

Wu D., Ahluwalia H.S., Cai H., Evans J.T. and Parkins R.N., « Cyclic loading effects in the environment sensitive cracking of α-brass », *Corrosion science,* **32** (1991), pp. 769-794.

Wycliffe P., Kocks U.F., Embury J.D., « On dynamic and static strain ageing in substitutional and interstitial alloys », *Scripta metallurgica,* **14** (1980), pp. 1349-1354.

Xia Z., Lai W.-K., Szklarska-Smialowska Z., « Aftereffects produced in Alloy 600 by exposure to lithiated high-temperature water », *Corrosion*, **47** (1991), pp. 173-176.

Yoo M.H., Trinkaus H., « Crack and cavity nucleation at interfaces during creep », *Metallurgical transactions A*, **14A** (1983), pp. 547-561.

Young G.A., Scully J.R., « Evidence that carbide precipitation produces hydrogen traps in Ni-17Cr-8Fe alloys », *Scripta materialia*, **36** (1997), pp. 713-719.

Zheng D., Rosenberger A., Ghonem H., « Influence of prestraining on high temperature, low frequency fatigue crack growth in superalloys », *Materials science and engineering A*, **A161** (1993), pp. 13-21.

La fissuration intergranulaire par corrosion sous contrainte affecte depuis plusieurs décennies certaines pièces en Alliage 600 (NC15Fe) des réacteurs nucléaires à eau sous pression, telles que les tubes de générateur de vapeur et les manchettes d'adaptateur pour couvercle de cuve, exposées pendant plusieurs dizaines de milliers d'heures au milieu primaire (eau pure désaérée, additionnée d'hydrogène, de bore et de lithium entre 290 et 325°C).

L'objectif de l'étude est une meilleure compréhension des mécanismes responsables de la fissuration, en particulier des interactions entre les sollicitations mécaniques locales et les effets d'environnement liés à la présence d'un milieu oxydant. Des essais de propagation de fissure sur éprouvettes CT ont été réalisés en fatigue continue et en fatigue-fluage. L'analyse des résultats a porté sur les sollicitations mécaniques locales (calcul par éléments finis), les modes d'oxydation (expertises par microscopie électronique en transmission) et les interactions entre l'environnement et le comportement mécanique du matériau (essais sur produit mince).

La propagation de fissure intergranulaire à 550°C sous différentes pressions partielles d'oxygène a été reliée à un endommagement de fluage. La formation d'oxydes riches en nickel et/ou en fer accélère le fluage dislocation à proximité de la surface. Elle étend alors le domaine de rupture intergranulaire vers les vitesses de déformation locales plus élevées imposées en fatigue continue. Des résultats analogues ont été obtenus à 400°C.

Les essais en présence d'eau désaérée (vapeur à 400°C, milieu primaire à 320°C) ont également conduit à une propagation de fissure intergranulaire et à la formation d'oxydes riches en nickel. Les faciès de rupture sont identiques à ceux obtenus en corrosion sous contrainte. Une activation locale du fluage dislocation par les réactions d'oxydation est également envisagée pour rendre compte des résultats expérimentaux.

Since the early 1970s certain component parts of the primary loops of nuclear pressurised water reactors, such as steam generator tubing and pressure vessel head penetrations, have been affected by intergranular stress corrosion cracking. This form of cracking, which occurs after several thousand hours, initiates on the component side exposed to primary water.

The purpose of this study is to gain a better understanding of the cracking mechanism. The focus is on the interactions between the local mechanical loading conditions and the effects of an oxidising environment. Fatigue and creep fatigue crack propagation tests were carried out using CT specimens. The local mechanical loading conditions were determined by finite element calculations. The oxidation behaviour was studied by transmission electron microscopy. Creep tests were conducted on thin sheet samples to investigate the effects of environment on the creep properties.

Intergranular crack propagation, as determined at 550°C in air and in vacuum, has been related to a creep damage mechanism. Dislocation creep deformation mechanisms, which appear to induce intergranular damage in this material at high temperature, are enhanced when the growing oxide scale is nickel- or iron-rich, compared to the results obtained in high vacuum with the protective chromium oxide scale. Thus, intergranular fracture, which occurs in all environmental conditions under creep fatigue cycles, occurs even under fatigue cycles when creep is enhanced. Fatigue crack propagation tests at 400°C gave essentially the same results as those obtained at 550°C.

Crack propagation tests in deaerated water, either in low pressure vapour at 400°C or in primary water at 320°C, lead to the same cracking results. The fracture surfaces were identical to those observed after conventional stress corrosion cracking tests. For these environmental conditions, the enhanced creep model was also proposed to account for the experimental results.